

LIF를 이용한 Hg-Ar의 플라즈마 밀도 측정

최 용성¹, 황 종선², 박 계춘³, 송 민종⁴, 김 형곤⁵, 이 경섭¹
 동신대학교¹, 남도대학², 목포대학교³, 광주보건대학⁴, 조선이공대학⁵

Plasma Density Measurement of Hg-Ar by LIF Method

Yong-Sung Choi¹, Jong-Sun Hwang², Kye-Choon Park³, Min-Jong Song⁴, Hyeong-Gohn Kim⁵, Kyung-Sup Lee¹
 Dongshin University¹, Namdo Provincial College², Mokpo National University³,
 Kwangju Health College⁴, Chosun College of Science and Technology

Abstract : In this paper, we introduced a LIF measurement method and summarized the theoretical side. When an altered wavelength of laser and electric power, lamp applied electric power, we measured the relative density of the metastable state in mercury after observing a laser induced fluorescence signal of 404.8nm and 546.2nm, and confirmed the horizontal distribution of plasma density in the discharge lamp. Due to this generation, the extinction of atoms in a metastable state occurred through collision, ionization, and excitation between plasma particles. The density and distribution of the metastable state depended on the energy and density of plasma particles, intensely. This highlights the importance of measuring density distribution in plasma electric discharge mechanism study. The results confirmed the resonance phenomenon regarding the energy level of atoms along a wavelength change, and also confirmed that the largest fluorescent signal in 436nm, and that the density of atoms in 546.2nm ($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_2$) were larger than 404.8nm ($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_2$). According to the increase of lamp applied electric power, plasma density increased, too. When increased with laser electric power, the LIF signal reached a saturation state in more than 2.6mJ. When partial plasma density distribution along a horizontal axis was measured using the laser induced fluorescence method, the density decreased by recombination away from the center.

Key Words : LIF, Laser Induced Fluorescence, Plasma density, Plasma diagnosis

1. 서 론

플라즈마는 양전하를 띤 이온과 음전하를 띤 전자, 음이온으로 구성된다. 플라즈마 발생에 있어서 가장 중요한 역할을 하는 것은 전자이다. 대부분의 플라즈마 장치는 전자에 에너지를 전달하고 그 전자가 중성종과 충돌하여 이온화시키는 방법으로 플라즈마를 발생, 유지 한다.

생성과 유지를 담당하는 중요한 입자가 전자라면, 공정에 가장 중요하게 참여하는 입자는 이온이나 중성자 입자들이다. 이들 입자들에 의해 플라즈마 특성이 결정되기 때문에 이들에 대한 연구는 최근에 주목 받고 있다. OES (Optical Emission Spectroscopy)나 LIF (Laser Induced Fluorescence) 방법은 이러한 맥락에서 중성입자나 이온의 정보를 얻어내는 방법 중에 가장 주목 받고 있는 분야라 할 수 있다. OES는 방전된 플라즈마 자체로부터 나오는 빛을 분석하여 필요한 정보를 얻어내는 방법이며 장치를 비교적 간단하게 구성할수 있다는 점에서 장점을 가진다 [1].

하지만 이 방법은 전체 플라즈마의 입자 중 여기 상태에 있는 중성 입자나 이온만을 측정하는 것이어서 빛을 내지 않거나 광량이 매우 작은 상태에 대해서는 측정할 수 없다는 단

점이 있다. 반면 LIF는 원리적으로 기저상태를 포함한 거의 모든 상태에 대해 선택적으로 진단할 수 있는 장점이 있다. 단 지 실제 장비 구성에 있어서 레이저 성능과 같은 광학적 장치의 한계에 제약을 받을 뿐이다. 최근 높은 안정성과 정밀성을 가진 레이저 개발에 힘입어 LIF방법은 다양한 분야에 적용되면서 그 유용성이 입증되고 있으며 디스플레이나 반도체 공정용 플라즈마에서 중성입자, 이온 등의 밀도를 측정하는데 그 장점이 부각되고 있다 [2, 3].

본 논문에서는 LIF방법을 소개하고 그 이론적 측면을 개괄 하였으며 LIF 실험 장치를 구성하여 레이저의 파장과 전력, 램프 인가 전력을 변화시켜 가면서 수은의 준안정상태의 상대적인 밀도를 측정하였고, 또 램프 중심축으로부터 거리를 변화시켜 가면서 플라즈마 공간적 분포상태를 확인하였다.

2. 실험 방법

레이저 유기 형광법(laser Induced Fluorescence : LIF)란 원자나 분자에 전이에너지($E=h\nu$)에 해당하는 파장을 갖는 에너지 빔을 입사시켜 여기 시켜준 후, 원자나 분자가 다시 낮은 에너지 상태로 돌아갈 때 내놓는 형광을 관찰하는 방법이다. 이 레

이러한 레이저 유기 형광법은 원자, 분자의 에너지 레벨에 대해 공진(resonance)을 일으키는 방법으로 일반적으로 크고 민감한 신호를 얻을 수 있기 때문에 낮은 밀도(10^8cm^{-3} 이하) 측정이 가능하고 다른 종과의 interference 없이 선별적으로 종에 대한 측정이 가능하다. 뿐만 아니라 레이저의 작은 beam spot size는 뛰어난 시·공간적 분해능을 제공한다.

그림 1은 레이저 유기 형광법을 이용하여 $436.0\text{nm}(6^3\text{P}_0 \rightarrow 6^3\text{S}_1)$ 파장의 레이저를 여기시켜 $546.2\text{nm}(6^3\text{S}_1 \rightarrow 6^3\text{P}_2)$ 와 $404.8\text{nm}(6^3\text{S}_1 \rightarrow 6^3\text{P}_1)$ 의 파장의 준안정상태의 밀도를 검출하는 수은의 에너지 준위 개념도이다 [4].

준안정상태의 원자들의 생성, 소멸은 플라즈마 입자들 간의 충돌, 여기, 이온화 그리고 전자 교환충돌 등에 의해 일어나기 때문에, 준안정상태의 밀도와 그 분포는 플라즈마 입자들의 각 에너지와 밀도에 강하게 의존한다. 이러한 의미에서 밀도 분포를 구하는 것은 그 자체로 플라즈마 방전 메커니즘을 연구하는데 있어 중요한 일이다.

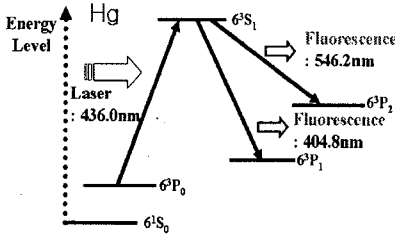


그림 1. 레이저 유기 형광법의 에너지 준위 개념도
Fig1. Energy level diagram of mercury using Laser induced fluorescence

그림 2는 레이저 유기 형광법의 기본 원리를 수식적으로 나타낸 것으로 원자나 분자에서의 에너지 레벨간의 전이를 이해함으로써 레이저 유기 형광법으로 인한 형광신호와 플라즈마 밀도와의 상대적인 관계를 알 수 있다. 그림 2의(a)와 같은 level system에서 상태 밀도의 변화율은 식 (1)과 같다.

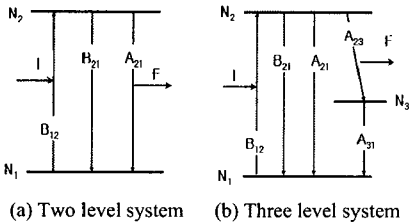


그림 2. 레이저 유기 형광법의 2-level과 3-level 구조
Fig2. LIF applied for a two-level and three level system

$$\frac{dn_2}{dt} = -\frac{dn_1}{dt} = \frac{I(\nu_0)}{c} g(\nu_0) (B_{12}n_1 - B_{21}n_2) - A_{21}n_2 \quad (1)$$

여기서 c 는 빛의 속도, n_1 과 n_2 는 각각 에너지 레벨의 상태 밀도이며, B_{12} , B_{21} , A_{21} , A_{23} , A_{31} 은 각각 흡수, 유도, 자연 방출에

해당되는 Einstein 상수이다. $g(\nu_0)$ 는 line profile을 의미하며, 정규화되었다고 가정한다. 그리고 ν_0 는 입사하는 레이저의 주파수이다. 식 (1)의 정상 상태일 때 해는 다음과 같다.

$$n_2 = \frac{g_2 n_1}{(g_1 + g_2)} \cdot \frac{S}{(S + 1)} \quad (2)$$

g_1 과 g_2 는 level 1, 2 각각의 통계적 가중치 (statistical weight)이며, S 는 포화 매개 변수 (saturation parameter)로 다음과 같이 정의할 수 있다.

$$S = I(\nu_0) \frac{g_1 + g_2}{g_1} \cdot \frac{c^2}{8\pi h \nu_0^3} g(\nu_0) \quad (3)$$

그리고 $n = n_1 + n_2$ 이며 $g_1 B_{12} = g_2 B_{21} = g_2 A_{21} c^3 / 8\pi h \nu^3$ 인 관계식이 이용되었다.

한편, 위에서 구한 n_2 의 상태 밀도를 갖는 레벨에서 n_1 으로 전이할 때 방출되는 형광 신호는 단위시간당 다음과 같다.

$$F = \frac{\Delta\Omega}{4\pi} V n_2 A_{21} = K n$$

$$K = \frac{\Delta\Omega}{4\pi} \frac{g_2}{g_1 + g_2} \frac{S}{1 + S} \quad (4)$$

$\Delta\Omega$ 는 형광신호를 검출하는 입체각이며, V 는 형광신호가 나오는 부피를 의미하는데 실제로는 입체각과 레이저빔의 직경에 의해 결정되는 양이다. 위의 식 (4)에서 형광신호는 밀도 n 에 비례하고 있음을 알 수 있다. 그림 2 (b)와 같은 three level system 역시 level 1, 2, 3에 해당하는 상태 밀도의 변화 dn_1/dt , dn_2/dt , dn_3/dt 는 앞의 식 (1)과 비슷하게 구해진다. 형광신호는 n_2 에서 n_3 로 떨어질 때 Einstein계수만 바뀔 뿐이므로 F 는 $\Delta\Omega/4\pi V n_2 A_{23}$ 과 같음을 알 수 있다. 본 실험에서는 입사하는 레이저빔의 파장과 다른 파장을 검출할 수 있는 three level system을 사용하였다 [4].

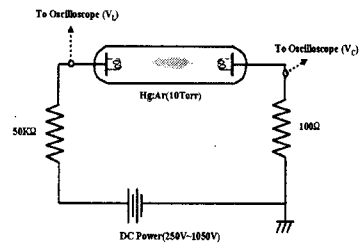


그림 3. 방전 램프의 실험장치 개략도
Fig3. The Experiment diagram of discharge lamp

방전관의 외경은 25mm, 내경 23mm를 사용하였고 방전관 내부에 버퍼가스로 순도 99.999%의 아르곤 1Torr를 주입하였고 UV 방출의 주된 매체인 아말감을 삽입하였다. 인가 전압은

DC전원 250V~1050V를 사용하였으며 전류 제한을 위해 그림 3과 같이 50K의 외부저항을 연결하였으며 100Ω의 저항은 전류를 측정하기 위하여 연결하였다.

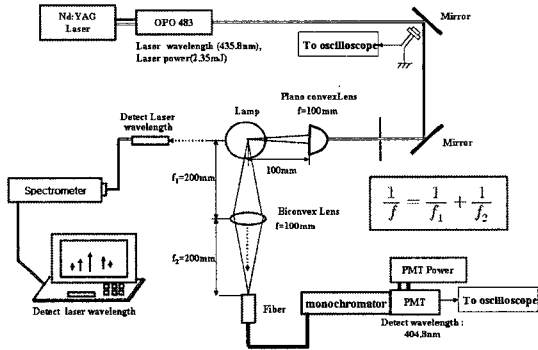


그림 4. 레이저 유기 형광법 실험장치 개략도
Fig4. The Experiment diagram of Laser induced fluorescence

LIF 실험은 크게 레이저를 준비하는 과정과 플라즈마를 형성시키는 과정, 그리고 마지막 측정의 순서로 갈라볼 수 있다. 본 실험에서 사용하는 레이저는 Nd:YAG 레이저(LQ 829)와 OPO(Optical Parametric Oscillator, OPO 483)로 구성되어 있어 여기서 Nd:YAG 레이저는 펄핑 역할을 하며, 동시에 LIF 실험이 요구하는 아주 좁은 선폭 특성을 가질 수 있게 한다. Nd:YAG 레이저를 통해 발진된 빛은 Q-switching을 통하여 on-time 10ns, 10Hz의 높은 peak power를 갖는 펄스 레이저를 형성한다. OPO는 비선형 결정인 BBO 결정을 통과시켜 frequency mixing을 통하여 출력파장을 원하는 값으로 맞출 수 있게 하는 기능을 가지고 있다. 따라서 레이저에서 발진되어 나온 빔을 두개의 반사거울을 사용하여 방전관에 향하게 한 후 반쪽평면 볼록렌즈를 이용하여 레이저 빔을 램프의 중심부에 집중시킨다.

출력되는 에너지의 빔은 세기를 조절할 수 있어 출력을 다소 높이면, 몇 번의 반사를 통해 손실되는 양을 고려하더라도 최종적으로 원하는 출력을 얻을 수 있다. 또 레이저 유기 형광법으로 인한 형광신호를 측정하기 위하여 양쪽이 볼록한 렌즈를 이용하여 가우스 렌즈 공식인 $\frac{1}{f} = \frac{1}{f_1} + \frac{1}{f_2}$ 를 이용하여 거리를 조정하였다. 형광신호의 경우 546.2nm($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_2$)와 404.8nm($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_1$)의 파장의 신호를 검출하기 위하여 모노크로메터를 사용하였으며 PMT를 사용하여 전기적인 신호로 증폭하여 오실로스코프를 이용하여 측정하였다. 레이저의 파장은 스펙트로미터(S150HR)를 이용하여 측정하였으며 레이저 파워는 파워미터(PM10V1)를 이용하여 측정하였다[5-7].

3. 결과 및 고찰

그림 5는 인가한 레이저 신호와 404.8nm와 546.2nm의 레이저 유기 형광 신호를 나타낸 것으로 방전관의 유리의 산란으로 인한 신호 왜곡을 막기 위해 전원을 인가하지

않은 상태의 레이저 유기 형광신호를 노이즈로 설정하여 정확한 신호검출을 하였다. 일반적으로 Three level system을 이용한 경우 입사된 레이저의 파장과 관측 파장이 서로 다르기 때문에 산란된 빛은 크게 문제가 되지 않는다. 레이저 유기 형광신호의 경우 정확도를 가하기 위하여 오실로스코프의 ACQUIRE의 샘플 평균회수를 512로 하여 측정하였다. 또 그림 5에서 보는 바와 같이 형광신호가 나타나는 시간은 준안정 상태의 원자나 분자의 LIFE TIME에 해당된다.

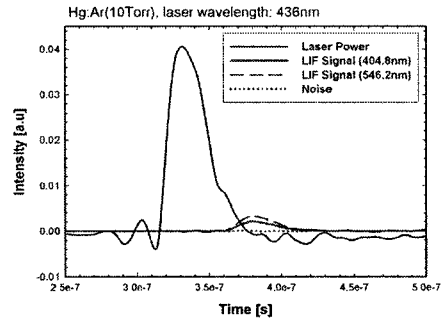


그림 5. LIF 형광신호 측정
Fig5. The detection of LIF signal

436nm의 파장에 대한 분자의 에너지 레벨에 대한 공진(resonance)현상을 확인하기 위하여 436nm를 기준으로 0.1nm간격씩 435.8nm~436.2nm까지 레이저 인가 파장을 변화시켜 가면서 레이저 유기 형광 신호를 확인하였다. 레이저의 파워는 2.33mJ로 일정하게 하였으며 램프 인가 전압을 650V로 일정하게 하였을 경우 램프에 공급된 전압은 255V, 전류는 7.697mA 정도로 약 1.96W 정도로 전력을 유지하였다. 그 결과 그림 6에서와 같이 436nm에서 가장 큰 형광신호를 보였으며 관측 파장이 404.8nm에 비해 546.2nm에서 더 큰 형광 신호를 보였다. 이는 436nm의 레이저를 인가하였을 경우 404.8nm($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_1$) 보다 546.2nm($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_2$)에서 원자나 분자의 밀도가 큼을 알 수 있다.

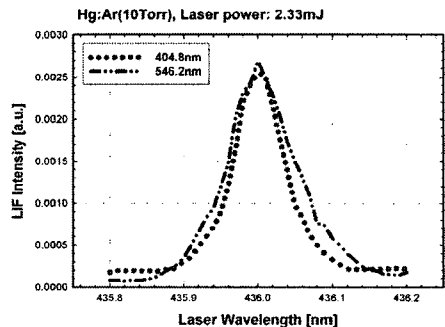


그림 6. 레이저 인가 파장에 따른 LIF 형광신호
Fig6. The LIF signal dependence on applied laser wavelength

수은의 에너지 준위와 마찬가지로 436nm에서 가장 큰 레이저 유기 형광신호를 보이기 때문에 436nm를 기준으로 램프에 인가하는 전압을 증가시켜 가면서 404.8nm($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_1$)와 546.2nm($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_2$)에 해당되는 원자나 분자의 상대적인 밀도를 측정하였다. 램프에 인가한 전압은 플라즈마가 유지될 수 있는 최소 전압인 250V에서 최대 전압인 1050V까지 100V씩 변화시켰으며 레이저 전력은 2.33mJ로 일정히 하여 전압 증가에 따른 플라즈마 밀도를 확인하였다. 그림 3에서와 같이 전압 변화에 따른 V_L 과 V_C 를 오실로스코프를 이용하여 측정하였고 그에 따른 전류와 전력을 계산하였다. 그 결과 그림 7과 같이 램프 인가 전력이 증가할수록 레이저 유기 형광신호도 선형적으로 증가함을 알 수 있다. 즉 램프 인가 전력이 증가함에 따라 여기되는 원자나 분자의 개수도 상대적으로 많아짐을 알 수 있고 그로 인해 플라즈마 밀도도 증가함을 알 수 있다.

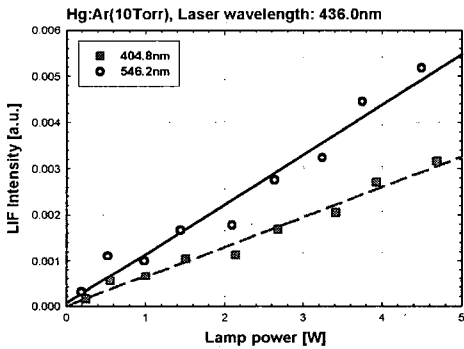


그림 7. 램프 인가 전력에 따른 LIF 형광신호
Fig 7. The LIF signal dependence on applied lamp power

그림 8은 레이저 인가 전력에 따른 플라즈마의 포화상태를 확인하는 실험으로 그림 7과 마찬가지로 436nm의 파장의 레이저의 전력을 증가시켜가면서 404.8nm($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_1$)와 546.2nm($6^3S_1 \rightarrow 6^3P_2$)에서의 레이저 유기 형광신호를 측정하였다. 레이저의 전력을 파워메터를 이용하여 측정하였고 램프에 인가한 전압은 650V로 약 2.1W 전력을 소비하였다. 식 (3)에서 포화매개변수인 $S \ll 1$ 일 경우는 레이저 유기 형광신호는 $I(\nu_0)$ 에 비례하며 이 영역에서는 레이저 전력에 따른 선형적으로 증가한다. 그러나 $S \gg 1$ 일 경우는 포화상태에 이르러 레이저 출력이 증가하여 형광신호도 증가하지 않는다. 그림 8에서는 레이저 전력이 2.6mJ 이상에서 포화상태에 이르렀음을 확인할 수 있다.

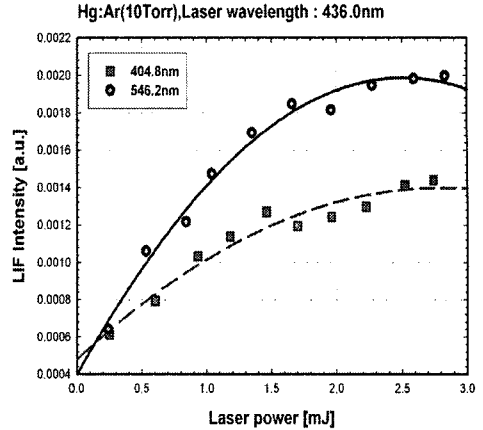


그림 8. 인가 레이저 전력에 따른 LIF 형광신호 측정
Fig8. The LIF signal dependence on applied laser power

레이저 유기 형광법을 이용하여 수평축에 따른 부분적 플라즈마 밀도 분포를 확인하기 위하여 436nm의 파장의 레이저를 인가 시켜 가면서 램프의 중심으로부터 좌우로 1mm단위씩 변화시켜가면서 레이저 유기 형광신호를 측정하였다. 레이저 파워는 2.33mJ, 램프 인가 전력은 650V로 일정히 하였으며 각각의 위치에 따라 방전관 유리의 산란으로 인한 형광신호를 제거하여 관측하였다. 그 결과 중심으로부터 멀어질수록 레이저 유기 형광 신호가 감소하는 것을 확인하였다. 이는 표면부분의 원자나 분자의 재결합으로 인해 플라즈마 밀도가 감소것을 확인할 수 있다. 또 마찬가지로 6^3S_1 에서 6^3P_1 보다 6^3P_2 로의 전이가 많음을 확인할 수 있다.

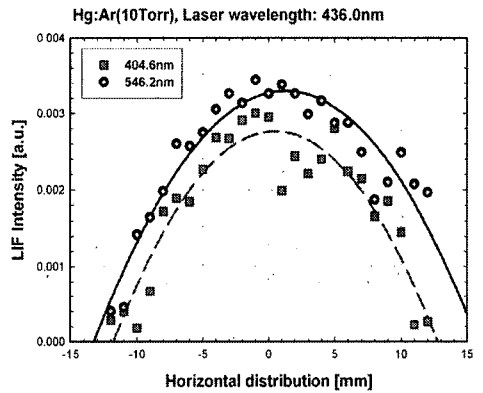


그림 9. 방전램프의 수평축 플라즈마 밀도 분포
Fig9. The horizontal distribution of plasma density on discharge lamp

그림 10은 램프전류 3mA에서의 전류, 전압을 측정 한 그래프로 10 μs의 펄스폭, 1.1Kv의 피크 전압을 확인할 수 있었다.

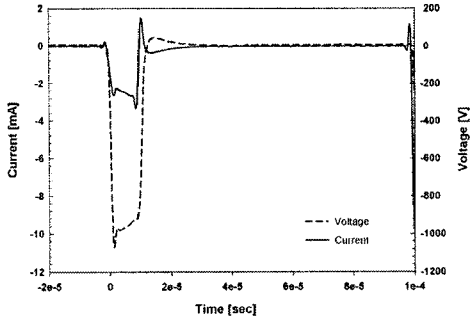
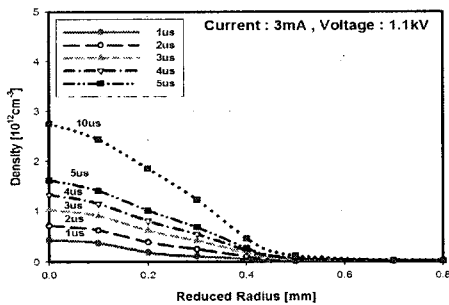
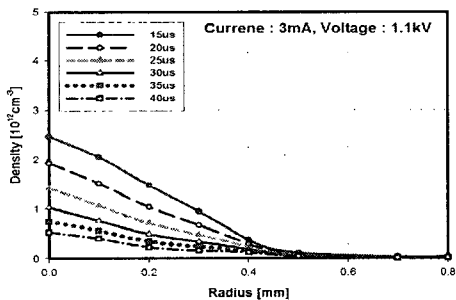


그림 10. 3mA일 경우 방전램프의 전압-전류
Fig. 10 I-V of Discharge Lamp in 3mA

레이저 흡수법을 통해 시간에 따른 준안정 상태의 밀도 특성은 그림 11과 같이 확인할 수 있었다. 밀도 계산 결과 램프 중심에서 가장 높은 $2.8 \times 10^{12} \text{cm}^{-3}$ 의 밀도를 보였고, 중심으로부터 3mm 이후부터 급격하게 밀도가 감소하였다. Turn-on 후 $10 \mu\text{s}$ 까지 계속 밀도는 증가하다. Turn-on 과정에서의 준안정 상태의 밀도 증가는 직접적인 여기에 의해서 진행되어 진다. Turn-off 상태인 $10 \mu\text{s}$ 이후부터 계속적으로 밀도가 감소하였다. 이는 방전이 시작됨에 따라 이온화가 증가로 플라즈마 전자 밀도가 증가하였으며 그로 인해 173nm 의 자외선 방출에 직접적인 영향을 주는 828.01nm 의 metastable상태의 전자가 증가하였다.



(a) Xe 준안정 상태 밀도 (1us~10us)



(b) Xe 준안정 상태 밀도 (15us~40us)

그림 5. 시간 변화에 따른 Xe 준안정 상태의 밀도 특성
Fig. 5 The density properties of Xe metastable state according to change in time

4. 결론

본 논문에서는 LIF방법을 소개하고 그 이론적 측면을 개괄하였으며 LIF 실험 장치를 구성하여 레이저의 파장과 전력, 램프 인가 전력을 변화시켜 가면서 404.8nm 와 546.2nm 의 레이저 유기 형광 신호를 관측함으로써 수은의 준안정상태의 상대적인 밀도를 측정하였고, 또 램프 중심축으로부터 거리를 변화시켜 가면서 플라즈마 밀도의 공간적 분포상태를 확인하였다.

- 1) 436nm 의 파장에 대한 분자의 에너지 레벨에 대한 공진(resonance) 현상을 확인하기 위하여 436nm 를 기준으로 0.1nm 간격씩 $435.8\text{nm} \sim 436.2\text{nm}$ 까지 레이저 인가 파장을 변화시켜 결과 436nm 에서 가장 큰 형광신호를 보였으며 관측 파장 $404.8\text{nm}(6^3\text{S}_1 \rightarrow 6^3\text{P}_1)$ 보다 $546.2\text{nm}(6^3\text{S}_1 \rightarrow 6^3\text{P}_2)$ 에서 원자나 분자의 밀도가 큼을 알 수 있다.
- 2) 436nm 를 기준으로 램프에 인가하는 전압을 증가시켜 가면서 $404.8\text{nm}(6^3\text{S}_1 \rightarrow 6^3\text{P}_1)$ 와 $546.2\text{nm}(6^3\text{S}_1 \rightarrow 6^3\text{P}_2)$ 에 해당되는 원자나 분자의 상대적인 밀도를 측정하였을 경우 램프 인가 전력이 증가에 따라 플라즈마 밀도도 증가함을 알 수 있다.
- 3) 436nm 의 파장의 레이저의 전력을 증가시켜가면서 $404.8\text{nm}(6^3\text{S}_1 \rightarrow 6^3\text{P}_1)$ 와 $546.2\text{nm}(6^3\text{S}_1 \rightarrow 6^3\text{P}_2)$ 에서의 레이저 유기 형광신호를 측정할 결과 2.6mJ 이상에서 포화상태에 이르러 일정함을 알 수 있다.
- 4) 레이저 유기 형광법을 이용하여 수평축에 따른 부분적 플라즈마 밀도 분포의 경우 중심으로부터 멀어질수록 재결합으로 인한 이온과 중성종의 밀도가 감소하는 것을 확인할 수 있다.
- 5) 20Torr 의 제논 가스를 넣은 방전관 내부 중심에서의 외벽까지 제논 원자의 준안정 상태의 공간적 밀도 분포와 방전 전, 후 시간에 따른 준안정 상태의 밀도 변화를 IR-laser absorption spectroscopy (IR-LAS) 사용하여 입사 전과 입사 후의 레이저 흡수율을 측정하여 준안정상태의 밀도를 측정 및 계산을 하였다.

감사의 글

이 논문은 산업자원부에서 시행하는 전력산업 기초인력 양성사업 (I-2006-0-092-01)에 의해 작성되었습니다.

참고 문헌

- [1] Noda, S, Kinoshita, K, Nakagawa, H, Okigawa, M, Tatsumi, T, Inoue, M, Sekine, M "Measurement and Comparison of EEDF Profiles for Various Types of Plasmas Using OES", IEEJ, Vol.20, pp235-240.
- [2] 林 康明. "最新プラズ마プロセスのモニタリング 技術と解釋・制御", p25-43(1997).
- [3] K.H. Chung, W. Lee, Y.H. Cho, G.S. Choi, C.W. Lee, "Comparison of synchronous and laser-induced fluorescence spectroscopy applied to the Eu(III)-fulvate complexation", talanta 65 pp389~395 (2004).
- [4] K. Muraoka, M. Maeda, "Application of laser-induced fluorescence to high-temperature plasmas", Plasma Phys. Control. Fusion Vol.35, pp. 635-636 (1993).
- [5] G. Bachet, F. Skiff, F. Doveil, R. Astern, "Experimental studies of the propagation of electrostatic ion perturbations by time-resolved laser-induced fluorescence", Physics of plasmas Vol 8, pp3535~3544 (2001).
- [6] Jerry Kramer, "Saturated laser-induced fluorescence in a high-pressure metal halide discharge", J. Appl. Phys. 87(5), pp2289~2297 (1990).
- [7] Hideki Motomura, Ryota Wada, Masafumi Jinno, Ka Hong Loo and Masaharu Aono, "Temporal Behavior of Radial Distribution of Xenon Metastable Atoms in Xenon Low Pressure Lamps", 10th International Symposium on Science and Technology of Light Sources, July 18th~22nd, p194, 2004