

УДК 533.9..15: 537.523 661.68

Возможность применения объемного самостоятельного разряда в смесях $\text{SiF}_4\text{—H}_2$ для синтеза фторсиланов

В.И. Аксинин, С.Ю. Казанцев, И.Г. Кононов, Е.М. Кудрявцев,
А.А. Орлов, С.В. Подлесных, К.Н. Фирсов, О.Д. Хорозова

Приводятся первые результаты исследования возможности эффективной конверсии SiF_4 в SiHF_3 , SiH_2F_2 и SiH_4 в плазме объемного самостоятельного разряда, зажигаемого в смеси $\text{SiF}_4\text{:H}_2$. Исследованы характеристики разряда, получена величина энергетической цены синтеза SiHF_3 $Q \approx 32$ кВт·ч/кг. Установлено, что в диапазоне давлений смеси $P = 60\text{—}350$ Торр величина Q не зависит от давления. Обсуждаются возможности снижения энергозатрат на синтез фторсиланов за счет уменьшения электрических потерь в разрядном контуре и организации газового потока в реакторе.

PACS: 52.80.—s, 52.77-j, 51.50+v, 82.33Xj, 81.20.Ка

Ключевые слова: тетрафторид кремния, фторсиланы, моносилан, объемный самостоятельный разряд, инфракрасная Фурье-спектроскопия.

Введение

В последние десятилетия к поиску новых, экологически безопасных методов получения высококчистого кремния проявляется значительный интерес [1, 2]. Практически все существующие в настоящее время методы предполагают наработку газообразных соединений SiH_4 , SiF_4 , SiHCl_3 , SiI_4 и т.п., их глубокую очистку от примесей и последующее разложение в реакторах различного типа. По ряду причин предпочтительным является получение чистого кремния из моносилана SiH_4 .

В странах с развитыми фторидными технологиями в качестве отходов или побочного продукта на предприятиях ядерного технологического цикла и производств фосфатных удобрений об-

разуются большие количества SiF_4 [3, 4]. Поэтому актуален поиск эффективных и экологически безопасных технологий конверсии SiF_4 в моносилан [5] с попутным возвратом фтора в производственный цикл [6]. Указанным условиям удовлетворяет технология, в которой газовые смеси SiF_4 с H_2 обрабатываются в сильно неравновесной плазме. В результате обработки образуются фторсиланы, моносилан и HF [4]. В [5] предложен способ конверсии SiF_4 в моносилан в плазме неконтрагированного СВЧ-разряда (зажигаемого в смеси $\text{SiF}_4\text{:H}_2$), основанный на реакции каталитического диспропорционирования. Представляет несомненный интерес исследование возможности эффективной конверсии SiF_4 во фторсиланы и моносилан в плазме других форм неконтрагированного разряда, в частности, в плазме объемного самостоятельного разряда (ОСР) [7].

В настоящее время физика и техника формирования ОСР в разнообразных газовых средах, в основном, благодаря достижениям в области разработки электроразрядных лазеров, хорошо развиты [7–9]. Плазма ОСР является сильно неравновесной: при температуре газа ~ 300 К температура электронов может достигать ~ 100000 К [10]. В отличие от дугового, СВЧ- и ВЧ-разрядов, ОСР может зажигаться в больших объемах плотных газов. Это позволяет рассчитывать на создание плазмохимических установок с высокой производительностью [11]. За последние десятилетия достигнуто также значительное продвижение в понимании физики ОСР в сильно электроотрицательных газах (фторидах, хлоридах и йодидах [7, 12–14]).

Целью настоящей работы является исследование возможности эффективной конверсии SiF_4

Аксинин Владимир Иванович, вед. инженер.
Казанцев Сергей Юрьевич, ст. научн. сотрудник.
Кононов Игорь Григорьевич, ст. научн. сотрудник.
Подлесных Сергей Владимирович, научн. сотрудник.
Фирсов Константин Николаевич, зав. лабораторией.
Институт общей физики РАН.
Россия, 119991, Москва, ул. Вавилова, 38.
Тел.: (499) 503–81–34. E-mail: kazan@kapella.gpi.ru
Кудрявцев Евгений Михайлович, профессор.
НИЯУ МИФИ.
Россия, 115409, Москва, Каширское шоссе, 31.
Факс: (499) 324–21–11. E-mail: kudr51@mail.ru
Орлов Андрей Александрович, зав. лабораторией.
Хорозова Ольга Дмитриевна, вед. научн. сотрудник.
ОАО ВНИИХТ
Россия, 115409, Москва, Каширское шоссе, 33.
Тел.: (499) 324–82–85. E-mail: 9165550800@mail.ru

Статья поступила в редакцию 20 декабря 2013 г.

© Аксинин В.И., Казанцев С.Ю., Кононов И.Г., Кудрявцев Е.М., Орлов А.А., Подлесных С.В., Фирсов К.Н., Хорозова О.Д., 2014

во фторсиланы и моносилан в плазме ОСР, зажигаемого в смесях $\text{SiF}_4 : \text{H}_2$.

Экспериментальная установка и методика исследований

ОСР зажигался в камере с объемом $\sim 1,1$ л, изготовленной из оргстекла. Камера заполнялась смесью $\text{SiF}_4 : \text{H}_2 = 1:5$, для которой в [5] приводятся соответствующие экспериментальные данные по конверсии SiF_4 в моносилан при ее обработке в плазме СВЧ-разряда с последующим пропуском образовавшихся продуктов через фторид натрия. Оптимизации смесей $\text{SiF}_4 : \text{H}_2$ по соотношению концентраций компонентов в настоящей работе не проводилось, т.к. это является задачей дальнейших исследований. Установка позволяла работать при частоте следования разрядных импульсов до $f = 20$ Гц и длительности серии импульсов до $t_c = 120$ мин. Однако большинство экспериментов выполнялось при частоте срабатывания схемы не более 5 Гц и длительности серии $t_c = 30\text{--}45$ мин, поскольку в реакторе не был организован газовый поток, обеспечивающий смену среды в разрядном промежутке между импульсами (см., например, [8, 11]).

Электроды располагались в центре разрядной камеры. Во всех экспериментах на газоразрядный промежуток через тиратрон марки ТДИ1–50к/50П, разряжался конденсатор емкостью $C_{\text{н}} = 1\text{--}4,5$ нФ, заряжаемый до напряжения $U_3 = 12\text{--}35$ кВ. Ток ОСР и напряжение на газоразрядной плазме контролировались калиброванными шунтом и делителем напряжения, соответственно. Электрические сигналы с шунта и делителя подавались на осциллограф Tektronix TDS 2024C с полосой пропускания 200 МГц. Давление смеси $\text{SiF}_4 : \text{H}_2 = 1:5$ в камере варьировалось в пределах $P = 60\text{--}400$ Торр.

В экспериментах использовались две электродные системы, схематически изображенные

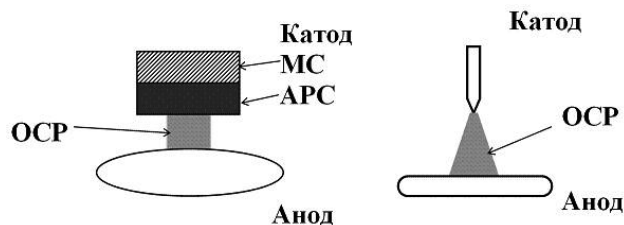


Рис. 1. Схематические изображения электродных систем, использовавшихся в экспериментах для получения объемного самостоятельного разряда: слева — электродная система с анизотропно-резистивным катодом, межэлектродное расстояние $d = 11$ мм (АРС — слой анизотропно-резистивного материала, МС — металлический слой); справа — электродная система стержень — плоскость, межэлектродное расстояние $d = 50$ мм.

на рис. 1. Для обеспечения устойчивости ОСР в максимально широких диапазонах вариаций давления смеси и электрической энергии, вводимой в газоразрядную плазму, использовалась электродная система на основе анизотропно-резистивного (АР) катода (на рис. 1 слева). Подобные катоды применялись ранее в некоторых модификациях нецепного HF-лазера [11] и кислородно-йодного лазера с электроразрядной наработкой атомарного йода [13]. Полные размеры поверхности катода составляли 50×50 мм. Толщина слоя АР-материала с удельным сопротивлением $\rho \approx 25$ Ом \times см [15] составляла 10 мм. Анодом служил электрод диаметром 50 мм из нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т, имевший профиль Чанга (см., например, [13] и ссылки в этой работе). При межэлектродном расстоянии $d = 11$ мм объем, занимаемый плазмой ОСР, составлял $\approx 1,5$ см³.

Предварительные эксперименты показали, что в смеси $\text{SiF}_4 : \text{H}_2 = 1:5$ при давлении $P \leq 100$ Торр получение устойчивого ОСР не составляет особых проблем в широком диапазоне изменения величины электрической энергии, вводимой в газоразрядную плазму (даже в отсутствие специальных мер стабилизации разряда). Поэтому при $P \leq 100$ Торр исследования проводились также с более удобной для практических приложений системой металлических электродов, схематически изображенной на рис. 1 справа. Катодом в этой системе служил стержень диаметром 1 мм, анодом — диск диаметром 50 мм, скругленный по периметру радиусом 5 мм. Электроды были изготовлены из нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т. При межэлектродном расстоянии $d = 50$ мм объем, занимаемый плазмой ОСР, в данном случае составлял ≈ 4 см³.

Состав продуктов, образующихся при плазменной обработке смеси $\text{SiF}_4 : \text{H}_2$, исследовался методом инфракрасной Фурье-спектроскопии. Для этого смесь из реактора перепускалась в предварительно откачанную газовую кювету, изготовленную из нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т. На кювете были установлены окна из CaF_2 , длина оптического пути составляла 100 мм. Спектры пропускания газов регистрировались на однолучевом инфракрасном Фурье-спектрометре IR Prestige-2 (Shimadzu) в спектральном диапазоне $4200\text{--}1600$ см⁻¹ с разрешением $0,5$ см⁻¹. Накопление сигнала происходило в течение $50\text{--}200$ сканирований. Предварительно записывалось пропускание откачанной кюветы. Этот спектр служил в качестве «фона». Идентификация полос пропускания примесей в SiF_4 проводилась на основе литературных данных и данных собственных экспериментов [16–19]. Для количественного анализа

SiF_4 в исходной смеси и продуктах обработки газовых смесей в реакторе использовалась абсолютная калибровка. Идентификация вероятных продуктов, образующихся при плазменной обработке газовой смеси, осуществлялась с использованием следующих значений частот аналитических полос поглощения: $2316,7 \text{ см}^{-1}$ — полоса ν_1 трифторсилана, $2251,7 \text{ см}^{-1}$ — полоса ν_1 дифторсилана, $2216,8 \text{ см}^{-1}$ — полоса ν_1 монофторсилана, 2188 см^{-1} — полоса ν_1 моносилана [17]. Для количественного анализа моносилана применялась абсолютная калибровка. Полуколичественное определение примесей трифторсилана и дифторсилана осуществлялось на основе стандартного уравнения Бугера-Ламберта-Бера. Аналогичная методика была применена ранее в работе [17], где методом инфракрасной Фурье-спектроскопии высокого разрешения исследовался примесный состав SiF_4 и получаемого из него моносилана. Все измерения пропускания и давления газа проводились при комнатной температуре (295 К).

Результаты экспериментов и их обсуждение

На рис. 2 приведены зависимости напряжения горения ОСП U_r (напряжение в квазистационарной фазе разряда [14]) от параметра $P \times d$ (P — давление газа, d — межэлектродное расстояние) в SiF_4 и смеси $\text{SiF}_4: \text{H}_2 = 1:5$, снятые в системе металлических электродов «стержень — плоскость». Величина U_r измерялась по осциллограмме напряжения на разрядном промежутке в точке, соответствующей максимуму тока. Эти зависимости позволяют ориентироваться при выборе зарядного напряжения на конденсаторе U_3 для заданного давления смеси в реакторе. Без учета потерь электрической энергии для согласования разрядного контура должно выполняться соотношение $U_3 \approx 2U_r$. В присутствии потерь в контуре (например,

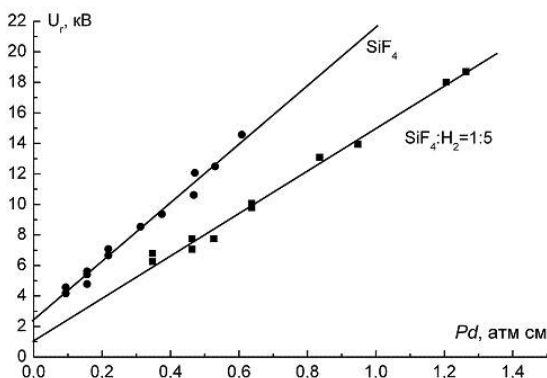


Рис. 2. Зависимости напряжения горения ОСП U_r от параметра $P \times d$ (P — давление, d — межэлектродное расстояние) в SiF_4 и смеси $\text{SiF}_4: \text{H}_2=1:5$. Система металлических электродов стержень — плоскость.

на сопротивлении АР-катода) величину U_3 необходимо увеличивать до тех пор, пока величина напряжения на промежутке после окончания тока разряда не станет близкой к нулю.

На рис. 3 приведен спектр пропускания смеси, обработанной в течение 30 мин. серией импульсов ОСП с частотой следования $f = 1 \text{ Гц}$ (система электродов с АР-катодом). Давление смеси в реакторе составляло $P = 232 \text{ Торр}$. Из рис. 3 видно, что в спектре присутствуют полосы, обусловленные появлением в реакторе после обработки смеси плазмой ОСП SiHF_3 , SiH_2F_2 и SiH_4 (слабый пик). На основе спектральных измерений, проводившихся по описанной выше методике в каждом из экспериментов (в экспериментах варьировались величины P , f , C_n , U_3 и t_c), рассчитывались парциальные давления SiHF_3 , SiH_2F_2 и SiH_4 , образующихся в реакторе. Парциальное давление моносилана в большинстве экспериментов оказывалось существенно меньше парциальных давлений SiHF_3 и SiH_2F_2 , максимальное отношение парциальных давлений SiH_2F_2 и SiH_4 при вариации различных параметров составило ~ 2 . Примечательно, что SiH_3F никогда не регистрировался. Возможно, это связано с его нестабильностью.

На рис. 4 показаны зависимости парциальных давлений фторсиланов SiHF_3 и SiH_2F_2 $P_{\text{фс}}$, синтезированных в реакторе (система электродов с АР-катодом) при обработке смеси $\text{SiF}_4: \text{H}_2 = 1:5$ серией импульсов ОСП, от суммарной энергии $E_s = t_c \times f \times C_n \times U_3^2 / 2$, затраченной на получение плазмы в реакторе (суммарная энергия рассчитывалась по энергии, запасенной в конденсаторе). На эти графики нанесены точки, полученные при разных значениях давления смеси в реакторе, длительности серии разрядных импульсов $t_c = 25\text{--}50$

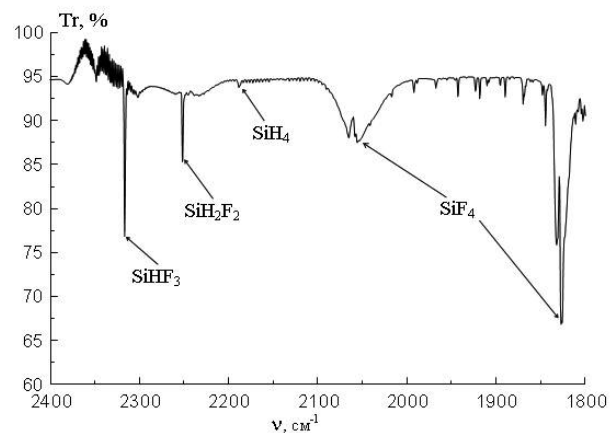


Рис. 3. Пропускание газовой смеси, обработанной импульсно-периодическим разрядом: длительность серии $t_c = 30 \text{ мин}$, частота следования импульсов $f = 1 \text{ Гц}$, емкость конденсатора $C_n = 1,7 \text{ нФ}$, зарядное напряжение $U_3 = 22 \text{ кВ}$, давление газа в реакторе $P = 232 \text{ Торр}$, оптическая длина кюветы для проб газа 100 мм , давление газа в кювете 160 Торр . Система электродов с анизотропно-резистивным катодом.

мин и частоте следования импульсов $f = 1,25$ Гц. Из рис. 4 видно, что выход фторсиланов растет приблизительно прямо пропорционально величине суммарной электрической энергии. Зависимость парциального давления SiHF_3 от суммарной энергии аппроксимируется выражением: $P_{\text{фс}} = 1,26 \times 10^{-3} \times E_s$. Легко оценить энергетическую цену Q синтеза единицы массы SiHF_3 : $Q = E_s \times RT / (M \times P_{\text{фс}} \times V_{\text{эфф}}) \approx 57$ кВт·ч/кг (182 эВ/молекула). Здесь $M = 86$ — молярная масса SiHF_3 , $V_{\text{эфф}} \approx 0,83$ л — эффективный объем реактора (объем разрядной камеры за вычетом объема, занимаемого электродами), $R = 8,3$ Дж·моль $^{-1}$ ·К $^{-1}$ — универсальная газовая постоянная, $T = 295$ — температура газа в реакторе. Энергетическая цена синтеза SiH_2F_2 оказывается примерно в 2 раза выше цены синтеза SiHF_3 . К сожалению, в [5] данные об энергетической цене образования фторсиланов в плазме СВЧ разряда не приводятся, что не позволяет напрямую сравнить полученные здесь результаты с результатами [5].

На рис. 5 приведена зависимость величины энергетической цены образования SiHF_3 Q от давления смеси SiF_4 : $\text{H}_2 = 1:5$ в реакторе, построенная по данным рис. 4. Из рис. 5 следует очень важный для практических применений вывод, а именно, в диапазоне давлений смеси $P = 60$ – 350 Торр величина энергетической цены образования SiHF_3 (также и SiH_2F_2) не зависит от давления. Как отмечалось выше, при давлениях смесей SiF_4 : H_2 $P \leq 100$ Торр получение устойчивого ОСР в широком диапазоне изменения энергии в разрядном импульсе не является проблемой. Это позволяет отказаться от специальных методов стабилизации разряда и применять в реакторе металлические электроды, например, простую электродную систему типа «стержень (катод) — плоскость» (см. рис. 1).

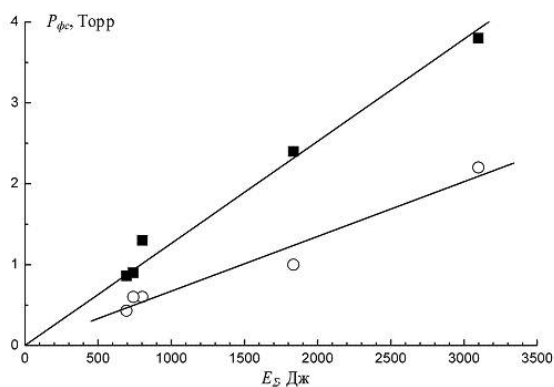


Рис. 4. Зависимости парциального давления фторсиланов SiHF_3 и SiH_2F_2 $P_{\text{фс}}$ синтезированных в реакторе, от суммарной электрической энергии E_s в серии импульсов. Система электродов с анизотропно-резистивным катодом.

Здесь важно отметить, что при использовании электродной системы с АР-катодом энергия, запасенная в конденсаторе, значительно превышает энергию, вводимую в плазму ОСР. Площадь поверхности участка АР-катада, на котором развивается разряд, составляет ~ 1 см 2 . При удельном сопротивлении АР-слоя $\rho \approx 25$ Ом·см сопротивление этого участка катада оказывается достаточно высоким, а именно, ~ 25 Ом. Это приводит к значительным потерям электрической энергии в разрядном контуре. Простые вычисления с использованием осциллограмм напряжения и тока показывают, что в системе с АР-катодом в плазму ОСР вводится лишь около 50% электрической энергии, запасенной в конденсаторе.

Выше уже отмечалось, что применение АР-электрода в рассматриваемых экспериментах было обусловлено исключительно необходимостью обеспечения устойчивости ОСР в широком диапазоне изменения параметров по давлению смеси и разрядным условиям с целью получения максимально полной информации о влиянии на синтез фторсиланов различных факторов. В реальных установках плазмохимического синтеза фторсиланов, естественно, нужно применять металлические электроды, на которых непродуктивные потери электрической энергии практически отсутствуют. С учетом этого замечания затраты на получение 1 кг SiHF_3 в плазме ОСР должны составлять ≈ 29 кВт·ч или ~ 91 эВ на молекулу. Справедливость данной оценки подтверждается экспериментами в системе электродов «стержень—плоскость» при давлении (в смеси SiF_4 : $\text{H}_2 = 1:5$) $P = 60$ – 100 Торр. Энергия, запасаемая в конденсаторе, частота следования импульсов и продолжительность серии в этих экспериментах были такими же, как в экспериментах с АР-катодом. Величина зарядного напряжения изменялась в зависимости от давления

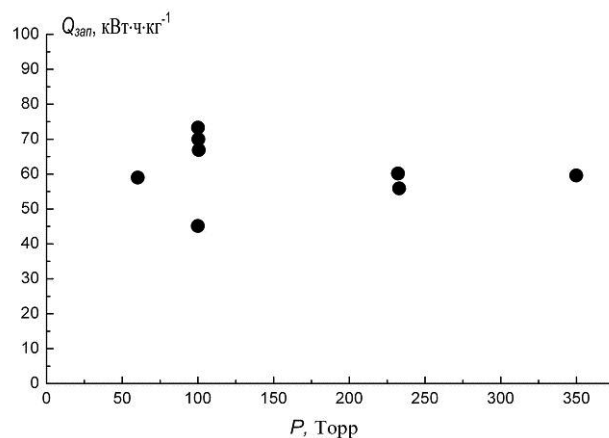


Рис. 5. Зависимость энергетической цены образования SiHF_3 Q от давления смеси P в реакторе. Система электродов с анизотропно-резистивным катодом.

с учетом требования согласования разрядного контура. Энергетическая цена образования SiHF_3 в плазме ОСР, зажигаемого в системе электродов «стержень—плоскость», составила $Q \approx 32$ кВт·ч·кг⁻¹ (оценка энергозатрат по энергии, запасенной в конденсаторе), что хорошо согласуется с приводившейся выше оценкой энергозатрат по величине электрической энергии, введенной в плазму ОСР, в электродной системе с АР-катодом.

В ходе исследований было установлено, что эффективность синтеза SiHF_3 и SiH_2F_2 снижается, если частота следования импульсов превышает 3 Гц, а также, если при $f=1, 2, 5$ Гц смесь обрабатывается более 50 мин. Из-за отсутствия смены среды в разрядном промежутке между импульсами продукты синтеза (SiH_4 , SiHF_3 и SiH_2F_2) не удаляются из разрядного объема полностью и не выносятся из реактора. По-видимому, это приводит к их разрушению в плазме ОСР, а также под воздействием излучения разряда. Например, при давлении смеси 230 Торр, ($t_c = 50$ мин, $C_{\text{H}} = 1,7$ нФ, $U_3 = 22$ кВ) эффективность синтеза SiH_4 , SiH_2F_2 и SiHF_3 монотонно снижалась с увеличением частоты следования импульсов от $f = 1$ Гц до $f = 15$ Гц, а при частоте $f = 20$ Гц концентрации SiH_4 и SiH_2F_2 в обработанной смеси находились на грани обнаружительной способности аппаратуры. В то же время степень диссоциации SiF_4 растет с увеличением суммарной энергии, введенной в плазму. В условиях одинакового суммарного энергозатрата степень диссоциации была выше в тех случаях, когда смесь обрабатывалась при большей частоте следования импульсов. При этом стенки реактора покрывались серебристым налетом, что, вероятно, связано с термическим разрушением SiF_4 и фторсиланов, причем вплоть до образования кремния [20].

Таким образом, реальные энергетические затраты на получение фторсиланов SiHF_3 , SiH_2F_2 и моносилана при организации протока газа через разрядный промежуток и удалении образующихся продуктов из реактора могут быть меньше величин, оцененных на основании выборки экспериментов с $t_c = 30\text{--}50$ мин и $f = 1\text{--}2,5$ Гц при использовании как электродной системы с АР-катодом, так и системы с металлическими электродами. Организация газового потока в реакторе позволит также увеличить производительность установки за счет увеличения частоты следования импульсов. По-видимому, уменьшить энергозатраты на синтез удастся и за счет оптимизации соотношения парциальных компонентов смеси SF_4 : H_2 .

Заключение

В работе продемонстрирована возможность достаточно эффективного синтеза фторсиланов SiHF_3 , SiH_2F_2 и моносилана при обработке газовой смеси SiF_4 : $\text{H}_2 = 1:5$ импульсно-периодическим ОСР в замкнутом объеме. Энергетические затраты на синтез единицы массы SiHF_3 по энергии, запасенной в конденсаторе системы формирования ОСР, составили ≈ 57 кВт·ч/кг (182 эВ/молекула) и ≈ 29 кВт·ч/кг (91 эВ/молекула) по энергии, введенной в газоразрядную плазму, при обработке смесей в электродной системе с АР-катодом. В системе с металлическими электродами энергетические затраты на синтез единицы массы SiHF_3 по энергии, запасенной в конденсаторе системы формирования ОСР, составили ≈ 32 кВт·ч·кг⁻¹. Установлено, что энергозатраты на синтез фторсиланов не зависят от давления исходной смеси в диапазоне давлений $P = 60\text{--}350$ Торр. Проанализированы возможности снижения энергозатрат за счет уменьшения электрических потерь в разрядном контуре и организации газового потока в реакторе.

В заключение, авторы выражают искреннюю благодарность А.С. Кузнецову и В.Г. Певгову за инициирование работы.

Литература

1. Фалькевич Э.С., Пульнер Э.О., Червонный И.Ф. и др. Технология полупроводникового кремния. — М.: Металлургия, 1992.
2. Константинов В.О., Щукин В.Г., Шарафутдинов Р.Г. и др. // Прикладная физика. 2009. № 4. С. 95.
3. Туманов Ю.Н. Плазменные и высокочастотные процессы получения и обработки материалов в ядерном топливном цикле: настоящее и будущее. — М.: Физматлит, 2003.
4. Туманов Ю.Н. Плазменные, высокочастотные, микроволновые и лазерные технологии в химико-металлургических процессах. — М.: Физматлит, 2010.
5. Скороваров Д.И., Туманов Ю.Н., Кварацхели Ю.К., и др. // Патент Российской Федерации № 2050320. Заявка № 5062967/26 от 24.09.1992, опубликовано 20.12.1995.
6. Туманов Ю.Н., Кобзарь Ю.Ф., Кузьминых С.А., Хохлов В.А. // Физика и химия обработки материалов. 1996. № 5. С. 27.
7. Казанцев С.Ю., Кононов И.Г., Кудрявцев Е.М., и др. // Тезисы докладов на XI Международной (Звенигородской) конференции по физике плазмы и УТС, г. Звенигород, 11–15 февраля 2013, С. 183.
8. Булаев В.Д., Гусев В.С., Казанцев С.Ю., и др. // Квантовая электроника. 2010. Т. 40. № 7. С. 615.
9. Месяц Г.А., Королев Ю.Д. // УФН. 1986. Т. 148. № 1. С. 101.
10. Словецкий Д.И., Дерюгин А.А. Функции распределения электронов по энергиям и взаимодействие

электронов с многоатомными фторсодержащими газами: В кн. Химия плазмы. Ред. Смирнов Б.М.— М.: Энергоатомиздат, 1987.

11. Apollonov V.V., Belevtsev A.A., Firsov K.N., et al. // Proceedings of SPIE, International Conference on Atomic and Molecular Pulsed Lasers IV. 2002. V. 4747. P. 31.

12. Великанов С.Д., Гаранин С.Г., Домажиров А.П., и др. // Квантовая электроника. 2010. Т. 40. № 5. С. 393.

13. Казанцев С.Ю., Кононов И.Г., Подлесных С.В., Фирсов К.Н. // Квантовая электроника. 2010. Т. 40. № 5. С. 397.

14. Belevtsev A.A., Firsov K.N., Kazantsev S.Yu., Kononov I.G. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2004. V. 37. P. 1759.

15. Аполлонов В.В., Белевцев А.А., Казанцев С.Ю., и др. // Квантовая электроника. 2001. Т. 31. № 7. С. 629.

16. Свидерский М.Ф., Хорозова О.Д., Довганич Г.И., Иванова В.А. // Высокочистые вещества. 1994. № 1. С. 130.

17. Чупров Л.А., Сенников П.Г., Тохадзе Т.Г. и др. // Неорганические материалы. 2006. Т. 42. № 8. С. 1017.

18. Reents W.D., Wood D.L., Muijsce A.M. // Anal. Chem. 1985. V. 57. No. 1. P. 104.

19. Никонов В.И., Свидерский М.Ф., Кварацхели Ю.К., Хорозова О.Д. // Цветные металлы. 2003. № 4. С. 75.

20. Сенников П.Г., Голубев С.В., Шашкин В.И., и др. // Перспективные материалы. 2011. № 10. С. 160.

Possibility of application of self-sustained volume discharge in SiF_4 — H_2 mixtures for fluorosilanes synthesis

V. I. Aksinin¹, S. Yu. Kazantsev¹, I. G. Kononov¹, E. M. Kudryavtsev²,
A. A. Orlov³, S. V. Podlesnykh¹, K. N. Firsov¹, O. D. Khorozova³

¹A.M. Prokhorov General Physics Institute of the Russian Academy of Sciences
38 Vavilov Str., Moscow, 119991, Russia
E-mail: kazan@kapella.gpi.ru

²National Research Nuclear University «MEPhI»
31 Kashirskoye shosse, Moscow, 115409, Russia
E-mail: kudr51@mail.ru

³Scientific Research Institute of Chemical Technology
33 Kashirskoe shosse, Moscow, 115409, Russia
E-mail: 9165550800@mail.ru
Received December 20, 2013

The first results of research opportunities in the efficient conversion of SiF_4 to SiHF_3 , SiH_2F_2 and SiH_4 in plasma of volume self-sustained discharge ignited in a mixture of SiF_4 ; H_2 are presented. The characteristics of the discharge have been investigated, value of the energy cost of SiHF_3 synthesis $Q \approx 32 \text{ kW} \times \text{h} / \text{kg}$ was obtained. It was established that in the mixture pressure range $P = 60\text{--}350 \text{ Torr}$ value of Q is not dependent on pressure. The possibilities of reducing the energy consumption for the synthesis of fluorosilanes by reducing electrical losses in the discharge circuit and organization of the gas flow in the reactor are discussed.

PACS: 52.80.—s, 52.77-j, 51.50+v, 82.33Xj, 81.20.Ka

Keywords: silicon tetrafluoride, fluorosilanes, self-sustained volume discharge, Fourier transform infrared spectroscopy

References

1. E. S. Falkevich, E. O. Pulner, I. F. Chervonnyi, et al., *Technology of semiconductor silicium* (Metallurgiya, Moscow, 1992) [in Russian].

2. V. O. Konstantinov, V. G. Shchukin, R. G. Sharafutdinov, et al., *Prikladnaya Fizika*, No. 4, 95 (2009).

3. Yu. N. Tumanov, *Plasmic and High-Frequency Processes of Production and Treatment of Materials in Nuclear Fuel Cycle: the Present and the Future* (Fizmatlit, Moscow, 2003) [in Russian].

4. Yu. N. Tumanov, *Plasmic, High-Frequency, Microwave and Laser Technologies in the Chemical-*

Metallurgical Processes (Fizmatlit, Moscow, 2010) [in Russian].

5. D.I. Skorovarov, Yu. N. Tumanov, Yu. L. Lvartskheli, et al., RF Patent No. 2050320 (December 20, 1995).

6. Yu. N. Tumanov, Yu. F. Kobzar, S. A. Kuzminykh, and V. A. Khokhlov, *Fiz. Khim. Obrab. Mater.*, No. 5, 27 (1996).

7. S. Yu. Kazantsev, I. G. Kononov, E. M. Kudryavtsev, et al., in *Proc. XL Intern. (Zvenigirod.) Conf. Plasma Phys. Nucl. Fusion* (Zvenigorod, February 11-15, 2013), p. 183.

8. V. D. Bulaev, V. S. Gusev, S. Yu. Kazantsev, et al. *Quant. Electron.* **40**, 615 (2010).

9. G. A. Mesyats and Yu. D. Korolev, *Usp. Fiz. Nauk* **148**, 101 (1986).
10. D. I. Slovetskii and A. A. Deryugin, in *Plasma Chemistry*. Ed. by B. M. Smirnov (Energoatomizdat, Moscow, 1987).
11. V. V. Apollonov, A. A. Belevtsev, K. N. Firsov, et al. in *Proceedings of SPIE, International Conference on Atomic and Molecular Pulsed Lasers IV*. 2002. V. 4747. P. 31.
12. S. D. Velikanov, S. G. Garanin, A. P. Domazhirov, et al., *Quant. Electron.* **40**, 393 (2010).
13. S. Yu. Kazantsev, I. G. Kononov, S. V. Podlesnykh, K. N. Firsov, *Quant. Electron.* **40**, 397 (2010).
14. A. A. Belevtsev, K. N. Firsov, S. Yu. Kazantsev, I. G. Kononov, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37**, 1759 (2004).
15. V. V. Apollonov, A. A. Belevtsev, S. Yu. Kazantsev, et al., *Quant. Electron.* **31**, 629 (2001).
16. M. F. Sviderskii, O. D. Khorozova, G. I. Dovganich, V. A. Ivanova, *Vysokochistye Veshchestva*, No. 1, 130 (1994).
17. L. A. Chuprov, P. G. Stnnikov, T. G. Tokhadxe, et al., *Inorganic Materials* **42**, 1017 (2006)
18. W. D. Reents, D. L. Wood, and A. M. Mujsce, *Anal. Chem.* **57**, 104 (1985).
19. V. I. Nikonov, M. F. Svidzerskii, Yu. K. Kvaratskheli, O. D. Khorozova, *Tsvetnye Metally*, No. 4. 75 (2003).
20. P. G. Sennikov, S. V. Golubev, V. I. Shishkin, et al., *Perspektivnye Materialy*, No. 10, 160 (2011).