

# 大气压 Ar 射频容性放电模式转变的温度表征<sup>\*</sup>

郭卿超 张家良 刘莉莹 王德真<sup>†</sup>

(大连理工大学物理与光电工程学院, 大连 116024)

(2010 年 2 月 4 日收到; 2010 年 4 月 26 日收到修改稿)

在大气压条件下 Ar 气流中实现了容性射频放电  $\alpha$  和  $\gamma$  两种模式及其转变与共存. 由于放电处于开放大气环境中, 放电发射光谱中清晰地存在  $N_2 C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$  跃迁产生的第二正带和 OH 自由基  $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$  跃迁的 (0,0) 带光谱. 为了获得放电区域的宏观温度, 针对氮的第二正带 (0,1), (1,2) 两个谱带, 自编了拟合程序, 用温度拟合方法获得了氮分子的转动温度和振动温度, 研究了转动温度随放电功率的变化趋势, 得到了温度突变与放电模式转变的相关性. 利用 Lifbase 的发射光谱模拟功能, 进行了 OH 自由基  $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$  (0,0) 带光谱的模拟, 通过与实验光谱对比, 得到了与  $N_2$  光谱拟合结果相符的 OH 转动温度, 以及相似的随放电功率的变化趋势, 这说明放电空间内的中性物种达到了热平衡状态. 根据放电伏安特性变化, 放电模式转变对应的转动温度变化趋势得到确认, 并且与放电形态的照片符合.

**关键词:** 大气压等离子体, 放电模式, 转动温度

**PACS:** 52.70.-m, 52.77.-j

## 1. 引言

等离子体技术已在很多领域得到了应用, 特别是射频放电等离子体在薄膜沉积、刻蚀、材料表面处理、消毒等<sup>[1-3]</sup> 应用领域是主要放电形式. 与直流或者其他交流放电形式相比, 射频放电可以以较低电压实现大气压下的气体击穿, 因此可以以较低电离度产生密度较高的等离子体, 而且可以在保持放电气氛温度较低的同时产生大量的活性基团. 特别是射频容性耦合  $\alpha$  放电模式产生的等离子体, 空间均匀性较高, 是许多等离子体应用工艺所要求的<sup>[4-6]</sup>. 不过  $\alpha$  模式放电等离子体只能在功率密度不高而且不大的范围内存在, 对于某些应用领域, 如材料制备工艺和污染物处理, 工艺效率受到限制. 一旦等离子体密度高到一定阈值, 就会发生模式转变, 放电转为  $\gamma$  模式.  $\gamma$  模式等离子体的特点是局部电子密度高, 但是空间均匀性差<sup>[7]</sup>. 曾经有报道<sup>[8]</sup> 利用双频放电技术实现  $\alpha$  模式的高密度运行, 但是也存在模式转变问题. 因此研究射频容性放电等离子体的模式转变非常重要. 已经有大量针对氩

气的大气压射频放电研究报道, 从放电伏安特性的角度研究模式转变的条件和规律, 分析不同模式下等离子体的状态参数, 但是对于模式转变的物理机制研究仍然只是停留在理论推测的层次, 尚没有特别深入的实验分析研究, 特别是测量等离子体的温度、密度等基本状态参数, 进而研究等离子体的状态转变机制.

氩气射频容性放电伏安特性的研究证明<sup>[9]</sup>: 在一定的条件下, 特别是放电气压条件适当时, 两种放电模式可以共存, 其物理原因是两种放电模式的维持电压在不同气压下相对大小不同. 大气压下,  $\alpha$  模式的维持电压高于  $\gamma$  模式, 导致一旦放电电压超过  $\gamma$  模式的维持电压, 放电将完全转变为  $\gamma$  模式, 形成局部丝状微弧放电. 对于氩气的大气压射频放电特性实验研究发现: 氩气与氦气放电不同, 可以实现两个模式在大气压放电条件下的共存. 这种共存状态不但能够提高放电区域的等离子体密度, 而且空间均匀性好于纯粹  $\gamma$  模式. 本文中, 我们首先实现了大气压条件下的氩气流动体系中容性射频放电的  $\alpha$  和  $\gamma$  两个模式及其转变与共存, 利用伏安特性分析, 确认了两种模式的产生和共存. 为了光

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金 (批准号: 10775026, 10675028) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: wangdez@dlut.edu.cn

谱分析的目的,利用光学照相技术对放电区间的放电形态进行了分析,确认了两种放电模式的空间分布特点.光谱诊断技术对大气压等离子体的基本状态参量进行诊断是目前比较理想的方法<sup>[10]</sup>,与现有的其他诊断方法相比,光谱诊断技术具有灵敏度高、无干扰性、光谱信息丰富等优点.因而,利用光谱方法研究了放电空间的中性成分温度随功率等放电条件的变化趋势,分析了温度变化与放电模式转变的相关性.

## 2. 实验装置

实验所用等离子体发生器如图1所示,是一种平行板电极容性放电装置,放电电极是直径为35 mm,厚度为2 mm的不锈钢圆片,其上有均匀分布的直径为1 mm的小孔,所用的实验腔体为聚四氟乙烯材料,这样设计可以使电场方向和气流方向平行,更有利于将放电产生的活性基团带到放电空间之外,为应用工艺的开展提供方便.之所以选择孔电极结构,另一个重要目的是为了光学和光谱学测量.通过电极小孔,可以进行放电间隙发射光谱和光学图像的获得.因为放电间隙很小,为1 mm,无法直接针对放电间隙进行空间分辨测量.采用小孔电极的另一个优点是可以保持电极表面电位的均匀,因为小孔对放电间隙的电场分布影响不大,同时小孔的存在可以限制放电电流的过度集中,因为小孔内无法传导电流,有助于维持 $\gamma$ 模式放电区的稳定,限制 $\gamma$ 模式放电区的扩张.借助于这些小孔,可以方便地实现沿电极表面的空间分辨光学测量.

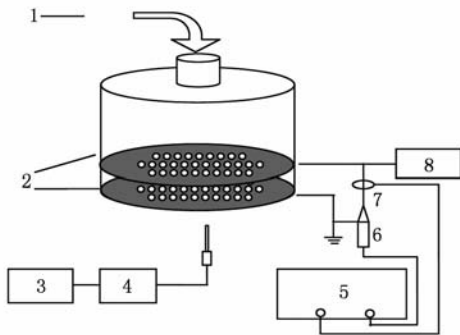


图1 实验装置 1 进气口, 2 电极板, 3 计算机, 4 光谱仪, 5 示波器, 6 电压探头, 7 电流探头, 8 射频电源

实验所用电源为13.56 MHz, 500 W 射频电源, 上极板为射频驱动极, 下电极板接地, 两电极之间的间距为1 mm. 测量放电间隙发射光谱使用的是美

国 Action 公司生产的 SpectraPro-2500i 光谱仪, 光栅密度为1200 g/mm, 最高光谱分辨率可达0.03 nm (狭缝10  $\mu$ m), 波长可扫描范围为200—900 nm. 由于受探测器光谱响应范围的限制, 实验中光谱测量范围限定在300—800 nm 之间. 放电区域的发光通过光纤实现收集, 并输送到单色仪之入射狭缝, 经光栅分光后, 焦平面处形成光谱并被 ICCD 接受实现光电转化和记录存储, 完成发射光谱测量. 放电过程中, 电极间隙的电压和放电间隙流过的电流波形使用电压探头、电流探头和示波器同步实现记录存储, 所用示波器为 Tektronix TDS2022, 电压探头为 Tektronix6015, 电流探头为 Pearson current monitor. 放电气体氩气由进气口经缓冲腔由射频驱动电极上的小孔流入放电间隙, 并经接地电极的小孔流出. 气体流量用质量流量计控制, 实验中研究了气流流量不同对放电的影响.

发射光谱测量所使用的发光收集光纤为光纤丛(19根 $\phi$ 0.19 mm的多模光纤排列为圆形收集端面), 光纤收集端面为 $\phi$ 1 mm, 收集角为10°. 光纤固定在可以平行于电极平面进行二维移动的支架装置上, 光纤方向垂直于放电电极平面. 通过相对于电极移动光纤, 可以实现电极平面范围内的空间分布发光和光谱测量. 为了避免放电受到光纤支架的干扰, 光纤端面距离接地电极保持为50 mm, 因此产生的空间分辨率为12 mm. 虽然分辨率不高, 但是保证了光收集效率, 从而使光谱信噪比足够好, 以保证光谱拟合对比结果的可靠. 如果要提高空间分辨能力, 可以把光纤收集端面靠近电极表面, 例如光纤端面距电极表面为10 mm 时, 空间分辨可以达到2.5 mm.

## 3. 双原子分子振转光谱和分子转动温度的光谱拟合原理

在给定的转动温度下, 辐射粒子在转动态上的布居服从波尔兹曼分布, 因此振转光谱中的谱线发射强度为<sup>[11]</sup>

$$I = \frac{2C_e v^4}{Q_r} S_J e^{\frac{-B' J'(J'+1)hc}{kT}}, \quad (1)$$

式中  $C_e v^4 / Q_r$  对于给定的振转谱带的所有谱线为常数,  $S_J$  为霍尔-伦敦因子,  $J'$  是较高能态的转动量子数,  $B'$  是给定电子态的分子振动常数,  $T$  为热力学温度,  $k$  为波尔兹曼常数.

选择放电中可以测到的某些双原子分子的振转谱带(本文分析的是  $N_2$  第二正带的 0—1 谱带和 OH 自由基的 A—X 谱带),先假设某一个转动温度,根据(1)式进行辐射强度分布模拟计算,计算结果与实验测量谱对比,如果不符合,改变转动温度,再次计算,直到计算谱与实验谱相符合,得到实验谱分布对应的分子转动温度.

## 4. 实验结果与分析

### 4.1. 放电模式和放电形态

在氩气流量为 3, 5, 8, 10 SLPM (standard liter per minute) 的条件下,利用光学照相方法观测放电现象,获得了相应的放电形态并且识别了放电模式.不同流量时,放电形态和模式变化随功率增加表现出基本一致的趋势,只是最小放电维持功率略有变化,在 8, 10 SLPM 流量时最小维持功率约为 12 W,而 3, 5 SLPM 的最小维持功率约为 10 W. 这种变化起因于流量变大时,放电区的电子由于碰撞而产生的消失速率略有增加所致.在本文所研究的放电结构条件下,当氩气流量足够大以至于已经充满放电区,即使气流再增加,放电区的空气含量基本不再变化,因此放电模式和形态的演变规律也基本稳定.以下的实验结果是在 5 SLPM 的流量条件下获得的.

氩气射频容性击穿与氦气不同,虽然都存在  $\alpha$  和  $\gamma$  两个模式,但是氦气中可以直接实现  $\alpha$  模式的击穿和稳定放电,在氩气中却很难直接实现  $\alpha$  模式.可能的原因是氦原子的亚稳态寿命很长,能够在放电间隙中大量存在,能够明显降低击穿电压和击穿功率密度.在氩气中,亚稳态寿命远远小于氦原子,不能在放电间隙积累足够的亚稳态物质,因此要实现氩气的射频击穿,需要先施加较大的过击穿功率,首先在某处产生丝状微弧放电,微弧形成的种子带电粒子成为氩气完全击穿的前提条件.然后再将功率调节,使之分别处于  $\alpha$  或者  $\gamma$  模式,或者二者的混合模式.

射频容性放电  $\alpha$  或  $\gamma$  模式,放电发光形态明显不同<sup>[12]</sup>,  $\alpha$  模式放电宏观上呈现均匀暗淡的发光,并且很容易充满整个放电间隙.  $\gamma$  模式放电则相反,表现为局部集中的明亮发光,宏观看来,呈现为随机分布在放电间隙的明亮丝状区域.因此利用光学

摄影相机摄取的放电区间光学照片,从中可以发现和区分两种放电模式的发光强度分布的不同.如图 2 所示就是利用光学相机拍摄的不同条件下放电区间的照片.所有照片的曝光时间设定为  $80 \mu s$  ( $1/1200$ ).图 2(a), (b), (c) 分别是不同放电功率下,平行于电极平面方向的放电间隙照片, (d) 是 80 W 放电功率时垂直于电极方向的发光照片,电极上的小孔分布情形清晰可见. 40 W 放电功率是维持  $\alpha$  模式放电的功率上限,相应功率密度为  $56 W/cm^3$ . 大于此功率密度时,放电间隙某处将出现电极鞘层击穿,形成局部  $\gamma$  模式放电,如图 2(b) 所示,在照片右侧出现了数条淡粉色的丝状区域,同时其他区域的  $\alpha$  模式仍然存在并且充满放电间隙,形成两种模式共存的放电模式.但是  $\alpha$  模式区的发光强度明显减弱(与(a)相比).这是因为一旦形成  $\gamma$  模式放电,鞘层击穿后鞘层压降消失致使放电间隙电压明显降低,放电间隙电场强度的降低导致了在放电空间内发生的电离频率降低,  $\alpha$  模式正是空间电离所维持的,因而  $\alpha$  模式区域的电子密度下降,发光减弱.

同样在图 2(b) 图中,  $\gamma$  模式区域的丝状形态也并不是很清楚,左右两条丝状发光可以分辨,但居中的  $\gamma$  放电由于发生在更深处,导致相机聚焦不佳,因而模糊不清.图 2(c) 中,随着放电功率进一步增加,照片右侧的  $\gamma$  模式区域内,放电丝明显增多,亮度也有所增加,这是因为放电功率的增加需要更多的电流通道承载放电电流,更多的  $\gamma$  模式丝状通道应运而生.于此同时,其他  $\alpha$  模式区域的发光强度则变化很小,这意味着放电间隙内的电场强度基本不变(在伏安特性分析部分将证实这一点),因此可以预计放电功率的增加部分主要消耗在  $\gamma$  模式区域,增大了  $\gamma$  模式区的体积.

图 2(d) 显示的是与(c)对应的放电发光的径向分布,右侧的  $\gamma$  模式区也呈现出颜色和亮度的不同,  $\gamma$  模式区内小孔的视觉尺寸被放大,这是因为  $\gamma$  模式放电的电子密度较高,因此能够扩散进入小孔内并溢出放电间隙之外,形成了以诸小孔为中心的弥散发光区域所致.

在  $\alpha$  模式区域内也存在一些疑似丝状放电发光区,其实这些发光丝是气体经过上下电极的小孔的流动所致,发光丝连接的是上下电极的小孔.之所以形成发光丝,是因为气体流速较小,气体流过位置的空气杂质浓度较低,而小孔之间气体流动更慢,流动的氩气中气体纯度更高,因而电离和发光

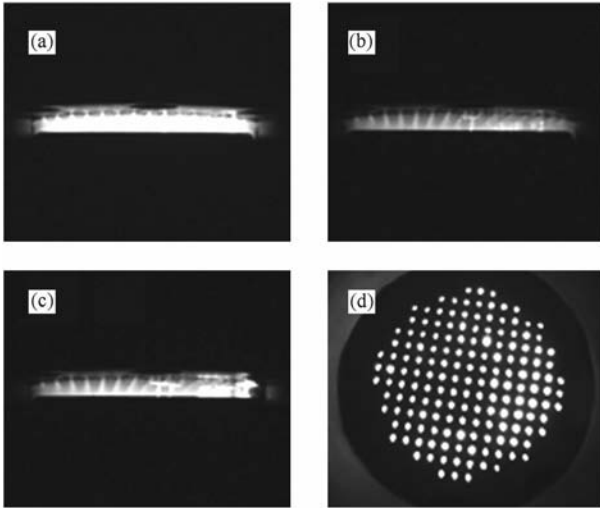


图2 不同功率下的放电形态侧面和正面照片 (a) 侧面40 W, (b) 侧面60 W, (c) 侧面80 W, (d) 正面80 W

稍强.

在不同放电功率下,放电呈现不同放电模式.在10—120 W的放电功率范围内,放电的发光形态经历了 $\alpha$ 模式的建立、 $\alpha$ 模式的扩展、 $\alpha$ 模式的充满、 $\alpha$ 模式向 $\gamma$ 模式的转变、 $\alpha$ 与 $\gamma$ 模式的共存和 $\gamma$ 模式的扩展等阶段.当外加功率10 W时, $\alpha$ 模式放电刚好能维持,放电区域的覆盖面积只有电极面积的1/3略小,相应的功率密度为45 W/cm<sup>3</sup>.随着增大外加功率,放电面积明显变大.当放电功率为30 W时,放电覆盖整个电极表面,相应的功率密度为42 W/cm<sup>3</sup>.继续加大外加功率,放电区域发光强度有所增减.一直到功率达到40 W,开始出现丝状 $\gamma$ 模式放电,如图2(a)所示.继续增加功率,丝状放电的区域变多,发光亮度增加.

#### 4.2. 放电模式与伏安特性

大气压射频容性放电的伏安波形是区分和判断放电模式的重要依据和方法.图3是放电功率为50 W时的电压和电流波形,从中可见电流和电压都几乎是规则的正弦波形,而且电流波形超前于电压波形,这意味着放电间隙内存在容性位移电流和放电传导电流,是典型的容性射频放电.根据电流和电压波形,可以计算相应放电功率下的放电电压和电流的有效值( $V_{\text{rms}}$ 和 $I_{\text{rms}}$ ),从而可以得到放电回路的视在功率( $P = V_{\text{rms}} \times I_{\text{rms}}$ ),放电有功功率( $P_r$ )可以从射频电源匹配网络中的功率计读取,从而得到电流和电压波形之间的相位差 $\theta$ ( $P_r = P \cos \theta$ ).虽然利用电流和电压探针直接得到了放电电压和电

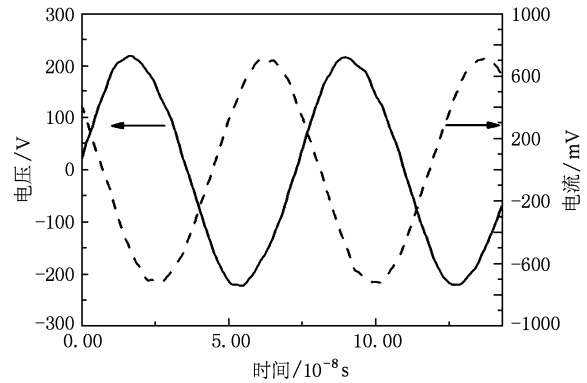


图3 电流电压波形曲线

流波形,但是不能直接从二者的位相关系得到相位差,这是因为所使用的电流和电压探针对于电压和电流信号的延时不同,并且具有不确定性,难于准确测定及校正,这种延时的差异虽然很小(纳秒量级),但是相对于射频周期(74 ns)是不可忽略的.

射频容性放电的两种模式,放电回路电流与电压之间的伏安特性明显不同,而且二者间的相位差也随模式的转变而改变<sup>[13]</sup>.图4是放电功率在10—160 W(间隔为10 W)之间变化时的放电伏安特性曲线和电流-电压的相位差.可以明显看出两条曲线都分为不同的两个部分,以 $V_{\text{rms}} = 140$  V(对应的放电功率为50 W)为分界.放电功率在50 W以内(10—40 W),放电电压改变(80—140 V)几乎正比地导致电流增加(180—410 mA),这是 $\alpha$ 模式的伏安特性.放电功率从50 W开始,伏安曲线明显变陡,电压增加很小(140—160 V),电流增加几倍(410—1100 mA),这是 $\gamma$ 模式放电的存在导致的. $\gamma$ 模式的存在使得放电间隙的电压随功率增加基本不变,因此放电空间的电场也基本不变,从而导致了模式共存阶段 $\alpha$ 放电区的发光强度基本不随功

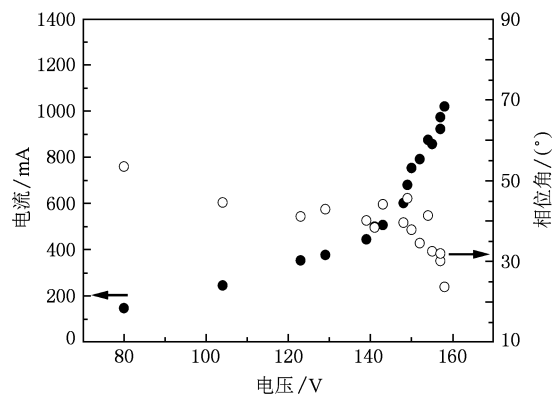


图4 伏安特性曲线

率变化(在上一节中提及到).

$\gamma$  模式与  $\alpha$  模式的共存阶段, 放电回路的电流变化主要是  $\gamma$  模式电流通道的增加所产生, 使得伏安曲线一方面表现为  $\gamma$  模式放电伏安曲线的特点<sup>[14]</sup>, 另一方面也继承着  $\alpha$  模式的特性. 但是由于  $\gamma$  模式放电的电流密度远大于  $\alpha$  模式, 使得模式共存阶段的伏安曲线基本表现为  $\gamma$  模式的伏安特性. 同样的相位差也呈现类似的变化,  $\alpha$  模式阶段相位差较大, 而且随功率变化不大; 模式共存放电阶段, 相位差随功率增加快速减小到  $20^\circ$  附近.

#### 4.3. 放电模式与放电区间的温度

大气压射频容性放电的两种模式, 放电功率密度存在巨大差别.  $\alpha$  模式下放电功率均匀分布在整個放电体积内, 随着放电功率增加, 放电体积在增加, 因此放电功率密度维持在击穿功率密度附近.  $\gamma$  模式放电时, 放电功率集中在狭小的丝状导电通道内, 虽然整体放电功率没有急剧增加, 但是功率密度却因为高度集中而急剧增加了, 通道内电子密度很大, 放电通道内的放电气体原子被显著加热, 导致气体温度升高. 可以预计  $\alpha$  模式和  $\gamma$  模式下, 放电区间气体的温度应显著不同.

利用垂直于电极平面的光纤集光系统和光路分布设置, 可以收集放电电极中心区域直径为 12 mm 圆形范围的放电体积的发光. 收集到的发光用于记录不同放电功率条件下放电空间的发射光谱. 以实验测量的发射谱为基础, 采用自编的光谱模拟程序, 对比模拟谱与实验谱, 可以得到放电气体的转动温度和振动温度.

放电功率为 100 W, 放电在 300—360 nm 波长范围的发射光谱如图 5 所示. 放电的发射全波段光谱主要由 Ar 的原子谱线,  $N_2$  的第二正带和 OH 的 A-X 发射带组成. 其中后两者是环境空气掺入放电间隙内形成杂质产生的. Ar 的原子谱线主要集中在 380—900 nm 广阔范围内. 为了利用双原子基团的发射谱带计算放电气体温度, 同时避开 Ar 的原子谱线(谱线强度很大), 将光谱范围限定在 300—360 nm 之间. 发射谱图中存在  $N_2$ , OH 和 NH 等杂质的谱带说明放电间隙内不是纯净的氩气环境. 由于氩气流主要在两个电极的对应小孔之间流动, 因此相邻小孔之间的区域内空气杂质的含量应较大, 这是产生放电照片中  $\alpha$  模式区域内疑似丝状发光区存在的根源所在.

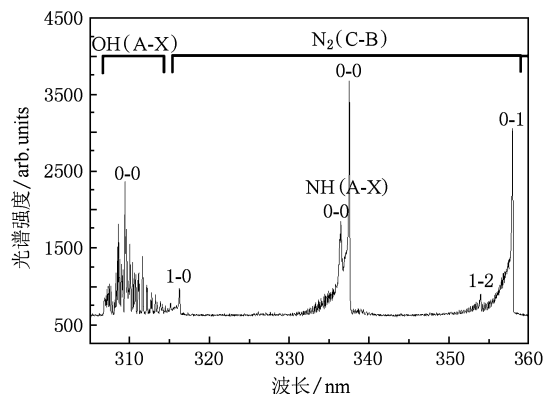


图5 在 305—360 nm 区间的发射光谱

##### 4.3.1. $N_2(C^3\Pi_u-B^3\Pi_g)$ 谱带与放电转动温度

$N_2$  第二正带对应于电子态  $C^3\Pi_u$  和  $B^3\Pi_g$  之间的跃迁, 其中强度最大的几个振动带位于 330—360 nm 之间, 存在 (0,0), (0,1), (1,1), (1,2) 四个带头<sup>[15,16]</sup>, 如图 5 所示. 带头波长分别是 337.13, 357.69, 333.89 和 353.67 nm. 其中 (1,1) 带强度最弱, (0,0) 带的附近有 NH(0,0) 带干扰, 所以选取 (0,1), (1,2) 两个带进行模拟计算得到振动和转动温度. 如果给定转动温度  $T_r$ , 带头 (1,2) 对带头 (0,1) 的相对强度对振动温度  $T_v$  的变化非常敏感, 因此可以利用带头 (1,2) 相对强度的变化来确定振动温度. 转动温度可依谱带内  $P$ ,  $R$  和  $Q$  三支的相对强度分布来确定. 其中  $P$ ,  $R$ ,  $Q$  为转动光谱中三个线系, 它们叠加后的结果即为我们所观察到的转动光谱.

将在不同振动温度和转动温度下模拟计算得到的模拟光谱与实验光谱进行比较, 与实验光谱最为类似的模拟光谱对应的振动温度与转动温度就是实验光谱所对应的放电条件下的放电区间的转动温度和振动温度. 图 6 是一个模拟光谱与实验光谱进行对比及其符合程度的例子: 实验功率为 100 W 时, 放电区间振动温度为 1600 K, 转动温度为 900 K.

##### 4.3.2. OH( $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$ ) 谱带与放电转动温度

放电发射光谱中存在 OH( $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$ ) 谱带, 是因为空气中的  $H_2O$  渗入放电间隙,  $H_2O$  和电子发生碰撞而解离产生 OH, 反应过程如下:  $e + H_2O \rightarrow e + H + OH$ . OH 作为放电过程中的新生产物, 其转动温度与  $N_2$  的转动温度比较, 可以显示放电体系中不同分子之间的热平衡程度, 同时也能反映出放电体

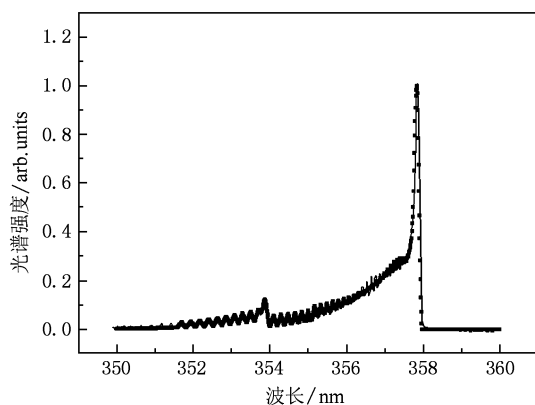


图6 实验及模拟光谱比较 实线为实验功率 100 W 的实验光谱,黑点为振动温度 1600 K,转动温度为 900 K 的模拟光谱

系中不同分子的转动分布的平衡状态.

OH 自由基的转动谱结构模拟已经有许多商业模拟程序可以进行计算. 选用双原子分子光谱模拟软件 LIFBASE<sup>[17]</sup> 对 OH ( $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$ ) (0,0) 带光谱进行模拟计算. 图 7 是放电功率 100 W 时,实验发射光谱中 OH ( $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$ ) (0,0) 带与模拟光谱之间对比和符合程度的例子,由于只对 OH 的一个振动带进行了模拟和比对,所以无法得到相应的振动温度,只得到了转动温度为 900 K.

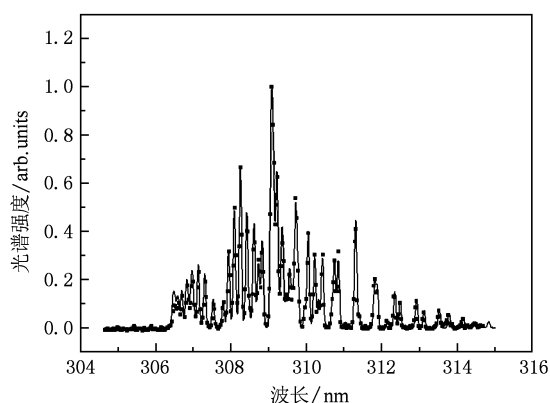


图7 放电功率 100 W 时实验发射光谱中 OH( $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$ ) (0,0) 带与模拟光谱对比 黑点为实验测得的光谱,实线为转动温度为 900 K 的拟合光谱

在 40—120 W 放电功率条件下,分别测量放电间隙的发射光谱,并根据上述方法计算了  $N_2$  第二正带的振动和转动温度,以及 OH ( $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$ ) (0,0) 带的转动温度,表 1 是计算结果一览表.

可以看出,在几乎所有的功率下,用 OH 光谱得到的转动温度与  $N_2$  谱带得到的转动温度基本是相等的,说明放电体系内所有分子、自由基之间的转

动分布达到了热平衡. 大气压条件下热碰撞是如此频繁,使得分子的热运动和转动之间完全达到了热平衡,通过转动谱线的模拟能够可靠地获得放电气体的热力学温度. 表中列出的放电功率从 40 W 开始,是因为在 40 W 以下的功率条件下, $\alpha$  模式放电没有充分占据整个放电体积,因此局部的放电气体温度与整体放电功率不能很好地相关. 其实放电区域的气体温度是与放电的局部功率密度相关,不是与放电功率相关. 只有放电充满全部空间时,放电功率密度才与放电功率成正比,从而使放电功率与气体温度关联起来.

表 1 流量为 5 SLPM 转动温度和振动温度随功率的变化

| 功率/W | 氮拟合    |        | OH 拟合  |
|------|--------|--------|--------|
|      | 振动温度/K | 转动温度/K | 转动温度/K |
| 40   | 1750   | 540    | 600    |
| 60   | 1700   | 600    | 650    |
| 80   | 1600   | 780    | 780    |
| 100  | 1600   | 900    | 900    |
| 120  | 1550   | 950    | 950    |

转动温度随放电功率的变化趋势显示,在功率小于 60 W 时,转动温度随功率的增加缓慢,每增加 20 W 温度仅升高 50 K 左右. 当功率大于 60 W 时,转动温度随功率的增加加快,每增加 20 W,温度增幅达到 120 K. 上述现象说明在 60 W 功率附近,放电模式也发生了变化,即在  $\alpha$  模式的基础上明显出现了  $\gamma$  模式放电区域. 其实在 40—60 W 之间,放电空间内已经有  $\gamma$  模式存在,但是由于  $\gamma$  模式的空间占有率仍然较小,所以在放电温度的变化上还不够明显. 放电气体温度的这种变化趋势与模式转变相应的伏安曲线变化规律基本是一致的. 因此借助于放电区域的温度变化也可以判断放电模式的转变.

放电功率维持 60 W 不变,在 3,5,8,10 SLPM 不同流量下,利用同样的光谱对比方法获得了放电区的转动温度. 随着气体流量增大,转动温度从 700 K 降低至 580 K,而且 8,10 SLPM 流量时,转动温度为 600 K 和 580 K,几乎没有变化,振动温度也基本不变. 如果认为氙气的初始温度为 300 K,流经放电区后温度升高,不同流量时,升高幅度为 400—280 °C. 经估算气体平均流速大约分别为 0.4,0.7,1.1,1.4 cm/s,转动温度随流速增大略有降低的原因可能是因为流速较小时,气体在放电空间停留时间较长,被碰撞加热更显著所致.

对于本文的温度分析,需要说明如下:实验放电区域面积只有约  $10\text{ cm}^2$  (直径为  $35\text{ mm}$ ),而收集光纤的集光区域为直径  $12\text{ mm}$  的圆形区域,因此可以认为发射光谱是整个放电区域的空间积分光谱.在放电区域内虽然只是局部存在  $\gamma$  模式放电,但是考虑到大气压条件下的有效热扩散,可以认为  $\gamma$  模式放电产生的热量能够在整个区域达到平衡,所以发光收集区域的变动对转动温度测量结果没有明显影响.

## 5. 结 论

在容性平行板电极结构中实现了射频大气压放电的  $\alpha$  模式和  $\gamma$  模式,以及不同于氦气放电特性的两种模式的共存状态.利用放电间隙的光学照片对两种放电模式进行了区分和确认,并且结合伏安特性分析研究了放电模式的建立、转变和演化规

律.在此基础上,利用发射光谱模拟的方法,分析了放电气体温度随模式演变的变化规律.得到了如下结论:

1)在相同功率条件下, $\text{N}_2$  第二正带模拟计算获得了放电气体的振动和转动温度,并且与利用  $\text{OH}^-$  的转动谱模拟得到了几乎相同的转动温度,说明此类放电气体中产生的自由基和分子之间达到了热平衡,而且分子的转动态布居也与分子的热运动达到了平衡;

2)随放电功率的增加,放电气体的振动和转动温度逐步接近,即振动温度逐步减低而转动温度逐步升高,分子内部能态的布居与转动布居逐步向热平衡过度;

3)射频源功率在  $40\text{--}60\text{ W}$  时,出现明显的放电模式转变,气体转动温度及伏安曲线表现出一致的变化趋势.因此放电气体的热力学温度变化也能够显现放电模式的转变.

- 
- [1] Sergei E A, Michael L H 2005 *Chemical Vapor Deposition* **11** 457
  - [2] Nowling G R, Babayan S E, Jankovic V, Hicks R F 2002 *Plasma Sources Science and Technology* **11** 97
  - [3] Li Y P, Liu Z T 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5022 (in Chinese) [李阳平、刘正堂 2009 物理学报 **58** 5022]
  - [4] Sarra-Bournet C, Turgeon S, Mantovani D, Laroche G 2006 *Plasma Processes and Polymers* **3** 506
  - [5] Ladwig A, Babayan S, Smith M, Hester M, Highland W, Koch R, Hicks R 2007 *Surface and Coatings Technology* **201** 6460
  - [6] Leveille V, Coulombe S 2006 *Measurement Science and Technology* **17** 3027
  - [7] Shang W L, Wang D Z, Kong M G 2007 *Chin. Phys.* **16** 485
  - [8] Shi J J, Kong M G 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 023306
  - [9] Moon S Y, Rhee J K, Kim D B, Gweon B M, Choe W 2009 *Current Appl. Phys.* **9** 274
  - [10] Chen B, Zheng Z J, Ding Y K 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 711 (in Chinese) [陈波、郑志坚、丁永坤 2001 物理学报 **50** 711]
  - [11] Huber K P, Herzberg G 1979 *Molecular Spectra and Molecular Structure* (New York: Van Nostrand Reinhold) p95
  - [12] Shi J J, Kong M G 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 111502
  - [13] Zhu W C, Wang B R, Yao Z X, Pu Y K 2005 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38** 1396
  - [14] Park J, Henins I, Herrmann H W, Selwyn G S, Hicks R F 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 20
  - [15] Piper L G 1993 *J. Chem. Phys.* **99** 3174
  - [16] Hao Z Q, Zhang J, Yu J, Zhang Z, Zhong J Y, Zang C Z, Jin Z, Wang Z H, Wei Z Y 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 299 (in Chinese) [郝作强、张杰、俞进、张喆、仲佳勇、臧充之、金展、王兆华、魏志义 2006 物理学报 **55** 299]
  - [17] Luque J, Crosley D R 1999 *LIFBASE: Database and Spectral Simulation Program* (Version 2.0.53) SRI International Report MP99-009

## Characterization on the temperature of radio frequency argon capacitive discharge mode transition at atmospheric pressure<sup>\*</sup>

Guo Qing-Chao Zhang Jia-Liang Liu Li-Ying Wang De-Zhen<sup>†</sup>

(School of Physics and Optoelectronic Technology, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

(Received 4 February 2010; revised manuscript received 26 April 2010)

### Abstract

The mode transition and coexistence were investigated in atmospheric pressure argon radio frequency capacitive discharge. By use of a program compiled by the authors for the nitrogen's second positive band simulation, comparison between the experimental and simulated spectra of band (0, 1) and (1, 2) was used to determine the rotational and vibrational temperatures of N<sub>2</sub>. The trends of vibrational and rotational temperatures with discharge power were studied to observe the temperature jump corresponding to the discharge mode transition. Utilizing a well-known software named Lifbase, the simulated spectra of OH (A—X) (0, 0) was calculated to obtain the rotational temperature of OH by comparing with the experimental OH (A—X) (0, 0) band. The calculated rotational temperature of OH is well consistent with the result of nitrogen's second positive band, which shows that the neutral species are at thermal equilibrium in the space of discharge. According to the current-voltage characteristic, the temperature jump corresponding to the discharge mode transition was confirmed in accordance with the photograph of discharge.

**Keywords:** atmospheric pressure plasma, discharge mode, rotational temperature

**PACS:** 52.70.-m, 52.77.-j

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10775026, 10675028).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: wangdez@dlut.edu.cn