

高压均匀直流辉光放电等离子体的光学特性

王建龙 丁芳 朱晓东

Optical properties of direct current glow discharge plasmas at high pressures

Wang Jian-Long Ding Fang Zhu Xiao-Dong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 045206 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.045206

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.045206>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I4>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

软X射线激光探针诊断高Z材料等离子体

Diagnosis of high-Z plasma with soft X-ray laser probe

物理学报.2014, 63(21): 215203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.215203>

利用软X射线双频光栅剪切干涉技术诊断金等离子体

Diagnoses of Au plasma with soft X-ray double frequency grating interference technique

物理学报.2014, 63(12): 125210 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.125210>

多目标优化推断内爆芯部温度和密度空间分布

Deduction of temperature and density spatial profile for implosion core by multi-objective optimization

物理学报.2014, 63(12): 125209 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.125209>

双层丝阵Z箍缩电流分配实验研究

Experimental study on current division of nested wire array Z pinches

物理学报.2013, 62(17): 175203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.175203>

高压直流辉光CH₄/H₂等离子体的气相过程诊断

A diagnosis of gas-phase processes in a high pressure DC CH₄/H₂ plasma

物理学报.2013, 62(16): 165204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.165204>

高压均匀直流辉光放电等离子体的光学特性*

王建龙¹⁾ 丁芳²⁾ 朱晓东^{1)†}

1) (中国科学技术大学近代物理系, 合肥 230026)

2) (中国科学院等离子体物理研究所, 合肥 230031)

(2014年6月24日收到; 2014年8月28日收到修改稿)

在高压(大于100 Torr, 1 Torr = 1.33322×10^2 Pa)平板位形的均匀直流辉光放电中, 一定条件下观察到平行排列的明暗相间的等离子体辉纹. 结合等离子体的光发射谱诊断, 研究了气体组分对等离子体光学特性的影响. 研究发现, 随着甲烷浓度的增加, 辉纹间距减小, 相应的电子激发温度降低. 当甲烷浓度增加时, 等离子体中低电离能的粒种增加, 粒子平均电离能减小, 这种情况下, 电子被电场加速较短的距离所获得的能量就可以激发粒子, 产生可见的光发射, 表现为辉纹间距缩短. 随着氩气的引入, 能够观察到明显的辉纹, 且增大氩气含量, 辉纹间距增加, 这与氩的较高电离能有关, 而相应的电子激发温度增加. 研究结果表明, 随着工作气体的改变, 等离子体辉纹间距呈现出一种对电子温度的响应.

关键词: 等离子体, 高压, 光学特性

PACS: 52.70.-m, 52.70.Kz, 52.80.Hc, 52.80.Vp

DOI: 10.7498/aps.64.045206

1 引言

相对于低气压放电, 高压直流辉光放电等离子体具有更多的活性粒子, 在功能薄膜等离子体化学气相沉积中有着重要的应用价值^[1,2]. 但随着工作气压的升高, 辉光放电的电流密度增加, 气体温度升高, 在低气压条件下通常不会显现的不稳定机理如热不稳定性^[3]和电子不稳定性^[3]增强, 容易诱发辉光放电向弧放电转变. 任何介入式等离子体诊断都会引起扰动, 很难在实验中实现.

在高压辉光等离子体中, 碰撞导致的活性粒子之间复杂的相互作用, 使等离子体可在较宽的波长范围产生强电磁辐射, 尤其是在200—800 nm波长范围内存在着大量的谱线. 另一方面, 带电粒子间的相互作用也使等离子体本身产生自组织现象, 如在等离子体背景下形成的自组织辉纹. 对这些光学特性的诊断是研究高压等离子体特性和放电机理的理想非介入方法.

在直流辉光放电的早期研究中人们就已观察到辉纹现象^[4]. 一般来说, 等离子体中辉纹产生的原因复杂, 尽管有较长的研究历史, 但至今对辉纹的形成机理仍存在着很多争论. 用离子波、分步电离以及表面电荷效应等来说明辉纹的形成机理^[5], 很好地解释了一些实验观察. 辉纹现象常出现在低气压直流、高频等辉光放电条件下, 但近年来在高压介质阻挡放电中也观察到了发光条纹^[6-9].

由于辉纹对电子状态和电离特性相当敏感, 但高压辉光放电的气体温度升高, 气体温度对放电气体的激发、电离特性有较大的影响, 从而破坏了电子的碰撞激发、电离规律, 使辉纹不易被观察到. 目前, 高压下平板电极位形直流辉光等离子体被应用于功能薄膜沉积, 但对辉纹的观察和实验研究还未见报道. 对高压均匀直流辉光等离子体的辉纹研究, 无论是对辉纹本身的机理还是对高压辉光放电过程的理解都是有意义的. 本文进行了平板电极位形高压直流辉光放电, 在实验上首次观察到等离子体辉纹, 并开展了气体组分对辉纹影响的

* 国家自然科学基金(批准号: 11075158, 11375192)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xdzhu@ustc.edu.cn

实验研究.

2 实验介绍

实验装置如图1所示. 在不锈钢真空室中平行放置一对钨电极, 分别作为阴极和阳极. 在两电极间施加直流电压, 形成辉光放电. 放电的工作气体是由氩气、甲烷和氢气组成的混合气, 工作气压为 16 kPa, 气体流量为 200 sccm (1 sccm = 1 mL/min). 电流维持在 17 A. 实验过程中, 使用电荷耦合器件相机对正柱区的等离子体试样进行记录, 利用 TRIAX550 型光谱仪对 400—800 nm 波长范围内正柱区等离子体的发射光谱进行了诊断, 利用示波器测量两电极间的电压.

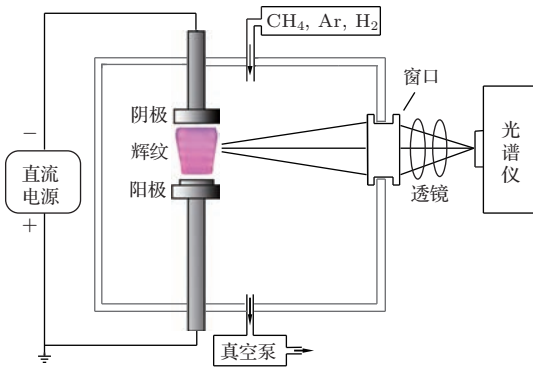


图1 高气压直流辉光放电等离子体实验装置示意图

3 结果与讨论

图2是在不同甲烷浓度条件下等离子体的放电照片. 从图2可以清楚地看出, 等离子体辉纹随甲烷浓度的增加呈现出规律性的变化. 随着甲烷浓度的上升, 正柱区的厚度增加. 在甲烷浓度为 0.1% 时, 能够在正柱区观察到明显的辉纹, 且辉纹间距较大; 当甲烷浓度为 1% 时, 辉纹间距明显减小, 且辉纹向阴极区位移; 甲烷浓度继续增加至 3% 时, 已很难直接观察到正柱区内的辉纹, 如图2(c)所示.

图3是在高气压条件下典型的正柱区等离子体发射光谱. 光谱中存在着密集的发射谱线, 这说明等离子体中存在着大量活性粒子. 该区域中的一些分立谱线分别为氢原子 Balmer 线系中的 H_α , H_β , H_γ , H_δ 谱线以及 Ar 在 750 和 811 nm 两处的特征谱线. 选取氢原子 Balmer 线系中的 H_β ($n = 4 \rightarrow 2$),

H_γ ($n = 5 \rightarrow 2$), H_δ ($n = 6 \rightarrow 2$) 三条谱线进行直线拟合, 得到了电子激发温度, 近似地反映高气压下电子温度的高低.

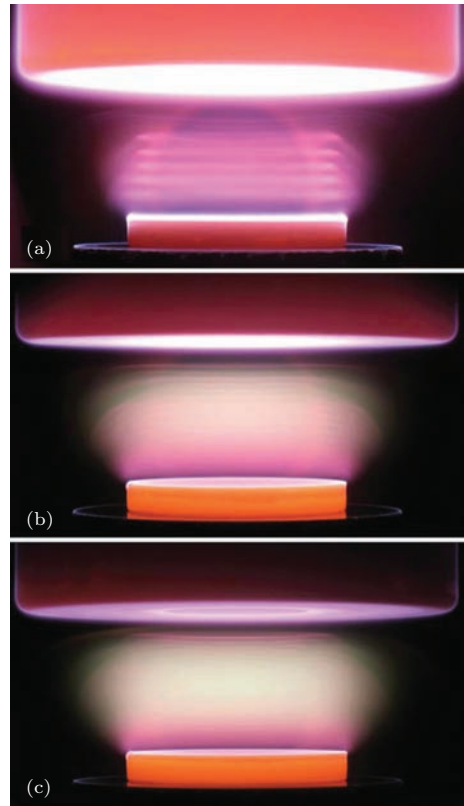


图2 (网刊彩色) 不同甲烷浓度下等离子体的放电照片 (a) 0.1%; (b) 1%; (c) 3%

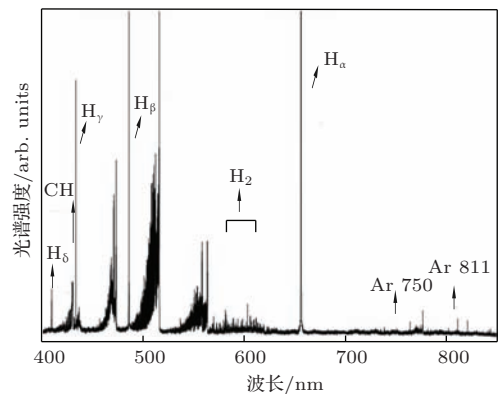


图3 在气压为 16 kPa, 甲烷浓度为 1% 条件下正柱区内等离子体的发射光谱

随着甲烷浓度的变化, 相应的电子激发温度如图4所示. 甲烷浓度变化的过程中放电电压也有所改变, 在图4中也一并给出. 随着甲烷浓度的增加, 放电电压增加, 电子激发温度略有减小.

在正柱区内观察到的平行排列辉纹是正柱区内电子密度空间波动的表征, 反映了该区域电子密

度的周期性变化. 目前通常认为, 直流等离子体中的这种条状辉纹是一种典型的非平衡体系中的自组织现象, 是一种与等离子体中输运现象、电离过程和电子动力学特征及电场分布相关的电离波所引起的^[10]. 由于该电离波的频率比较低, 所以能够直接观察到. 电离波的振荡频率可以写成:

$$\omega = \omega_r + ir, \quad (1)$$

其中, ω_r 为复频率的实部, r 为复频率虚部. 当 $r > 0$ 时, 会引起等离子体不稳定, 易在等离子体中发生振荡, 振荡沿电场方向增长, 形成波动, 进而形成放电中的辉纹现象. 由于阴极层附近有较高的电场强度, 这种辉纹是稳定的. 离阴极区越远, 电场梯度越小, 阴极层的影响越小, 辉纹越弱, 直至消失^[11].

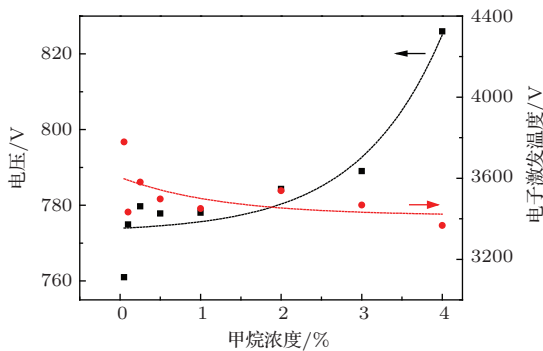


图4 电压及电子激发温度随甲烷浓度的变化

在图2中, 随着甲烷浓度的增加, 观察到辉纹间距变小, 这与不同粒子的电离能有关. 根据辉纹间距公式^[12]

$$L = \frac{U^0}{eE}, \quad (2)$$

其中, U^0 为平均电离能; e 为电荷常数; E 为电场强度; L 为辉纹间距, 即电子在电场 E 中获得激活平均电离能的距离. 由于甲烷的电离能 (12.6 eV) 小于氢分子的电离能 (15.4 eV), 另外甲烷浓度增加时, 甲烷解离产生更多的 CH , C_2 等活性粒子^[13], 其电离能更低, 从而导致 U^0 下降; 当甲烷浓度增加时, 放电电压逐渐升高, 电场强度 E 随之增加, 导致辉纹间距 L 随甲烷浓度的增加而减小. 当甲烷浓度增加时, 低电离能的活性粒子增加, 导致气体平均电离能减小, 电子在较短的距离内被电场加速获得的能量就可以激发气体分子, 产生光发射, 表现为等离子体辉纹缩短, 如图2所示. 这与光谱诊断的电子平均激发温度下降相符合.

在实验过程中, 氙气的含量对辉纹的变化也有明显的影响. 在甲烷和氢气的流量不变时, 通过改变氙气含量, 观察到等离子体式样照片如图5所示. 从图5可以看出, 随着氙气含量的增加, 等离子体的光亮度下降. 在没有氙气掺入时, 辉纹很难直接观察到(图5(a)). 当氙气加入后, 正柱区开始出现可观察到的辉纹; 当氙气的浓度为2%时, 辉纹变得非常明显; 当浓度继续增加到4%时, 辉纹扩展到正柱区的中间, 而且辉纹的间距也有所增加, 但变化不大(图5(c)). 图6是放电电压及电子激发温度随氙气含量的变化. 随着氙气含量的增加, 电极间的电压逐渐降低, 正柱区内的电子激发温度随着氙气的增加而升高.

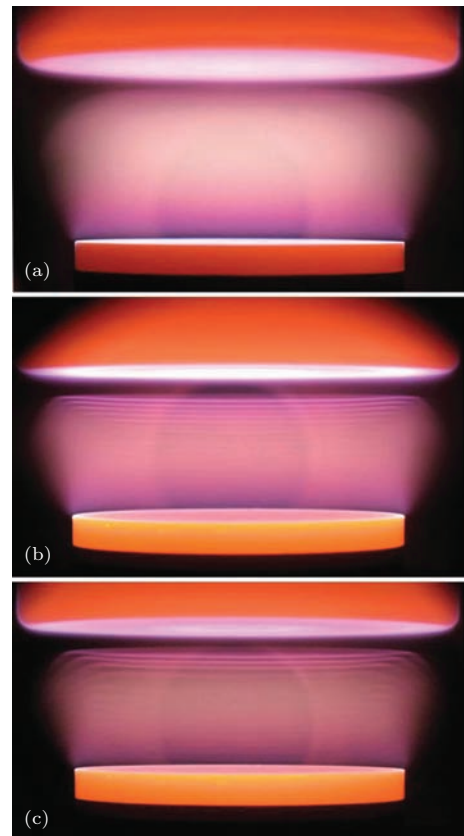


图5 (网刊彩色) 不同氙气含量下等离子体的放电照片 (a) 0%; (b) 2%; (c) 4%

当氙气含量增加时, 电极两端的电压下降, 因此正柱区内的电场强度 E 减小. 另外由于氙气的电离能为 15.75 eV, 大于正柱区内氢气以及 CH , C_2 等活性粒子的电离能, 所以当氙气含量增加时, 平均电离能 U^0 也随之增加, 根据(2)式, 可知辉纹间距 L 增加. 因此, 当氙气的含量增加到一定程度时, 则可分辨出辉纹, 如图5(b)所示. 由于氙气含量增

加, 气体的平均电离能增加, 使气体激发所需要的能量增加, 电子需被电场加速更长的距离以获得较多的能量, 即辉纹区变宽. 这与平均电子激发温度增加相对应.

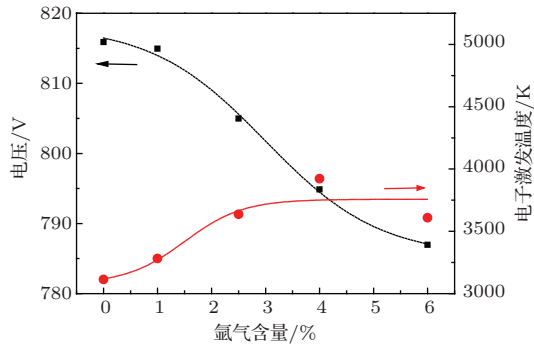


图6 放电电压及电子激发温度随氩气浓度的变化

引起辉纹的电离波的产生与传播随放电条件而变化, 在不同的气压和电流条件下有很大不同. 在辉光放电空间不均匀的情况下, 通常采用局域动理论和非局域动理论两种方法来研究电子的行为^[14]. 辉纹间距 L 是典型的非均匀尺度. 在低气压条件下, 电子的能量损失主要通过电子-中性粒子间的非弹性碰撞过程^[15]. 设 λ^{in} 为非弹性碰撞过程中电子的能量弛豫尺度, 局域近似假设

$$\lambda^{\text{in}} \ll L$$

不满足. 在这种情况下, 人们利用非局域动理论模拟了惰性气体等离子体中的辉纹产生, 很好地说明了辉纹效应的动力学机理. 但随着气压升高, 电子-中性粒子间弹性散射带来的能量损失机理起作用, 相对应的电子能量弛豫尺度 λ^{el} 易满足

$$\lambda^{\text{el}} < L,$$

而且气压越高, λ^{el}/L 越小, 局域近似条件越容易满足. 在工作气压为 50 Torr (1 Torr = 1.33322×10^2 Pa) 以上时, 利用非局域动理论得不到辉纹的出现^[15].

在高气压条件下, 等离子体辉纹的研究报道很少. Lza 等^[5] 模拟研究了等离子体显示中辉纹出现的机理. 在 500 Torr 条件下, 他们考虑了由低能电子的非弹性散射效应造成的能量损失, 运用了非局域模型, 但同时考虑绝缘介质表面电荷效应. 研究表明, 非局域动理论和表面电荷对辉纹形成至关重要.

在本文的研究中, 放电过程中表面电荷效应是不存在的, 但清楚地观察到等离子体辉纹的产生及其随气体组分的变化. 对这种自组织条纹产生的原因仍无满意的解释. 在今后的工作中, 拟通过对正柱区等离子体发射光谱的空间分辨实验来进一步明确辉纹在高气压条件下形成的物理机理.

4 结 论

在平板位形的高气压直流均匀辉光放电中, 一定条件下可观察到平行排列的明暗相间的等离子体辉纹. 当甲烷浓度增加时, 产生了更多的低电离能粒子, 使得平均电离能下降, 进而使得电子在较短的距离被电场加速获得的能量就可以激发粒子, 使辉纹间距减小; 而光谱诊断表明, 随着甲烷浓度的增加, 电子激发温度降低. 当氩气含量逐渐增加时, 辉纹变得清晰可见, 且辉纹间距增加, 这与氩气具有较高电离能有关, 相应的电子温度增加. 这些结果表明, 随着工作气体的改变, 等离子体辉纹间距呈现出一种对电子温度的响应.

参考文献

- [1] Lee J K, Eun K Y, Baik Y J, Cheon H J, Rhyu J W, Shin T J, Park J W 2002 *Diamond Relat. Mater.* **11** 463
- [2] Ding F, Zhu X D, Zhan R J, Ni T L, Ke B, Zhou H Y, Chen M D, Wen X H 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 121501
- [3] Kunhardt E E 2000 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **28** 189
- [4] Lee D A, Garscadden A 1972 *Phys. Fluids* **15** 1826
- [5] Laz F, Yang S S, Kim H C, Lee J K 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 043302
- [6] He S J, Ha J, Guo S Q, Liu Z Q, Dong L F 2014 *Spectrosc. Spect. Anal.* **34** 39 (in Chinese) [何寿杰, 哈静, 郭树青, 刘志强, 董丽芳 2014 光谱学与光谱分析 **34** 39]
- [7] Zhao X F, He F, Ouyang J T 2012 *Phys. Lett. A* **376** 2057
- [8] Robert R A, Vladimir I K 2005 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **33** 354
- [9] Rajneesh K, Sanjay V K, Dhiraj B 2007 *Phys. Plasmas* **14** 122101
- [10] Vladimir I K 2006 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** 487
- [11] David S, Bakhtier F, Alexander G 2008 *Plasma Sources Sci. Technol.* **17** 025013
- [12] Yuri B G, Vladimir I K, Vladimir O 2013 *Phys. Plasmas* **20** 101602
- [13] Zheng S J, Ding F, Xie X H, Tang Z L, Zhang Y C, Li H, Yang K, Zhu X D 2013 *Acta Phys. Sin.* **16** 165204 (in Chinese) [郑仕健, 丁芳, 谢新华, 汤中亮, 张一川, 李映, 杨宽, 朱晓东 2013 物理学报 **16** 165204]

[14] Liberman M A, Lichtenberg A J (translated by Pu Y K) 2007 *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing* (Beijing: Science Press) pp535–543 (in Chinese) [力伯曼 M A, 里登博格 A J 著 (蒲以康译) 2007 等离

子体放电原理与材料处理 (北京: 科学出版社) 第 535—543 页]

[15] Sukhinin G I, Fedoseev A V 2006 *High Temp.* **44** 157

Optical properties of direct current glow discharge plasmas at high pressures*

Wang Jian-Long¹⁾ Ding Fang²⁾ Zhu Xiao-Dong^{1)†}

1) (*Department of Modern Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

2) (*Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)

(Received 24 June 2014; revised manuscript received 28 August 2014)

Abstract

In this work, the parallel bright and dark plasma striations are observed in direct correct glow discharge plasmas at high pressures (>100 Torr, $1 \text{ Torr} = 1.33322 \times 10^2 \text{ Pa}$), and the effect of working gas on the plasma optical property is studied by combining the measurements of optical emission spectra. With the increase of the methane concentration, the length of striations decreases and the corresponding electron excitation temperature reduces. As the concentration of methane increases, the species with the low ionization energy increases, and the average ionization energy of the species decreases. In this case, the electron accelerated in a smaller distance can obtain enough energy to excite the gas species and produce visible light emission, and thus the length of plasma striations becomes shorter. With the introduction of argon, the plasma striations appear clearly. The length of striations increases with the increase of argon content, which is also correlated with the higher ionization energy of argon, while the corresponding electron excitation temperature rises. The length of plasma striations shows a response to the electron temperature as working gas changes.

Keywords: plasma, high gas pressure, optical property

PACS: 52.70.-m, 52.70.Kz, 52.80.Hc, 52.80.Vp

DOI: 10.7498/aps.64.045206

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11075158, 11375192).

† Corresponding author. E-mail: xdzhu@ustc.edu.cn