

甚高频激发的容性耦合 Ar+O₂ 等离子体电负特性研究

杨郁 唐成双 赵一帆 虞一青 辛煜

Electronegativity of capacitively coupled Ar+O₂ plasma excited at very high frequency

Yang Yu Tang Cheng-Shuang Zhao Yi-Fan Yu Yi-Qing Xin Yu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 66, 185202 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.185202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.185202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I18>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

SiC 过渡层制备温度对碳化硅/氟化类金刚石复合薄膜血液相容性的影响

Effects of preparation temperature of SiC intermediate layers on the hemocompatibility of SiC/F-DLC composite film

物理学报.2014, 63(18): 185204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.185204>

N₂-H₂ 容性耦合等离子体电非对称效应的 particle-in-cell/Monte Carlo 模拟

Simulations of electrical asymmetry effect on N₂-H₂ capacitively coupled plasma by particle-in-cell/Monte Carlo model

物理学报.2014, 63(18): 185205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.185205>

高功率微波窗内外表面闪络击穿流体模拟研究

Numerical investigation on high power microwave flashover and breakdown on inner and outer surface of output-window by EM-fluid simulation

物理学报.2014, 63(18): 185206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.185206>

聚变中子能谱测量系统脉冲中子灵敏度的实验研究

Experimental studies on pulsed neutron sensitivity of a fusion neutron spectrometer

物理学报.2013, 62(24): 245203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.245203>

双频容性耦合等离子体相分辨发射光谱诊断

Phase resolved optical emission spectroscopy of dual frequency capacitively coupled plasma

物理学报.2013, 62(20): 205208 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.205208>

甚高频激发的容性耦合 Ar+O₂ 等离子体电负特性研究*

杨郁 唐成双 赵一帆 虞一青 辛煜†

(苏州大学物理与光电·能源学部, 苏州 215006)

(2017年4月28日收到; 2017年6月21日收到修改稿)

利用探针辅助的脉冲激光诱导负离子剥离诊断技术对掺入5% O₂的容性耦合 Ar 等离子体电负特性进行了诊断研究. 首先详细解析了脉冲激光剥离后探针的电信号, 分析了探针偏压在低于或高于空间电位下的探针收集信号特征; 根据探针偏压与探针收集信号之间的依赖关系, 用来描述 Ar+O₂ 等离子体电负特性的等离子体电负度被定义为脉冲激光剥离出的电子电流与偏压高于空间电位的探针收集到的背景电子电流的饱和比值, 并对等离子体电负度随放电气压、射频功率以及轴向位置的变化进行了诊断测量. 实验结果表明等离子体的电负度随着射频功率的增加而减小、随着放电气压的上升而变大; 由于非对称电极的分布特性, 在轴向方向上靠近功率电极时等离子体电负度有升高的趋势, 这种趋势可能与鞘层边界附近二次电子的动力学行为以及负离子的产生与消失过程有关.

关键词: 激光诱导光致剥离, 朗缪尔探针, 电负性等离子体, 电负度

PACS: 52.70.Nc, 52.80.Pi, 52.80.Vp

DOI: 10.7498/aps.66.185202

1 引言

低气压等离子体由于高度的化学活性、可调的离子通量和能量在微纳电子工业的材料表面生长、表面刻蚀与改性等领域有着广泛的应用前景^[1], 但是衬底材料的物化差异性、沉积材料的选择以及加工图形的控制精度等需要将等离子体参数剪裁到合适的工艺窗口. 在低气压等离子体中掺入特定的电负性气体可以用来调节粒子种类、通量和能量, 不仅可以改变等离子体的化学特性, 客观上也微控着衬底材料表面的物理与化学的协同作用.

当一种或几种电负性气体掺入到等离子体, 并与等离子体中的电子发生诸如非弹性碰撞反应后, 会产生大量的负离子. 负离子在一些领域的应用较为广泛, 例如, 人们利用氢负离子源在如国际热核聚变实验堆高能聚变装置中进行有效的中性束注

入加热^[2]; 在微电子工业的刻蚀工艺中负离子常用来辅助等离子体刻蚀, 以降低衬底的充电效应, 增强图形的沟槽性能^[3,4]; 高能离子注入用的粒子也通常是负离子束. 低气压等离子体中产生的大量负离子在等离子体两极电场的作用下, 通常悬浮在等离子体内或鞘层边界附近^[5], 形成所谓的“夹心”结构, 即中心的负离子区、外围的正离子晕区和边界离子鞘层区^[6-8]. 负离子的存在不仅影响着鞘层边界的离子通量^[9]、促进离子进入鞘层^[10], 其与反应性等离子体中的尘埃颗粒的形成密切相关, 也产生等离子体参量和输运不稳定性引起的诸如电双层、准 γ 模等有趣的实验现象^[11-13]. 显然, 电负性等离子体中的负离子特征以及空间分布值得深入探讨与研究.

自20世纪30年代朗缪尔和莫特·史密斯发明静电探针诊断方法以来, 该方法就一直在等离子体诊断中有着广泛的应用. 但朗缪尔探针诊断比

* 国家自然科学基金(批准号: 11675117)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yuxin@suda.edu.cn

较成功的地方主要在低气压、非磁化和无负离子的电正性等离子体的应用中^[14]。静电探针在拓展到其他应用领域,尤其是存在负离子的电负性等离子体时,无论理论模型还是实验设计上都无法直接套用正性等离子体的测量方法。因为在静电探针应用于电负性等离子体中时, $I-V$ 特性曲线中的电子饱和电流相比于电正性等离子体而言往往表现为剧烈下降,采用常规的半对数斜率方法得到的电子温度由于畸变的过渡区而变得相当不可靠;而采用离子饱和电流求解离子密度时,由于负离子对边界鞘层的修饰也需要好的物理模型对玻姆判据做出修正。早在20世纪80年代,Braithwaite和Allen^[15]对电负性等离子体的玻姆判据做了修正后指出:电负性等离子体的电负度可以通过球形探针 $I-V$ 特性曲线中位于空间电位处的电子饱和电流与离子饱和电流的比值来确定。然而,Chabert等^[9]却发现Allen提出的理论模型并不能够完美诠释电负性等离子体的离子通量。对此他们提出了预鞘层区的非电中性假设,给出了到达探针表面的正离子通量的表达式,并首次采用双探针组合方法对 SF_6 螺旋波等离子体进行探针诊断,通过电子与离子饱和电流比值确定等离子体中的负离子分数随宏观参量的演变情况。Shindo等^[16]采用平面单探针测量比较法,即将参照气体(如氩气)等离子体的离子和电子饱和电流比值除以电负性混合气体(如 Ar/SF_6)等离子体的离子和电子饱和电流比值,根据电中性条件,获得电负性等离子体的负离子分数、负离子密度等随电负性气体 SF_6 流量的变化。然而,探针表面的鞘层因子 $\Omega = \sqrt{2(t_+ + \eta_B)}[(1 - \alpha) \exp(-\eta_B) + \alpha \exp(-\eta_B/t_-)]$ ^[16](其中, t_+ 和 t_- 分别为正、负离子温度, η_B 为玻姆电压)会对测量产生影响,该鞘层因子不仅与正、负离子温度有关,也与玻姆电压等密切相关,而计算过程中对离子平均质量的判断也需要使用四极质谱仪,质谱仪弱的空间分辨也无形中加大了测量的不确定性。如何得到一个准确的诊断结果以对等离子体做出明确的解释一直是人们不断研究的课题,其中主动非侵入式的激光诊断技术正日益受到人们的关注。

最先由Bacal等^[17-19]提出了用于氢离子源中负离子诊断测量的朗缪尔探针辅助激光诱导光致剥离(LIPD)技术,研究了探针位置和探针偏压等因素对光电流信号的影响。Sirse等^[20]采用悬浮发

射探针方法测量等离子体空间电位和负离子温度的特征演变;Conway等^[21]利用发卡共振探针方法结合LIPD手段详细研究了负离子光致剥离后光电子密度的时间演变规律,并利用探针处于光束中不同位置估算等离子体中负离子的运动速率;德国的Meichsner小组^[13,22]采用高斯束传输的微波干涉方法来探测激光解析的光电子信号,以研究容性耦合氧气等离子体中的模式转变。众多实验研究表明LIPD技术是诊断电负性等离子体负离子密度的比较可靠的技术之一。

工业上一般用13.56 MHz激发频率激发的等离子体来对材料进行加工,这个频率激发的等离子体分布均匀,但是产生的等离子体密度较低。基于电子密度与激发频率的依赖关系,我们可以通过提高激发频率来提高等离子体电子密度。40.68 MHz的激发频率相比于13.56 MHz的激发频率而言,其产生的等离子体电子密度有较大的提升^[23],并且40.68 MHz的激发频率无论在光伏领域的大面积等离子体增强化学气相沉积氮化硅减反膜领域还是在微电子的介质膜刻蚀领域均是一个优选方案。在先前的工作中,我们报道了电负性气体的掺入会对Ar等离子体参数产生影响^[24]。本文重点采用朗缪尔探针与LIPD技术相结合对40.68 MHz激发的容性耦合 Ar/O_2 电负性等离子体进行了诊断测量,着重研究等离子体电负度与射频输入功率、放电气压之间的依赖关系,给出了等离子体电负度随轴向位置的分布情况。

2 容性耦合等离子体实验装置及LIPD诊断方法

2.1 容性耦合等离子体的实验装置

如图1所示的容性耦合等离子体反应装置已在文献^[25]中有所描述。反应腔器的内径为350 mm,内部装有两个平行板电极,上下电极直径均为220 mm。施加的射频电源由一个信号源和一个功率放大器组成,通过一个阻抗匹配器连接到通有水循环的上电极,下电极接地。匹配网络是L形的,包括两个可调电容和一个固定电感。所有的射频传输线都采用镀银的同轴电缆并尽可能地短,这样可以减少射频功率在传输过程中的损耗。上极板输入的射频频率为40.68 MHz。实验中将Ar与 O_2

的流量分别设置为 76 sccm 和 4 sccm, 通过质量流量计输入到反应腔室中. 腔室的抽气系统由分子泵和机械泵联合组成, 本底真空为 5×10^{-3} Pa.

实验中使用的激光器是 Nd:YAG 激光器 (Qsmart 850), 选择的波长为 532 nm, 最大脉冲能量密度在 580 mJ/cm^2 左右. 脉冲激光经由透过率超过 90% 的石英玻璃窗口进入电负性等离子体中, 并从另外一个石英窗口穿出照射到功率计上. 激光束直径为 9 mm, 脉冲宽度为 6 ns, 激光脉冲频率为 10 Hz. 将探针设置成 L 形, 探针的主体部分位于光束中心并平行于光束轴线, 探针直径为 0.15 mm,

长度为 8 mm. 入射窗口前放置有直径为 1 mm 的阻挡丝, 使探针位于阻挡丝的阴影区内, 以降低高能脉冲激光对探针表面的消融现象 [26].

施加有正偏压的探针电流信号采集示意图也显示在图 1 中, 探针直接与阻值为 $4.7 \text{ k}\Omega$ 的定值电阻相连, 由 +150 V 可调直流电源提供正偏压. 电源两端跨接了 $500 \mu\text{F}$ 的电容以避免射频信号对直流电源的干扰. 带宽为 500 MHz 的数字示波器对探针信号进行采集, 由此得到探针实测电流数据. 在整个实验过程中, 气压维持在 2.0—12.0 Pa 范围内变化, 射频输入功率在 50—300 W 范围内变化.

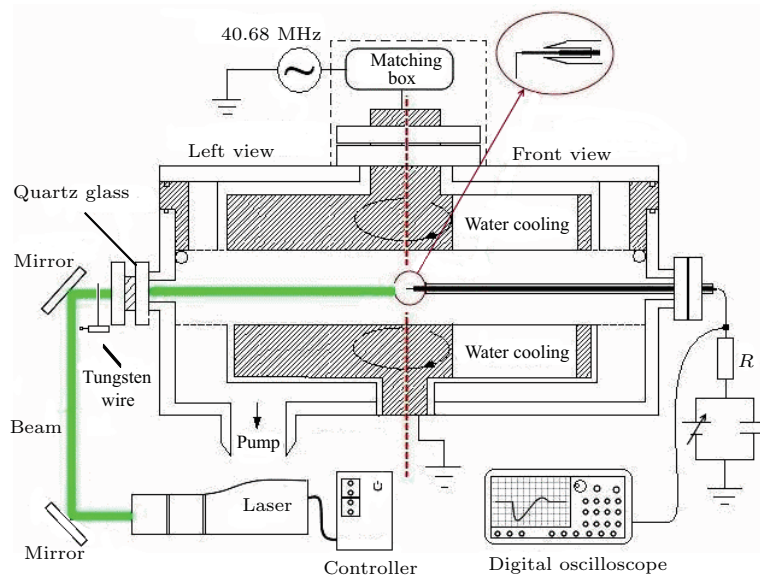


图 1 (网刊彩色) 40.68 MHz 激发的容性耦合 O_2 等离子体放电装置及激光诱导剥离诊断示意图

Fig. 1. (color online) 40.68 MHz excited capacitively coupled O_2 plasma discharge device and laser induced photo-detachment diagnosis.

2.2 激光诱导负离子光致剥离诊断方法

当特定波长的激光束辐照进入等离子体时, 若光子能量高于负离子的电子亲和势, 照射区域内负离子的外层电子则会被光子激发剥离, 其反应式可表示为: $h\nu + A^- \rightarrow A + e$. 此时, 若将朗缪尔探针置于激光辐照中心区域, 探针再施加一定的正偏压后则会收集到这些剥离的光电子, 通过解析探测到的电信号就可以间接演绎出负离子密度乃至负离子温度的空间分布 [19].

O_2 容性耦合等离子体中, 电子与氧气分子通过分解吸附等非弹性碰撞形式生成各种负离子, 主要成分有 O^- , O_2^- 和 O_3^- , 三者的电子亲和势分别为 1.46, 0.44 和 2.1 eV. 有研究表明, 在容性耦合氧气等离子体中, 多原子氧负离子相对于单原子氧

负离子而言占比较少, O^- 负离子占比往往超过了 90% [27—29]. 本实验中我们选择了 Nd:YAG 激光器的倍频输出, 其波长为 532 nm, 对应的光子能量为 2.33 eV, 也就是说, 在保证激光脉冲能量密度足够大的情况下, 脉冲激光进入到等离子体的辐照区域内负离子应能够完全剥离出光电子. 给位于光束路径方向上的朗缪尔探针施加高于等离子体空间电位的偏压时, 探针会收集剥离出来的电子电流 ΔI_e , 把收集到的负离子电子电流 ΔI_e 与探针收集到的背景电子电流 I_{dc} 进行比较, 通过关系式 $\eta = \Delta I_e / I_{dc} = n^- / n_e$, 我们就可以得到负离子密度与电子密度的关系, 其中, n^- 与 n_e 分别是负离子密度和电子密度, 饱和比值也代表着等离子体的电负度 [30]. 这种方法的使用需要对脉冲激光辐照后的等离子体做以下两个假设 [31]: 其一, 激光剥离

后的光电子与背景电子之间能迅速热化;其二,背景电子不受激光脉冲以及电正性通道所引发的二次干扰的影响。

3 实验结果与讨论

3.1 激光诱导负离子剥离电子的探针信号解析

探针收集电子的行为与探针偏压存在强烈的依赖关系,尤其更需要清晰地认识纳秒脉冲激光辐照等离子体之后的光电子收集行为.图2是在掺5% O₂的容性耦合Ar等离子体中实际测量得到的探针电流信号随探针偏压变化的典型情况,射频电源的激发频率为40.68 MHz,探针偏压从0 V变化到75 V,输入的射频功率为150 W,放电气压为2.0 Pa,电极间距为50 mm.脉冲激光的辐照能量密度为500 mJ/cm²,光斑直径为9 mm.

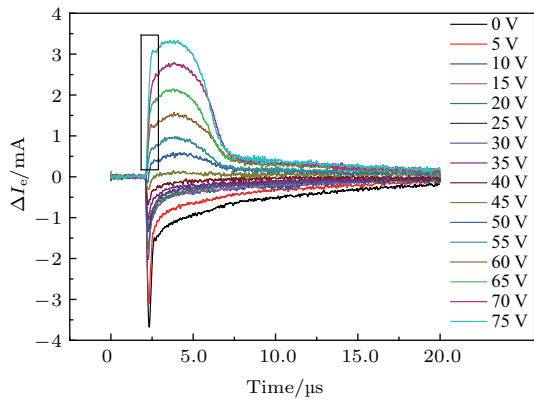


图2 (网刊彩色) 气压为2.0 Pa、功率为150 W时,激光脉冲辐照后的探针电流信号随探针正偏压的变化
Fig. 2. (color online) Variation of the probe current signal with different probe bias at 2.0 Pa and 150 W.

从图2可以看出,探针未施加偏压的情况下,脉冲激光辐照之后的探针收集电流呈现出快速下降、到达极值后又快速上升的浪涌尖峰信号特征.而当探针偏压逐步增大时,浪涌信号极值幅度不断减小,浪涌尖峰信号出现的时间位置似乎没有变化.当探针偏压超过45 V时,原本向下的浪涌信号正逐步被一个向上的宽幅凸起所替代,另外在凸起的左侧位置还有一个小小的尖峰,如图中方框所示.针对这些现象我们尝试做如下解释.

探针置入等离子体中时,由于电中性条件,必然在探针表面形成一个负的悬浮电位,在掺入少量O₂的电负性Ar等离子体中,该悬浮电位略小于5

倍的电子温度^[32].因此,当一束高能脉冲激光辐射进入等离子体内部时,光柱区域内的负离子被光子剥离后产生出大量的光致剥离电子^[19],相对于空间电位而言,此时的探针处于负电位状态,这些光电子在反向电场的作用下快速远离探针,从而使得探针电流曲线瞬间呈现出一个向下的浪涌尖峰,电子的逃逸也使得光柱区域边界附近产生一个内正外负的电双层结构^[31];除了光电子剥离反应之外,光柱区域内还会发生诸如低能电子与正离子发生复合反应、低能电子的逃逸以及电子与中性粒子结合产生新的负离子^[33]等过程.另外,光柱区边界的电双层结构促进柱区外的负离子也相继缓慢地进入到柱区内^[34],使得电流曲线呈现出一个缓慢的恢复过程,这个时间约为几个微秒,这部分区域称为恢复区;最终,等离子体恢复至稳态.

当探针偏压增加到15 V时,探针表面的悬浮电位被逐步抵消,原本向下的浪涌尖峰的峰高也开始变浅.而当偏压为60 V时,探针收集的信号则变成了一个正向的宽波包.在进一步增加探针电压到70 V时,波包的高度也随之增加,但半高宽度未见增加.探针信号随探针偏压的变化从向下的浪涌尖峰到宽波包的演变行为主要是由于等离子体空间电位与探针偏压之间的电势差导致的.探针偏压为15 V时与等离子体空间电位之间的电势差比未加偏压时的电势差小,因而降低了电子的逃逸速度,浪涌峰值显然会逐渐减小.当探针超过该实验条件下的等离子体空间电位(约45 V)时,正向波包开始快速上升.我们注意到在波包左侧出现一个小的肩峰(如图2中的方框所示).Briant和Bradley^[35]也曾注意到这个行为,但他们并没有对此做出解释.我们认为左侧的小肩峰可能是由于流向探针的高能电子被探针收集所致.另外,波包到达峰值的过程较为平缓,这个峰值即意味着激光完全剥离负离子的光致电流,通过这个峰值就能得到等离子体的电负度和负离子密度等参量^[19].值得一提的是,高偏压下的正向峰值出现的位置比低偏压下的反向尖峰出现的位置晚很多,且波包的迟豫时间也较高(约4 μs),造成两者差异的原因可能在于:探针未施加偏压时的电子扩散通量的变化率与电场漂移通量的变化率相同,而探针施加超过等离子体空间电位的偏压时,电子扩散通量的变化率与电场漂移通量的变化率正好相反.

3.2 容性耦合 Ar/O₂ 等离子体的电负度与射频频率和放电气压的依赖关系

在测量容性耦合 Ar/O₂ 等离子体的电负度时, 需要将探针偏压调整到高于等离子体空间电位, 因此确切地知道等离子体的空间电位大小很有必要. 通过朗缪尔探针的电流-电压特性曲线可以计算得到等离子体空间电位的大小, 如斜率法, 即过渡区和饱和电子电流区斜率的交点测量, 再如伏安曲线的二阶导数测量法等. 在我们以前的工作中曾报道了利用脉冲激光辐照下负离子剥离的光电子电流信号曲线随探针偏压的变化规律来判断等离子体空间电位的经验方法, 这种经验方法与常规的朗缪尔探针方法得到的测量结果是一致的 [30].

在本文中, 我们利用公式 $\eta = \Delta I_e / I_{dc} = n^- / n_e$ 来得到 Ar/O₂ 等离子体的电负度, 即在脉冲激光辐照前, 先行通过数字示波器探测得到本底电子电流大小 $I_{dc} = A(\sigma_{eff}, v_{th, bge})n_{bge}$, 其中 n_{bge} 是背景电子密度, 参量 A 与背景电子热速度 $v_{th, bge}$ 和探针有效收集面积 σ_{eff} 有关. 在脉冲激光辐照后, 示波器显示出电子电流随时间演变的动态过程, 其峰值 $I_{peak} = I_{dc} + A(\sigma_{eff}, v_{th, phe})n_{phe}$, 其中 n_{phe} 是光致剥离电子密度, $v_{th, phe}$ 是光致剥离电子的热速度. 假设背景电子的热速度和光致剥离电子的热速度相当, 那么就可以得到 $\eta = \Delta I_e / I_{dc} = (I_{peak} - I_{dc}) / I_{dc} = n^- / n_e$, 当施加到探针上的偏压超过等离子体空间电位时, η 值就趋于饱和, 也就是该条件下电负性等离子体的电负度.

图 3(a) 和图 3(b) 分别为放电气压为 2.0 Pa 时对应不同射频输入功率的 η 和 I_{dc} 随探针偏压的变化情况, η 值的正负与非平衡态下电子的流动方向有关. η 值为负, 表示光致剥离电子远离探针, 这主要是由于探针表面的悬浮电位排斥电子或者施加到探针上的偏压低于等离子体空间电位所致, 此时的 ΔI_e 是反向尖峰的峰值, 也就是说, η 值为负时的光致剥离电子并未完全被探针吸收, 那么 η 值也就不是电负度, 对 η 值为负的研究并没有太大的实际意义; η 值为正, 表示光致剥离电子被探针所收集, 随着施加到探针上的偏压升高, 探针更容易收集到电子, 当施加到探针上的偏压达到一定值时, 探针几乎将区域内所有的电子进行收集, 也就是说 η 值

将趋于一个饱和值, 该饱和值即为所要测量的等离子体电负度, 而拐点位置所对应的探针偏压可近似认为对应于等离子体空间电位. 从图 3(b) 不难看出, 背景电子流随着射频输入功率的增加而增大, 这主要是由于功率的增强导致背景电子密度增加的原因, 在探针上的施加偏压逐步提高时, 收集到的背景电子电流也相应地增大, 主要是由于探针表面收集到的电子数密度不断增加所致. 而当偏压高于等离子体空间电位时, 相对于周围的电子而言, 探针表面拒斥场正转变为吸引场, 收集到的无论背景电子数还是负离子剥离电子数密度不再增加, 因而导致了图 3(a) 中 η 比值趋向饱和. 从图 3(a) 中我们不难看出, 拐点的位置随着射频输入功率的增加而向右移, 也就是说空间电位随着功率的增加而增大, 同时等离子体电负度随放电功率的上升也呈下降的趋势.

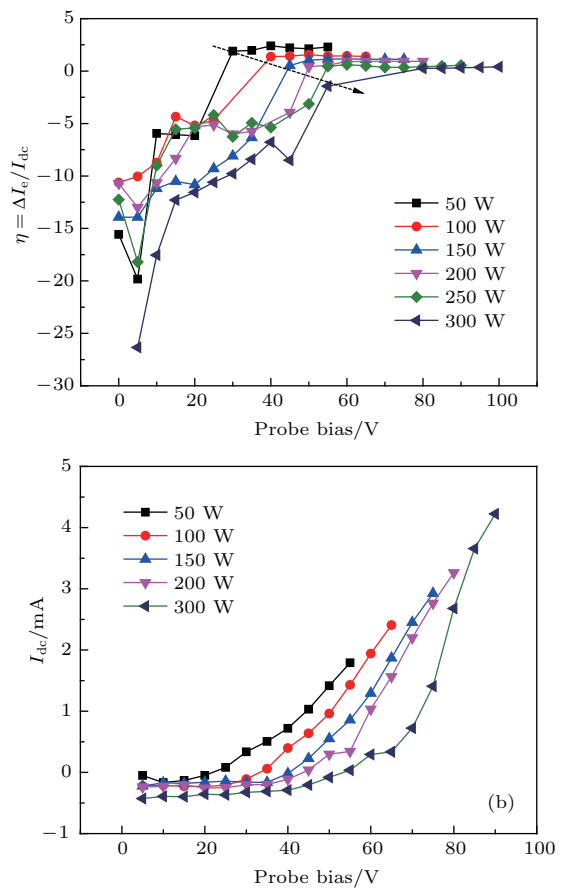


图 3 (网刊彩色) 当气压为 2.0 Pa 时, 不同射频功率下 (a) η 和 (b) I_{dc} 随探针偏压的变化
 Fig. 3. (color online) Variation of (a) η and (b) I_{dc} with different probe bias under different radio-frequency power and discharge pressure at 2.0 Pa.

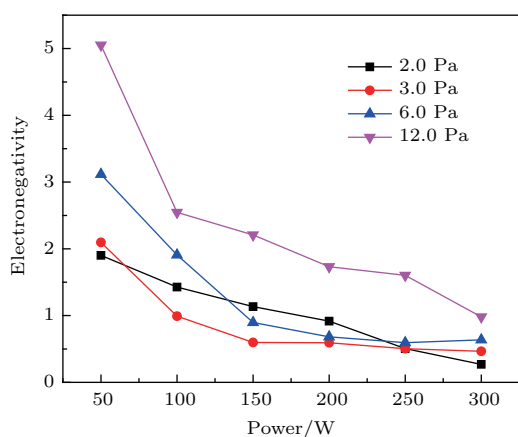


图4 (网刊彩色) 等离子体电负度随射频输入功率、放电气压的变化

Fig. 4. (color online) Dependence of the plasma electronegativity on radio frequency input power with different discharge pressure.

为进一步了解掺入5% O_2 容性耦合 Ar 等离子体的电负特性, 我们详细记录了不同射频输入功率和放电气压下等离子体电负度的变化情况, 如图4所示. 从图4可以发现, 正如前面所提到的, 等离子体电负度随着射频输入功率增加而减小, 而等离子体电负度随放电气压的增加而上升. 最高的等离子体电负度(5.05)发生在射频功率为50 W和放电气压为12.0 Pa时; 而最低的等离子体电负度(0.98)则发生在位于射频功率为300 W和放电气压为2.0 Pa的情况下. 等离子体电负度的变化趋势与 Dodd等^[26]和 Conway等^[21]报道的趋势是一致的, 尽管产生等离子体的方法并不相同. Dodd等^[26]使用探针辅助下的LIPD来测量掺10% O_2 的直流磁控溅射 Ar 等离子体的实验结果发现, 当放电气压为10 mTorr ($1 \text{ Torr} = 1.33322 \times 10^2 \text{ Pa}$) 而磁控溅射功率从50 W上升到600 W时, 电子密度则从 $2.5 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ 线性上升至 $3 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$, 而等离子体的电负度由0.8降低到0.06. Conway课题组^[21]利用共振发卡探针与LIPD相结合的技术对感应耦合氧等离子体中的电负特性进行了测量, 他们发现当放电气压保持在30 mTorr而射频功率从100 W上升至500 W时, 等离子体的电负度从0.6下降至0.3左右. 射频输入功率的增大促进了电负性等离子体中的电子浓度不断升高, 电子与分子的非弹性碰撞产生的负离子密度也会相应增加, 但由于电子密度的增加速率大于负离子密度的增加速率^[36], 也就导致了等离子体电负度随功率的上升而不断下降的现象. 放电气压对等离子体电负度的影响也较大, 放电气压的增大导致了粒子间碰撞加剧, 使

得电子的平均碰撞自由程下降, 降低电子从电场获得的能量, 低能电子密度就有增多的趋势, 这使得3.3节中的反应方程(1)和(2)更易于发生, 气体分子与电子碰撞离解产生负离子的概率增多, 电子密度与负离子密度的此消彼长使得等离子体电负度随气压的增加而增大.

3.3 等离子体电负度的轴向分布

为记录等离子体电负度随轴向位置的变化, 我们设定两极板间距为34 mm, 朗缪尔探针针尖位置固定在电极板的轴心处. 通过调节上、下极板的位置, 就可以得到探针距离两极板的轴向位置情况. 朗缪尔探针测量过程中, 测量间隔为2 mm, 射频输入功率从50 W变化到200 W, 气压则从2.0 Pa变化到12.0 Pa. 图5分别是放电气压为2.0, 6.0和12.0 Pa时, 不同射频输入功率下的等离子体电负度轴向分布情形. 从图5我们不难发现, 由于非对称电极分布特性, 等离子体电负度随轴向位置并不呈中心对称分布. 尽管我们在文中有了明确的说明, 即上下两个电极有相同的直径尺寸(220 mm), 但由于下极板和器壁均处于接地状态, 因此, 实际的射频放电行为是一个典型的非对称容性耦合放电模式, 我们粗略估计了功率电极和接地电极的面积比值约为1:4.1. 这种面积的不对称影响着电极表面的偏压大小 ($V_1/V_2 \propto (A_2/A_1)^\gamma$, 其中, V_1 和 A_1 (V_2, A_2) 分别是功率电极(接地电极)的偏压和面积, γ 为大于1的常数), 偏压的不同也决定了离子撞击极板形成的二次电子的出射产额的不同. 这些二次电子从鞘层电场中获得能量后与背景气体分子发生非弹性碰撞, 这些二次电子的行为以及体电子在鞘层边界区的无碰撞加热行为影响着负离子的动力学机理. 显然, 电负度的轴向变化会受到不对称放电模式的影响. 在所考虑的放电参量范围内, 靠近功率电极的电负度普遍高于靠近接地电极的情形约1—4倍. 等离子体电负度的最低点似乎位于等离子体放电的中心位置.

低气压 Ar/ O_2 等离子体放电条件下, 低能电子由于两极电场的作用往往局域在等离子体放电中心^[37], 而位于鞘层边界附近的高能电子在高频振荡的鞘层电场的作用下则以随机加热方式获得能量, 并反弹进入到体等离子体区. 高能电子反弹进入体等离子体区的同时, 也与中性原子或分子发生

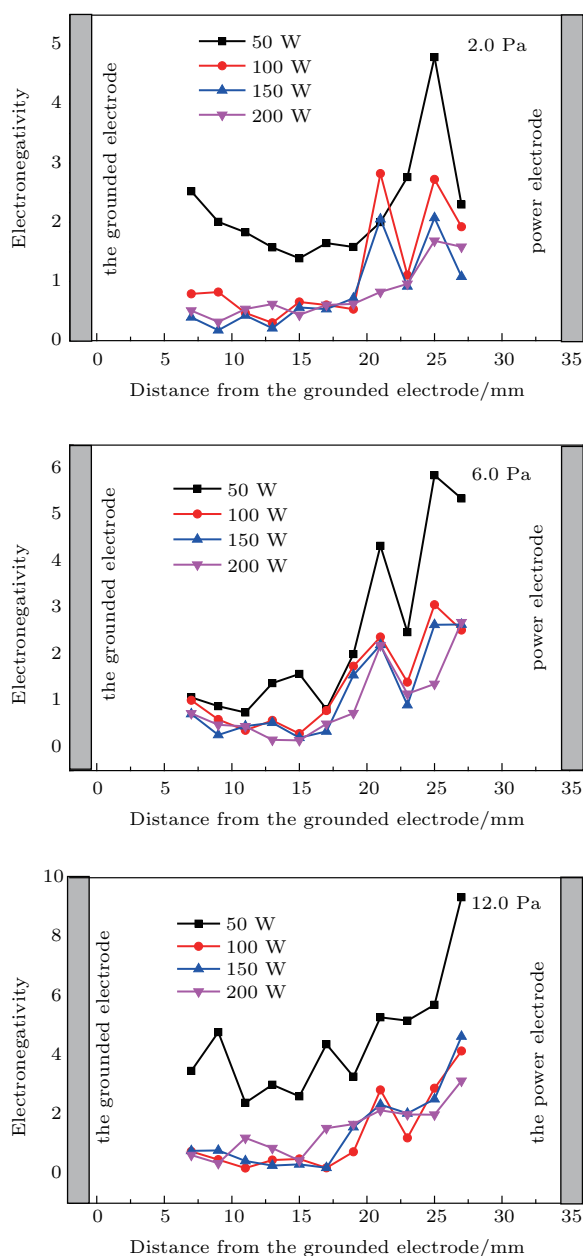
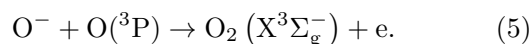
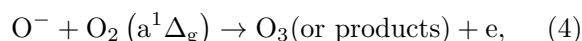
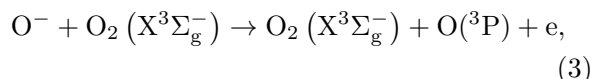
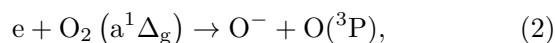
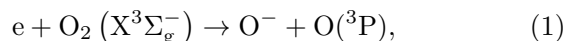


图5 (网刊彩色) 气压分别为 2.0, 6.0 和 12.0 Pa 时不同功率下等离子体电负度的轴向分布

Fig. 5. (color online) Axial distribution of plasma electronegativity with different radio-frequency power at 2.0, 3.0 and 12.0 Pa, respectively

各种非弹性碰撞过程, 这些碰撞行为尤其是电子与中性分子的分解附着形成的负离子的行为不仅影响着鞘层结构特性, 也深刻地影响着电负性 Ar/O₂ 容性耦合等离子体的电负度. Ar/O₂ 等离子体中氧负离子相关的主要过程有如下五种路径: 1) 电子与基态氧气分子 O₂(X³Σ_g⁻) 和亚稳态氧气分子 O₂(a¹Δ_g) 分解吸附引起的氧负离子生成过程, 即反应式(1)和(2), 其电子能量阈值分别为 4.2 eV [38,39] 和 3.22 eV [40,41]; 2) 氧负离子与基

态氧气分子、亚稳态氧气分子和基态氧原子 O(³P) 碰撞剥离而损失氧负离子的过程, 即反应式(3), (4) 和 (5).



从这五种反应路径中不难发现, 电子与基态分子碰撞产生负离子的过程和负离子与亚稳态基团碰撞产生电子或负离子消失的过程是一对竞争过程. 电子往往在鞘层附近获得能量, 因而反应式(1)和(2)更容易在鞘层边界附近进行, 这也导致了大量负离子的产生, 这是所观测的电负度在鞘层位置较高的原因之一. 另外, 反应路径也揭示了低功率条件下电负度较高的原因, 实际上低功率条件下反应路径(1)和(2)占据了主导地位, 而电子与基态碰撞产生的亚稳态粒子数密度较低, 因而亚稳态与负离子碰撞的电子产生过程或者负离子消失过程较少, 这些行为决定了在低射频功率条件下电负度呈现较高的数值.

4 结 论

本文应用探针辅助的 LIPD 技术对 40.68 MHz 激发的掺 5% O₂ 容性耦合 Ar 等离子体进行了实验研究, 分析了等离子体电负度与射频输入功率、实验气压之间的依赖关系以及放电参量对等离子体电负度轴向分布的影响. 在激光脉冲诱导负离子剥离的条件下, 改变施加到探针上的偏压, 分析了不同探针偏压下的探针收集信号特性, 并根据探针偏压与探针收集信号之间的依赖关系来解析等离子体电负度. 射频功率的增加导致了电子密度的上升速率超过了负离子, 从而使得等离子体的电负度呈现下降的趋势. 而放电气压的上升促使电子与基态氧气分子的碰撞吸附引起的负离子密度的增加, 致使电负度呈现增大趋势. 由于电极的非对称分布, 等离子体电负度随轴向位置的变化并不呈中心对称分布. 高能电子与基态或激发态氧气分子的碰撞吸附的负离子产生机理和负离子与基态或激发态氧气分子以及基态氧原子的碰撞解吸附的负离子

消失机理之间的竞争反应,使得电负度在鞘层边界附近处较高,而在等离子体放电中心处较低.

参考文献

- [1] Lieberman M A, Lichtenberg A J (translated by Pu Y K et al.) 2007 *Plasma Discharge Principle and Material Processing* (Beijing: Science Press) (in Chinese) [力伯曼 M A, 里登伯格 A J 著 (蒲以康等译) 2007 等离子体放电原理与材料处理 (北京: 科学出版社)]
- [2] Inoue T, Taniguchi M, Morishita T, Dairaku M, Hanada M, Imai T, Kashiwagi M, Sakamoto K, Seki T, Watanabe K 2005 *Nuclear Fusion* **45** 790
- [3] Shibayama T, Shindo H, Horiike Y 1996 *Plasma Sources Sci. Technol.* **5** 254
- [4] Samukawa S 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 316
- [5] Takizawa K, Kono A, Sasaki K 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 011503
- [6] Franklin R N, Snell J 2000 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **33** 1990
- [7] Lichtenberg A J, Vahedi V, Lieberman M A, Rognlien T 1994 *J. Appl. Phys.* **75** 2339
- [8] Sheridan T E, Chabert P, Boswell R W 1999 *Plasma Sources Sci. Technol.* **8** 457
- [9] Chabert P, Sheridan T E, Boswell R W, Perrin J 1999 *Plasma Sources Sci. Technol.* **8** 561
- [10] Liu H P, Zou X, Zou B Y, Qiu M H 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 035201 (in Chinese) [刘惠平, 邹秀, 邹滨雁, 邱明辉 2012 物理学报 **61** 035201]
- [11] Tuszewski M, Gary S P 2003 *Phys. Plasmas* **10** 539
- [12] Plihon N, Chabert P 2011 *Phys. Plasmas* **18** 082102
- [13] Dittmann K, Küllig C, Meichsner J 2012 *Plasma Phys. Controlled Fusion* **54** 124038
- [14] Godyak V A, Piejak R B, Alexandrovich B M 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 40
- [15] Braithwaite N S J, Allen J E 1988 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **21** 1733
- [16] Shindo M, Uchino S, Ichiki R, Yoshimura S, Kawai Y 2001 *Rev. Sci. Instrum.* **72** 2288
- [17] Bacal M, Hamilton G W, Bruneteau A M, Doucet H J, Taillet J 1979 *Rev. Sci. Instrum.* **50** 719
- [18] Bacal M, Berlemont P, Bruneteau A M, Leroy R, Stern R A 1991 *J. Appl. Phys.* **70** 1212
- [19] Bacal M 2000 *Rev. Sci. Instrum.* **71** 3981
- [20] Sirse N, Karkari S K, Mujawar M A, Conway J, Turner M M 2011 *Plasma Sources Sci. Technol.* **20** 055003
- [21] Conway J, Sirse N, Karkari S K, Turner M M 2010 *Plasma Sources Sci. Technol.* **19** 065002
- [22] Meichsner J, Dittmann K, Küllig C 2012 *Contribut. to Plasma Phys.* **52** 561
- [23] Surendra M, Graves D B 1991 *Appl. Phys. Lett.* **59** 2091
- [24] Zou S, Tang Z H, Ji L L, Su X D, Xin Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 075204 (in Chinese) [邹帅, 唐中华, 吉亮亮, 苏晓东, 辛煜 2012 物理学报 **61** 075204]
- [25] Hong B S, Yuan T, Zou S, Tang Z H, Xu D S, Yu Y Q, Wang X S, Xin Y 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 115202 (in Chinese) [洪布双, 苑涛, 邹帅, 唐中华, 徐东升, 虞一青, 王栩生, 辛煜 2013 物理学报 **62** 115202]
- [26] Dodd R, You S D, Bryant P M, Bradley J W 2010 *Plasma Sources Sci. Technol.* **19** 015021
- [27] Katsch H M, Sturm T, Quandt E, Döbele H F 2000 *Plasma Sources Sci. Technol.* **9** 323
- [28] Vender D, Stoffels W W, Stoffels E, Kroesen G M, de Hoog F J 1995 *Phys. Rev. E* **51** 2436
- [29] Stoffels E, Stoffels W W, Vender D, Kando M, Kroesen G M, de Hoog F J 1995 *Phys. Rev. E* **51** 2425
- [30] Wang T, Wang J, Tang C S, Yang Y, Xin Y 2017 *Nuclear Fusion and Plasma Phys.* **37** 37 (in Chinese) [王涛, 王俊, 唐成双, 杨郁, 辛煜 2017 核聚变与等离子体物理 **37** 37]
- [31] Oudini N, Sirse N, Benallal R, Taccogna F, Aanesland A, Bendib A, Ellingboe A R 2015 *Phys. Plasmas* **22** 073509
- [32] Pandey A K, Karkari S K 2017 *Phys. Plasmas* **24** 013507
- [33] Teichmann T, Küllig C, Dittmann K, Matyash K, Schneider R, Meichsner J 2013 *Phys. Plasmas* **20** 113509
- [34] Devynck P, Auvray J, Bacal M, Berlemont P, Bruneteau J, Leroy R, Stern R A 1989 *Rev. Sci. Instrum.* **60** 2873
- [35] Bryant P M, Bradley J W 2012 *Plasma Sources Sci. Technol.* **22** 015014
- [36] Wang J, Wang T, Tang C S, Xin Y 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 055203 (in Chinese) [王俊, 王涛, 唐成双, 辛煜 2016 物理学报 **65** 055203]
- [37] Wang J 2016 *M. S. Thesis* (Suzhou: Soochow University) (in Chinese) [王俊 2016 硕士学位论文 (苏州: 苏州大学)]
- [38] Gudmundsson J T, Thorsteinsson E G 2007 *Plasma Sources Sci. Technol.* **16** 399
- [39] Jaffke T, Meinke M, Hashemi R, Christophorou L G, Illenberger E 1992 *Chem. Phys. Lett.* **193** 62
- [40] Brockhaus A, Leu G F, Selenin V, Tarnev K, Engemann J 2006 *Plasma Sources Sci. Technol.* **15** 171
- [41] Burrow P D 1973 *J. Chem. Phys.* **59** 4922

Electronegativity of capacitively coupled Ar+O₂ plasma excited at very high frequency*

Yang Yu Tang Cheng-Shuang Zhao Yi-Fan Yu Yi-Qing Xin Yu†

(College of Physics, Optoelectronics and Energy, Soochow University, Suzhou 215006, China)

(Received 28 April 2017; revised manuscript received 21 June 2017)

Abstract

By using pulsed laser induced detachment technique assisted with a Langmuir probe, the electronegative characteristics of the capacitively coupled Ar plasma doped with 5% O₂ are studied in this paper. We first focus on the electrical signal of the probe after laser pulse has induced negative ion detachment, and then analyze characteristics of the probe signal with the probe bias below or above the plasma space potential. When the bias is set to be lower than the plasma potential, the probe signal usually shows a downward surge signal. As the bias is higher than the plasma potential, the main characteristics of the signal takes on an upward wide wave packet. The evolution behavior of the probe signal with bias from the downward surge valley to the upward wide wave packet might be due to the potential difference between the plasma space potential and the probe bias voltage. Furthermore, it shows that the position of the upward peak appears later than that of the downward surge valley, which may be related to the changing of the rate of the electron diffusion flux and the electric field drift flux. According to the dependence of probe collection signal on bias, the electronegativity describing the Ar+O₂ plasma electronegative property is defined as saturation ratio of electron current after pulsed laser radiation to that of collection probe at a potential above plasma spatial potential. Plasma electronegativity is diagnosed with discharge pressure, radio-frequency (RF) input power and axial position. The experimental results show that the electronegativity of plasma decreases with input RF power increasing. As the gas pressure is kept at 12.0 Pa, the plasma electronegativity decreases from 5.05 to 0.98 with RF input power increasing from 50 to 300 W. It also shows an increasing trend of electronegativity with plasma discharge pressure increasing. Due to asymmetrical distribution of electrodes, the plasma electronegativity also takes on asymmetric one with respect to the axial position. In our experiments, the electronegativity near the power electrode shows about 1–4 times higher than that near the ground electrode, the lowest point of the plasma electronegativity seems to be located in the center of the plasma discharge. This may be related to the dynamics of the secondary electrons emitted from electrode and the competition processes between negative ion production in collisional dissociation of oxygen molecules and the losses of high energy electron and negative ion in collisional detachment of negative ion with oxygen molecule.

Keywords: laser induced photo-detachment, Langmuir probe, electronegative plasma, electronegativity

PACS: 52.70.Nc, 52.80.Pi, 52.80.Vp

DOI: 10.7498/aps.66.185202

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11675117).

† Corresponding author. E-mail: yuxin@suda.edu.cn