

# 低频容性耦合 Ar/O<sub>2</sub> 等离子体放电特性研究

张树人 刘相梅\* 王博 吕明宇  
(齐齐哈尔大学 理学院 齐齐哈尔 161006)

## Study on Discharge Characteristics of Low Frequency Capacitively Coupled Ar/O<sub>2</sub> Plasmas

ZHANG Shuren, LIU Xiangmei\*, WANG Bo, LV Mingyu  
(School of Science, Qiqihar University, Qiqihar 161006, China)

**Abstract** In this paper, the one-dimensional fluid model is used to study the characteristics of Ar/O<sub>2</sub> discharge with a driving frequency of 40 kHz. The effects of external conditions such as voltage, pressure and plate spacing on the ionization rate, plasma density, electron temperature, and ion energy at the plate are discussed. The results show that the  $\gamma$  mode is dominant in the low-frequency discharge, the DA (drift-ambipolar) mode is very weak and almost negligible, and there is no mode conversion phenomenon when the external parameters change. Another characteristic of low-frequency discharge is high ion energy. In addition, the increase in voltage makes the plasma density and O<sub>2</sub><sup>+</sup> energy increase rapidly, and the electron temperature in the sheath region increases with the increase of voltage, but the electron temperature in the plasma region decreases with the increase of voltage. The increase in pressure and plate spacing will also increase the plasma density and ion energy, while the electron temperature in the sheath region and the plasma region decreases with the increase of pressure and plate spacing.

**Keywords** Low frequency, Ar/O<sub>2</sub> discharge, Plasma

**摘要** 文章使用了一维流体模型对驱动频率为 40 kHz 的 Ar/O<sub>2</sub> 放电特性进行研究,着重讨论电压、气压、极板间距等外界条件对电离率、等离子体密度、电子温度和极板处离子能量等参数的影响。结果显示低频放电中  $\gamma$  模式占主导, DA(drift-ambipolar)模式非常微弱近乎忽略不计,且外界参数的变化并没有影响放电模式;低频放电的另一个特征为离子能量较高。此外,电压的增加使得等离子体密度和 O<sub>2</sub><sup>+</sup>能量迅速增大,鞘层区的电子温度随着电压的增大而上升,但等离子体区电子温度是下降的。气压和极板间距的增大也会使等离子体密度和离子能量增大,而鞘层区和等离子体区的电子温度均减小。

**关键词** 低频 Ar/O<sub>2</sub> 放电 等离子体

中图分类号: O539 文献标识码: A doi: 10.13922/j.cnki.cjvst.202408005

容性耦合等离子体放电不仅能产生有良好均匀性的高密度等离子体,还具有结构简单等优点,因此得到了人们的大量关注<sup>[1-6]</sup>。Ar 作为工业上的常用气体,放电时可以产生大量的高能离子,在 Ar 中加入一定的 O<sub>2</sub>,构成 Ar/O<sub>2</sub> 混合气体,可以产生氧原子 O,臭氧分子 O<sub>3</sub> 等高通量的活性粒子<sup>[7-11]</sup>,这些活性粒子在等离子体清洗,半导体,刻蚀等领域有广泛应用。然而当前大部分相关研究都是在射频范围(300 kHz-300 GHz)内进行的。

低频气体放电的离子可以在较长放电周期内获得更高的能量<sup>[12]</sup>,在材料表面处理和改性以及农业等方面有广泛的应用<sup>[13-16]</sup>,在现代工业和科学研究中扮演了重要角色。Shao M X 等<sup>[17]</sup>设计了一套低频等离子体放电探针诊断系统,并对不同放电功率下的等离子体参数进行了诊断,将诊断结果与传统双探针系统进行对比,验证了该探针系统的可行性;Ling Y M 等<sup>[18]</sup>采用双探针法对电源频率为 20 kHz 的低压介质阻挡放电的电子温度和电子能

量分布进行了诊断,发现在相同的放电条件下,电子温度比直流放电高,且随着气压升高而下降。Jafari R 等<sup>[19]</sup>在 70 kHz 的低频等离子体反应器中,使用不同的等离子体功率,在 PE 膜上沉积了等离子体聚合丙烯酸(PPAA)涂层,结果显示更高的功率会增加涂层的稳定性;Liu X M 等<sup>[20]</sup>发现在 Ar 放电中,频率较低时,增大电源频率,会减小电子密度,而电子温度迅速上升。Lau Y T 等<sup>[21]</sup>采用低功率低频(50 Hz)氩等离子体对聚苯乙烯(PS)薄膜进行了表面处理,获得了低水接触角(WCA)的材料。Conti S 等<sup>[22]</sup>利用粒子模拟程序、电探针测量和发射光谱法分析了 40 kHz 频率下的容性耦合氮气放电,发现低频氮等离子体中离子可以获得较高的能量。将十个交流硅二极管(SIDAC)串联连接直流高压电源将会产生单极脉冲,连接交流电源则可产生双极脉冲,Truong H T 等<sup>[23]</sup>分别测量了低频双极性和单极性脉冲驱动的介质阻挡放电(DBD)的电性参数,并对二者进行比较,实验结果表明,在较长上升时间或下降时间的低频单极性脉冲驱动下,DBD 的放电电流峰值比双极性脉冲驱动下的放电电流峰值低约 3 倍。

综上可以看出,研究者们大多利用探针,发射光谱等实验方法对低频等离子体放电进行探究,而对低频容性耦合等离子体放电中放电特性的理论研究却鲜有报道。当频率较低时,放电往往由二次电子发射维持,处于  $\gamma$  放电模式<sup>[24]</sup>,而 O<sub>2</sub> 是电负性气体,所以会存在 DA(drift-ambipolar)模式<sup>[25]</sup>。低频等离子体放电在不同外界条件下会有不同的放电特性,等离子体参数也会有所不同,而不同的等离子体参数会对实际的工业进程产生很大的影响,由此可见非常有必要对低频容性耦合等离子体放电特性进行系统的研究。

## 1 理论模型

### 1.1 流体力学模型

本文利用一维流体力学模型进行模拟,以 Ar 和 O<sub>2</sub> 作为背景气体,考虑了电子,正负离子,中性粒子等 15 种粒子,涉及到上百种化学反应,粒子间的反应及其参数可见参考文献 [26]。模拟中包含的粒子见表 1。

本文采用一维流体力学模型,电子密度  $n_e$  由连续性方程给出:

表 1 模型中考虑到的粒子

Tab. 1 The particles considered in the model

Neutrals	Charged particle
Ar Ar <sub>m</sub> Ar <sub>r</sub> Ar*	O <sub>2</sub> <sup>-</sup> O <sup>-</sup>
O <sub>2</sub> O <sub>3</sub> O	e O <sub>2</sub> <sup>+</sup>
O( <sup>1</sup> D) O <sub>2</sub> ( <sup>1</sup> Δg)	O <sup>+</sup> Ar <sup>+</sup>

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \frac{\partial \Gamma_e}{\partial x} = R_e \quad (1)$$

其中  $R_e$  是电子的源项,也就是电子的产生项和损失项,电子通量  $\Gamma_e$  是通过漂移-扩散近似的方法得到的:

$$\Gamma_e = -\mu_e n_e E - D_e \frac{\partial n_e}{\partial x} \quad (2)$$

式中  $\mu_e$  和  $D_e$  分别代表电子的迁移率和扩散系数。为了求解方便有效,对离子通量也采用漂移近似的方法:

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \frac{\partial \Gamma_i}{\partial x} = R_i \quad (3)$$

$$\Gamma_i = \pm \mu_i n_i E - D_i \frac{\partial n_i}{\partial x} \quad (4)$$

其中  $n_i$  和  $\Gamma_i$  分别为离子的密度和通量,  $R_i$  是离子的反应源项,  $\mu_i$  和  $D_i$  分别代表离子的迁移率和扩散系数。但是离子的质量较大,无法瞬时响应电场,而式(4)是在假设粒子能够瞬时响应电场的条件下得到的。因此引入了有效电场  $E_{\text{eff},i}$  来代替电场  $E$ 。有效电场既考虑离子的运动状态又考虑离子质量,是离子实际受到的电场,因此使用有效电场能够更加准确的描述离子的运动轨迹。有效电场由式(5)给出:

$$\frac{\partial E_{\text{eff},i}}{\partial t} = \nu_{m,i} (E - E_{\text{eff},i}) \quad (5)$$

其中  $\nu_{m,i} = e/m_i \mu_i$  代表离子的动量运输频率,  $m_i$  是离子的质量,  $\mu_i$  是离子的迁移率。

中性粒子由于不带电荷,不会受到电场的影响,其密度用  $n_n$  表示,扩散系数用  $D_n$  表示,  $R_n$  代表 O, O<sub>3</sub> 等中性粒子的反应源项。其式如下:

$$\frac{\partial n_n}{\partial t} - D_n \frac{\partial^2 n_n}{\partial x^2} = R_n \quad (6)$$

通过泊松方程将所有粒子耦合在一起:

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} = -\frac{e}{\epsilon_0} (n_+ - n_- - n_e) \quad (7)$$

$$E = -\frac{\partial \phi}{\partial x} \quad (8)$$

其中  $\epsilon_0$  是真空介电系数,  $n_+$  为正离子密度,  $n_-$  为负离子密度,  $\phi$  为电势,  $E$  为电场强度。

最后,电子能量方程可由式(9)表示:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{3}{2} n_e T_e \right) + \frac{\partial \Gamma_w}{\partial x} = -e \Gamma_e E + R_w \quad (9)$$

其中  $T_e$  是电子温度,  $R_w$  是电子的能量损失项, 电子能流密度  $\Gamma_w$  可以由式(10)表示:

$$\Gamma_w = \frac{5}{2} T_e \Gamma_e - \frac{5}{2} D_e n_e \frac{\partial T_e}{\partial x} \quad (10)$$

离子温度和中性气体温度均假设为 300 K, 因此不考虑其热能方程。但离子的动能  $E_i$  在等离子体工艺中有很重要的作用, 将在讨论部分进行重点研究, 其式如下:

$$E_i = \frac{1}{2} m_i v_i^2 \quad (11)$$

其中  $m_i$  和  $v_i$  分别为离子的质量和速度。

## 1.2 边界条件

图1为本文采用的放电装置, 容性耦合反应器的下极板接地, 上极板接电压  $V=V_0 \sin(\omega t)$  的驱动电源。上、下极板处的电子通量为:

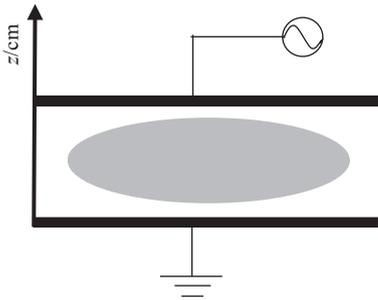


图1 容性耦合放电装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of capacitive coupling discharge device

$$\Gamma_e = \frac{u_{th} n_e}{4} (1 - \Theta) - \gamma_{se} \Gamma_i \quad (12)$$

式中  $\Theta=0.25$ , 是电子器壁上的反射系数。电子平均热运动速度  $u_{th} = \sqrt{8k_B T_e / \pi m_e}$ , 上下极板处的电子能流密度可以由式(13)表示:

$$\Gamma_w = \frac{5T_e \Gamma_e}{2} \quad (13)$$

负离子流通量在边界处为 0, 而正离子通量在边界处连续, 也就是在边界处的梯度为零, 那么对于离子式, 则有:

$$\frac{\partial \Gamma_+}{\partial x} = 0 \quad \Gamma_- = 0 \quad (14)$$

对于中性粒子及其自由基, 边界处的中性粒子流为:

$$\Gamma_n = \frac{s_n}{2(2-s_n)} n_n u_{th,n} \quad (15)$$

其中  $u_{th,n} = \sqrt{8k_B T_n / \pi m_n}$  代表中性粒子的热运动速度。

$s_n$  为其粘附系数。当碰到器壁时, 气体分子会反射, 而激发态气体会变成去激发态, 所以可以认为气体分子粘附系数为 0, 激发态气体的粘附系数为 1。

## 2 结果与讨论

本文在对低频容性耦合 Ar/O<sub>2</sub> 放电的研究中采用一维流体力学模型, 重点讨论了电压、气压、极板间距对电离率, 电子密度、电子温度、离子能量等放电参数的影响。电源频率为 40 kHz, 气体组分为 Ar/O<sub>2</sub>=8:2, 二次电子发射系数  $\gamma_{se}=0.2$ , 以下讨论均基于稳定流体模型, 也就是相邻 2 个周期内放电参数的相对变化小于  $10^{-6}$ 。

### 2.1 电压的影响

本节主要讨论了电压幅值变化对低频气体放电的影响, 控制气压为 300 mTorr, 极板间距为 3 cm, 令电压幅值  $V_0$  分别为 150, 200, 250 V。图2给出了不同电压下电离率的时空分布。可以看出, 该混合气体始终为  $\gamma$  放电模式主导的  $\gamma$ -DA 混合模式, 但由于  $\gamma$  模式峰值为  $4.8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ , DA 模式峰值为  $3.09 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  (以  $V_0=200 \text{ V}$  为例),  $\gamma$  模式远强于 DA 模式, 这导致 DA 模式没有显现。在这种放电模式下, 离子和中性粒子轰击极板, 会产生大量的二次电子。随着电压的升高, 电离率的最大值呈指

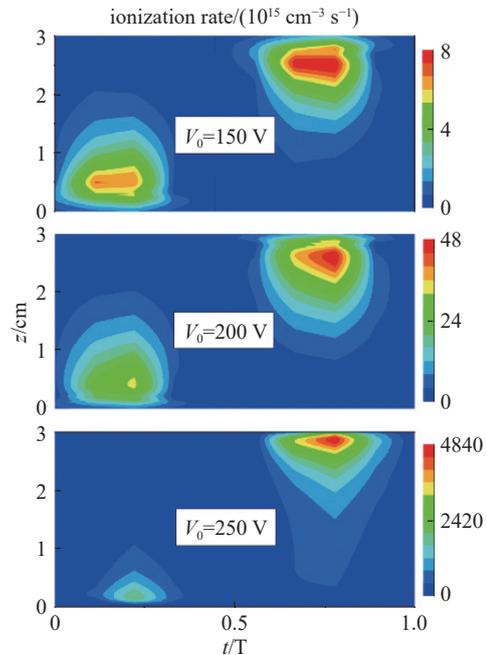


图2 不同电压下电离率的时空分布

Fig. 2 Temporal and spatial distribution of ionization rate at different voltages

数型增长, 从 150 V 时的  $8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  增加到了 250 V 时的  $4.84 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ 。这种变化可能的原因是, 随着电压的升高, 电场强度增大, 二次电子在鞘层电场中获得的能量增加, 并发生雪崩式的电离, 电离率迅速增大。此外, 电源频率很低, 放电接近于直流放电, 而电压施加在上极板上, 这导致上极板的电离率峰值较高, 出现了不对称性。

图 3 中的电子密度和电子温度取同一周期内的平均值。从图 3(a) 中能够看出, 电子密度整体在放电区域内呈抛物线形, 也就是说, 等离子体区的电子密度比鞘层区的等离子体密度高。伴随着电压的增大, 电子密度呈指数型上升, 极板中心处的电子密度从  $3.01 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$  提高到了  $1.81 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , 增加了近三个数量级。在图 3(b) 中能够看出, 鞘层区的电子温度很高且下降十分迅速, 相比之下, 等离子体区的电子温度只有不到 2 eV 且分布均匀。随着电压的增加, 电子温度的最大值也有所上升, 而等离子体区的电子温度减小。

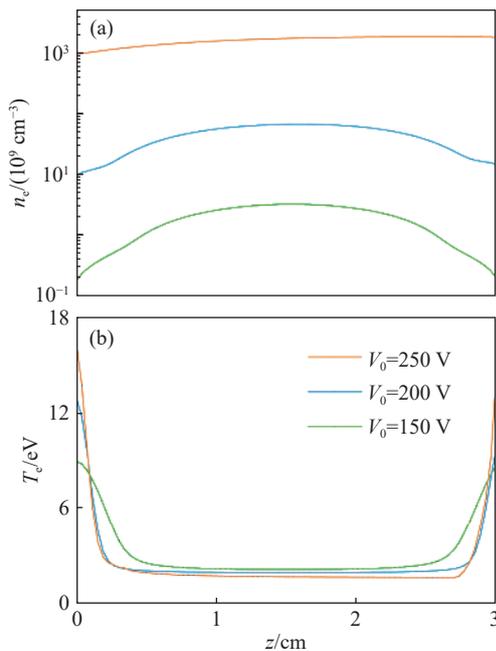


图3 电压对电子密度和电子温度的影响。(a)电子密度, (b)电子温度

Fig. 3 The effects of voltage on the electron density and electron temperature. (a) Electron density, (b) electron temperature

出现这种变化规律可能的原因如下: 二次电子穿过鞘层区时会发生雪崩式电离<sup>[27]</sup>, 电子密度迅速增加, 电子温度下降, 而在等离子体区由于 DA 模式

极其微弱, 电场强度几乎为零, 电子与气体碰撞频率较低, 电子密度和电子温度的变化趋于平缓。由于电源电压几乎全部加在极板上, 当电压增大时, 极板边缘处的电子由于电场的加速作用获得了更高的初始速度, 也就具有了更大的初动能及初始温度, 与此同时, 更大的动能也使得二次电子与中性粒子发生更多的碰撞, 电子密度上升, 电子也由此失去了更多的能量, 电子温度下降的更快, 等离子体区的电子温度更低。

在 Ar/O<sub>2</sub> 放电中, 氧原子 O 等活性粒子和 O<sub>2</sub><sup>+</sup> 等高能离子在等离子体清洗, 半导体, 刻蚀等应用中发挥重要作用。图 4 展示了氧原子和 O<sub>2</sub><sup>+</sup> 密度的空间分布, 可以看出, 两种粒子的密度都随着电压的增加而迅速增大。这是由于这两种粒子是由电子和 O<sub>2</sub> 碰撞发生电离产生的, 而电压的增大使得电子密度迅速增加, 碰撞加剧, 更多的 O<sub>2</sub> 被分解、电离产生了大量的 O 原子和 O<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子。

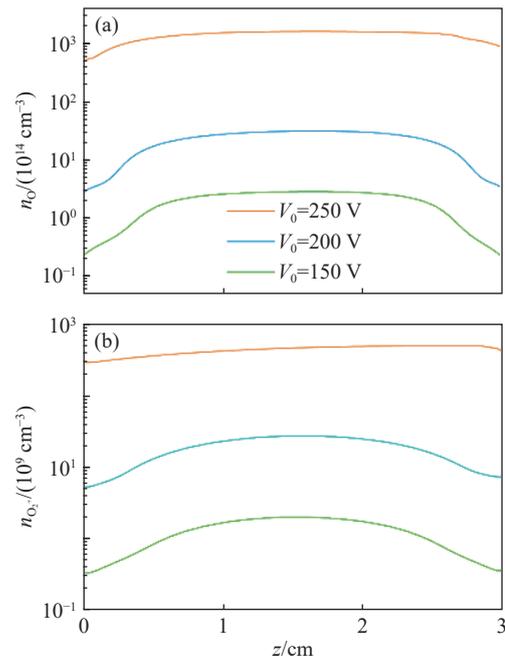


图4 电压对粒子密度的影响。(a)O 密度, (b)O<sub>2</sub><sup>+</sup>密度

Fig. 4 The effects of voltage on the particle density. (a) O density, (b) O<sub>2</sub><sup>+</sup> density

等离子体中的高能离子在材料处理方面有重要应用, 图 5 给出了不同电压下上极板处 O<sub>2</sub><sup>+</sup> 能量随时间的变化。由式(4)  $\Gamma_i = \mu_i n_i E - D_i \partial n_i / \partial x$  可知, 离子速度的变化趋势与电场强度相同。为了验证这一结论, 图 6 给出了  $V_0=200$  V 时一个周期内上极板边界处电场强度的变化规律。

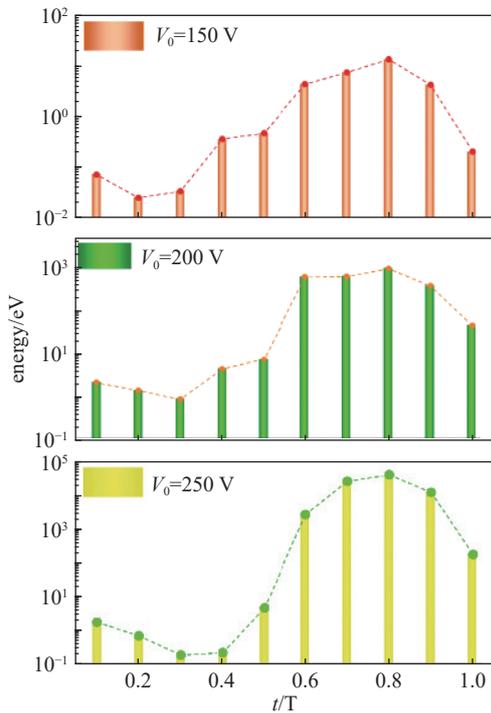


图5 不同电压下上极板处  $O_2^+$  能量的随时间变化图

Fig. 5 The variation of  $O_2^+$  energy with time at the upper plate at different voltages

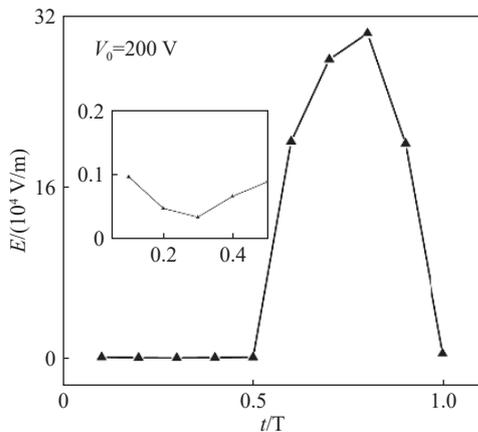


图6 同一周期内电场强度随时间的变化规律 ( $V_0=200$  V)

Fig. 6 The variation of electric field within the same period ( $V_0=200$  V)

从图6中能够看出,电场强度在前半周期先减小后增大(由于前半周期电场强度较小,故将前半周期变化趋势放大后置于图6左侧),在后半周期先增大后减小,且前半周期电场强度远小于后半周期。导致这一变化的原因可能是,前半周期上极板电压增加,抬高了体区电势,不利于形成鞘层和发生电离,在后半周期,由于电源频率过低近似直流放电,且极板电位在下降,有利于形成阴极鞘层和发生电

离。图6中电场变化趋势与图5中  $V_0=200$  V 时的离子能量变化趋势相同,验证了上述结论。此外,根据图5能够看出,整体上离子能量随着电压的上升成指数型上升。导致这一结果可能的原因是,电源电压增大时,鞘层就会有更大的电位降,离子在穿过鞘层的过程中就会获得更高的能量,进而产生更多的二次电子,使电子密度进一步上升。

## 2.2 气压的影响

本节控制电压  $V_0=200$  V,极板间距为 3 cm,改变气压分别为 200, 300 和 450 mTorr。图7给出不同气压下电离率的时空分布,有图可知随着气压的增加电离率迅速增大。导致这一现象的原因是:气压增大意味着背景气体增多,从而增大了电子与背景气体的碰撞频率,从而使气体发生更多电离,使得电离率迅速增加。此外,需要强调的是,虽然气压会增强气体的电负性<sup>[28]</sup>,但放电仍然处于  $\gamma$  模式,DA 模式没有显现,这说明在低频放电下  $\gamma$  模式远强于 DA 模式。

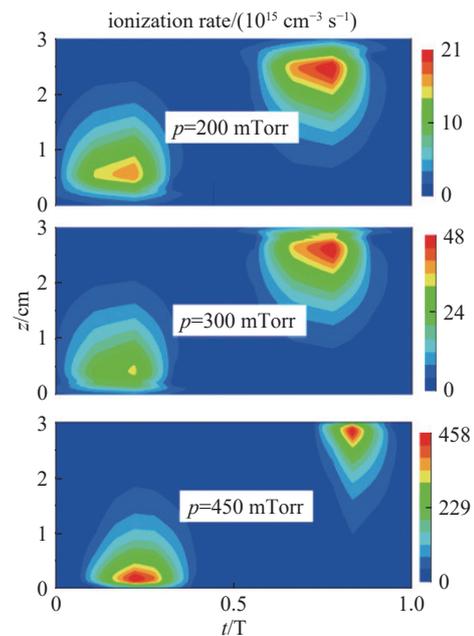


图7 不同气压下电离率的时空分布

Fig. 7 The temporal and spatial distribution of ionization rate at different pressures

由图8可以看出,电子密度主要分布在等离子体区,电子温度主要分布在鞘层区,随着气压的升高,电子密度的峰值从气压为 200 mTorr 时的  $8.32 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$  提升到了 450 mTorr 时的  $4.56 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ ,增加了近 2 个数量级。而电子温度却在整个放电区域

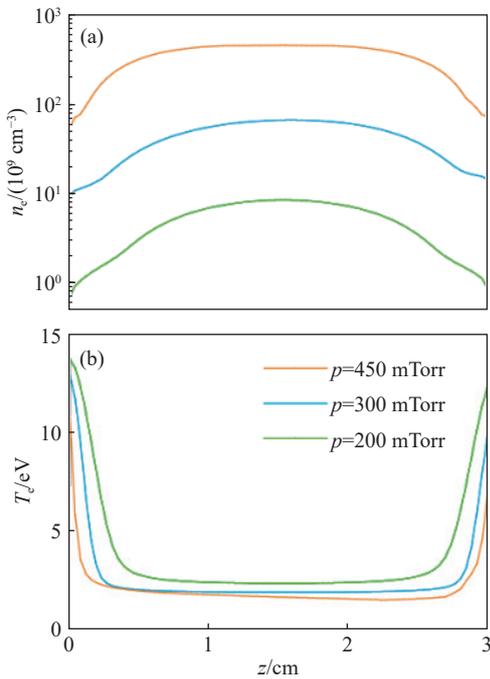


图8 气压对电子密度和电子温度的影响。(a)电子密度, (b)电子温度

Fig. 8 The effects of pressure on the electron density and electron temperature. (a) Electron density, (b) electron temperature

内略有下降。电子密度和温度的这些变化是与平均自由程有关。由  $\lambda = kT / \sqrt{2}\sigma P$  可知, 平均自由程会随着气压升高而减小, 鞘层区的二次电子与中性粒子的碰撞更加剧烈, 更多的气体被电离, 电子密度增大, 但这也使电子损失了更多的能量, 电子温度减小。

图 9 为不同气压下 O<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子和氧原子 O 密度的空间分布。由图可见与电子密度分布类似, O<sub>2</sub><sup>+</sup> 和 O 密度主要分布在等离子体区, 且随着气压上升, 其密度也迅速增大, 增加近 2 个量级。这是由于随着气压的增加, O<sub>2</sub> 的密度增大, 电离更加频繁所导致的。由于电源频率非常低且电压加在上极板, 上极板处的等离子体密度略大于下极板处的等离子体密度。与图 4 相比可以看出, 气压对等离子体密度的影响小于电压的影响。

图 10 为不同气压下上极板处 O<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子能量的变化, 可以看出, 气压每增加 100 mTorr 左右, 离子能量峰值增加约一到两个数量级。这一现象可能的原因是, 随着气压的升高, 电子密度增大, 生成了更多的离子, 使得离子密度也随之增大, 单位面积内撞击到极板处的高能离子增多, 致使极板处的离

子能量增大。此外, 一个周期内的离子能量变化趋势与图 5 相同。

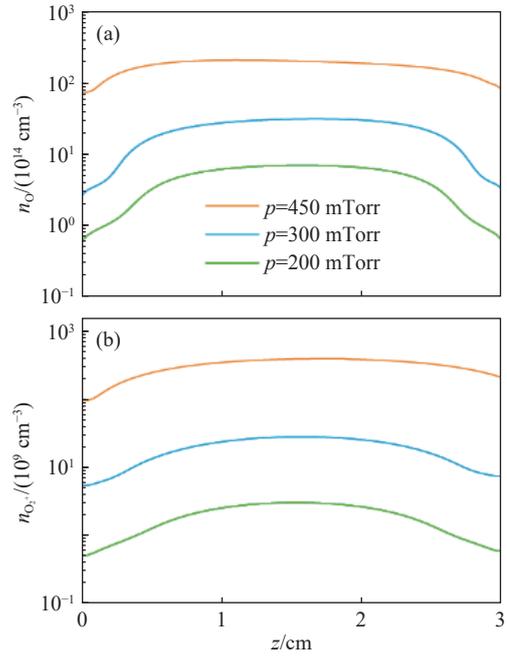


图9 气压对粒子密度的影响。(a)O, (b)O<sub>2</sub><sup>+</sup>

Fig. 9 The effects of pressure on the particle density. (a) O, (b) O<sub>2</sub><sup>+</sup>

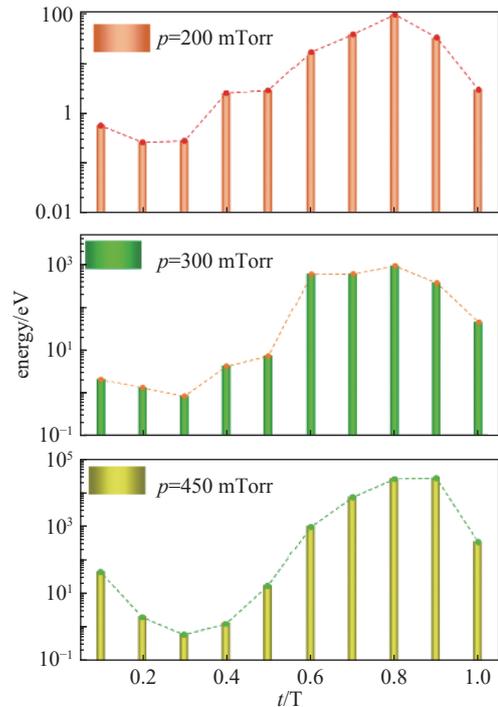


图10 一个周期内不同气压下上极板处 O<sub>2</sub><sup>+</sup> 能量的变化图

Fig. 10 The variations of O<sub>2</sub><sup>+</sup> energy at the upper plate at different pressures within a cycle

### 2.3 极板间距的影响

本节讨论了极板间距对低频气体放电的影响,控制电压  $V_0=200$  V,气压为 300 mTorr,调节极板间距分别为 2, 3, 4 cm,得到电离率和电场强度的时空分布如图 11 所示。

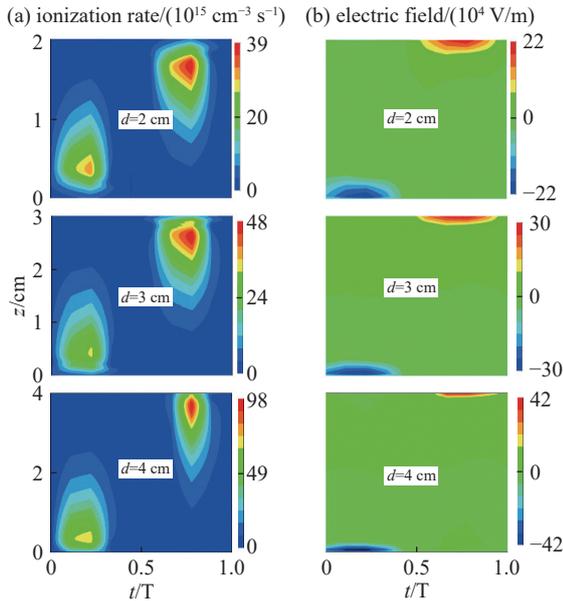


图11 极板间距对电离率和电场的影响。(a)电离率,(b)电场

Fig. 11 The effects of electrode spacing on the ionization rate and electric field. (a) Ionization rate, (b) electric field

由图 11(a)可以看出,伴随着极板间距的增加,电离率会增大。这是由于当极板间距比较小时,鞘层区的电场强度较弱,电子在鞘层的电场中获得的能量较小,与此同时,等离子体区为碰撞提供的有效体积很小。由图 11(b)可以看出当极板间距增大时,鞘层区电场增强。电子被电场加速到更高的能量,并且等离子体区变大,电子与背景气体碰撞的有效体积增大,二次电子经历充分的碰撞,使电离率进一步上升。

图 12 给出了电子密度和电子温度的空间分布,由图 12(a)可以看出随着极板间距增大,电子密度上升,其峰值从  $d=2$  cm 时的  $2.1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  增大到了  $d=4$  cm 时的  $2.52 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ ,增加了一个数量级。由图 12(b)能够看出电子温度呈下降趋势。

发生这一现象可能的原因是,极板间距增大,电离率上升,电子密度增大,电子损失了更多的能量,与此同时,更大的等离子体区使得能量被分散,导致电子温度进一步下降。

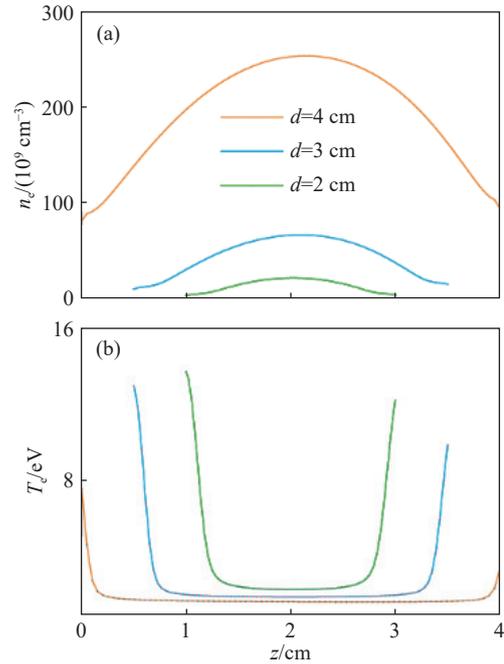


图12 极板间距对电子密度和电子温度的影响。(a)电子密度,(b)电子温度

Fig. 12 The effects of electrode spacing on the electron density and electron temperature. (a) Electron density, (b) electron temperature

由图 13 中可以看出, O 和  $\text{O}_2^+$  的密度都随着极板间距增加而增大。发生这一现象是由于极板间距的增加使电子与背景气体有更大的碰撞有效体积,进而生成更多的氧原子和  $\text{O}_2^+$  离子。相对比于图 4 和图 9,可以发现极板间距对离子密度和中性粒子的影响弱于电压和气压的影响。

图 14 给出了不同极板间距下上极板处  $\text{O}_2^+$  能量的变化。可以看出,  $\text{O}_2^+$  能量在一个周期内变化趋势与图 5 相同。离子的能量随着极板间距的增大而增大。这是因为随着极板间距的增加,离子在电场中的加速路径变长,电场强度随着极板间距变大而增强,这使得离子在电场中获得了更高的能量。但相比于电压和气压对离子能量的影响,极板间距的影响相对较弱。

### 3 结论

本文在对 40 kHz 的 Ar/ $\text{O}_2$  放电特性研究中使用了一维流体模型,关注了电压、气压、极板间距对电子密度、电子温度、中性粒子密度(O)、 $\text{O}_2^+$  离子密度和能量的影响,等离子体参数随外界条件变化如下:

(1)当增加电压时,电子密度上升了接近三个

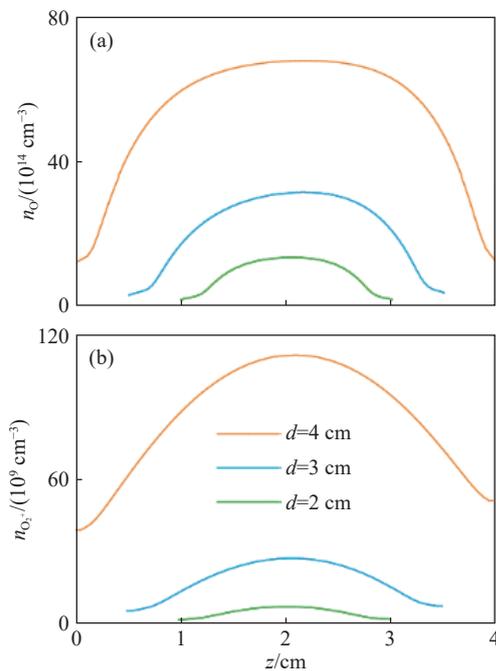


图13 极板间距对粒子密度的影响。(a)O 密度, (b) $O_2^+$  密度  
Fig. 13 The effects of electrode spacing on the particle density.  
(a) O density, (b)  $O_2^+$  density

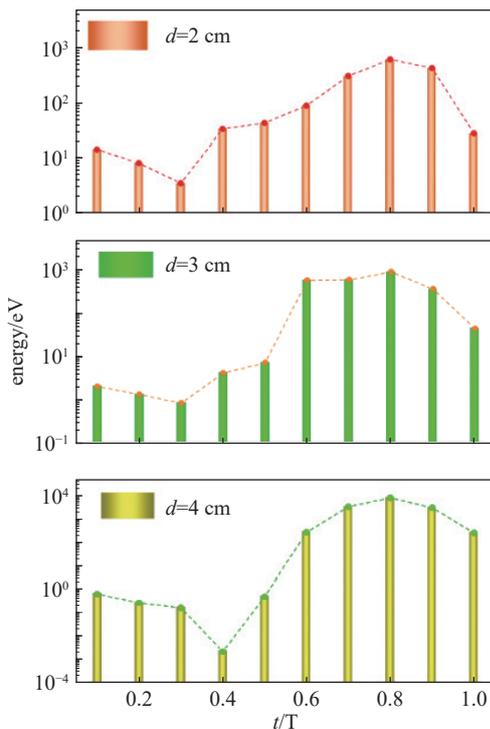


图14 一个周期内不同极板间距下上极板处的  $O_2^+$  能量变化  
Fig. 14 The variation of  $O_2^+$  energy at the upper plate at different plate spacing within a cycle

数量级, 等离子体区的电子温度降低但鞘层的电子温度升高, 而在等离子体清洗, 刻蚀等领域有重要作用的氧原子和  $O_2^+$  离子也随着电压升高而大幅度

增加, 离子能量更是增大了近三个数量级, 由此可见, 电压对低频等离子体特性起着非常重要的作用。

(2) 当增大气压时, 电子密度随着气压的升高增大了两个数量级, 鞘层区和等离子体区的电子温度均下降。氧原子和  $O_2^+$  离子的密度也随着气压升高而增大, 但气压对等离子体密度的影响小于电压的影响。

(3) 当增大极板间距时, 电子密度随着极板间距的增大而增大, 电子温度则有所下降。氧原子和  $O_2^+$  离子的密度也有所上升。从整体上看, 其影响弱于电压和气压产生的影响。

此外, 需要强调的是, 当改变各种外界条件时, 放电一直处于  $\gamma$  模式, DA 模式由于十分微弱没有显现, 这说明在低电源频率下  $\gamma$  模式远强于 DA 模式。

综上所述, 本文展现了低频等离子体的放电特性, 放电始终由  $\gamma$  模式主导, 具有较高的离子能量。电压、气压、极板间距的增加均会增大等离子体密度和离子能量。其中电压对等离子体密度产生的影响是最大的, 这对材料表面处理, 材料改性等工艺是非常有意义的。

#### 参 考 文 献

- [1] Park J, Henins I, Herrmann H W, et al. Discharge phenomena of an atmospheric pressure radio frequency capacitive plasma source[J]. *Journal of Applied Physics*, 2001, 89(1): 20–28
- [2] Chabert P, Raimbault J L, Rax J M, et al. Self-consistent nonlinear transmission line model of standing wave effects in a capacitive discharge[J]. *Physics of Plasmas*, 2004, 11(5): 1775–1785
- [3] Chabert P, Raimbault J L, Levif P, et al. Inductive heating and E to H transitions in high frequency capacitive discharges[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2006, 15(2): S130–S136
- [4] Sharma S, Sirse N, Sen A, et al. Electric field filamentation and higher harmonic generation in a very high frequency capacitive discharges[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2019, 52(36): 365201
- [5] Chatain A, Miguel J R, Vettier L, et al. N<sub>2</sub>-H<sub>2</sub> capacitively coupled radio-frequency discharges at low pressure. Part I. Experimental results: effect of the H<sub>2</sub> amount on electrons, positive ions and ammonia formation[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2020, 29(8): 085019
- [6] Grari M, Zoheir C A, Yousfi Y, et al. Effect of pressure and space between electrodes on the deposition of SiNx-

- Hy films in a capacitively coupled plasma reactor[J]. *Chinese Physics B*, 2021, 30(5): 055205
- [7] Wen D Q, Zhang Y R, Lieberman M A, et al. Ion energy and angular distribution in biased inductively coupled Ar/O<sub>2</sub> discharges by using a hybrid model[J]. *Plasma Processes and Polymers*, 2017, 14(4-5): 1600100.1–1600100.9
- [8] Jin Y, Ren C S, Yang L, et al. Comparative study of the surface cleaning for Ar/He-based plasma jets at atmospheric pressure[J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2015, 43(9): 1–1
- [9] Li S Z, Huang W T, Zhang J, et al. Optical diagnosis of an argon/oxygen needle plasma generated at atmospheric pressure[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 94(11): 241501
- [10] Pan J, Tan Z, Liu Y, et al. Effects of oxygen concentration on atmospheric-pressure pulsed dielectric barrier discharges in argon/oxygen mixture[J]. *Physics of Plasmas*, 2015, 18(9): 080901
- [11] Baeva M, Stankov M, Trautvetter T, et al. The effect of oxygen admixture on the properties of microwave generated plasma in Ar/O<sub>2</sub>: a modelling study[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2021, 54(35): 355205
- [12] Ni T L, Ke B, Zhu X D, et al. Probe diagnostics and numerical simulations of a low pressure argon slender plasma excited by a low frequency discharge[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2008, 17(4): 045006
- [13] Liu W J, Liu X M. Characteristics of dual-frequency capacitively coupled Ar/O<sub>2</sub> plasma at atmospheric pressure[J]. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 2023, 43(12): 1081–1089 (刘文静, 刘相梅. 大气压双频容性耦合 Ar/O<sub>2</sub> 等离子体特性研究 [J]. *真空科学与技术学报*, 2023, 43(12): 1081–1089 (in Chinese))
- [14] Sanchette F, El Garah M, Achache S, et al. DLC-based coatings obtained by low-frequency plasma-enhanced chemical vapor deposition (LFPECVD) in cyclohexane, principle and examples[J]. *Coatings*, 2021, 11(10): 1225
- [15] Fynes-Clinton D, Nyamupangedengu C. Partial discharge characterization of cross-linked polyethylene medium voltage power cable termination defects at very low frequency (0.1 Hz) and power frequency test voltages[J]. *IEEE Electrical Insulation Magazine*, 2016, 32(4): 15–23
- [16] Roy N C, Hasan M M, Talukder M R, et al. Prospective applications of low frequency glow discharge plasmas on enhanced germination, growth and yield of wheat[J]. *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 2018, 38: 13–28
- [17] Shao M X. Electrostatic probe diagnostic method for low-frequency discharge plasma[D]. Xidian University, 2017 (邵明绪. 低频放电等离子体静电探针诊断方法 [D]. 西安电子科技大学, 2017 (in Chinese))
- [18] Ling Y M. Probe diagnosis of electron temperature and electron energy distribution in low-pressure dielectric barrier discharge[J]. *Physics of Plasmas*, 2005, 12(11): 113504
- [19] Jafari R, Tatoulian M, Morscheidt W, et al. Stable plasma polymerized acrylic acid coating deposited on polyethylene (PE) films in a low frequency discharge (70 kHz)[J]. *Reactive and Functional Polymers*, 2006, 66(12): 1757–1765
- [20] Liu X M, Song Y H, Wang Y N. Driving frequency effects on the mode transition in capacitively coupled argon discharges[J]. *Chinese Physics B*, 2011, 20(6): 323–328
- [21] Lau Y T, Chin O H, Lee H C, et al. Plasma surface treatment of polystyrene in a low power low frequency argon glow discharge[J]. *Applied Surface Science*, 2022, 578: 151963
- [22] Conti S, Porshnev P I, Fridman A, et al. Experimental and numerical investigation of a capacitively coupled low-radio frequency nitrogen plasma[J]. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 2001, 24(3-4): 79–91
- [23] Truong H T, Uesugi Y, Nguyen X B. Mechanisms of low-frequency dielectric barrier discharge (DBD) plasma driven by unipolar pulses and bipolar pulses[J]. *AIP Advances*, 2021, 11(2): 025022
- [24] Liu G H, Wang X Y, Liu Y X, et al. Effects of secondary electron emission on plasma density and electron excitation dynamics in dual-frequency asymmetric capacitively coupled argon plasmas[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2018, 27(6): 064004
- [25] Liu G H, Liu Y X, Wen D Q, and Wang Y N. Heating mode transition in capacitively coupled CF<sub>4</sub> discharges: comparison of experiments with simulations[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2015, 24(3): 034006
- [26] Pan G S, Tan Z Y, Wang X L, et al. Numerical study on frequency Characteristics of Ar/O<sub>2</sub> pulse dielectric barrier discharge at atmospheric pressure under high oxygen concentration[J]. *Electrotechnical journal*, 2017, 32(20): 71–81 (潘光胜, 谭震宇, 王晓龙, 等. 高氧浓度下大气压 Ar/O<sub>2</sub> 脉冲介质阻挡放电频率特性数值研究 [J]. *电工技术学报*, 2017, 32(20): 71–81 (in Chinese))
- [27] Liu G H, Liu Y X, Bai L S, et al. Experimental investigation of mode transitions in asymmetric capacitively coupled radio-frequency Ne and CF<sub>4</sub> plasmas[J]. *Physics of Plasmas*, 2018, 25(2): 02355
- [28] Schulze J, Derzsi A, Dittmann K, et al. Ionization by drift and ambipolar electric fields in electronegative capacitive radio frequency plasmas[J]. *Physical review letters*, 2011, 107(27): 275001