引用格式:李道儒,李炳辰,张生俊,等. 低压高密度等离子体电极性能研究[J]. 科学技术与工程,2018,18(2):1—6
Li Daoru, Li Bingchen, Zhang Shengjun, et al. Study on emission performance of low voltage and high density plasma electrode[J]. Science Technology and Engineering, 2018, 18(2):1—6

物理学

低压高密度等离子体电极性能研究

李道儒 李炳辰 张生俊 张亚非*
(上海交通大学薄膜与微细加工教育部重点实验室,上海 201100)

摘 要 设计了一种玻璃管式封闭等离子体腔室,以高频开关电源为工作电源,高纯氩气(体积分数为99.999%)为工作气体,结合汤森放电理论,推导了等离子体密度与电流之间的关系,结合实验结果对该理论进行了验证,并测试了不同压强,不同电极下的封闭式等离子体密度。实验结果表明,在以纯金属热阴极材料钨为电极,工作电流为200 mA,管内气压为66 Pa(0.5 torr)的条件下,可将封闭式等离子体密度提高至1.1×10^{13} cm^{-3}。对封闭式等离子体密度与电流、腔室内气体压强及腔室电极之间的关系进行了分析,探索得到了一种封闭腔体内获得接近电弧放电高密度等离子体的方法。

关键词 等离子体密度 Langmuir双探针 低气压封闭式等离子体 电子发射
中图法分类号 O461.2; **文献标志码** A

等离子体是一种由自由电子和带电离子为主要成分的物质形态,作为物质的第四态,它在材料、能源、信息、国防科技等[1—4]。很多领域有着广泛的应用,无论是实验室研究,还是工业实用,等离子体密度都是衡量等离子体性质的重要参量,这是因为所有涉及等离子体的物理、化学过程都与等离子体密度存在密切的联系。

刘洋等[5]通过数值分析和模拟的方法,研究了电磁波衰减系数与等离子体密度、等离子体厚度以及电子温度之间的关系;金锋等[6]通过对大气压射频辉光放电阻抗特性的实验研究,发现氩等离子体密度可达到4.5×10^{11} cm^{-3};董丽芳等[7]利用空心针—板放电装置产生了大气压等离子体炬,并测量了其内部及表面的等离子体密度;李霞芬[8]对激光烧蚀—脉冲放电等离子体电子数密度和温度特性进行了研究。对于开放式等离子体,尽管等离子体密度较高,但制备等离子体的设备复杂,功耗大,且等离子体不稳定;对于封闭式等离子体,由于其腔室受到电源以及腔室材料等多方面的限制,等离子体密度较低,不能满足实际应用的要求。

理想状况下,1 mol气体在标准大气压下的体积为22.4 L,同时,1 mol气体的分子数为6.02×10^{23},因此,理想状况下,标准大气压下每立方厘米气体的分子数为2.7×10^{19},对于低压等离子体腔室,假设气压为133 Pa,则该气压条件下,每立方厘米气体的分子数近似为3.6×10^{16}。本文设计了一种玻璃管式等离子体腔室,以钨为电极,NHWY10K-0.5高频开关电源为工作电源,通以高纯氩气,可形成稳定的辉光放电等离子体。该腔室简单轻便,可适应不同的工作环境,并可匹配自制的Langmuir双探针系统,利用Langmuir探针法准确地测量等离子体密度,降低了等离子体制备和诊断的成本。本文对比了筒状铁镍合金电极和钨丝电极在不同条件下的等离子体密度,实验结果表明,对于钨丝电极,在等离子体腔室内通入66 Pa氩气,施加较大电流时,等离子体密度可以达到1.1×10^{13} cm^{-3}。

1 等离子体密度理论分析

电流是由载流子的输运产生的,通常载流子的输运方式有两种:一种是与电场大小有关的漂移运动;另一种是与载流子浓度梯度有关的扩散运动。两种方式对电流大小的贡献可利用式(1)和式(2)表示。

漂移电流密度公式:

$$j = qnv = qn\mu E \tag{1}$$

式(1)中,q表示电子电量;n表示电子浓度;μ表示电子迁移率;v表示电子漂移速度;E表示电场强度。

2017年6月22日收到 国家自然科学基金(61574091)资助
第一作者简介:李道儒(1993—),硕士研究生。研究方向:高密度等离子体腔室。E-mail:lidaoru@sjtu.edu.cn。
*通信作者简介:张亚非(1955—),教授。研究方向:低温等离子体及其在装备隐身方面的应用。E-mail:yfzhang@sjtu.edu.cn。

扩散电流密度公式：

$$j = -qD\frac{\partial n}{\partial x} = -qD\nabla n \tag{2}$$

式(2)中，D 表示扩散系数，与迁移率 μ 满足基本的爱因斯坦关系式

$$\frac{D}{\mu} = \frac{kT}{q} \tag{3}$$

通常的电子电流既包含漂移电流又包含扩散电流，因此有一般的电流密度表达式

$$j_e = qn_e\mu_e E + qD_e\nabla n_e \tag{4}$$

式(4)同样适用于正离子的电流情况。对于等离子体而言有，其中的部分参量大小如下：

$$\mu_e \approx \frac{q\bar{\lambda}_e}{m_e v_e} \tag{5}$$

$$D_e = \frac{kT_e}{q}K_e \tag{6}$$

$$\mu_i \approx \frac{2}{\pi}\frac{q\bar{\lambda}_i}{m_i v_i} \tag{7}$$

$$D_i = \frac{kT_i}{q}K_i \tag{8}$$

式中，$\bar{\lambda}_e$ 和 $\bar{\lambda}_i$ 分别表示电子和离子的平均扩散距离；K_e 和 K_i 分别表示与电子、离子、m_e、m_i 及电子能量损失分数有关的系数。

考虑电子的迁移率通常比离子大，因此由爱因斯坦关系式可以推知电子的扩散系数远高于离子的扩散系数，结果电子向低密度区扩散要比离子扩散得更快，这种扩散导致在小于 λ_D 的范围内形成内空间电场，结果是，限制了电子的扩散，同时引起离子的扩散速度加大，最终两种带电粒子以相同的速度扩散。由于假设了 $n_i = n_e = n$，因此电子通量等于离子通量

$$\Gamma_e = \Gamma_i = \Gamma \tag{9}$$

由于带相反电荷的粒子一起扩散，这种行为称为双极扩散。这样的结果是总的扩散通量为

$$\Gamma = -\left(\frac{D_i\mu_e + D_e\mu_i}{\mu_e + \mu_i}\right)\nabla n = -D_a\nabla n \tag{10}$$

因此，等离子体中带电粒子的扩散不是受电子、离子各自扩散系数控制，而是由双极扩散系数 D_a 控制：

$$D_a = \frac{D_i\mu_e + D_e\mu_i}{\mu_e + \mu_i} \tag{11}$$

在等离子体受到外界电场的作用下，形成定向的电荷流动，即成为电流。以在玻璃管中形成电流为例，为分析方便起见，现假设：电极作为阴极放电区，其长度相对于玻璃管管长可以忽略不计；等离子体扩散主要沿着玻璃管轴向进行扩散，其他方向上的扩散忽略不计，简言之，将等离子体扩散看成是一维方向上的扩散；忽略粒子在运动中的二次碰撞电离。

等离子体电流的电流密度公式为

$$j = qn(x)\mu E(x) + qD_a\nabla n(x) \approx qn\mu E + qD_a\frac{\partial n}{\partial x} \tag{12}$$

考略边界条件：

$$n(0) = n_0 \tag{13}$$

该方程的解为

$$n(x) = \left(\frac{j}{qD_a}x + n_0\right)e^{-\frac{qE}{kT}x} \tag{14}$$

对于一个确定的位置，结合图1所示的典型 Townsend 直流放电 V-A 特性曲线，可以近似认为，管内的电场强度 E 随电流的增大而增大，则理想情况下，由式(11)封闭式等离子体管中的密度分布可知，等离子体密度随着电流密度的增加而增加，并且，等离子体密度随放电状态的变化而变化。

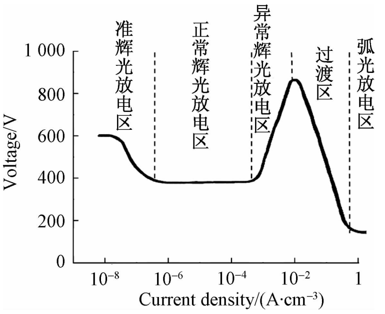


图1 典型 Townsend 直流放电 V-A 特性曲线[9]

Fig. 1 V-A characteristics of typical Townsend DC discharge[9]

2 等离子体腔室及诊断装置

等离子体诊断即是用各种实验方法来测定等离子体参数的技术。常用的等离子体诊断技术有探针法、微波法、光谱法，其中探针法是一种历史最为悠久且行之有效的诊断方法[10—13]。现在所使用的 Langmuir 双探针系统，具有如下优点：①双探针收集的电流不会超过离子饱和电流，这样就可以避免探针在高密度等离子体中收集电子电流而被烧坏；②双探针结构简单，对探针系统要求并不苛刻，方便操作。由于杜美丝和玻璃管有着相似的热膨胀系数，所以选取直径为 0.2 mm 杜美丝作为 Langmuir 双探针系统的探针。这样，当诊断系统以热处理的方式匹配到等离子体腔室的时候，不会损坏腔室，以维持性质稳定的等离子体。所有的数据采集及结论都是在 Langmuir 双探针系统的基础上得到的。图2所示为 Langmuir 双探针系统的结构简图。

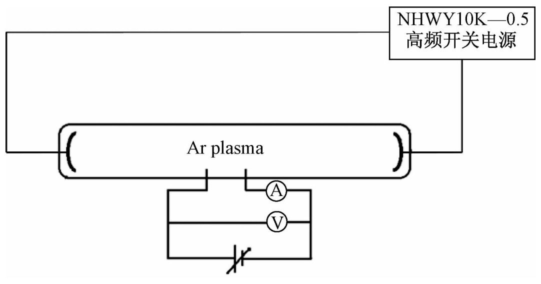
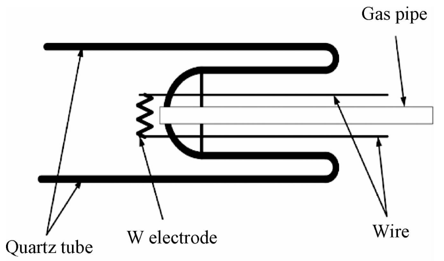


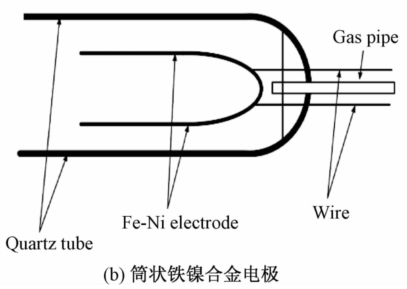
图 2　双探针等离子体测量原理图

Fig. 2　The schematic diagram of double Langmuir probes

电极是等离子体腔室的重要组成部分，要想制备出高密度的等离子体，电极必须能够承受较大的电流（≥100 mA）。传统的封闭式等离子体多以铁镍合金为电极，但是铁镍合金电子发射性能和耐离子轰击性较差，所以，当施加电流较大时，等离子体腔室会产生大量的热，等离子体密度较低，且极易造成电极和腔室的损坏。以 NHWY10K-0.5 高频开关电源为工作电源，以高纯氩气（体积分数为 99.999%）为工作气体，在不同电流下，对比了筒状铁镍合金电极（Fe-Ni electrode）和钨丝电极（W electrode）下的等离子体密度。图 3 为两种电极的剖面图。



(a) 钨电极



(b) 筒状铁镍合金电极

图 3　等离子体腔室电极剖面图

Fig. 3　The profile map of two kind of electrode

筒状铁镍合金电极是将铁镍合金弯成直筒状，电极内壁涂覆电子粉，并与金属导线焊接在一起，嵌于玻璃管内，金属导线与玻璃的交接处，需使用杜美丝，以保证等离子体腔室的密闭性和稳定性，对于玻璃管封闭式等离子体腔室，输气管同样是玻璃材质，用于向等离子体腔室内输入工作气体氩气，输气完毕，采用高温熔融的方法将输气管道封闭。钨丝电极结构与筒状铁镍合金电极类似，将铁镍合金部分换成钨丝，并在钨丝表面涂覆电子粉。

3　实验结果及分析

两种电极下等离子体密度（density）随管内气体压强（pressure）以及电流的变化关系如图 4 所示，其中图 4（a）~图 4（d）代表了不同的放电电流，分别为 50 mA、100 mA、150 mA、200 mA。首先，从管内压强的角度来看，当气压较低时，等离子体密度随着管内气体压强的增加而增加，当管内气体压强增加到一定程度时，等离子体密度随着气压的增大而缓慢减小，在 66 Pa 气压下取得最大值[14]。根据汤森放电理论，放电空间带电粒子的增殖，由三种过程形成，即 α 过程、β 过程、γ 过程[15]。其中，α 过程指电子向阳极方向运动，与气体粒子频繁碰撞，电离产生大量电子和正离子；β 过程指正离子向阴极方向运动，与气体粒子频繁碰撞，也产生一定数量的电子和正离子；γ 过程指正离子、亚稳态原子、光子等碰撞阴极，使其发射二次电子。从电极的角度来看，钨丝电极的等离子体密度明显比筒状铁镍合金电极高，这是因为，首先，钨丝电子发射方式为热电子发射，电子发射效率高，α 过程进行得更加充分；其次，钨丝的耐离子轰击性强，在进行 γ 过程时，钨丝会产生更多的二次电子，但对于铁镍合金，由于其耐离子轰击性较差，离子的轰击会造成电极表面的损坏，并且能量多以热能的形式散发出来，不能有效地发射二次电子；最后，钨丝的熔点比铁镍合金的高，并且电阻率小，相同的电流下，钨丝产生的热量更低，钨丝电极耦合进等离子体腔室的能量更高。从图 4（d）可以看到，筒状铁镍合金电极在 200 mA 电流下的等离子体密度出现了异常，既没有随管内气体压强的变化而变化，也没有随电流的增大而增大，这是因为，当铁镍合金电极的电流加到 200 mA 时，电极便因不能承受而损坏。从管内气压的角度看，在气压较低时，从电极发射出来的电子与等离子体腔室内的其他离子碰撞频率较低，主要进行 α 过程，随着管内气体压强的增加，放电空间带电粒子进行雪崩式增殖，因此等离子体密度增加，但是当管内气体压强增加到一定程度时，电子与中性原子的碰撞频率增加，电子的平均自由程减小，电子的能量降低，使得电离程度减小，因此等离子体密度随之降低。从电流的角度来看，等离子体密度随电流的增大而增大，当电流增大时，电极发射的电子随之增加，α 过程逐渐强烈，同时 β 过程和 γ 过程也逐渐增强[16]，因此，参与电离的有效粒子数目增加，等离子体密度随着电流的增大而增大。

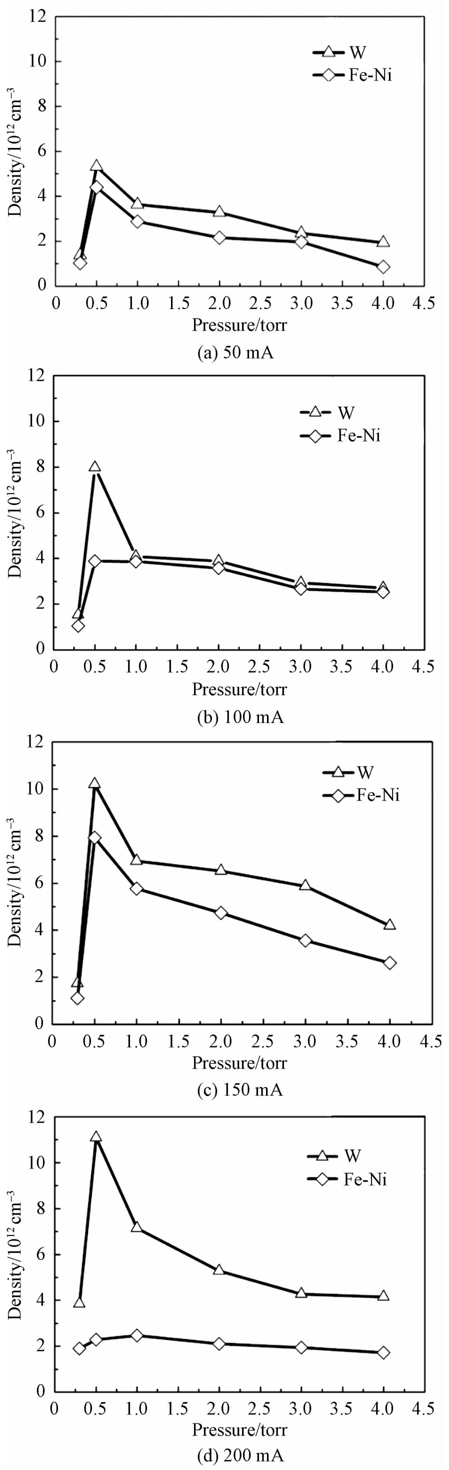


图4 不同电流下等离子体密度随管内气体压强的变化关系

Fig. 4 The relationship between the density of plasma and pressure at different current

在实验中测得低压封闭式等离子体腔室的伏安(V-A)特性曲线如图5所示。参考图1典型Townsend直流放电 V-A 特性曲线,可以看出随着电流由小增大,经过了正常辉光放电和异常辉光放电区以后,进入了一个弧光放电之前的高密度等离子体放电过渡区状态。随着电流增大,放电电压随之降低,等离子体腔室的放电状态始终可以保持稳定[17]。仔细观察认为,低压封闭式等离子体腔室内形成了一种等离子体状态,处于电弧放电之前的等离子体状态阶段,等离子体密度达不到电弧等离子体的密度,但是,低压封闭式等离子体腔室的等离子体密度可以维持在处于接近电弧等离子体的较高密度状态。

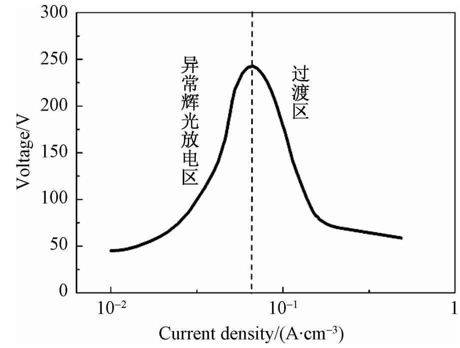


图5 实测等离子体腔室V-A特性

Fig. 5 The experimental V-A curves of plasma tube

为了观察大电流下电极的变化,利用扫描电子显微镜观察了筒状铁镍合金电极和钨丝电极在200 mA电流放电前后的形貌特征。图6为两种电极200 mA放电前后的扫描电镜图。

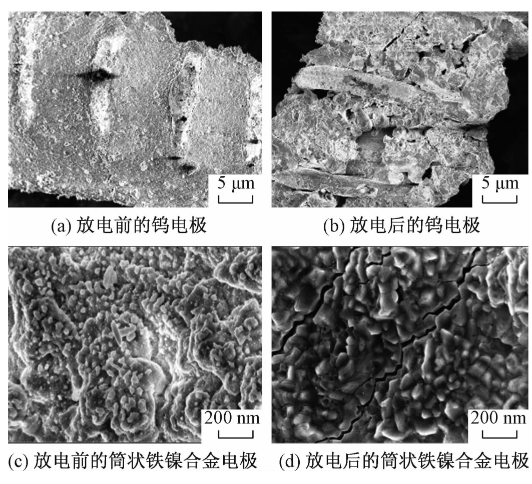


图6 两种电极200 mA放电前后的扫描电镜图

Fig. 6 SEM of two kinds of electrode before and after discharge in 200 mA

图6(a)所示为钨丝电极放电前的形貌,可以看到电子粉涂覆均匀,钨电极表面缺陷很少,图6(b)所示为钨丝电极放电后的形貌,可以看到,电子粉有轻微的结块现象,并且部分钨丝裸露在外面,这是因为在大电流下,电子粉从钨丝表面脱落的缘故,但是电极的整体并没有发生太大的变化,这也说明钨丝电极可以承受200 mA的电流。图6(c)所示为筒状铁镍合金电极放电前的形貌特征,可以看到放电前,合金表面有颗粒状电子粉且涂覆均匀,但在放电之后,如

图 6(d)所示，电子粉板结成块，可以明显看出电极表面出现裂痕，正是由于电极的破坏，使得铁镍合金电极的等离子体密度出现了如图 4(d)的变化趋势。

4　结论

由以上实验结果可以看出，在低气压封闭式等离子体腔室中，等离子体密度和管内气体压强、电流有关，并且与放电电极有关，以纯金属热阴极材料钨为电极，工作电流为 200 mA，管内气压为 66 Pa 的条件下，可将封闭式等离子体密度提高至 $1.1\times10^{13}\ \mathrm{cm}^{-3}$。以纯金属热阴极材料钨为电极，等离子体密度随着气体压强的增大，先增大后减小，在 0.5 torr 附近取得最大值；从电流的角度看，在电极可以承受的电流范围内，等离子体密度随着电流的增大而增大。在实际应用中，可以通过合理地调控钨丝电极等离子体腔室的气体压强和电流，来获得高密度的低气压封闭式等离子体，可以使低压封闭式等离子体腔室的等离子体维持在处于接近电弧等离子体的较高密度状态。

参　考　文　献

1　张　骞，周　莹，张　钊，等. 表面等离子体光催化材料. 化学进展，2013；(12)：2020—2027
Zhang Qian, Zhou Ying, Zhang Zhao, *et al*. Plasmonic photocatalyst. Progress in Chemistry, 2013；(12)：2020—2027

2　张呈旭. 低温等离子体技术制备直接醇类燃料电池一体化电极的研究. 安徽：中国科学技术大学，2012，9—16
Zhang Chengxu. The reparation of integrated electrode for direct alcohol fuel cell by plasma technique. Anhui：University of Science and Technology of China, 2012, 9—16

3　李兴文，魏文赋，吴　坚，等. 激光诱导等离子体光学诊断方法研究综述. 高电压技术，2015；41(6)：1788—1797
Li Xingwen, Wei Wenfu, Wu Jian, *et al*. Review of optical diagnosis methods for the laser produced plasmas. High Voltage Engineering, 2015；41(6)：1788—1797

4　朱　斌，吴玉迟，董克攻，等. 超短超强激光在稀薄等离子体中的自聚焦传输. 强激光与粒子束，2010；22(12)：2911—2914
Zhu Bin, Wu Yuchi, Dong Kegong, *et al*. Self-focusing propagation of ultra-short ultra-intense laser in under-dense plasmas. High Power Laser and Particle Beams, 2010；22(12)：2911—2914

5　刘　洋，苏言杰，李炳辰，等. 管状封闭式等离子体发生器隐身性能分析. 重庆邮电大学学报(自然科学版)，2016；28(4)：481—486
Liu Yang, Su Yanjie, Li Bingchen, *et al*. Analysis of tubular closed plasma generator' s stealth performance. Journal of Chongqing University of Posts and Telecommunications (Natural Science Edition), 2016；28(4)：481—486

6　金　锋，焉　迪，王志斌，等. 大气压射频辉光放电阻抗特性的实验研究. 高压电技术，2013；39(7)：1596—1601
Jin Feng, Yan Di, Wang Zhibin, *et al*. Experimental study on the impedance of atmospheric radio-frequency glow discharges. High Voltage Engineering, 2013；39(7)：1596—1601

7　董丽芳，刘为远，杨玉杰，等. 大气压等离子体炬电子密度的光谱诊断. 物理学报，2011；60(4)：365—370
Dong Lifang, Liu Weiyuan, Yang Yujie, *et al*. Spectral diagnostics of electron density of plasma torch at atmospheric pressure. Acta Phys Sin, 2011；60(4)：365—370

8　李霞芬. 激光烧蚀脉冲放电等离子体电子数密度和温度特性研究. 杭州：浙江师范大学，2013：21—26
Li Xiafen. Electron temperature and electron number density in a laser ablation fast pulse discharge plasma. Hangzhou：Zhejiang Normal University, 2013：21—26

9　叶　超，宁兆元，江美福，等. 低气压低温等离子体诊断原理与技术. 北京：科学出版社，2010
Ye Chao, Ning Zhaoyuan, Jiang Meifu, *et al*. Principle and Technology of Low-pressure Low Temperature Plasma Diagnosis. Beijing：Science Press, 2010

10　俞　哲，张芝涛，赵建森. Langmuir 双探针诊断 Ne 辉光放电管电子密度. 物理实验，2010；30(1)：1—5
Yu Zhe, Zhang Zhitao, Zhao Jiansen. Langmuir double-probe diagnostics of electronic density in Ne glow discharge plasma. Physics Experimentation, 2010；30(1)：1—5

11　Kim D W, You S J, Na B K, *et al*. Plasma density measurement with ring-type cutoff probe. Thin Solid Films, 2013；547(47)：280—284

12　Bryant P, Dyson A, Allen J E. Langmuir probe measurements of weakly collisional electronegative RF discharge plasmas. Journal of Physics D Applied Physics, 2000；34(1)：95—104

13　杨　安，聂秋月，王志斌，等. 大气压氩等离子体射流特性. 高电压技术，2012；38(7)：1763—1769
Yang An, Nie Qiuyue, Wang Zhibin, *et al*. Characteristics of the atmospheric pressure argon plasma jet. High Voltage Engineering, 2012；38(7)：1763—1769

14　武占成，张希军，胡有志. 气体放电. 北京：国防工业出版社，2012：62—65
Wu Zhancheng, Zhang Xijun, Hu Youzhi. Gas discharge. Beijing：National Defence Industry Press, 2012：21—26

15　方　志，刘　源，蔡玲玲. 大气压氩等离子体射流的放电特性. 高电压技术，2012；38(7)：1613—1622
Fang Zhi, Liu Yuan, Cai Lingling. Discharge characteristics of atmosphere pressure plasma jet in Ar. High Voltage Engineering, 2012；38(7)：1613—1622

16　唐中华，洪布双，徐东升，等. 放电参量对电负性容性耦合等离子体电子密度的影响. 真空科学与技术学报，2014；34(1)：84—90
Tang Zhonghua, Hong Bushuang, Xu Dongsheng, *et al*. Characterization of plasma electron density with microwave resonator probe. Chinese Journal of Vacuum Science and Technology, 2014；34(1)：84—90

17　杨亚奇，李卫国，夏　喻，等. 低气压对棒-板间隙工频放电特性影响研究. 科学技术与工程，2017；17(16)：220—224
Yang Yaqi, Li Weiguo, Xia Yu, *et al*. Research on effects of low pressure condition on AC discharge characteristics of rod-plane gap. Science Technology and Engineering, 2017, 17(16)：220—224

Study on Emission Performance of Low Voltage and High Density Plasma Electrode

LI Dao-ru, LI Bing-chen, ZHANG Sheng-jun, ZHANG Ya-fei *

(Key Laboratory for Thin Film and Microfabrication of Ministry of Education, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 201100, China)

[**Abstract**] A glass tube closed plasma chamber is designed. The high-frequency switching power supply is used as the working power source and the high purity argon gas (99.999%) is used as the working gas. The relationship between plasma density and current is deduced based on the theory of Townsend discharge, and the theory is validated by the experimental results, and tested the different pressure, different electrodes under the closed plasma density. The experimental results show that the closed plasma density can be increased to 1.1×10^{13} cm^{-3} under the condition that the pure hot metal cathode material is used as the electrode, the working current is 200 mA and the tube pressure is 66 Pa(0.5 torr). The relationship between the density of the closed plasma and the current, the gas pressure in the chamber and the chamber electrode is analyzed, and a method of obtaining the high density plasma close to the arc discharge in the closed cavity is explored.

[**Key words**] plasma density double Langmuir probes low pressure enclosed plasma electron emission