锯齿状波形激励的低压电容耦合等离子体放电中的通量与能量不对称性–一项谐波研究

Sarveshwar Sharma[1,2], Nishant Sirse[3] 和 Miles M Turner[4]

[1]等离子体研究所，甘地讷格尔-382428，印度[2]霍米·巴巴国家研究所，阿努沙克蒂纳加尔，孟买-400094，印度[3]科学与研究学院及科学与应用研究中心，IPS 学院，印多尔-452012，印度[4]物理科学学院和国家等离子体科学与技术中心，都柏林城市大学，都柏林 9，爱尔兰

电子邮件：nishantsirse@ipsacademy.org

摘要

在低压电容耦合等离子体（CCP）放电中控制等离子体不对称性，对许多等离子体加

I. 引言

低压电容耦合等离子体（电容耦合等离子体）放电广泛应用于射频（射频）等离子体加工，例如薄膜沉积、等离子体刻蚀和等离子体清洗 [1-2]。为了优化等离子体工艺，人们十分希望能够控制离子能量和离子通量等关键参数。在单频运行的 电容耦合等离子体 放电中，这通常很难实现，因为沉积到电子和离子上的功率 会随 射频 波形的电流/电压 幅值而变化 [3-17]。 电容耦合等离子体 采用双频（双频）波形运行，可在一定程度上独立控制离子能量和通量 [18-29]。在此类放电中，低频电压幅值用于通过鞘层控制离子能量，高频电压幅值则用于控制离子通量。然而，研究发现多种频率之间存在耦合，这限制了双频电容耦合等离子体 [29-33]的适用性。

人们提出了另一种基于不对称效应的新颖概念，以控制这些关键参数。最初，这一方法是通过改变双频波形之间的[42-45]相位角实现的。利用这种技术，即使在几何对称的直流电容耦合等离子体电容耦合等离子体放电中，也能产生自偏压。在这项工作中，首次在几何对称的等离子体串联共振电容耦合等离子体电容耦合等离子体放电中观测到了等离子体串联共振[44]。 实验验证了，通过改变双频波形的两个频率之间的相位角，可以在保持离子通量恒定的同时（几乎线性地）控制平均离子能量[45]。采用类似的方法，Donko等人的模拟结果预测，可以控制电极上的离子能量分布函数（离子能量分布函数）的形状[44]。据报道，通过改变相位角，可以调控离子能量分布函数的高阶矩[46]。一项关于可变驱动频率的研究表明，在较低驱动频率下，对平均离子能量的控制能力会显著减弱[47]。研究人员将这一效应归因于电子加热模式的变化以及带电粒子动力学的增强。改变电极材料以调节二次电子发射，是在几何对称的电容耦合等离子体放电[48]中产生不对称性的另一种方法。调节驱动频率和放电电压，则是独立控制离子通量与离子能量的另一种途径。

过去十年中，采用非正弦电压波形已成为控制电容耦合等离子体放电[49-59]中的不对称性以及离子通量/离子能量的一种颇具前景的方法。这类波形被称为“定制波形”，通过在正弦波形中加入高次谐波产生。定制波形产生的不对称性大致分为两类：1）幅度不对称性 [60] 和 2）时间不对称性 [52-53, 61]。幅度不对称性采用最小和最大电压/电流变化范围不同的波形。在时间不对称性中，采用不同的斜率，同时保持负、正波形幅度相近。在时间不对称波形中引入斜率不对称性，例如锯齿状波形，以产生不对称的等离子体响应。Bruneau 等人利用*PIC* 模拟表明，斜率不对称波形会在供电电极和接地电极附近引起不同的鞘层响应[52]。其中一个鞘层会触发更强的加热和更高的电离率，从而产生较大的离子通量不对称性。根据不同的上升和下降斜率，一个电极会接收到更大的离子通量，但离子能量较低。进一步研究表明，在较低压力和较高驱动频率下，离子通量不对称性会消失 [53]。一项系统性的

对比电正性（氩）与负电性（CF_4）等离子体显示出相反的响应，即，对于电正性等离子体，电离极大值从较快鞘层扩展的电极转移到对于负电性等离子体而言鞘层收缩较快的电极 [62]。在由电流驱动的锯齿状波形激发的低压电容耦合等离子体放电中，观察到了高频鞘层调制和高次谐波 [57]。通过改变锯齿状波形的电流密度振幅和驱动频率对离子能量分布函数的研究表明，在较低电流密度振幅和较高驱动频率下，会出现较窄的离子能量分布函数 [59]。

另一种控制电容耦合等离子体放电中的通量和能量的方法是使用外加磁场。近期，在弱均匀外加磁场作用下的低压甚高频（VHF）电容耦合等离子体放电中发现了一种新的工作模式。研究表明，即使外加磁场很弱（~ 10 G），也能获得高等离子体密度，进而实现高离子通量，同时还能优化离子能量 [34-38]。文献还报道，在单频 CCP 中利用磁场不对称性，可以独立控制离子通量和离子能量 [39-40]。随后，Sharma 等人证明，在低压单频电容耦合等离子体 [41]中施加均匀横向磁场，可以增强离子通量并有效控制离子能量。

本研究聚焦于锯齿状电流波形激励的对称 CCP 放电中的时间不对称性。我们扩展了此前的研究，探讨谐波数（N）对低压几何对称 CCP 放电中的等离子体密度、电离、电子加热、离子通量和离子能量不对称性的影响 [57,59]。此前一项通过改变谐波数（最高至 5 [52] ）对碰撞性 CCP 放电进行的模拟研究表明，随着 N 增加，电离、密度和通量不对称性均会增强。我们沿用先前研究的方法，系统考察了 N 对无碰撞 CCP 放电中等离子体不对称性的影响。CCP 放电的低压工作条件通常涉及许多等离子体加工应用。除了研究等离子体不对称性外，我们还系统考察了带电电极和接地电极上的离子能量分布函数（谐波数最高为 12）；此前尚无相关报道。本文还讨论了带电电极上直流自偏压的变化，以及获得窄离子能量分布函数的条件。

本文的组织结构如下：第二节介绍模拟方案和参数的详细内容。第三节讨论模拟结果。第四节总结并给出本文的结论。

II. 模拟方案和参数

在本研究中，我们采用了粒子网格法（*PIC*）模拟方法，并结合蒙特卡罗碰撞方案[63-64]。模拟在一维空间和三维速度空间（1D3V）中进行，使用了一种经过充分测试和基准验证的代码[72] ，该代码已广泛用于文献中的电容放电研究[9-10,13-15,65-71]。该代码能够处理电流驱动模式和电压驱动模式，我们在所有模拟组中均采用了前者。选择锯齿波电流波形作为等离子体激发，其数学表达式[52] 由方程给出

$$J_{RF}(t) = \pm j_0 \sum_{k=1}^{N} \frac{1}{k} \sin(k\omega_{RF} t) \quad \text{---------- (1)}$$

在方程（1）中，j_0 是电流密度振幅，ω_{RF} 是基波角频率。方程（1）中的正号和负号分别对应“向下锯齿波”和“向上锯齿波”波形。N 是锯齿波中包含的谐波数，在当前模拟中其取值范围为 2–12。图1显示了 N 取几个不同值时的电流密度分布（1（正弦波）、2、6 和 12）。如图1所示，在正弦波形情况下，即 N = 1时，电流分布在时间上是对称的。随着谐波数增加，上升时间（从 0 到 50 A/m^2）从 12.35 ns 降至 2.79 ns，对应于 N = 2 至 N = 12 。电流波形施加在带电电极上（即 L = 0 cm 处），而接地电极位于 L = 6 cm 处。模拟中未考虑外部电容器。带电电极处产生的直流自偏压源于时间不对称性；这种不对称性基于带电电极和接地电极处的电荷不平衡，以自洽方式从模拟中产生。

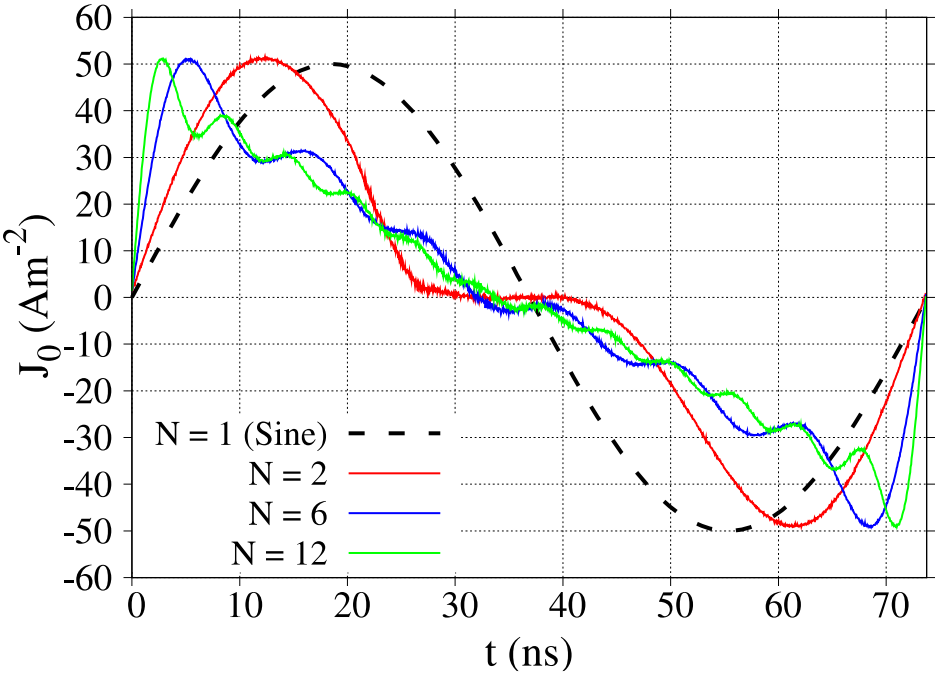

图1 带电电极上施加的电流密度分布，适用于 N 的几个不同取值，即 N = 1、2、6 和 12。

模拟针对电正性氩等离子体进行，其中气体以 300 K 的温度均匀分布在放电区域内。气体压力保持恒定，为 5 mTorr。此处考虑了所有主要反应类型，包括离子—中性粒子反应（弹性碰撞、非弹性碰撞和电荷交换）以及电子—中性粒子反应（弹性碰撞、非弹性碰撞和电离）。本模拟还考虑了两种亚稳态 Ar^* 和 Ar^{**}的形成。这两种状态分别是氩原子 11.6 电子伏特（Ar^* - 3p5 4s）和 13.1 电子伏特（Ar^{**} - 3p5 处的集总激发态

4p）。本模拟还考虑了激发态布居和退布居的其他过程，例如退激发、超弹性碰撞、亚稳态汇聚和多步电离。所有反应类型的碰撞截面均取自经过充分验证的资料来源 [15,67,73]。此处的电极被视为完全吸收电极，且不考虑电子或离子诱发的二次电子发射（SEE）。由于工作压力较低，且相应的放电电压也较低，因此二次电子发射不会对等离子体动力学产生显著影响；对于本模拟而言，上述条件是成立的 [74]。

为获得稳态解，模拟进行了 5000 多个射频周期。通过选择适当的网格尺寸（Δx）和时间步长（Δt），分别解析德拜长度（λ_D）和电子等离子体频率（ω_{pe}），从而满足粒子网格模拟的稳定性和精度准则 [63]。放电间隙划分为 512 个网格，每个网格包含 100 个粒子。每个射频周期包含 6400 个时间步长。达到稳态解后，对 100 多个射频周期的结果进行时间平均模拟。

III. 结果与讨论

图 2（a）展示了放电中时间平均电子和离子密度在 N 的 3 个不同取值（2、6 和 12）下的空间分布。同时还给出了正弦密度分布，以便进行比较。在当前模拟中，电流密度振幅固定为 50 A/m^2，放电间隙为 6 cm。可以看出，对于正弦情形，密度分布几乎呈对称性，在放电中心达到最大值 ~ 8.0×10^{15} m^{-3} 。电子和离子密度均向电极方向下降。随着 N 增大，密度分布变得不对称。可以观察到，体等离子体长度随 N 增大而增加，并且带电电极附近的鞘层宽度相较于接地电极附近的鞘层以快得多的速率减小。图 2（b）展示了 N 取 2–12 的不同值时，带电电极与接地电极处鞘层宽度之比的系统性变化。图中绘制的鞘层宽度按如下方式计算：电子鞘层边缘位于距电极最远处，且准中性条件在此处失效。如图 2（b）所示，带电电极与接地电极鞘层宽度之比随 N 增大几乎线性地从 0.75 降至 0.55。该比值小于 1，是因为接地电极鞘层相比带电电极鞘层更宽。对于 N = 2–12 的给定范围，模拟结果预测鞘层比总计下降 ~30 %。这些结果表明，放电中的不对称性（无论是通量不对称性还是能量不对称性，后文将对此进行讨论）会随着谐波数的增加而增强。

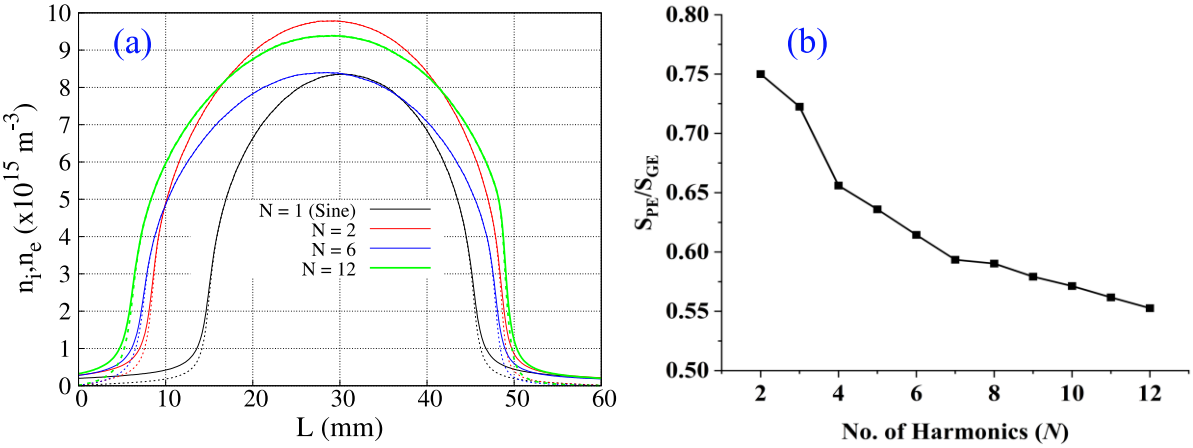

图 2. (a) 电子（虚线）和离子密度（实线）的时间平均空间分布，以及 (b) 不同谐波（N）下接地电极与带电电极的鞘层宽度之比。

我们进一步研究了 N 对等离子体密度以及流向带电电极和接地电极的离子通量的影响。图 3（a）展示了放电中的平均峰值等离子体密度，以及对于锯齿波形中包含的 N 的不同取值，带电电极和接地电极处的离子通量。如图所示，当 N = 2 时，等离子体密度最高（~ 9.78×10^{15} m^{-3}）。对于正弦情形，平均峰值等离子体密度甚至更低，为 ~ $8.36\times10^{15}m^{-3}$，因为电极附近的鞘层更宽，从而降低了体电离，因此等离子体密度下降。随着谐波数增加，平均峰值等离子体密度逐渐降低，在 N = 6 的临界值处达到最小值 ~ 8.4×10^{15} m^{-3}，随后随着谐波数进一步增加而升高。对空间平均等离子体密度随 N 的变化进行研究发现，其变化趋势类似，即从 N = 2 时的 ~5.58×10^{15} m^{-3} 先降低至 N = 6 时的 ~ 4.82×10^{15} m^{-3}，随后随着 N 进一步增加而升高，在 N = 12 时达到最大值 ~ 5.78×10^{15} m^{-3}。等离子体加工中的一个关键参数是流向电极的离子通量，它与等离子体密度密切相关。模拟结果预测，带电电极和接地电极处离子通量随 N 的变化（图 3（a））与等离子体密度的变化相似。如图 3（a）所示，由于鞘层宽度更大，接地电极处的离子通量始终高于带电电极处的离子通量。等离子体密度和离子通量呈现相似趋势，是因为离子通量（$\Gamma_i \propto nu$，其中 n 和 u 分别为鞘层边缘处的等离子体密度和离子速度，离子速度取决于电子温度）与等离子体密度成正比。密度和通量表现出相似行为，这表明电子温度随 N 的变化并不显著，或者在当前条件下其对离子通量的影响并不明显。关于通量不对称性，图 3（b）显示了带电电极处离子通量与接地电极处离子通量之比。模拟结果表明，对于 N 从 2 到 12 的所有取值，该通量比几乎保持不变，变化幅度在 1% 以内。这些结果表明，谐波数会由于鞘层宽度的不对称性而影响到达各个电极的离子通量，但通量不对称性不会随 N 发生变化。这些结果与先前对电压驱动电容耦合等离子体的研究结果一致，即在低气体压力 [53] 下运行时，通量不对称性会消失。

然而，离子通量随 N 的变化是非线性的，即先下降，在 N 达到某一临界值时降至最小值，随后随着 N 进一步增大而上升。从加工角度来看，更高的离子通量对于提高加工速率至关重要，因此，根据通量需求，较低和较高的 N 值都适用于此目的。不过，无损伤加工也需要较低的离子能量。本文稍后将对此进行讨论。

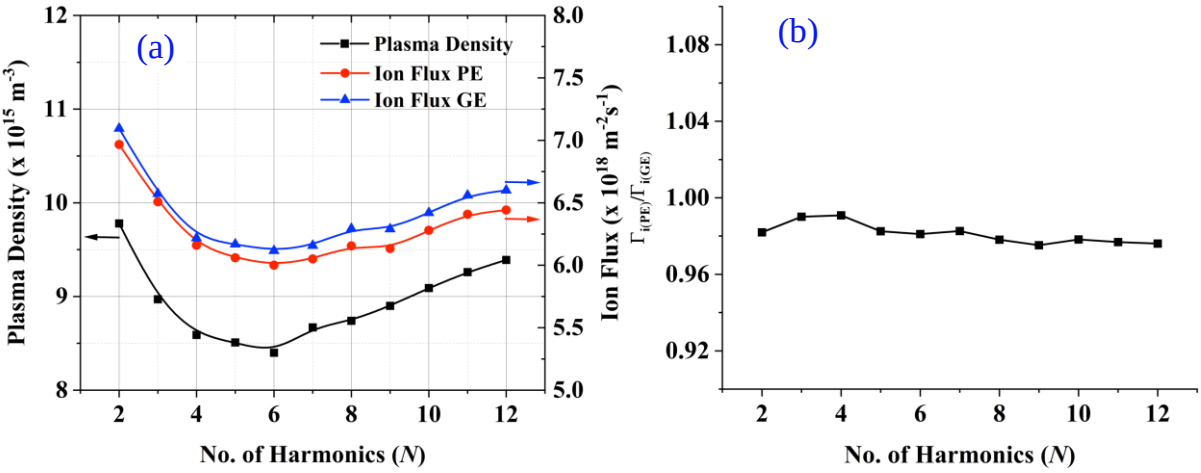

图3. (a) 带电电极和接地电极处的平均峰值等离子体密度和离子通量；(b) 不同谐波数（即 N）下带电电极与接地电极处离子通量之比。

上述结果表明，锯齿波形中包含的谐波数对放电中的等离子体密度具有显著影响，因此，供电电极和接地电极上的离子通量也会相应变化。为了理解 N 对等离子体密度/离子通量的影响，我们研究了放电中的电子加热和电离碰撞率。图4显示了不同 N 值下放电中的总平均电子加热和电离碰撞率。可以观察到，总平均电子加热与图3 (a)所示的峰值电子密度呈现相同的变化趋势。在 N=6处观察到总电子加热的最小值，这与电子密度的最小值相一致（图3 (a)）。在 N 的临界值两侧，总电子加热均增加。图4所示的电离碰撞率随 N 的变化趋势与电子加热相同。这表明，电子加热产生的能量主要消耗于通过电离过程生成电子-离子对，因此等离子体密度（图3 (a)）也随之变化。

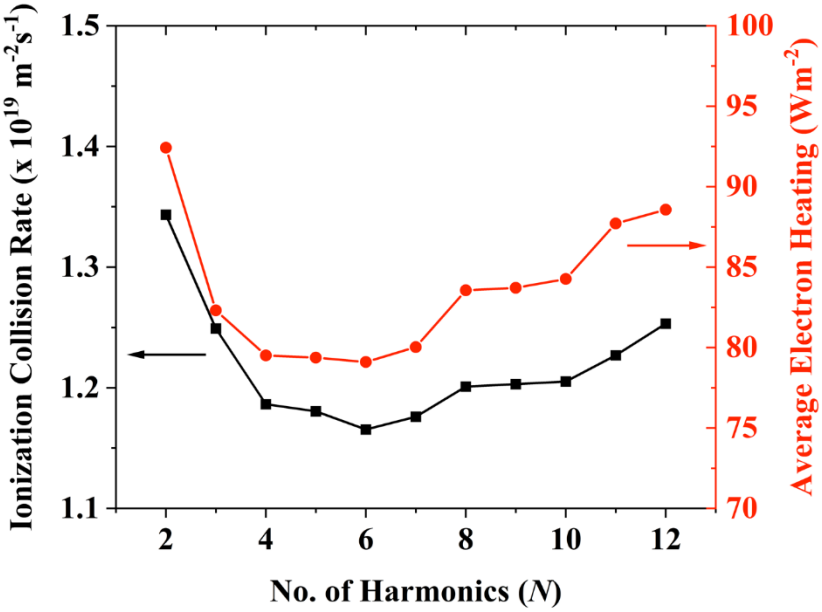

图4. 不同 N 值下放电中的总电离碰撞率和电子加热。

为了进行详细分析，我们进一步研究了放电中的电子加热分布。图5显示了放电中时间平均电子加热（<J.E>）的分布。在图5 (a)中，分布曲线绘制至 N 的临界值 = 6；而在超过临界 N 后，分布曲线绘制于图5 (b)中。如图5所示，由于压力较低，最大加热出现在鞘层边缘附近，而体区加热几乎可以忽略。在 N = 1 的情况下，即正弦情形下，时间平均电子加热呈对称分布，其幅值为 ~100 W/m^2。然而，正弦情形下的体等离子体长度较小，因此电离概率较低，等离子体密度也低于锯齿状波形。随着 N 增大，接地电极和带电电极处的电子加热呈现出明显的不对称性。当 N 不超过临界值（≤6）时，电极附近的电子加热峰值逐渐降低，而鞘层区域内的加热区域基本保持不变。这证实了总加热量下降，因此等离子体密度从 N = 2 降至 N = 6。此外，在鞘层边缘附近未观察到显著的电子冷却。当 N 超过 = 6后，电子加热峰值略微下降或保持不变；然而，接地电极附近鞘层内的加热区域（总面积）增大（即位于50 mm至60 mm之间），因此总体加热量增加。这里还应注意到，在 N 大于6时，接地电极处鞘层边缘附近（47 mm至49 mm之间）出现了负电子加热（图5 (b)的放大图），即电子冷却。鞘层边缘附近的这种电子冷却会将电子束驱入体等离子体中，这一现象此前已在甚高频容性放电中观察到 [9-10,13-14,70]。负电子加热区域的扩大表明，随着 N 增大，电子束的能量也越来越高。由于低压条件，这些电子束能够深入穿透体等离子体，并通过来自对侧鞘层边缘的高能电子束约束所引起的电离，产生高等离子体密度 [9-10,13-14,70]。

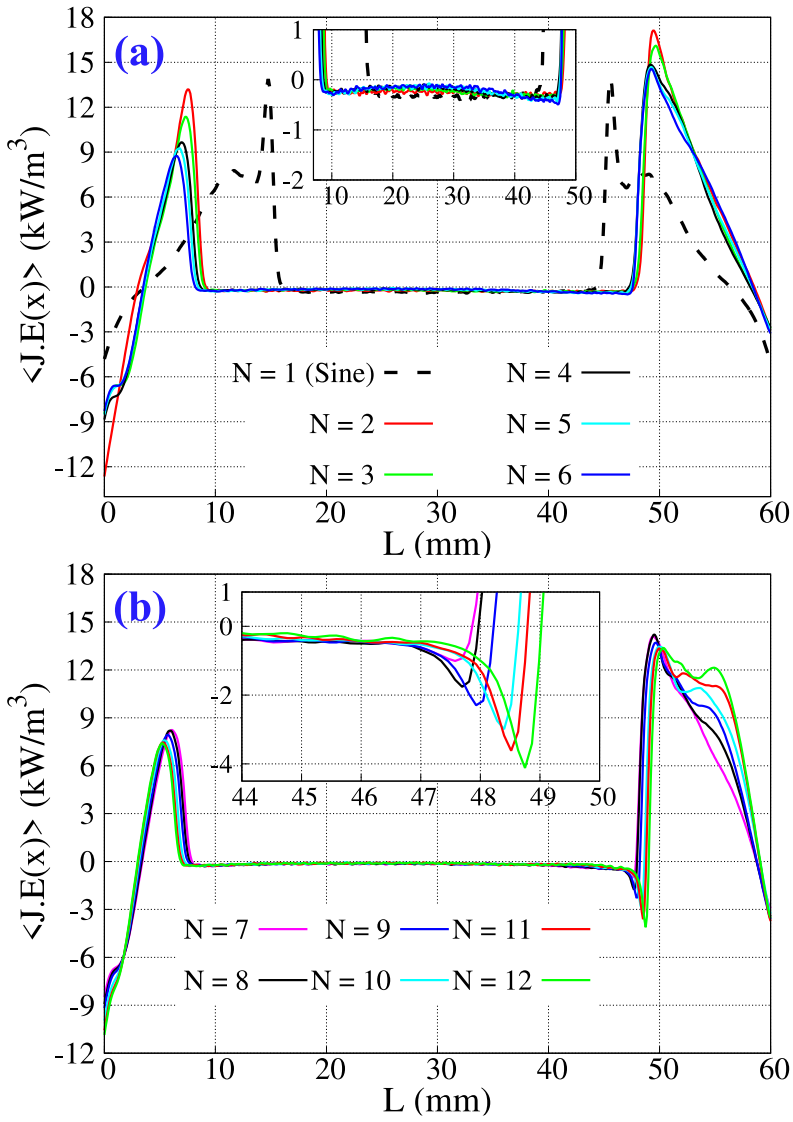

图 5. 放电中时间平均电子加热的空间分布：(a) N = 1-6 个谐波和 (b) N = 7-12 个谐波。

图 6 展示了正弦情形下以及 N 即 N = 2、N = 6 （临界值）和 N=12 （最高值）三种不同取值时，电离碰撞率的时空演化。达到稳态解后，对最后 600 个射频周期内的电离率取平均。如图所示，正弦情形下的电离碰撞几乎对称（图 6(a)），且两侧电极处的最大值均出现在扩展鞘层边缘附近。低压条件下，扩展鞘层边缘附近会产生一束宽阔的电离束，穿透体等离子体并延伸至对侧鞘层边缘。由于对称性，在另一半射频周期内，对侧鞘层边缘也会产生类似的电离束。在两个周期中，电离束均在对置电极鞘层边缘的收缩阶段终止。因此，对于正弦情形，由于高能电子的约束能力较弱，整体等离子体密度较低，两侧电极的鞘层较宽，体等离子体长度较短。对于 N = 2 （图 6(b)），电离碰撞率变得不对称，其最大值出现在接地电极附近，而

与带电电极相比。这一效应归因于时间不对称波形使接地电极附近的鞘层扩展得更快，从而产生更高的电离率。可以看出，带电电极鞘层也会产生较弱的电离碰撞率。这是因为接地电极鞘层产生的高能电子，在与带电电极鞘层相互作用时受到约束。因此，放电中的整体等离子体密度在N = 2时更高。对于N = 6（图 6(c)），较大的鞘层宽度使电离碰撞主要出现在接地电极附近，而带电电极附近的电离碰撞 率几乎可以忽略。此外，与N = 2相比，电离碰撞率峰值更低。因此，N = 6对应的等离子体密度最低。在N = 12 （图 6(d)）下，出现了与N = 6情形相似的效应，但此时在接地电极的扩展鞘层边缘附近观察到多束电离束。这是由于电子与扩展鞘层边缘发生多次相互作用，触发了多束电子。相互作用过程中，瞬时鞘层边缘位置受到高频振荡调制。在以极高频率运行的电容放电中也观察到了类似效应 [9-10,13-14,70]。这些多束电离束使放电中的等离子体密度更高，这一现象出现在N = 12。

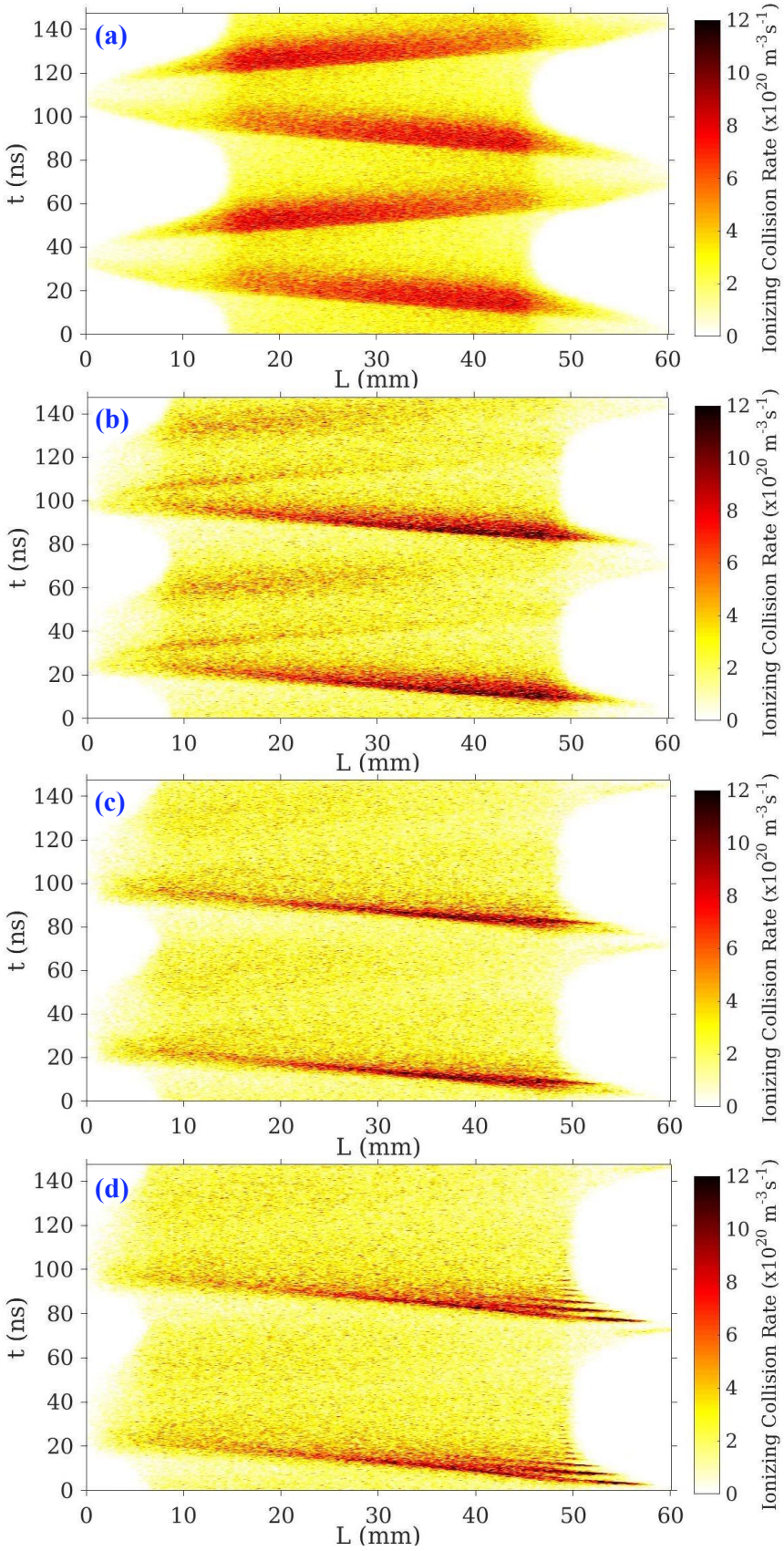

图6. 放电中的时空电离碰撞率：(a) 正弦波，(b) N = 2，(c) N = 6 和 (d) N = 12。

目前，电离碰撞率和离子通量随 N 的变化趋势与较高压力下的电压驱动模拟结果相矛盾 [54]。造成这种差异的原因之一是工作压力。在本次模拟中，工作气体压力较低，扩展鞘层边缘产生的电子束会穿透进入体等离子体。因此，电离过程并不局限于鞘层区域，而是延伸至体等离子体中，这使离子通量呈对称分布。电离碰撞率与电子加热成正比，因此通量随 N 的变化趋势与之相似。当 N 超过临界值（即 N = 6）后，等离子体密度增加，这是由于接地电极附近、扩展鞘层边缘处产生了多个电子束，同时瞬时鞘层边缘位置中存在高次谐波。观察到射频电极与接地电极处的鞘层宽度存在不对称性，这可能会影响到达电极表面的离子能量，下一节将对此进行讨论。

等离子体工艺中最重要的参数之一是电极表面的离子能量分布函数（IEDF）。我们研究了带电电极和接地电极上的离子能量分布函数。图7显示了正弦波形下不同 N 值时带电电极（(a)、(b) 和 (c)）及接地电极（(d)、(e) 和 (f)）上的归一化离子能量分布函数。在图7中，为了清晰展示离子能量分布函数，横轴绘制了不同的能量范围。图 7 (b) 和图7 (e) 展示了截至 N 的临界值（即截至 N=6）的离子能量分布函数；图7 (c) 和图7 (f) 则展示了 N > 6时的离子能量分布函数。图中标出了峰值能量。结果显示，正弦波形下的离子能量分布函数呈双峰形状，能量展宽为 75 电子伏特（ΔE）；N>2 时则低于 50 电子伏特。离子能量分布函数呈双峰形状，是低压力条件所致，在这种条件下，离子穿过射频鞘层时不会发生碰撞。此外，双峰的能量展宽取决于离子穿过射频鞘层的渡越时间（τ_i）与周期（τ_{RF}）[75]的比值。对于正弦情形，使用参考文献 [75] 中定义的解析表达式，计算得到离子渡越时间与射频周期之比为 ~10 。在上述计算中，平均鞘层宽度为 ~14 毫米，平均鞘层电压为 ~600 伏特。因此，离子需要经过许多射频周期才能穿过鞘层，并对平均鞘层电压作出响应。这使得在高频区（$\tau_i/\tau_{RF}>>1$）能量展宽为 ~80 电子伏特，与预测的模拟结果（75 电子伏特，图7 (a) 和 (d)）一致。此外，由于接地电极处的鞘层电压和鞘层宽度更大，其双峰之间的能量间隔大于带电电极处双峰之间的能量间隔。当 N =2时，接地电极与带电电极处的能量间隔之比为 ~1.53；随着 N 增大，放电不对称性增强，该比值在 N =12 时增至 2.05。

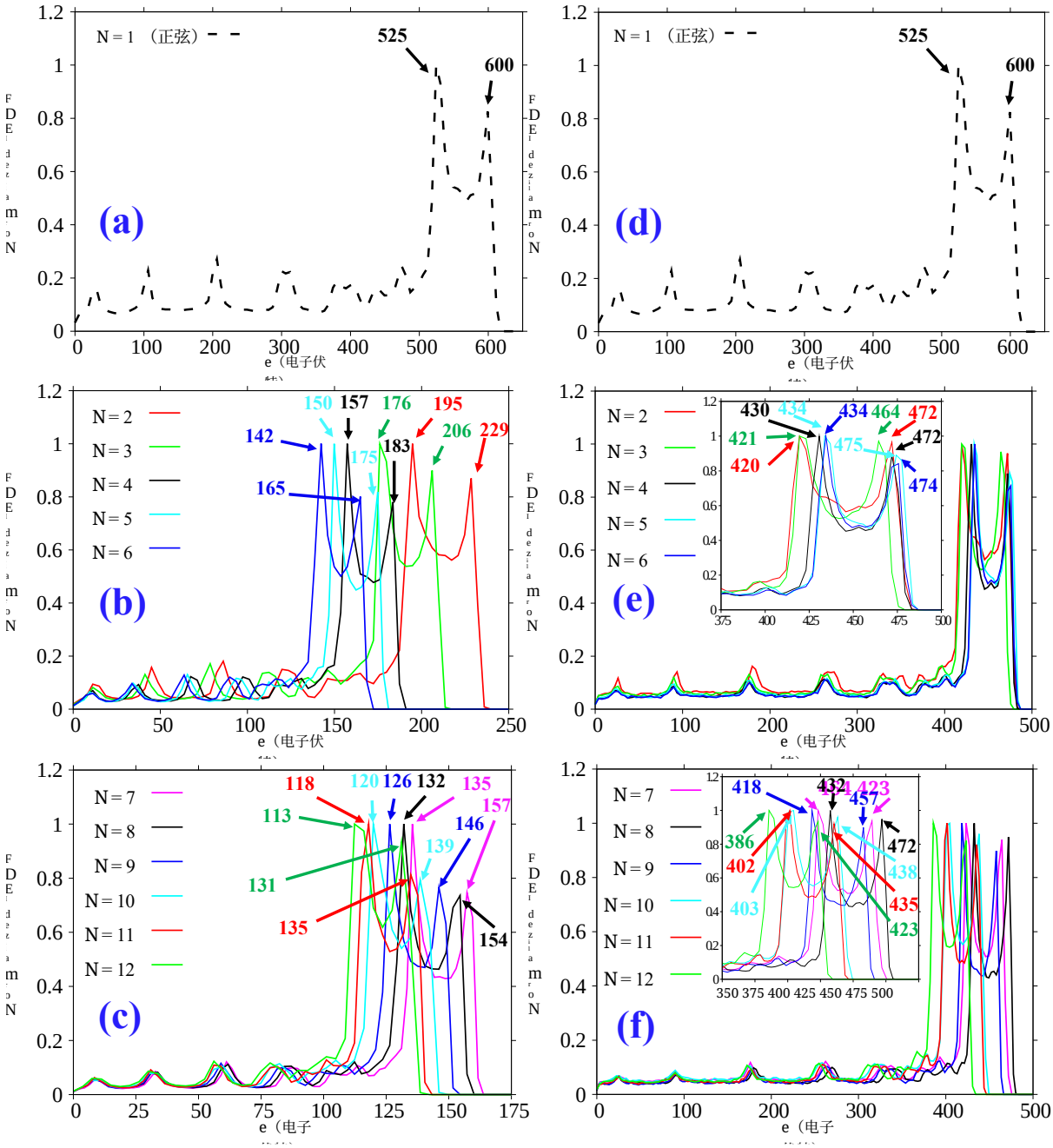

图 7. 正弦波形下驱动电极（(a)、(b) 和 (c)）及接地电极（(d)、(e) 和 (f)）处的归一化离子能量分布函数（IEDF）；其中 (a) 和 (d) 对应正弦波形，不同 N 值分别为 (b) 和 (e) 中的 2–6，以及 (c) 和 (f) 中的 7–12。

关于能量不对称性，结果显示，接地电极处的离子能量高于带电电极处。图8显示了带电电极处平均离子能量和最大离子能量随 N 值变化的规律，以及不同 N 值下带电电极与接地电极处平均离子能量之比。如图8所示，随着 N 值增大，带电电极处的平均离子能量和最大离子能量均降低。这是因为随着谐波数增加，鞘层上的电压降减小。如图8所示（右侧红色 Y 轴），

离子能量不对称性（$< \varepsilon_i >_{PE}/< \varepsilon_i >_{GE}$）随 N 增加而增大。对于当前 N 值范围 2–12，观察到不对称性增加了 ~40 %。这与图 2 (b) 中绘制的鞘层比一致，其中观察到了鞘层宽度的不对称性。因此，对于低压情况，可以得出结论：锯齿状波形的谐波数量变化所导致的不对称性仅出现在离子能量上，而离子通量不对称性（图 3 (b)）不受影响。

电极表面处的离子能量分布函数由等离子体与电极之间的电势差决定。图9展示了对直流自偏压以及双峰能量峰展宽（ΔE）的研究。如图9所示，随着 N 值增大，相对于直流自偏压的等离子体电势逐渐降低。这些数值对应于图8所示到达带电电极的平均离子能量。（$V_p - V_{DC}$）呈下降趋势，这归因于带电电极上直流自偏压的形成；该偏压的变化速率快于等离子体电势，因此等离子体与电极之间的电势差随 N 增大而减小。离子能量降低对许多等离子体工艺至关重要，因此较大的 N 值适用于此目的。除了较低的离子能量外，较大的 N 值也适用于获得展宽较小的离子能量分布。如图9所示，随着 N 值增大，双峰能量峰的能量展宽（ΔE）逐渐减小。在当前选定的范围（N = 2 – 12 ）内，ΔE 从 34 电子伏特降至 17 电子伏特，即能量展宽减少了 50%。ΔE 的减小，一方面是由于驱动波形中的高频成分增加，使离子能量分布函数从双峰形状转变为窄分布，这与甚高频电容耦合等离子体放电中的观察结果一致[10]。如图6 (d)所示，瞬时鞘层边缘位置上的高频成分清晰可见。另一方面，能量间隔（ΔE）与鞘层电压成正比；鞘层电压也随 N 增大而减小，因此ΔE也随之减小。

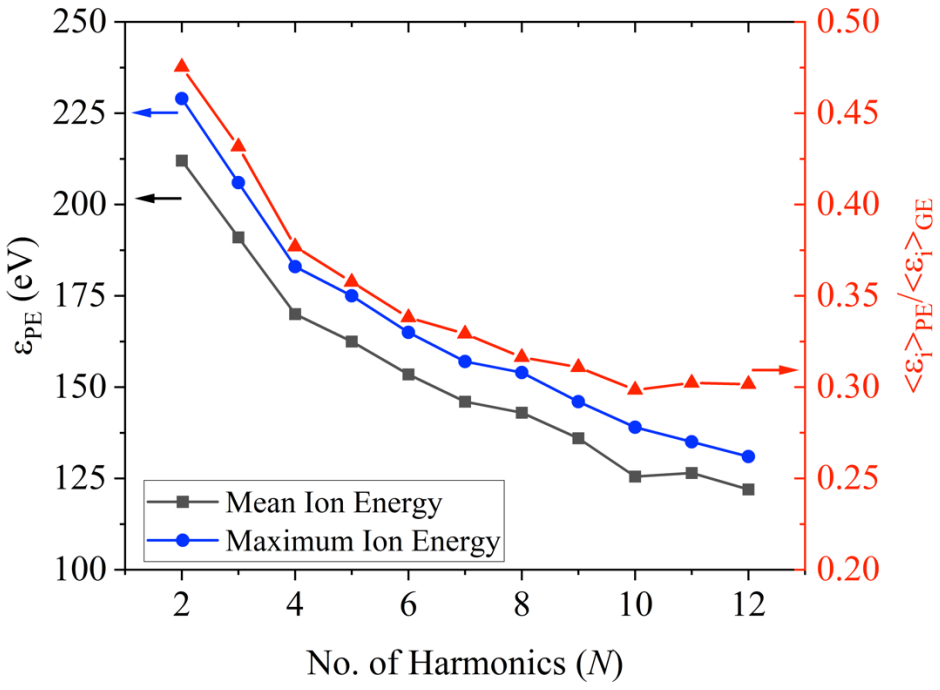

图 8. 不同谐波数 (N) 下带电电极处的平均离子能量（黑线和方块）与最大离子能量（蓝线和圆圈），以及带电电极与接地电极处平均离子能量之比（红线和三角形）。

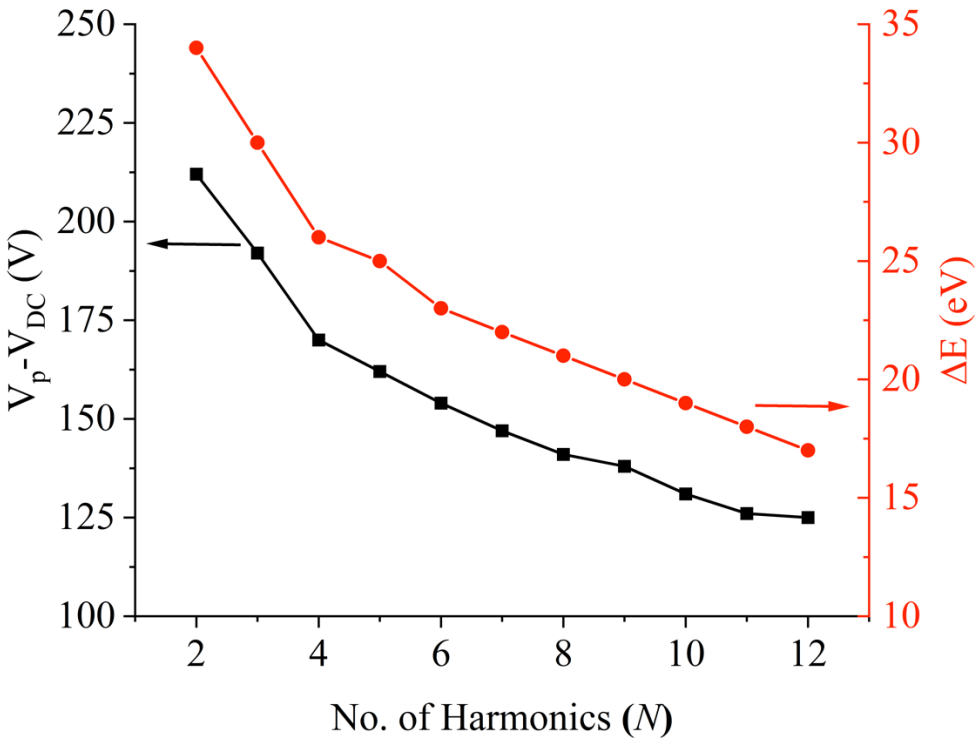

图 9. 不同谐波数（N = 2-12）下，带电电极处相对于直流自偏压的等离子体电势，以及双峰之间的能量间隔（ΔE）。

IV. 总结与结论

在低压 电容耦合等离子体 放电中，我们研究了锯齿状波形所含谐波数对等离子体不对称性、电子鞘层加热以及电极表面上的离子能量分布函数的影响。采用 一维-三速 PIC 模拟技术后，我们观察到，随着 *N* 增大，等离子体密度分布变得不对称。带电电极附近的鞘层宽度比接地电极附近的鞘层宽度减小得快得多，因此，带电电极与接地电极处的鞘层比不对称性随 *N* 增大而加剧。峰值等离子体密度呈现非线性变化趋势，即先下降，在达到某个 N 临界值后降至最小值，随后又随 *N* 进一步增大而上升。带电电极和接地电极处的离子通量、放电中的电离碰撞率以及时间平均电子加热率也呈现类似趋势。对电离碰撞率时空演化的研究预测，电离不对称性随 N 增大而加剧。由于接地电极处的鞘层宽度较大，因此与带电电极鞘层附近相比，该处产生的电离更多。当 *N* 值较大时，我们观察到瞬时鞘层边缘位置出现高频调制

接地电极上因此产生了多个电离束。随着 N 值超过临界值，这些电离束使放电中的密度增大。

由于处于低压条件，放电中的时间平均电子鞘层加热分布显示，在带电电极和接地电极的鞘层边缘位置附近，加热最强。当 N 不超过临界值（≤6）时，两电极鞘层附近的电子加热峰值降低，且体等离子体中未观察到明显的电子冷却。当 N≥6 时，整体鞘层加热区域增大，同时接地鞘层边缘位置附近出现强烈的电子冷却区域。该电子冷却区域是触发电子束和电离束进入体等离子体的主要能量源。

对电极表面处离子能量分布函数的系统研究显示，对于不同的 N 值，直至 12th 次谐波，分布均呈双峰形状。随着 N 值增大，双峰能量峰的能量间隔（ΔE）减小，这表明较高的 N 值对应更窄的离子能量分布函数。由于时间不对称性，带电电极上会产生直流自偏压，且随着 N 增大，等离子体电势与直流自偏压之间的差值几乎线性减小。到达带电电极的平均离子能量和最大离子能量也随之降低。随着 N 增大，带电电极与接地电极上的平均离子能量出现明显的不对称性（~40%）。模拟结果表明，在低气压下，较高的 N 值适用于增强离子能量不对称性并缩窄分布，但不会产生通量不对称性。

致谢

本研究得到科学与工程研究委员会（SERB）核心研究资助，项目编号：CRG/2021/003536。

参考文献

[1] Lieberman M and Lichtenberg A J 2005《等离子体放电与材料加工原理》（纽约：Wiley）[2] Chabert P and Braithwaite N 2011《射频等离子体物理》（剑桥：剑桥大学出版社）[3] Popov O A and Godyak V A 1985 低压射频放电等离子体中的耗散功率 《应用物理学杂志》57 53[4] Wilczek S, Trieschmann J, Schulze J, Schuengel E, Brinkmann R P, Derzsi A, Korolov I, Donkó Z and Mussenbrock T 2016 驱动频率对低压电容放电中束流电子约束和等离子体密度的影响 《等离子体物理》23 063514[5] Diomede P, Capitelli M and Longo S 2005 放电电压对电容耦合平行板射频氢等离子体的影响 《等离子体源科学与技术》14 459–66[6] Sharma S 2013 电容耦合射频等离子体鞘层中离子与电子动力学现象的研究：模拟研究 博士论文 都柏林城市大学（网址：http://doras.dcu.ie/17628/）

[7] Sharma S and Turner M M 2013 单频电容耦合放电中随机加热的模拟研究及对解析模型的严格评估 《等离子体源科学与技术》22 035014[8] Wilczek S, Trieschmann J, Schulze J, Schuengel E, Brinkmann R P, Derzsi A, Korolov I, Donkó Z and Mussenbrock T 2015 驱动频率对低压电容放电中束流电子约束和等离子体密度的影响 《等离子体源科学与技术》24 024002[9] Sharma S, Sirse N, Kaw P K, Turner M M and Ellingboe A R 2016 驱动频率对低压电容耦合等离子体中电子能量分布函数及电子-鞘层相互作用的影响 《等离子体物理》23 110701[10] S harma S, Sirse N, Kuley A, Sen A and Turner M M 2021 恒定功率密度下驱动频率对电容放电参数和高次谐波产生的影响 《物理学杂志D：应用物理》54 055205[11] Kaganovich I D, Polomarov O V, and Theodosiou C E 2006 重新探讨热等离子体中的反常射频场穿透 IEEE等离子体科学汇刊 34 696.[12] Kawamura E, Lieberman M A and Lichtenberg A J 2006 单频和双频电容放电中的随机加热 13 053506.[13] Sharma S, Sirse N, Sen A, Wu J S and Turner M M 2019 甚高频电容放电中的电场丝化与高次谐波产生 《物理学杂志D：应用物理》52 365201[14] Sharma S, Abhijit S, Sirse N, Turner M M and Ellingboe A R 2018 通过驱动频率和外加电压控制无碰撞电容耦合等离子体放电中的等离子体密度和离子能量 《等离子体物理》25 080705[15] Sharma S, Sirse N, Turner M M and Ellingboe A R 2018 激励频率对电容耦合氩放电中亚稳态原子和电子能量分布函数的影响 《等离子体物理》25 063501[16] Lieberman M A 1988 电容性射频鞘层的解析解 IEEE等离子体科学汇刊 16 638[17] Turner M M 1995 电容耦合射频放电中的电子压力加热 物理评论快报 75 1312[18] Goto H H, Lowe H D and Ohmi T 1992 用于低能等离子体加工的双激励反应离子刻蚀机 真空科学与技术杂志A 10 3048[19] Goto H H, Lowe H D and Ohmi T 1993 双射频激励等离子体中离子密度和离子轰击能量的独立控制 IEEE半导体制造汇刊 6 58[20] Robiche J, Boyle P C, Turner M M and Ellingboe A R 2003 双频电容鞘层的解析模型 《物理学杂志D：应用物理》36 1810[21] Georgieva V and Bogaerts A 2005 双频刻蚀反应器的数值模拟：外部工艺参数对等离子体特性的影响 《应用物理学杂志》98 023308[22] Boyle P C, Ellingboe A R and Turner M M 2004 双频等离子体装置中电极上的离子电流和离子轰击能量的独立控制 《物理学杂志D：应用物理》37 697[23] Sharma S and Turner M M 2013 双频电容放电中随机加热解析模型的严格评估 《物理学杂志D：应用物理》46 285203

[24] Sharma S 和 Turner M M，2014，利用粒子-网格模拟研究双频容性放电中的波发射现象，《物理学杂志D：应用物理》47 285201[25] Lee J K、Manuilenko O V、Babaeva N Y、Kim H C 和 Shon J W，2005，单频和双频容性等离子体源中的离子能量分布控制，《等离子体源科学与技术》14 89[26] Kim H C、Lee J K 和 Shon J W，2003，双频容性放电的解析模型，《等离子体物理》10 4545[27] Kitajima T、Takeo Y、Petrovi´c Z L 和 Makabe T，2000，双频电容耦合等离子体中偏置电压和维持电压的功能分离，《应用物理快报》77 489[28] Karkari S K、Ellingboe A R 和 Gaman C，2008，双频容性等离子体中空间电子密度振荡的直接测量，《应用物理快报》93 071501[29] Turner M M 和 Chabert P，2006，双频激励增强电容放电中的无碰撞加热，物理评论快报 96 205001[30] Gans T、Schulze J、O'Connell D、Czarnetzki U、Faulkner R、Ellingboe A R 和 Turner M M，2006，双频电容耦合射频等离子体中的频率耦合，《应用物理快报》89 261502[31] Schulze J、Gans T、O'Connell D、Czarnetzki U、Ellingboe A R 和 Turner M M，2007，工业双频电容耦合射频放电中的空间和相位分辨等离子体参数，《物理学杂志D：应用物理》40 7008[32] Bi Z-H、Dai Z-L、Zhang Y-R、Liu D-P 和 Wang Y-N，2013，反应器几何结构和频率耦合对双频电容耦合等离子体的影响，《等离子体源科学与技术》22 055007[33] Sharma S、Mishra S K、Kaw P K 和 Turner M M，2017，中间频率对无碰撞电流驱动三频容性等离子体中鞘层动力学的影响，《等离子体物理》24 013509[34] Patil S、Sharma S、Sengupta S、Sen A 和 Kaganovich I，2020，高频容性放电的一种增强运行区间（arXiv:2012.02752）[35] Patil S、Sharma S、Sengupta S、Sen A 和 Kaganovich I，2022，低磁场下容性放电中的电子反弹-回旋共振，物理评论研究 4 013059[36] Sharma S、Patil S、Sengupta S、Sen A、Khrabrov A 和 Kaganovich I，2022，研究弱横向磁场下运行的容性放电中电子反弹-回旋共振对等离子体动力学的影响，《等离子体物理》29 063501[37] Zhang Q-Z、Sun J-Y、Lu W-Q、Schulze J、Guo Y-Q 和 Wang Y-N，2021，弱磁化容性耦合等离子体中由电子回旋运动引起的共振鞘层加热，物理评论E 104 045209[38] Wang L、Vass M、Donko Z、Hartmann P、Derzsi A、Song Y-H 和 Schulze J，2021，磁场对低压电容耦合放电中等离子体串联共振自激发的衰减作用，《等离子体源科学与技术》30 10LT01[39] Yang S、Zhang Y、Wang H、Cui J 和 Jiang W，2017，几何和电学对称的容性耦合等离子体中的磁不对称效应，《等离子体工艺与聚合物》14 1700087

[40] Yang S、Chang L、Zhang Y 和 Jiang W，2018，电容耦合等离子体中的磁不对称效应：磁场梯度、压力和间隙长度的影响，《等离子体源科学与技术》27 035008[41] Sharma S、Kaganovich I D、Khrabrov A V、Kaw P 和 Sen A，2018，横向磁场下单频 CCP 放电中的空间对称性破缺，《等离子体物理》25 080704[42] Heil B G、Schulze J、Mussenbrock T、Brinkmann R P 和 Czarnetzki U，2008，射频边界鞘层加速电子束的数值建模，IEEE等离子体科学汇刊 36 1404[43] Heil B G、Czarnetzki U、Brinkmann R P 和 Mussenbrock T，2008，关于使几何对称射频电容耦合等离子体放电实现电学不对称的可能性，《物理学杂志D：应用物理》41 165202[44] Donkó Z、Schulze J、Heil B G 和 Czarnetzki U，2009，通过电不对称效应分别控制电容耦合射频放电中的离子通量和能量的PIC模拟，《物理学杂志D：应用物理》42 025205[45] Schulze J、Schungel E 和 Czarnetzki U，2009，电容耦合射频放电中的电不对称效应——直流自偏压、离子能量和离子通量的测量，《物理学杂志D：应用物理》42 092005[46] Coumou D J、Clark D H、Kummerer T、Hopkins M、Sullivan D 和 Shannon S，2014，利用锁相谐波射频偏置驱动控制离子能量分布偏斜，IEEE等离子体科学汇刊 42 1880[47] Korolov I、Donkó Z、Czarnetzki U 和 Schulze J，2012，驱动频率对双频电容耦合等离子体电不对称性的影响，《物理学杂志D：应用物理》45 465205[48] Delattre P A、Lafleur T、Johnson E V 和 Booth J P，2013，定制电压波形激励的射频电容耦合等离子体：实验与粒子-网格模拟的比较，《物理学杂志D：应用物理》46 235201[49] Patterson M M、Chu H-Y 和 Wendt A E，2007，用于操控等离子体加工过程中轰击离子能量分布的任意基片电压波形，《等离子体源科学与技术》16 257[50] Bora B、Bhuyan H、Favre M、Wyndham E 和 Wong C S，2013，双射频等离子体源：通过电不对称效应进行理解，《应用物理学杂志》113 153301[51] Lafleur T 和 Booth J P，2013，双频电容耦合放电中电不对称效应的频率依赖性，《应用物理快报》102 154104[52] Bruneau B、Novikova T、Lafleur T、Booth J P 和 Johnson E V，2014，锯齿状波形激励的射频电容耦合等离子体中的离子通量不对称性，《等离子体源科学与技术》23 065010[53] Bruneau B、Novikova T、Lafleur T、Booth J P 和 Johnson E V，2015，电容耦合等离子体定制电压波形中的斜率不对称效应控制与优化，《等离子体源科学与技术》24 015021[54] Bruneau B、Gans T、O’Connell D、Greb A、Johnson E V 和 Booth J P，2015，锯齿电压波形引起的几何对称射频电容耦合等离子体中的强电离不对称性，物理评论快报 114 125002

[55] Lafleur T, Boswell R W and Booth J P 2012 非正弦电压波形导致电容耦合放电中的增强鞘层加热 《应用物理快报》100 194101[56] Sharma S, Mishra S K, Kaw P K, Das A, Sirse N and Turner M M 2015 通过高阶正弦信号实现电流驱动电容耦合等离子体放电中的无碰撞鞘层加热 《等离子体源科学与技术》24 025037[57] Sharma S, Sirse N and Turner M M 2020 锯齿波形激发的低压甚高频电容耦合等离子体中的高频鞘层调制与高次谐波产生 《等离子体源科学与技术》29 114001[58] Sharma S, Sirse N, Kuley A and Turner M M 2022 定制波形激发的电容放电中的等离子体不对称性及电子和离子能量分布函数 《物理学杂志D：应用物理》55 275202[59] Sharma S, Sirse N, Kuley A and Turner M M 2021 锯齿波形激发的甚高频电容放电中的离子能量分布函数 《等离子体物理》28 103502[60] Bruneau B, Korolov I, Lafleur T, Gans T, O'Connell D, Greb A, Derzsi A, Donko Z, Brandt S, Schungel E, Johnson E V and Booth J P 2016 斜率和幅度不对称效应对低频电容耦合四氟化碳等离子体的影响 《应用物理学杂志》119 163301[61] Derzsi A, Lafleur T, Booth J P, Korolov I, and Donko Z 2016 定制电压波形驱动的电容耦合氧放电的实验与模拟研究 《等离子体源科学与技术》25 015004[62] Bruneau B, Lafleur T, Gans T, O'Connell D, Greb A, Korolov I, Derzsi A, Donko Z, Brandt S, Schungel E, Schulze J, Diomede P, Economou D J, Longo S, Johnson E and Booth J P 2016 气体性质对电容等离子体中电斜率不对称效应动力学的影响：氩、H_2 和 CF_4 的比较 《等离子体源科学与技术》25 01LT02[63] Birdsall C K and Langdon A B 2004《通过计算机模拟进行等离子体物理研究》（佛罗里达州博卡拉顿：CRC出版社）[64] Hockney R W and Eastwood J W 1988《使用粒子进行计算机模拟》（布里斯托尔：Adam Hilger）[65] Turner M M, Hutchinson A W, Doyle R A and Hopkins M B 1996 电容射频放电中由磁场诱发的加热模式转变 《物理评论快报》76 2069[66] Boyle P C, Ellingboe A R and Turner M M 2004 双频射频等离子体放电的静电建模 《等离子体源科学与技术》13 493[67] Lauro-Taroni L, Turner M M and Braithwaite N S J 2004 利用一维PIC模拟分析GEC射频参考腔中的激发态氩原子 《物理学杂志D：应用物理》37 2216[68] Turner M M 2013 蒙特卡罗碰撞粒子网格模拟中能量分布函数的数值效应：数值参数的选择 《等离子体源科学与技术》22 055001[69] Conway J, Kechkar S, O Connor N, Gaman C, Turner M M and Daniels S 2013 利用粒子网格模拟改进光学光谱测量法，以测定绝对原子氧密度 《等离子体源科学与技术》22 045004

[70] Sharma S, Sirse N, Sen A, Turner M M and Ellingboe A R 2019 选择性放电参数对无碰撞甚高频电容放电中触发的电场瞬变的影响 《等离子体物理》26 103508[71] Sharma S, Sirse N, Kuley A and Turner M M 2020 恒定电子等离子体频率下甚高频电容放电中的电场非线性 《等离子体源科学与技术》29 045003[72] Turner M M, Derzsi A, Donko Z, Eremin D, Kelly S J, Lafleur T and Mussenbrock 2013 低压等离子体的模拟基准：电容放电 《等离子体物理》20 013507[73] Shahid R and Kushner Mark J 1997 射频氩、Ar/O_2 和 Ar/CF_4 电放电中的氩亚稳态粒子密度 《应用物理学杂志》82 2805[74] Horvath B, Schulze J, Donko Z and Derzsi A 2018 电子诱导二次电子对低压电容耦合射频等离子体特性的影响 《物理学杂志D：应用物理》51 355204[75] Kawamura E, Vahedi V, Lieberman M A and Birdsall C K 1999 《等离子体源科学与技术》8 R45