中国科学: 物理学 力学 天文学 2025 年 第 55 卷 第 10 期: 105203
SCIENTIA SINICA Physica, Mechanica & Astronomica physcn.scichina.com
《中国科学》杂志社 SCIENCE CHINA PRESS
评 述 尘埃等离子体物理研究专题

复杂电负性容性耦合等离子体放电模拟研究

张逸凡[1], 贾文柱[2], 王丽[3], 董婉[1,3], 田崇彪[1,3], 黄渝峰[1], 宋远红[1*]

1. 大连理工大学物理学院, 大连 116024
2. 西南大学人工智能学院, 重庆 400715
3. 德国波鸿鲁尔大学电子工程与信息科学学院, 波鸿 D-44780, 德国
*联系人, E-mail: songyh@dlut.edu.cn

收稿日期: 2024-10-23; 接受日期: 2025-01-13; 网络出版日期: 2025-02-11
国家自然科学基金(编号: 12020101005, 12475202)资助项目

摘要 在空间微重力环境下以及在可忽略重力影响的纳米尺度颗粒存在的情况下, 尘埃颗粒不仅分布在鞘层附近, 还可能分布在等离子体体区. 此时, 复杂等离子体中电子、离子和尘埃颗粒之间的相互作用变得更加复杂, 不能忽略等离子体本身放电模式和状态变化. 尤其值得注意的是, 尘埃颗粒会吸附大量电子, 导致复杂等离子体呈现出类似于强电负性气体的放电特性. 本文首先梳理了近年来容性耦合电负性等离子体研究的主要研究进展, 包括放电模式的转变、非对称问题以及等离子体不稳定性等, 并着重介绍了调控等离子体放电的方法, 为研究复杂等离子体提供了依据. 另外, 本文还详细介绍了可以考虑等离子体和尘埃颗粒之间相互作用的研究复杂等离子体数值模拟方法. 最后, 介绍了近期一些初步研究成果, 包括尘埃颗粒尺寸变化对放电模式的影响、不同腔室结构尘埃颗粒空间分布的变化以及实验和模拟中都观察到的凹槽结构上方尘埃颗粒呈锥形分布等.

关键词 复杂等离子体, 尘埃等离子体, 电负性容性耦合, 放电模式

PACS: 52.65.-y, 52.27.Lw, 52.27.Cm, 52.50.Qt

1 引言

复杂等离子体, 也称为尘埃等离子体, 是由电子、离子、中性基团及纳米至微米级颗粒构成的多相系统, 广泛存在于宇宙空间、大气层、微电子加工设备、低温实验室放电装置及聚变装置中[1]. 复杂等离子体中的尘埃颗粒由于其相比于电子和离子较小的荷质比和较大的时空尺度, 受到等离子体与电磁场的共同作用, 展现出独特的动力学行为.

近年来, 复杂等离子体的研究已取得了显著进展, 主要集中在尘埃颗粒及其集体行为上, 包括尘埃颗粒在等离子体中的充放电过程[2,3]、受力及运动[4–6]、尘埃等离子体波[7–9]及不稳定性[10–12]、尘埃晶格[13–15]、尘埃空洞[16–18]、相变[19–22]等物理现象. 然而, 这些研究大多是在地面实验室中进行的, 放电腔室中撒入的尘埃颗粒多是微米量级的, 主要受重力、电场力和离子拖拽力共同作用[4,23,24], 相同荷质比的颗粒会分布在鞘层附近相同的轴向位置处, 其分布近似为二维平

引用格式: 张逸凡, 贾文柱, 王丽, 等. 复杂电负性容性耦合等离子体放电模拟研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2025, 55: 105203
Zhang Y-F, Jia W-Z, Wang L, et al. Simulation of discharge modes of complex electronegativity capacitively coupled plasma (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2025, 55: 105203, doi: 10.1360/SSPMA-2024-0500

© 2025《中国科学》杂志社

面，如图1(a)所示. 这种情况下，等离子体体区的状态变化对尘埃颗粒的影响较小，因此这些研究大多将等离子体视为状态不变的背景.

在研究宇宙空间中星际云、行星环、彗星尾以及大气中尘埃等离子体对空间通信的干扰等问题时，尘埃颗粒处于微重力条件下. 同样，在半导体芯片加工、光伏产业薄膜制备、等离子体微纳材料合成等技术中, 放电腔室内的尘埃颗粒通常为纳米尺度, 此时尘埃颗粒所受重力可以忽略不计，它们在电场力、离子和中性粒子拖拽力、热泳力等作用下[4,23–25]，将不仅仅局限于鞘层区，而是悬浮于整个等离子体体区，如图1(b)所示.

在这种情况下，尘埃颗粒的存在对等离子体体区放电状态的影响不能被忽略. 同时，尘埃颗粒的充放电过程、相互作用和输运过程也要受到等离子体状态变化的显著影响. 例如, 充放电过程会受到背景等离子体电离、激发等过程的影响. 这种复杂的相互作用可能会导致出现与地面实验室复杂等离子体实验截然不同的现象和放电规律. 国际空间站进行的第一个尘埃等离子体实验就证实了这一点，研究人员观察到了液相尘埃晶格与固相尘埃晶格共存、尘埃颗粒在不同区域呈现涡流等新现象[26,27]. 这些发现为深入理解微重力条件下复杂等离子体的行为提供了宝贵的实验依据.

与不含尘埃的放电相比，复杂等离子体放电的模拟计算和实验测量都面临着巨大的挑战. 这主要是因为尘埃颗粒的时间尺度远大于等离子体中的电子和离子. 此外, 尘埃颗粒的存在不仅会导致等离子体参数的变化, 还会引发尘埃空洞形成和低频不稳定等新现象.

值得注意的是, 由于尘埃颗粒会吸附大量电子, 复杂等离子体会呈现出很强的电负性，与不含尘埃的强电负性气体放电特性之间存在一定的相似性，所以近年关于电负性、反应性气体放电的一系列研究进展, 有望为复杂等离子体的研究提供重要参考依据. 基于此，本文首先介绍了电负性容性耦合放电中影响等离子体放电过程的常见放电模式，以及调控等离子体参数的方法. 此外，本文将介绍几种复杂等离子体模拟研究的模型，包括其原理、优缺点及适用范围. 然后, 介绍近期复杂等离子体的初步研究结果，包括尘埃颗粒的存在对放电模式的影响、二维腔室结构对尘埃颗粒分布的影响以及三维尘埃颗粒分布和动力学过程. 最后, 对本文内容进行总结, 并对复杂等离子体研究的未来发展方向提出展望.

2　电负性容性耦合放电模式和调控手段研究进展

2.1　放电模式

容性耦合等离子体由于其具有腔室结构简单、能够产生大面积均匀等离子体等优点，在半导体芯片制造、光伏太阳能电池生产等领域得到了广泛应用. 在容性耦合等离子体研究中，等离子体放电模式一直是备受关注的基础科学问题. 特别是在电负性气体放电中，除了传统的α放电模式(鞘层振荡加速电子引起电离)和γ放电模式(高能二次电子主导)外, 还存在以体区加热为主的DA (Drift-Ambipolar)放电模式.

在较强电负性条件下，等离子体体区的电子密度小于负离子密度，导致体区电导性下降. 这种情况下, 体区和鞘层边界会出现较强的迁移-双极扩散场(Drift-Ambipolar, DA), 形成以体区加热为主的DA放电模式.

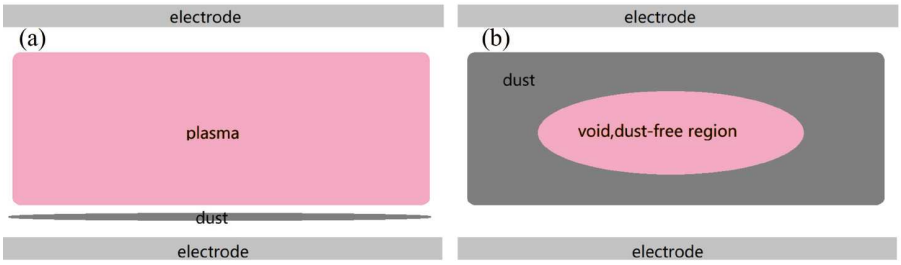

图 1　(网络版彩图)容性耦合复杂等离子体中尘埃颗粒在受重力影响(a)和微重力或重力可忽略情况下(b)的分布示意图
Figure 1　(Color online) Diagram of the dust particles distributions in a capacitively coupled complex plasma with gravity (a) and microgravity or without gravity (b).

DA模式已在O_2和CF_4等电负性气体及其混合气体放电中被观察到，并得到了实验诊断和模拟计算的证实[28–30]. 此外，我们利用一维流体耦合电子蒙特卡罗模型在Ar/O_2混合气体放电中发现：随着气压升高，放电的电负性没有明显升高，甚至略微降低. 然而，由于碰撞加剧和电子平均自由程的减小，体区电导性也会随之下降，并导致DA场和体区电子功率吸收速率增强，体区和塌缩鞘层附近的电离也逐渐增强，DA模式越发显著，如图2所示[31].

值得关注的是，在复杂等离子体稳态放电中，尘埃颗粒由于附着大量电子而带负电. 这会导致电子密度降低、电负性和体区电场增强，而尘埃颗粒的带电量和密度分布，会进一步影响等离子体状态. 因此，放电中尘埃颗粒的产生和生长过程对放电模式的影响需要进一步研究.

此外，在低气压电负性容性耦合等离子体中，在某些特定参数条件下，体区还会出现电荷分离和内部电场分布. 实验观察和粒子模拟证实了等离子体区存在明暗相间的“辉光条纹”现象，被称为STR (Striated)放电模式[32]. 我们在O_2放电中同样发现了STR放电模式. 同时，二次电子发射增强会显著抑制STR模式，如图3所示[33]. 这是因为电负性气体中条纹形成时等离子体体区通常存在较强的电场，电子密度低而电负性高，而二次电子发射增强会导致电子密度升高，电负性下降，从而条纹放电被破坏. 复杂等离子体放电过程中，也能满足电子密度极低和体区电场极强的条件，这是否意味着复杂等离子体中也有可能出现条纹放电现象. 更进一步的，尘埃颗粒对条纹的影响也需要深入研究.

同样是在O_2放电中，最近还发现了负离子解离导致的新的放电模式——DI (Detachment-Induced)模式[34]. 该模式形成的原因是：在负离子密度较高情况下，有部分负离子解离(损失负离子、生成电子)的反应发生在鞘层区域. 这部分生成的电子被很强的鞘层电场加速，获得能量从而再次与背景气体碰撞，发生

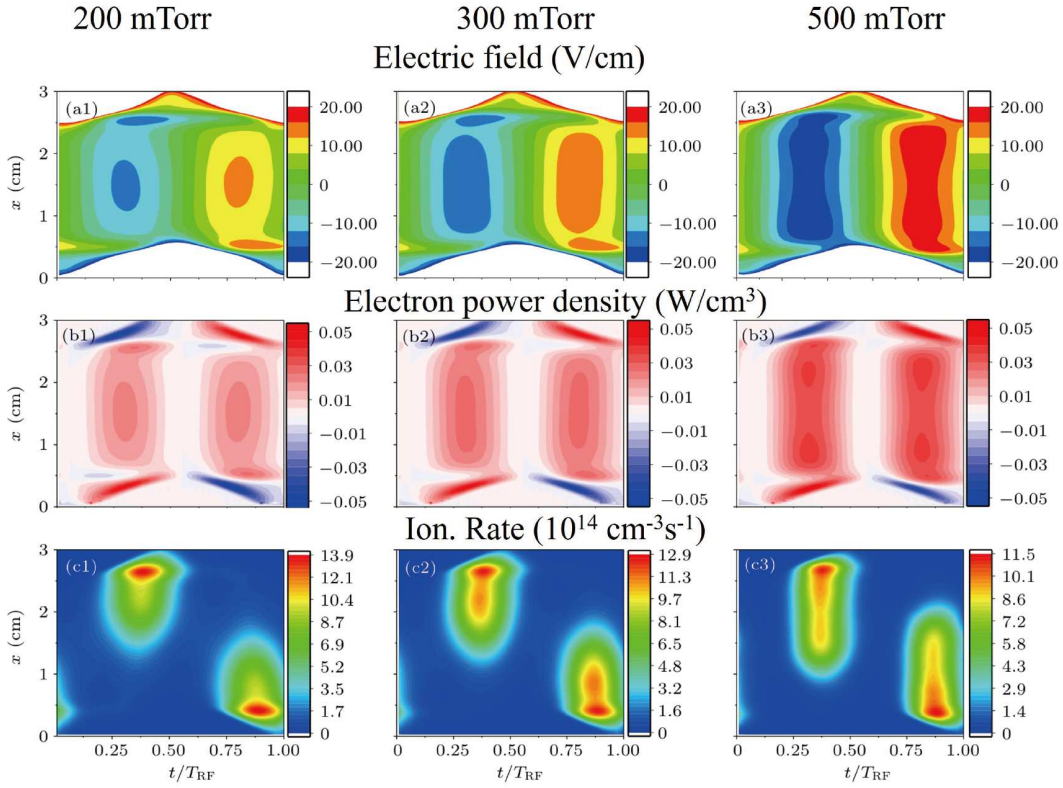

图 2　(网络版彩图)不同气压下，Ar/O_2放电中电场(a1)–(a3)、电子功率密度(b1)–(b3)和电离速率(c1)–(c3)的时空分布图[31]

Figure 2　(Color online) Spatiotemporal distributions of the electric field (a1)–(a3), electron power density (b1)–(b3) and ionization rate (c1)–(c3) in Ar/O_2 discharge [31].

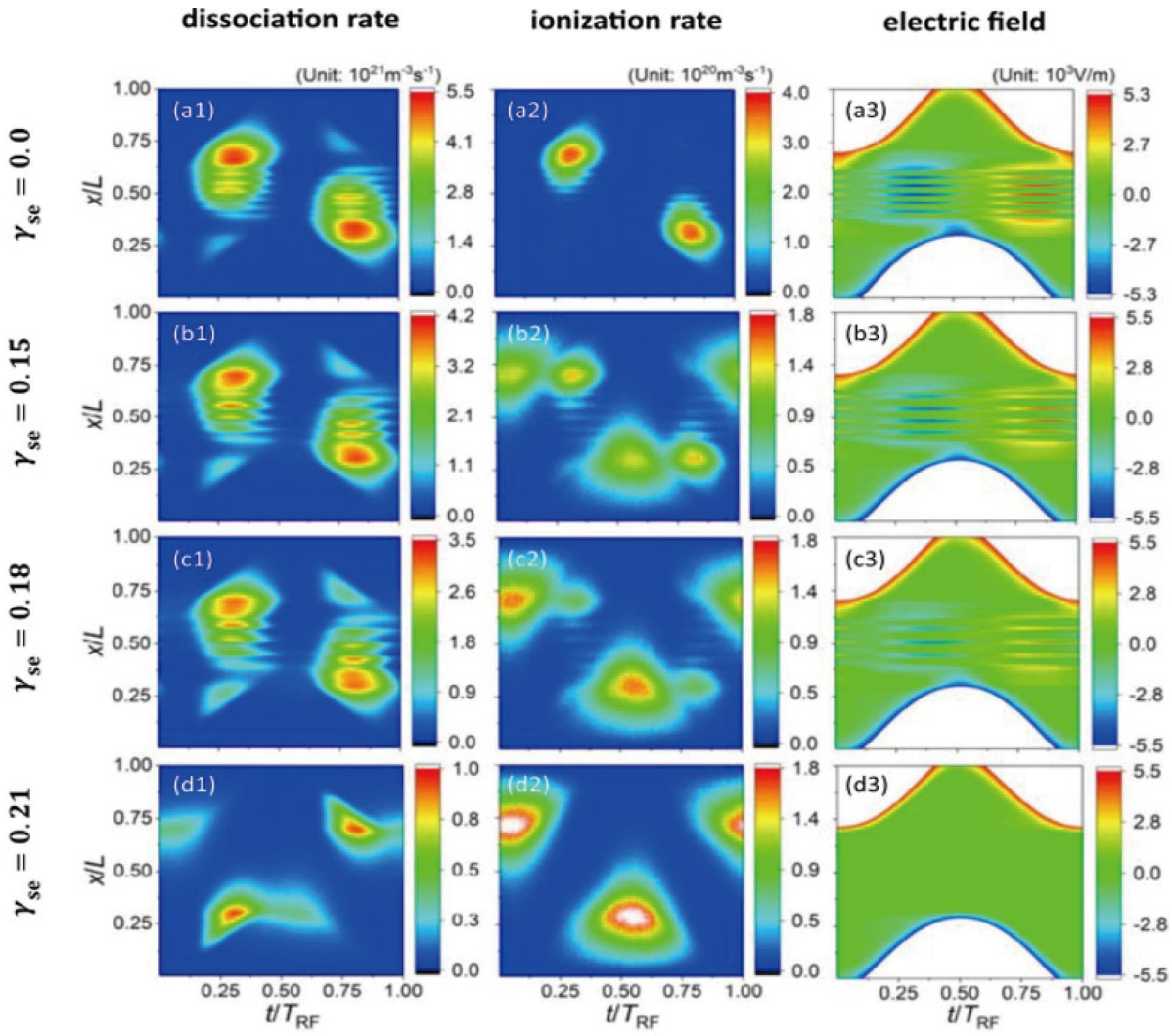

图 3　(网络版彩图)不同二次电子发射系数下, 条纹模式对O_2放电中解离速率(a1)–(d1)、电离速率(a2)–(d2)、电场(a3)–(d3)的影响[33]

Figure 3　(Color online) Effects of the striated mode on dissociation rate (a1)–(d1), ionization rate (a2)–(d2), and electric field (a3)–(d3) at different secondary electron emission coefficients in O_2 discharge [33].

电离. 在不考虑二次电子存在的情况下, 该模式对电离的贡献可以超过一半, 达到58.9%, 如图4所示. 复杂等离子体中分布在鞘层附近的尘埃颗粒是否会发生明显的解附着反应, 进而对放电产生明显的影响, 产生类似DI的新放电模式或者新的物理问题, 值得进一步深入研究.

2.2　容性耦合放电中的非对称问题

除了放电模式的研究, 对放电过程的精确调控也是研究者们长期关注的焦点. 目前, 利用非对称特性来对等离子体密度、均匀性以及离子能量等进行调控被认为是有效的方法. 这种非对称性主要包括电非对称、磁非对称以及几何非对称.

在半导体和光伏生产工艺中, 实现离子通量与离子能量的解耦一直是研究人员追求的目标. 早期, 研究人员尝试采用双频源驱动放电, 但解耦效果并不理想. Heil等人[35]提出, 通过施加基频及其二次谐波(即电不对称效应, EAE)能更有效地控制离子通量和能量. 此后, 研究者们探索了多种波形叠加, 这些波形统称为电非对称电压波形. 放电不对称主要通过两种效

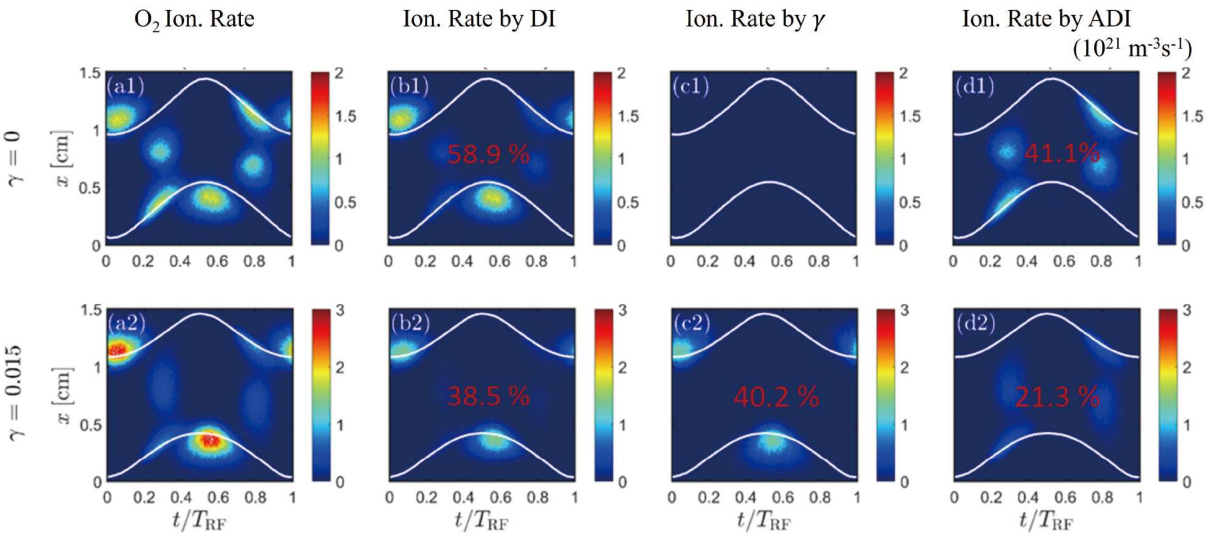

图 4　(网络版彩图) O_2放电中DI模式(b1, b2), γ模式(c1, c2)和ADI模式(d1, d2)对总电离(a1, a2)贡献的时空分布图[34]

Figure 4　(Color online) Spatiotemporal distributions of the contribution of DI mode (b1, b2), γ mode (c1, c2), and ADI mode (d1, d2) to total ionization (a1, a2) in O_2 discharge [34].

应实现: 幅值不对称效应(AAE), 即利用不同的最大和最小施加电压幅值驱动放电, 对应的波形通常称为“峰”波形和“谷”波形; 以及斜率不对称效应(SAE), 即保持电压最大值和最小值相同, 但通过改变波形的“上升”与“下降”斜率来实现, 对应的波形通常称为“锯齿上升”波形和“锯齿下降”波形.

我们采用一维流体/电子蒙特卡罗混合模型对裁剪波形驱动的Ar/SiH_4混合气体放电进行了深入研究[36]. 研究揭示了随着气压升高, 无论是AAE还是SAE波形下, 气压升高导致高能电子数量减少, 从而减弱生成电子的电离反应. 与此同时, 损耗电子并生成负离子的附着反应得到增强, 最终导致等离子体电负性明显升高. 这种电负性的增强进一步引发了一系列连锁反应. 首先, 体区电导性随之下降, 为了维持电流连续性, 体区电场强度和电子功率密度显著增加. 这些变化最终导致放电模式发生了转变, 从α模式过渡到以体区加热为主的DA模式, 如图5所示. 研究还发现, 在这一过程中, 阈值较低的硅烷电离反应在总电离过程中的贡献逐渐增大. 这导致即使在气体比例保持不变的情况下, Ar^+离子的含量也明显减少, 而SiH_3^+离子密度在总离子密度中的比例则逐渐上升.

两种波形不同的是: 在AAE波形中, 随着气压上升, 两侧鞘层厚度差异缩小, 同时, 驱动电极侧与接地电极侧鞘层快速扩张时对应的电离速率峰值差距也减小. 这导致自偏压显著降低, 非对称效应随之减弱. 相比之下, 尽管SAE波形的自偏压幅值较小, 但在较高气压下仍能维持一定的自偏压, 从而保持由这种非对称性带来的调节效果. 此外, 研究中还发现: 由于放电模式的转换, 中性基团的生成速率同样存在非对称, 导致不受电场影响的中性基团密度和通量出现了不对称, 中性基团通量受到了调制.

这些发现对于理解和控制SiH_4放电以及对于硅基材料的等离子体加工工艺具有重要的指导意义. 此外, 在硅烷放电中, 由于存在$Si_nH_{2n+1}^- + SiH_4 \rightarrow Si_{n+1}H_{2n+5}^-$和$Si_nH_{2n}^- + SiH_4 \rightarrow Si_{n+1}H_{2n+4}^-$等粒子的链式反应, 当反应链长度超过12 h, 就可能形成尘埃颗粒[37,38]. 因此, 这项研究还为后续关于化学反应生成尘埃颗粒的研究, 以及电非对称波形对尘埃颗粒分布的调制效果研究奠定了重要基础.

除了电非对称外, 研究人员还发现磁场的引入可以产生新的非对称效应, 进而为等离子体参数的调控提供了新的手段. 在几何对称和电对称的单频放电中, 轴向非均匀磁场被证实会引起磁不对称效应. 研究发现, 通过调整磁场强度, 可以有效控制直流自偏压, 从而调节电极处的离子能量角度分布. 这种由磁场引起的非对称现象, 被称为磁非对称[39–42]. 磁场的引入不仅可以产生非对称效应, 还可以增加电子回旋运动, 进而增大电子与中性粒子的碰撞概率, 增强电离, 提

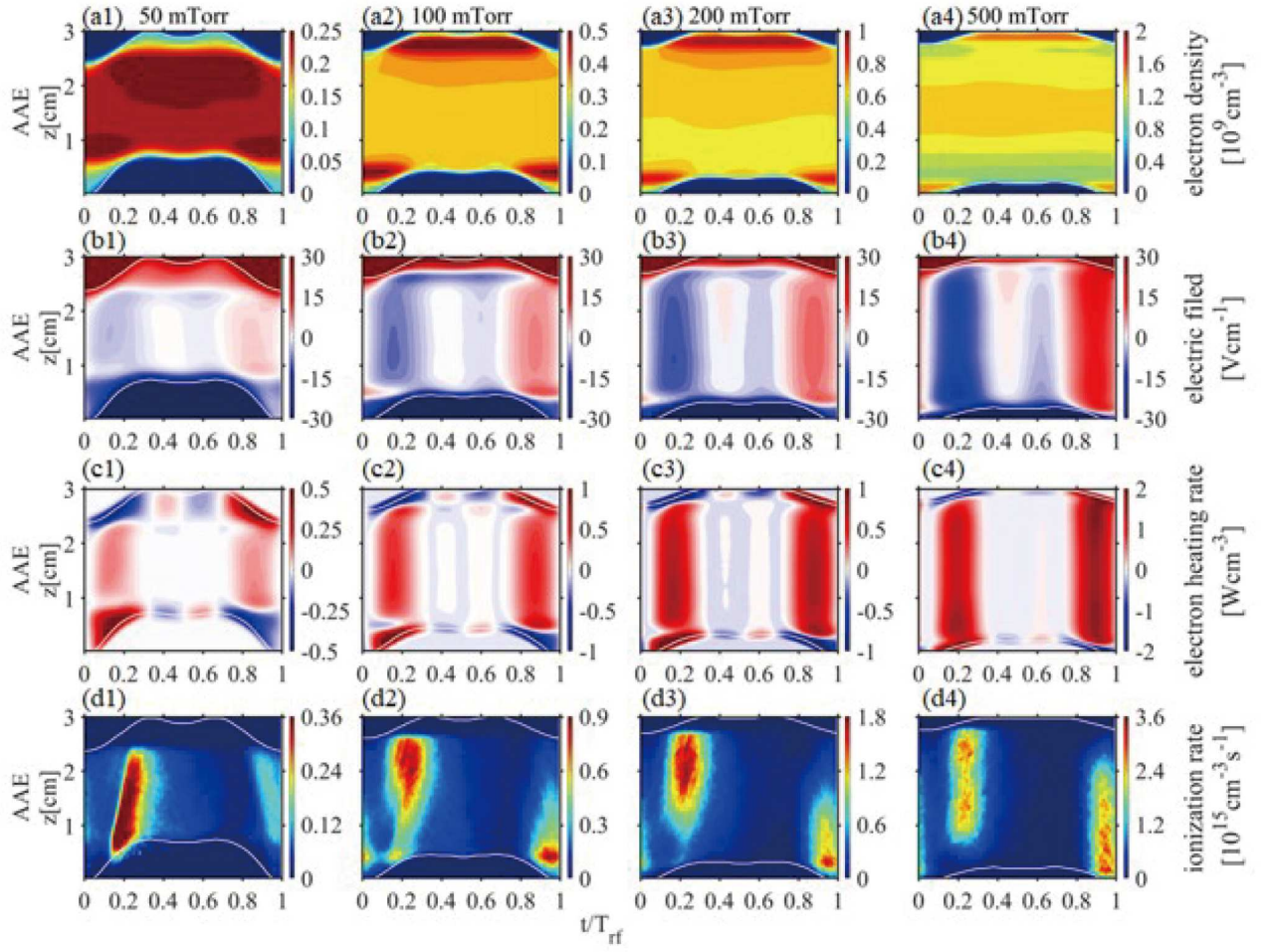

图 5　(网络版彩图) Ar/SiH_4放电中不同气压下的电子密度(a1)–(a4)、电场(b1)–(b4)、电子功率密度(c1)–(c4)和电离速率(d1)–(d4)时空分布图[36]

Figure 5　(Color online) Spatiotemporal distributions of the electron density (a1)–(a4), electric field (b1)–(b4), electron power density (c1)–(c4), and ionization rate (d1)–(d4) in Ar/SiH_4 discharge under different pressures [36].

升等离子体密度. 这一特性在提高工艺生产中的沉积或刻蚀速率方面具有重要应用价值.

我们利用PIC模拟研究了施加平行电极方向磁场情况下电负性气体O_2的放电特性[43]. 研究发现, 在没有磁场时, 放电呈现典型的电负性特征, 体区出现较强的DA场, 放电处于DA模式. 当施加50 G的磁场时, 电子密度和电导率显著增加, DA场消失, 放电模式转变为α模式. 随着磁场强度进一步增加到100 G, 可以观察到鞘层厚度明显减小, 反转电场变强, 并且放电模式进一步变化, 如图6所示.

在更强电负性的CF_4放电中, 更进一步研究了磁场对放电模式的影响[44], 发现了一种新的放电模式, 称为磁化漂移双极性(m-DA)模式, 以及电子密度远高于负离子密度的电正性核心的形成. 总结而言, 等离子体的电负性和放电模式会随外部施加磁场的变化而显著变化, 通过调节磁场强度, 可以使等离子体体现出电负性或电正性放电的特性.

除了电场和磁场引起的非对称性外, 实际放电腔室的接地电极面积通常大于驱动电极面积, 也会导致放电过程中出现非对称现象, 这种非对称现象称为几何非对称. 随着接地电极面积的增加, 驱动电极侧的负自偏压幅值会相应增大, 同时该侧的鞘层也会变得更厚. 针对这一现象, 我们采用二维PIC模拟深入研究了这种几何非对称现象[45]. 与对称情况相比, 非对称

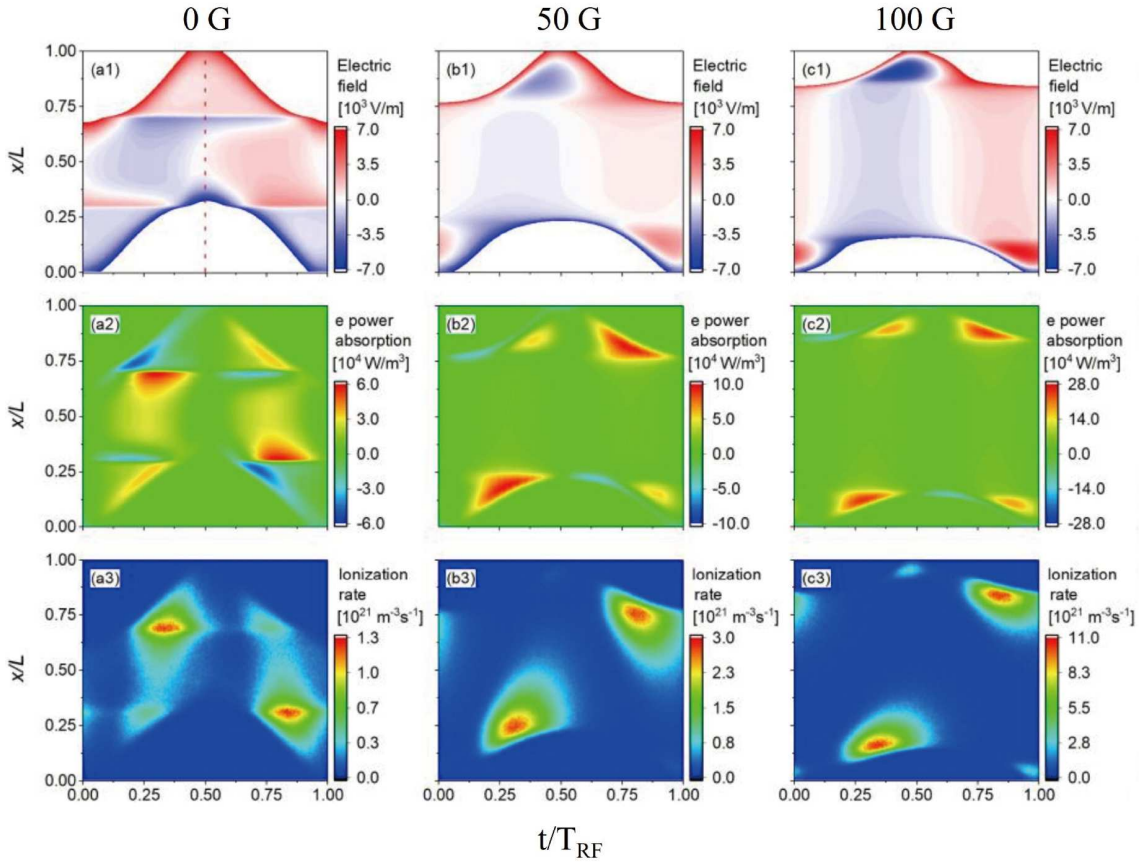

图 6　(网络版彩图)不同磁场强度下O_2放电的电场(a1)–(c1)、电子功率密度(a2)–(c2)和电离率(a3)–(c3)的时空分布图[43]
Figure 6　(Color online) Spatiotemporal distributions of the electric field (a1)–(c1), electron power density (a2)–(c2) and ionization rate (a3)–(c3) at different magnetic fields in O_2 discharge [43].

腔室中的串联共振现象更为显著，并且腔室的几何对称性越差, 串联共振现象越强. 同时, 我们探讨了几何非对称与电非对称波形叠加对放电的复杂影响[46]. 当采用峰波形驱动时，电非对称性和几何非对称性相互叠加，显著增强了等离子体的不对称性并且产生了更大的负直流自偏压. 由于驱动电极处鞘层较厚，导致了强烈的δ电子发射，进一步提升了等离子体密度. 相比之下, 当采用谷波形驱动等离子体时, 等离子体的密度会显著降低. 电非不对称在一定程度上补偿了几何非对称.

这些非对称调节手段已经证明可以在电负性气体放电中有效调节放电模式、电负性、离子通量等参数. 在实际的半导体工业生产时, 放电中也可能会产生大量的尘埃颗粒. 因此, 复杂等离子体中这些调节手段的有效性需要进一步研究. 此外, 如何通过这些调节手段控制尘埃颗粒的分布，避免其对沉积和刻蚀质量的影响也是一个重要的研究方向.

2.3　不稳定现象

在复杂等离子体研究中，不稳定现象一直是一个引人注目的课题. 我们利用一维流体/蒙特卡罗混合模型在电负性CF_4气体放电中也发现了一种特殊的低频不稳定现象[47]. 研究发现，电子、Ar^+和F^-的密度都表现出周期性的波动, 波动周期约为16个射频周期, 如图7所示. 这种不稳定性的产生机理可以概括如下: 在高电负性阶段, 较强的体区电场加热电子, 导致电子温度高幅振荡. 同时, 较高能的电子主要被电离而非被附着所消耗, 使得电子密度升高并过冲到一个较高的值. 随后，放电进入弱电负性阶段，体电场逐渐变弱，导致电子密度持续降低，电子温度保持在一个较低的平均值.

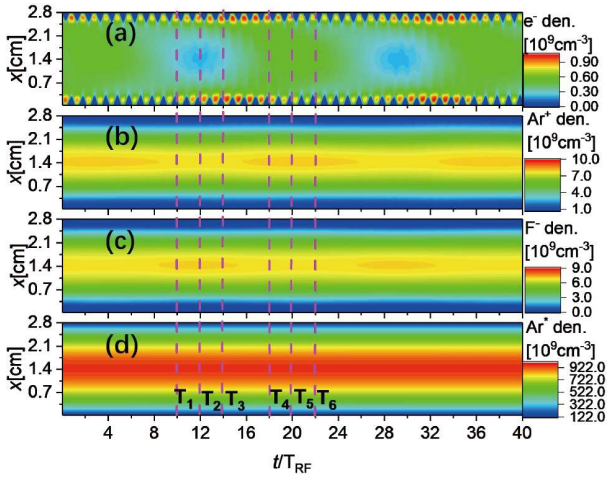

图 7　(网络版彩图) Ar/CF_4气体放电中电子(a), Ar^+ (b), F^- (c), Ar^* (d)的密度时空分布图[47]

Figure 7　(Color online) Spatiotemporal density distributions of electron (a), Ar^+ (b), F^- (c) and Ar^* (d) in Ar/CF_4 discharge [47].

当电子密度再次达到最小值时，一个新的不稳定周期开始, 形成循环.

这种周期性波动不仅影响了带电粒子的密度分布, 还对放电的其他参数产生了显著影响. 由于放电不稳定性, 到达驱动极板的Ar^+离子通量有20%以上的波动, 刻蚀速率也存在16%左右的差异. 这种波动可能对等离子体加工工艺的稳定性和均匀性产生重要影响. 更有趣的是, 研究发现这种不稳定现象与电极间距有关. 当电极间距增加到4 cm, 电压幅值为84.4 V时, 其他放电参数保持不变的情况下, 放电不稳定现象基本消失.

此外, 我们还研究了双频驱动CF_4气体放电[48], 发现不稳定现象仍然存在, 如图8所示. 双频驱动的情况下, 等离子体参数不仅时间上出现长周期波动, 在单个高频周期内还出现了空间上不对称的现象. 这是因为: 当放电由双频源驱动时, 在一个高频周期内, 电场和电子加热在前后半周期呈现不对称性. 在多个低频周期的时间尺度上, 体区内存在一个最小电子密度区域, 并在整个放电区域内上下移动, 移动的最小电子密度区域两侧的电场、电子加热和电离率在空间上不对称. 这一机制, 结合等离子体不稳定性和低频、高频电子电流的叠加效应, 导致电场和电子功率吸收率以及电离和电子密度分布在等离子体上下半区呈现空间不对称性, 电子密度较高的一侧会导致最小电子密度区域向相反方向移动.

这些研究不仅揭示了电负性等离子体中复杂的不

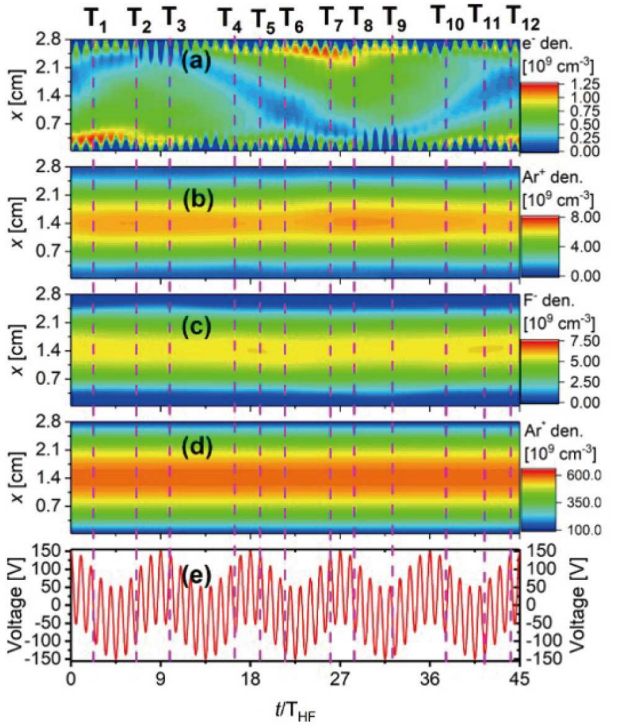

图 8　(网络版彩图)双频驱动的CF_4气体放电中电子(a), Ar^+ (b), F^- (c), Ar^* (d)的密度时空分布图以及电压波形(e)[48]

Figure 8　(Color online) Spatiotemporal density distributions of electron (a), Ar^+ (b), F^- (c), and Ar^* (d), as well as voltage waveform (e) in Ar/CF_4 discharge [48].

稳定性机制, 还为理解和控制等离子体加工过程中的参数波动提供了重要依据. 理解并控制这种不稳定性可能有助于提高加工精度和产品质量. 此外, 这项研究还为复杂等离子体中的多尺度物理过程提供了新的视角. 不稳定性的周期远大于射频周期, 但又小于典型的尘埃动力学时间尺度, 这种中间尺度的动力学过程可能在尘埃-等离子体相互作用中扮演重要角色. 未来的研究可能需要将这种不稳定性纳入考虑, 以更准确地模拟和预测复杂等离子体的行为.

总的来说, 这些关于放电模式、非对称性和不稳定性的研究深化了我们对电负性容性耦合放电的理解, 为优化等离子体加工工艺、设计新型等离子体装置提供了理论基础. 然而, 这些研究也提出了许多新的问题, 特别是在尘埃颗粒与等离子体存在相互作用时, 这些现象可能会呈现出新的特性.

3　等离子体耦合尘埃颗粒混合模型

为了深入理解复杂等离子体中的物理过程, 开发

精确的数值模拟模型至关重要. 然而, 由于复杂等离子体涉及多种时间和空间尺度, 开发一个能够涵盖所有相关物理过程的单一数值方案仍然是一个巨大的挑战. 目前, 针对复杂等离子体的模拟主要采用两种方法: 粒子模型和流体模型. 粒子模型能够模拟尘埃颗粒的动力学过程以及尘埃颗粒之间的相互作用, 包括尘埃晶格、空洞等复杂现象. 然而, 这种方法的计算量较大, 难以同时计算等离子体状态的变化. 另一种方法是采用流体模型, 将尘埃整体近似为流体来计算. 流体模型的优点是相对容易与等离子体进行耦合计算, 可以提升计算速度, 但难以考虑尘埃颗粒动力学过程. 以上两种模型都进行了某种形式的简化, 专注于特定现象, 而在其他尺度上进行近似处理. 这是因为: 尘埃的充电和运动的时间尺度是毫秒至秒量级, 尘埃颗粒的集体行为演化的时间尺度是几十到几百秒. 然而, 计算电子和离子行为需要的分辨率是射频周期的千分之一或万分之一. 这意味着耦合循环计算尘埃与等离子体相互作用需要在秒量级的时间尺度下采用射频周期的千分之一至万分之一的分辨率来进行模拟, 这对计算资源的消耗是不可估量的.

在之前的论述中已经强调了等离子体状态变化与尘埃颗粒相互作用的重要性, 为了综合这两种方法的优势, 我们开发了一种流体耦合尘埃模型. 该模型中等离子体放电部分采用流体模型. 其中, 考虑到电子的质量很小, 可以忽略电子的惯性项和加速项, 将电子的动量方程简化为漂移扩散近似方程. 离子、中性粒子、尘埃颗粒进行冷流体近似, 其温度为常数. 对于离子, 模型求解连续性方程和动量方程, 针对不同问题, 可以采用漂移扩散近似或者动量方程. 中性粒子只考虑连续性方程和扩散方程. 具体的方程形式可以参考我们之前的工作[49–51]. 在一维情况下, 通过电子蒙特卡罗模型获得电子能量分布函数, 不再求解电子能量方程. 在蒙特卡罗模型中, 采用伪碰撞技术对电子与中性粒子间碰撞进行处理. 通过抽取随机数的方法来判断电子参与的碰撞类型. 如果电子参与碰撞, 则根据具体参与的碰撞类型, 确定电子碰撞后的速度及角度分布. 在混合模型耦合前, 电子蒙卡模块运行结束后, 对所有跟踪电子能量进行统计. 电子参与的反应系数可以根据能量分布函数推导得出. 现有的气体反应有Ar, H_2, SiH_4, CF_4, O_2及其混合气体, 针对不同气体的反应和反应在我们之前的工作中均有详细介绍, 这里不再列举. 二维情况下, 出于提升计算速度的考虑, 不耦合电子蒙特卡罗模型, 求解电子的能量方程.

对于尘埃颗粒, 首先考虑尘埃颗粒的充电, 尘埃带电荷量是通过计算流向尘埃的电子流和离子流来得到的, 其中电子流和离子流通过轨道运动限制(Orbital Motion Limited)理论[52]来获得. 尘埃颗粒的运动通过其受力来计算, 计算中考虑的尘埃受力包括: 电场力、由收集力和轨道力构成的离子拖拽力、重力(尘埃颗粒直径大于1 μm情况下)和中性粒子拖拽力. 由于目前假定背景气体的温度是常数, 因此由背景气体的温度差导致的热泳力未做考虑.

尘埃颗粒的生成是通过跟踪硅烷链式反应, 获得尘埃颗粒生成前驱物, 自洽计算获得颗粒密度. 其中, 硅烷的链式反应截至$Si_5H_{11}^-$和$Si_5H_{10}^-$, 并将这两种负离子作为产生尘埃颗粒的前驱粒子. 通过 $Si_5H_{11}^-$和$Si_5H_{10}^-$密度与链式反应系数的乘积, 代入尘埃颗粒密度随时变化的方程, 计算得到尘埃颗粒的生成源项. 另一方面, 我们假定形成的尘埃颗粒尺寸半径相同. 此外, 模拟中通过采用正离子在尘埃表面的复合系数, 考虑了正离子在尘埃表面上的损失过程. 并且将尘埃粒子充电造成的电子、离子的损失与等离子体模块双向耦合. 将纳米量级尺寸的尘埃颗粒作为流体考虑时, 忽略其重力, 计算其输运方程. 而对于微米量级的尘埃颗粒, 采用动力学模块, 利用牛顿第二定律对尘埃颗粒进行推动. 同时, 考虑尘埃颗粒之间的相互作用力.

在电场的计算方面, 由于腔室的半径远小于射频波长, 只考虑静电效应, 将电子、离子和尘埃颗粒带入泊松方程求解电场. 此外, 还可以将包裹电极的介质材料加入计算区域, 统一求解泊松方程. 求解介质材料区域时, 计算介质材料表面的充电和内部的电荷密度. 边界条件需要根据实际情况来确定, 这在我们之前的工作中均有详细介绍, 这里也不再赘述.

研究尘埃颗粒动力学过程时, 需要首先通过二维流体等离子体模块耦合尘埃模块, 得到电场、粒子密度、通量等信息. 通过轴对称将二维圆柱腔室计算的结果推广到三维, 从而得到三维分布的势场. 利用牛顿第二定律推动尘埃颗粒在三维势场中运动, 得到三维尘埃颗粒的运动及分布. 耦合流程如图9所示.

目前, 除了上述模块处理, 我们还开发了并行的三维流体等离子体模块, 可以计算三维矩形腔室中等离

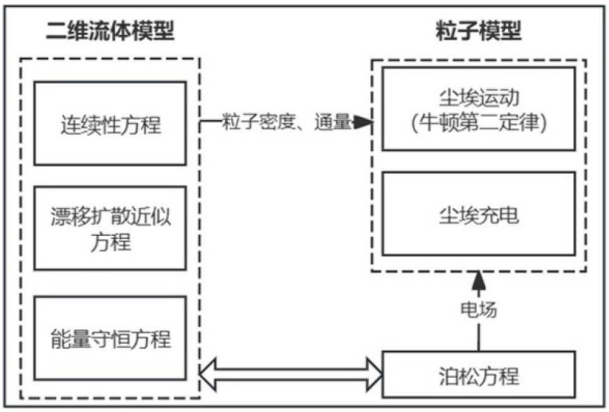

图 9　(网络版彩图)二维流体模型与尘埃粒子模型耦合流程图

Figure 9　(Color online) Flow chart for the coupling between two-dimensional fluid model and dust particle model.

子体的状态, 并且提升计算速度10倍以上. 该模块正在与尘埃模块进行耦合. 此外, 我们还基于基尔霍夫电压电流定律, 开发了外电路模型. 在下一步工作中, 将外电路模型与等离子尘埃模型进行耦合, 可以计算尘埃颗粒对匹配状态、电路中的元件以及等离子体功率耦合效率的影响.

4　尘埃颗粒空间分布及动力学过程模拟

我们首先采用一维流体混合电子蒙特卡罗模型, 耦合尘埃颗粒生成、充电和输运模块. 通过跟踪硅烷链式反应, 获得尘埃颗粒生成前驱物, 自洽计算获得颗粒密度. 同时, 尘埃对等离子体密度以及电场的影响会与等离子体模块双向耦合. 该部分重点研究尘埃颗粒的生成, 充电, 以及不同尺寸尘埃颗粒的存在对放电模式的影响[53].

在驱动频率为50 MHz, 电压幅值为100 V, 气压为300 mTorr, 间距为 3 cm放电条件下, 直径为1 nm的尘埃颗粒的加入, 没有明显引起等离子体的状态变化(包括电子密度、电子温度等特性), 与无尘埃情况相似. 然而, 当50 nm的尘埃颗粒出现时, 电子密度显著下降, 同时伴随着电子温度的增加, 如图10所示. 所以, 随着尘埃颗粒尺寸增大, 单个尘埃带电量也随之增大, 此时负离子密度变化并不明显, 因此尘埃的生成源项和密度差别不大. 这导致尘埃尺寸越大, 等离子体体区电子密度下降越明显.

此外, 尘埃颗粒的出现还显著影响了放电模式. 当放电中存在半径为1 nm的尘埃颗粒时, 放电以α模式为主, 最大电离率和电子碰撞源项峰值出现在扩张鞘层边缘附近. 尘埃颗粒半径增大到100 nm时, 体区电场维持的加热模式变得更加显著, 如图11所示. 这是因为当尘埃损耗大量电子后, 等离子体的电负性明显升高, 体区电导率下降, 体区电场增强. 这与之前电负性气体放电的研究中观察到的电负性增强导致放电模式转变为DA模式类似.

除了对放电模式的影响, 另一个令人感兴趣的是尘埃颗粒的空间分布. 基于二维模型, 保持尘埃颗粒与等离子体双向耦合, 重点研究尘埃颗粒的空间分布以及腔室结构, 尤其是电极边缘至侧壁区域对放电和尘埃分布的影响[51]. 放电的驱动频率为13.56 MHz, 电压幅值为50 V, 气压为1 Torr, 中性气体温度为400 K, 腔室半径为10 cm, 电极间距为3 cm, 电极厚度为1 cm, 尘埃颗粒的直径为100 nm.

在电极之间的区域, 尘埃颗粒主要分布在上下两

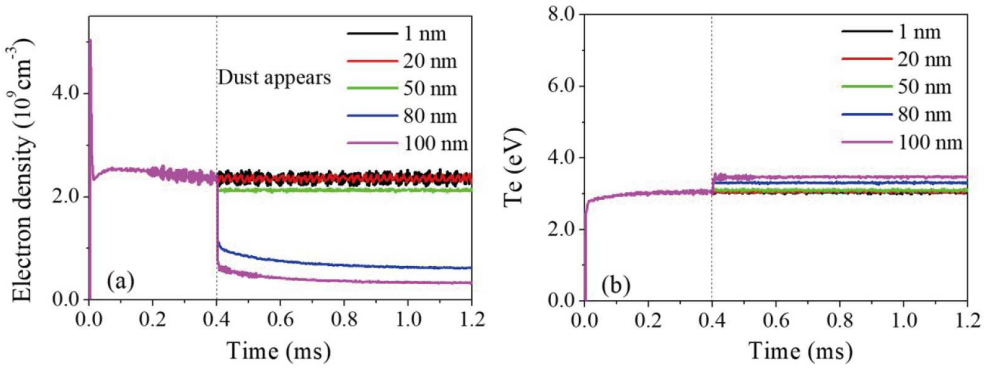

图 10　(网络版彩图)等离子体具有不同半径尘埃颗粒时, 电子密度(a)和电子温度(b)的演化曲线[53]

Figure 10　(Color online) Time evolution of electron density (a) and electron temperature (b) for different dust radii [53].

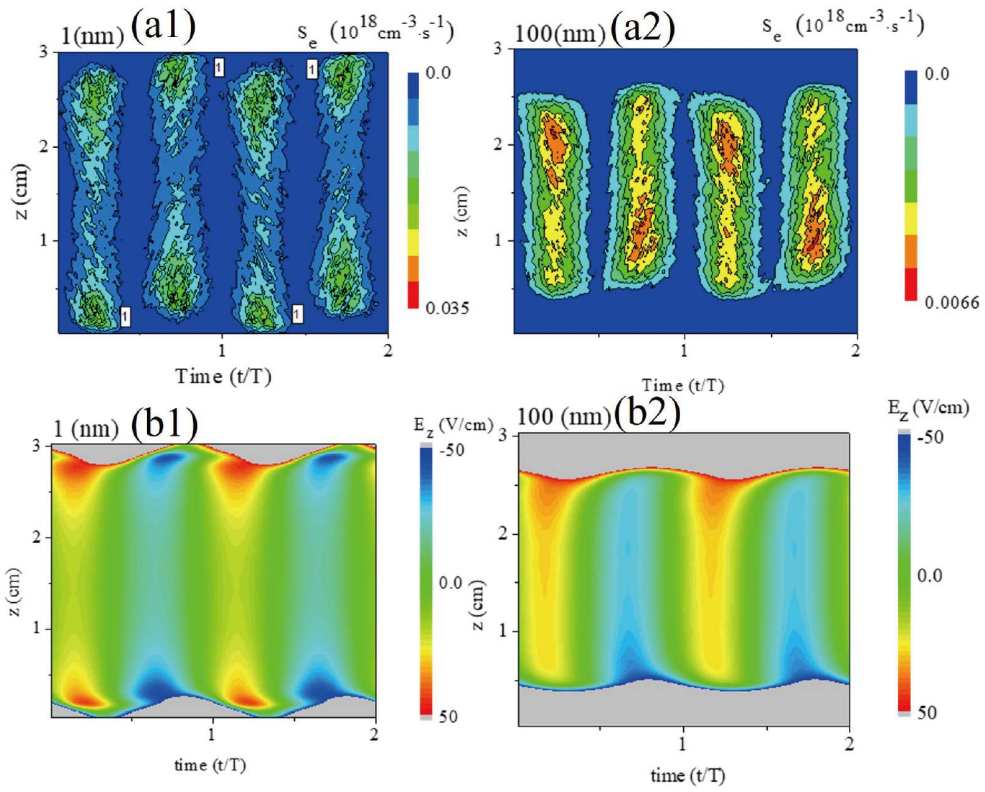

图 11　(网络版彩图)不同半径尘埃颗粒时, 电子源项(a1, a2)和电场(b1, b2)的时空分布图[53]
Figure 11　(Color online) Spatiotemporal distribution of the electron source term (a1, a2) and electric field (b1, b2) with different dust radii [53].

个电极附近, 其密度沿轴向(z方向)呈马鞍形分布, 这与一维尘埃模型的结论相符. 然而受腔室结构影响, 在电极边缘和侧壁之间的区域, 尘埃颗粒分布变得复杂. 在靠近电极边缘处, 尘埃颗粒密度出现两个极大值. 其中一个位置处的尘埃密度峰值十分靠近上极板. 这意味着电源开启的情况下, 尘埃颗粒也有可能脱离电场力的支撑而直接到达电极, 如图12所示.

出现这一现象的原因是在该区域离子拖拽力的径向分量出现了显著变化, 成为影响尘埃颗粒分布的重要因素. 受腔室结构和侧壁电场影响, 靠近电极径向边缘的尘埃颗粒受到很大的指向电极的离子拖拽力, 如图13所示.

此外, 我们还探讨了腔室结构变化对尘埃颗粒密度空间分布的影响. 随着侧壁间隙的增大, 尘埃颗粒密度的两个径向峰值位置也分别向电极边缘和侧壁靠拢. 并且尘埃颗粒在径向电场力和径向离子拖拽力的共同作用下, 在极板边缘和侧壁之间出现了类似环状的尘埃颗粒分布带, 如图14所示.

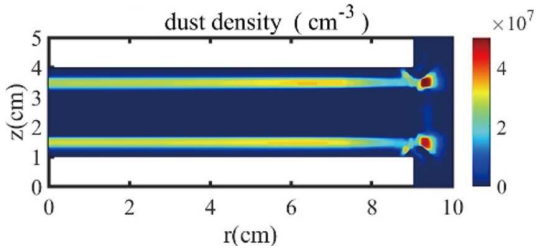

图 12　(网络版彩图)尘埃密度的空间分布[51]
Figure 12　(Color online) Spatial distribution of the dust particles [51].

在此基础上, 我们采用新开发的三维粒子模块, 给出了尘埃颗粒的三维动态分布, 并与实验结果进行了对比验证. 在三维粒子模块中, 考虑了尘埃颗粒之间的相互作用, 重点研究尘埃颗粒的运动过程和不同集体行为. 模拟和实验腔室结构相同, 在下电极上放置一个深度为2 mm的可变内径的金属限制环. 使用限制环的目的是防止尘埃向侧壁方向运动, 掉落至缝隙处无法观察. 放电条件为: 驱动频率13.56 MHz, 气压

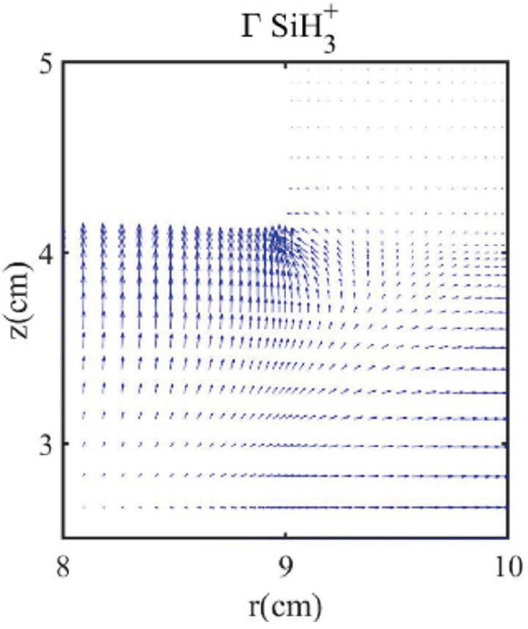

图 13　(网络版彩图)上电极边缘附近离子通量的空间分布[51]

Figure 13　(Color online) Spatial distribution of the ion flux near the edge of the upper electrode [51].

5 Pa, 电压100 V, 尘埃直径为6 μm. 图15展示的是相同结构下模拟结果和实验照片，可以看到实验拍摄的照片和模拟计算的结果中尘埃颗粒均呈现锥形分布. 这初步验证了混合模型的准确性，为后续研究提出可能性.

5　总结与展望

本文系统回顾了电负性容性耦合等离子体放电的最新研究进展，聚焦于放电模式、非对称性以及不稳定性等核心问题，并深入探讨了这些问题与复杂等离子体特性的内在联系及其重要的参考价值. 通过深入分析，详细阐述了电负性等离子体中存在的多重放电模式，包括α模式、γ模式、DA模式、STR模式和DI模式，揭示了这些模式转换与气体压力、驱动频率等放电参数的紧密关联性. 进一步地，本文探讨了非对称性(具体涉及电非对称、磁非对称和几何非对称)对等离子体特性调控的原理及其实际效果，为精准控制等离子体参数提供了理论依据. 同时，本文还分析了电负性气体放电过程中的不稳定性现象，及其对放电特性的影响. 这些研究成果不仅深化了我们对复杂等离子体物理本质的理解，还为调节复杂等离子体参数、控制尘埃颗粒分布提供了重要的理论指导.

本文还详细介绍了可用于复杂等离子体模拟的数值模型, 并给出相应的计算结果. 尘埃颗粒的存在被证实能显著改变等离子体的基本特性，包括电子密度、

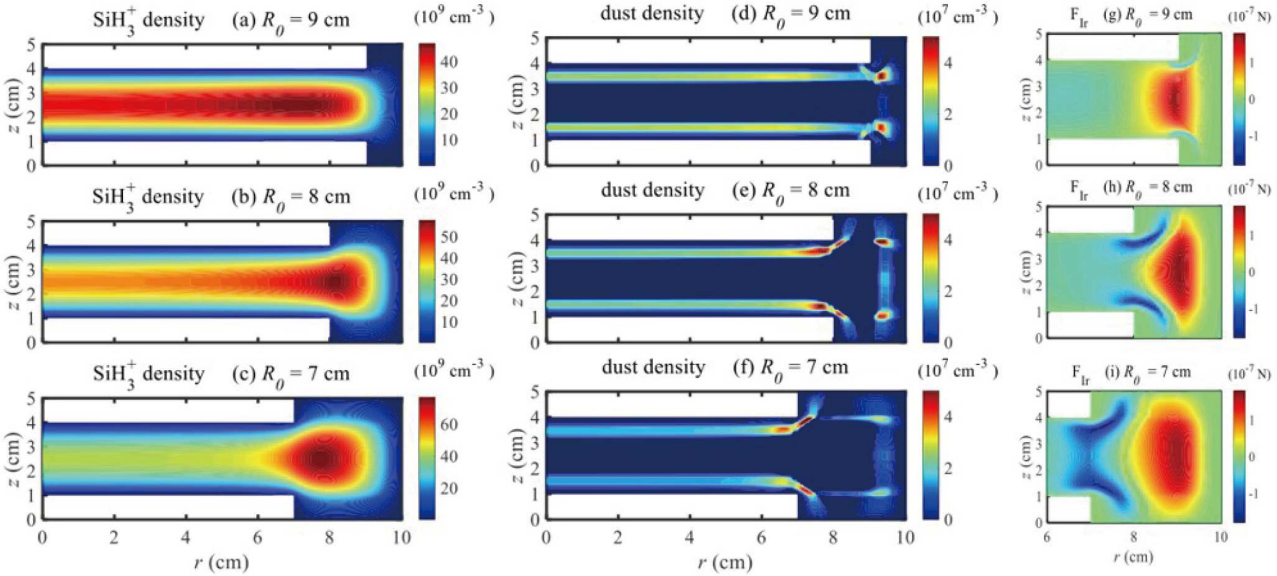

图 14　(网络版彩图)不同腔室结构情况下离子密度(a)–(c)、尘埃密度(d)–(f)和离子拖拽力(g)–(i)的空间分布[51]

Figure 14　(Color online) Spatial distributions of the ion density (a)–(c), dust density (d)–(f) and ion drag force (g)–(i) in different chamber structures [51].

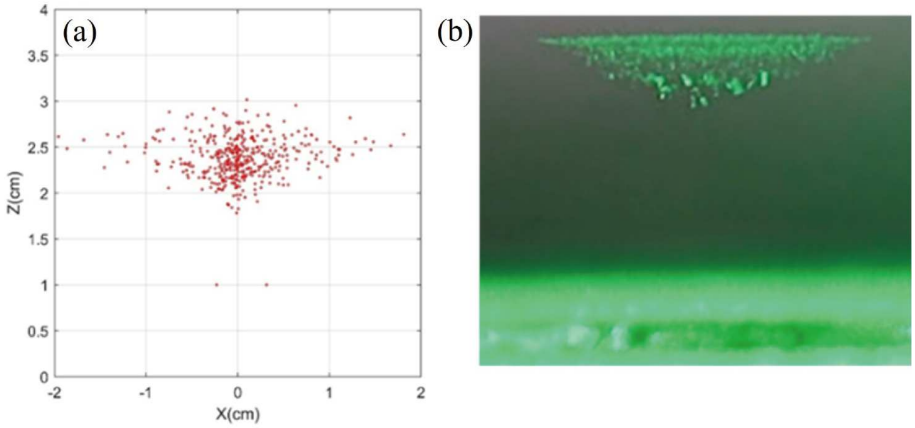

图 15　(网络版彩图)相同腔室结构下模拟计算(a)和实验拍摄(b)的尘埃空间分布
Figure 15　(Color online) Simulation (a) and experimental (b) results of the spatial distribution of dust particles in the same chamber structure.

电子温度以及加热机制等. 最后, 文章分析了影响尘埃颗粒空间分布的多种因素, 如电场、离子拖拽力以及腔室结构等.

然而, 仍有许多问题值得进一步研究: 微重力状态或重力可忽略状态下, 尘埃颗粒分布于整个放电区域时, 放电是否会出现新的放电模式或物理问题? 脉冲调制射频复杂等离子体瞬态放电过程中, 尘埃颗粒的充放电、相互作用和其他集体行为等物理过程如何演变? 双频、裁剪波形电压驱动的复杂等离子体放电过程中, 高次谐波、电磁效应如何影响复杂等离子体的轴向非对称性、径向非均匀性以及尘埃输运? 在不同产生方式和放电模式下, 复杂等离子体中放电不稳定性、尘埃空洞、涡旋等现象会如何影响尘埃颗粒的充放电、输运以及其他尘埃自组织行为?

此外, 复杂等离子体研究的应用前景也值得关注. 例如, 在半导体制造、航天器表面防护以及新型材料合成等领域, 对复杂等离子体的深入理解可能带来革命性的技术突破. 总之, 复杂电负性容性耦合等离子体放电的研究仍然是充满挑战和机遇的领域. 通过不断深化理论研究、改进实验技术和发展数值模拟方法, 我们有望在未来取得更多突破性的发现, 为相关科技领域的发展作出重要贡献.

参考文献

1 Fortov V, Ivlev A, Khrapak S, et al. Complex (dusty) plasmas: Current status, open issues, perspectives. Phys Rep, 2005, 421: 1–103
2 Pagán Muñoz J H, Wang X, Horányi M, et al. Charging and mobilization of dust particles on a surface in plasma. Phys Rev Lett, 2024, 133: 115301
3 Verma D, Malik H K. Analysis of dust charge fluctuations with double-ionized ions and plasma oscillations/instabilities in hall thrusters. Vacuum, 2024, 220: 112866
4 Mulsow M, Himpel M, Melzer A. Analysis of 3D vortex motion in a dusty plasma. Phys Plasmas, 2017, 24: 123704
5 Liang C, Huang D, Lu S, et al. Determining global property of dusty plasma from single particle dynamics using machine learning. Phys Rev Res, 2023, 5: 033086
6 Choudhary M, Bergert R, Mitic S, et al. Three-dimensional dusty plasma in a strong magnetic field: Observation of rotating dust tori. Phys Plasmas, 2020, 27: 063701
7 Kumar K, Bandyopadhyay P, Singh S, et al. Reflection of a dust acoustic solitary wave in a dusty plasma. Phys Plasmas, 2021, 28: 103701
8 Choudhury M. Propagation of arbitrary amplitude dust acoustic (DA) waves in a magnetized plasma with non-thermal electrons and ions. Braz J Phys, 2023, 53: 110
9 Trukhachev F M, Boltnev R E, Alekseevskaya A A, et al. Dust-acoustic waves in weakly coupled (gaseous) cryogenic dusty plasma. Phys Plasmas, 2021, 28: 093701

10 Mikikian M, Couëdel L, Cavarroc M, et al. Self-excited void instability in dusty plasmas: Plasma and dust cloud dynamics during the heartbeat instability. New J Phys, 2007, 9: 268

11 Pikalev A, Pustylnik M, Räth C, et al. Heartbeat instability as auto-oscillation between dim and bright void regimes. Phys Rev E, 2021, 104: 045212

12 Heidemann R J, Couëdel L, Zhdanov S K, et al. Comprehensive experimental study of heartbeat oscillations observed under microgravity conditions in the PK-3 Plus laboratory on board the international space station. Phys Plasmas, 2011, 18: 053701

13 Arumugam S, Bandyopadhyay P, Singh S, et al. DPEx-II: A new dusty plasma device capable of producing large sized DC coulomb crystals. Plasma Sour Sci Technol, 2021, 30: 085003

14 Singh S, Bandyopadhyay P, Kumar K, et al. Square lattice formation in a monodisperse complex plasma. Phys Rev Lett, 2022, 129: 115003

15 Hariprasad M G, Bandyopadhyay P, Arora G, et al. Experimental observation of a dusty plasma crystal in the cathode sheath of a DC glow discharge plasma. Phys Plasmas, 2018, 25: 123704

16 Bailung Y, Deka T, Boruah A, et al. Characteristics of dust voids in a strongly coupled laboratory dusty plasma. Phys Plasmas, 2018, 25: 053705

17 van de Wetering F M J H, Brooimans R J C, Nijdam S, et al. Fast and interrupted expansion in cyclic void growth in dusty plasma. J Phys D-Appl Phys, 2015, 48: 035204

18 Wang Y, Zhu X, Chen Z, et al. Numerical study on the influence of electron temperature on void formation in dusty plasma. Phys Scr, 2020, 95: 055606

19 Pustylnik M Y, Pikalev A A, Zobnin A V, et al. Physical aspects of dust-plasma interactions. Contrib Plasma Phys, 2021, 61: e202100126

20 Maity S, Arora G. Parametric decay induced first-order phase transition in two-dimensional Yukawa crystals. Sci Rep, 2022, 12: 20430

21 Hariprasad M G, Bandyopadhyay P, Arora G, et al. Experimental observation of a first-order phase transition in a complex plasma monolayer crystal. Phys Rev E, 2020, 101: 043209

22 Naumkin V N, Lipaev A M, Molotkov V I, et al. Crystal-liquid phase transitions in three-dimensional complex plasma under microgravity conditions. J Phys-Conf Ser, 2018, 946: 012144

23 Selwyn G S, McKillop J S, Haller K L, et al. *In situ* plasma contamination measurements by HeNe laser light scattering: A case study. J Vacuum Sci Tech A-Vacuum Surfs Films, 1990, 8: 1726–1731

24 Fedoseev A V, Sukhinin G I, Dosbolayev M K, et al. Dust-void formation in a dc glow discharge. Phys Rev E, 2015, 92: 023106

25 Melzer A. Physics of Dusty Plasmas: An Introduction. Cham: Springer, 2019

26 Thoma M H, Thomas H M, Knapek C A, et al. Complex plasma research under microgravity conditions. npj Microgr, 2023, 9: 13

27 Thomas H M, Morfill G E, Fortov V E, et al. Complex plasma laboratory PK-3 plus on the international space station. New J Phys, 2008, 10: 033036

28 Schulze J, Derzsi A, Dittmann K, et al. Ionization by drift and ambipolar electric fields in electronegative capacitive radio frequency plasmas. Phys Rev Lett, 2011, 107: 275001

29 Schulze J, Donkó Z, Derzsi A, et al. The effect of ambipolar electric fields on the electron heating in capacitive RF plasmas. Plasma Sour Sci Technol, 2014, 24: 015019

30 Derzsi A, Schüngel E, Donkó Z, et al. Electron heating modes and frequency coupling effects in dual-frequency capacitive CF_4 plasmas. Open Chem, 2015, 13: 346–361

31 Gao Z Y, Dong W, Tian C B, et al. Discharge mode and particle transport in radio frequency capacitively coupled Ar/O_2 plasma discharges. Chin Phys B, 2024, 33: 095203

32 Liu Y X, Schüngel E, Korolov I, et al. Experimental observation and computational analysis of striations in electronegative capacitively coupled radio-frequency plasmas. Phys Rev Lett, 2016, 116: 255002

33 Wang L, Wen D Q, Zhang Q Z, et al. Disruption of self-organized striated structure induced by secondary electron emission in capacitive oxygen discharges. Plasma Sour Sci Technol, 2019, 28: 055007

34 Tian C B, Wang L, Vass M, et al. The detachment-induced mode in electronegative capacitively coupled radio-frequency plasmas. Plasma Sour Sci Technol, 2024, 33: 075008

35 Heil B G, Czarnetzki U, Brinkmann R P, et al. On the possibility of making a geometrically symmetric RF-CCP discharge electrically asymmetric. J Phys D-Appl Phys, 2008, 41: 165202

36 Zhang Y F, Dong W, Jia W Z, et al. Hybrid simulation of a capacitive Ar/SiH_4 discharge driven by electrically asymmetric voltage waveforms. J

Phys D-Appl Phys, 2024, 57: 415205
37 De Bleecker K, Bogaerts A, Gijbels R, et al. Numerical investigation of particle formation mechanisms in silane discharges. Phys Rev E, 2004, 69: 056409
38 Kushner M J. Mechanisms for power deposition in Ar/SiH_4 capacitively coupled RF discharges. IEEE Trans Plasma Sci, 1986, 14: 188–196
39 Yang S, Zhang Y, Wang H, et al. Magnetical asymmetric effect in geometrically and electrically symmetric capacitively coupled plasma. Plasma Process Polyms, 2017, 14: 1700087
40 Oberberg M, Kallähn J, Awakowicz P, et al. Experimental investigations of the magnetic asymmetry effect in capacitively coupled radio frequency plasmas. Plasma Sour Sci Technol, 2018, 27: 105018
41 Trieschmann J, Shihab M, Szeremley D, et al. Ion energy distribution functions behind the sheaths of magnetized and non-magnetized radio frequency discharges. J Phys D-Appl Phys, 2013, 46: 084016
42 Yang S, Chang L, Zhang Y, et al. Magnetical asymmetry effect in capacitively coupled plasmas: Effects of the magnetic field gradient, pressure, and gap length. Plasma Sour Sci Technol, 2018, 27: 035008
43 Wang L, Wen D Q, Hartmann P, et al. Electron power absorption dynamics in magnetized capacitively coupled radio frequency oxygen discharges. Plasma Sour Sci Technol, 2020, 29: 105004
44 Wang L, Vass M, Donkó Z, et al. Electropositive core in electronegative magnetized capacitive radio frequency plasmas. Plasma Sour Sci Technol, 2022, 31: 06LT01
45 Wang L, Hartmann P, Donkó Z, et al. 2D particle-in-cell simulations of charged particle dynamics in geometrically asymmetric low pressure capacitive RF plasmas. Plasma Sour Sci Technol, 2021, 30: 085011
46 Wang L, Hartmann P, Donkó Z, et al. 2D particle-in-cell simulations of geometrically asymmetric low-pressure capacitive RF plasmas driven by tailored voltage waveforms. Plasma Sour Sci Technol, 2021, 30: 054001
47 Dong W, Zhang Y F, Dai Z L, et al. Hybrid simulation of instabilities in capacitively coupled RF CF_4/Ar plasmas. Plasma Sour Sci Technol, 2022, 31: 025006
48 Dong W, Zhang Y F, Schulze J, et al. Hybrid simulation of instabilities in capacitively coupled RF CF_4/Ar plasmas driven by a dual frequency source. Plasma Sour Sci Technol, 2024, 33: 025020
49 Jia W Z, Wang X F, Song Y H, et al. Two-dimensional fluid simulation on transient behavior and plasma uniformity in pulsed RF CCP sustained in SiH_4 /N_2/O_2. J Phys D-Appl Phys, 2017, 50: 165206
50 Jia W Z, Liu R Q, Wang X F, et al. Two-dimensional fluid simulation of a radio frequency capacitively coupled plasma in SiH_4/N_2/O_2. Phys Plasmas, 2018, 25: 093501
51 Duan M Y, Jia W Z, Zhang Y Y, et al. Two-dimensional fluid simulation of spatial distribution of dust particles in a capacitively coupled silane plasma. Acta Phys Sin, 2023, 72: 165202
52 Mott-Smith H M, Langmuir I. The theory of collectors in gaseous discharges. Phys Rev, 1926, 28: 727–763
53 Jia W Z, Zhang Q Z, Wang X F, et al. Effect of dust particle size on the plasma characteristics in a radio frequency capacitively coupled silane plasma. J Phys D-Appl Phys, 2019, 52: 015206

Simulation of discharge modes of complex electronegativity capacitively coupled plasma

ZHANG Yi-Fan[1], JIA Wen-Zhu[2], WANG Li[3], DONG Wan[1,3], TIAN Chong-Biao[1,3], HUANG Yu-Feng[1] & SONG Yuan-Hong[1*]

[1] *School of Physics, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China*
[2] *College of Artificial Intelligence, Southwest University, Chongqing 400715, China*
[3] *Department of Electrical Engineering and Information Science, Ruhr-University Bochum, Bochum D-44780, Germany*
**Corresponding author (email: songyh@dlut.edu.cn)*

In the context of microgravity environments in space, and for nanoscale particles where gravitational effects are negligible, the dust particles are not only distributed near the sheath, but also may be distributed in the bulk region. In this case, the interactions between electrons, ions and dust particles in complex plasmas become significantly more complicated, requiring careful consideration of plasma discharge modes and state changes. In particular, dust particles adsorb a large number of electrons, giving complex plasmas discharge characteristics similar to those of strongly electronegative gases. This paper first reviews some key advances in recent research on capacitively coupled electronegative plasmas, including discharge mode transitions, asymmetry issues and plasma instabilities. Particular emphasis is placed on various methods of controlling plasma discharges, which provide a basis for the study of complex plasmas. In addition, several numerical simulation methods for the study of complex plasmas that take into account interactions between plasmas and dust particles are discussed. Finally, some recent preliminary findings are presented, including the effect of dust particle size on discharge modes, changes in the spatial distribution of dust particles within different chamber structures, and the conical distribution of dust particles over hole structures observed in experiments and simulations.

complex plasma, dusty plasma, electronegative capacitively coupled plasma, discharge mode

PACS: 52.65.-y, 52.27.Lw, 52.27.Cm, 52.50.Qt

doi: 10.1360/SSPMA-2024-0500