

УДК 533.915

**АМБИПОЛЯРНАЯ ДИФФУЗИЯ В ПЛАЗМЕ, СОСТОЯЩЕЙ ИЗ ЭЛЕКТРОНОВ,
ОТРИЦАТЕЛЬНЫХ ИОНОВ И ДВУХ СОРТОВ ПОЛОЖИТЕЛЬНЫХ ИОНОВ****В.А. Лисовский**^{1,2}¹ Харьковський національний університет
61022, Харків, пл. Свободи 4, Україна² Научний фізико-технологічний центр МОН і НАН України
Харків, 61022, пл. Свободи, 6, Україна
e-mail: lisovskiy@yahoo.com

Received 8 April 2012, accepted 18 May 2012

В данной работе исследована амбиполярная диффузия в электроотрицательной плазме. Рассмотрен случай плазмы, содержащей электроны, один сорт отрицательных ионов и два сорта положительных ионов. Получены формулы для коэффициента амбиполярной диффузии, которые в предельных случаях (один сорт отрицательных ионов, электроположительная плазма) приводятся к хорошо известным результатам. Показано, что в плазме с плотностью отрицательных ионов, более чем в 10 раз превышающей плотность электронов, необходимо учитывать подвижность отрицательных и положительных ионов. Выяснено, что в сильно электроотрицательной плазме диффузия перестает быть амбиполярной, коэффициенты амбиполярной диффузии заряженных частиц примерно равны их коэффициентам свободной диффузии.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: амбиполярная диффузия, отрицательные ионы, положительные ионы, электроотрицательная плазма.

**AMBIPOLAR DIFFUSION IN A PLASMA CONSISTING OF ELECTRONS,
NEGATIVE IONS AND TWO TYPES OF POSITIVE IONS****V.A. Lisovskiy**^{1,2}¹ Kharkov National University

61022, Kharkov, Svobody sq. 4, Ukraine

² Scientific Center of Physical Technologies
Kharkiv, 61022, Svoboda Sq., 6, Ukraine

In this work we investigated the ambipolar diffusion in electronegative plasma. The case of a plasma containing electrons, one kind of negative ions and two kinds of positive ions is considered. The formulas for the coefficient of ambipolar diffusion are obtained, which in extreme cases (one kind of negative ions, electropositive plasma) give the well-known results. It is shown that in a plasma with a density of negative ions more than 10 times higher the density of electrons, it is necessary to take into account the mobility of positive and negative ions. It was found that in strongly electronegative plasmas diffusion is no longer ambipolar, the ambipolar diffusion coefficients of charged particles are approximately equal to their free diffusion coefficients.

KEY WORDS: ambipolar diffusion, negative ions, positive ions, electronegative plasma.

**АМБІПОЛЯРНА ДИФУЗІЯ В ПЛАЗМІ, ЩО СКЛАДАЄТЬСЯ З ЕЛЕКТРОНІВ,
НЕГАТИВНИХ ІОНІВ І ДВОХ СОРТІВ ПОЗИТИВНИХ ІОНІВ****В.О. Лісовський**^{1,2}¹ Харківський національний університет

61022, Харків, пл. Свободи 4, Україна

² Науковий фізико-технологічний центр МОН і НАН України
Харків, 61022, пл. Свободи, 6, Україна

У цій роботі досліджено амбіполярну дифузію в електронегативній плазмі. Розглянуто випадок плазми, яка містить електрони, один сорт негативних іонів і два сорти позитивних іонів. Отримано формули для коефіцієнта амбіполярної дифузії, які в граничних випадках (один сорт негативних іонів, електропозитивна плазма) приводяться до добре відомих результатів. Показано, що в плазмі з щільністю негативних іонів, що більш ніж в 10 разів перевищує щільність електронів, необхідно враховувати рухливість негативних і позитивних іонів. З'ясовано, що в сильно електронегативній плазмі дифузія перестає бути амбіполярною, коефіцієнти амбіполярної дифузії заряджених частинок приблизно дорівнюють їх коефіцієнтам вільної дифузії.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: амбіполярна дифузія, негативні іони, позитивні іони, електронегативна плазма.

В квазинейтральной газоразрядной плазме низкого давления, состоящей из электронов и положительных ионов, наблюдается ионизационно-диффузионное равновесие, т.е. скорость рождения заряженных частиц благодаря ионизации молекул газа электронным ударом равна скорости их ухода на стенки трубки и электроды из-за амбиполярной диффузии [1,2]. При этом возникшее из-за разделения зарядов амбиполярное электрическое поле притормаживает электроны и ускоряет положительные ионы, заставляя их двигаться с одинаковой скоростью. Зная коэффициент амбиполярной диффузии D_a , можно оценить частоту ионизации в плазменном объеме, напряженность электрического поля, температуру электронов, а также поток положительных ионов на стенки, электроды, обрабатываемые материалы и т.д.

В технологических процессах травления, осаждения пленок, плазменной очистки и т.д. обычно

используются электроотрицательные газы, молекулы которых захватывают свободные электроны и формируют отрицательные ионы. Появление отрицательных ионов значительно уменьшает амбиполярный уход заряженных частиц из плазменного объема. Формулы для коэффициента амбиполярной диффузии в случае плазмы, содержащей электроны, а также по одному сорту положительных и отрицательных ионов, были получены в работах [2-8]. Для сильно электроотрицательной плазмы, когда плотность отрицательных ионов гораздо больше, чем электронов, коэффициент амбиполярной диффузии всего лишь вдвое превышает коэффициент свободной диффузии положительных ионов. Таким образом, наличие отрицательных ионов в больших концентрациях значительно уменьшает амбиполярный уход заряженных частиц из плазменного объема, что повышает плотность плазмы.

Однако в газоразрядной плазме одновременно присутствует несколько сортов как положительных, так и отрицательных ионов. Например, в источниках отрицательных ионов водорода при низком давлении обнаружены ионы H^+ , H_2^+ и H^- с небольшой добавкой ионов H_3^+ [9]. При более высоких давлениях водорода преобладающими являются положительные ионы H_3^+ , в то время как концентрации H^+ и H_2^+ пренебрежимо малы [10]. В ВЧ емкостном разряде в хлоре положительными ионами являются Cl_2^+ и Cl^+ , а стабильным отрицательным ионом является Cl^- [11-13]. По два сорта положительных ионов наблюдаются также в различных смесях газов [13]: He/ Cl_2 (He^+ , Cl_2^+ , Cl^-), He/ HCl (He^+ , HCl^+ , Cl^-), He/ CCl_4 (He^+ , CCl_3^+ , Cl^-) и т.д. Поэтому целесообразно провести теоретический анализ процесса амбиполярной диффузии в плазме, содержащей не только электроны и один сорт отрицательных ионов, но и хотя бы два сорта положительных ионов с различными коэффициентами диффузии и подвижностью. Нам не известны работы других авторов, в которых рассматривалась бы плазма с таким сложным составом.

Целью данной работы является построить аналитическую модель для амбиполярной диффузии в квазинейтральной плазме, содержащей один сорт отрицательных ионов, электроны и два сорта положительных ионов, а также провести анализ полученных уравнений.

АНАЛИТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ АМБИПОЛЯРНОЙ ДИФФУЗИИ

Рассмотрим плазму с двумя сортами положительных ионов, а также с одним сортом отрицательных ионов и электронами. Запишем выражения для потоков электронов, отрицательных и положительных ионов:

$$\vec{\Gamma}_e = -D_e \cdot \vec{\nabla} n_e - \mu_e \cdot \vec{E} \cdot n_e, \quad (1)$$

$$\vec{\Gamma}_- = -D_- \cdot \vec{\nabla} n_- - \mu_- \cdot \vec{E} \cdot n_-, \quad (2)$$

$$\vec{\Gamma}_+ = -D_{1+} \cdot \vec{\nabla} n_{1+} - D_{2+} \cdot \vec{\nabla} n_{2+} + \mu_{1+} \cdot \vec{E} \cdot n_{1+} + \mu_{2+} \cdot \vec{E} \cdot n_{2+}, \quad (3)$$

где D и μ - коэффициент диффузии и подвижность, индексы "e", "-", "1+", "2+" относятся к электронам, отрицательным ионам, а также к положительным ионам первого и второго сорта, соответственно, E - напряженность электрического поля. При этом плазма является квазинейтральной:

$$n_{1+} + n_{2+} = n_- + n_e, \quad (4)$$

то есть суммарная плотность всех положительных ионов равна сумме плотностей отрицательных ионов и электронов. Принимаем также, что суммарные потоки положительных и отрицательных заряженных частиц равны:

$$\vec{\Gamma}_+ = \vec{\Gamma}_{1+} + \vec{\Gamma}_{2+} = \vec{\Gamma}_- + \vec{\Gamma}_e. \quad (5)$$

Введем коэффициент α , равный отношению плотностей отрицательных ионов и электронов $\alpha = n_-/n_e$. Также будем предполагать, что плотности положительных ионов первого и второго сорта связаны соотношением $n_{2+} = \lambda \cdot n_{1+}$.

Выразим из (1) и (2) напряженность электрического поля E

$$\vec{E} = -\frac{\vec{\Gamma}_- + \vec{\Gamma}_e + D_- \cdot \vec{\nabla} n_- + D_e \cdot \vec{\nabla} n_e}{n_e \cdot (\mu_- \cdot \alpha + \mu_e)}, \quad (6)$$

подставим ее в (3) и получим уравнение для потока положительных ионов:

$$\vec{\Gamma}_+ = -\vec{\nabla} n_{1+} \cdot \frac{(1+\lambda)(\mu_- \cdot \alpha + \mu_e)(D_{1+} + \lambda \cdot D_{2+}) + (1+\alpha)(\mu_{1+} + \lambda \cdot \mu_{2+}) \left[D_- \cdot \left(\frac{\nabla n_-}{\nabla n_{1+}} \right) + D_e \cdot \left(\frac{\nabla n_e}{\nabla n_{1+}} \right) \right]}{(1+\lambda)(\mu_- \cdot \alpha + \mu_e) + (1+\alpha)(\mu_{1+} + \lambda \cdot \mu_{2+})} \quad (7)$$

Далее введем коэффициент $\gamma = T_e/T_i$, равный отношению температур электронов и ионов, при этом считаем температуры всех типов ионов одинаковыми $T_i = T_{1+} = T_{2+} = T_-$.

Пусть плотности электронов и отрицательных ионов подчиняются распределению Больцмана

$$n_e = n_{e0} \cdot \exp\left(\frac{e\Phi(r)}{kT_e}\right), \quad (8)$$

$$n_- = n_{-0} \cdot \exp\left(\frac{e\Phi(r)}{kT_i}\right), \quad (9)$$

где индекс “0” относится к центру разряда (например, в случае ВЧ емкостного разряда) или к оси разрядной трубки (при описании положительного столба разряда постоянного тока). Предположение о бальцмановском равновесии для электронов и отрицательных ионов справедливо только в отсутствие направленных потоков этих заряженных частиц. Однако такой подход часто используется при описании газоразрядной плазмы. Тогда

$$\nabla n_e = n_e \cdot \frac{e\Phi'(r)}{kT_e}, \quad (10)$$

$$\nabla n_- = n_- \cdot \frac{e\Phi'(r)}{kT_i}. \quad (11)$$

Из (10) и (11) следует, что

$$\frac{\nabla n_-}{\nabla n_e} = \alpha \cdot \gamma. \quad (12)$$

Для квазинейтральной плазмы можем написать

$$\nabla n_+ = \nabla n_- + \nabla n_e, \quad (13)$$

при этом

$$\nabla n_+ = \nabla n_{1+} + \nabla n_{2+} = \nabla n_{1+} \cdot (1 + \lambda), \quad (14)$$

$$\nabla n_{1+} = \frac{\nabla n_- + \nabla n_e}{1 + \lambda}. \quad (15)$$

Тогда для отношений градиентов плотностей электронов, отрицательных и положительных ионов легко получить

$$\frac{\nabla n_e}{\nabla n_{1+}} = \frac{1 + \lambda}{\alpha \cdot \gamma + 1}, \quad (16)$$

$$\frac{\nabla n_-}{\nabla n_{1+}} = \frac{\alpha \cdot \gamma \cdot (1 + \lambda)}{\alpha \cdot \gamma + 1}. \quad (17)$$

В дальнейшем будем также использовать соотношение Эйнштейна $D = T \cdot \mu$, которое для каждого сорта заряженных частиц связывает коэффициент диффузии, подвижность и температуру, т.е. $D_e = T_e \cdot \mu_e$, $D_- = T_i \cdot \mu_-$, $D_{1+} = T_i \cdot \mu_{1+}$, $D_{2+} = T_i \cdot \mu_{2+}$.

Подставим (16) и (17) в (7) и после несложных преобразований получим поток положительных ионов

$$\vec{\Gamma}_+ = -D_a \cdot \vec{\nabla} n_+, \quad (18)$$

где D_a – коэффициент амбиполярной диффузии

$$D_a = (D_{1+} + \lambda \cdot D_{2+}) \cdot \frac{1 + \gamma + 2 \cdot \alpha \cdot \gamma}{(1 + \alpha \cdot \gamma) \cdot \{1 + \lambda + (1 + \alpha) \cdot (\mu_{1+} + \lambda \cdot \mu_{2+}) / [\mu_- \cdot \alpha + \mu_e]\}}. \quad (19)$$

В случае не очень больших α , когда $\mu_e \gg \alpha \cdot \mu_-$ с учетом большой подвижности электронов по сравнению с положительными ионами $\mu_e \gg \mu_{1+}, \mu_{2+}$ из уравнения (19) следует:

$$D_a = \frac{D_{1+} + \lambda \cdot D_{2+}}{1 + \lambda} \cdot \frac{1 + \gamma + 2 \cdot \alpha \cdot \gamma}{1 + \alpha \cdot \gamma}. \quad (20)$$

Если в плазме присутствует только один сорт положительных ионов, т.е. при $\lambda = 0$, то (19, 20) принимают общепринятый вид [2-8]:

$$D_a = D_{1+} \cdot \frac{1 + \gamma + 2 \cdot \alpha \cdot \gamma}{(1 + \alpha \cdot \gamma) \cdot \{1 + (1 + \alpha) \cdot \mu_{1+} / (\mu_- \cdot \alpha + \mu_e)\}}, \quad (21)$$

$$D_a = D_{1+} \cdot \frac{1 + \gamma + 2\alpha \cdot \gamma}{1 + \alpha \cdot \gamma} \quad (22)$$

Обычно в плазме высокочастотного емкостного разряда, а также в положительном столбе тлеющего разряда постоянного тока температура ионов близка к температуре молекул нейтрального газа и значительно меньше температуры электронов, т.е. $\gamma = T_e/T_i \gg 1$. Тогда при достаточно большой концентрации отрицательных ионов α (при выполнении соотношения $\mu_e \gg \alpha \cdot \mu_-$) коэффициент амбиполярной диффузии в плазме с отрицательными ионами вдвое больше коэффициента свободной диффузии положительных ионов, т.е. $D_a = 2 \cdot D_{1+}$.

Если концентрация положительных ионов второго сорта значительно больше, чем первого, т.е. $\lambda \gg 1$, то из (20) имеем коэффициент амбиполярной диффузии

$$D_a = D_{2+} \cdot \frac{1 + \gamma + 2\alpha \cdot \gamma}{1 + \alpha \cdot \gamma} \quad (23)$$

В электроположительной плазме, когда $\alpha = 0$, формула (20) принимает вид

$$D_a = \frac{D_{1+} + \lambda \cdot D_{2+}}{1 + \lambda} \cdot (1 + \gamma) \quad (24)$$

Для электроположительной плазмы с одним сортом положительных ионов из (24) получаем хорошо известное выражение для коэффициента амбиполярной диффузии $D_a = D_{1+} \cdot (1 + \gamma)$ [1,2].

В другом предельном случае, когда $\mu_e \ll \alpha \cdot \mu_-$, формула (19) преобразуется к виду

$$D_a \approx (D_{1+} + \lambda \cdot D_{2+}) \cdot \frac{2}{1 + \lambda + (\mu_{1+} + \lambda \cdot \mu_{2+})/\mu_-} \quad (25)$$

В электроотрицательной плазме с одним сортом положительных ионов имеем

$$D_a \approx D_{1+} \cdot \frac{2}{1 + (\mu_{1+}/\mu_-)} \quad (26)$$

Так как подвижности положительных и отрицательных ионов сравнимы по величине, то при $\mu_e \ll \alpha \cdot \mu_-$ имеем соотношение $D_a \approx D_{1+}$, т.е. в сильно электроотрицательной плазме коэффициент амбиполярной диффузии положительных ионов примерно равен коэффициенту свободной диффузии положительных ионов.

До этого мы рассматривали только амбиполярную диффузию положительных ионов согласно уравнению (8). Теперь выясним, какими становятся коэффициенты отрицательных ионов и электронов в сильно электроотрицательной плазме. Автор [14] разработал аналитическую теорию, подобную нашей, для квазинейтральной плазмы, содержащей электроны и по одному сорту положительных и отрицательных ионов, и получил выражения для потоков и коэффициентов амбиполярной диффузии для всех трех сортов заряженных частиц. Для положительных ионов уравнение для коэффициент амбиполярной диффузии, приведенное в [14], совпадает с нашим (21). Для отрицательных ионов и электронов коэффициенты амбиполярной диффузии [14] равны, соответственно:

$$D_{a-} = D_+ \cdot \frac{1}{\gamma} \cdot \frac{\mu_-}{\mu_e} \cdot \frac{1 + \gamma + 2\alpha\gamma}{1 + \mu_+ \cdot (1 + \alpha)/\mu_e + \alpha \cdot \mu_-/\mu_e}, \quad (27)$$

$$D_{ae} = D_+ \cdot \frac{1 + \gamma + 2\alpha\gamma}{1 + \mu_+ \cdot (1 + \alpha)/\mu_e + \alpha \cdot \mu_-/\mu_e}, \quad (28)$$

где D_+ - коэффициент свободной диффузии положительных ионов. Уравнение (27) после простых преобразований принимает вид

$$D_{a-} = D_+ \cdot \frac{1 + \gamma + 2\alpha\gamma}{\alpha\gamma} \cdot \frac{1}{1 + \mu_+/\mu_- + \mu_e/(\alpha \cdot \mu_-) + \mu_+/(\alpha \cdot \mu_-)}, \quad (29)$$

в котором двумя последними членами в знаменателе второй дроби при $\mu_e \ll \alpha \cdot \mu_-$ и $\alpha \gg 1$ можно пренебречь, что дает

$$D_{a-} \approx D_+ \cdot \frac{1 + \gamma + 2\alpha\gamma}{\alpha\gamma} \cdot \frac{1}{1 + \mu_+/\mu_-} \approx D_+ \cdot \frac{2}{1 + \mu_+/\mu_-} \approx D_+ \approx D_-, \quad (30)$$

так как положительные и отрицательные ионы имеют одинаковые температуры и близкие подвижности и коэффициенты свободной диффузии.

В свою очередь, уравнение (28) при $\mu_e \ll \alpha \cdot \mu_-$ и $\mu_e \ll \alpha \cdot \mu_+$ преобразуется к виду:

$$D_{ae} \approx D_+ \cdot 2\gamma \cdot \frac{\mu_e}{\mu_- + \mu_+} \approx \frac{D_+}{\mu_+} \cdot \frac{T_e}{T_i} \cdot \frac{2\mu_e}{1 + \mu_-/\mu_+} \approx \frac{2D_e}{1 + \mu_-/\mu_+} \approx D_e. \quad (31)$$

Из полученных нами уравнений (26), (30) и (31) следует, что в сильно электроотрицательной плазме, когда не только $\alpha \gg 1$, но и $\mu_e \ll \alpha \cdot \mu_-$, коэффициенты амбиполярной диффузии положительных и отрицательных ионов, а также электронов близки к коэффициентам их свободной диффузии. То есть, в сильно электроотрицательной плазме диффузия перестает быть амбиполярной (даже при большой плотности плазмы), а становится свободной, т.е. заряженные частицы разных сортов и знаков перестают влиять на диффузионное движение друг друга.

АНАЛИЗ ПОЛУЧЕННЫХ УРАВНЕНИЙ ДЛЯ КОЭФФИЦИЕНТА АМБИПОЛЯРНОЙ ДИФФУЗИИ

Для начала рассмотрим случай, когда плазма содержит положительные ионы двух сортов с сильно различающимися подвижностями μ_{1+} , μ_{2+} и коэффициентами диффузии D_{1+} , D_{2+} . Пусть в гелии имеется небольшая добавка кислорода. В такой смеси обычно присутствуют положительные атомарные ионы гелия He^+ (для которых $\mu_{1+} = 7,9 \cdot 10^3 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$, $D_{1+} = 205,5 \text{ см}^2/\text{с}$), молекулярные ионы кислорода O_2^+ (подвижность и коэффициент диффузии которых в гелии равны $\mu_{2+} = 1,596 \cdot 10^4 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$, $D_{2+} = 415 \text{ см}^2/\text{с}$), отрицательные ионы O^- (подвижность которых в гелии равна $\mu_- = 1,672 \cdot 10^4 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$), а также электроны с подвижностью в гелии $\mu_e = 8,6 \cdot 10^5 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$. Подвижность электронов была взята из книги [1], а подвижности положительных и отрицательных ионов в гелии - из [15].

На рис.1 представлены результаты расчета для He/O_2 смеси, полученные с помощью формулы (20), для температуры электронов $T_e = 5 \text{ эВ}$ ($\gamma = T_e/T_i = 192,3$) и величин $\alpha = 10$ и 100 . Из рисунка видно, что с ростом параметра λ (отношения концентраций положительных ионов второго и первого сорта) коэффициент амбиполярной диффузии D_a монотонно изменяется от значения, определяемого уравнением (22) (когда имеются только ионы первого сорта), до величины D_a для ионов второго сорта, которую можно определить с помощью уравнения (23). Увеличение параметра α приводит к уменьшению коэффициента амбиполярной диффузии.

На рис.2 показаны подобные зависимости, но уже для $T_e = 1 \text{ эВ}$ ($\gamma = T_e/T_i = 38,5$) и широкого диапазона величин $\alpha = 0 \div 100$. Максимальный коэффициент амбиполярной диффузии наблюдается при полном отсутствии отрицательных ионов ($\alpha = 0$), но даже небольшие концентрации отрицательных ионов в плазме приводят к значительному уменьшению коэффициента D_a . Например, присутствие всего одного отрицательного иона на 10 электронов ($\alpha = 0,1$) понижает коэффициент амбиполярной диффузии в 14 раз по сравнению со случаем отсутствия отрицательных ионов в плазме. Но дальнейшее повышение величины α приводит к тому, что зависимости $D_a(\lambda)$ для больших α практически накладываются.

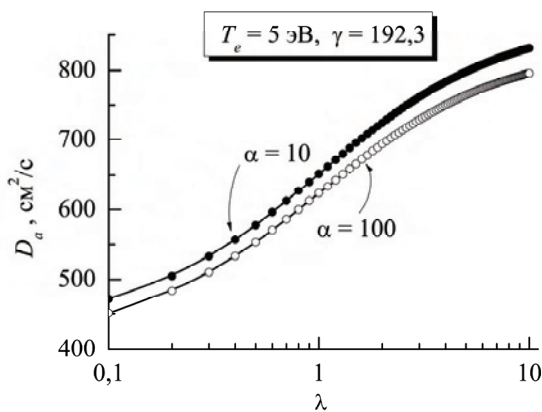


Рис.1. Зависимость коэффициента амбиполярной диффузии от параметра λ для He/O_2 смеси при температуре электронов $T_e = 5 \text{ эВ}$ ($\gamma = 192,3$) для двух величин $\alpha = 10$ и 100 . Расчет с помощью формулы (20).

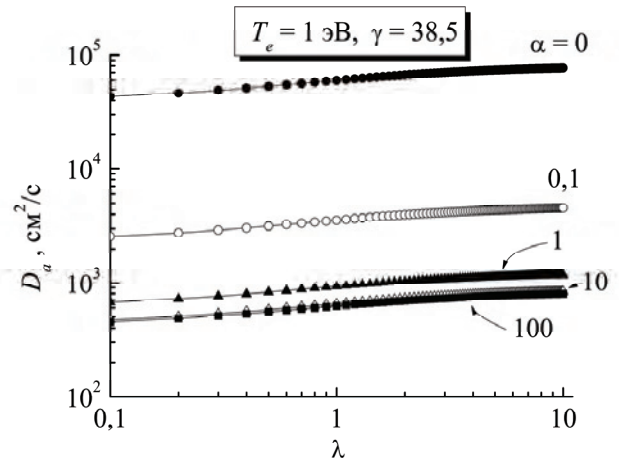


Рис.2. Зависимость коэффициента амбиполярной диффузии от параметра λ для He/O_2 смеси при температуре электронов $T_e = 1 \text{ эВ}$ ($\gamma = 38,5$) для величин $\alpha = 0, 0,1, 1, 10$ и 100 . Расчет с помощью формулы (20).

Если зафиксировать параметр λ , то при малых α коэффициент амбиполярной диффузии максимален и с ростом α быстро уменьшается, достигая при больших α насыщения (рис.3). В случае плазмы с двумя сортами положительных ионов величина D_a при этом равна

$$D_a = 2 \cdot \frac{D_{1+} + \lambda \cdot D_{2+}}{1 + \lambda}. \quad (32)$$

Если $D_{1+} < D_{2+}$, то при более высоких λ зависимость $D_a(\alpha)$ проходит выше, чем для $\lambda = 0$. Но при $\lambda > 10$

зависимости $D_a(\alpha)$ практически накладываются, а величина коэффициента амбиполярной диффузии определяется уравнением (23).

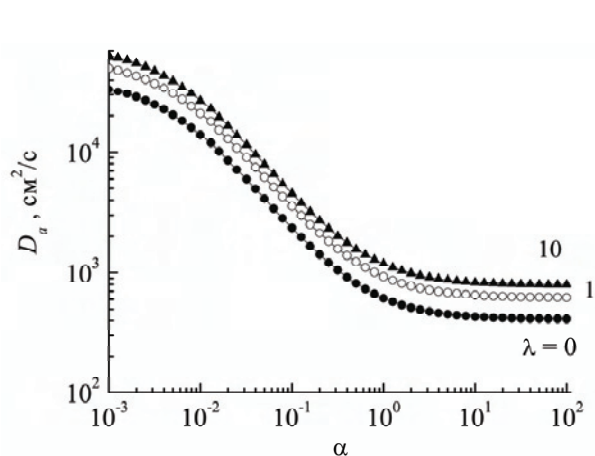


Рис.3. Зависимость коэффициента амбиполярной диффузии от параметра α для He/O₂ смеси при температуре электронов $T_e = 5$ эВ для величин $\lambda = 0, 1$ и 10 . Расчет с помощью формулы (20).

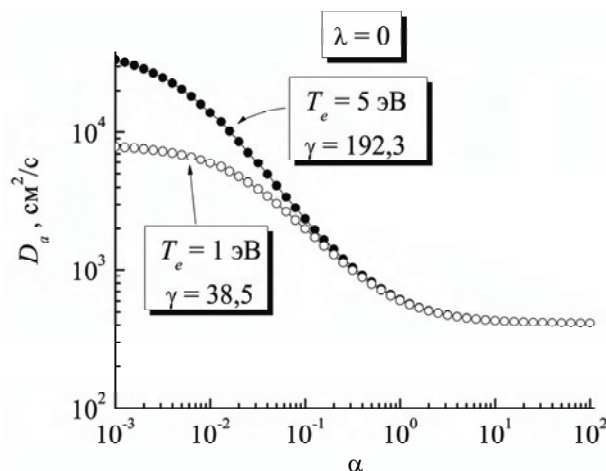


Рис.4. Зависимость коэффициента амбиполярной диффузии от параметра α для He/O₂ смеси при температуре электронов $T_e = 1$ эВ и $T_e = 5$ эВ для $\lambda = 0$. Расчет с помощью формулы (20).

На рис.4 показаны зависимости $D_a(\alpha)$ в случае присутствия в плазме только одного сорта положительных ионов ($\lambda = 0$) для двух разных значений $\gamma = T_e/T_i = 192,3$ ($T_e = 5$ эВ) и $\gamma = 38,5$ ($T_e = 1$ эВ). Для малых α эти две зависимости различаются, коэффициент амбиполярной диффузии выше при более высоких γ . С дальнейшим увеличением α эти кривые сближаются и при $\alpha > 1$ величина электронной температуры T_e практически не влияет на процесс амбиполярной диффузии.

Теперь выясним, когда можно применять простую формулу (20) для описания амбиполярной диффузии в электроотрицательной плазме, и когда она не справедлива и нужно использовать формулу (19). Напомним, что формула (20) была получена авторами [2-8] из (19) для случая $\mu_e \gg \alpha \cdot \mu_-$. В настоящей работе рассмотрен также другой предельный случай, когда $\mu_e \ll \alpha \cdot \mu_-$. Оценим величину отношения подвижностей μ_e/μ_- для рассматриваемой нами смеси гелия с кислородом. Из приведенных выше значений подвижностей электронов и отрицательных ионов в гелии имеем $\mu_e/\mu_- = 50,6$. Очевидно, что формула (20) начнет давать завышенные результаты для D_a уже при заметно меньших величинах α . Для простоты снова примем, что в плазме имеется только один сорт положительных ионов, т.е. $\lambda = 0$, а температура электронов $T_e = 5$ эВ ($\gamma = T_e/T_i = 192,3$). На Рис.5 показаны две кривые, полученные с помощью формул (21) и (22). Эти кривые практически совпадают при низких $\alpha \leq 1$, но дальнейшее увеличение α приводит к тому, что кривая, полученная с помощью формулы (21), проходит заметно ниже, чем для (22). При больших α кривая для (22) стремится к значению $D_a = 2 \cdot D_{1+}$. Очевидно, что в случае больших α коэффициент амбиполярной диффузии на самом деле меньше, чем удвоенный коэффициент свободной диффузии положительных ионов.

Теперь рассмотрим амбиполярную диффузию в сильно электроотрицательном газе SF₆ [16]. Этот газ хорошо исследован, основными положительными ионами в газоразрядной плазме в нем являются SF₅⁺ ($\mu_{1+} = 449,2$ см²/(В·с), $D_{1+} = 11,68$ см²/с) и SF₃⁺ ($\mu_{2+} = 494,8$ см²/(В·с), $D_{2+} = 12,86$ см²/с), основной отрицательный ион SF₆⁻ ($\mu_- = 411,9$ см²/(В·с)), а подвижность электронов в нем равна $\mu_e = 1,16 \cdot 10^5$ см²/(В·с)). Значения подвижности и коэффициента диффузии для положительных и отрицательных ионов были взяты из работ [17-19]. Подвижность электронов была определена для приведенного электрического поля $E/p = 174,6$ В/(см Торр), когда частоты ионизации и прилипания электронов к молекулам одинаковы (именно этот случай обычно наблюдается в положительном столбе разряда постоянного тока в SF₆, а также в ВЧ емкостном разряде). На Рис.6 приведены зависимости коэффициента амбиполярной диффузии от α , полученные с помощью формул (21) и (22). Из рисунка видно, что кривые, полученные с помощью этих формул, близки в диапазоне $\alpha \leq 10$. При повышении α кривая, рассчитанная по формуле (22), асимптотически стремится к значению $D_a = 2 \cdot D_{1+}$. Однако кривая для (21) при больших α близка к $D_a = D_{1+}$. В работе [16] приводятся данные зондовых измерений в в ВЧ емкостном разряде SF₆, из которых следует, что $\alpha = 300-5000$. Как видно из Рис.6, при использовании простой формулы (22) полученный коэффициент амбиполярной диффузии оказывается примерно в 2 раза выше, чем реально имеющий место в газовом разряде в SF₆ и определенный с помощью формулы (21). Поэтому использование формулы (22), а также $D_a = 2 \cdot D_{1+}$, несмотря на их удобство, приводит к некорректным результатам.

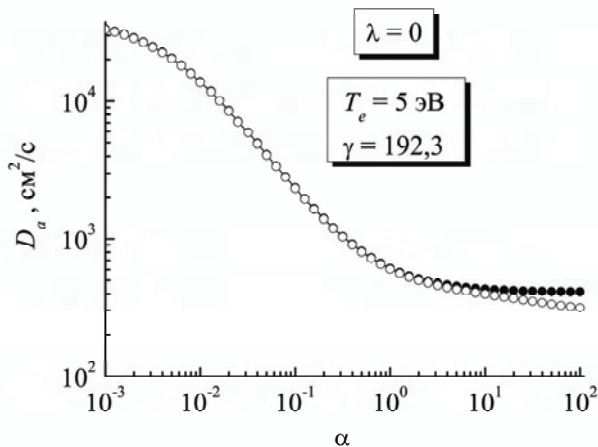


Рис.5. Зависимость коэффициента амбиполярной диффузии от параметра α для He/O₂ смеси при температуре электронов $T_e = 5$ эВ для $\lambda = 0$. Расчет с помощью формул (21) (окружности) и (22) (точки).

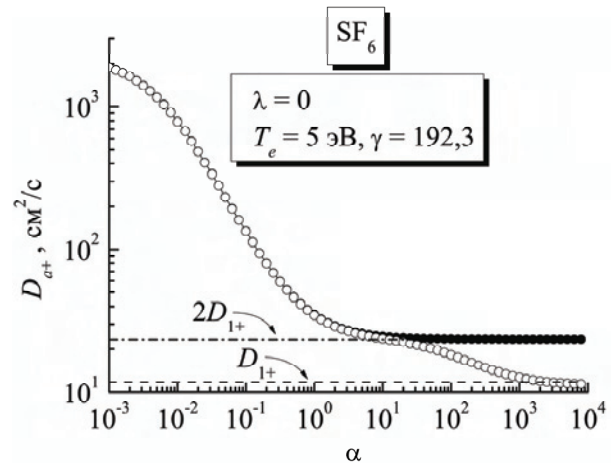


Рис.6. Зависимость коэффициента амбиполярной диффузии от параметра α для SF₆ при температуре электронов $T_e = 5$ эВ для $\lambda = 0$. Расчет с помощью формул (21) (окружности) и (22) (точки).

Следующим рассмотрим слабо электроотрицательный кислород. Основными отрицательными ионами в нем являются O⁻ [21] (с подвижностью в собственном газе ($\mu_- = 2,43 \cdot 10^3$ см²/(В·с) [15]), концентрации ионов O₂⁻ и O₃⁻ не превышают 10–20 % от общей плотности отрицательных ионов. В плазме имеются также электроны ($\mu_e = 1,16 \cdot 10^5$ см²/(В·с)) и два сорта положительных ионов: O₂⁺ ($\mu_{1+} = 1700$ см²/(В·с), $D_{1+} = 45,5$ см²/с) и небольшая добавка O⁺ ($\mu_{2+} = 2430$ см²/(В·с), $D_{2+} = 60,6$ см²/с), которой обычно при гидродинамическом моделировании разряда пренебрегают. Сведения о величине α , приведенные в литературе, значительно различаются. В кислородном разряде, поддерживаемом СВЧ поверхностной волной [22], при давлении 0,015 Торр получено $\alpha \approx 0,3$. Для ВЧ емкостного разряда при давлениях кислорода 0,1 Торр и 0,2 Торр определены значения $\alpha \leq 0,6$ и $\alpha \leq 1,2$, соответственно [23]. В том же ВЧ емкостном разряде в камере GEC (Gaseous Electronics Conference Reference Cell) для давления кислорода 0,1 Торр приводится значение $\alpha \approx 2$ [24]. В тлеющем разряде постоянного тока в кислороде найдено $\alpha \approx 6$ при 1 Торр [25]. Следующие работы [26–29] были посвящены исследованиям ВЧ емкостного разряда в кислороде. Авторы работы [26] приводят величину коэффициента $\alpha \approx 18$ при давлении 10 мТорр. При давлениях 0,1 Торр и 0,5 Торр с ростом ВЧ разрядного тока величина коэффициента α уменьшалась от 11,6 до 7,4 и от 18,6 до 10,8, соответственно [27]. Неожиданно большая величина $\alpha = 38$ была получена при давлении $7,5 \cdot 10^{-3}$ Торр авторами [28]. Самые большие величины α были найдены с помощью гидродинамического моделирования [29]: при $p = 0,5$ Торр $\alpha \approx 100$ и $\alpha \approx 50$ для ВЧ напряжений на электродах 75 В и 150 В, соответственно.

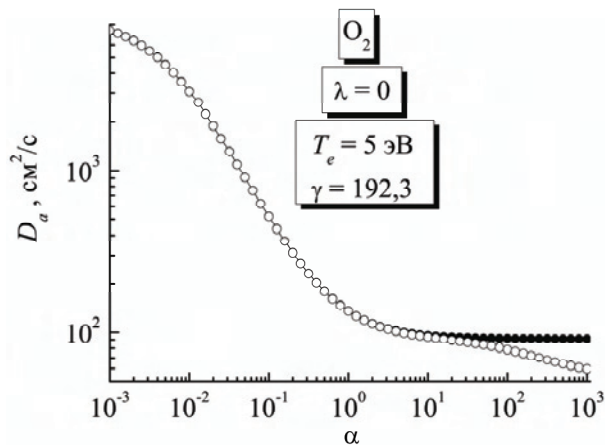


Рис.7. Зависимость коэффициента амбиполярной диффузии от параметра α для кислорода при температуре электронов $T_e = 5$ эВ для $\lambda = 0$. Расчет с помощью формул (21) (окружности) и (22) (точки).

На рис.7 показаны зависимости коэффициента амбиполярной диффузии $D_a(\alpha)$, рассчитанные с помощью формул (21, 22) для случая $\lambda = 0$, т.е. при наличии только одного сорта положительных ионов O₂⁺. Из рисунка следует, что при $\alpha \leq 10$ эти две зависимости близки, что для небольших концентраций отрицательных ионов позволяет пользоваться простой формулой (22) для описания амбиполярного ухода заряженных частиц из плазмы. Однако при более высоких α кривые расходятся, и при $\alpha = 100$ величина D_a для формулы (21) примерно на 14 % меньше, чем для (22).

Следовательно, как для SF₆, так и для кислорода и кислородсодержащих смесей газов простые формулы (20) и (22) (в которых пренебрегается ионной подвижностью по сравнению с электронной) применимы только при небольших величинах $\alpha = n/n_e \leq 10$. При больших α нужно использовать формулы (19) и (21) для описания амбиполярного ухода заряженных частиц из плазменного объема.

При больших концентрациях отрицательных ионов одним из важных механизмов потерь заряженных частиц становится рекомбинация отрицательных ионов с положительными. Однако этот процесс повлияет на

пространственное распределение плотности плазмы, но не на величину коэффициента амбиполярной диффузии, поэтому в данной работе вклад рекомбинации не учитывался.

ВЫВОДЫ

В работе представлена аналитическая модель амбиполярной диффузии в квазинейтральной электроотрицательной плазме, состоящей из электронов, одного сорта отрицательных ионов и двух сортов положительных ионов. Такая ситуация часто имеет место в технологических газоразрядных камерах, используемых для травления полупроводниковых материалов, осаждения тонких пленок, плазменной стерилизации и т.д., поэтому для описания этих процессов необходимо знать скорость ухода заряженных частиц из плазменного объема вследствие амбиполярной диффузии. Получены формулы, позволяющие определить коэффициент амбиполярной диффузии при наличии в плазме электронов, отрицательных ионов и при произвольных отношениях концентраций двух различных сортов положительных ионов.

Показано, что повышение коэффициента $\alpha = n_-/n_e$ приводит к уменьшению амбиполярного потока из плазменного объема, содержащего не только один, но и два сорта положительных ионов. При небольших величинах $\alpha \leq 1$ повышение температуры электронов увеличивает коэффициент амбиполярной диффузии. Для более высоких α амбиполярный уход заряженных частиц не зависит от температуры электронов и параметра $\gamma = T_e/T_i$.

Получено, что при $\alpha < 10$ можно пренебрегать подвижностью отрицательных и положительных ионов по сравнению с подвижностью электронов и пользоваться простыми формулами (20) и (22). Однако при более высоких α необходимо учитывать также подвижности ионов и определять коэффициент амбиполярной диффузии по формулам (19) и (21). В сильно электроотрицательной плазме диффузия заряженных частиц (электронов, положительных и отрицательных ионов) перестает быть амбиполярной, коэффициенты амбиполярной диффузии этих частиц становятся примерно равными их коэффициентам свободной диффузии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Raizer Y.P. Gas Discharge Physics. - Berlin: Springer, 1991. - 449 p.
2. Lieberman M.A., Lichtenberg A.J. Principles of plasma discharges and materials processing. - Hoboken, New Jersey: Wiley, 2005. - 757 p.
3. Lichtenberg A.J., Vahedi V., Lieberman M.A., Rognlien T. Modeling electronegative plasma discharges // J. Appl. Phys. - 1994. - Vol.75, №.5. - P. 2339-2347.
4. Stoffels E., Stoffels W.W., Vender D., Haverlag M., Kroesen G.M.W., de Hoog F.J. Negative ions in low pressure discharges // Contrib. Plasma Phys. - 1995. - Vol.35, №.4-5. - P. 331-357.
5. Kouznetsov I.G., Lichtenberg A.J., Lieberman M.A. Modelling electronegative discharges at low pressure // Plasma Sources Sci. Technol. - 1996. - Vol.5, №.4. - P. 662-676.
6. Lee Y.T., Lieberman M.A., Lichtenberg A.J., Bose F., Baltés H., Patrick R. Global model for high pressure electronegative radio-frequency discharges // J. Vac. Sci. Technol. A. - 1997. - Vol.15, №.1. - P. 113-126.
7. Lichtenberg A.J., Lieberman M.A., Kouznetsov I.G., Chung T.H. Transitions and scaling laws for electronegative discharge models // Plasma Sources Sci. Technol. - 2000. - Vol.9, №.1. - P. 45-56.
8. Kim S., Lieberman M.A., Lichtenberg A.J., Gudmundsson J.T. Improved volume-averaged model for steady and pulsed-power electronegative discharges // J. Vac. Sci. Technol. A. - 2006. - Vol.24, №.6. - P. 2025-2040.
9. Hagelaar G.J.M., Fubiani G., Boeuf J.-P. Model of an inductively coupled negative ion source: I. General model description // Plasma Sources Sci. Technol. - 2011. - Vol.20, №.1. - P. 015001 (16pp).
10. Radouane K., Despax B., Yousfi M., Couderc J.P., Klusmann E., Meyer H., Schulz R., Schulze J. Two-dimensional electrical modeling of asymmetric radio-frequency discharges for geometry effect analysis. Comparison with experiments // J. Appl. Phys. - 2001. - Vol.90, №.9. - P. 4346-4354.
11. Aydil E.S., Economou D.J. Theoretical and experimental investigations of chlorine RF glow discharge // J. Electrochemical Society. - 1992 - Vol.139, №.5. - P. 1396-1406.
12. Ashida S., Lieberman M.A. Spatially averaged (global) model of time modulated high density chlorine plasmas // Jpn. J. Appl. Phys. - 1997. - Vol.36, №.2. - P. 854-861.
13. Sommerer T.J., Kushner M.J. Monte Carlo - fluid model of chlorine atom production in Cl₂, HCl, and CCl₄ radio-frequency discharges for plasma processing // J. Vac. Sci. Technol. A. - 1992. - Vol.10, №.5. - P. 2179-2187.
14. Thompson J.B. Negative Ions in the Positive Column of the Oxygen Discharge // Proc. Phys. Soc. - 1959. - Vol.73, №.5. - P. 818-821.
15. McDaniel E.W., Mason E.A. The mobility and diffusion of ions in gases. - New York: Wiley, 1973. - 422 p.
16. Kono A. Negative ions in processing plasmas and their effect on the plasma structure // Applied Surface Science. - 2002. - Vol.192, №.1. - P. 115-134.
17. De Urquijo-Carmona J., Alvarez I., Cisneros C., Martinez H. Mobility and longitudinal diffusion of SF₃⁺ and SF₅⁺ in SF₆ // J. Phys. D: Appl. Phys. - 1990. - Vol.23, №.7. - P. 778-783.
18. De Urquijo-Carmona J., Alvarez I., Martinez H., Cisneros C. Mobility and longitudinal diffusion of SF₅⁻ and SF₆⁻ in SF₆ // J. Phys. D: Appl. Phys. - 1991. - Vol.24, №.5. - P. 664-667.

19. Nakamura Y. Transport coefficients of electrons and negative ions in SF₆ // J. Phys. D: Appl. Phys. - 1988. - Vol.21, №.1. - P. 67-72.
20. Lisovskiy V.A., Yegorenkov V., Booth J.-P., Landry K., Douai D., Cassagne V. Electron drift velocity in SF₆ in strong electric fields determined from rf breakdown curves // J. Phys. D: Appl. Phys. - 2010. - Vol.43, №.38. - P. 385203 (7pp).
21. Stoffels E., Stoffels W.W., Vender D., Kando M., Kroesen G.M.W., de Hoog F.J. Negative ions in a radio-frequency oxygen plasma // Phys. Rev. E. - 1995. - Vol.51, №.3. - P. 2425-2435.
22. Schiffer C., Uhlenbusch J. Negative-oxygen-ion detection by a crossed-beam photodetachment technique // Plasma Sources Sci. Technol. - 1995. - Vol.4, №.3. - P. 345-352.
23. Amemiya H. Diagnostics of negative ions using probe and laser in plasmas (oxygen discharge) // Vacuum. - 2000. - Vol.58, №. 2-3. - P. 100-116.
24. Katsch H.-M., Goehlich A., Kawetzki T., Quandt E., Dobele H.-F. Attachment-induced ionization instability of a radio frequency excited discharge in oxygen // J. Appl. Phys. - 1999. - Vol.75, №.14. - P. 2023-2025.
25. Ivanov V.V., Klopovsky K.S., Lopaev D.V., Rakhimov A.T., Rakhimova T.V. Experimental and theoretical investigation of oxygen glow discharge structure at low pressures // IEEE Trans. Plasma Sci. - 1999. - Vol.27, №.5. - P. 1279-1287.
26. Vender D., Stoffels W.W., Stoffels E., Kroesen G.M.W., de Hoog F.J. Charged-species profiles in electronegative radio-frequency plasmas // Phys. Rev. E. - 1995. - Vol.51, №.3. - P. 2436-2444.
27. Kaga K., Kimura T., Ohe K. Spatial profile measurements of charged particles in capacitively-coupled RF (13.56 MHz) oxygen discharges // Jpn. J. Appl. Phys. - 2001. - Vol.40, №.1. - P. 330-331.
28. Bryant P., Dyson A., Allen J.E. Langmuir probe measurements of weakly collisional electronegative RF discharge plasmas // J. Phys. D: Appl. Phys. - 2001. - Vol.34, №.1. - P. 95-104.
29. Shibata M., Nakano N., Makabe T. O₂ RF discharge structure in parallel plates reactor at 13.56 MHz for material processing // J. Appl. Phys. - 1995. - Vol.77, №.12. - P. 6181-6187.