

博 士 学 位 论 文

甚高频容性耦合等离子体中电磁效应的 数值研究

Numerical investigation of the electromagnetic effects in very high
frequency capacitively coupled plasmas

Numerieke studie van de elektromagnetische effecten in
capacitiefgekoppelde plasma's bij zeer hoge frequentie

作 者 姓 名: 张 钰 如

学 科、 专 业: 等离子体物理

学 号: 10902040

指 导 教 师: 王友年 教授

Annemie Bogaerts 教授

完 成 日 期: 2013.09.30

大连理工大学

Dalian University of Technology

大连理工大学学位论文独创性声明

作者郑重声明：所呈交的学位论文，是本人在导师的指导下进行研究工作所取得的成果。尽我所知，除文中已经注明引用内容和致谢的地方外，本论文不包含其他个人或集体已经发表的研究成果，也不包含其他已申请学位或其他用途使用过的成果。与我一同工作的同志对本研究所做的贡献均已在论文中做了明确的说明并表示了谢意。

若有不实之处，本人愿意承担相关法律责任。

学位论文题目： 甚高频容性耦合等离子体中电磁效应的数值研究

作者签名： _____ 日期： _____ 年 _____ 月 _____ 日

摘 要

容性耦合等离子体被广泛地应用于半导体工业中，如薄膜沉积、材料刻蚀以及表面处理等。众所周知，在容性耦合等离子体放电中，较高的频率能够产生较高密度的等离子体和较低能量的离子。因此近年来，甚高频容性耦合等离子体源受到人们越来越广泛的关注。然而当放电频率较高时，尤其是在大面积反应腔室中，电磁效应（如驻波效应和趋肤效应）会显著地影响放电过程，并引起等离子体的不均匀性。由于电磁波的波长随着频率的增加而减小，当波长与腔室尺寸相当时，驻波效应会对等离子体产生显著的影响，使得等离子体密度的最大值出现在放电中心处。另一方面，等离子体密度随着放电的频率而增加。当等离子体密度较高时，射频波在等离子体中的趋肤深度将小于等离子体的厚度。此时，电磁波只能在等离子体表面传播，因此趋肤效应会使得等离子体密度的最大值出现在径向边缘处。由此可见，电磁效应会显著影响刻蚀和沉积过程的均匀性，因而需要对电磁效应进行系统的研究，以便于进一步优化等离子体工艺过程。

在本论文的第一章，详细回顾了甚高频容性耦合等离子体源的研究背景、优势，以及研究过程中所面临的挑战。

在第二章中，首先介绍了在数值模拟过程中所使用的二维等离子体流体力学模型。各种带电粒子和中性粒子的密度由连续性方程来描述，其中电子通量由漂移扩散近似方法来确定，而离子通量则通过求解完整的动量平衡方程来获得。在流体模型中，假设离子的温度与室温相等，因此仅需要求解电子的能量方程。为了考虑电磁效应，该模型与完整的麦克斯韦方程组进行耦合，以便确定出等离子体中电磁场的瞬时空间分布。此外，本章还介绍了所涉及到的边界条件以及模拟方法。

在第三章中，针对氩气放电，通过比较由静电模型（仅求解泊松方程）和电磁模型（求解麦克斯韦方程组）得到的结果，研究了不同放电条件下电磁效应对等离子体的影响。结果表明：电磁效应对等离子体特性有着重要影响，尤其是在甚高频放电情况下，电磁效应导致等离子体密度显著地上升，电离率也呈现出不同的空间分布形式。当放电频率一定时，电磁效应随着电压的增加而减小。随着气压上升，由电磁模型得到的等离子体密度的最大值首先出现在径向边缘处，随后逐渐变得均匀，最后密度的最大值出现在放电中心处。此外，随着放电频率和气压的增加，边缘效应减弱。随着电压增加，趋肤效应取代驻波效应，成为影响等离子体分布的最主要的因素。

在第四章中，针对 H_2 放电等离子体，重点考察了两个同频率甚高频电源之间的相位差对等离子体瞬时行为以及径向均匀性的影响。结果表明：在不同的相位差下，等离子体中各状态参量的时空分布不仅形貌不同，幅值差异更是明显。当频率为 13.56 MHz，

两个射频源为同相位时，径向电子流首先向侧壁移动，随后方向反转；而当两个射频源反相位时，径向电子通量在一个周期内呈现出两个峰值。当频率为 100 MHz，相位差为 π 时，径向电子通量在一个周期内出现四个峰值，而电离过程则主要发生在鞘层区域。此外，在不同的放电频率下，两个同频率电源之间的相位差对等离子体的径向均匀性有着不同的调制作用。

在第五章中，针对 Ar/CF₄ 混合气体放电，研究了两个同频率电源之间的相位差对等离子体径向均匀性以及等离子体组分的影响。结果表明：当 CF₄ 含量仅为 10% 时，Ar⁺ 是最主要的正离子。在不同的放电频率下，相位差对等离子体的径向均匀性有着不同的影响。固定放电频率为 100 MHz，当 CF₄ 含量从 10% 增加为 90% 时，CF₃⁺ 成为最主要的正离子，而且当相位差为 π 时，其密度的最大值从边缘处过度到放电中心处，这说明趋肤效应受到等离子体电负性的抑制。此外，负离子密度之和与电子密度的比率随着 CF₄ 含量的增加而增加，但是却随着频率的增加而降低。

在第六章中，采用 HPEM 模型(Hybrid Plasma Equipment Model)并与全波麦克斯韦方程组耦合，研究了 CF₄/O₂ 等离子体中的电磁效应对等离子体特性的影响。此外，还从实验方面研究了射频源功率对刻蚀率均匀性的影响。结果表明：当放电频率为 27 MHz 以及 60 MHz 时，电磁效应使得等离子体密度有所增加，并对其空间分布产生显著影响。与单频放电相比，在双频 2/60 MHz 放电中，刻蚀速率的均匀性得到显著改善。随着低频源功率增加，刻蚀过程增强，且放电中心处的刻蚀率明显高于边缘处。固定低频源功率为 300 W，刻蚀速率随着高频源功率的增加显著上升，且均匀性变差。

关键词：容性耦合等离子体；甚高频放电；相位差效应；低频源功率效应

Numerical investigation of the electromagnetic effects in very high frequency capacitively coupled plasmas

Abstract

Capacitively coupled plasmas (CCP) are widely applied in the semiconductor industry, for instance, for deposition of thin films, etching of materials and surface treatment. It is well known that a higher frequency produces higher-density plasmas with lower-energy ions. Thus, special attention has been paid to very high frequency (VHF) plasma sources due to their higher ion flux and lower ion bombarding energy. However, at high frequency (i.e., tens of MHz to hundreds of MHz) in large-area reactors, the so-called electromagnetic effects (i.e. standing-wave effect and skin effect) have an important influence on the capacitive discharge, which may limit the plasma spatial uniformity. Indeed, when the excitation wavelength becomes comparable to the electrode dimension, the standing-wave effect becomes dominant, and it results in a substantial power deposition at the reactor center. On the other hand, when the skin depth is not large compared with the plasma thickness due to the high plasma density, the skin effect has a significant influence, and it yields a pronounced power deposition at the reactor edge. These effects are important for plasma processing applications, as they affect the uniformity of the etch and deposition processes. Therefore, it is important to understand the electromagnetic effects, and to suppress the nonuniformity, in order to control the discharge process and to improve the application.

In this dissertation, we first briefly review the background, recent advances, and challenges of VHF-CCP, and also the problems we face in Chapter 1. The contents of Chapter 2 to Chapter 6 are presented as follows.

The two dimensional fluid model used in the dissertation is described in Chapter 2. In this model, the continuity equations are used to give information on the density evolution for all species. The drift diffusion approximation is assumed for electrons; the momentum balance equation based on the cold fluid approximation is adopted for ions. Because the ions and the neutral species are assumed at room temperature, only the electron energy balance equation is needed. In order to take the electromagnetic effects into account, the full set of Maxwell equations is included instead of solving the electric field by Poisson equation directly. Besides, boundary conditions are also specified in order to complete the problem.

The electromagnetic effects at various discharge conditions have been investigated in Ar plasmas by comparing the plasma characteristics obtained from the so-called electrostatic model (i.e., without taking into account the electromagnetic effects) and the electromagnetic

model (which includes the electromagnetic effects) in Chapter 3. The results indicate that the electromagnetic effects have an important influence on the plasma properties, especially at very high frequencies. Indeed, when the excitation source is in the high frequency regime and the electromagnetic effects are taken into account, the plasma density increases significantly and meanwhile the ionization rate profile evolves to a very different distribution. Furthermore, we also investigated the dependence of the plasma characteristics on the voltage and pressure, at constant frequency. It is observed that when the voltage is low, the difference between these two models becomes more obvious than at higher voltages. As the pressure increases, the plasma density profiles obtained from the electromagnetic model shift smoothly from edge-peaked over uniform to a broad maximum in the center. In addition, the edge effect becomes less pronounced with increasing frequency and pressure, and the skin effect instead of the standing-wave effect becomes dominant when the voltage is high.

In Chapter 4, the phase-shift effect on the transient behaviour of electrodynamics and power deposition, as well as the influence on the radial uniformity of several plasma characteristics in a hydrogen capacitively coupled plasma has been investigated. It is shown that the spatiotemporal distributions of the plasma characteristics obtained for various phase shift cases are obviously different both in shape and especially in absolute values. At the frequency of 13.56 MHz, the radial electron flux moves towards the chamber wall first and then is forced in the opposite direction, whereas it exhibits two peaks within one period at the reverse-phase case. In the very high frequency discharge, i.e., 100 MHz, the radial electron flux is alternately positive and negative with four peaks during one period, and the ionization mainly occurs in the sheath region at a phase difference equal to π . Furthermore, the phase shift has different influences on the plasma radial uniformity at various frequencies.

Chapter 5 shows the phase-shift effect on the plasma radial uniformity and the plasma composition at various frequencies and gas mixture ratios in Ar/CF₄ capacitively coupled plasmas. At low concentration of CF₄ (10%), Ar⁺ are the major positive ions in the entire range of frequencies, and the phase-shift control shows different effects on the plasma uniformity at various frequencies. When the frequency is fixed at 100 MHz, the phase-shift control shows a different behavior at high concentration of CF₄. For instance, the CF₃⁺ density profiles shift from edge-high over uniform to center-high at the reverse phase case, as the CF₄ content increases from 10% to 90%, which indicates that the skin effect is suppressed by the high electronegativity of the Ar/CF₄ = 0.1/0.9 mixture. Besides, the ratio of the total negative ion density to electron density decreases with increasing frequency, and it increases with CF₄ content.

In chapter 6, a 2D hybrid model, called HPEM (Hybrid Plasma Equipment Model), incorporating a full-wave solution of Maxwell's equations, is employed to investigate the electromagnetic effects on the plasma characteristics, as well as the power effect on the etch rate in CF_4/O_2 discharges. It is shown that the electromagnetic effects have an important influence on the plasma density distribution. When the electromagnetic effects are taken into account, the plasma density becomes higher, and exhibits different shapes. At the frequency of 60 MHz, the etch rate has a center-high profile. When adding a low frequency power into the discharge, the etch rate becomes higher and more uniform. As the low frequency power increases from 300 W to 1000 W, the etch rate at the reactor center increases faster than at the edge, and therefore the uniformity of the etch rate becomes worse. When the low frequency power is fixed at 300 W, the etch rate becomes nonuniform with increasing high frequency power, and it becomes higher due to the higher plasma density.

Key Words: Capacitively Coupled Plasma; Very High Frequency Discharges; Phase Shift Effect; Low Frequency Power Effect

Numerieke studie van de elektromagnetische effecten in capacitiefgekoppelde plasma's bij zeer hoge frequentie

Samenvatting

Capacitief gekoppelde plasma's (Eng: capacitively coupled plasmas; CCP) worden veel toegepast in de halfgeleider industrie, bijvoorbeeld voor de depositie van dunne filmen, het etsen van materialen en oppervlaktebehandeling. Het is bekend dat bij een hogere frequentie plasma's geproduceerd worden met een hogere elektronendichtheid en lagere energie van de ionen. Vandaar wordt er veel aandacht besteed aan zgn. heel hoge frequentie (Eng: very high frequency; VHF) plasmabronnen, omwille van hun hogere ionenflux en lagere energie van de ionen die invallen op het substraat. Echter, in grote plasmareactoren kunnen bij hoge frequentie (d.w.z. tientallen tot honderden MHz) de zgn. elektromagnetische effecten (d.w.z. het "staande-golf-effect" en het "skin-effect") een belangrijke invloed uitoefenen op de capacitieve ontlading, wat een nadelige invloed kan hebben op de ruimtelijke uniformiteit van het plasma. Inderdaad, als de excitatiegolf lengte vergelijkbaar wordt met de elektrode dimensies, wordt het "staande-golf-effect" dominant, en dit resulteert in een aanzienlijke vermogensdepositie in het midden van de reactor. Anderzijds, als de zgn "skin" diepte niet groot is vergeleken met de plasmadikte omwille van de hoge plasmadichtheid, dan zal het "skin-effect" een belangrijke invloed uitoefenen, en dit zal een aanzienlijke vermogensdepositie geven aan de randen van de reactor. Deze effecten zijn van belang voor "plasma processing" toepassingen, vermits ze de uniformiteit van de etsprocessen en de depositieprocessen bepalen. Daarom is het belangrijk om de elektromagnetische effecten goed te begrijpen, en om de niet-uniformiteit te onderdrukken, om zo het ontladingsproces te controleren en de toepassingen te verbeteren.

In dit proefschrift zullen we eerst in Hoofdstuk 1 kort de achtergrond, de recente ontwikkelingen, alsook de uitdagingen en problemen van VHF-CCP bespreken. De inhoud van Hoofdstuk 2 t.e.m. 6 zal hieronder toegelicht worden.

Het twee-dimensionale fluid model gebruikt in dit proefschrift wordt beschreven in Hoofdstuk 2. In dit model worden de continue vergelijkingen gebruikt om informatie te bekomen over de dichtheidsevolutie voor alle deeltjes. De zgn. drift-diffusie benadering wordt verondersteld voor de elektronen, terwijl de impulsbehoudsvergelijking gebaseerd op de "koude vloeistof" benadering gebruikt wordt voor de ionen. Vermits we kunnen veronderstellen dat de energie van de ionen en de neutrale deeltjes overeenkomt met kamertemperatuur, moet enkel de elektronen energievergelijking opgelost worden. Om de elektromagnetische effecten in

rekening te brengen, wordt de volledige set van Maxwell vergelijkingen opgelost, in plaats van enkel de Poisson vergelijking. Tenslotte moeten ook randvoorwaarden gespecificeerd worden om specifieke condities te simuleren.

In Hoofdstuk 3 worden de elektromagnetische effecten bij verschillende ontladingsvoorwaarden bestudeerd voor een Ar plasma, door het vergelijken van de plasmakarakteristieken verkregen met het zgn. elektrostatisch model (d.w.z. zonder het in rekening brengen van de elektromagnetische effecten) en het zgn. elektromagnetische model (dat de elektromagnetische effecten wel in rekening brengt). De resultaten duiden aan dat de elektromagnetische effecten een belangrijke invloed uitoefenen op de plasma-eigenschappen, vooral bij zeer hoge frequenties. Inderdaad, als de elektromagnetische effecten in rekening gebracht worden in het hoge frequentieregime, neemt de plasmadichtheid aanzienlijk toe, en het profiel van de ionizatiesnelheid krijgt een andere verdeling. Bovendien hebben we ook de invloed van spanning en druk op de plasmakarakteristieken onderzocht, bij constante frequentie. Bij lage spanning is het verschil tussen beide modellen groter dan bij hogere spanning. Bij hogere druk verandert het profiel van de plasmadichtheid, zoals bekomen met het elektromagnetisch model, geleidelijk van een maximum aan de randen, over een uniform profiel, naar een breed maximum in het centrum. Bovendien wordt het zgn. “rand-effect” minder uitgesproken bij toenemende frequentie en druk, en wordt het “skin-effect” belangrijker dan het “staande-golf-effect” bij hoge spanning.

In Hoofdstuk 4 wordt het zgn. “fase-shift” effect op het transient gedrag van de elektrodynamica en de vermogensdepositie bestudeerd, alsook het effect op de radiale uniformiteit van verschillende plasmakarakteristieken in een waterstofcapacitief gekoppeld plasma. De ruimte-tijdsverdeling van de plasmakarakteristieken, verkregen voor verschillende fase-shiften, zijn duidelijk verschillend, zowel in vorm en vooral in absolute waarden. Bij een frequentie van 13.56 MHz beweegt de radiale elektronenflux eerst naar de wand van de reactor, en vervolgens in de omgekeerde richting, terwijl hij twee pieken vertoont binnen één periode in geval van omgekeerde fase. In geval van heel hoge frequentie, d.w.z. 100 MHz, is de radiale elektronenflux alternerend positief en negatief, met vier pieken gedurende één periode, ende ionizatie vindt dan vooral plaats in de “sheath” vlakbij de elektrode, bij een faseverschil gelijk aan π . Tenslotte wordt ook aangetoond dat het “fase-shift” effect verschillende invloeden heeft op de radiale uniformiteit in het plasma bij verschillende frequenties.

Hoofdstuk 5 toont het “fase-shift” effect op de radiale uniformiteit en de samenstelling in het plasma bij verschillende frequenties en gasmengsel-verhoudingen in Ar/CF₄ capacitief gekoppelde plasma's. Bij lage CF₄ concentratie (10%) zijn de Ar⁺ ionen de belangrijkste positieve ionen in het ganse frequentiebereik, en de zgn. “fase-shift” controle toont verschillende effecten op de plasma-uniformiteit bij verschillende frequenties. Bij een

constante frequentie van 100 MHz toont de “fase-shift” controle een verschillend gedrag bij hoge CF₄ concentratie. Het dichtheidsprofiel van de CF₃⁺ ionen verschuift van een maximum aan de randen, over een uniform profiel, naar een maximum in het centrum, in het geval van “omgekeerde fase”, wanneer de CF₄ concentratie stijgt van 10% naar 90%, wat erop wijst dat het “skin-effect” onderdrukt wordt bij de hoge elektronegativiteit typisch voor het Ar/CF₄ = 0.1/0.9 mengsel. Bovendien daalt de verhouding van totale negatieve ionendichtheid tot elektronendichtheid met toenemende frequentie, en stijgt deze met de CF₄ concentratie.

In Hoofdstuk 6 wordt tenslotte een 2D hybride model, het zgn. HPEM (“Hybrid Plasma Equipment Model”), dat ook de volledige set van de Maxwell vergelijkingen oplost, gebruikt om de elektromagnetische effecten op de plasmakarakteristieken, alsook het effect van vermogen op de etssnelheid in CF₄/O₂ ontladingen te onderzoeken. We tonen aan dat de elektromagnetische effecten een belangrijke invloed uitoefenen op de plasmadichtheidsverdeling. Als de elektromagnetische effecten in rekening worden gebracht, is de plasmadichtheid hoger, en vertoont ze ook een verschillend profiel. Bij een frequentie van 60 MHz wordt de etssnelheid gekarakteriseerd door een maximum in het centrum van de wafer. Wanneer een lage frequentie wordt toegevoegd aan de ontleding, stijgt de etssnelheid en wordt deze meer uniform. Als het vermogen van de lage frequentiebron stijgt van 300 W naar 1000 W, stijgt de etssnelheid in het centrum van de reactor sneller dan aan de randen, en dus verslechtert de uniformiteit van de etssnelheid. Als het vermogen van de lage frequentie constant blijft op 300 W, wordt de etssnelheid niet-uniform met toenemend vermogen van de hoge frequentiebron, en ze wordt hoger door de hogere plasmadichtheid.

Sleutelwoorden: Capacitief Gekoppeld Plasma; Zeer Hoge Frequentie Ontladingen; Fase Shift Effect; Lage Frequentie Vermogens effect

目 录

摘 要	I
Abstract	III
TABLE OF CONTENTS	XII
图表目录	XIV
主要符号表	XX
1 绪论	1
1.1 低温等离子体	1
1.2 低温等离子体源	2
1.3 甚高频放电中电磁效应的研究进展	6
1.3.1 电磁效应的理论和模拟研究	7
1.3.2 电磁效应的诊断研究	14
1.3.3 电磁效应的抑制方法	16
1.4 本文的研究内容和安排	19
2 甚高频放电等离子体的流体力学模型	21
2.1 引言	21
2.2 等离子体流体力学模型	22
2.2.1 粒子数守恒方程	22
2.2.2 动量守恒方程	23
2.2.3 能量守恒方程	23
2.3 全波电磁场理论	24
2.4 边界条件	25
2.5 数值方法	26
2.6 本章小结	29
3 甚高频 Ar 等离子体放电中的电磁效应	30
3.1 引言	30
3.2 频率效应	31
3.3 电压效应	35
3.4 气压效应	39
3.5 本章小结	43
4 两个同频率电源的相位差对 H ₂ 等离子体特性的调制	44
4.1 引言	44

4.2	H ₂ 等离子体化学反应模型	45
4.3	相位差效应对 H ₂ 等离子体动力学行为的影响	46
4.3.1	射频放电中的相位差效应	46
4.3.2	甚高频放电中的相位差效应	53
4.4	相位差效应对 H ₂ 等离子体均匀性的影响	59
4.4.1	等离子体密度	60
4.4.2	功率沉积	65
4.4.3	电离率	69
4.4.4	离子通量	71
4.5	本章小结	72
5	两个同频率电源的相位差对 Ar/CF ₄ 等离子体特性的调制	75
5.1	引言	75
5.2	Ar/CF ₄ 等离子体化学反应模型	76
5.3	静电模型与电磁模型比较	78
5.4	相位差效应对 Ar/CF ₄ 等离子体均匀性的影响	81
5.4.1	不同频率	81
5.4.2	不同气体组分	86
5.5	相位差效应对等离子体组分的影响	89
5.5.1	不同频率	89
5.5.2	不同气体组分	92
5.6	本章小结	94
6	双频 CF ₄ /O ₂ 等离子体中的电磁效应	97
6.1	引言	97
6.2	HPEM 模型	98
6.3	CF ₄ /O ₂ 等离子体化学反应模型	100
6.4	实验装置及诊断系统	106
6.5	结果与讨论	107
6.5.1	CF ₄ /O ₂ 等离子体中电磁效应的模拟结果	108
6.5.2	低频源功率对粒子通量及刻蚀率的影响	113
6.5.3	高频源功率对粒子通量及刻蚀率的影响	117
6.6	本章小结	120

7 结论与展望.....	121
7.1 结论与创新点.....	121
7.2 创新点摘要.....	122
7.3 展望.....	123
参 考 文 献.....	124
攻读博士学位期间科研项目及科研成果.....	136
致 谢.....	138
作者简介.....	140
大连理工大学学位论文版权使用授权书.....	141

TABLE OF CONTENTS

1	Introduction.....	1
1.1	Low temperature plasmas.....	1
1.2	Low temperature plasma sources.....	2
1.3	Overview of the electromagnetic effects.....	6
1.4	Summary.....	19
2	Description of the model.....	21
2.1	Introduction.....	21
2.2	Fluid model.....	22
2.2.1	Continuity equation.....	22
2.2.2	Momentum balance equation.....	23
2.2.3	Energy balance equation.....	23
2.3	Full-wave electromagnetic theory.....	24
2.4	Boundary conditions.....	25
2.5	Numerical methods.....	26
2.6	Summary.....	29
3	The electromagnetic effects in Ar VHF plasmas.....	30
3.1	Introduction.....	30
3.2	Frequency effect.....	31
3.3	Voltage effect.....	35
3.4	Pressure effect.....	39
3.5	Summary.....	43
4	The phase-shift effect in H ₂ plasmas.....	44
4.1	Introduction.....	44
4.2	Chemical model in H ₂ plasmas.....	45
4.3	The phase-shift effect on the transient behavior.....	46
4.3.1	The phase-shift effect in the RF discharge.....	46
4.3.2	The phase-shift effect in the VHF discharge.....	53
4.4	The phase-shift effect on the plasma uniformity.....	59
4.4.1	Plasma density.....	60
4.4.2	Power deposition.....	65
4.4.3	Ionization rate.....	69
4.4.4	Ion flux.....	71
4.5	Summary.....	72

5	The phase-shift effect in Ar/CF ₄ plasmas.....	75
5.1	Introduction.....	75
5.2	Chemical model in Ar/CF ₄ plasmas.....	76
5.3	Comparison between the electrostatic and electromagnetic simulations.....	78
5.4	The phase-shift effect on the plasma radial uniformity.....	81
5.4.1	Frequency effect.....	81
5.4.2	Ar/CF ₄ ratio effect.....	86
5.5	The phase-shift effect on the plasma composition.....	89
5.5.1	Frequency effect.....	89
5.5.2	Ar/CF ₄ ratio effect.....	92
5.6	Summary.....	94
6	The electromagnetic effects in dual frequency CF ₄ /O ₂ plasmas.....	97
6.1	Introduction.....	97
6.2	A brief introduction of HPEM.....	98
6.3	Chemical model in CF ₄ /O ₂ plasmas	100
6.4	Experimental setup.....	106
6.5	Results and discussion.....	107
6.5.1	The electromagnetic effects in CF ₄ /O ₂ plasmas.....	108
6.5.2	Low frequency power effect on the flux and etch rate.....	113
6.5.3	High frequency power effect on the flux and etch rate.....	117
6.6	Summary.....	120
7	The Summarize and Prospect.....	121
	Reference.....	124
	Achievement as a Ph.D Candidate.....	136
	Acknowledgements.....	138
	Author Introduction.....	140
	The Authorization of Dalian University of Technology Degree Thesis Copyright.....	141

图表目录

图 1.1	低温等离子体及材料处理过程 ^[2]	1
图 1.2	感性耦合等离子体源结构示意图: (a)柱状线圈, (b)平面线圈 ^[1]	3
图 1.3	ECR 等离子体源结构示意图 ^[2]	3
图 1.4	螺旋波等离子体源结构示意图 ^[2]	4
图 1.5	容性耦合等离子体源结构示意图 ^[1]	5
图 1.6	均匀平板模型示意图 ^[32]	7
图 1.7	(a)CCP 放电结构示意图 (b)传输线模型结构示意图 ^[34]	8
图 1.8	(a) $R = 15\text{ cm}$, (b) $R = 25\text{ cm}$ 时, 不同频率下 $P_{\text{ind}}/P_{\text{cap}}$ 随密度 n_{e0} 的变化 ^[40]	9
图 1.9	当功率为 40 W , 气压为 150 mTorr 时, 不同频率下放电中心处电子密度的径向分布 ^[45]	10
图 1.10	当功率为 100 W , 频率为 180 MHz 时, Ar 放电中的(a)电子密度, (b)静电沉积功率, (c)电磁沉积功率的分布 ^[47]	11
图 1.11	不同频率下, 两极板之间 H_2^+ 密度的空间分布: (a) 13.56 MHz , (b) 27 MHz , (c) 40 MHz , (d) 60 MHz , (e) 100 MHz , (f) 200 MHz ^[56]	12
图 1.12	当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=90/10$, 50 mTorr , $P_{\text{HF}}=P_{\text{LF}}=300\text{ W}$, $\text{LF} = 10\text{ MHz}$ 时, 不同高频频率下, 放电中心处的(a)电子密度, (b)负离子密度之和 ^[57]	13
图 1.13	当气压为 150 mTorr , 功率为 50 W 时, 不同频率下的离子通量分布 ^[24]	14
图 1.14	当频率为 90 MHz , 功率为 100 W 时, 电子密度的径向分布 ^[71]	15
图 1.15	当 $V_{\text{HF}} = 140\text{ V}_{\text{pp}}$ 时, N_2 放电中不同频率不同气压下的 EEPF: (a) 60 mTorr , (b) 120 mTorr , (c) 200 mTorr ^[76]	15
图 1.16	频率为 $13.56, 67.8, 100\text{ MHz}$ 时, 实验和模拟得到的轴向电场的径向分布其中左图采用的是平板电极, 右图采用的是高斯透镜形电极 ^[62]	17
图 1.17	(a)分级电导率电极和(b)块状电极示意图 ^[60]	18
图 1.18	$\text{C}_4\text{F}_8/\text{O}_2/\text{Ar}$ 放电中, 气压为 15 mTorr , 上极板功率为 500 W , 下极板功率为 250 W 时, 不同相位差下的等离子体不均匀度 ^[74]	18
图 2.1	有限体积元胞和交错网格划分示意图 ^[97]	27
图 2.2	Yee 元胞及相应的场分量 ^[108]	28

图 3.1	腔室结构示意图	30
图 3.2	不同频率下, 通过静电模型 (实线) 和电磁模型 (虚线) 得到的放电中心处($z = L/2$)电子密度的径向分布	31
图 3.3	不同频率下, 电磁模型得到的电离率的空间分布	32
图 3.4	电磁模型中, 不同频率下(a)电极表面归一化轴向电场, (b)轴向涡旋电场引起的功率沉积, (c)放电中心处径向电场, (d)径向涡旋电场引起的功率沉积的径向分布	33
图 3.5	不同频率下, 通过静电模型 (实线) 和电磁模型 (虚线) 得到的放电中心处($z = L/2$)电子温度的径向分布	34
图 3.6	不同电压下, 通过静电模型 (实线) 和电磁模型 (虚线) 得到的放电中心处($z = L/2$)电子密度的径向分布	35
图 3.7	不同电压下, 静电模型得到的电离率的空间分布	36
图 3.8	不同电压下, 电磁模型得到的电离率的空间分布	36
图 3.9	不同电压下, 电磁模型得到的放电中心处($z = L/2$)径向功率沉积密度 (实线) 和轴向功率沉积密度 (虚线)	37
图 3.10	不同电压下, 通过静电模型 (实线) 和电磁模型 (虚线) 得到的放电中心处($z = L/2$)电子温度的径向分布	38
图 3.11	不同气压下, 通过静电模型 (实线) 和电磁模型 (虚线) 得到的放电中心处($z = L/2$)电子密度的径向分布	39
图 3.12	不同气压下, 静电模型得到的电离率的空间分布	40
图 3.13	不同气压下, 电磁模型得到的电离率的空间分布	40
图 3.14	不同气压下, (a)放电中心处($z = L/2$)径向静电场, (b)放电中心处($z = L/2$)径向静电场引起的功率沉积, (c)电极表面归一化轴向电场, (d)放电中心处($z = L/2$)轴向电场引起的功率沉积的径向分布	41
图 3.15	不同气压下, 通过静电模型 (实线) 和电磁模型 (虚线) 得到的放电中心处($z = L/2$)电子温度的径向分布	42
图 4.1	腔室结构示意图	45
图 4.2	当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 电子径向通量的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	46
图 4.3	当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 由于径向电场引起的功率沉积密度的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	47

图 4.4	当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 电子轴向通量的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	48
图 4.5	当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 由于轴向电场引起的功率沉积密度的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	49
图 4.6	当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 电子密度的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	50
图 4.7	当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 电离率的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	51
图 4.8	当频率为 100 MHz 时, 不同相位差下, 电子径向通量的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	53
图 4.9	当频率为 100 MHz 时, 不同相位差下, 由于径向电场引起的功率沉积密度的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	54
图 4.10	当频率为 100 MHz 时, 不同相位差下, 电子轴向通量的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	55
图 4.11	当频率为 100 MHz 时, 不同相位差下, 由于轴向电场引起的功率沉积密度的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	56
图 4.12	当频率为 100 MHz 时, 不同相位差下, 电子密度的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	57
图 4.13	当频率为 100 MHz 时, 不同相位差下, 电离率的时空分布: (a)单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$	58
图 4.14	不同频率下的电子密度分布: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz, (d)200 MHz.....	59
图 4.15	当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下的等离子体密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.25\pi$, (c) $\varphi = 0.5\pi$, (d) $\varphi = \pi$	61
图 4.16	当频率为 60 MHz 时, 不同相位差下的等离子体密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.24\pi$, (c) $\varphi = 0.3\pi$, (d) $\varphi = \pi$	62
图 4.17	当频率为 100 MHz 时, 不同相位差下的等离子体密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.19\pi$, (c) $\varphi = 0.45\pi$, (d) $\varphi = \pi$	63
图 4.18	当频率为 200 MHz 时, 不同相位差下的等离子体密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.15\pi$, (c) $\varphi = 0.4\pi$, (d) $\varphi = \pi$	64

图 4.19	在不同的放电频率和相位差下,放电中心处($z = L/2$)由轴向电场引起的功率沉积的径向分布: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz, (d)200 MHz	65
图 4.20	在不同的放电频率和相位差下,放电中心处($z = L/2$)由径向电场引起的功率沉积的径向分布: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz, (d)200 MHz	66
图 4.21	当频率为 13.56 MHz 时,不同相位差下的电离率分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.25\pi$, (c) $\varphi = 0.5\pi$, (d) $\varphi = \pi$	67
图 4.22	当频率为 60 MHz 时,不同相位差下的电离率分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.24\pi$, (c) $\varphi = 0.3\pi$, (d) $\varphi = \pi$	68
图 4.23	当频率为 100 MHz 时,不同相位差下的电离率分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.19\pi$, (c) $\varphi = 0.45\pi$, (d) $\varphi = \pi$	69
图 4.24	当频率为 200 MHz 时,不同相位差下的电离率分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.15\pi$, (c) $\varphi = 0.4\pi$, (d) $\varphi = \pi$	70
图 4.25	对于不同的放电频率,在不同的相位差下,下极板表面轴向离子通量的径向分布: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz, (d)200 MHz.....	72
图 5.1	在不同频率下,由静电模型(实线)和电磁模型(虚线)得到的放电中心处($z = L/2$)电子密度的径向分布	78
图 5.2	不同频率下,通过静电模型(实线)和电磁模型(虚线)得到的放电中心处($z = L/2$)电子温度的径向分布	79
图 5.3	13.56 MHz 时, Ar/CF ₄ (0.9/0.1)放电中不同相位差下的 Ar ⁺ 密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.3\pi$, (c) $\varphi = 0.6\pi$, (d) $\varphi = \pi$	81
图 5.4	60 MHz 时, Ar/CF ₄ (0.9/0.1)放电中不同相位差下的 Ar ⁺ 密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.35\pi$, (c) $\varphi = 0.53\pi$, (d) $\varphi = \pi$	82
图 5.5	100 MHz 时, Ar/CF ₄ (0.9/0.1)放电中不同相位差下的 Ar ⁺ 密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.25\pi$, (c) $\varphi = 0.45\pi$, (d) $\varphi = \pi$	83
图 5.6	当 Ar/CF ₄ =0.9/0.1 时,在不同放电频率和不同相位差下,下极板表面轴向 F 原子通量的径向分布: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz.....	84
图 5.7	频率为 100 MHz 时, Ar/CF ₄ (0.9/0.1)放电中不同相位差下的 CF ₃ ⁺ 密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.25\pi$, (c) $\varphi = 0.45\pi$, (d) $\varphi = \pi$	85

图 5.8	频率为 100 MHz 时, Ar/CF ₄ (0.5/0.5)放电中不同相位差下的 CF ₃ ⁺ 密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.15\pi$, (c) $\varphi = 0.33\pi$, (d) $\varphi = \pi$	86
图 5.9	频率为 100 MHz 时, Ar/CF ₄ (0.1/0.9)放电中不同相位差下的 CF ₃ ⁺ 密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.08\pi$, (c) $\varphi = 0.12\pi$, (d) $\varphi = \pi$	87
图 5.10	频率为 100 MHz 时, 在不同气体组分和不同相位差下, 下极板表面轴向 F 原子通量的径向分布: (a)Ar/CF ₄ =0.9/0.1, (b)Ar/CF ₄ =0.5/0.5, (c)Ar/CF ₄ =0.1/0.9.....	88
图 5.11	当 Ar/CF ₄ =0.9/0.1 时, 在不同放电频率和不同相位差下, 放电中心处的带电粒子密度: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz.....	90
图 5.12	当 Ar/CF ₄ =0.9/0.1 时, 在不同放电频率和不同相位差下, 放电中心处的中性粒子密度: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz.....	91
图 5.13	频率为 100 MHz 时, 在不同气体组分和不同相位差下, 放电中心处的带电粒子密度: (a)Ar/CF ₄ =0.9/0.1, (b)Ar/CF ₄ =0.5/0.5, (c)Ar/CF ₄ =0.1/0.9	93
图 5.14	频率为 100 MHz 时, 在不同气体组分和不同相位差下, 放电中心处的中性粒子密度: (a)Ar/CF ₄ =0.9/0.1, (b)Ar/CF ₄ =0.5/0.5, (c)Ar/CF ₄ =0.1/0.9	94
图 6.1	HPEM 流程图 ^[107]	99
图 6.2	2300 Exelan Flex 刻蚀机 ^[159]	106
图 6.3	腔室结构示意图	107
图 6.4	27 MHz, 300 W 时, CF ₄ /O ₂ 等离子体中各粒子的体平均密度的模拟结果	108
图 6.5	27 MHz 时, CF ₄ /O ₂ 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的电子密度分布	109
图 6.6	60 MHz 时, CF ₄ /O ₂ 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的电子密度分布	109
图 6.7	27 MHz 时, CF ₄ /O ₂ 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的 CF ₃ ⁺ 密度分布	110
图 6.8	60 MHz 时, CF ₄ /O ₂ 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的 CF ₃ ⁺ 密度分布	111

图 6.9	27 MHz 时, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的 F 密度分布	111
图 6.10	60 MHz 时, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的 F 密度分布	112
图 6.11	不同放电频率下, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的晶片表面(a)F 原子通量和(b)O 原子通量的径向分布	112
图 6.12	2/27 MHz 时, 实验测量的不同低频功率下刻蚀率的径向分布 ^[164]	113
图 6.13	2/27 MHz 时, 模拟得到的不同低频功率下晶片表面(a)F 原子通量, (b)O 原子通量, (c) CF_2 通量, (d)总的离子通量的径向分布	114
图 6.14	2/60 MHz 时, 实验测量的不同低频功率下刻蚀率的径向分布 ^[164]	115
图 6.15	2/60 MHz 时, 模拟得到的不同低频功率下晶片表面(a)F 原子通量, (b)O 原子通量, (c) CF_2 通量, (d)总的离子通量的径向分布	116
图 6.16	2/27 MHz 时, 实验测量的不同高频功率下刻蚀率的径向分布 ^[164]	117
图 6.17	2/27 MHz 时, 模拟得到的不同高频功率下晶片表面(a)F 原子通量, (b)O 原子通量, (c) CF_2 通量, (d)总的离子通量的径向分布	118
图 6.18	2/60 MHz 时, 实验测量的不同高频功率下刻蚀率的径向分布 ^[164]	118
图 6.19	2/60 MHz 时, 模拟得到的不同高频功率下晶片表面(a)F 原子通量, (b)O 原子通量, (c) CF_2 通量, (d)总的离子通量的径向分布	119
表 2-1	真空情况下射频波的频率与波长的对应关系	24
表 4-1	H_2 等离子体化学反应模型	45
表 5-1	Ar/CF_4 等离子体化学反应模型	76
表 6-1	HPEM 主要模块 ^[107]	98
表 6-2	CF_4/O_2 等离子体中的电子碰撞反应	101
表 6-3	CF_4/O_2 等离子体中重粒子之间的碰撞反应	103

主要符号表

符 号	代表意义	单 位
e	电子电荷	V
n	密度	m^{-3}
Γ	通量	$\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$
T_e	电子温度	eV
m	质量	Kg
ϕ	电势	V
E	电场	V/m
B	磁场	T
J	电流密度	Am^{-2}
S	源项	$\text{m}^{-3}\text{s}^{-1}$

1 绪论

1.1 低温等离子体

等离子体是一种由电子，离子以及中性粒子为主要成分的物质形态，它广泛地存在于自然界中，一般在宏观上呈电中性。在等离子体放电过程中，会产生很多具有化学活性的离子以及中性自由基等，因此低温等离子体的应用十分广泛，如半导体工业、聚合物薄膜、材料防腐蚀、等离子体合成、等离子体冶金、等离子体煤化工、等离子体三废处理等领域^[1]。其中，低温等离子体表面处理技术已经是一项具有全球影响的重要加工手段，对高科技经济的发展及传统工业的改造有着巨大的影响。尤其在集成电路芯片的加工过程中，有近三分之一的工序都是基于等离子体处理技术。

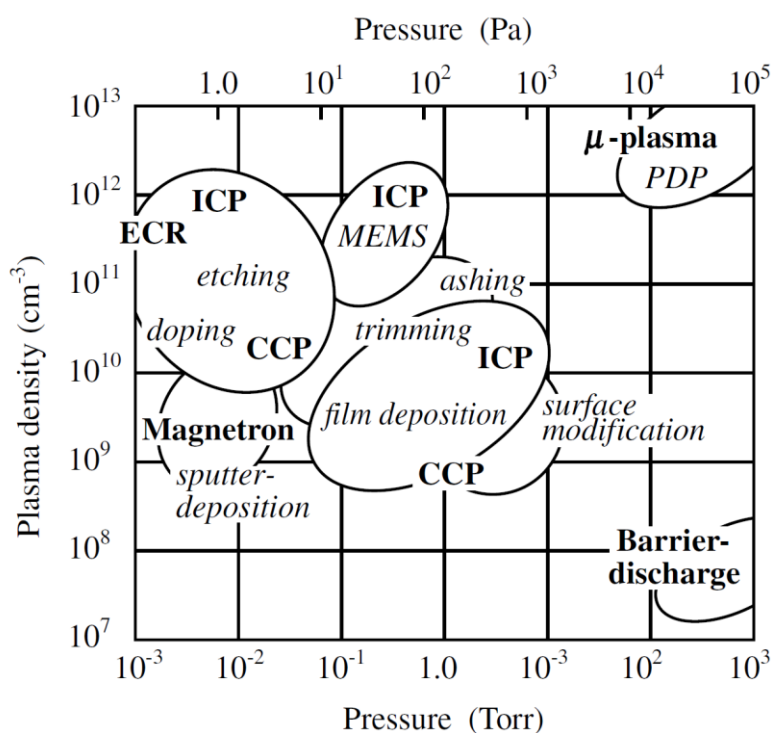


图 1.1 低温等离子体及材料处理过程^[2]

Fig. 1.1 Low temperature plasma and material processes^[2]

在采用低温等离子体进行材料表面处理和改性过程中^[1-3]，刻蚀和沉积是两个最为重要的工序。等离子体刻蚀，即干法刻蚀，具有高选择性，各向异性和低介质损伤等优点。即在刻蚀过程中，只从表面除去一种材料，而不影响其它材料，并且只除去沟槽底

部的材料而不会影响到侧壁，因而可以实现纳米尺度的刻蚀工艺。随着微电子工艺的发展，若要提高芯片的集成度，就需要不断地缩小器件尺寸，因此，就必须采用等离子体各向异性刻蚀技术。

化学气相沉积(Chemical Vapor Deposition, CVD)，是反应物质通过一系列气相和表面反应，在基体表面生成固体沉积产物的工艺过程，常用于沉积薄膜，如多晶硅、非晶硅、氮化硅等薄膜^[4]。其中 CVD 又分为常压化学气相沉积(Atmospheric Pressure Chemical Vapor Deposition, APCVD)，低压化学气相沉积(Low Pressure Chemical Vapor Deposition, LPCVD)，超高真空化学气相沉积(Ultra-high Vacuum Chemical Vapor Deposition, UHCVD)和等离子体增强化学气相沉积(Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition, PECVD)。在 PECVD 工艺中，等离子体的存在，会对气相反应甚至表面反应产生影响。在等离子体放电中，电子温度很容易满足原料气体分解的需要，而工作气体仍可以维持较低的温度。因此，PECVD 工艺能够减少材料损伤，进而优化薄膜属性。与 CVD 相比，物理气相沉积(Physical Vapor Deposition, PVD)的工艺过程较为简单，具有无污染、耗材少、成膜均匀致密等优点。PVD 技术是采用物理方法，将金属物质沉积到衬底上。在放电中通过将金属原子电离，离子在鞘层电场的作用下被加速，且束流的发散角比较低，进而实现在较深的沟槽中均匀地沉积薄膜。

1.2 低温等离子体源

为了实现等离子体技术在冶金、能源、化工、环境、航天等多种领域的应用，不同的等离子体源也应运而生。目前工业上常用的等离子体源有容性耦合等离子体(Capacitively Coupled Plasmas, CCP)源、感性耦合等离子体(Inductively Coupled Plasmas, ICP)源、电子回旋共振(Electron Cyclotron Resonance, ECR)等离子体源、螺旋波(Helicon)等离子体源和表面波等离子体(Surface Wave Plasma, SWP)源等。

感性耦合等离子体源(ICP)是于上世纪 90 年代发展起来的，用于进行材料处理的高密度等离子体源^[5]。ICP 源可以在较低的射频电压和放电气压(<10-20 mTorr)下产生较高密度(10^{11} - 10^{12} cm⁻³)的等离子体，因此电极表面的电压较低，从而能够减轻 CCP 放电中常见的污染，并且能够实现对大面积基片进行均匀的各向异性刻蚀^[6-8]。在 ICP 放电中，射频功率施加在一个非共振线圈上。根据线圈的位置和形状，可以将 ICP 源分为两种类型：圆柱形和平面形^[1, 9-12]。在柱状 ICP 中，线圈是以螺线管形缠绕在放电腔室外侧，如图 1.2(a)所示。在平面 ICP 中，线圈以螺旋线形置于放电腔室的顶端，如图 1.2(b)所

示。在 ICP 放电中，通常采用石英等介质将线圈和等离子体隔开，以避免等离子体电流直接流入线圈。

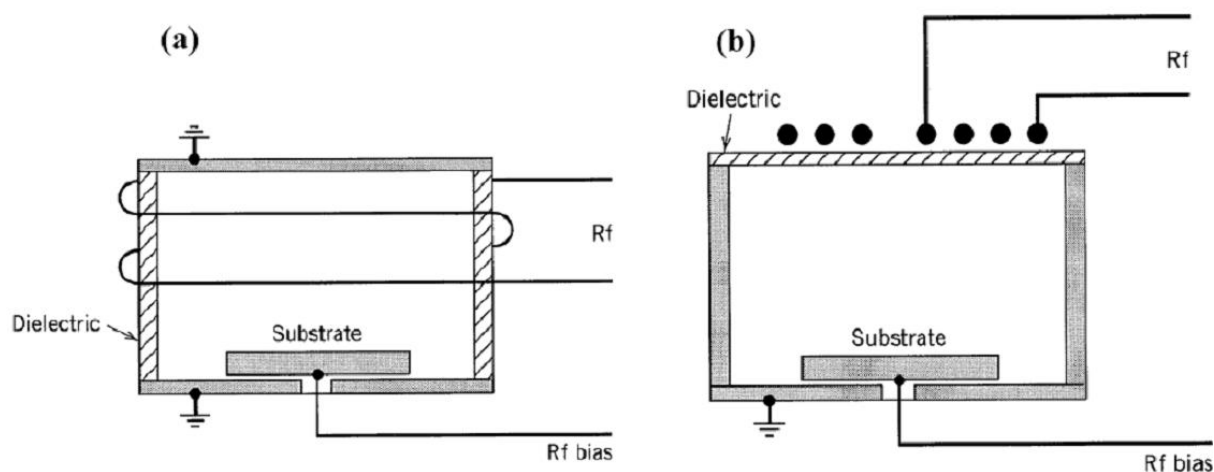


图 1.2 感性耦合等离子体源结构示意图：(a) 柱状线圈，(b) 平面线圈^[1]

Fig. 1.2 Schematic of inductively coupled plasma sources in (a) cylindrical and (b) planar geometries^[1]

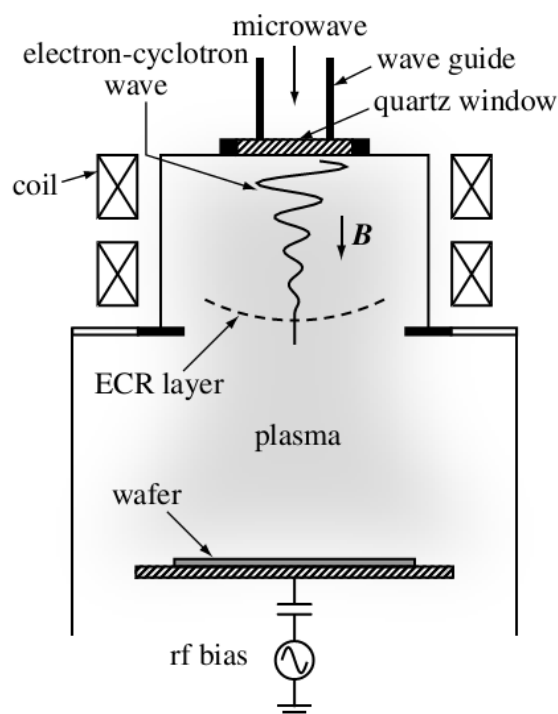


图 1.3 ECR 等离子体源结构示意图^[2]

Fig. 1.3 Schematic of ECR plasma source^[2]

在电子回旋共振(ECR)等离子体源中,微波能量通过输入窗经波导或天线耦合传播到共振区,电子在磁场作用下做回旋运动。当回旋角频率与施加的微波频率相等时,即为共振状态。此时,运动的电子从微波中不断获得能量,提高电子温度,使得气体电离进而维持放电。一般情况下,ECR 放电是由频率为 2.45 GHz 的微波激发的,且在等离子体中需要施加一个 875 G 的强直流磁场,以确保电子能够充分的吸收波的能量^[2,13,14]。此外,ECR 等离子体源只能工作在很低的气压下,以保证碰撞过程不会影响到共振。

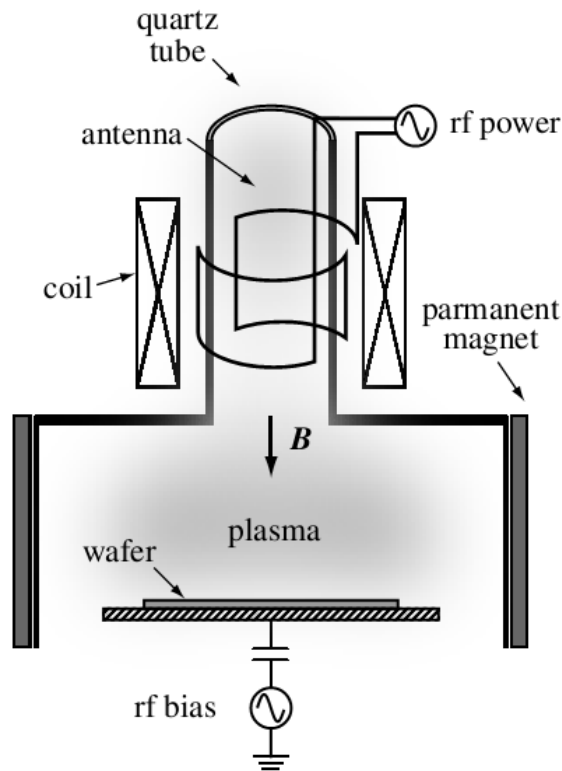


图 1.4 螺旋波等离子体源结构示意图^[2]

Fig. 1.4 Schematic of helicon plasma source^[2]

螺旋波等离子体源(Helicon),是另外一种常见的磁增强等离子体源,其结构如图 1.4 所示。早在 1970 年, Boswell 首先在实验上利用螺旋波产生了等离子体^[1,15]。螺旋波是由射频驱动天线激发的,并通过绝缘器壁发射到等离子体中,通过碰撞或无碰撞阻尼过程将电磁波的能量传递给电子。与 ECR 不同的是, Helicon 是由射频源驱动的,典型的射频源驱动频率为 1-50 MHz。此外, Helicon 中所采用的静磁场强度比 ECR 中低很多,在典型的材料处理过程中,磁场强度约为 100 G,因此 Helicon 放电比 ECR 的成本低。

由于在 ECR 和 Helicon 放电中, 都需要施加外磁场, 因此腔室结构较为复杂, 很难保证大面积的均匀性。此外, 由于等离子体中的电子能量较高, 因此会对精细加工带来不利影响。近年来, 表面波等离子体源(SWP)因其结构简单, 能够产生高密度、大面积均匀的等离子体, 受到人们越来越广泛的关注^[1,16,17]。在 SWP 中, 电磁波沿着等离子体表面传播, 通过碰撞加热机制, 将电磁波中的能量传递给电子。通常情况下, 为了高效地吸收波的能量, 在 SWP 中, 电磁波的传播路径较长, 因此这种放电具有很高的长宽比值。

容性耦合等离子体源(CCP)最早出现在上世纪 70 年代, 主要用于刻蚀和沉积薄膜。与 ICP 和波加热放电不同的是, 在 CCP 放电中, 功率是通过位于等离子体内部的电极耦合给等离子体的, 如图 1.5 所示。在 CCP 放电系统中, 包含一个真空反应腔室和两个平板电极。最初, 工业上采用的 CCP 是由单频(Single Frequency, SF)功率源驱动的, 典型的放电频率为 13.56 MHz, 工作气压通常在 10-1000 mTorr。在 CCP 放电中, 等离子体密度较低, 通常在 10^9 - 10^{11} cm⁻³, 电子温度约为 3 eV。由于在单频放电中, 等离子体密度较低, 因此工艺过程较慢, 而且单一频率无法实现对基片表面的离子通量和离子能量的独立控制。

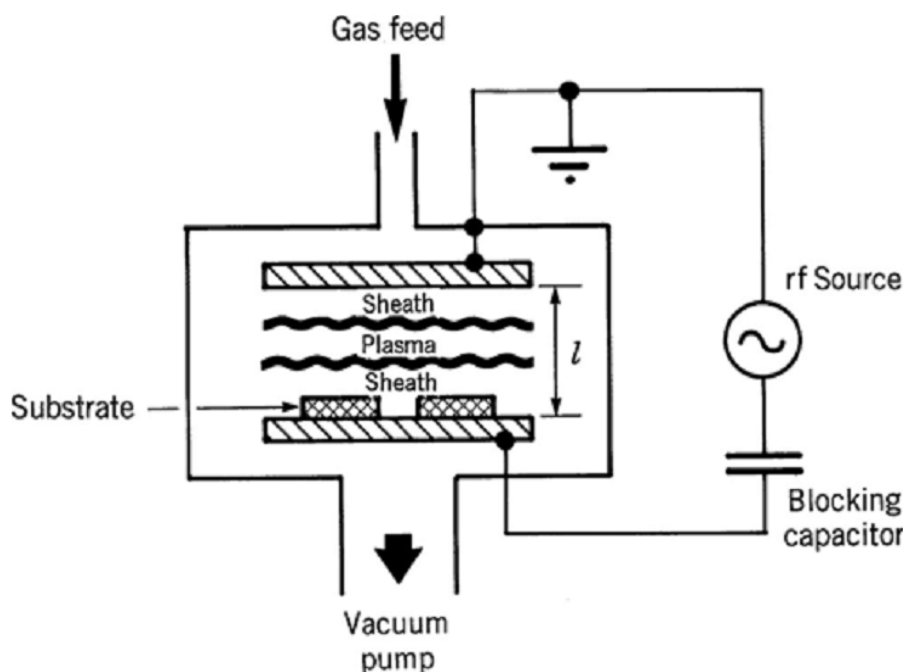


图 1.5 容性耦合等离子体源结构示意图^[1]

Fig. 1.5 Schematic of capacitively coupled plasma sources^[1]

为了满足集成电路制造工艺的需求,即提高刻蚀和沉积速率、提高选择性、降低晶片损伤,在等离子体放电过程中需要实现对离子通量和平均离子能量的分别控制。在1990年左右,Goto等人^[18,19]率先提出了双频(Dual Frequency, DF)CCP放电。在DF CCP放电中,高频源用于控制等离子体密度即入射到基片上的离子通量,低频源用于控制离子能量。两个射频源既可以施加在同一电极上,如Lam公司生产的刻蚀机;也可以施加在不同的电极上,如应用材料公司和东京电子公司的产品。在刻蚀工艺中,常用的频率组合为2/27 MHz, 2/60 MHz, 13.56/160 MHz,而0.46/13.56 MHz通常用于沉积工艺。

1.3 甚高频放电中电磁效应的研究进展

在CCP放电中,当放电功率和其它放电参数一定时,较高的放电频率,可以产生较高密度的等离子体,和较低能量的离子^[20-25]。因此在刻蚀工艺中,为了提高刻蚀率,目前普遍采用甚高频来驱动放电。如上海中微公司及东京电子公司所生产的双频CCP刻蚀机,其高频电源的频率为60 MHz。而应用材料公司所研制的刻蚀机,其高频源的频率甚至达到160 MHz。此外,随着刻蚀工艺的发展,晶圆的尺寸不断增加,进而放电腔室的尺寸也要随之增加。针对下一代450 mm的晶圆刻蚀工艺,放电腔室的尺寸将达到1 m左右。

此外,在薄膜沉积工艺中,当射频源频率为13.56 MHz时,由于离子的轰击能量较高,因此沉积的多为非晶硅薄膜^[26,27]。在甚高频放电中,由于高频源能够产生较高密度的等离子体和较低能量的离子,因此甚高频源通常用于沉积微晶硅薄膜,以提高沉积速率及薄膜的质量^[28-31]。如日本三菱重工制造的沉积微晶硅薄膜的等离子体设备,其放电频率为60 MHz,电极的面积为1.2 m×1.14 m。又如我国上海理想能源公司制造的微晶硅薄膜沉积装置,其放电频率为40 MHz,腔室的横向尺寸也超过了1 m。

由此可以看出,无论是在刻蚀工艺还是在薄膜沉积工艺中,CCP源的发展趋势为:放电频率越来越高,腔室尺寸越来越大。然而随着放电频率的增加,电磁波的波长不断减小。当电磁波的波长与腔室尺寸相当时,会引起一系列电磁效应,如驻波效应和趋肤效应等,并对等离子体特性产生重要影响,进而影响刻蚀和沉积过程^[32]。

所谓驻波效应,即当频率高于13.56 MHz时,在放电腔室内部除了垂直于表面的纵向电场,还存在着平行于电极表面的涡旋电场,此时的放电过程是由纵向电场和横向涡旋电场共同维持的。由于在等离子体中,电磁波的波长比在真空中的波长要小。因此随着放电频率的增加,当放电腔室的尺寸接近1 m时,电磁波的波长就有可能与反应腔室的尺寸相当。此时,器壁上的反射波与入射波相互叠加,就会产生驻波。驻波的存在,

性的主要来源。此外，对于 300 mm 刻蚀工艺，在典型的放电参数下，如 27.12 MHz，50 mTorr 时，等离子体密度的不均匀性仅为 3%。然而在大面积平板显示工艺中，当电极尺寸超过 1m 时，不均匀度会增加为 35%。

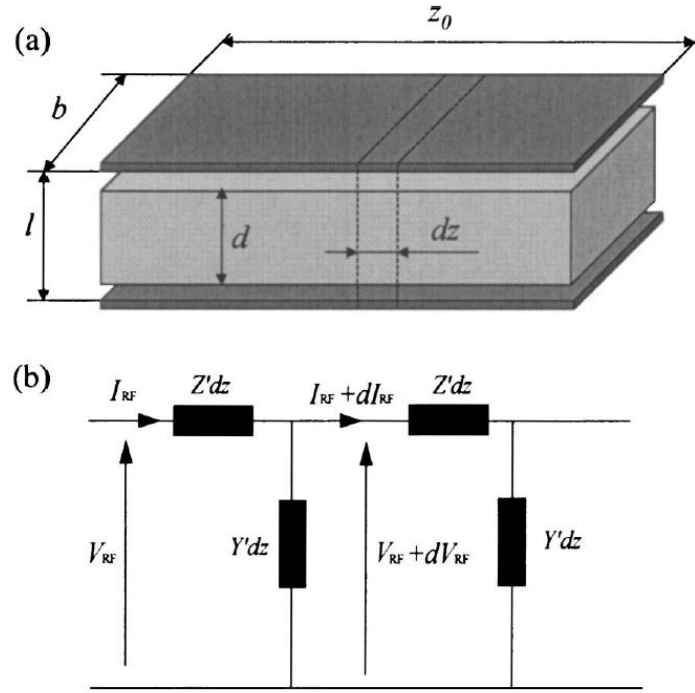


图 1.7 (a) CCP 放电结构示意图 (b) 传输线模型结构示意图^[34]

Fig. 1.7 Schematic of the capacitive discharge (a), and the equivalent transmission line model (b)^[34]

随后，Chabert 等人^[39,40]继续采用自洽的传输线模型，研究了 CCP 放电中的感性加热以及模式转换。研究表明：放电既可以由容性场维持，也可以由感性场维持，当两极板之间的电压增加时，放电会从容性模式(capacitive mode, E mode)过度为感性模式(inductive mode, H mode)，如图 1.8 所示。当放电腔室半径为 0.15 m 时，驻波效应并不十分显著。当放电频率为 27 MHz 时，感性加热并不明显，但是其随着频率的增加而显著增加。当放电频率为 170 MHz 时，可以观察到 E 模式向 H 模式的转换。随着电极尺寸增加，感性加热效应会增强。因此当放电腔室半径增加为 0.25 m 时，在频率为 60 MHz 时就可以观察到模式转换。

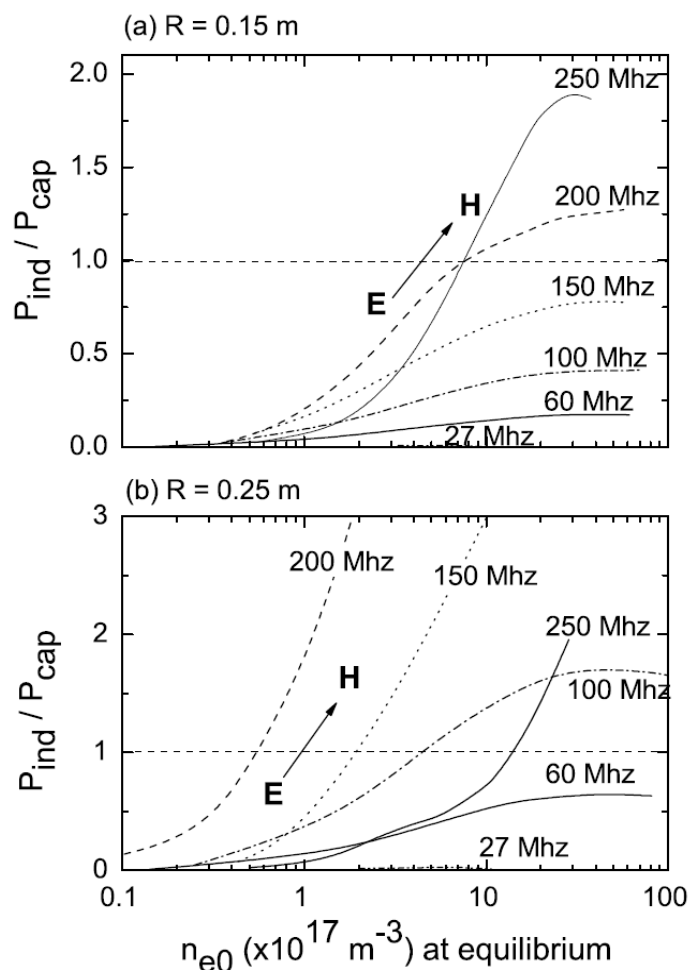


图 1.8 (a) $R = 15$ cm, (b) $R = 25$ cm 时, 不同频率下 P_{ind}/P_{cap} 随密度 n_{e0} 的变化^[40]

Fig. 1.8 Inductive-to capacitive power ratio, P_{ind}/P_{cap} , versus n_{e0} at equilibrium for several frequencies and for (a) $R = 15$ cm and (b) $R = 25$ cm^[40]

Lee 等人^[45]采用了二维流体模型, 耦合麦克斯韦方程组 and 解析鞘层模型, 研究了甚高频大面积的 Ar 放电。在他们的模拟中, 综合考虑了静电边缘效应、驻波效应和趋肤效应对等离子体的影响, 并与实验结果进行了比较。不同放电频率下, 放电中心处电子密度的径向分布如图 1.9 所示。当频率为 13.56 MHz 时, 由于边缘效应, 等离子体密度的最大值出现在径向边缘处。随着频率增加, 边缘效应减弱。尤其是当放电频率增加为 100 MHz 时, 由于电压波节出现在径向边缘附近, 因此边缘效应被抵消, 等离子体密度的最大值出现在放电中心处。

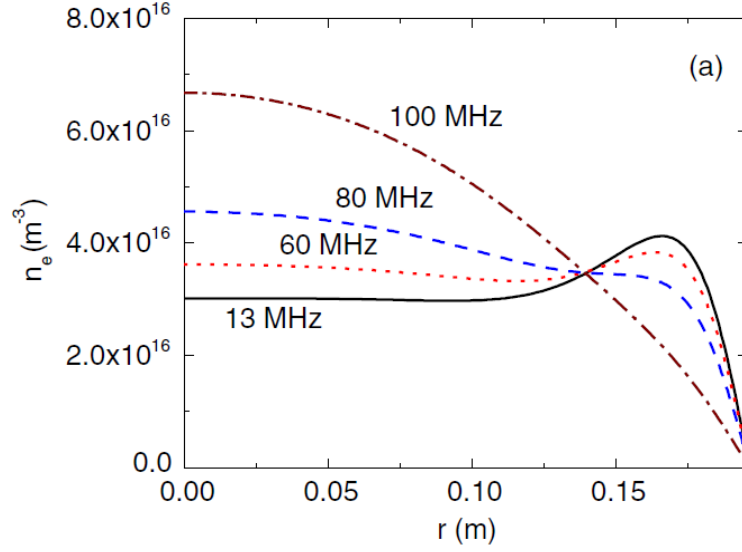


图 1.9 当功率为 40 W，气压为 150 mTorr 时，不同频率下放电中心处电子密度的径向分布^[45]

Fig. 1.9 Radial distributions of the electron density along the reactor gap center for various frequencies, at 40 W and 150 mTorr^[45]

Rauf 等人^[47]在他们的模型中，引入了磁矢势 $\mathbf{A}$ ，并认为等离子体中的电场由两部分组成，即 $\mathbf{E} = \mathbf{E}_\phi + \mathbf{E}_A = -\nabla\phi - \frac{\partial\mathbf{A}}{\partial t}$ ，其中 ϕ 表示静电势。通过自洽地求解等离子体中的静电势和磁矢势，进而确定等离子体中的电场分布。由图 1.10(a)可以看出，当放电频率为 180 MHz 时，由于驻波效应显著，等离子体密度的最大值出现在放电中心处。这样的密度分布，可以通过静电沉积功率 $P_e(ES)$ 和电磁沉积功率 $P_e(EM)$ 的分布来解释。在图 1.10(b)中，由于鞘层中的静电场较强，鞘层区与预鞘层区的 $P_e(ES)$ 十分显著。此外，由于极板边缘处的电场较强， $P_e(ES)$ 的最大值出现在径向边缘处。虽然在鞘层区域， $P_e(EM)$ 的幅值远低于 $P_e(ES)$ ，但是随着电磁场传播到等离子体内部， $P_e(EM)$ 发生在整个放电区域，因此对等离子体分布的影响更为显著。所以，在此放电条件下，等离子体密度的最大值也出现在对称轴处，与 $P_e(EM)$ 相似。

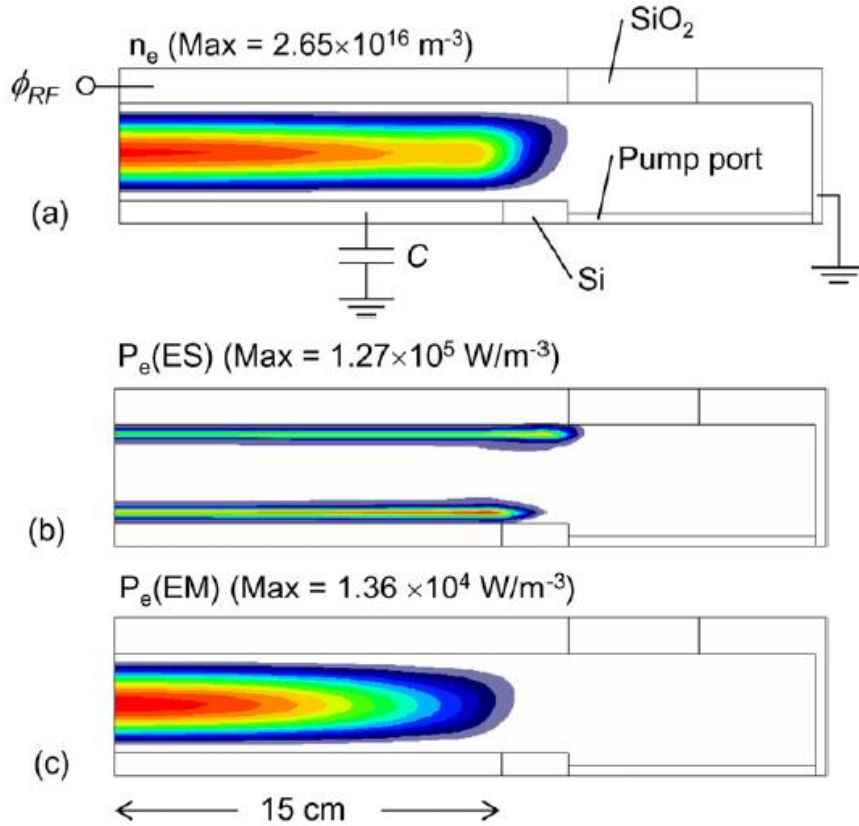


图 1.10 当功率为 100 W，频率为 180 MHz 时，Ar 放电中的 (a) 电子密度，(b) 静电沉积功率，(c) 电磁沉积功率的分布^[47]

Fig. 1.10 (a) The electron density, (b) the electrostatic power deposition, and (c) the electromagnetic power deposition for an Ar discharge sustained at 180 MHz, 100 W^[47]

随后，Chen 等人^[56]采用了三维流体力学模型，针对大面积矩形放电腔室(极板尺寸为 $3.05 \times 2.85 \text{ m}^2$)，研究了在 H_2 放电中的电磁效应。研究表明，随着放电频率和功率的增加，在大面积矩形反应腔室中，会激发出电磁场的高次谐波，进而影响电磁场的空间均匀性。图 1.11 给出了不同放电频率下，两极板之间 H_2^+ 密度的空间分布。当频率为 13.56 MHz 时，等离子体密度的最大值出现在放电中心处。随着频率增加为 60 MHz，放电中心处的密度升高，且峰值变得更加局域化。此外，角落处的 H_2^+ 密度也有着明显地上升。当放电频率增加为 100 MHz 及 200 MHz 时，密度的最大值从放电中心处转移到腔室边缘，这便是由于电磁场的高次谐波所致。

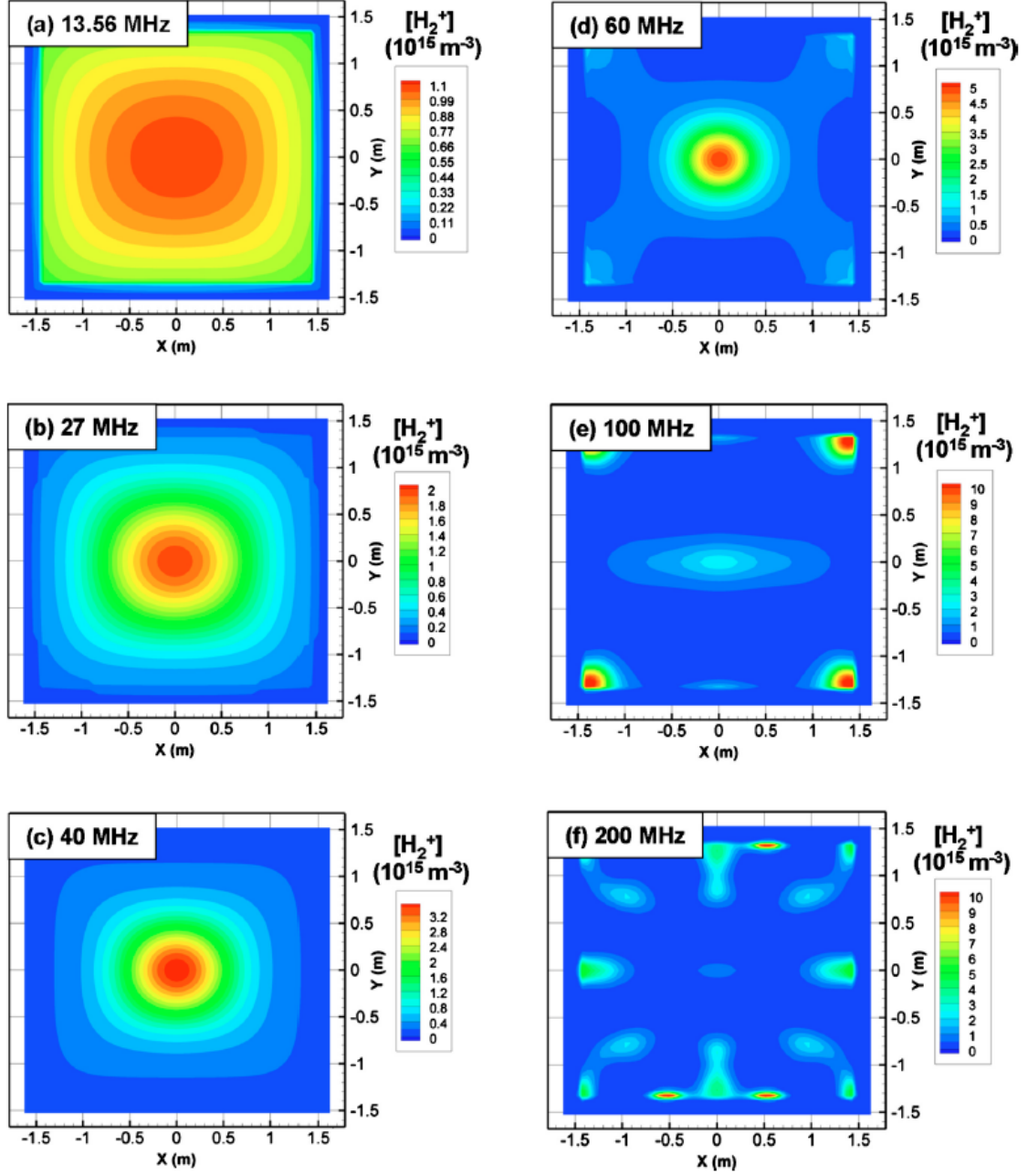


图 1.11 不同频率下，两极板之间 H_2^+ 密度的空间分布：(a) 13.56 MHz，(b) 27 MHz，(c) 40 MHz，(d) 60 MHz，(e) 100 MHz，(f) 200 MHz^[56]

Fig. 1.11 The spatial distribution of H_2^+ density in the middle of the interelectrode gap at various frequencies: (a) 13.56 MHz, (b) 27 MHz, (c) 40 MHz, (d) 60 MHz, (e) 100 MHz, and (f) 200 MHz^[56]

Yang 和 Kushner^[57,58]采用了二维的 Hybrid Plasma Equipment Model (HPEM)模型，耦合全波麦克斯韦求解器，系统地研究了在双频放电中，等离子体属性随高频频率、气压、功率及放电气体电负性等参数的变化规律。

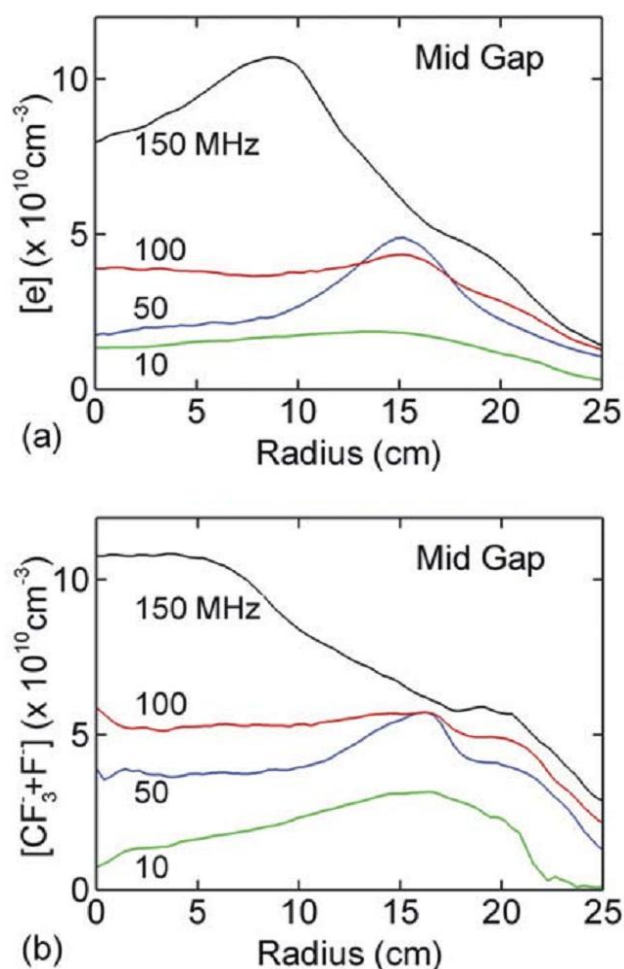


图 1.12 当 Ar/CF₄=90/10, 50 mTorr, P_{HF}=P_{LF}=300 W, LF = 10 MHz 时, 不同高频频率下, 放电中心处的 (a) 电子密度, (b) 负离子密度之和^[57]

Fig. 1.12 Time averaged (a) electron density, (b) total negative ion density for various high frequencies as a function of radius at mid-gap for Ar/CF₄ = 90/10 (50 mTorr, P_{HF}=P_{LF}=300 W, LF = 10 MHz)^[57]

图 1.12 给出了在 Ar/CF₄ 等离子体中, 放电中心处的电子密度以及负离子密度之和随高频频率的变化趋势。随着高频频率的增加, 电子加热更为有效, 且由于离子加速而引起的功率耗散有所减少, 因此电子密度和负离子密度之和有所上升。当高频频率从 10

MHz 增加为 100 MHz 时, 等离子体电负性, 即负离子密度之和与电子密度的比值, 从 0.64 增加为 1.1。随着高频频率继续增加为 150 MHz, 等离子体电负性下降为 0.94。此外, 随着高频频率的增加, 负离子密度之和的径向分布从边缘高(10 和 50 MHz)逐渐变得平缓(100 MHz), 随后其最大值出现在放电中心处(150 MHz)。而电子密度的径向分布则是从边缘高(10 和 50 MHz)过度为中心和边缘处出现两个最大值(100 MHz), 最终电子密度的峰值出现在 $r = 10 \text{ cm}$ 附近(150 MHz)。

1.3.2 电磁效应的诊断研究

Perret 等人^[24]通过在上极板表面放置了一系列静电探针, 测量了大面积矩形放电腔室($40 \times 40 \text{ cm}^2$)中的离子通量。如图 1.13 所示, 当频率为 13.56 MHz 时, 离子通量的分布很均匀。然而当频率增加为 60 和 81.36 MHz 时, 离子通量的均匀性变差, 其最大值出现在放电中心处。

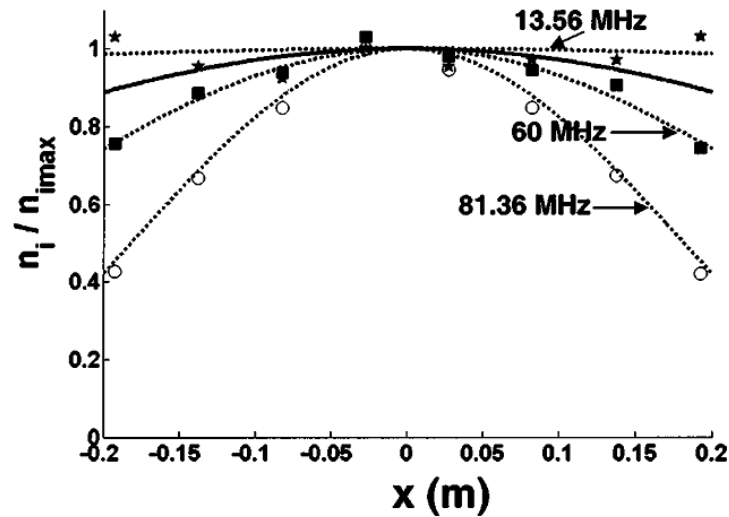


图 1.13 当气压为 150 mTorr, 功率为 50 W 时, 不同频率下的离子通量分布^[24]

Fig. 1.13 Ion flux profile at $(x,y) = 0$, for 150 mTorr/50 W, at 13.56 MHz (stars), 60 MHz (full squares), and 81.36 MHz (empty circles)^[24]

Ahn 等人^[71]使用 Langmuir 探针和 B-dot 探针, 测量了当放电频率为 90 MHz, 气压为 50 和 400 mTorr 时, 电子密度的径向分布。当气压为 50 mTorr 时, 等离子体并不是完全被束缚在上下极板之间。由于径向的扩散作用, 电子密度的最大值出现在放电中心处, 并沿着径向方向逐渐下降。然而当气压为 400 mTorr 时, 由于感性电场的作用, 电子密度的最大值出现在 $r = 7 \text{ cm}$ 附近, 如图 1.14 所示。

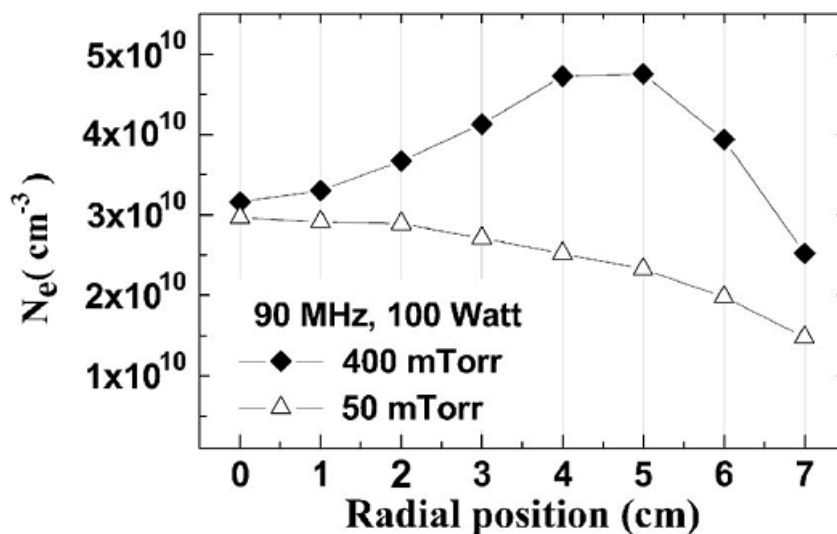


图 1.14 当频率为 90 MHz，功率为 100 W 时，电子密度的径向分布^[71]

Fig. 1.14 The electron density as a function of the radial position measured at 90 MHz, 100 W^[71]

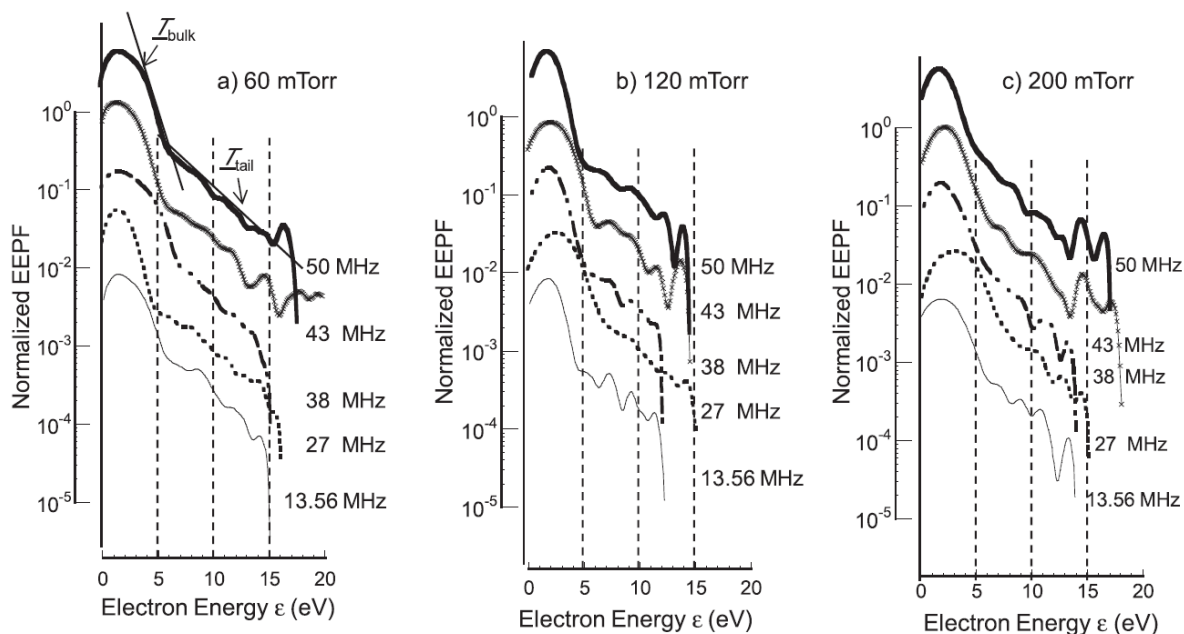


图 1.15 当 $V_{HF} = 140 V_{pp}$ 时， N_2 放电中不同频率不同气压下的 EEPF: (a) 60 mTorr, (b) 120 mTorr, (c) 200 mTorr^[76]

Fig. 1.15 Normalized EEPF for different frequencies at a fixed voltage $V_{HF} = 140 V_{pp}$ and nitrogen pressure of (a) 60 mTorr, (b) 120 mTorr, (c) 200 mTorr^[76]

最近, Abdel-Fattah 等人^[76]采用 Langmuir 探针和发射光谱, 测量了氮气甚高频放电中的电子能量概率分布函数(Electron Energy Probability Function, EEPF), 如图 1.15 所示。曲线的斜率 $df_p / d\varepsilon$ 给出了体等离子体区的电子温度 T_{bulk} , 以及高能尾处的电子温度 T_{tail} 。粗略来说, 电子能量分布分为三种类型, 即 Druyvestein(D)分布($T_{bulk} > T_{tail}$), 麦克斯韦分布($T_{bulk} \approx T_{tail}$), 和双麦克斯韦分布($T_{bulk} < T_{tail}$)。当气压为 60 mTorr 时, 随着频率增加, EEPF 始终呈现出双麦克斯韦分布。原因是, 一方面无碰撞鞘层加热增强了高能尾, 另一方面碰撞过程减少了能量处于 2-4 eV 范围内的电子。当气压增加为 120 mTorr 时, 双麦克斯韦分布更为明显。当气压继续增加为 200 mTorr, 频率低于 27.12 MHz 时, 由于碰撞热化效应, EEPF 呈现出 D 分布, 因此 T_{bulk} 和 T_{tail} 的值都很高。当频率高于 27 MHz 时, 由于电子与分子之间的振动碰撞过程变得重要, 因此 T_{bulk} 和 T_{tail} 均有所降低。

1.3.3 电磁效应的抑制方法

上述研究成果表明, 在大面积甚高频放电中, 电磁效应的存在会显著影响等离子体特性, 并引起径向不均匀性。因此近年来, 一些研究学者提出了不同的方法来抑制电磁效应引起的不均匀性, 如高斯透镜形电极^[35,62,64,80,81], 梯形电极^[36,42,61,82], 分级电导率电极^[59], 块状电极^[60], 改变上下极板间距^[49], 调节两个射频源的功率^[51], 以及相位控制^[48,72-74]等。

早在 2003 年, Sansonnens 等人^[80]通过求解真空中的麦克斯韦方程组, 发现如果采用高斯透镜形电极代替平板电极, 可以有效地抑制由驻波效应引起的径向不均匀性。随后, 他们在实验上证实了这一推测^[62]。由图 1.16 可以观察到, 当采用传统平板电极放电, 驱动频率为 13.56 MHz 时, 轴向电场的径向分布比较均匀。然而随着放电频率的增加, 由于驻波效应的存在, 电场的径向不均匀性变得明显。当采用高斯透镜形电极代替平板电极时, 由于此电极是按照频率为 100 MHz 的参数设计的, 因此当放电频率为 100 MHz 时, 电场的径向均匀性较好。然而随着频率降低, 放电中心处的电场幅值低于边缘处。接下来, 他们将研究范围推广到大面积矩形放电腔室中^[64,81]。研究结果表明, 与柱对称放电腔室不同, 在矩形腔室中, 电极不是高斯透镜形的。电极的形状不仅受到腔室尺寸以及激发频率的影响, 同时还受到射频源连接位置的影响。

日本三菱重工^[36,82]提出采用梯形电极, 也可以优化等离子体的径向均匀性。所谓的梯形电极, 即连接射频源的电极不是传统的平板电极, 而是由一系列互相平行的金属棒构成的, 其形状类似于一个梯子。采用这样的电极结构, 可以降低电磁波在不同金属棒中传播产生的互相干扰, 因而可以在一定程度上抑制驻波效应。

Yang 和 Kushner^[59,60]采用 HPEM 模型,在理论上证实了如果在金属电极表面覆盖一层由不同导电材料组成的介质,或者用介质将金属电极隔开,均可以有效地优化等离子体均匀性。不同的电极结构如图 1.17 所示。

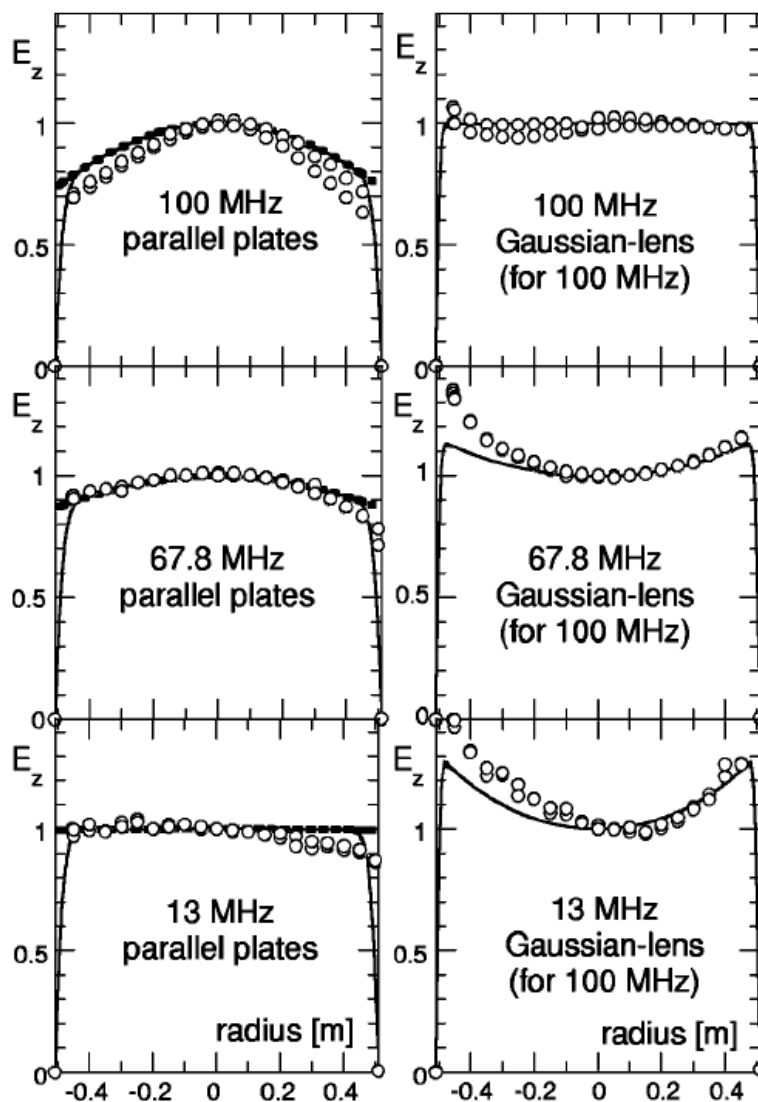


图 1.16 频率为 13.56, 67.8, 100MHz 时, 实验和模拟得到的轴向电场的径向分布其中左图采用的是平板电极, 右图采用的是高斯透镜形电极^[62]

Fig. 1.16 Measured and modeled radial profiles of the vertical electric field in vacuum for frequencies 13.56, 67.8 and 100 MHz. Left-hand column: with parallel plate electrodes. Right-hand column: using the Gaussian lens electrode (design frequency 100 MHz)^[62]

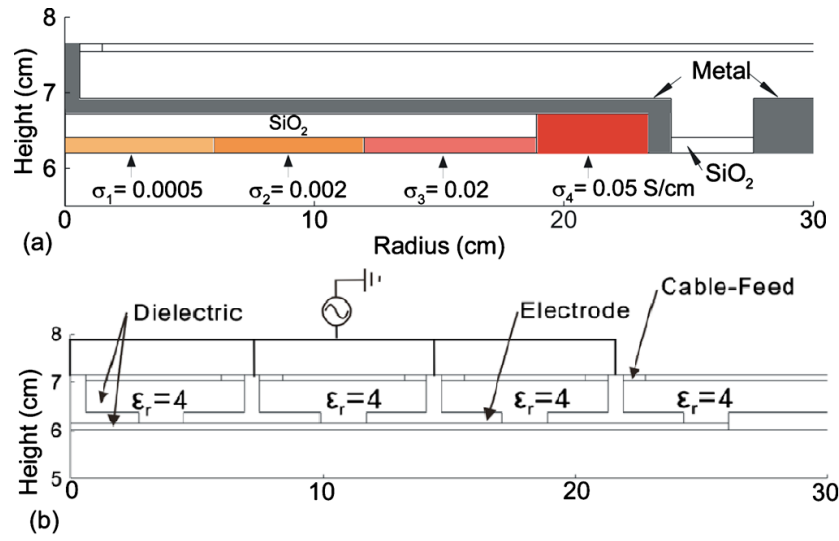

 图 1.17 (a) 分级电导率电极和 (b) 块状电极示意图^[60]

 Fig. 1.17 Geometry of (a) graded conductivity electrode and (b) segmented electrode^[60]

以上所提到的抑制等离子体不均匀性的方法，大部分都需要改变电极形状，因此成本较高，且在工业上很难实现。近期有研究表明，采用相位调制的方法，即仅通过调节两个同频率电源之间的相位差，也可以有效地优化等离子体的均匀性^[48,72-74]。相位调制不需要改变放电腔室的几何结构，因此在工业上较容易实现。

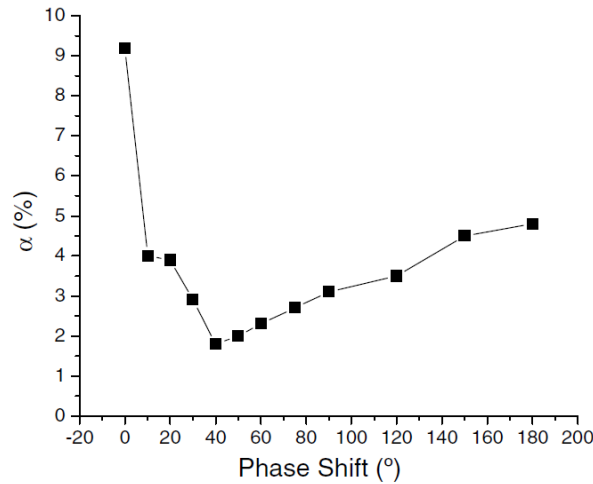

 图 1.18 $C_4F_8/O_2/Ar$ 放电中，气压为 15 mTorr，上极板功率为 500 W，下极板功率为 250 W 时，不同相位差下的等离子体不均匀度^[74]

 Fig. 1.18 Plasma nonuniformity degree versus phase shift in process gas ($C_4F_8/O_2/Ar$) at 15 mTorr, top VHF power is 500 W, bottom VHF power is 250 W^[74]

Bera 等人^[48]首先采用模拟的方法,研究了在 Ar 放电中两个极板之间的相位差对等离子体特性的调制作用。随后, Sung 等人采用光学探针等手段,测量了不同的相位差下, Ar/O₂/CHF₃/C₄F₆/C₄F₈ 以及 C₄F₈/Ar/O₂ 放电中等离子体的径向分布。等离子体不均匀度的定义为 $\alpha = ((J_{\max} - J_{\min}) / 2J_{av})100\%$, 其中 $J_{\max}$, $J_{\min}$, J_{av} 分别为测量得到的基片表面 Ar 谱线强度的最大值, 最小值和平均值。从图 1.18 中可以观察到等离子体不均匀度随两个同频率电源之间的相位差变化显著, 且当相位差为 40 度时, 等离子体的均匀性最好。

1.4 本文的研究内容和安排

综上所述, 尽管人们针对甚高频放电中的电磁效应开展了一系列的研究工作, 但目前仍然存在很多问题。在上文提到的理论研究中, 重点考察了不同的放电条件下, 等离子体特性的分布。而所谓的静电模型与电磁模型之间的差异, 尤其是当电磁效应对等离子体的影响占主导地位时, 二者的差异仍不是很清楚。此外, 在对等离子体均匀性的调控上, 目前看来只有采用相位差调制的方法, 不需要改变放电腔室的结构, 比较容易实现。然而对于相位差效应的研究工作, 大部分采用的是实验诊断的手段。在有限的理论研究工作中, 也只是针对 Ar 等离子体, 在固定的放电频率下开展的。然而在实际的工艺过程中, 采用的是更为复杂的气体。因此在 H₂ 以及 Ar/CF₄ 等离子体中, 相位差效应背后的机制, 以及对等离子体瞬时行为和径向均匀性的调制作用, 仍有待进一步研究。尤其是在 Ar/CF₄ 混合气体放电中, 负离子的引入必然会影响电磁效应以及相位差效应对等离子体的影响, 这些都是亟待研究的课题。此外, 由于 DF CCP 能够实现对离子通量和离子能量的独立控制, 因此近年来也被广泛地应用于等离子体工艺中。在双频放电中, 尤其是在不同的放电功率下, 电磁效应对等离子体特性的影响, 也成为人们关注的热点问题之一。

本文针对下一代 450 mm 晶圆的刻蚀工艺, 以及大面积微晶硅薄膜的沉积工艺, 系统地研究了在大面积甚高频容性耦合等离子体放电中的电磁效应, 以及抑制其产生的不均匀性的方法。

在引言中, 主要介绍了低温等离子体的研究背景, 各种低温等离子体源的特点及应用范围, 以及 CCP 源的发展趋势。此外, 还详细介绍了在甚高频放电中, 电磁效应(驻波效应和趋肤效应)对等离子体特性, 尤其是径向均匀性的影响, 以及相应的解决办法。

在本文的第二章中, 采用流体力学模型描述等离子体中各种带电粒子以及中性自由基的输运过程, 并与麦克斯韦方程组耦合, 自洽地求解甚高频放电中瞬时变化的电磁场。

在本文的第三章中，针对 Ar 等离子体，通过比较在不同的放电条件下（放电频率、气压、电压），静电模型（仅包含静电场）和电磁模型（同时包含静电场和电磁场）计算得到的电子密度和电子温度等参量的空间分布，系统地研究了电磁效应对等离子体特性的影响。

在本文的第四章中，基于二维流体力学模型，系统地研究了在 H_2 放电中两个同频率电源之间的相位差对等离子体动力学行为及其径向均匀性的影响。通过考察不同相位差下，对称轴附近的电子通量、功率沉积密度、电离率和等离子体密度的时空分布，分析了相位差对等离子体瞬时特性的调制。此外，本章还研究了不同频率下，相位差效应对等离子体径向均匀性的影响。

在本文的第五章中，基于二维流体力学模型，研究了在 Ar/ CF_4 混合气体放电中，两个同频率电源之间的相位差对等离子体特性的影响。首先，通过比较静电模型和电磁模型计算得到的电子密度和电子温度的分布，说明了在甚高频放电中，电磁效应对等离子体的显著影响。其次，固定气体组分为 Ar/ $CF_4=0.9/0.1$ ，通过 Ar^+ 的密度分布，说明了不同频率下，两个同频率电源之间的相位差对等离子体均匀性的调制。随后将放电频率固定为 100 MHz，分别给出了当 CF_4 含量为 10%，50%和 90%时， CF_3^+ 的密度分布。本章的最后研究了不同频率以及不同混合气体比率下，两个同频率电源之间的相位差对等离子体组分的影响。

在本文的第六章中，采用 HPEM 模型，研究了双频 CF_4/O_2 混合气体放电中的电磁效应。首先，通过比较静电模型和电磁模型计算得到的等离子体密度的分布，说明了在双频放电中，电磁效应对等离子体的显著影响。其次通过改变射频源功率，观察了不同放电条件下，晶片表面各种粒子通量的径向分布，并与实验测量的刻蚀率进行了比较。

2 甚高频放电等离子体的流体力学模型

2.1 引言

相对于实验诊断而言,数值模拟方法以其方便、快捷、成本低、周期短等优点,被广泛地应用于等离子体放电过程的研究中。目前,常用的数值模型有解析模型,整体模型,粒子模拟,流体力学模型和混合模型等。

解析模型^[83-86],是用来描述等离子体特性的一种比较简单的方法。在解析模型中,通常采用一系列的假设来简化问题,得到等离子体中各参量的解析表达式,进而实现对等离子体放电中各物理化学过程的分析,并给出一些定性的结果。

在整体模型^[87-91],即零维模型中,通常假设等离子体是均匀分布的。基于等离子体中各粒子的产生和损失过程,通过求解平衡方程,获得流量和能量的基本守恒关系,进而估算出各粒子的平均密度。由于在该模型中没有考虑各粒子的空间输运过程,因此无法得到等离子体中各参量的空间分布情况。此模型主要适用于研究复杂化学反应过程中,等离子体属性与外界参量的定标关系。

相对解析模型和整体模型而言,流体模型^[92-97]将等离子体看成是一种由多种成分(电子、离子和中性粒子)组成的连续介质,通过自洽地求解各粒子的玻尔兹曼矩方程(即连续性方程、动量方程以及能量方程),得到等离子体中各种宏观参量(如密度、温度、电磁场等)的时空分布。流体模型具有计算效率高、收敛性好等优点,因此适用于对复杂腔室结构和化学反应的研究。但是采用流体力学模型,无法自洽的计算电子能量分布函数。在实际放电过程中,尤其是在低气压高场强的情况下,电子的平均自由程远大于系统的特征尺度,此时流体模型无法精确地描述等离子体内部的动力学行为,尤其是无碰撞加热等过程。

粒子模拟中的 PIC/MC(Particle-In-Cell/Monte Carlo)方法^[98-102],由于在计算中并不假定各粒子处于平衡态,因此能够精确地描述等离子体中的非局域和非热平衡现象。PIC/MC 方法的基本思想是引入大量的宏粒子,通过求解牛顿方程,跟踪每个宏粒子在电场作用下的运动轨迹。各粒子由于碰撞过程而引起的能量和速度的变化,则由 MC 部分来实现。当整个系统达到稳态之后,采用统计的方法,即可获得等离子体各宏观参量的分布。PIC/MC 方法虽然精确,但由于其对计算中的空间步长和时间步长有着严格的限制,并且需要对大量宏粒子的运动信息进行统计,以确保结果的准确性,因此需要庞大的计算量。即使采用并行算法,计算效率仍然较低。

为了同时满足较高的计算精度和较快的计算速度，混合模型^[103-107]作为一种新的模拟方法被广泛采用。混合模型，即把流体模型与 MC(Monte-Carlo)模型相结合，既保留了电子能量分布中的非平衡效应，同时也提升了计算效率。其中 MC 模型部分用来自洽地求解电子能量分布函数，以及与其相关的反应速率和输运系数。所得到的结果被代入流体模型部分，用于进一步计算等离子体密度与电场的时空分布。而后，电场又被反馈到 MC 模型部分，用于进一步推动粒子的运动。如此反复迭代，直至收敛。

本章基于流体力学方法，建立了二维的等离子体流体力学模型，并与麦克斯韦方程组耦合，用来描述甚高频放电中的电磁效应。其中，电子、正负离子以及中性自由基的密度由连续性方程给出。电子通量采用漂移扩散近似，离子通量则通过完整的动量平衡方程求解。由于假设离子温度与室温相等，因此模型中仅需要求解电子能量守恒方程。

2.2 等离子体流体力学模型

流体力学模型的基本思想是将等离子体看成一种流体，通过一系列的流体力学方程，来描述等离子体中的各种粒子，如电子、离子、分子、自由基和激发态粒子等的动力学行为。在模拟过程中，我们感兴趣的是等离子体的一些宏观行为，如粒子的密度、平均速度和能量密度等。这些宏观量的空间分布，可以通过求解只含有位置坐标和时间变量的宏观守恒方程，即玻尔兹曼的各阶矩方程来获得。

2.2.1 粒子数守恒方程

将玻尔兹曼方程在速度空间上积分，即可得到宏观连续性方程。电子、离子和中性粒子的连续性方程如下所示：

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{\Gamma}_e = S_e, \quad (2.1)$$

$$\frac{\partial n_{\pm}}{\partial t} + \nabla \cdot n_{\pm} \mathbf{u}_{\pm} = S_{\pm}, \quad (2.2)$$

$$\frac{\partial n_n}{\partial t} + \nabla \cdot (-D_n \nabla n_n) = S_n, \quad (2.3)$$

其中， n_e ， $n_{\pm}$ 和 n_n 分别为电子、正负离子、中性粒子的密度； $\mathbf{\Gamma}_e = n_e \mathbf{u}_e$ 为电子通量； $\mathbf{u}_{\pm}$ 为正负离子的速度； D_n 为中性粒子的扩散系数。 $S_e = \sum_a k_a n_1 n_2 - \sum_b k_b n_3 n_e$ 为电子的源项，角标 a 表示产生电子的碰撞反应，如电离反应、解吸附反应等；角标 b 表示损失电子的碰撞反应，如吸附反应、复合反应等； k_a 和 k_b 表示碰撞反应的系数， n 表示参加碰撞反

应的粒子密度。同理，正负离子的源项为 $S_{\pm} = \sum_a k_a n_1 n_2 - \sum_b k_b n_3 n_{\pm}$ ，中性粒子的源项为

$$S_n = \sum_a k_a n_1 n_2 - \sum_b k_b n_3 n_n。$$

2.2.2 动量守恒方程

将玻尔兹曼方程两端乘以 v 后，对速度积分，即可得到动量守恒方程。

对于电子来说，由于其质量很小，通常可以忽略电子速度随时间变化而直接产生的加速度项，及由于电子速度的空间位置变化而产生的惯性项。因此，电子的运动可以用漂移扩散方程来近似描述：

$$\Gamma_e = -\frac{1}{m_e \nu_{en}} \nabla(n_e k_B T_e) - \frac{en_e}{m_e \nu_{en}} \mathbf{E}, \quad (2.4)$$

其中， ν_{en} 为电子与中性粒子的弹性碰撞频率； m_e 和 T_e 分别为电子的质量和温度； k_B 为玻尔兹曼常数； e 为单位电荷； $\mathbf{E}$ 为电子所受的总的电场力。

对于正负离子的输运过程，则采用完整的动量方程来描述。

$$\frac{\partial n_{\pm} m_{\pm} \mathbf{u}_{\pm}}{\partial t} + \nabla \cdot (n_{\pm} m_{\pm} \mathbf{u}_{\pm} \mathbf{u}_{\pm}) = -\nabla p + Z_{\pm} en_{\pm} \mathbf{E} + \mathbf{M}_{\pm}, \quad (2.5)$$

其中， $m_{\pm}$ 为正负离子的质量， ∇p 为离子的压力梯度项， $Z_{\pm}$ 为正负离子所带电荷数； $\mathbf{M}_{\pm}$ 表示由于离子与中性粒子碰撞而引起的动量转移，其表达式为

$$\mathbf{M}_{\pm} = \sum_n -\frac{m_{\pm} m_n}{m_{\pm} + m_n} n_{\pm} \mathbf{u}_{\pm} \nu_{in}, \quad (2.6)$$

ν_{in} 为离子与中性粒子发生弹性碰撞的频率。

2.2.3 能量守恒方程

在玻尔兹曼方程两边同时乘以 $1/2 m v^2$ 并对速度积分，即可得到能量守恒方程。

由于离子和中性粒子的温度远小于电子温度，因此在低温等离子体的研究过程中，通常采用“冷流体”近似，即认为正负离子及中性粒子的温度与室温相同。因此在流体模型中，只需要求解电子能量守恒方程，即：

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{3}{2} n_e k_B T_e \right) = -\nabla \cdot \mathbf{q}_e - e \mathbf{E} \cdot \Gamma_e - W_e, \quad (2.7)$$

其中， $\mathbf{q}_e$ 为能流密度，其表达式为

$$\mathbf{q}_e = \frac{5}{2} k_B T_e \Gamma_e - \frac{5}{2} \frac{n_e k_B T_e}{m_e \nu_{en}} \nabla(k_B T_e). \quad (2.8)$$

在(2.7)中, W_e 表示电子由于碰撞过程而产生的能量损失项, 其表达式为

$$W_e = \sum_j \varepsilon_j k_j N n_e, \quad (2.9)$$

其中, ε_j 表示电子在碰撞反应 j 中的能量交换, k_j 表示该反应的系数。当 ε_j 为正时, 表示电子通过碰撞过程损失能量, 如电离反应、激发反应等; 当 ε_j 为负时, 表示电子通过此次碰撞过程获得能量, 如超弹性碰撞反应、退激发反应等。

2.3 全波电磁场理论

容性耦合等离子体增强化学气相沉积技术已被大规模地应用于硅薄膜的沉积工艺中。早期的沉积设备, 通常采用 13.56 MHz 的射频源驱动放电。但是由于放电频率较低, 导致入射到薄膜上的离子能量较高, 因此沉积的是非晶硅薄膜, 稳定性不好, 而且沉积速率低。众所周知, 随着放电频率的增加, 等离子体密度上升, 基片表面的鞘层变薄, 入射到基片上的离子能量下降。因此采用甚高频放电, 易于晶粒生长, 进而提升薄膜的晶化率。近年来, 甚高频放电获得人们越来越广泛的关注, 并被应用于多晶硅薄膜的沉积工艺中, 且具有稳定性好、转化效率高、沉积速率快等优点。

随着等离子体技术的发展, 大面积等离子体源被广泛地应用于太阳能薄膜沉积、等离子体平板显示器, 及有源矩阵液晶显示器的生产过程中。此外, 在超大规模集成电路制备过程中, 晶圆的尺寸也在不断增加, 其直径从 1977 年的 100 mm, 增加到 2000 年的 300 mm。目前, 下一代 450 mm 的晶圆处理工艺正在研制中。

表 2-1 真空情况下射频波的频率与波长的对应关系

Tab. 2.1 The frequency and wavelength of the RF wave in the vacuum

频率(MHz)	13.56	27.12	60	100	200
波长(m)	22.12	11.06	5.00	3.00	1.50

由于电磁波的波长与频率是成反比的, 因此随着频率的增加, 电磁波的波长显著下降。表 2-1 给出了真空情况下射频波的频率与波长的对应关系。在甚高频等离子体中, 当电磁波波长的四分之一与放电腔室的尺寸相当时, 会在反应腔室内部激发出一个沿径向传播的电磁波, 即驻波。驻波效应会显著影响等离子体密度的径向均匀性, 进而对大

面积薄膜的沉积过程和芯片的刻蚀过程产生影响。因此在研究大面积甚高频等离子体源时，电磁效应（驻波效应和趋肤效应）对等离子体的影响，成为了一个不可忽视的问题。

为了将电磁波对等离子体的影响考虑在内，本章采用完整的麦克斯韦方程组来描述等离子体中的电磁场分布。

$$\begin{aligned}\nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \\ \nabla \times \mathbf{B} &= \mu_0 \mathbf{J} + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}, \\ \nabla \cdot \mathbf{E} &= \frac{e}{\varepsilon_0} (Z_+ n_+ - Z_- n_- - n_e), \\ \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0,\end{aligned}\tag{2.10}$$

其中， $\mathbf{E}$ 和 $\mathbf{B}$ 分别表示电场和磁场； $\mathbf{J} = e(\sum Z_+ n_+ \mathbf{u}_+ - \sum Z_- n_- \mathbf{u}_- - \Gamma_e)$ 表示等离子体中的电流密度； ε_0 和 μ_0 表示真空中的介电常数和磁导率。

电场 $\mathbf{E}$ 由静电场和涡旋电场两部分组成，即 $\mathbf{E} = \mathbf{E}_s + \mathbf{E}_T$ 。通过引入静电势 ϕ 和磁矢势 $\mathbf{A}$ ，静电场可以表示为 $\mathbf{E}_s = -\nabla \phi$ ，涡旋电场可以表示为 $\mathbf{E}_T = -\partial \mathbf{A} / \partial t$ 。通过采用库伦规范 $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ ，可以得到 $\nabla \cdot \mathbf{E}_T = 0$ ，则麦克斯韦方程组可以简化为

$$\begin{aligned}\nabla^2 \phi &= -\frac{e}{\varepsilon_0} (Z_+ n_+ - Z_- n_- - n_e), \\ \nabla^2 \mathbf{E}_T - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}_T}{\partial t^2} &= \mu_0 \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \nabla \phi}{\partial t^2}.\end{aligned}\tag{2.11}$$

通过将这两个方程与上述流体力学方程组联立求解，即可自洽地得到等离子体中各种带电粒子和中性粒子的密度与通量，以及电子温度和电磁场的时空分布。

2.4 边界条件

建立完整的流体力学模型后，还需要恰当的边界条件，才能够准确完整地描述等离子体中各参量的时空演化特性。对于离子密度和离子通量，假设其在边界处连续，即导数为零，则有

$$\begin{aligned}\nabla n_{\pm} &= 0, \\ \nabla \cdot (n_{\pm} \mathbf{u}_{\pm}) &= 0.\end{aligned}\tag{2.12}$$

同理，假设中性粒子密度在垂直于边界的方向上连续，即

$$\nabla n_n = 0.\tag{2.13}$$

由于本文模拟的腔室结构具有轴对称性，因此在对称轴处，垂直方向的速度分量为零，即对称轴处的电子通量和能流密度的径向分量为零，

$$\begin{aligned}\Gamma_{er}|_{axis} &= 0, \\ q_{er}|_{axis} &= 0.\end{aligned}\quad (2.14)$$

在腔室上下极板及侧壁处，认为运动到器壁上的电子通量与理想气体相等，即 $\Gamma_{er,z} = n_e u_{e,th} / 4$ ，其中 $u_{e,th} = \sqrt{8k_B T_e / \pi m_e}$ 为电子运动的热速度。考虑到电子在器壁上的反射和二次电子发射过程，电子通量的边界条件为

$$\Gamma_{er,z} = \pm \frac{n_e u_{e,th}}{4} (1 - \Theta) - \gamma (n_{\pm} u_{\pm}), \quad (2.15)$$

其中， $\Theta = 0.25$ 为电子反射系数， γ 为二次电子发射系数； $\pm$ 符号的选取与坐标轴方向有关，若电子沿坐标轴方向运动，则为正号，反之为负号。

在器壁处，可以忽略热传导项，因此电子能流密度的边界条件为

$$q_{er,z} = \frac{5}{2} k_B T_e \Gamma_{er,z}. \quad (2.16)$$

对于电势 ϕ ，若极板连接射频源，则有

$$\phi = V_{rf} \sin(2\pi ft), \quad (2.17)$$

其中 V_{rf} 为射频源的电压幅值， f 为射频源的频率。对于接地电极和侧壁，则有

$$\phi = 0. \quad (2.18)$$

此外，模型中假设器壁材料为理想导体，则涡旋电场的边界条件为

$$\begin{aligned}\frac{\partial E_{Tz}}{\partial z} &= 0, \\ \frac{\partial(rE_{Tr})}{\partial r} &= 0.\end{aligned}\quad (2.19)$$

2.5 数值方法

对等离子体放电过程中的物理现象进行理论模拟，是一项非常具有挑战性的工作。它涉及了多时间尺度，如原子之间的碰撞过程发生在 10^{-12} s 内，而等离子体输运过程的时间尺度为 10^{-3} s。此外，此类问题中还包含了刚性很强的电子能量方程，以及复杂的电磁场分布、化学反应等。因此，采用一个稳定高效的算法对流体力学模型进行自洽地数值求解是非常重要的。

本章中介绍的流体力学模型，是由一系列高度非线性化的偏微分方程组成的。因此需要在空间和时间上对偏微分方程组进行离散，进而得到相应物理量的时空分布。

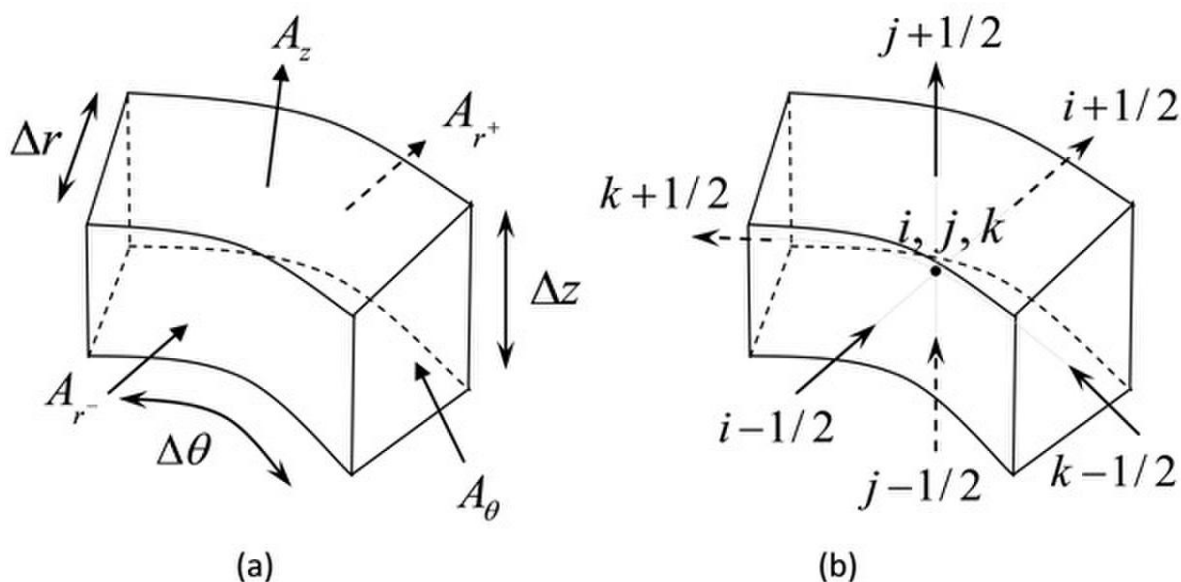


图 2.1 有限体积元胞和交错网格划分示意图^[97]

Fig. 2.1 The limit volume cell and staggered grid scheme^[97]

在空间上的离散，主要分为有限差分法，有限体积法和有限元法。有限差分法是计算机数值模拟中最早采用的方法，其基本思想是将计算区域划分为差分网格，用有限个网格节点代替连续的求解域，将偏微分方程组中的导数项用网格节点值的差商代替，从而建立相应的代数方程组。有限元法是基于变分原理和加权余量法的一种差分方法，其基本思想是将求解区域划分为有限个互不重叠且相互连接的单元，在每个单元内，选择一些合适的节点做为求解函数的插值点，将偏微分方程组中的变量写成网格节点值与插值函数的线性组合。

本文主要采用的差分方法是有限体积法，又称控制体积法。其基本思想是将求解区域划分为一系列不重复的区域，使得每个网格点周围有一个控制体积，然后将每个待求解的微分方程对其积分，从而得到一组离散方程。柱坐标系中采用的有限体积元胞及交错网格的划分如图 2.1 所示^[97]。其中 A_r 、 A_z 和 A_θ 分别为有限体积元胞在 r 、 z 和 θ 方向的面积元； Δr 、 Δz 和 $\Delta \theta$ 则为三个方向上的空间步长。在离散过程中，通常采用交替网格，即将标量，如 n_e 和 T_e 等，置于整格点处；而对于矢量，如 Γ_e 和 q_e 等，则置于半格点处。

对麦克斯韦方程组进行空间离散时,采用的是 Yee 元胞。Yee 元胞是由 Yee 于 1966 年首次提出的^[108],其主要思想为电场分量和磁场分量在空间上交替排布。如图 2.2 所示,每一个电场分量周围有四个磁场分量环绕;同样的,每一个磁场分量周围有四个电场分量环绕。这种电磁场分量的空间取样方式不仅符合法拉第感应定律和安培环路定律的自然结构,而且电磁场各分量的空间相对位置能够恰当的描述电磁场的传播特性,并适合对麦克斯韦方程进行差分计算,^[109]。

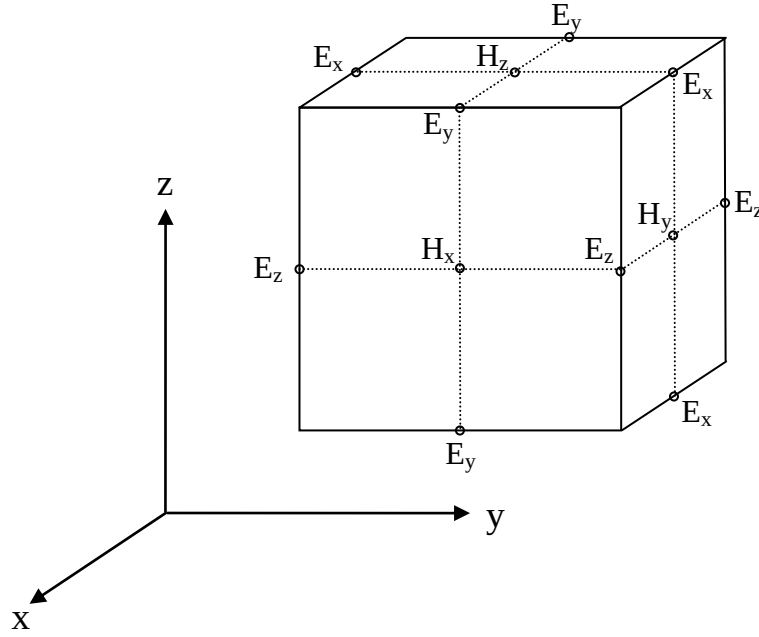


图 2.2 Yee 元胞及相应的场分量^[108]

Fig. 2.2 The Yee cell with labeled field components^[108]

对于时间项的离散,大体可分为显格式、隐格式和半隐格式等。对于刚性很弱的方程,通常采用显格式求解,即所求的 $n+1$ 时刻的物理量完全由 n 时刻的结果决定。虽然采用显格式求解偏微分方程非常简单,但为了满足其收敛性,时间步长的选取通常要受到 Courant 条件的限制,因此时间步长小,计算效率低。而对于一些刚性较强的偏微分方程,通常采用隐式差分格式。由于在求解过程中,包含了 $n+1$ 时刻的两个或两个以上的未知量,因此需要联立求解一系列方程组,才能够得到最终结果。相对于显格式,隐式差分格式更稳定,且对时间步长的限制更为宽松。

在本文所建立的二维流体力学模型中,采用二阶中心 Crank-Nicolson 格式对电子连续性方程和能量方程进行离散。对于电子动量守恒方程,则采用迎风格式(Upwinded

Flux)。超松弛迭代法(Successive Over Relaxation)，是在高斯法的基础上，为了提高收敛速度，采用加权平均而得到的一种算法，在本章中用于求解泊松方程。对于涡旋电场方程，则采用交替方向隐格式(Alternating Direction Implicit Method)进行求解^[110]。

对于离子方程，采用通量输运修正法(Flux Correct Transport)进行求解^[111]。通量输运修正法是一种高阶、单调、守恒的算法，可以稳定高效地求解非线性方程，如离子连续性方程和离子动量方程等。由于在等离子体中，离子密度和速度不应该出现负值。因此在计算过程中，引入了一定的数值扩散，即粘性项来确保其非负性。然而非负性和算法的精确性是相互克制的，因此还需要引入反扩散项来消除粘性，以提升计算精度。同时，需要对边界处的反扩散流进行修正，以避免引入新的极值，确保其单调性。

2.6 本章小结

本章详细介绍了用于描述等离子体输运过程的流体力学模型，以及用于描述电磁场瞬时行为的全波电磁理论。其中，电子、正负离子和中性粒子的密度由连续性方程来描述，电子通量采用漂移扩散格式，离子通量则通过求解完整的动量平衡方程来获得。模型中假设离子的温度与室温相等，因此仅需要求解电子能量守恒方程。为了将电磁效应考虑在内，模型中还包含了完整的麦克斯韦方程组，用来描述电磁场的时空分布。此外，本章还列举了模型中所用到的边界条件，以及在模拟过程中所使用到的数值方法。

3 甚高频 Ar 等离子体放电中的电磁效应

3.1 引言

在甚高频放电中，电磁波的波长随着放电频率的增加而减小。当波长与放电腔室的尺寸相当时，会在腔室内部激发出一个沿径向传播的电磁波，即驻波。此时，电磁效应（驻波效应和趋肤效应）会对等离子体的特性产生显著影响，进而影响等离子体刻蚀和沉积过程。因此，只有进一步了解电磁效应背后的机理，才能进一步优化等离子体工艺过程。

本章应用上一章建立的流体力学模型，并耦合麦克斯韦方程组，对甚高频 Ar 等离子体中的电磁效应进行了自洽的模拟研究。其中，电子密度、电子温度，以及离子和中性粒子的密度等，由连续性方程、动量方程和电子能量方程给出。等离子体中由于电荷分离而引起的静电场，通过求解泊松方程获得。而电磁波对等离子体的影响，即电磁效应，则通过麦克斯韦方程组来描述。在本章中，通过改变放电频率、射频源电压和放电气压，重点比较了在不同的放电条件下，静电模型（只包括静电场）与电磁模型（包括静电场和涡旋电磁场）之间的差异，说明了电磁效应对等离子体的重要影响。

在化学反应部分，仅考虑了 Ar 原子的电离反应。计算所采用的腔室结构如图 3.1 所示，反应腔室为柱对称结构，半径为 20 cm，下极板半径为 15 cm，上下极板间距为 3 cm。下极板接射频源，上极板和侧壁接地。此外，设定离子和中性粒子的温度与室温相等，即 300 K。

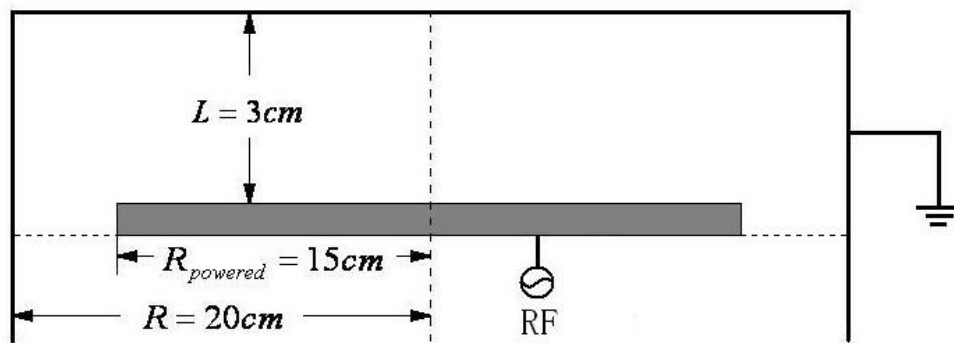


图 3.1 腔室结构示意图

Fig. 3.1 Schematic picture of the reactor configuration

3.2 频率效应

本节首先比较了在不同的放电频率下，通过静电模型（仅通过求解泊松方程，得到由于电荷分离而产生的静电场）和电磁模型（通过求解完整的麦克斯韦方程组，得到反应腔室内部的电磁场分布）计算得到的放电中心处($z = L/2$)等离子体密度的径向分布。选取放电气压为 100 mTorr，射频电压幅值为 30 V。当放电频率为 13.56 MHz 时，通过静电模型和电磁模型得到的等离子体密度具有相似的分布，如图 3.2(a)所示。说明当射频源频率较低时，电磁效应是可以忽略的。此外，由于静电边缘效应，径向边缘处的等离子体密度略高于放电中心处。随着放电频率的增加，由两种模型得到的密度分布之间的差异逐渐变得明显。当频率为 60 MHz 时，如图 3.2(c)所示，通过电磁模型得到的等离子体密度是静电模型的两倍。此外，随着频率增加，边缘效应减弱，驻波效应变得显著，因此等离子体密度在放电中心处出现一个平缓的最大值。当放电频率为 100 MHz 时，如图 3.2(d)，两种模型之间的差异更加明显。说明在甚高频放电中，电磁效应对等离子体的影响是不容忽视的。

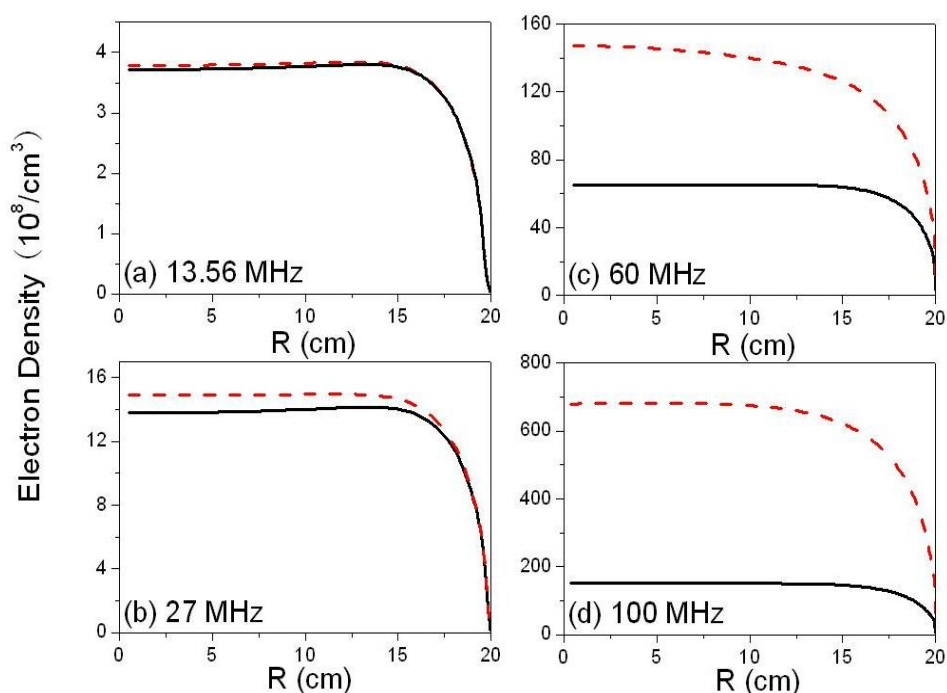


图 3.2 不同频率下，通过静电模型（实线）和电磁模型（虚线）得到的放电中心处 ($z = L/2$) 电子密度的径向分布

Fig. 3.2 Comparison between the radial distributions of electron density along the reactor centerline ($z = L/2$) in the electrostatic model (solid line) and the electromagnetic model (dashed line) at different frequencies

为了进一步说明等离子体密度的分布, 图 3.3 给出了不同放电频率下, 通过电磁模型计算得到的电离率的二维空间分布。当频率为 13.56 MHz 时, 电磁模型得到的电离率分布与静电模型 (文中并未显示) 相似, 即电离率的最大值出现在径向边缘附近。由于静电模型中只考虑了静电边缘效应, 因此不同频率下, 通过静电模型得到的电离率分布均类似于图 3.3(a)。然而在电磁模型中, 随着频率增加, 边缘效应减弱, 驻波效应增强。当放电频率为 60 MHz 时, 电离率的最大值出现在放电中心处, 由此也解释了图 3.2(c) 中的等离子体密度分布。当频率增加为 100 MHz 时, 由于等离子体密度较高, 此时趋肤效应起主导作用, 因此电离率的最大值又转移到径向边缘处。

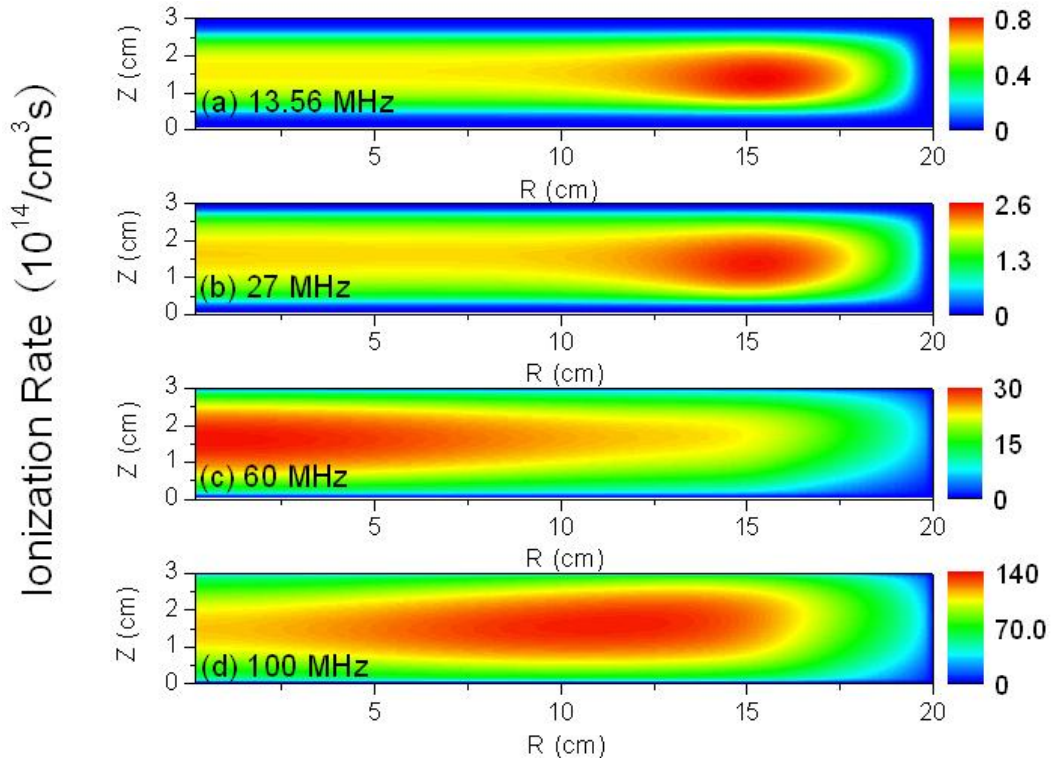


图 3.3 不同频率下, 电磁模型得到的电离率的空间分布

Fig. 3.3 Distributions of ionization rate in the electromagnetic model at different frequencies

为了进一步观察电磁效应对等离子体的影响, 图 3.4(a)给出了电极表面($z=L$)归一化的轴向电场分布。随着频率的增加, 鞘层变薄, 轴向电场增强, 且径向均匀性变差。这是由于在高频 (60 MHz 和 100 MHz) 放电中, 电磁波的波长减小, 波节出现在径向边缘处, 因此此处的电场减弱^[43]。通过不同频率下, 涡旋电场在轴向沉积的总功率

($P_{Tz} = \int_0^L E_{Tz} \Gamma_{ez} dz$), 也可以说明高频放电中, 电磁效应对等离子体的显著影响, 如图 3.4(b) 所示。当频率较低时, 电磁波的波长远大于腔室半径, 因此由电磁场引起的能量沉积可以忽略。随着频率增加, 电磁波波长减小, 能量能够更有效地传入等离子体中, 因此能量沉积的峰值出现在放电中心处, 这也间接解释了图 3.3(c) 中的电离率分布。图 3.4(c) 和 3.4(d) 显示了随着频率增加, 放电中心处($z = L/2$) 的径向电场以及由径向涡旋电场引起的功率沉积($P_{Tr} = \int_0^L E_{Tr} \Gamma_{er} dz$) 均有所增加。此外, 100 MHz 时的径向功率沉积远高于 60 MHz。说明当放电频率为 100 MHz 时, 趋肤效应对等离子体的影响更为显著, 这也间接解释了图 3.3(d) 中电离率的最大值向径向边缘处移动的现象。

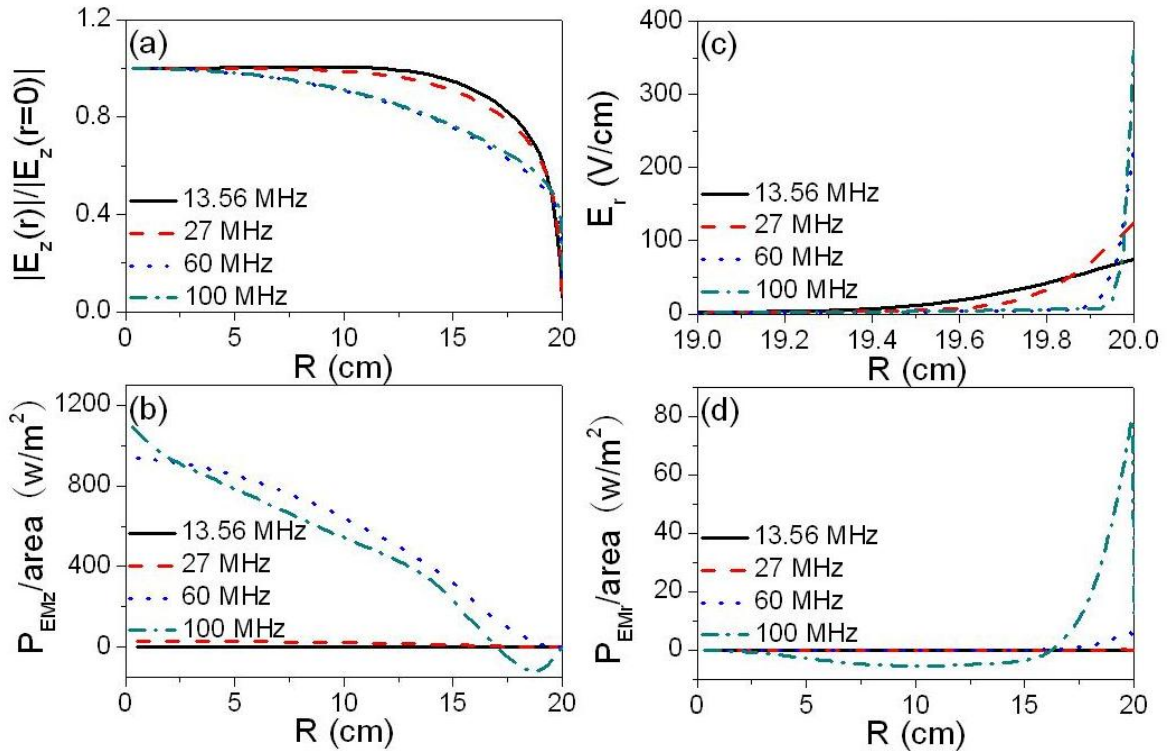


图 3.4 电磁模型中, 不同频率下 (a) 电极表面归一化轴向电场, (b) 轴向涡旋电场引起的功率沉积, (c) 放电中心处径向电场, (d) 径向涡旋电场引起的功率沉积的径向分布

Fig. 3.4 The radial distributions of (a) the normalized axial electric field along $z = L$, (b) the power deposition from the axial vortex electric field, (c) the radial electric field along the reactor centerline ($z = L/2$), (d) the power deposition from the radial vortex electric field in the electromagnetic model at different frequencies

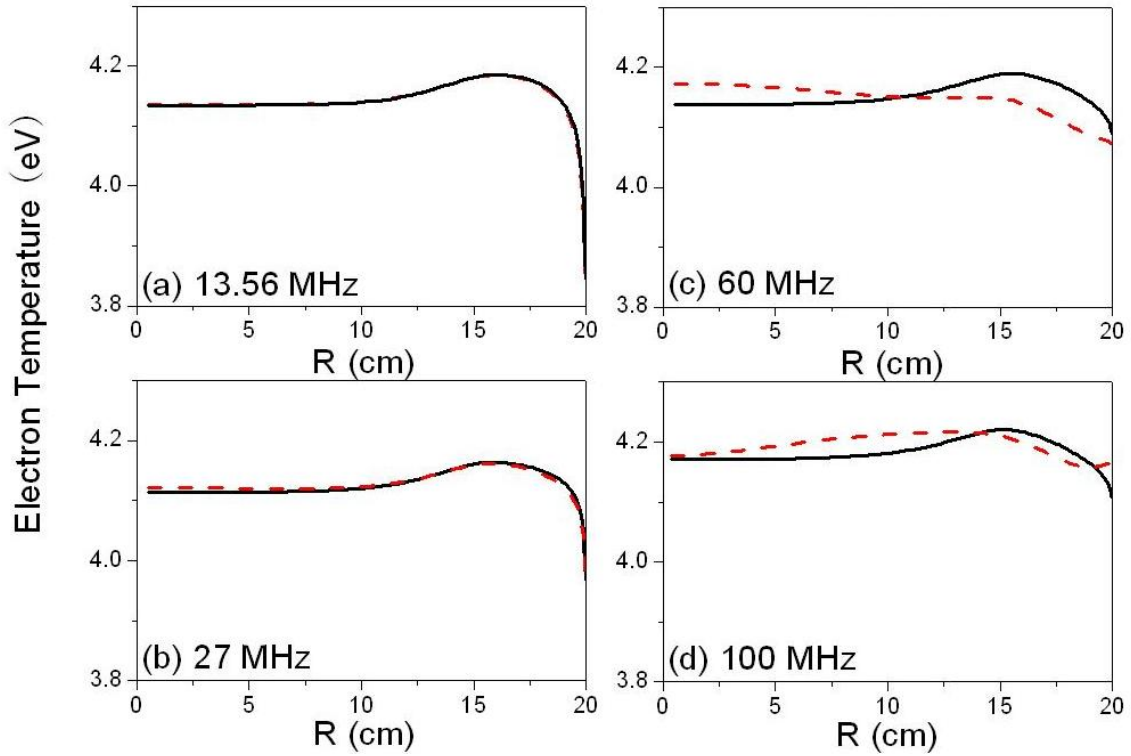


图 3.5 不同频率下，通过静电模型（实线）和电磁模型（虚线）得到的放电中心处 ($z = L/2$) 电子温度的径向分布

Fig. 3.5 Comparison between the radial distributions of electron temperature along the reactor centerline in the electrostatic model (solid line) and the electromagnetic model (dashed line) at different frequencies

图 3.5 给出了不同频率下，通过静电模型和电磁模型得到的放电中心处 ($z = L/2$) 电子温度的径向分布。当频率较低时，由于电磁效应很弱，因此通过两种模型计算得到的电子温度分布相似。当放电频率为 60 MHz 时，如图 3.5(c)，通过电磁模型得到的电子温度在放电中心处略高于静电模型，而在径向鞘层区域则略低。这是由于在电磁模型中，放电中心处的电子不仅受到静电场的作用，同时还被电磁场加速，因而获得了更多的能量，电子温度也高于静电模型。另一方面，由于电磁模型中鞘层较薄，电子在径向鞘层中被加速的距离较短，获得的能量较低，因此鞘层处的电子温度略低于静电模型。此外，放电频率为 13.56 MHz 和 27 MHz 时，通过电磁模型得到的电子温度略低于 60 MHz 和 100 MHz。这可能是由于当频率较低时，由电磁场引起的功率沉积较弱，电子主要通过静电场获得能量。而随着放电频率的增加，电子可以同时从静电场和电磁场中获得能量，因而电子温度略有上升。

3.3 电压效应

在本节中，固定放电频率为 100 MHz，放电气压为 100 mTorr，重点考察了在不同的射频电压下，电磁效应对等离子体的影响。

图 3.6 给出了不同的射频电压下，通过静电模型和电磁模型计算得到的放电中心处 ($z = L/2$) 电子密度的径向分布。由于放电频率为 100 MHz，电磁效应对等离子体的影响较为显著，因此在所考察的电压范围内，静电模型得到的电子密度分布与电磁模型有很大差异。当电压较低时，如 15 V，这种差异比高电压情况下更为明显。这是因为当射频电压较低时，静电场较弱，电磁效应对等离子体的影响相对更为突出。此外在电磁模型中，当电压为 15 V 时，由于驻波效应显著，电子密度的最大值出现在放电中心处，如图 3.6(a)所示。随着电压升高，等离子体密度增加，趋肤效应变得显著。此时，等离子体密度的最大值偏离轴线处，如图 3.6(c)和 3.6(d)所示，这也与实验中观察到的现象一致^[24]。

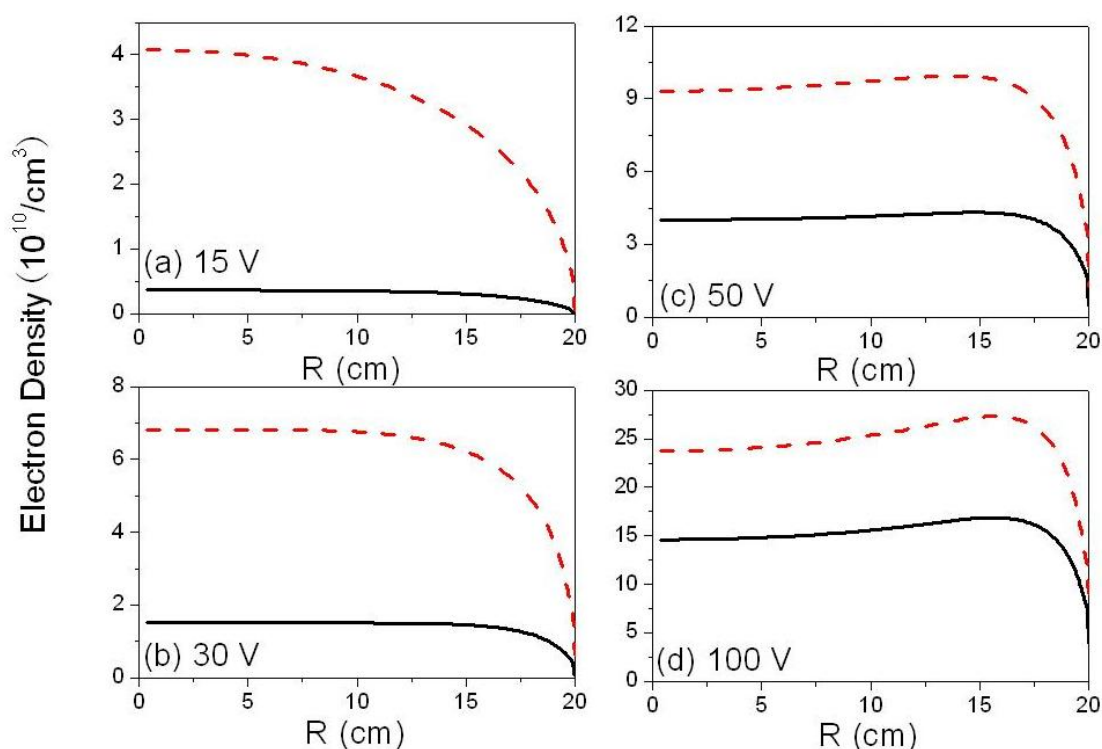


图 3.6 不同电压下，通过静电模型（实线）和电磁模型（虚线）得到的放电中心处 ($z = L/2$) 电子密度的径向分布

Fig. 3.6 Comparison between the radial distributions of electron density along the reactor centerline in the electrostatic model (solid line) and the electromagnetic model (dashed line) at different voltages

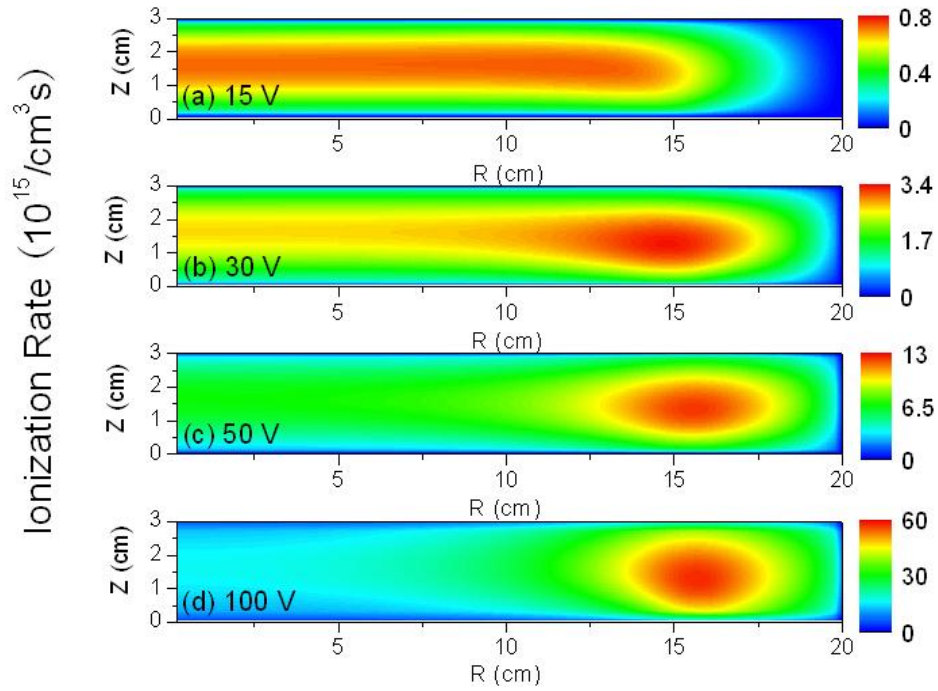


图 3.7 不同电压下，静电模型得到的电离率的空间分布

Fig. 3.7 Distributions of ionization rate in the electrostatic model at different voltages

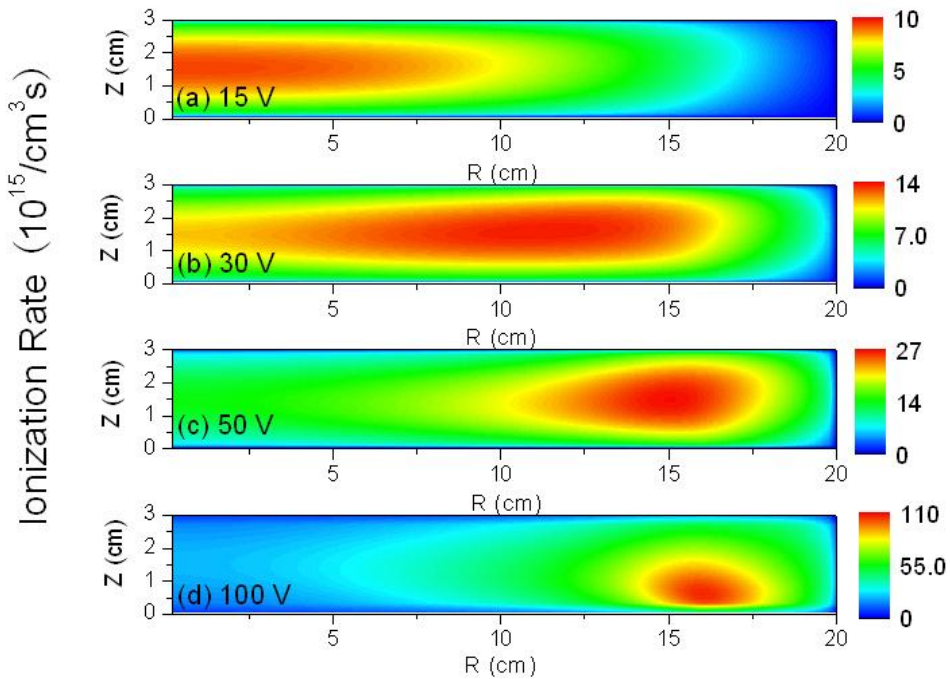


图 3.8 不同电压下，电磁模型得到的电离率的空间分布

Fig. 3.8 Distributions of ionization rate in the electromagnetic model at different voltages

为了进一步解释电子密度的空间分布，图 3.7 和 3.8 分别给出了通过静电模型和电磁模型计算得到的电离率分布。通过静电模型得到的电离率无论是空间分布还是数值，均与电磁模型得到的结果有很大差异。在静电模型中，静电边缘效应对等离子体影响最为显著，因此电离过程主要发生在径向边缘处。而且随着电压上升，边缘效应增强。而在电磁模型中，当电压较低时，电离过程主要发生在放电中心处，如图 3.8(a)所示。这样的电离率分布，可以通过径向电场引起的功率沉积密度 P_r 与轴向电场引起的功率沉积密度 P_z 之间的相对关系来解释。

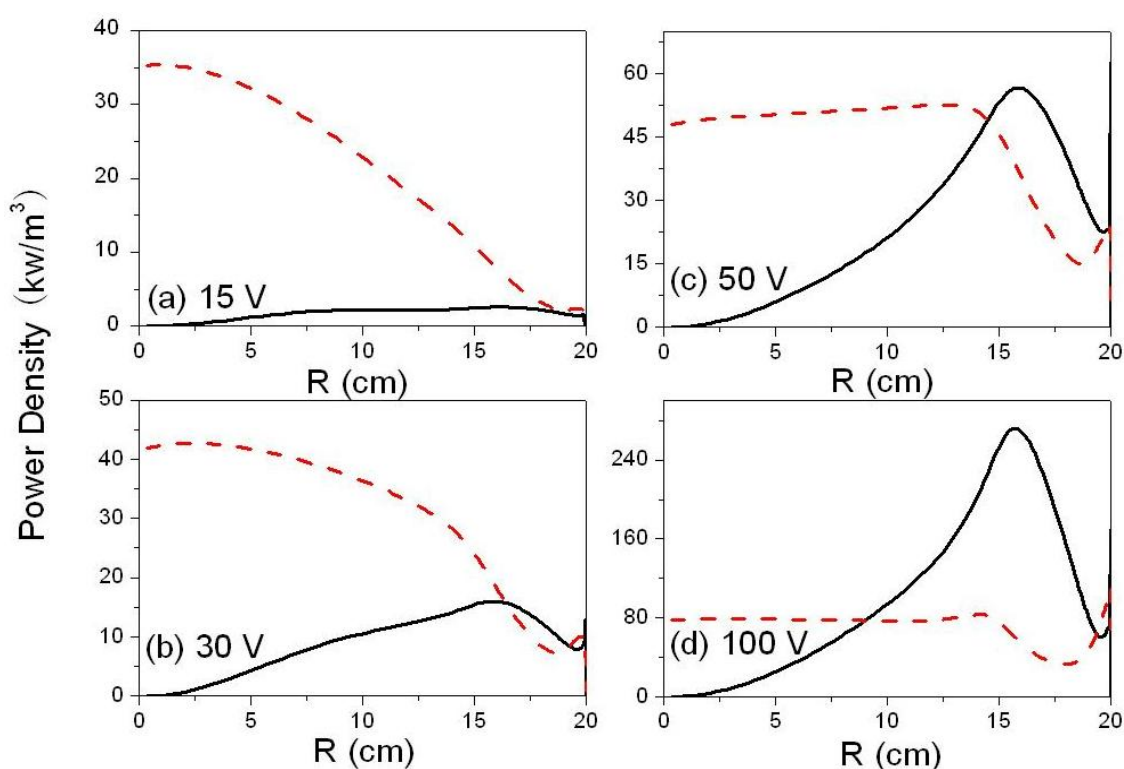


图 3.9 不同电压下，电磁模型得到的放电中心处($z = L/2$)径向功率沉积密度（实线）和轴向功率沉积密度（虚线）

Fig. 3.9 Comparison between the radial distributions of power density from the radial electric field (solid line) and the axial electric field (dashed line) along the reactor centerline ($z = L/2$) in the electromagnetic model at different voltages

如图 3.9(a)所示，当放电电压较低时，由径向电场引起的功率沉积密度 P_r 与轴向电场引起的功率沉积密度 P_z 相比，基本可以忽略。说明在这样的放电条件下，驻波效应（而非边缘效应或趋肤效应）对等离子体的影响更为显著。此外，这也解释了电压为 15 V

时,通过电磁模型计算得到的电离率的最大值出现在放电中心处。随着电压增加,由于等离子体密度上升,等离子体趋肤深度减小。相应的,径向功率沉积密度 P_r 在径向边缘处变得非常显著,如图 3.9(d)所示。说明当电压较高时,趋肤效应对等离子体的影响占主导地位。因此在图 3.8 中,随着电压上升,电离率的最大值从放电中心处向径向边缘处移动,这也解释了图 3.6 中电子密度随电压的演化趋势。

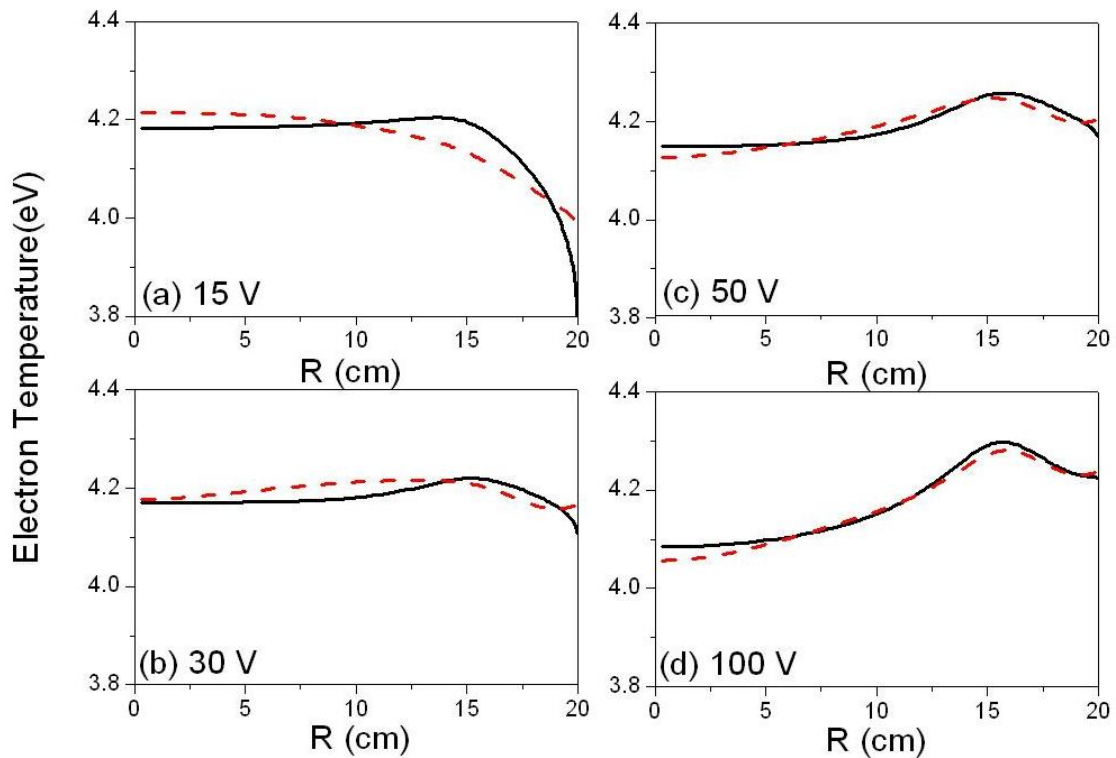


图 3.10 不同电压下,通过静电模型(实线)和电磁模型(虚线)得到的放电中心处($z = L/2$)电子温度的径向分布

Fig. 3.10 Comparison between the radial distributions of electron temperature along the reactor centerline ($z = L/2$) in the electrostatic model (solid line) and the electromagnetic model (dashed line) at different voltages

图 3.10 中比较了通过静电模型和电磁模型计算得到的放电中心处($z = L/2$)电子温度的径向分布。当电压较低时,放电中心处由电磁模型得到的电子温度比静电模型略高,在径向边缘处却略低,然而在靠近侧壁处,电磁模型得到的电子温度又略高于静电模型。随着电压的增加,两种模型得到的电子温度之间的差异变小。此外,电磁模型得到的放电中心处的电子温度,随着电压的增加而减小,而边缘处的电子温度却随着电压的增加

而增加，因此电子温度的最大值从中心处转移到径向边缘处。这是因为随着电压增加，体等离子体区的电子由于频繁的碰撞，损失了一定的能量，因此电子温度略有下降。另一方面，径向功率沉积密度 P_r 随着电压的上升显著增加，因此电子可以从中获得更多的能量，边缘处的电子温度略有上升。

3.4 气压效应

本节中固定放电频率为 100 MHz，放电电压为 30 V，重点考察了不同的气压下，电磁效应对等离子体的影响。

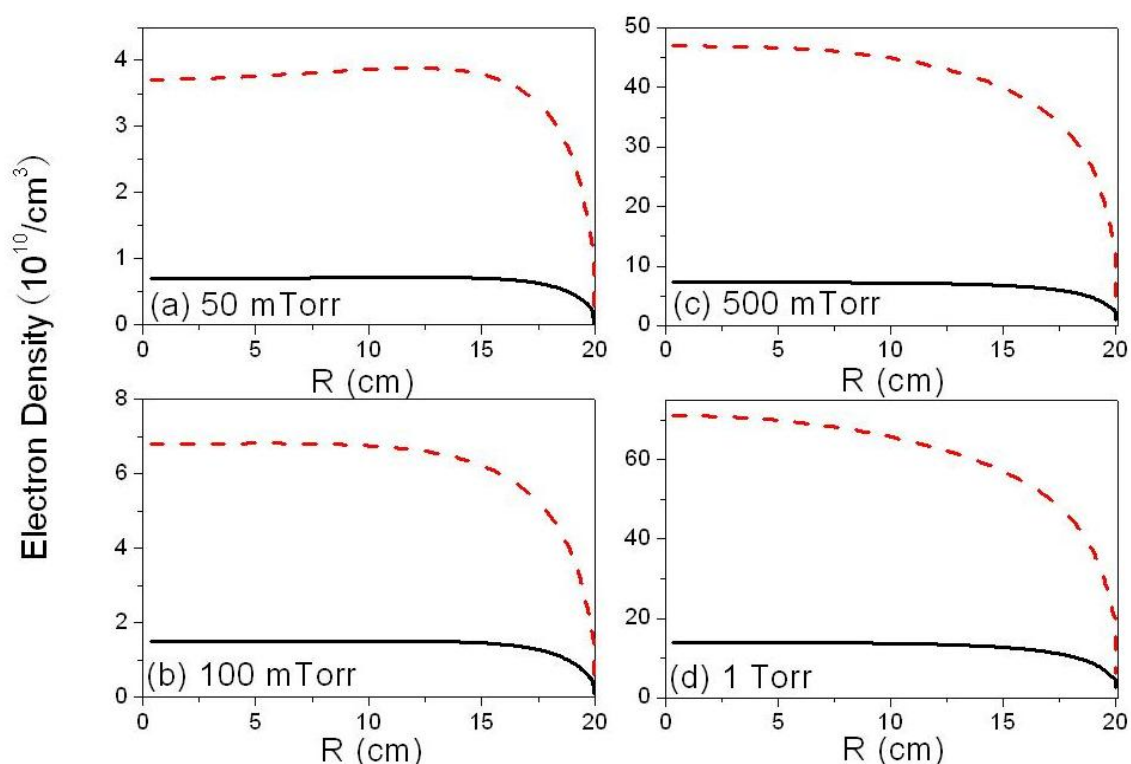


图 3.11 不同气压下，通过静电模型（实线）和电磁模型（虚线）得到的放电中心处 ($z = L/2$) 电子密度的径向分布

Fig. 3.11 Comparison between the radial distributions of electron temperature along the reactor centerline ($z = L/2$) in the electrostatic model (solid line) and the electromagnetic model (dashed line) at different pressures

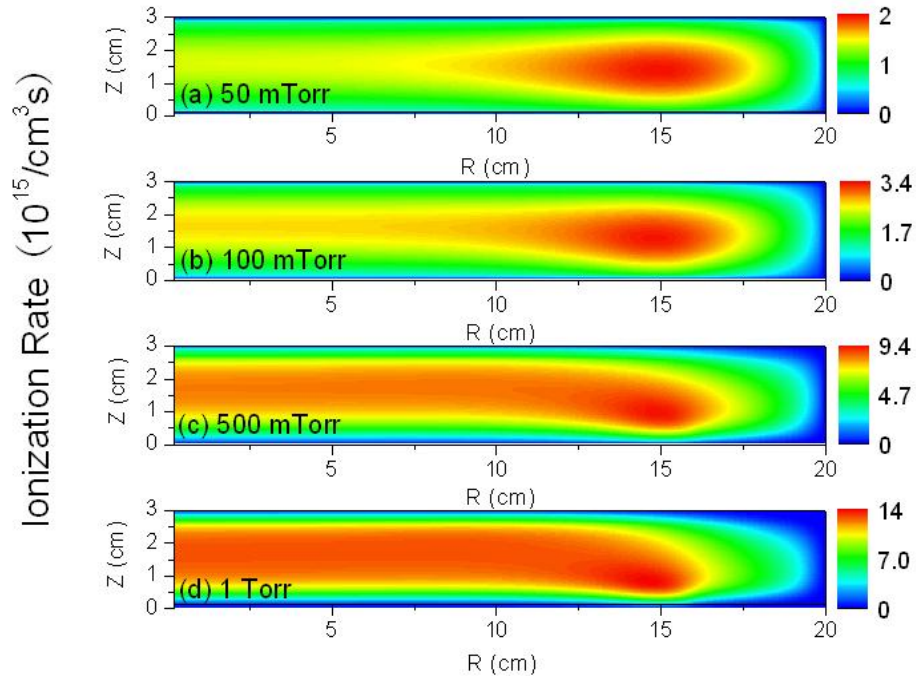


图 3.12 不同气压下，静电模型得到的电离率的空间分布

Fig. 3.12 Distributions of ionization rate in the electrostatic model at different pressures

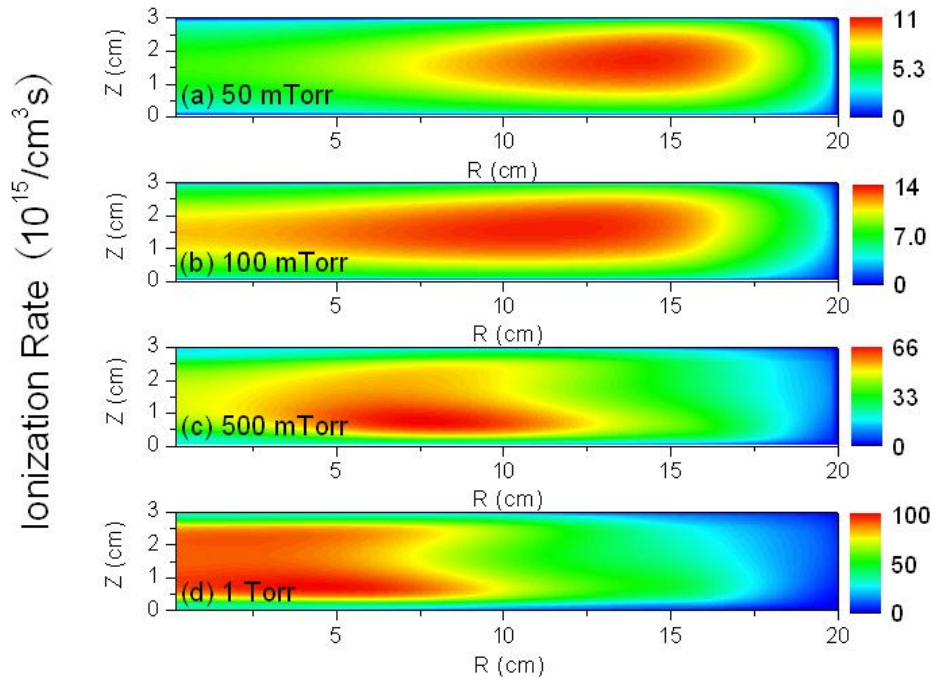


图 3.13 不同气压下，电磁模型得到的电离率的空间分布

Fig. 3.13 Distributions of ionization rate in the electromagnetic model at different pressures

图 3.11 显示了在不同的气压下, 通过静电模型和电磁模型计算得到的放电中心处 ($z = L/2$) 电子密度的径向分布。由于放电频率为 100 MHz, 电磁效应对等离子体的影响十分显著, 因此通过两种模型得到的电子密度分布差异较大。当气压较低时, 如 50 mTorr, 电磁模型得到的电子密度在径向边缘处略高, 如图 3.11(a)所示。这是因为电子密度的分布受到电磁效应和边缘效应的共同影响。尽管驻波效应的存在使得电离过程主要发生在放电中心处, 但在此时的放电条件下, 静电功率沉积对等离子体的影响更为显著, 因此径向边缘处的电子密度略高。然而, 当气压增加到 1 Torr 时, 电子密度在放电中心处出现一个平缓的最大值, 如图 3.11(d)所示。这是因为边缘效应随着气压的升高而逐渐减弱, 电磁效应对等离子体的分布起主导作用。

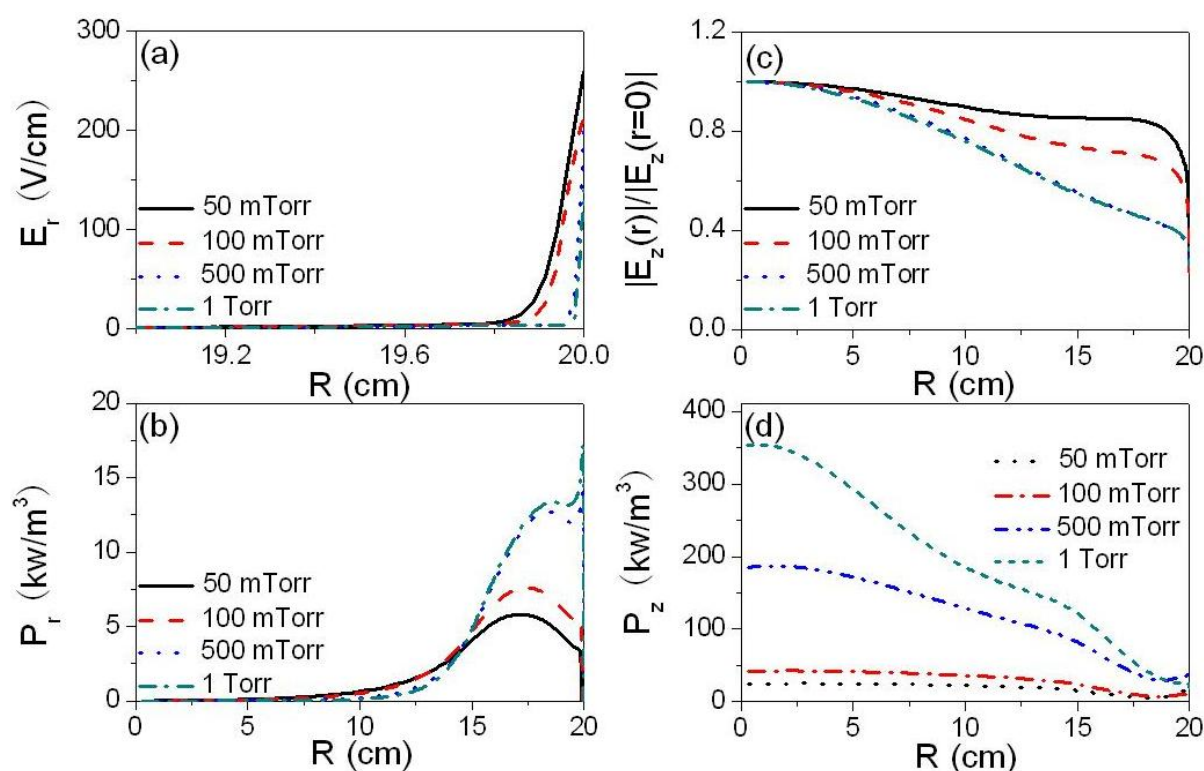


图 3.14 不同气压下, (a) 放电中心处 ($z = L/2$) 径向静电场, (b) 放电中心处 ($z = L/2$) 径向静电场引起的功率沉积, (c) 电极表面归一化轴向电场, (d) 放电中心处 ($z = L/2$) 轴向电场引起的功率沉积的径向分布

Fig. 3.14 The radial distributions of (a) the radial static electric field along $z = L/2$, (b) the power deposition from the radial static electric field along $z = L/2$, (c) the normalized axial electric field along $z = L$, (d) the power deposition from the axial electric field along $z = L/2$ at different frequencies

不同气压下, 静电模型和电磁模型计算得到的等离子体密度的不同分布可以通过电离率来解释。在静电模型中, 当气压较低时, 电离过程主要发生在径向边缘处。随着气压升高, 电离率的径向分布变得均匀, 这也说明边缘效应在高压下受到抑制, 如图 3.12 所示。从图 3.14(a)中, 可以观察到, 静电模型中的径向电场随着气压的升高而减小, 这也进一步证实了静电边缘效应随着气压升高而减弱。在电磁模型中, 当气压较低时, 电离主要发生在径向边缘处, 这也解释了图 3.11(a)中的密度分布。随着气压升高, 极板表面($z=L$)的轴向电场变得不均匀, 即径向边缘处的电场显著减弱, 如图 3.14(c)所示。同时, 从图 3.14(d)中可以观察到, 轴向电场引起的功率沉积密度的最大值也出现在放电中心处。说明在此时的放电条件下, 边缘效应被抑制, 而驻波效应起主导作用。因此, 随着气压升高, 电磁模型中得到的电离率的最大值从径向边缘处向放电中心移动, 如图 3.13 所示。

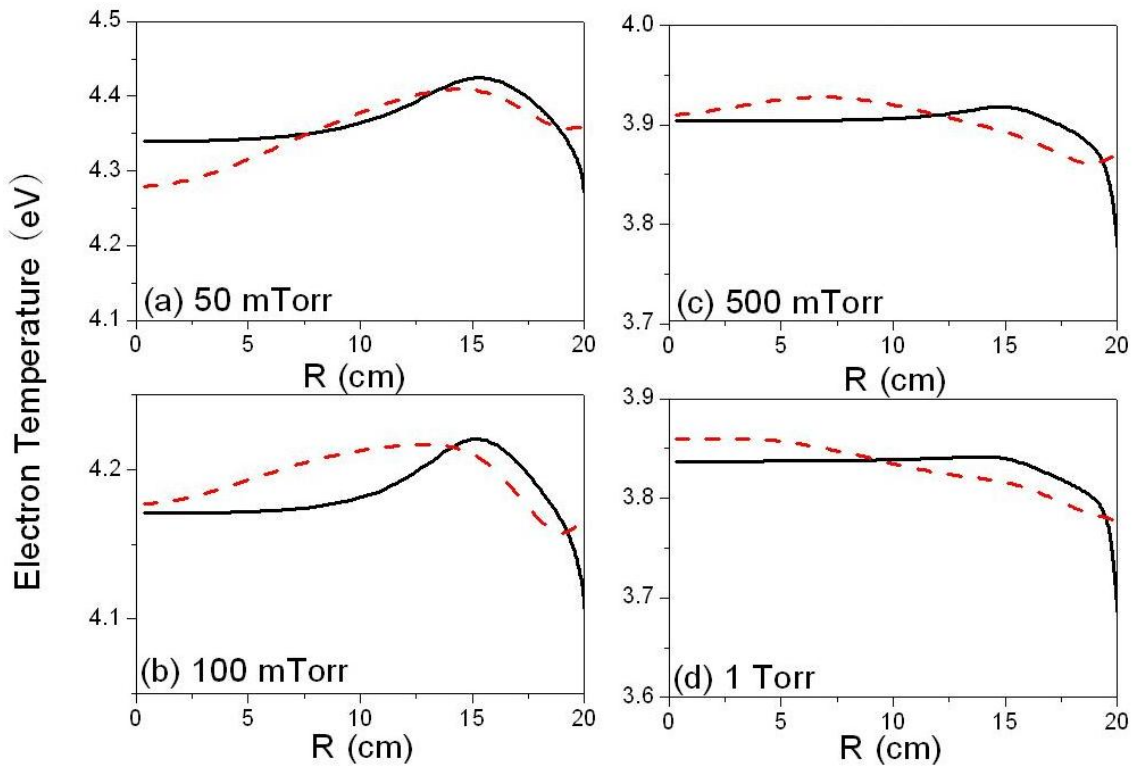


图 3.15 不同气压下, 通过静电模型(实线)和电磁模型(虚线)得到的放电中心处($z=L/2$)电子温度的径向分布

Fig. 3.15 Comparison between the radial distributions of electron temperature along the reactor centerline ($z=L/2$) in the electrostatic model (solid line) and the electromagnetic model (dashed line) at different pressures

图 3.15 显示了不同气压下, 通过两种模型计算得到的放电中心处($z = L/2$)电子温度的径向分布。当气压较低时, 如 50 mTorr, 除了距离轴心 10 cm 的位置附近及侧壁表面之外, 通过电磁模型计算得到的电子温度比静电模型略低, 如图 3.15(a)所示。随着气压升高, 在放电中心区域, 电磁模型中的电子温度略高, 而在径向边缘附近, 静电模型中的电子温度略高。具体原因, 与对图 3.5(c)的分析一致。此外, 由于随着气压的升高, 驻波效应逐步替代边缘效应, 成为影响等离子体分布的最重要因素。因此电磁模型中得到的电子温度的最大值, 从径向边缘处移动到了放电中心处。

3.5 本章小结

本章采用了二维流体力学模型, 并与麦克斯韦方程组耦合, 自洽地模拟了电磁效应对氩容性耦合等离子体特性的影响。通过观察不同的放电频率、射频源电压和气压下, 电子密度、电离率以及电子温度的空间分布, 说明了静电模型与电磁模型之间的差异。

通过对不同的放电频率下, 静电模型和电磁模型得到的结果进行比较, 发现在甚高频放电中, 两个模型得到的等离子体密度分布明显不同, 这说明电磁效应对等离子体的确有着显著的影响。当频率较低时, 如 13.56 MHz, 两种模型得到的电子密度分布相似。但是随着频率的增加, 二者之间的差异变得明显。当频率为 100 MHz 时, 电磁模型得到的电子密度是静电模型的四倍。此外, 由于在高频放电中, 电磁效应而非边缘效应起主导作用, 因此电子密度在放电中心处出现一个平缓的最大值。

针对放电频率为 100 MHz, 本章还研究了不同的射频源电压和放电气压下, 电磁效应对等离子体的影响。当射频源电压较高时, 通过静电模型和电磁模型得到的结果差异较小。随着电压降低, 差异变得明显。这是由于当电压较低时, 静电场较弱, 因此电磁效应对等离子体的影响相对较为显著。随着电压的升高, 通过电磁模型计算得到的电子密度的最大值从放电中心处向边缘处移动。这是由于随着电压增加, 等离子体密度升高, 因此趋肤效应而非驻波效应起主导作用。此外, 当气压较低时, 两种模型得到的电子密度虽然在数值上有较大差异, 但电子密度的最大值均出现在径向边缘处。随着气压升高, 由于边缘效应受到抑制, 因此静电模型得到的电子密度的径向分布变得均匀, 而电磁模型得到的电子密度的最大值出现在放电中心处。

通过以上比较, 得出结论: 在甚高频放电中, 电磁效应的确会对等离子体产生显著影响。因此在模拟过程中, 需要将电磁效应考虑在内, 才能得到更为准确合理的结果。

4 两个同频率电源的相位差对 H_2 等离子体特性的调制

4.1 引言

H_2 容性耦合等离子体, 被广泛地应用于等离子体增强化学气相沉积工艺。沉积的氢化硅薄膜, 是一种非常重要的材料, 常被应用于微电子器件、平板显示器及太阳能电池的制备工艺中。当射频源的频率为 13.56 MHz 时, 由于离子轰击能量较高, 沉积的多为非晶硅薄膜^[26,27]。近年来, 为了进一步提高沉积速率, 优化薄膜质量^[28-30], 甚高频等离子体源受到了人们越来越广泛的关注, 并被应用于多晶硅薄膜的沉积工艺中。然而正如绪论中提到的, 当射频源的频率在甚高频的范围内, 尤其是当腔室尺寸较大时, 电磁效应会显著影响等离子体的特性, 尤其是其径向均匀性。例如, 当电磁波波长与极板尺寸相当时, 驻波效应占主导地位, 会在放电中心处引起显著的能量沉积。另一方面, 当趋肤深度小于等离子体厚度时, 趋肤效应变得显著, 会在腔室边缘处引起显著的能量沉积^[32,45,47,57]。此外, 由于径向边缘处的电场较强, 静电边缘效应会使得等离子体密度的最大值出现在径向边缘处^[45,47,57]。由此可见, 这些效应会影响等离子体的特性, 进而影响沉积过程的径向均匀性。因此如何抑制电磁效应引起的不均匀性, 是目前低温等离子体研究的热点问题之一。

人们提出了高斯透镜形电极^[35,62,64,80,81], 块状电极^[60], 梯形电极^[36,42,61,82]等方法, 来抑制电磁效应引起的不均匀性。然而, 这些方法都需要对电极进行特殊的加工, 使得其在工业上很难实现。因此, 寻求一种简单易行的方法, 不用对腔室进行过多的改造, 同时能显著地优化等离子体均匀性, 成为工业界亟待解决的问题。Bera^[48]等人首次提出了在双频放电中, 当两个同频率电源之间的相位差为零时, 功率沉积主要发生在腔室侧壁处; 而当两个射频源之间的相位差为 π 时, 等离子体的均匀性得到显著提升。随后, Sung 等人^[72-74]在实验上证实了通过调节两个同频率电源之间的相位差, 可以显著优化等离子体的径向均匀性。

本章继续采用第二章提出的流体力学模型, 并与麦克斯韦方程组耦合, 系统地研究了两个同频率电源之间的相位差对 H_2 等离子体特性的影响。首先考察了当频率为 13.56 MHz 和 100 MHz 时, 相位差效应对等离子体动力学行为的影响, 分析了不同放电条件下, 等离子体中的电子通量和功率沉积的时空分布。其次, 通过考察不同的放电条件下等离子体密度和离子通量的径向分布, 重点研究了两个同频率电源之间的相位差对于等离子体径向均匀性的影响。这在实际工业应用中, 对于优化大面积沉积过程的均匀性, 有着至关重要的意义。

4.2 H₂ 等离子体化学反应模型

本章中所模拟研究的腔室结构，如图 4.1 所示。反应腔室为柱对称结构，腔室半径为 20 cm，极板半径为 15 cm，上下极板间距为 3 cm。下极板接射频源 $V_b = V_0 \sin(\omega t)$ ，上极板电压为 $V_t = V_0 \sin(\omega t - \varphi)$ ，侧壁接地。其中， V_0 和 ω 分别为两个射频源的电压幅值和圆频率， φ 为两个同频率电源之间的相位差。

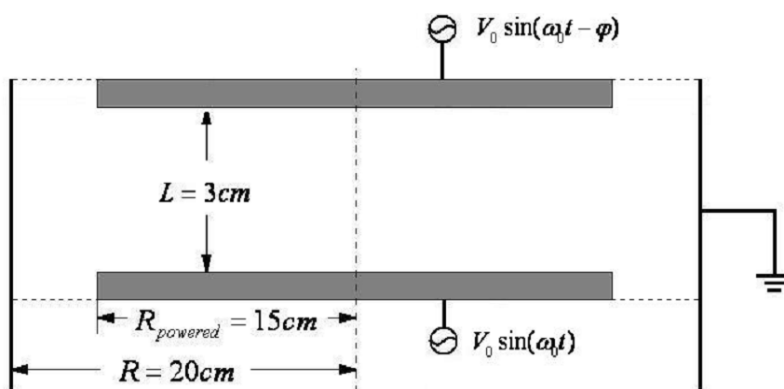


图 4.1 腔室结构示意图

Fig. 4.1 Schematic picture of the reactor configuration

表 4-1 H₂ 等离子体化学反应模型

Tab. 4.1 The reactions for the H₂ plasma included in the model

反应	系数($\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$)	参考文献
$\text{e} + \text{H}_2 \rightarrow 2\text{e} + \text{H}_2^+$	Cross-section ¹⁾	112
$\text{e} + \text{H}_2 \rightarrow 2\text{e} + \text{H} + \text{H}^+$	Cross-section ¹⁾	112
$\text{e} + \text{H} \rightarrow 2\text{e} + \text{H}^+$	Cross-section ¹⁾	113
$\text{e} + \text{H}_2 \rightarrow \text{e} + 2\text{H}$	Cross-section ¹⁾	112
$\text{e} + \text{H}_2^+ \rightarrow 2\text{H}$	$5.66 \times 10^{-8} \times T_e^{-0.5}$	114
$\text{e} + \text{H}_3^+ \rightarrow \text{H}_2 + \text{H}$	$9.75 \times 10^{-8} \times T_e^{-0.5}$	114
$\text{H}_2^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{H}_3^+ + \text{H}$	Cross-section ¹⁾	115
$\text{H}_2^+ + \text{H} \rightarrow \text{H}_2 + \text{H}^+$	6.4×10^{-10}	56

注1) 需根据碰撞截面用 Maxwell 分布估算

在本章所采用的 H_2 等离子体化学反应模型中, 考虑的带电粒子有电子、 H^+ 、 H_2^+ 和 H_3^+ 离子, 中性粒子有 H 原子和 H_2 分子。在化学反应部分, 包含了电子与 H 原子和 H_2 分子的碰撞电离反应, 电子与离子的复合反应, H_2 分子的分解反应, 以及重粒子之间的碰撞反应。反应系数均来自文献, 具体如表 4-1 所示。

4.3 相位差效应对 H_2 等离子体动力学行为的影响

本节中, 通过改变两个同频率电源之间的相位差, 分别研究了在射频放电(13.56 MHz)和甚高频放电(100 MHz)中, 相位差效应对电子动力学行为和功率沉积的影响。在模拟研究中, 放电气压固定为 200 mTorr, 射频源电压为 100 V。

4.3.1 射频放电中的相位差效应

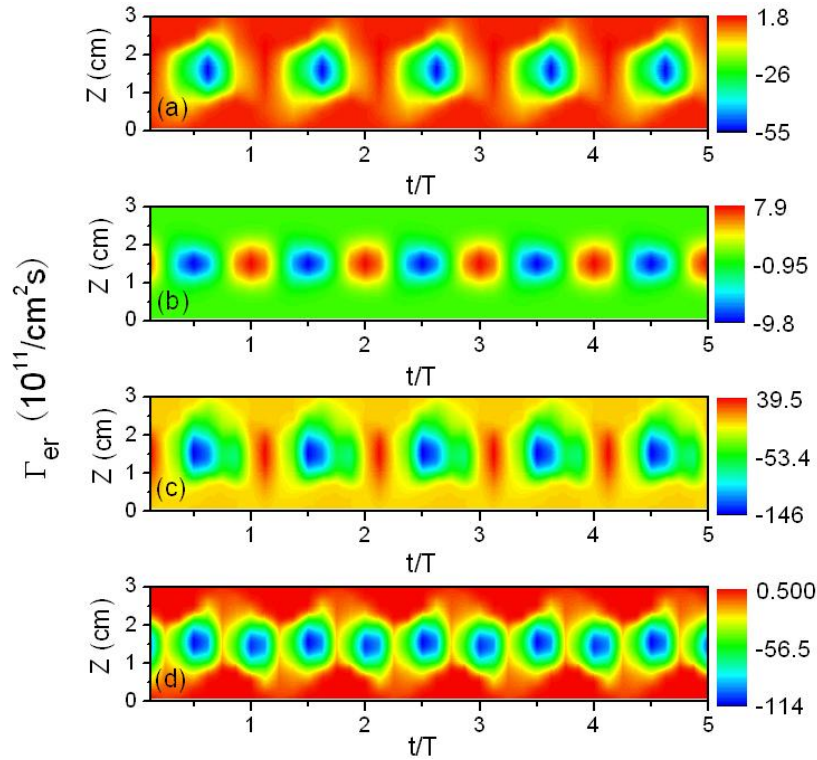


图 4.2 当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 电子径向通量的时空分布: (a) 单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.2 The spatiotemporal distributions of the radial component of the electron flux next to the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 13.56 MHz

本节考察了不同的相位差下, 放电中心处($r=0$)的电子通量、电子密度以及电离率的时空分布。需要注意的是, 在 $r=0$ 处, 为了满足轴对称性, 电子的径向通量为零。因此对于电子的径向通量来说, 选取的观察点紧靠对称轴处。另外, 由于当频率较低时, 电磁效应对等离子体的影响几乎可以忽略。因此在本小节中, 只通过泊松方程计算了由于电荷分离引起的静电场。

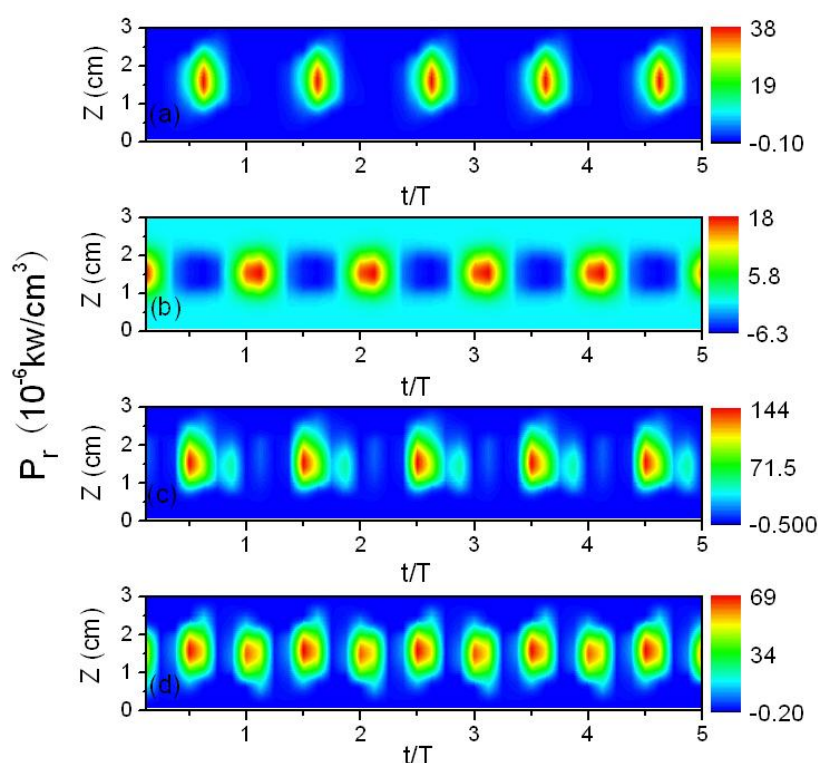


图 4.3 当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 由于径向电场引起的功率沉积密度的时空分布: (a) 单频, (b) $\varphi=0$, (c) $\varphi=\pi/2$, (d) $\varphi=\pi$

Fig. 4.3 The spatiotemporal distributions of the power density from the radial electric field next to the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi=0$, (c) $\varphi=\pi/2$, (d) $\varphi=\pi$, for a hydrogen discharge sustained at 13.56 MHz

图 4.2 给出了不同相位差下对称轴附近的电子径向通量的时空分布。当关闭上极板的电源时, 即在单频情况下, 如图 4.2(a)所示, 电子只被连接下极板的射频源产生的电场加热, 因此可以明显观察到一个向内流动的电子流, 即径向电子通量为负值。此外, 体等离子体区的电子径向通量随时间振荡剧烈, 但是在鞘层区却不是很明显, 这是由于鞘层区的径向电场较弱。当开启上极板的射频源时, 可以很明显的观察到两个同频率电源之间的相位差对等离子体瞬时行为的调制作用。当相位差为 0 时, 如图 4.2(b)所示,

电子首先流向腔室侧壁（电子径向通量为正），随后电子被反向加速，流向放电中心处（电子径向通量为负）。此时，电子通量幅值较低，仅在 $10^{11} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 量级。随着两个电源之间的相位差逐渐增加，电子径向通量的幅值显著提高到 $10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 量级，如图 4.2(c) 和 4.2(d) 所示。这是因为随着相位差的增加，两个射频源产生的电场叠加在一起，共同加速电子。此外，当 $\varphi = \pi/2$ 时，电子径向通量在一个周期内只存在一个峰值。然而当 $\varphi = \pi$ 时，在一个周期内可以观察到两个峰值，这个现象可以通过由径向电场引起的功率沉积密度 P_r 来解释。

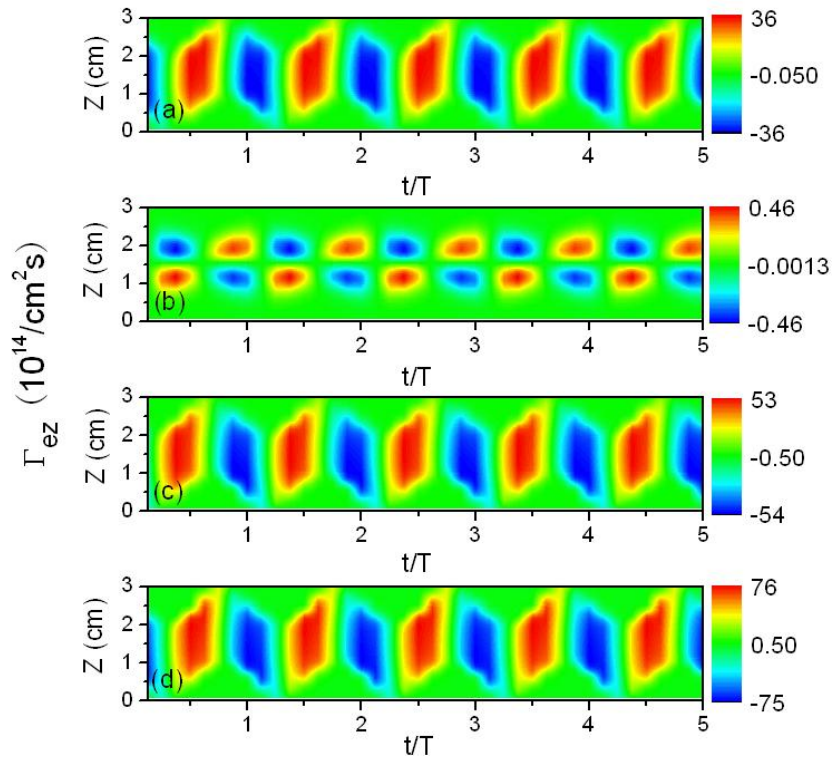


图 4.4 当频率为 13.56 MHz 时，不同相位差下，电子轴向通量的时空分布：(a) 单频，
(b) $\varphi = 0$ ，(c) $\varphi = \pi/2$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.4 The spatiotemporal distributions of the axial component of the electron flux at the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 13.56 MHz

由径向电场引起的功率沉积密度 P_r 的时空分布，如图 4.3 所示。在单频情况下， P_r 在一个周期内只存在一个峰值，这也解释了图 4.2(a) 中的电子通量分布。当两个射频源

同相位时, 如图 4.3(b)所示, P_r 随着时间正负振荡。负功率密度表示电子在径向上被冷却, 正的功率密度表示电子在径向上被加热。此外, 正的功率密度的峰值远大于负功率密度的峰值, 说明整体而言电子在获得能量。随着相位差增加, P_r 呈现出不同的分布。当 $\varphi = \pi/2$ 时, P_r 在一个周期内存在一个显著的峰值, 电子主要从电场中获得能量, 这也解释了图 4.2(c)中较高的电子通量。当 $\varphi = \pi$ 时, 由于电子受到上下极板两个射频源电场的共同作用, P_r 在一个周期内存在两个峰值, 因此图 4.2(d)中的电子径向通量也呈现出两个峰值。

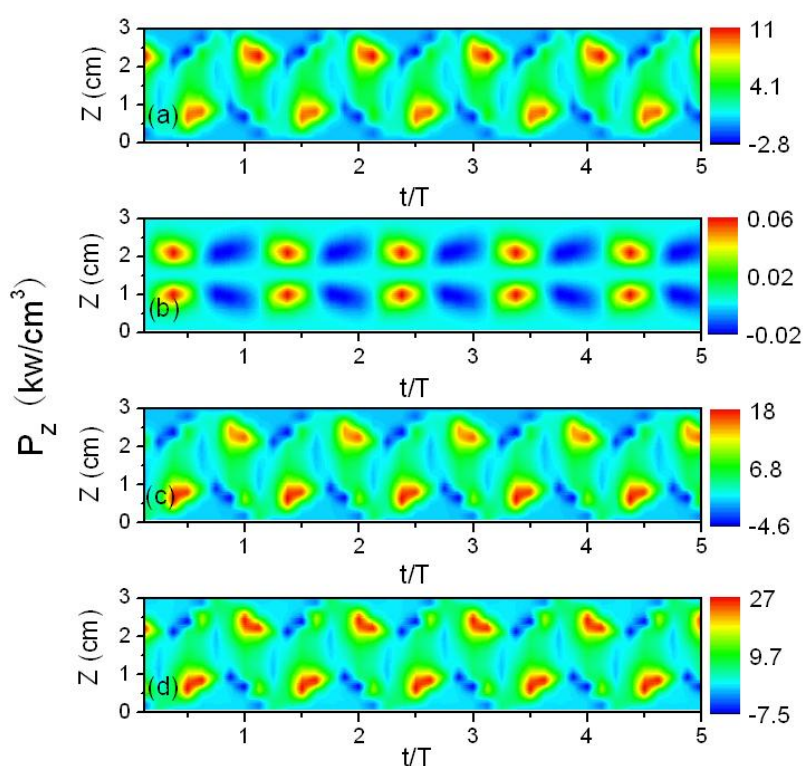


图 4.5 当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 由于轴向电场引起的功率沉积密度的时空分布: (a) 单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.5 The spatiotemporal distributions of the power density from the axial electric field at the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 13.56 MHz

两个同频率电源之间的相位差对电子动力学行为的影响, 还可以通过轴向电子通量的时空分布来说明, 如图 4.4 所示。当上极板不接射频源时, 在一个周期内, 电子首先流向下载板方向(电子轴向通量为负), 随后电子又向上极板移动(电子轴向通量为正)。

当 $\varphi = 0$ 时, 靠近上极板的电子首先向下移动, 随后向上移动, 其运动方向一直与靠近下极板的电子运动方向相反, 如图 4.4(b) 所示。当两个电源之间的相位差为 $\pi/2$ 时, 体等离子体区的电子通量在轴向上变得均匀, 且随着时间正负振荡。由于此时两个射频源产生的电场方向相近, 电子从叠加的电场中获得能量, 因此电子通量的幅值比 $\varphi = 0$ 时高了两个数量级。另外, 此时电子通量的分布与单频时相似, 只是幅值略高。当两个射频源之间的相位差从 $\pi/2$ 增加到 π 时, 电子通量的分布并未改变, 只是幅值增加了 50%。这是因为当两个射频源反相位时, 二者产生的电场方向完全相同, 进而增强了放电过程。

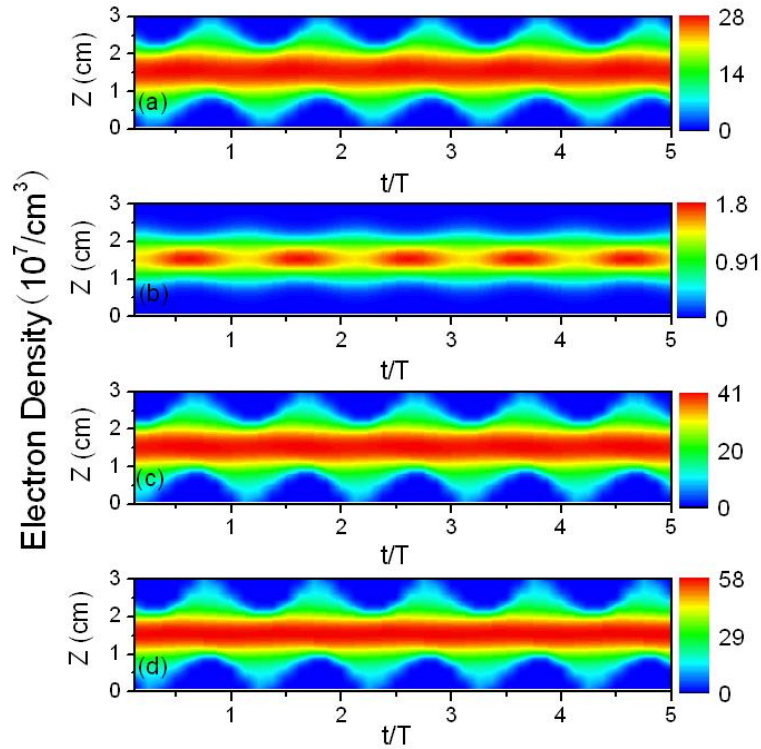


图 4.6 当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 电子密度的时空分布: (a) 单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.6 The spatiotemporal distributions of the electron density at the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 13.56 MHz

图 4.5 给出了放电中心处由轴向电场引起的功率沉积密度 P_z 的时空分布。在单频情况下, 功率沉积的峰值每半个周期, 交替出现在上极板或下极板附近。当上下极板同相

位时, 由于电子主要在径向流动, 因此与其它放电条件下的结果相比, 此时的轴向沉积功率密度几乎可以忽略。此外, 由于上下两个极板附近的电子运动方向相反, 且在同一时刻两个极板的电场方向相反, 因此在每个周期内, P_z 的两个峰值同时出现在体等离子体区与鞘层的交界处。当两个射频源之间的相位差为 $\pi/2$ 时, 如图 4.5(c) 所示, 两个射频源产生的电场方向相近, 因此 P_z 的时空分布与单频放电时的结果相似。当 $\varphi = \pi$ 时, 情况类似, 只是功率密度的幅值增加为 $\pi/2$ 时的 1.5 倍左右。

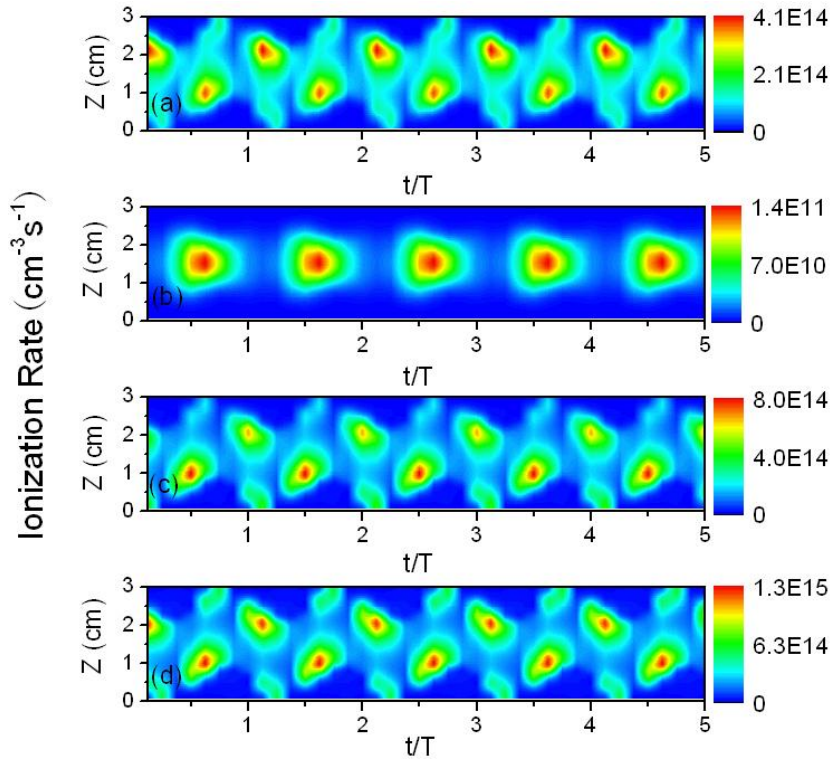


图 4.7 当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下, 电离率的时空分布: (a) 单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.7 The spatiotemporal distributions of the ionization rate at the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 13.56 MHz

不同相位差下, 电子密度的时空分布如图 4.6 所示。在单频情况下, 体等离子体区的电子密度为 $3 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, 并且在鞘层区域有所下降。此外, 鞘层边界随时间显著振荡, 如图 4.6(a) 所示。当 $\varphi = 0$ 时, 两个极板之间没有相位差, 轴向功率沉积基本可以忽略(如图 4.5(b)), 因此体等离子体区的电子密度非常低, 仅为 $2 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$, 且随着时间振荡。

这是因为当两个射频源产生的轴向电场同时增强时，电子被加速向体等离子体区运动，并增强电离过程。随后，两个射频源产生的电场同时减弱，高能电子向两个极板运动，因此体等离子体区的电离过程有所减弱。随着相位差增加，体等离子体区的电子密度明显升高，且不再随时间变化，如当 $\varphi = \pi/2$ 时密度为 $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ ，当 $\varphi = \pi$ 时密度为 $6 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ 。此外，鞘层边界随时间的振荡比同相位时更为显著，因此电子可以从振荡的鞘层中获得更多的能量，这同时也解释了当相位差为 $\pi/2$ 或者 π 时，轴向沉积功率较高，如图 4.5(d) 所示。

为了进一步解释不同相位差对电子密度的影响，图 4.7 给出了电离率的时空分布。当放电由单频源驱动时，在前半个射频周期，电离主要发生在上极板附近的鞘层与体等离子体区的交界处；而在后半个射频周期，电离则主要发生在下极板附近的鞘层与体等离子体区的交界处。在同相位的情况下，当两个鞘层中的电场同时增强时，电子被向着体等离子体区的方向加速，并增强了放电中心处的电离过程，如图 4.7(b) 所示。当 $\varphi = \pi/2$ 或 $\varphi = \pi$ 时，在一个周期内可以观察到四个峰值，如图 4.7(c) 和 4.7(d) 所示。原因如下：首先，上极板附近鞘层的电场较强，电子被加速并推向体等离子体区，因此增强了上极板附近的鞘层和体等离子体区交界处的电离过程。同时，由于下极板附近鞘层的电场近似为零，高能电子可以积累，因此在下极板附近，电离率出现了第二个较弱的峰值。在一个周期内的稍晚时刻，电场反向，因此在下极板附近的鞘层和体等离子体区的交界处，以及上极板附近出现了另外两个峰值。此外，当 $\varphi = \pi/2$ 或 $\varphi = \pi$ 时 ($10^{14} - 10^{15} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$)，电离率显著高于 $\varphi = 0$ 时的结果 ($1.4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$)，这是由于在 $\varphi = \pi/2$ 或 $\varphi = \pi$ 时功率沉积过程更为显著。

综上可以得出结论：当 $\varphi = 0$ 时，电子通量、功率沉积、电子密度以及电离率的分布与其它相位差时得到的结果有着很大的不同。当两个射频源同相位时，二者产生的电场互相抵消；而随着两个电源之间相位差的增加，两个电场方向相同，因此电子通量、功率沉积和电子密度的幅值均有显著增加。当相位差从 $\pi/2$ 增加为 π 时，电子径向通量和功率沉积径向分量的分布，从每个周期一个峰值变为每个周期两个峰值。此外，相位差的增加对电子轴向通量、功率沉积轴向分量以及电离率的时空分布几乎没有影响，仅是幅值有所增加。

4.3.2 甚高频放电中的相位差效应

在甚高频放电中，等离子体的输运行为不同于射频放电。因此本节采用完整的电磁模型，研究了频率为 100 MHz 时，两个同频率电源之间的相位差对等离子体瞬时特性的调制。

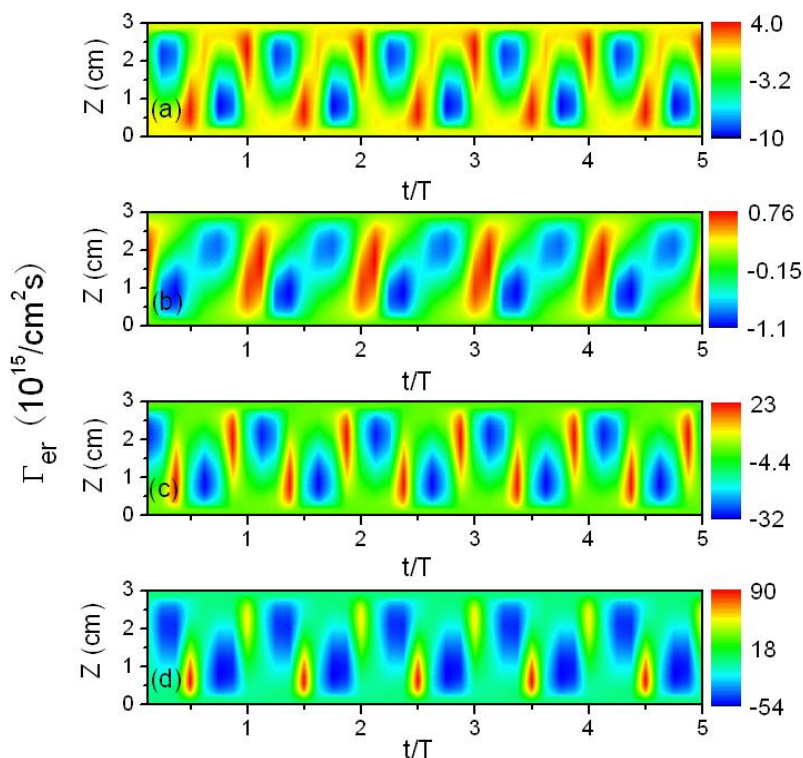


图 4.8 当频率为 100 MHz 时，不同相位差下，电子径向通量的时空分布：(a) 单频，
(b) $\varphi = 0$ ，(c) $\varphi = \pi/2$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.8 The spatiotemporal distributions of the radial component of the electron flux next to the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 100 MHz

图 4.8 给出了不同相位差下径向电子通量的时空分布。在单频放电中的前半周期，径向电子流主要从腔室侧壁流向放电中心，最大值出现在上极板附近。而在后半周期，最大值则出现在下极板附近。当 $\varphi = 0$ 时，首先径向电场为负，所以电子向着腔室侧壁移动。随后由于电场反向，电子流向放电中心，并出现两个峰值，如图 4.8(b) 所示。随着两个极板之间的相位差从 0 增加到 π 时，径向电子通量的幅值稳步增加，并呈现出不同的分布。当 $\varphi = \pi/2$ 或 $\varphi = \pi$ 时，如图 4.8(c) 和 4.8(d) 所示，电子的瞬时行为与射频放

电中的结果完全不同。电子通量出现正负交替，并在一个周期内呈现出四个峰值。此外，当上下极板反相位时，两个电源产生的电场相互叠加，因此电子受到增强电场的作用，电子通量的幅值显著高于其它相位差下的结果。

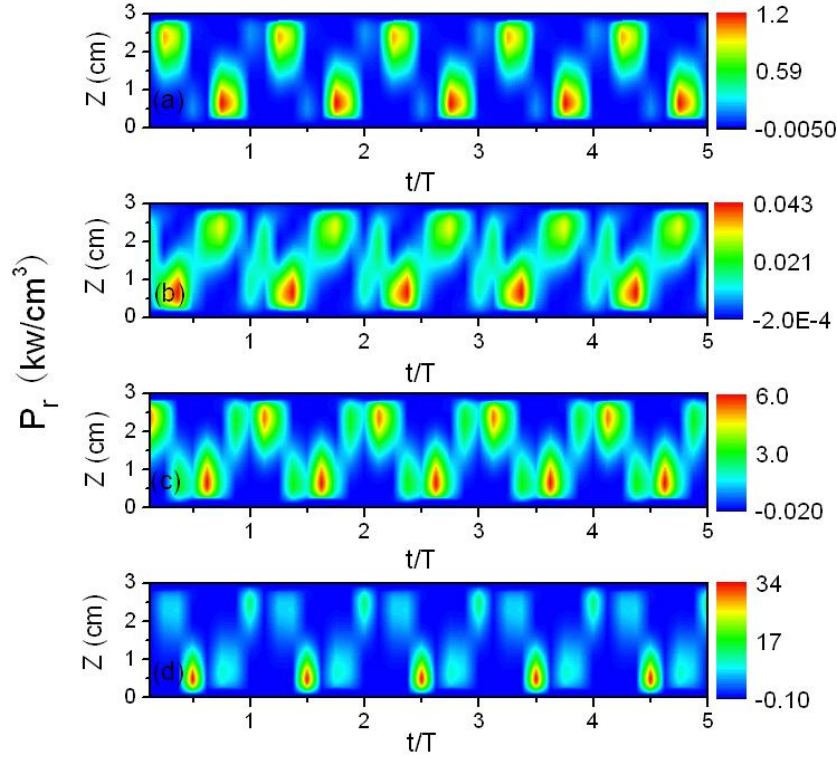


图 4.9 当频率为 100 MHz 时，不同相位差下，由于径向电场引起的功率沉积密度的时空分布：(a) 单频，(b) $\varphi = 0$ ，(c) $\varphi = \pi/2$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.9 The spatiotemporal distributions of the power density from the radial electric field next to the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 100 MHz

图 4.9 给出了甚高频放电中，两个同频率电源之间的相位差对功率沉积密度的径向分量 P_r 的影响。在单频放电中，功率沉积密度的最大值交替出现在上下极板附近。当 $\varphi = 0$ 时， P_r 的时空分布与单频放电相似，只是幅值略低；且在前半个周期， P_r 的最大值出现在下极板附近；而在后半个周期， P_r 的最大值出现在上极板附近。当 $\varphi = \pi/2$ 和 $\varphi = \pi$ 时， P_r 在一个周期内呈现出四个峰值，如图 4.9(c) 和 4.9(d) 所示；与 $\varphi = \pi/2$ 时的结果相比，当 $\varphi = \pi$ 时，前半个周期中靠近下极板的峰值更为显著。此外，随着相位差

增加，两个电源产生的电场彼此叠加，因此电子通量幅值显著增加。通过与 13.56 MHz 时的计算结果相比较，可以发现在甚高频放电中，每个周期内出现的峰值有所增加，且更靠近极板。这是因为在低频时，放电中心处的径向电场较强；而当频率为 100 MHz 时，靠近极板处的径向电场比体等离子体区更强。

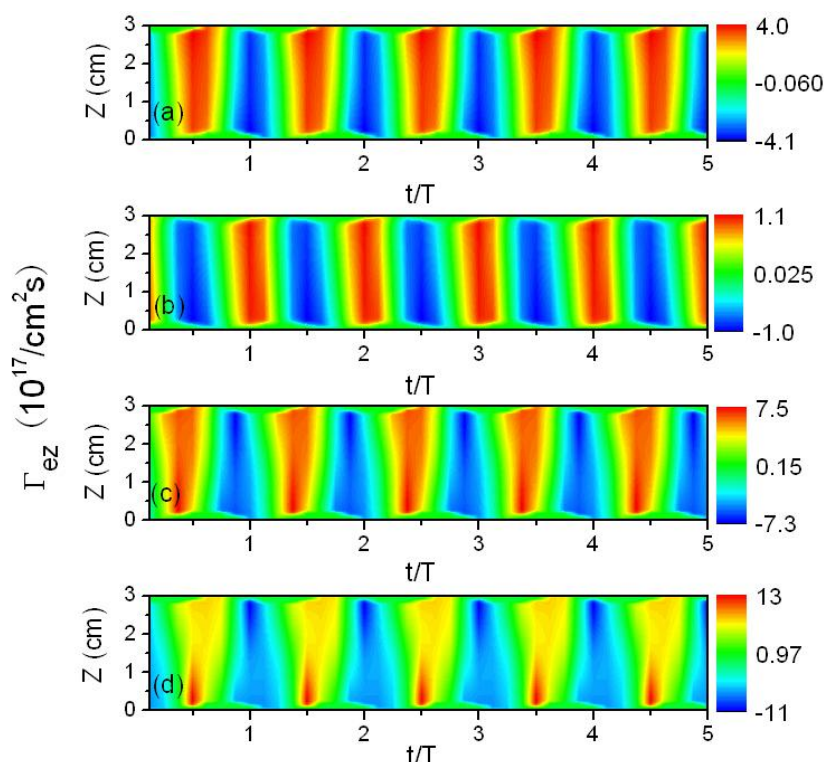


图 4.10 当频率为 100 MHz 时，不同相位差下，电子轴向通量的时空分布：(a) 单频，
(b) $\phi = 0$ ，(c) $\phi = \pi/2$ ，(d) $\phi = \pi$

Fig. 4.10 The spatiotemporal distributions of the axial component of the electron flux at the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\phi = 0$, (c) $\phi = \pi/2$, (d) $\phi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 100 MHz

不同相位差下，对称轴处的轴向电子通量的时空分布，如图 4.10 所示。当上极板接地时，轴向电子通量交替出现正负值，即电子流方向交替指向上下极板。当相位差为 0 时，电子流依然交替指向上下极板，但在时间上有半个周期的延迟，且通量幅值变为单频情况下的四分之一。这是由于当上下极板为同相位时，两个电源产生的电场方向相反，彼此抵消，且叠加电场的最大值出现的时刻比单频放电中晚半个周期。当相位差增加为 $\pi/2$ 或 π 时，电子流动方向又变得与单频情况相同，且幅值增加为

单频时的 2-3 倍。这还是由于两个电源产生的电场方向相同，互相叠加，增强放电所致。此外，当 $\varphi = \pi$ 时，由于电场更强，因此电子通量的最大值更靠近极板。

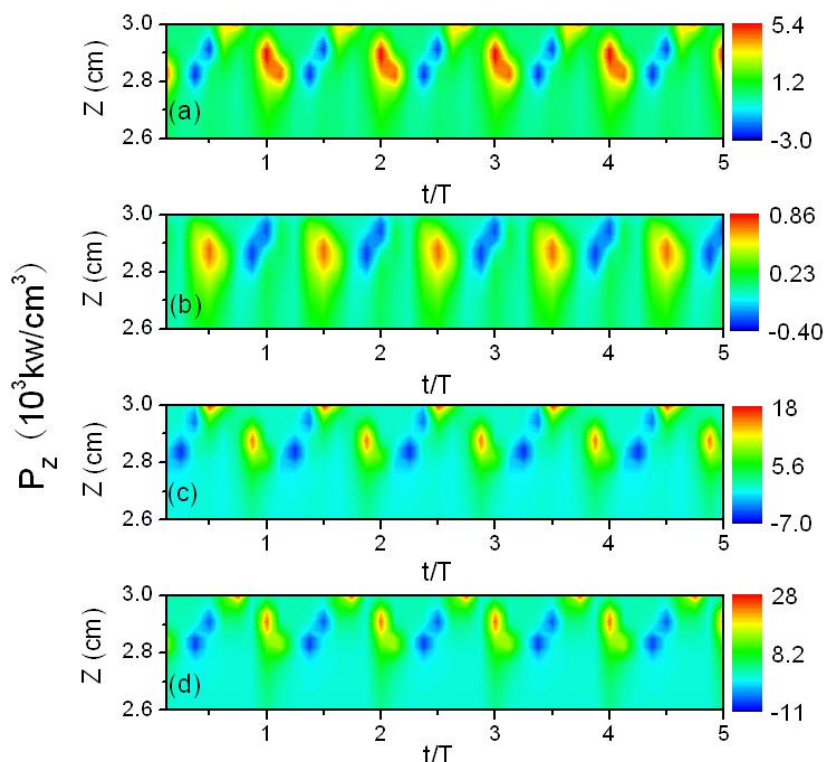


图 4.11 当频率为 100 MHz 时，不同相位差下，由于轴向电场引起的功率沉积密度的时空分布：(a) 单频，(b) $\varphi = 0$ ，(c) $\varphi = \pi/2$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.11 The spatiotemporal distributions of the power density from the axial electric field at the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 100 MHz

图 4.11 给出了不同的相位差下，轴向电场引起的功率沉积密度 P_z 的时空分布。由于在甚高频放电中，鞘层很薄，鞘层中的电场较强，电子在鞘层中被加速，因此功率沉积主要发生在鞘层区域。为了更清晰地考察相位差效应对轴向功率沉积密度 P_z 的影响，图中只给出了上极板附近，即从 $z = 2.6$ cm 到 $z = 3$ cm 的功率密度分布。下极板附近的功率沉积密度有着相似的分布，因此本节中不再赘述。在单频放电中，当鞘层扩展时，电子通过振荡的鞘层获得能量。当鞘层塌缩时，电子损失能量，即如图 4.11(a) 中所示的负功率密度。此外，在极板表面，还观察到了第三个峰值。当 $\varphi = 0$ 时，在一个周期内，

由于鞘层的扩展和塌缩, P_z 交替呈现出正负两个峰值。当相位差从 0 增加为 $\pi/2$ 或 π 时, P_z 的分布与单频情况相似, 只是幅值显著增加。原因是当两个极板之间的相位差增加时, 轴向电子流动变得显著, 因此功率耦合更加有效。

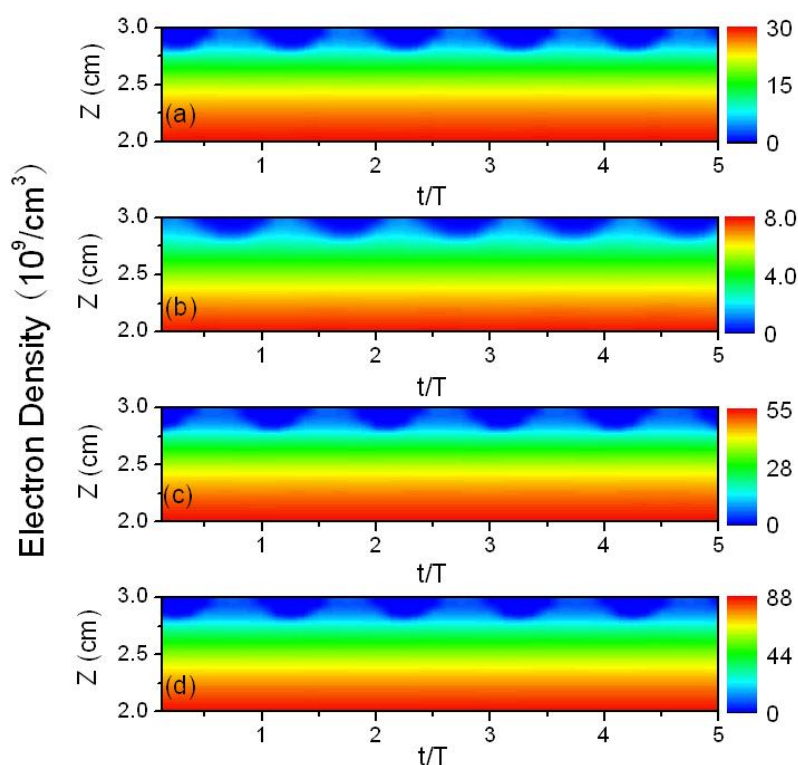


图 4.12 当频率为 100 MHz 时, 不同相位差下, 电子密度的时空分布: (a) 单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.12 The spatiotemporal distributions of the electron density at the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 100 MHz

图 4.12 显示了对称轴处, $z = 2\text{ cm}$ 到 $z = 3\text{ cm}$ 之间的电子密度的时空分布。在单频放电中, 电子密度的分布与 13.56 MHz 时的结果相似, 只是在甚高频放电中, 鞘层更薄, 电子密度更高。当 $\varphi = 0$ 时, 由于功率沉积不是非常显著, 如图 4.9(b) 和 4.11(b) 所示, 电子密度很低, 仅在 10^9 cm^{-3} 的量级。随着相位差增加, 由于两个电源产生的电场方向相近, 彼此叠加, 因此电子密度显著增加了近一个量级。

在不同相位差下, 电子密度的不同分布, 可以通过电离率来解释。由于电子在鞘层中被加速并获得足够的能量, 因此电离主要发生在极板附近。在单频放电的前半个周期,

电离率的最大值出现在上极板附近的鞘层处, 这表明电子被电场显著加热, 并与背景气体发生碰撞将其电离。在后半个周期中, 由于负功率沉积, 电子损失能量, 因此电离过程减弱。同样的过程也发生在下极板附近, 不过有半个周期的延迟。在双频放电中, 电离率的时空分布与单频相似。但是当相位差为零时, 电离率峰值出现的时间与其它相位差情况下得到的结果, 有半个周期的延迟, 且幅值较低。原因与之前的分析相似: 当 $\varphi = 0$ 时, 两个电源产生的电场方向相反, 彼此抵消; 而当 $\varphi = \pi/2$ 或 $\varphi = \pi$ 时, 两个电场方向相同, 彼此叠加增强。

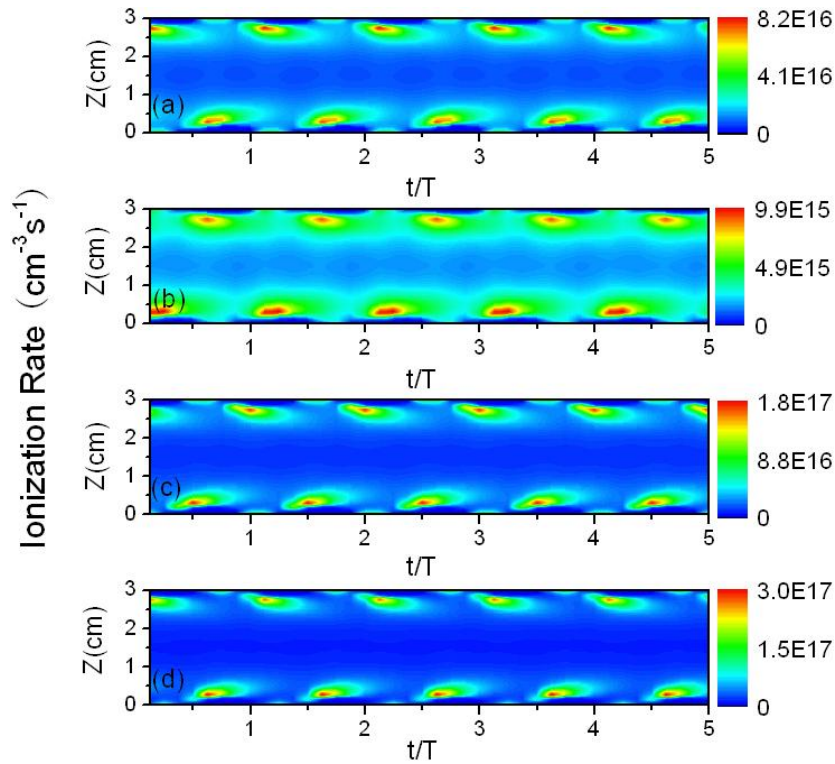


图 4.13 当频率为 100 MHz 时, 不同相位差下, 电离率的时空分布: (a) 单频, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.13 The spatiotemporal distributions of the ionization rate at the reactor symmetry axis at different phase shift values: (a) top source switched off, (b) $\varphi = 0$, (c) $\varphi = \pi/2$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 100 MHz

通过与 13.56 MHz 时的结果相比, 可以发现在甚高频放电中, 相位差效应对等离子体的瞬时行为有着不同的影响。例如在一个周期内, 径向电子通量和径向功率沉积密度

呈现出更多的峰值，且更靠近极板。这是由于当频率为 100 MHz 时，径向电磁场主要沿着两个电极传播，这在射频放电中是几乎可以被忽略的。此外在高频放电中，由于鞘层变薄，且电子同时被轴向电磁场加热，因此轴向功率沉积密度和电离率的幅值均有所增加，且峰值更加靠近极板。这也从另一方面说明，在对甚高频放电进行模拟研究时，只有将电磁效应考虑在内，才能得到更为准确合理的结果。

4.4 相位差效应对 H_2 等离子体均匀性的影响

本小节研究了不同的放电频率(13.56, 60, 100 和 200 MHz)下，两个同频率电源之间的相位差对等离子体径向均匀性的影响，其中放电气压固定为 200 mTorr，电源电压为 100 V。

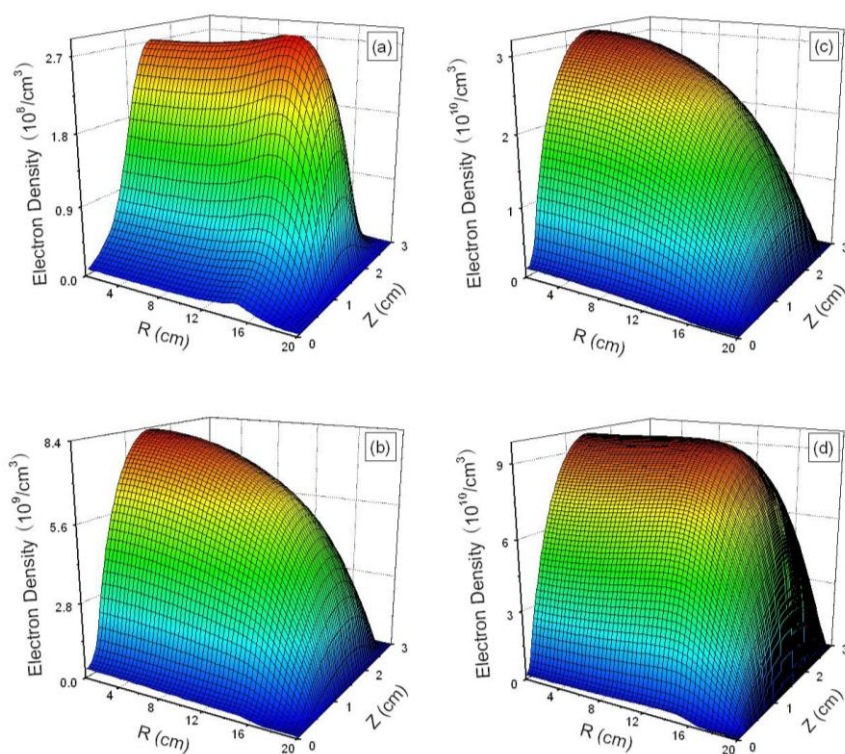


图 4.14 不同频率下的电子密度分布: (a) 13.56 MHz, (b) 60 MHz, (c) 100 MHz, (d) 200 MHz

Fig. 4.14 Distributions of the plasma density at different frequencies: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz, (d)200 MHz

首先考察在单频放电中，不同频率下等离子体的密度分布。当频率为 13.56 MHz 时，如图 4.14(a)所示，由于边缘效应，边缘处的等离子体密度较高（放电中心处的密度为

$2.7 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ ，径向边缘处的密度为 $2.9 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ ）。当频率为 60 和 100 MHz 时，如图 4.14(b)和 4.14(c)所示，等离子体密度的最大值出现在放电中心处。这是因为在甚高频放电中，电磁效应，尤其是驻波效应，对等离子体特性有着非常重要的影响。如 Lee 等人^[45]的研究结果一样，驻波效应使得功率沉积主要发生在放电中心处。当放电频率为 200 MHz 时，等离子体密度的最大值又向径向边缘处移动，密度增加到 10^{11} cm^{-3} 量级，如图 4.14(d)所示。这是因为此时等离子体密度很高，趋肤效应而非驻波效应，对等离子体的影响更为显著，并使得功率沉积主要发生在径向边缘处^[24,47]。

驻波效应的重要性可以通过电磁波波长与腔室半径的比例来确定。电磁波波长的表达式为 $\lambda = 2\pi c / \omega / \sqrt{1 + (L - 2s)/s}$ ，其中 c 为光速， s 为鞘层厚度^[32]。当频率为 13.56 MHz 时， $\lambda \approx 11 \text{ m} \gg R$ ，因此驻波效应的影响可以忽略，如图 4.14(a)所示。当放电频率增加到甚高频的范围时，电磁波波长显著减小，如当频率为 60 MHz 时 $\lambda \approx 2.37 \text{ m}$ ，当频率为 100 MHz 时 $\lambda \approx 1.2 \text{ m}$ 。此时驻波效应对等离子体有着显著的影响，如图 4.14(b)和 4.14(c)所示。当频率增加到 200 MHz 时，尽管电磁波的波长更短，但是此时趋肤效应更为显著，因此等离子体密度的最大值又出现在径向边缘处。

由此可以看出，在不同的放电频率下，由于边缘效应、驻波效应和趋肤效应的共同影响，等离子体密度的径向分布是非常不均匀的，而等离子体的均匀性会直接影响刻蚀和沉积过程的均匀性。因此在本小节中，重点考察了在不同的放电频率下，两个电源之间的相位差对等离子体密度、电离率、放电中心处($z = L/2$)的功率沉积，以及下极板表面离子通量的调制作用。通过分析等离子体中各参数在不同相位差下的径向分布，进而寻求一种简单可行的方法，优化等离子体均匀性。

4.4.1 等离子体密度

图 4.15-4.18 给出了不同频率下，两个电源之间的相位差对等离子体密度的调制作用。当频率为 13.56 MHz 时，电磁效应对等离子体的影响基本可以忽略，此时等离子体的均匀性只受到边缘效应和相位差效应的影响。当 $\varphi = 0$ 时，如图 4.15(a)所示，电子主要在电极与反应腔室侧壁之间移动，因此等离子体密度的最大值出现在径向边缘附近。随着相位差增加到 $\pi/4$ 和 $\pi/2$ ，体等离子体区的电子密度显著上升，径向边缘处的密度则略有下降。这是因为随着相位差增加，更多的电子沿上下极板间运动并获得能量，如图 4.5(c)所示，所以体等离子体区的密度显著上升。同时，由于径向边缘处的功率吸收有所减弱，因此边缘处的电子密度略有下降。当两个射频源反相位，即 $\varphi = \pi$ 时，等离子体密度继续增加。这是因为当相位差较大时，大量电子在上下极板间运动，如图 4.4(c)

和 4.4(d)所示, 因此等离子体密度在径向分布比较均匀, 且除了幅值略高外, 密度分布与单频放电 (图 4.14(a)) 中得到的结果相似。

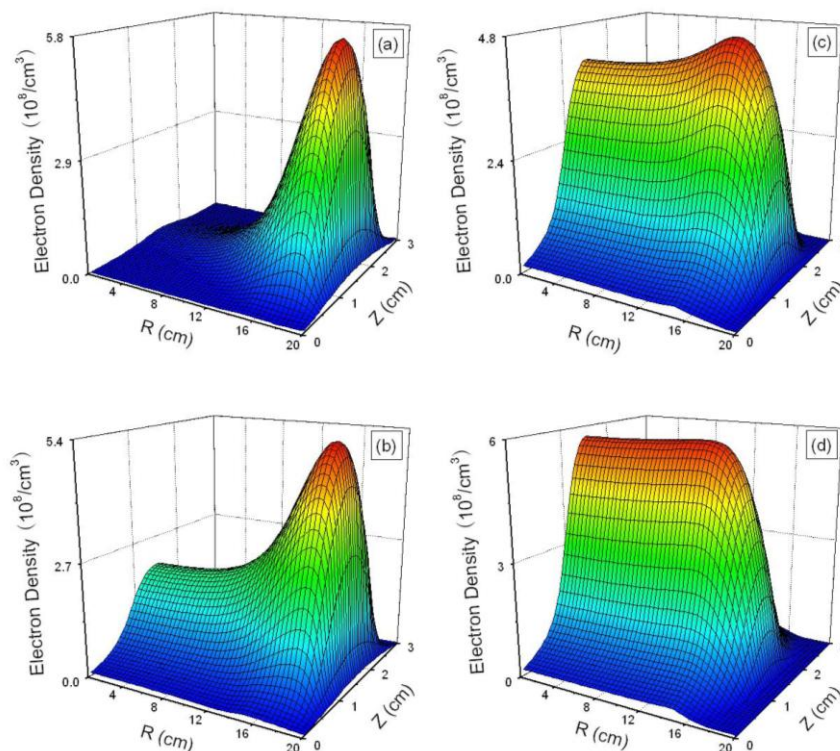


图 4.15 当频率为 13.56 MHz 时, 不同相位差下的等离子体密度分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.25\pi$, (c) $\varphi = 0.5\pi$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.15 Distributions of the plasma density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.25\pi$, (c) $\varphi = 0.5\pi$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 13.56 MHz

当频率增加到甚高频的范围时, 电磁效应对等离子体特性的影响变得显著, 因此在模拟中需要将其考虑在内。当频率为 60 MHz, 相位差为 0 时, 由于功率沉积主要发生在径向边缘处, 因此等离子体密度的最大值偏离放电中心处。随着两个电源之间相位差的增加, 体等离子体区的轴向电子通量显著增加, 增强了电离, 因此放电中心处的等离子体密度显著上升。当 $\varphi = 0.3\pi$ 时, 等离子体的径向均匀性最好, 如图 4.16(c)所示。当两个电源之间的相位差增加为 π 时, 体等离子体区的密度继续增加, 密度的最大值出现在放电中心处。这表明在此放电条件下, 相位差效应以及驻波效应, 对等离子体的分布起主导作用。另外, 当 $\varphi = \pi$ 时, 等离子体密度的分布与单频时相似。而且由于两个电

源产生的电场彼此叠加增强放电，等离子体密度（峰值为 $2.2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ）为其它结果的 3 倍左右。

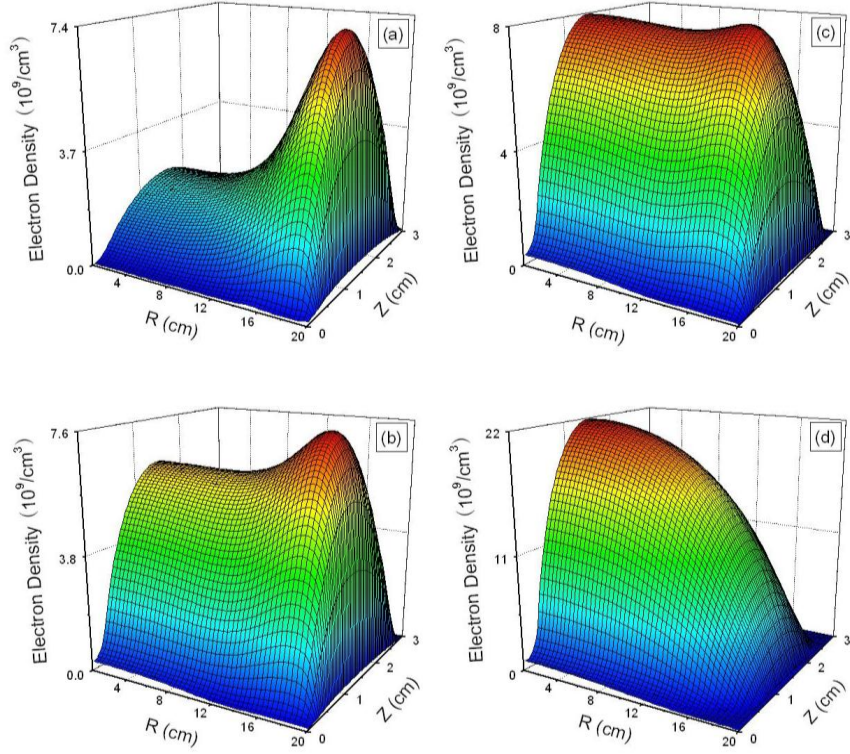


图 4.16 当频率为 60 MHz 时，不同相位差下的等离子体密度分布：(a) $\varphi = 0$ ，
(b) $\varphi = 0.24\pi$ ，(c) $\varphi = 0.3\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.16 Distributions of the plasma density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$ ，
(b) $\varphi = 0.24\pi$ ，(c) $\varphi = 0.3\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$ ，for a hydrogen discharge sustained at 60 MHz

当频率为 100 MHz 时，不同相位差下等离子体的密度分布如图 4.17 所示。当 $\varphi = 0$ 时，等离子体密度的最大值出现在径向边缘处，这与之前分析的原因相同。随着相位差的增加，体等离子体区的密度逐渐增加。当 $\varphi = 0.19\pi$ 时，等离子体的径向均匀性最好，如图 4.17(b)所示。当 $\varphi = 0.45\pi$ 时，静电边缘效应被相位差效应和驻波效应抵消，因此等离子体密度的最大值出现在放电中心处。当 $\varphi = \pi$ 时，可以明显观察到等离子体密度的最大值又向径向边缘处移动，且幅值增加为 $9.9 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 。这说明此时趋肤效应，而非驻波效应或者相位差效应，对等离子体的分布起主导作用。如 Rauf 等人^[47]观察到的

那样，当等离子体密度很高时，趋肤效应会在径向边缘处引起显著的能量沉积，因此等离子体密度的峰值也偏离放电中心。

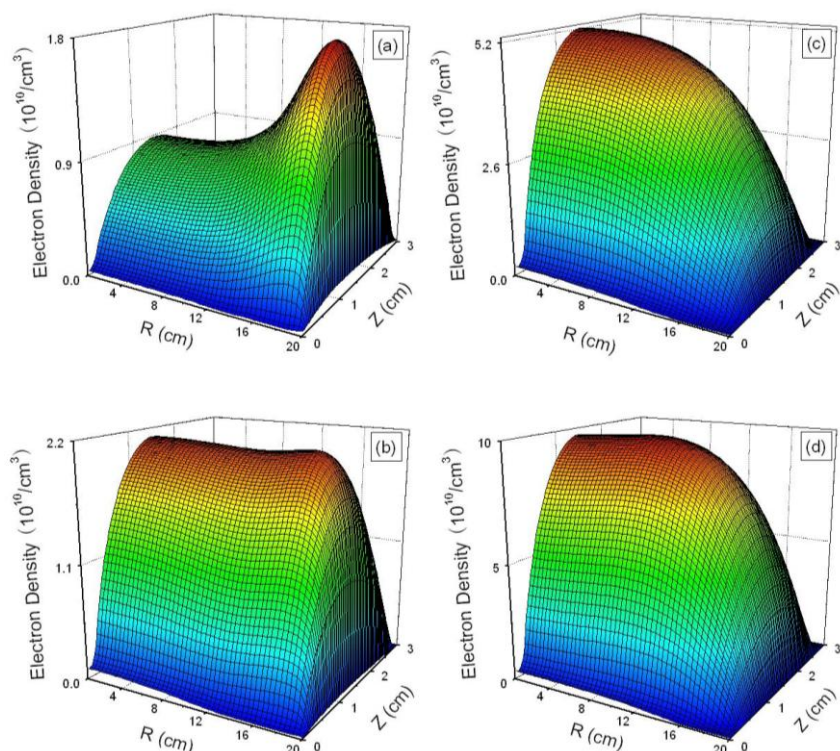


图 4.17 当频率为 100 MHz 时，不同相位差下的等离子体密度分布：(a) $\varphi = 0$ ，
(b) $\varphi = 0.19\pi$ ，(c) $\varphi = 0.45\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.17 Distributions of the plasma density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$ ，
(b) $\varphi = 0.19\pi$ ，(c) $\varphi = 0.45\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$ ，for a hydrogen discharge sustained at 100 MHz

当频率为 200 MHz 时，在所考察的四个相位差条件下，等离子体密度的最大值均出现在径向边缘处，但是却是由于不同的原因引起的。当 $\varphi = 0$ 时，如图 4.18(a)所示，偏离轴线的密度峰值是由于边缘效应引起的。当相位差从 0 增加到 0.15π 和 0.4π 时，放电中心处的等离子体密度显著增加，而边缘处的等离子体密度增加幅度较小，因此当 $\varphi = 0.4\pi$ 时，等离子体的径向均匀性最好，如图 4.18(c)所示。这是由于随着相位差增加，电子主要在上下极板间运动，而极板与侧壁之间径向流动的电子有所减小。当两个射频源处于反相位时，由于等离子体密度较高，趋肤效应起主导作用，靠近侧壁边缘处的密度峰值又变得明显，幅值约为 $2.6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ ，如图 4.18(d)所示。此外，当 $\varphi = \pi$ 时，等离子体密度的径向均匀性比单频时的结果差，但是幅值提高了约 2.5 倍。

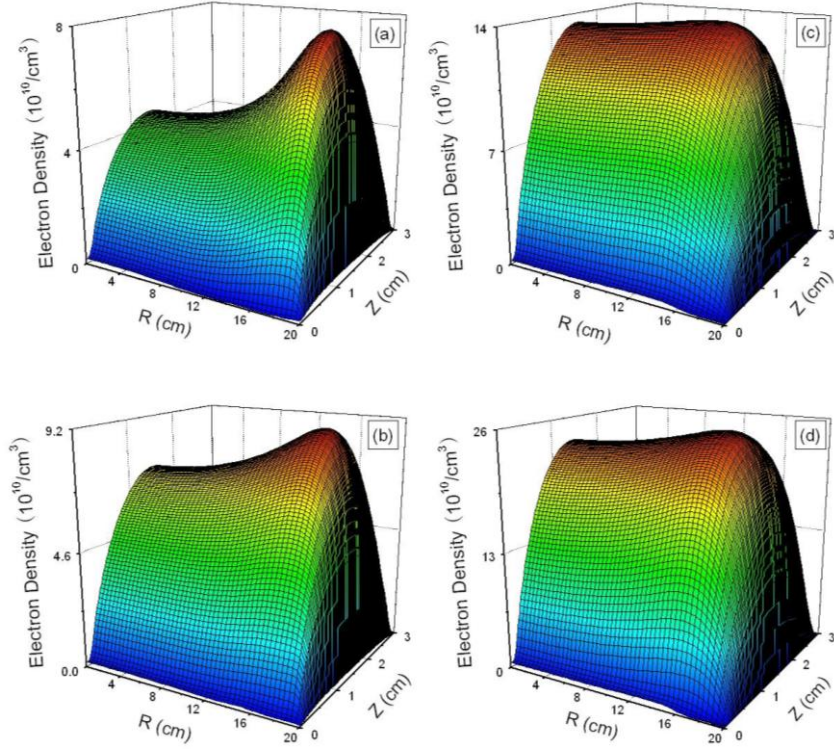


图 4.18 当频率为 200 MHz 时，不同相位差下的等离子体密度分布：(a) $\varphi = 0$ ，
(b) $\varphi = 0.15\pi$ ，(c) $\varphi = 0.4\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.18 Distributions of the plasma density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$ ，
(b) $\varphi = 0.15\pi$ ，(c) $\varphi = 0.4\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$ ，for a hydrogen discharge sustained at 200 MHz

磁雷诺数 $R_m = \mu_0 e^2 n_e L_0^2 / m_e$ 可以用来度量趋肤效应，其中 L_0 是特征长度。当放电频率为 13.56 MHz 时，等离子体密度约为 $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ ， $R_m = 0.0159$ ，因此趋肤效应对等离子体的影响基本可以忽略。当频率增加为 60 MHz 时，随着相位差从 0 增加到 π ，磁雷诺数 R_m 从 0.235 增加到 0.7，趋肤效应依然没有对等离子体产生显著影响，如图 4.16 所示。当放电频率为 100 MHz， $\varphi = \pi$ 时，等离子体密度约为 10^{11} cm^{-3} ，磁雷诺数 $R_m = 3.18$ ，此时趋肤效应对等离子体的影响变得显著，如图 4.17(d) 所示。而当放电频率为 200 MHz 时，趋肤效应对等离子体的影响占主导地位，尤其是当 $\varphi = \pi$ 时， $R_m = 8.268$ ，这也与 Mussenbrock 等人得到的结果一致。

4.4.2 功率沉积

图 4.19 给出了不同的放电频率和相位差下，放电中心处($z = L/2$)由轴向电场引起的功率沉积密度 P_z 的径向分布。从图 4.19 中可以明显观察到，在所考察的放电频率范围内，功率沉积的轴向分量 P_z 随着相位差的增加而增加。这主要是由两个原因造成的：首先，如上一节的分析，当 $\varphi = \pi$ 时，两个电源产生的电场方向相同，彼此叠加增强放电。其次，如图 4.5 和 4.11 所示，由于上下极板之间存在相位差，更多的电子在上下极板间沿轴向运动，并获得能量。

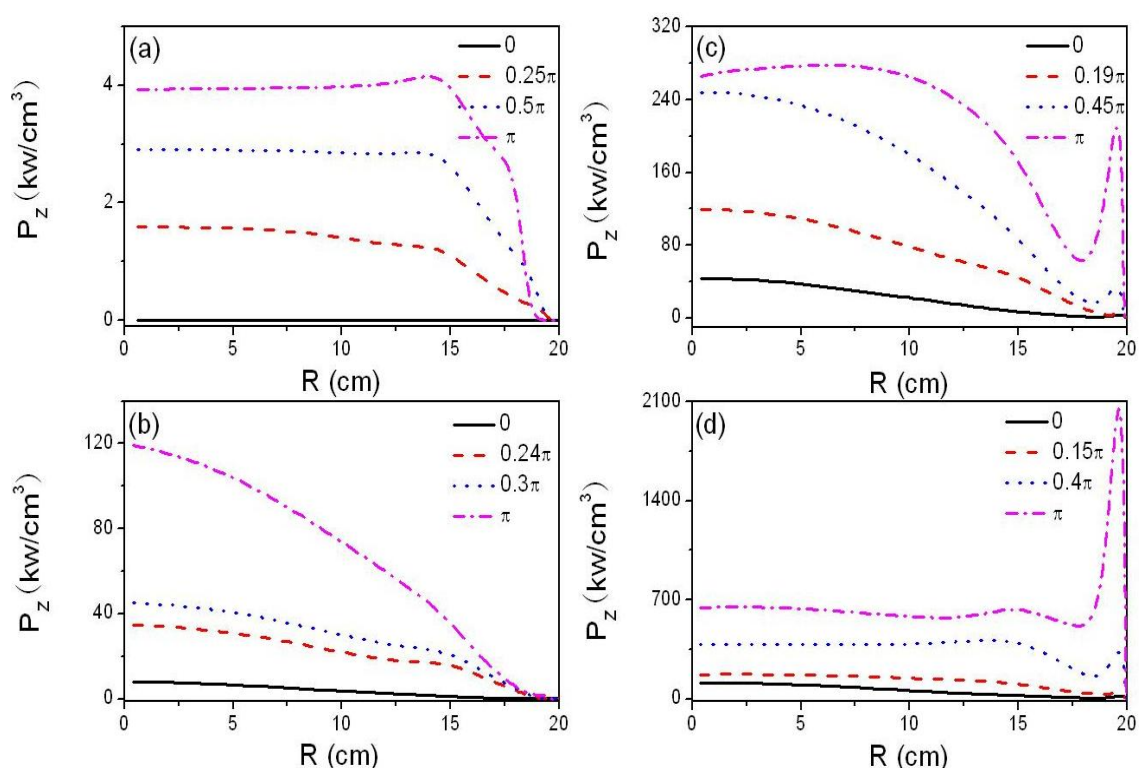


图 4.19 在不同的放电频率和相位差下，放电中心处($z = L/2$)由轴向电场引起的功率沉积的径向分布：(a) 13.56 MHz，(b) 60 MHz，(c) 100 MHz，(d) 200 MHz

Fig. 4.19 Radial distributions of the power density from the axial electric field along the reactor centerline ($z = L/2$) at different phase shift values for four different frequencies: (a) 13.56 MHz, (b) 60 MHz, (c) 100 MHz, (d) 200 MHz

当放电频率较低，为 13.56 MHz 时，如图 4.19(a)所示， $\varphi = 0$ 时的功率沉积密度 P_z 与其它相位差下得到的结果相比，几乎可以忽略。这是由于当两个电源同相位时，放电中心处的轴向电子通量较低，如图 4.4(b)所示。同时，这也解释了图 4.15(a)中，放电中心

处的电子密度明显低于其它结果。由于在射频放电中，电磁效应对等离子体的影响基本可以忽略，功率沉积密度 P_z 主要受到相位差效应和边缘效应的共同影响，因此放电中心处 P_z 的径向分布整体上比较均匀。

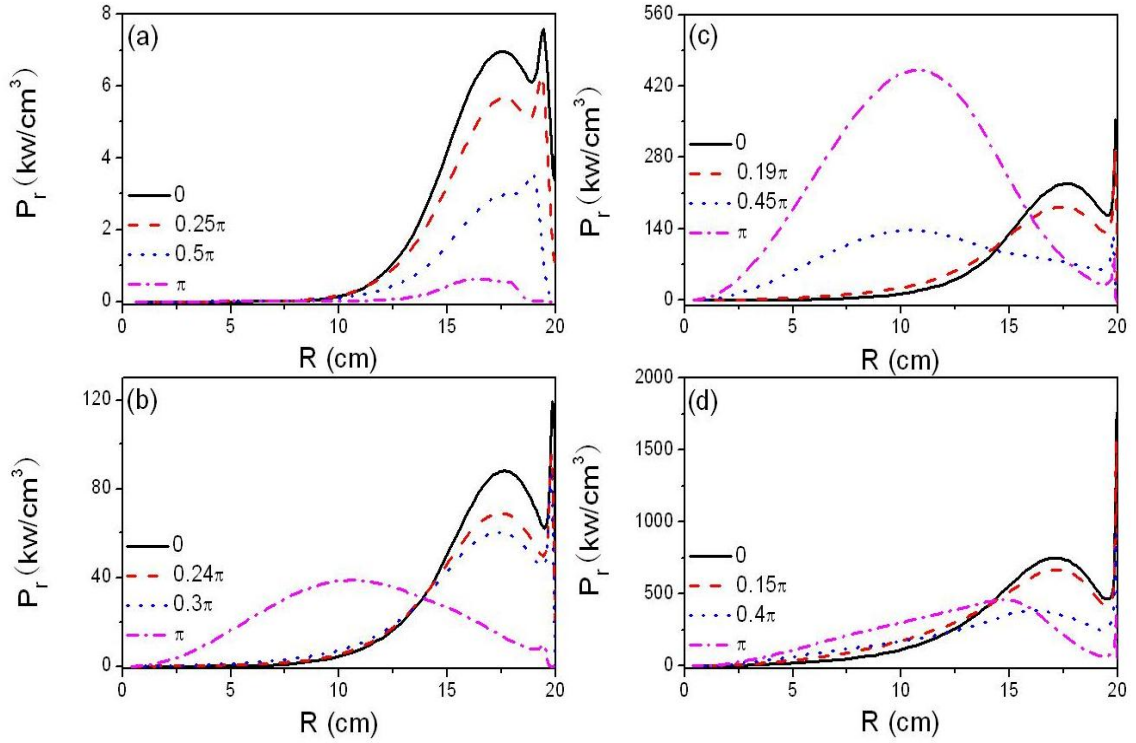


图 4.20 在不同的放电频率和相位差下，放电中心处($z = L/2$)由径向电场引起的功率沉积的径向分布：(a) 13.56 MHz，(b) 60 MHz，(c) 100 MHz，(d) 200 MHz

Fig. 4.20 Radial distributions of the power density from the radial electric field along the reactor centerline ($z = L/2$) at different phase shift values for four different frequencies: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz, (d)200 MHz

当放电频率增加为 60 MHz 时，由于驻波效应的影响，功率沉积密度 P_z 的最大值出现在放电中心处，尤其是当 $\varphi = \pi$ 时。当放电频率为 100 MHz 时，放电中心处功率沉积密度 P_z 的径向分布如图 4.19(c)所示。当两个电源之间的相位差较小时，如 0、 0.19π 和 0.45π ， P_z 的最大值出现在放电中心处。而当 $\varphi = \pi$ 时， P_z 的最大值出现在 $r = 6$ cm 左右，而且在径向边缘处出现了第二个峰值。原因是：尽管驻波效应和相位差效应使得放电中

心处的能量沉积较为显著，由于此时等离子体密度较高，趋肤效应对等离子体的影响同样重要。

当放电频率增加到 200 MHz， $\varphi = \pi$ 时的功率沉积密度 P_z 的径向分布与其它相位差下得到的结果有很大的不同。当相位差较小时，如 0 、 0.15π 和 0.4π ，功率沉积密度 P_z 在放电中心处出现一个平缓的最大值。此外，当 $\varphi = 0.4\pi$ 时， P_z 在径向边缘处出现了第二个峰值。而当 $\varphi = \pi$ 时，功率沉积密度 P_z 主要发生在径向边缘处，幅值约为 $2.1 \times 10^3 \text{ kWcm}^{-3}$ ，这也是由于趋肤效应引起的。

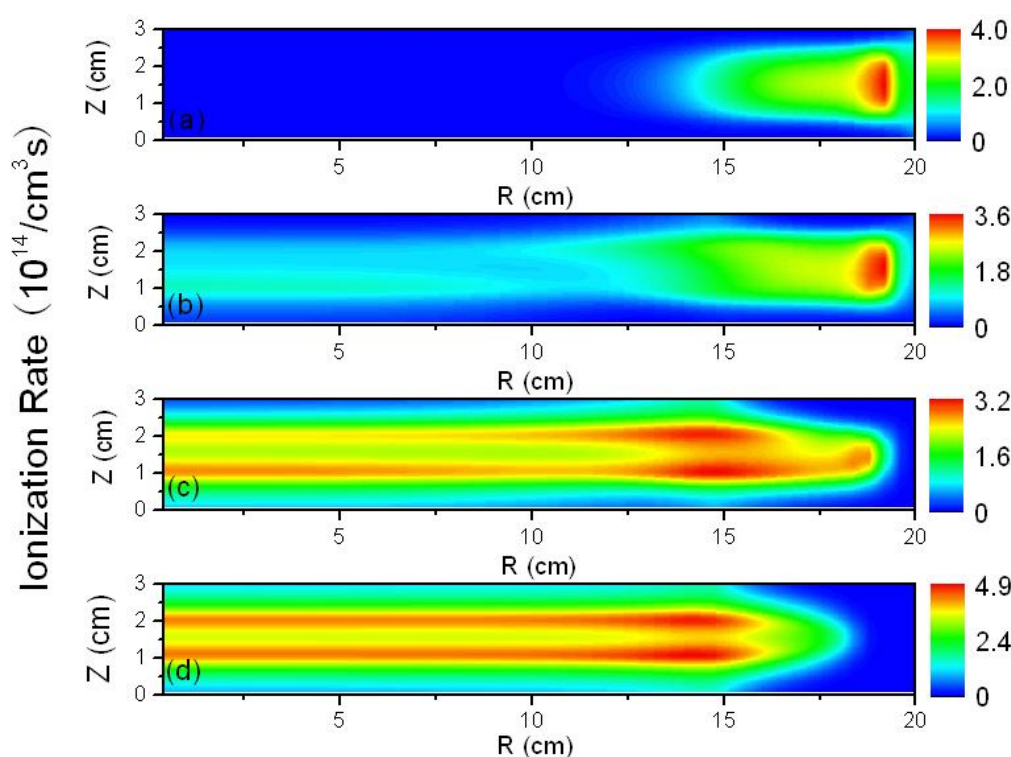


图 4.21 当频率为 13.56 MHz 时，不同相位差下的电离率分布：(a) $\varphi = 0$ ，(b) $\varphi = 0.25\pi$ ，(c) $\varphi = 0.5\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.21 Distributions of the plasma density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$ ，(b) $\varphi = 0.25\pi$ ，(c) $\varphi = 0.5\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$ ，for a hydrogen discharge sustained at 13.56 MHz

图 4.20 给出了不同的放电频率和相位差下，放电中心处($z = L/2$)由径向电场引起的功率沉积密度 P_r 的径向分布。当放电频率较低，即 13.56 MHz 时，功率沉积密度的径向分量 P_r 的最大值出现在径向边缘处，且幅值随着相位差的增加而减小。这是因为当

$\varphi = 0$ 时, 电子主要在极板和侧壁之间运动, 因此径向边缘处的功率沉积较为明显。同时, 由于轴向功率沉积密度 P_z 的幅值很低 (如图 4.19(a)所示), 等离子体分布主要受到 P_r 的影响, 因此密度的最大值出现在径向边缘处。

随着放电频率增加为 60 MHz, 当相位差从 0 增加到 0.3π 时, 功率沉积密度 P_r 的最大值出现在径向边缘处, 且幅值随着相位差的增加而减小。当两个射频源反相位时, 即 $\varphi = \pi$, P_r 的径向分布与其它相位差下得到的结果完全不同, 其最大值从边缘处转移到 $r = 11\text{cm}$ 左右, 这个现象仍然是由两个电源产生的径向电场彼此叠加引起的。

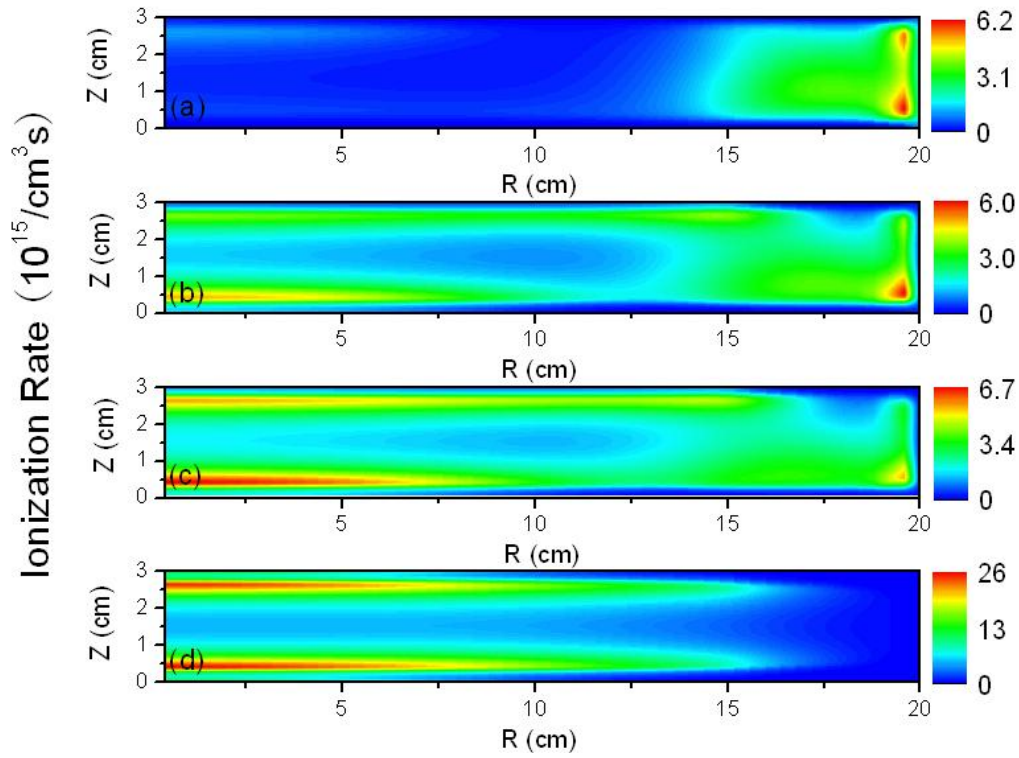


图 4.22 当频率为 60 MHz 时, 不同相位差下的电离率分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.24\pi$, (c) $\varphi = 0.3\pi$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.22 Distributions of the ionization rate at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.24\pi$, (c) $\varphi = 0.3\pi$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 60 MHz

当放电频率继续增加为 100 MHz 时, 如图 4.20(c)所示, 功率沉积密度 P_r 随相位差的变化趋势与 60 MHz 时观察到的结果类似。只是当 $\varphi = \pi$ 时, P_r 位于 $r = 11\text{cm}$ 处的峰

值更加明显，幅值约为 $\varphi = 0.45\pi$ 时的 3 倍左右。当放电频率为 200 MHz 时，在所考察的所有相位差条件下， P_r 的最大值均出现在偏离对称轴的位置，且由于鞘层中的电场很强， P_r 在鞘层区域存在明显的上升。此外，由于此时等离子体密度很高，趋肤效应对等离子体的分布起主导作用，所以当 $\varphi = \pi$ 时，相位差对于 P_r 的调制作用不如频率较低时那样明显。

4.4.3 电离率

为了进一步解释不同频率下，相位差效应对等离子体密度的调制作用，图 4.21-4.24 给出了电离率的空间分布。

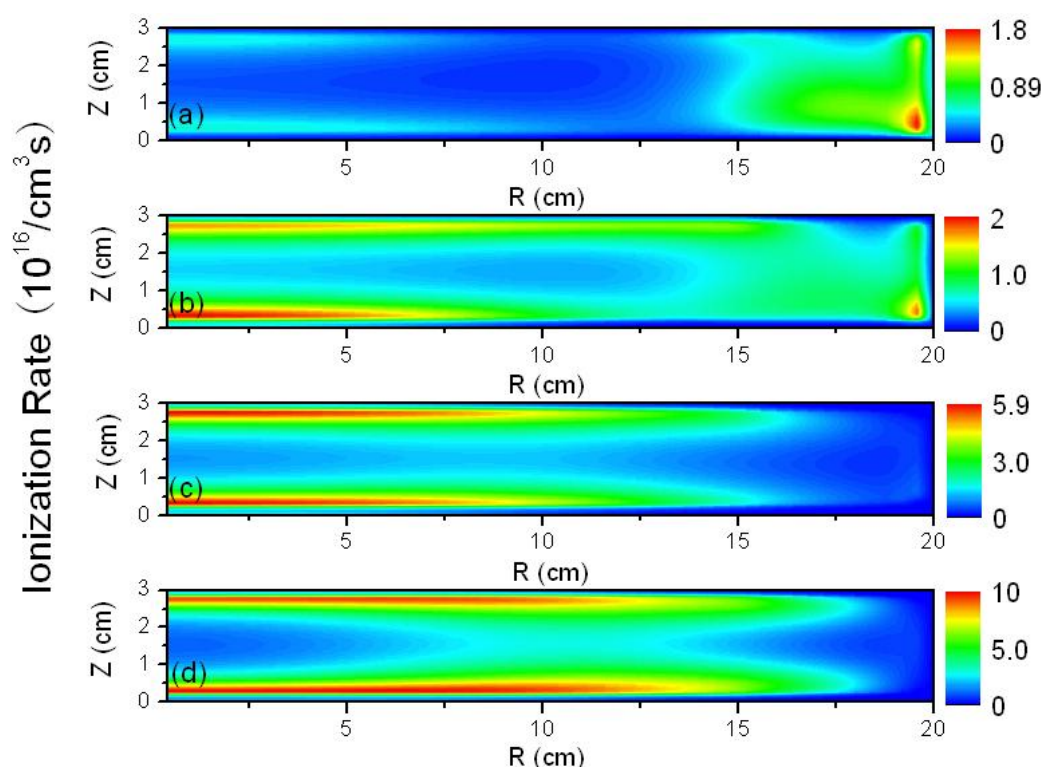


图 4.23 当频率为 100 MHz 时，不同相位差下的电离率分布：(a) $\varphi = 0$ ，(b) $\varphi = 0.19\pi$ ，
(c) $\varphi = 0.45\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.23 Distributions of the ionization rate at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$ ，
(b) $\varphi = 0.19\pi$ ，(c) $\varphi = 0.45\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$ ，for a hydrogen discharge sustained at 100 MHz

当频率为 13.56 MHz， $\varphi = 0$ 和 $\varphi = 0.25\pi$ 时，由于边缘效应的影响，电离率的最大值出现在径向边缘处，如图 4.21(a)和 4.21(b)所示。当两个电源之间的相位差增加到 0.5π

时, 电离率的分布发生了明显的改变, 电离率的最大值出现在鞘层和体等离子体区的交界处。这是由于此处的电子能量较高, 增强了电离过程, 如图 4.7(c)所示。此外, 由于相位差的调制作用, 电离率的径向分布变得较为均匀, 因此图 4.15(c)中电子密度的径向分布也比较均匀。当两个射频源反相位时, 如图 4.21(d)所示, 电离率的径向分布变得更加均匀, 且幅值有着明显增加, 即当 $\varphi = 0.5\pi$ 时, 电离率的最大值为 $3.2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$, 当 $\varphi = \pi$ 时, 电离率的最大值为 $4.9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ 。

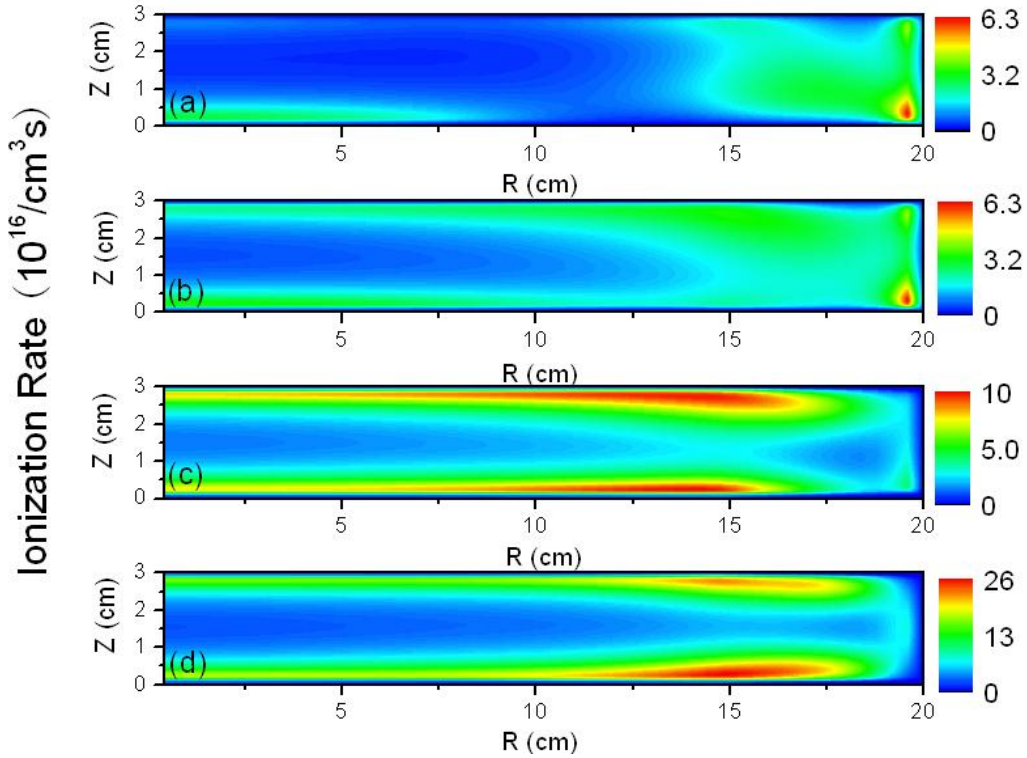


图 4.24 当频率为 200 MHz 时, 不同相位差下的电离率分布: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.15\pi$, (c) $\varphi = 0.4\pi$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 4.24 Distributions of the ionization rate at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.15\pi$, (c) $\varphi = 0.4\pi$, (d) $\varphi = \pi$, for a hydrogen discharge sustained at 200 MHz

当放电频率为 60 MHz, 相位差为 0 时, 电离过程主要发生在径向边缘处, 如图 4.22(a)所示, 这也与 13.56 MHz 时观察到的结果一致。当两个电源之间的相位差增加到 0.24π 和 0.3π 时, 位于放电中心体等离子体区与鞘层交接处的电离率显著上升, 同时径向边缘处的电离率有所下降, 如图 4.22(b)和 4.22(c)所示。这是因为一方面, 当相位差较大时, 两

个电源产生的电场方向相近,因此更多的电子在体等离子体区被加速并与背景气体发生碰撞电离。另一方面,随着相位差增加,电子从径向功率沉积密度 P_r 处获得的能量有所下降,如图 4.20(b)所示,因此腔室侧壁处的电离率相应下降。当相位差增加为 π 时,驻波效应和相位差效应使得电离过程主要发生在放电中心处,因此密度的峰值也出现在放电中心处,如图 4.16(d)。

当放电频率为 100 MHz,相位差从 0 增加到 0.45π 时,电离率的变化趋势与频率为 60 MHz 时观察到的结果相似,即电离率的最大值从径向边缘处转移到放电中心处极板附近,如图 4.23(a)-4.23(c)所示。当 $\varphi = \pi$ 时,极板附近电离率的最大值又从放电中心处向边缘处移动。这是因为此时趋肤效应起主导作用,增强了边缘处的功率沉积,因此图 4.17(d)中,边缘处的电子密度高于放电中心处。

当放电频率为 200 MHz 时,电离率的分布随相位差的变化趋势如图 4.24 所示。当相位差从 0 增加到 0.15π 时,电离率具有相似的分布,其最大值均出现在侧壁附近,但幅值却没有明显增加。这是因为虽然随着相位差增加,电子可以从轴向电场中获得更多能量,但是由径向电场引起的功率沉积密度 P_r 却随着相位差的增加而减小。当 $\varphi = 0.4\pi$ 时,如图 4.24(c)所示,电离过程主要发生在极板附近靠近侧壁的位置。当相位差增加到 π 时,由于侧壁处的功率沉积密度 P_z 明显增加,如图 4.19(d)所示,电离率的最大值继续向径向边缘处移动。

4.4.4 离子通量

两个同频率电源之间的相位差对等离子体均匀性的调制作用,也可以通过下极板表面的轴向离子通量来描述,如图 4.25 所示。首先,随着相位差的增加,下极板表面的离子通量显著增加,这同样是由于当 $\varphi = \pi$ 时,两个电源产生的叠加电场最强。

当频率为 13.56 MHz, $\varphi = 0$ 时,由于边缘效应,离子通量的峰值出现在侧壁附近。随着相位差增加为 π ,放电中心处的离子通量增加幅度远大于边缘处,因此离子通量的径向分布变得均匀。当频率为 60 MHz 时,如图 4.25(b)所示,随着相位差的增加,由于驻波效应和相位差效应的共同作用,下极板表面的离子通量从边缘高,逐渐变得均匀,随后在放电中心处出现最大值。

当放电频率为 100 MHz, $\varphi = 0$ 时,由于径向边缘处的功率沉积显著,因此离子通量较大。当相位差增加为 0.45π 时,侧壁处的峰值消失,离子通量在放电中心处出现一个平缓的最大值。当 $\varphi = \pi$ 时,放电中心处的离子通量沿径向分布变得比较均匀。

当放电频率为 200 MHz 时,如图 4.25(d)所示,在所考察的相位差范围内,离子通量的最大值始终位于径向边缘处,但却是由不同的原因造成的。当 $\varphi = 0$ 时,两个电源

产生的电场方向相反，因此径向边缘处的功率沉积显著，离子通量也较高。当 $\varphi = \pi$ 时，由于两个电源产生的电场彼此增强，等离子体密度显著上升，因此趋肤效应对等离子体的分布起主导作用，使得离子通量的最大值出现在径向边缘处。

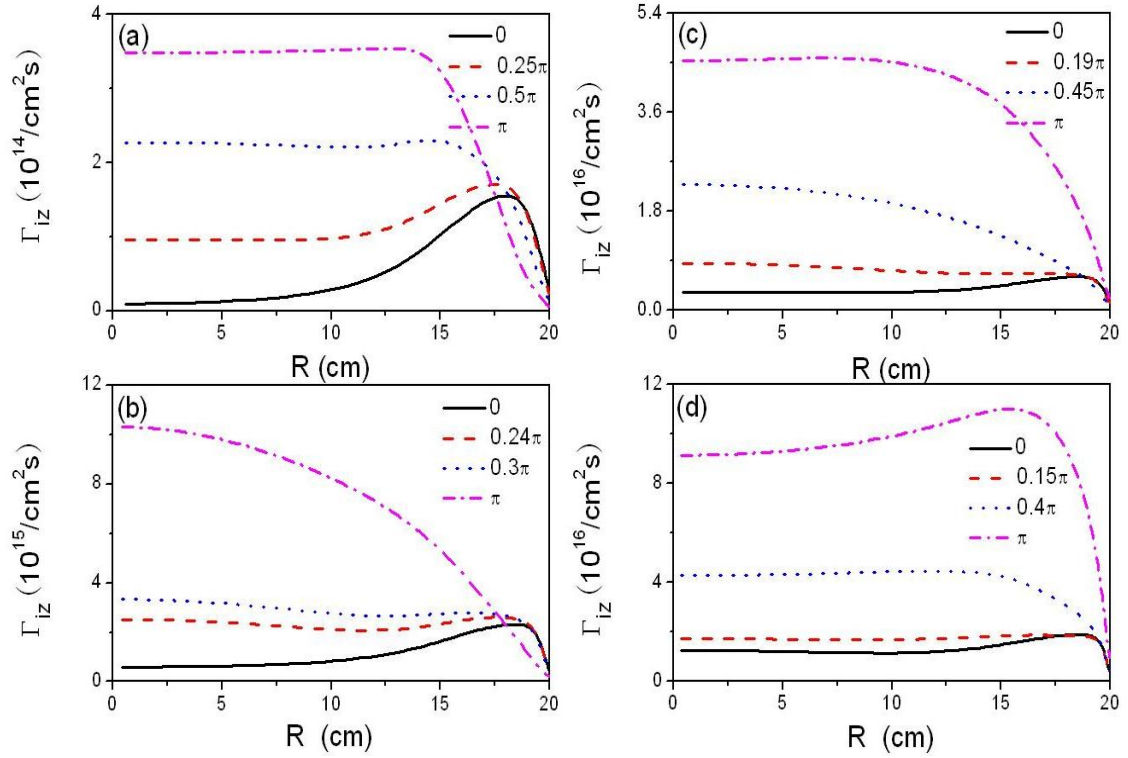


图 4.25 对于不同的放电频率，在不同的相位差下，下极板表面轴向离子通量的径向分布：(a) 13.56 MHz，(b) 60 MHz，(c) 100 MHz，(d) 200 MHz

Fig. 4.25 Radial distributions of the axial ion flux at the bottom electrode at different phase shift values for four different frequencies: (a) 13.56 MHz, (b) 60 MHz, (c) 100 MHz, (d) 200 MHz

4.5 本章小结

本章采用了第二章建立的流体力学模型，并耦合麦克斯韦方程组，系统地研究了在双频 H_2 等离子体中，两个同频率电源之间的相位差对等离子体动力学行为以及径向均匀性的影响。通过考察不同频率及相位差下，对称轴附近的电子通量、功率沉积密度、电离率、等离子体密度的时空分布，分析了相位差对等离子体瞬时特性的影响。此外，

本章还研究了不同频率下，相位差效应对等离子体径向均匀性的影响，这对于工业上研制大面积均匀等离子体源，优化等离子体工艺，有着至关重要的意义。

研究表明，当频率为 13.56 MHz， $\varphi = 0$ 时，径向电子流首先向侧壁移动，随后运动方向反转，向放电中心处流动。而轴向运动的电子，首先向体等离子体区聚集，随后又被推向极板。当 $\varphi = \pi$ 时，径向电子通量在一个周期内出现两个峰值，而轴向电子通量则变得均匀。同时，由于轴向电场引起的功率沉积主要发生在鞘层附近，因此电离率的最大值从体等离子体区转移到与鞘层的交界处。此外，放电中心处的等离子体密度几乎不随时间变化，而鞘层却随时间显著振荡。

在甚高频放电中，当频率为 100 MHz 时，两个电源之间的相位差对等离子体瞬时特性有着不同的调制作用。当 $\varphi = 0$ 时，在一个周期内，电子在径向上首先向侧壁运动，随后反向朝放电中心处运动。与射频放电不同，径向电场引起的功率沉积主要发生在上下极板附近，而轴向电场引起的功率沉积主要发生在鞘层内。当 $\varphi = \pi$ 时，轴向电子通量明显增加，径向电子通量出现正负交替，并且在一个周期内呈现出四个峰值。此外，由于两个电源产生的电场彼此叠加，增强放电，因此等离子体密度显著增加。

通过比较频率为 13.56-200 MHz 时，不同相位差下的等离子体密度分布，发现两个电源之间的相位差对等离子体的径向分布有着明显的调制作用。当频率为 13.56 MHz， $\varphi = 0$ 时，等离子体密度的最大值出现在侧壁附近，径向均匀性也比单频放电中得到的结果差。随着相位差的增加，体等离子体区的电离过程显著增强，当 $\varphi = \pi$ 时，等离子体的径向均匀性得到显著改善。当放电频率增加到甚高频的范围时，等离子体特性受到边缘效应，电磁效应和相位差效应的共同影响。当频率为 60 MHz 时，随着相位差增加，等离子体密度分布从边缘高，逐渐变得均匀，随后密度最大值又出现在放电中心处。与单频放电相比， $\varphi = 0.3\pi$ 时的径向均匀性得到明显改善。当频率为 100 MHz， $\varphi = 0.19\pi$ 时等离子体的径向均匀性最好。当 $\varphi = 0.45\pi$ 时，由于驻波效应和相位差效应的共同作用，等离子体的产生过程主要发生在放电中心处。而当 $\varphi = \pi$ 时，由于趋肤效应占主导地位，等离子体密度的最大值又向径向边缘处移动。当放电频率继续增加为 200 MHz，且相位差较小时，如 $\varphi \leq 0.15\pi$ ，等离子体的径向均匀性比单频放电中得到的结果差。随着相位差增加，体等离子体区的密度显著上升，当 $\varphi = 0.4\pi$ 时，等离子体的径向均匀性较好。而当两个电源反相位时，由于趋肤效应，等离子体密度的最大值又出现在径向边缘处。

此外，本章还研究了两个同频率电源之间的相位差对放电中心处($z = L/2$)功率沉积密度的影响。随着相位差的增加，由于更多的电子在上下极板间运动，因此轴向功率密

度 P_z 显著增加。此外, 当 $\varphi = \pi$ 时, 随着频率增加, P_z 的径向分布从均匀(13.56 MHz), 转变为放电中心处略高(60 MHz)。随着放电频率继续增加, P_z 在侧壁附近出现一个显著的峰值, 尤其是当频率为 200 MHz 时。当频率为 13.56 MHz 时, 径向功率密度 P_r 的最大值出现在径向边缘处, 且随着相位差的增加而下降。当频率为 60 MHz 和 100 MHz, $\varphi = \pi$ 时, 由于两个电源产生的电场互相叠加, P_r 的最大值出现在 $r = 11\text{cm}$ 附近。当放电频率为 200 MHz 时, 相位差对 P_r 的分布没有显著影响, 即峰值始终出现在侧壁附近。

本章的最后, 重点研究了不同放电频率下, 两个同频率电源之间的相位差对下极板表面离子通量的调制作用。研究表明, 当频率为 13.56 MHz, 相位差为 0.5π 和 π 时, 等离子体的径向均匀性较好。在甚高频范围内, 当相位差较小, 为 0.2π 左右时, 等离子体的径向均匀性最好。当两个电源反相位, 频率为 60 MHz 时, 离子通量在放电中心处呈现出一个平缓的最大值; 然而当频率为 200 MHz 时, 离子通量的峰值则出现在径向边缘处。综上可以得出结论: 在不同的放电频率下, 两个同频率电源之间的相位差对等离子体特性的调制作用是不同的, 即等离子体的径向均匀性受到射频源频率和相位两方面的影响。

5 两个同频率电源的相位差对 Ar/CF₄ 等离子体特性的调制

5.1 引言

前两章主要研究了在 Ar 和 H₂ 放电中, 电磁效应对等离子体特性的影响。然而在刻蚀工艺中, 人们通常采用卤素原子, 如 F、Cl、Br 等作为刻蚀粒子, 实现对硅或者多晶硅的刻蚀。其中碳氟气体的应用最为广泛, 如 CF₄。Denpoh 和 Nanbu^[116]采用了 PIC/MC 模型对 CF₄ 放电进行模拟, 并在鞘层边界处观察到了 double-layer 结构。随后, Segawa 等人^[117]采用了松弛连续模型, 在气压为 50 和 200 mTorr, 频率为 13.56 MHz 到 200 MHz 的范围内, 对 CF₄ 放电进行模拟研究。研究发现如果假设等离子体密度恒定, 在气压为 50 mTorr 时, 高频源能够更有效地产生等离子体。最近, Schulza 等人^[118]通过粒子模拟方法耦合解析模型, 研究了电非对称效应, 并发现气压为 30 Pa 时, CF₄ 气体在混合模式下放电。

系统地研究 CF₄ 放电过程, 有助于我们深刻地了解等离子体刻蚀背后的机理。然而在实际应用中, 人们通常在原料气体中添加一些缓冲气体, 如 Ar 等, 以便获得高能 Ar⁺ 离子。Rauf 和 Kushner^[119]采用了 HPEM 模型, 重点观察了在 Ar、Ar/CF₄ 和 Ar/O₂ 放电中, 激发态原子的密度分布。Georgieva 等人^[101]研究发现在 Ar/CF₄ 混合气体中, 随着 CF₄ 比例的增加, 放电由电正性向电负性过度。随后, 他们又采用了一维的 PIC/MC 模型, 系统研究了在对称和非对称的 Ar/CF₄/N₂ 双频放电腔室中, 腔室结构对等离子体特性的影响^[120,121]。此外, Li 等人^[122]测量了 Ar/CF₄ 放电中的 IED, 并发现随着低频功率的增加, IED 显著地向高能方向移动。

随着晶片尺寸的增加, 为了进一步提高刻蚀率并降低介质损伤, 甚高频 Ar/CF₄ 混合放电受到了人们的广泛关注。Kitajima 等人^[123]采用二维发射光谱, 在实验中发现: 当放电频率为 13.56 MHz 时, 在 Ar 等离子体中添加 5% 的 CF₄, 可以使得 Ar(3p₅) 激发速率的径向均匀性显著提高。然而当放电频率增加为 100 MHz 时, 添加 CF₄ 并没有对激发速率产生显著影响。Yagisawa 等人^[124]研究了在双频 CCP 放电中, 偏压对 SiO₂ 刻蚀的影响。研究结果表明, 当偏压频率从 10 MHz 降低为 1 MHz 时, 等离子体的产生更集中在甚高频源附近。Rauf 等人^[47]采用二维混合模型耦合麦克斯韦方程组, 研究发现当频率为 180 MHz 时, 随着混合气体中 CF₄ 比例的增加, 电子密度降低且均匀性显著增加。最近, Yang 和 Kushner^[57,58]系统地研究了 Ar/CF₄ 甚高频放电中, 放电频率、功率、气压以及电负性对等离子体特性的影响。

如之前的分析，甚高频放电中的电磁效应会对等离子体的径向均匀性产生显著影响。因此本章继续采用第二章建立的流体力学模型，并耦合麦克斯韦方程组，系统地研究了两个同频率电源之间的相位差对 Ar/CF₄ 等离子体特性的影响。首先比较了在不同的放电频率下，静电模型和电磁模型的差异。其次，通过考察不同的相位差、放电频率和气体组分下，等离子体密度和粒子通量的径向分布，重点研究了两个同频率电源之间的相位差对等离子体径向均匀性的影响。最后，研究了在不同的放电条件下，相位差效应对等离子体组分的影响。

5.2 Ar/CF₄ 等离子体化学反应模型

模拟中所采用的腔室结构，与第四章相同，如图 4.1 所示。反应腔室为柱对称结构，腔室半径为 20 cm，极板半径为 15 cm，上下极板间距为 3 cm。下极板接射频源 $V_b = V_0 \sin(\omega t)$ ，上极板为 $V_t = V_0 \sin(\omega t - \phi)$ ，侧壁接地。其中， V_0 和 ω 分别为两个射频源的电压幅值和圆频率， ϕ 为两个同频率电源之间的相位差。

在 Ar/CF₄ 等离子体中，除了背景气体 Ar 和 CF₄ 外，考虑的粒子有电子，Ar⁺，CF₃⁺，CF₃⁻，F⁻，以及 Ar*，CF₃，CF₂，CF，F₂，F。对于 Ar 放电来说，模型中包括了 Ar 原子的电离反应、激发反应，以及亚稳态原子 Ar* 的多步电离反应、退激发反应等。对于 CF₄ 气体，模型中包括了一系列的分解反应、电离反应、分解吸附反应等。此外，在混合气体放电中，不仅需要考虑各气体自身的反应，还需要考虑气体之间的反应。因此，模型中还包括了 Ar⁺ 与负离子的复合反应、Ar⁺ 与 CF₄ 的碰撞反应，以及 CF₃⁺ 与 Ar 的碰撞反应等。具体的化学反应类型以及相应的反应系数，详见表 5-1。

表 5-1 Ar/CF₄ 等离子体化学反应模型

Tab. 5.1 The reactions for the Ar/CF₄ plasma included in the model

反应	系数(cm ³ s ⁻¹)	参考文献
$e + \text{Ar} \rightarrow 2e + \text{Ar}^+$	Cross-section ¹⁾	125
$e + \text{Ar} \rightarrow e + \text{Ar}^*$	Cross-section ¹⁾	126
$e + \text{Ar}^* \rightarrow 2e + \text{Ar}^+$	Cross-section ¹⁾	127
$e + \text{Ar}^* \rightarrow e + \text{Ar}$	Cross-section ¹⁾	126
$e + \text{Ar}^* \rightarrow e + \text{Ar}_r$	2.0×10^{-7}	128
$e + \text{CF}_4 \rightarrow e + \text{CF}_3 + \text{F}$	Cross-section ¹⁾	129
$e + \text{CF}_4 \rightarrow e + \text{CF}_2 + 2\text{F}$	Cross-section ¹⁾	129

表 5-1 续
Tab. 5.1 Cont

反应	系数(cm^3s^{-1})	参考文献
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{e} + \text{CF} + \text{F} + \text{F}_2$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow 2\text{e} + \text{CF}_3^+ + \text{F}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3 + \text{F}^-$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^- + \text{F}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{e} + \text{CF}_3^+ + \text{F}^-$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_2 + \text{F}^-$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{e} + \text{CF}_2 + \text{F}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{F}_2 \rightarrow \text{F} + \text{F}^-$	Cross-section ¹⁾	130
$\text{e} + \text{F}_2 \rightarrow \text{e} + 2\text{F}$	Cross-section ¹⁾	130
$\text{e} + \text{CF}_3^+ \rightarrow \text{CF}_3$	9.6×10^{-7}	131
$\text{CF}_3^- + \text{F} \rightarrow \text{CF}_3 + \text{F}^-$	5.0×10^{-8}	119
$\text{CF}_3^- + \text{CF}_3^+ \rightarrow 2\text{CF}_3$	1.0×10^{-7}	119
$\text{F}^- + \text{CF}_3^+ \rightarrow \text{F} + \text{CF}_3$	1.0×10^{-7}	119
$\text{CF}_3^- + \text{Ar}^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{Ar}$	1.0×10^{-7}	119
$\text{F}^- + \text{Ar}^+ \rightarrow \text{F} + \text{Ar}$	1.0×10^{-7}	119
$\text{Ar}^+ + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{F} + \text{Ar}$	9.58×10^{-10}	119
$\text{Ar} + \text{CF}_3^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{Ar}^+$	1.0×10^{-9}	132
$\text{Ar}^* + \text{Ar}^* \rightarrow \text{e} + \text{Ar}^+ + \text{Ar}$	5.0×10^{-10}	119
$\text{Ar} + \text{Ar}^* \rightarrow 2\text{Ar}$	3.0×10^{-15}	128
$2\text{Ar} + \text{Ar}^* \rightarrow \text{Ar}_2 + \text{Ar}$	$1.1 \times 10^{-31} \text{cm}^6 \text{s}^{-1}$	128
$\text{CF}_2 + \text{F}_2 \rightarrow \text{CF}_3 + \text{F}$	4.56×10^{-13}	119
$\text{CF}_2 + \text{CF} \rightarrow \text{C}_2\text{F}_3$	1.0×10^{-12}	119
$\text{CF}_2 + \text{CF}_2 \rightarrow \text{C}_2\text{F}_4$	5.0×10^{-14}	119
$\text{CF}_3 + \text{F}_2 \rightarrow \text{CF}_4 + \text{F}$	1.88×10^{-14}	119
$\text{CF} + \text{F} + \text{M} \rightarrow \text{CF}_2 + \text{M}$	$6.96 \times 10^{-29} \text{cm}^6 \text{s}^{-1}$	119
$2\text{F} + \text{M} \rightarrow \text{F}_2 + \text{M}$	$6.77 \times 10^{-28} \text{cm}^6 \text{s}^{-1}$	119

注1) 需根据碰撞截面用 Maxwell 分布估算

注2) Ar^* 表示 $^3\text{P}_0$ 和 $^3\text{P}_2$ 混合的亚稳态, Ar_r 表示 $^1\text{P}_1$ 和 $^3\text{P}_1$ 混合的共振态

注3) M 表示任意一种参加三体反应的粒子

5.3 静电模型与电磁模型的比较

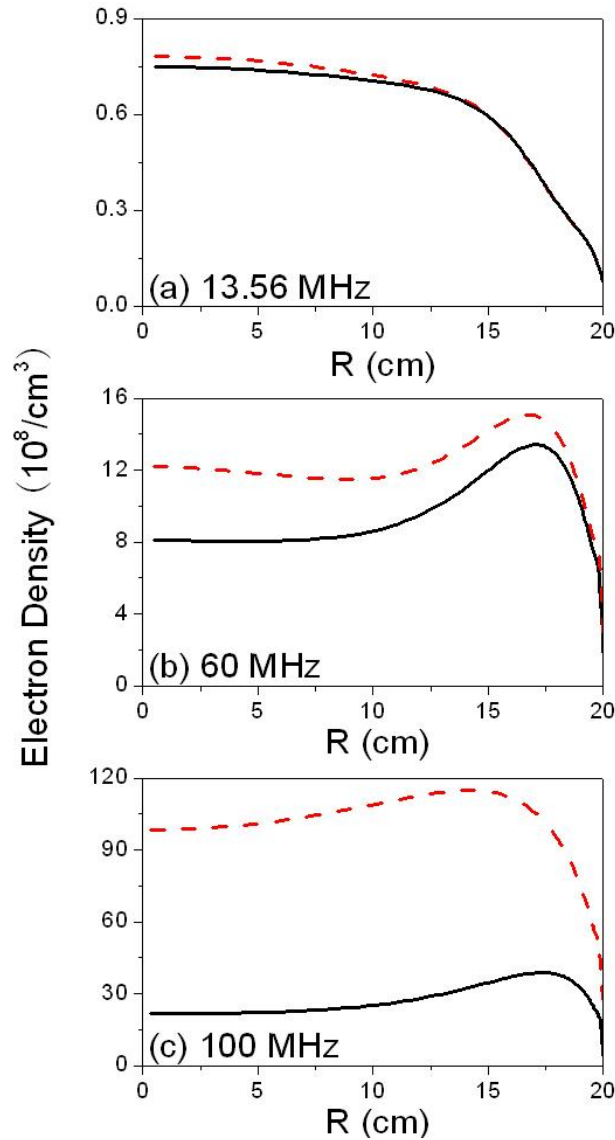


图 5.1 在不同频率下，由静电模型（实线）和电磁模型（虚线）得到的放电中心处 ($z = L/2$) 电子密度的径向分布

Fig. 5.1 Comparison between the radial distributions of electron density along the reactor centerline ($z = L/2$) in the electrostatic model (solid line) and the electromagnetic model (dashed line) at different frequencies

首先，将混合气体的比例固定为 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$ ，比较了单频放电中，通过静电模型和电磁模型计算得到的放电中心处($z = L/2$)电子密度和电子温度的径向分布。其中，射频源电压为 60 V，气压为 50 mTorr。

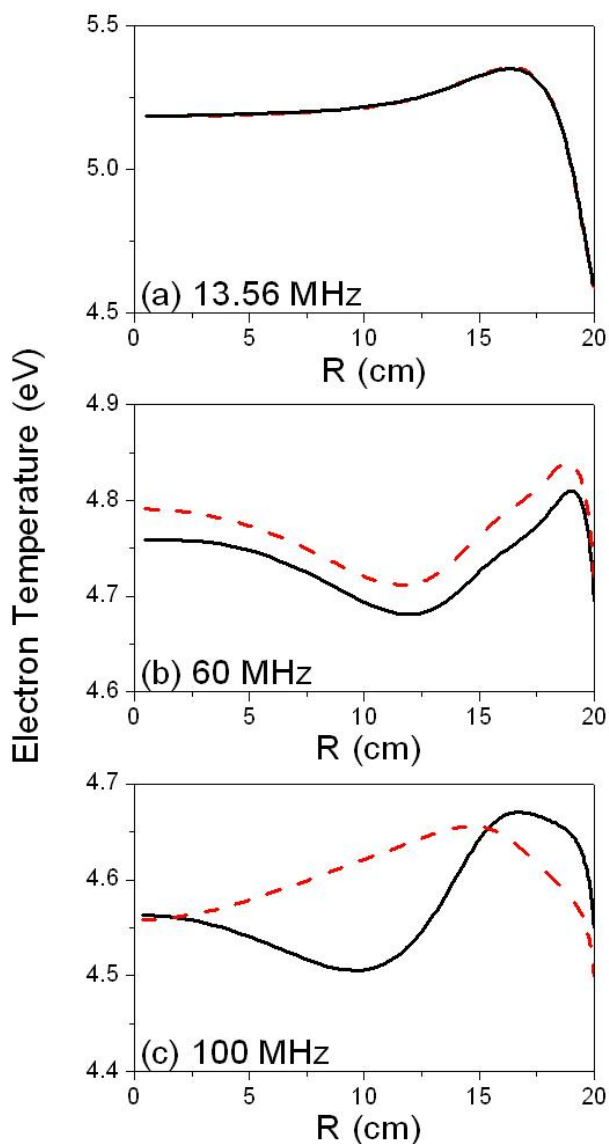


图 5.2 不同频率下，通过静电模型（实线）和电磁模型（虚线）得到的放电中心处 ($z = L/2$) 电子温度的径向分布

Fig. 5.2 Comparison between the radial distributions of electron temperature along the reactor centerline ($z = L/2$) in the electrostatic model (solid line) and the electromagnetic model (dashed line) at different frequencies

图 5.1 给出了在不同的放电频率下, 通过静电模型和电磁模型计算得到的放电中心处($z = L/2$)电子密度的径向分布。通过比较可以发现: 当放电频率较低时, 如 13.56 MHz, 通过两种模型计算得到的电子密度具有相似的分布。这是因为在射频范围内, 电磁效应较弱, 对等离子体没有显著影响。随着放电频率增加为 60 MHz 时, 两种模型得到的结果之间的差异变得明显, 如图 5.1(b)所示。这表明在此频率范围内, 电磁效应对等离子体特性有着显著的影响。当频率增加到 100 MHz 时, 如图 5.1(c)所示, 通过电磁模型计算得到的等离子体密度是静电模型的四倍左右。这一趋势与在 Ar 放电中观察到的现象一致, 然而由于 CF_4 的电负性, 电子密度的空间分布与 Ar 等离子体有所不同。例如在 Ar/ CF_4 放电中, 当放电频率为 13.56 MHz 时, 电子密度的最大值出现在放电中心处; 随着频率增加为 60 MHz, 电子密度在边缘处和放电中心处出现两个峰值; 而当频率为 100 MHz 时, 密度的最大值则出现在径向边缘处。在 Ar 放电中, 当频率较低时, 径向边缘附近的电子密度略高; 随着频率增加为 60 和 100 MHz 时, 电子密度在放电中心处出现一个平缓的最大值。

图 5.2 给出了在不同的放电频率下, 通过静电模型和电磁模型计算得到的放电中心处($z = L/2$)电子温度的径向分布。通过图 5.2(a)可以观察到, 当频率为 13.56 MHz 时, 通过静电模型计算得到的电子温度分布与电磁模型几乎一样, 这同样说明当频率较低时, 电磁效应对等离子体的影响可以忽略。此外, 体等离子体区电子温度的径向分布较为均匀, 仅在径向边缘处, 由于显著的功率沉积使得电子温度略高。当频率为 60 MHz 时, 如图 5.2(b)所示, 电子温度的径向分布存在两个峰值, 分别出现在放电中心和径向边缘, 这也解释了图 5.1(b)中电子密度的分布。在放电中心处, 电子受到轴向电场的加速, 因而电子温度较高; 在径向边缘处, 电子温度的峰值则是由鞘层中的径向电场引起的。此外, 在电磁模型中, 电子不仅被静电场加速, 同时还可以从电磁场中获得能量, 因而通过电磁模型计算得到的电子温度高于静电模型。当频率为 100 MHz 时, 由于电磁效应显著, 因此通过两种模型计算得到的电子温度之间的差异更为明显, 如图 5.2(c)所示。在静电模型中, 电子温度的两个峰值分别出现在放电中心处和径向边缘处。而在电磁模型中, 电子温度的最大值仅出现在径向边缘处。这是由于此时等离子体密度较高, 趋肤效应显著, 电磁波只能在等离子体表面传播并传递能量。此外, 随着频率增加, 电子温度有所降低, 这是由于电子在频繁的碰撞过程中损失了能量。

5.4 相位差效应对 Ar/CF₄ 等离子体均匀性的影响

5.4.1 不同频率

本小节重点研究了不同频率下，两个电源之间的相位差对等离子体均匀性的影响，混合气体比例固定为 Ar/CF₄=0.9/0.1。由于 Ar⁺离子密度远高于 CF₃⁺，因此首先选择 Ar⁺离子的密度分布来说明相位差效应对等离子体均匀性的调制作用。此外，定义不均匀度 α ，其表达式为 $\alpha = (n_{\max} - n_{\min}) / 2n_{\text{ave}}$ ，其中 $n_{\max}$ 、 $n_{\min}$ 和 n_{ave} 分别表示放电中心处 ($z = L/2$)，在 $r = 0$ cm 到 $r = 15$ cm 范围内，密度的最大值、最小值和平均值。

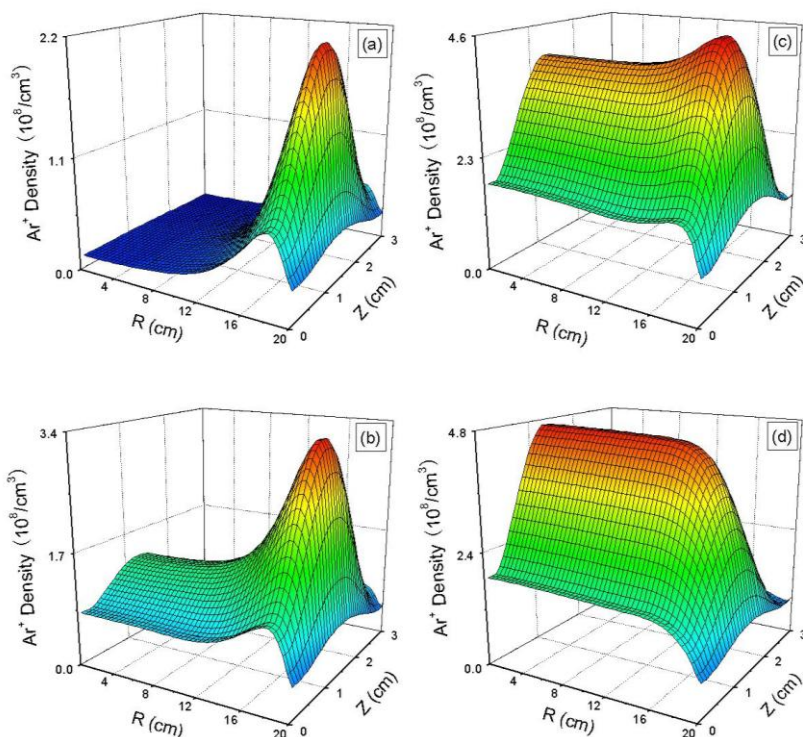


图 5.3 13.56 MHz 时，Ar/CF₄(0.9/0.1) 放电中不同相位差下的 Ar⁺ 密度分布：(a) $\varphi = 0$ ，(b) $\varphi = 0.3\pi$ ，(c) $\varphi = 0.6\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 5.3 Distributions of Ar⁺ density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.3\pi$, (c) $\varphi = 0.6\pi$, (d) $\varphi = \pi$, for an Ar/CF₄(0.9/0.1) discharge sustained at 13.56 MHz

当放电频率较低，如 13.56 MHz 时，等离子体的特性受到静电边缘效应和相位差效应的共同影响。当 $\varphi = 0$ 时，如图 5.3(a) 所示，电子主要在极板和侧壁之间运动，增强了那里的电离过程，因此 Ar⁺ 离子密度的最大值出现在径向边缘处。当两个射频源之间的

相位差增加为 0.3π 和 0.6π 时, 如图 5.3(b) 和 5.3(c) 所示, 由于更多的电子在轴向被加速, 增强电离, 因此体等离子体区的密度显著增加。当两个射频源反相位时, 即 $\varphi = \pi$, 由于上下极板之间的相位差较大, 电子主要沿轴向运动, 此时的相位差效应, 而非边缘效应, 对 Ar^+ 离子的密度分布起主导作用, 因此 Ar^+ 离子的径向分布较为均匀。此外, 当两个射频源反相位时, 不均匀度 α 达到最小值, 仅为 0.021, 比同相位时的结果 1.61 小两个量级。

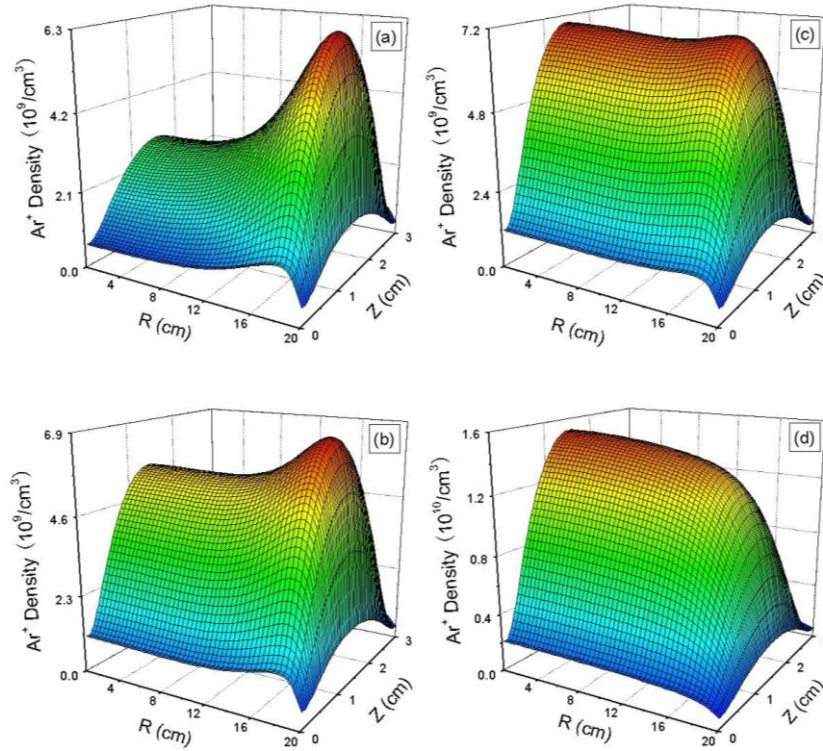


图 5.4 60 MHz 时, $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.9/0.1)$ 放电中不同相位差下的 Ar^+ 密度分布: (a) $\varphi = 0$,
(b) $\varphi = 0.35\pi$, (c) $\varphi = 0.53\pi$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 5.4 Distributions of Ar^+ density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.35\pi$,
(c) $\varphi = 0.53\pi$, (d) $\varphi = \pi$, for an $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.9/0.1)$ discharge sustained at 60 MHz

当放电频率为 60 MHz 时, 电磁效应对等离子体的影响变得显著, 如图 5.1(b) 和 5.2(b) 所示。当两个电源同相位时, 如图 5.4(a), 由于径向边缘处显著的功率沉积, Ar^+ 离子密度的最大值偏离放电中心。随着相位差的增加, 由于两个电源产生的轴向电场方向相近, 互相叠加, 因此功率沉积的轴向分量显著增加, 体等离子体区的电子从中获得更多的能

量，并增强了等离子体电离过程。因此，腔室中心处 Ar^+ 离子的密度显著增加，而径向边缘处的密度却增加缓慢。所以当 $\varphi = 0.53\pi$ 时，径向均匀性最好，不均匀度仅为 0.016，如图 5.4(c) 所示。当相位差继续增加为 $\varphi = \pi$ 时，由于驻波效应， Ar^+ 离子密度在放电中心处呈现出一个平缓的最大值，不均匀度增加为 0.062。这与在上一章中观察到的 H_2 放电的结果有所不同，这可能是由于 CF_4 的电负性所致。在 Ar/CF_4 混合气体放电中，负离子而非电子，成为最主要的携带负电荷的粒子，因此鞘层变厚，电场分布变得不同，进而影响等离子体的密度分布。同时，从图 5.4(d) 中可以观察到，当 $\varphi = \pi$ 时， Ar^+ 离子密度的最大值 ($1.5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$) 是其它相位差条件下密度幅值的两倍左右。这也进一步说明两个电源产生的电场互相叠加，对等离子体的加热更为有效。

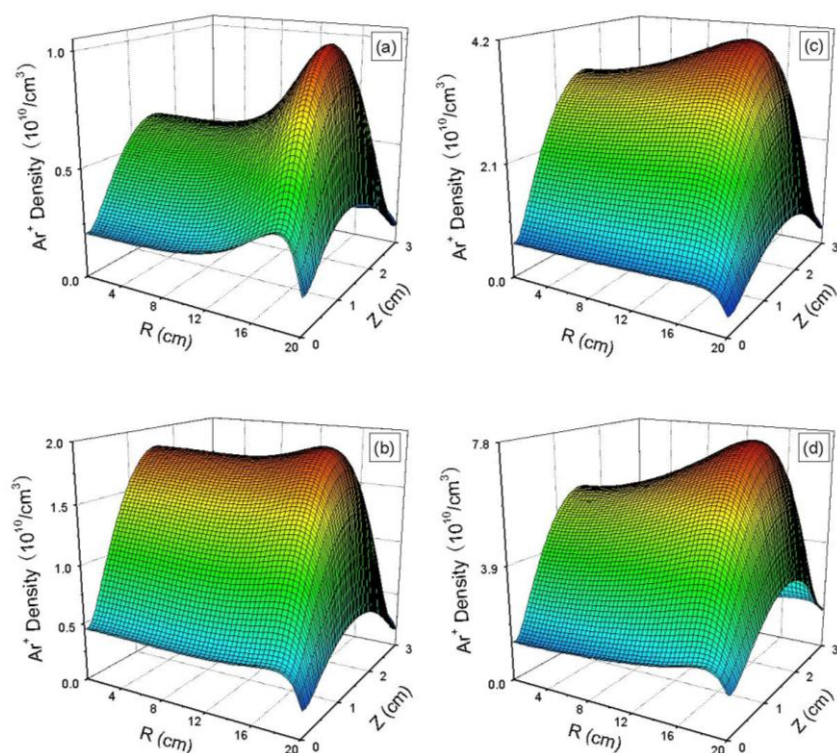


图 5.5 100 MHz 时， $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.9/0.1)$ 放电中不同相位差下的 Ar^+ 密度分布：(a) $\varphi = 0$ ，
(b) $\varphi = 0.25\pi$ ，(c) $\varphi = 0.45\pi$ ，(d) $\varphi = \pi$

Fig. 5.5 Distributions of Ar^+ density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.25\pi$,
(c) $\varphi = 0.45\pi$, (d) $\varphi = \pi$, for an $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.9/0.1)$ discharge sustained at 100 MHz

当放电频率增加为 100 MHz，相位差为 0 时，由于静电边缘效应， Ar^+ 离子密度的峰值出现在径向边缘处，这与低频条件下得到的结果相似。随着相位差的增加，当

$\varphi = 0.25\pi$ 时，体等离子体区的密度显著增加，等离子体的径向均匀性得到优化，不均匀度仅为 0.026，如图 5.5(b)所示。

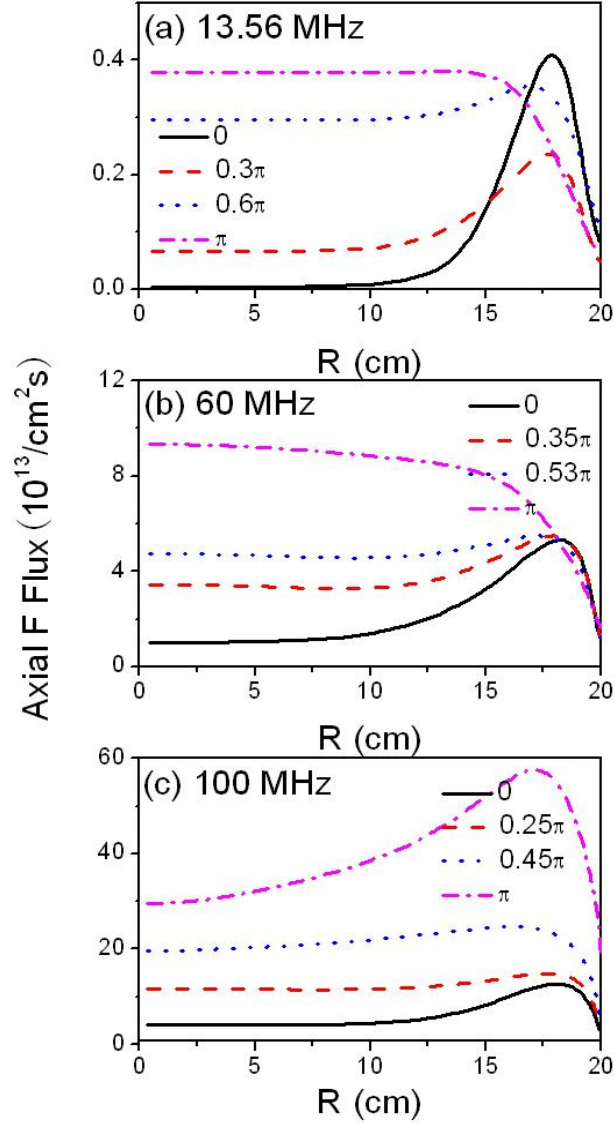


图 5.6 当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$ 时，在不同放电频率和不同相位差下，下极板表面轴向 F 原子通量的径向分布：(a) 13.56 MHz，(b) 60 MHz，(c) 100 MHz

Fig. 5.6 Radial distributions of the axial F flux at the bottom electrode at different phase shift values for different frequencies: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz, for an $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.9/0.1)$ discharge

然而随着相位差继续增加,不均匀度单调增加(当 $\varphi = 0.45\pi$ 时, $\alpha \approx 0.088$; 当 $\varphi = \pi$ 时, $\alpha \approx 0.136$)。且当两个电源反相位时,并没有观察到如 H_2 放电中,等离子体密度的最大值出现在放电中心处的现象。当 $\varphi = 0.45\pi$ 时, Ar^+ 离子密度的最大值向径向边缘处移动。这是由于此时等离子体密度较高,电磁波无法穿透等离子体,因此趋肤效应变得更为显著。当 $\varphi = \pi$ 时,径向边缘处的密度峰值变得更为明显,幅值为 $7.8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$,如图 5.5(d)所示。这说明此时趋肤效应增强,并显著影响等离子体的径向均匀性。

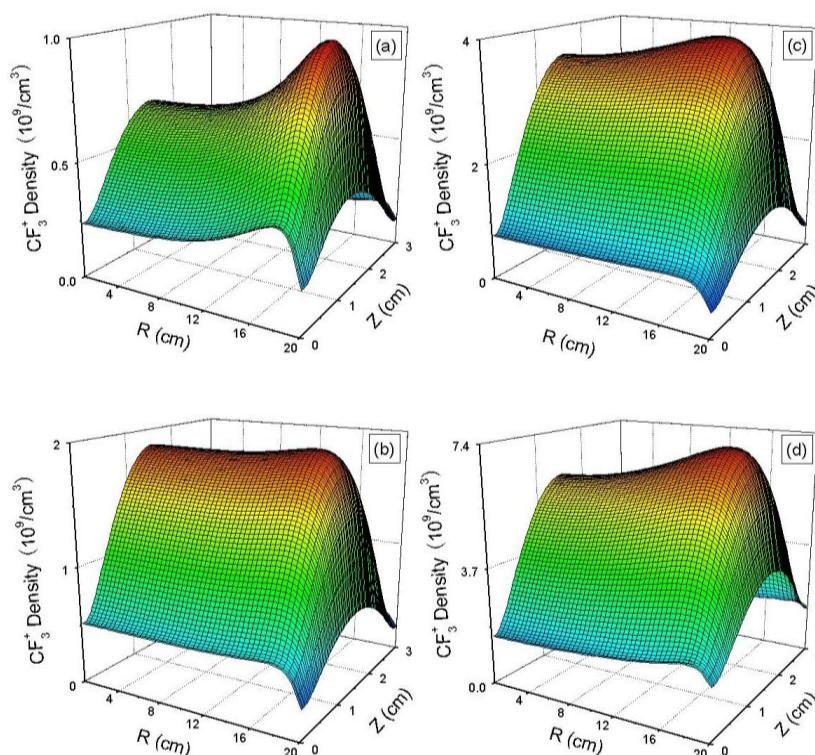


图 5.7 频率为 100 MHz 时, $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.9/0.1)$ 放电中不同相位差下的 CF_3^+ 密度分布:

(a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.25\pi$, (c) $\varphi = 0.45\pi$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 5.7 Distributions of CF_3^+ density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.25\pi$, (c) $\varphi = 0.45\pi$, (d) $\varphi = \pi$, for an $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.9/0.1)$ discharge sustained at 100 MHz

由于 F 原子会显著影响刻蚀过程, 因此图 5.6 给出了不同的放电频率和相位差下, 下极板表面 F 原子的轴向通量。通过比较, 可以发现当频率为 13.56 MHz 时, F 原子的通量幅值(当 $\varphi = \pi$ 时, 为 $3.8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)比 100 MHz 时(当 $\varphi = \pi$ 时, 为 $5.8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)低两个数量级, 这也说明采用甚高频放电可以显著地提高刻蚀率。此外, 在不同的频率下, 放电中心处的 F 原子通量都随着相位差的增加而单调增加。这是因为 F 原子主要是

通过电子碰撞分解和电子碰撞分解吸附过程产生的，因此它们并不直接受到电场的影响。随着相位差增加，更多的电子在上下极板间运动，并从叠加的电场中获得更多的能量，因此增强了电子碰撞过程。当两个电源同相位，即 $\varphi = 0$ 时，在不同频率下得到的 F 原子通量的峰值均偏离轴线。随着相位差的增加，放电中心处 F 原子通量的增加比径向边缘处更为显著，因此当频率为 13.56 MHz， $\varphi = \pi$ 时，F 原子通量的径向均匀性最好，如图 5.6(a)所示。然而当 $\varphi = \pi$ 时，随着频率增加为 60 MHz，F 原子通量的径向均匀性变差，即放电中心处的通量高于边缘处。当频率为 100 MHz， $\varphi = \pi$ 时，F 原子通量的非均匀性变得更为显著，但其径向分布却与 60 MHz 时不同。此时，F 原子通量的最大值出现在侧壁处，这同样是由于趋肤效应使得电子密度的最大值出现在径向边缘处，因而此处的电子碰撞分解过程更为显著。

5.4.2 不同气体组分

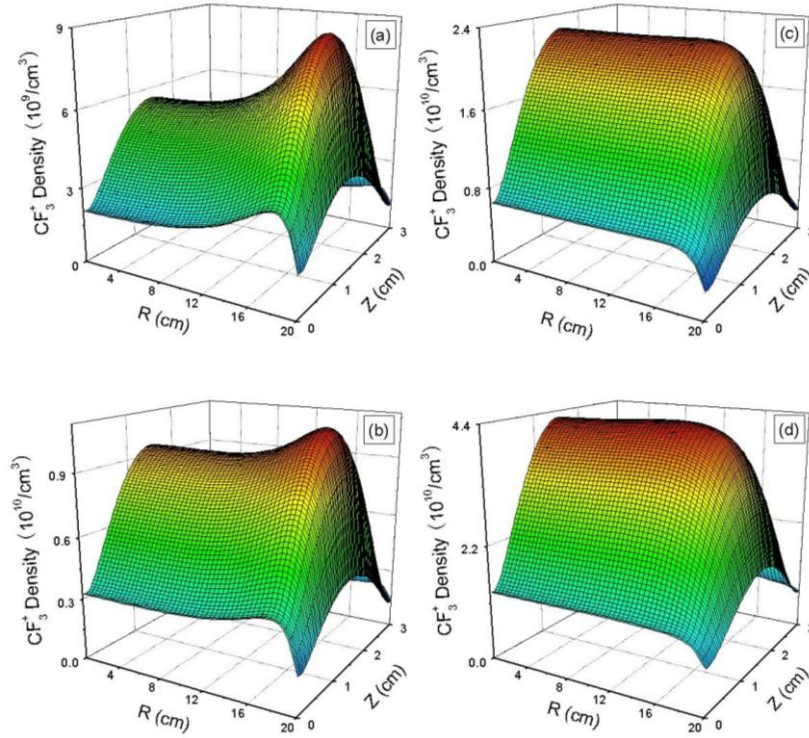


图 5.8 频率为 100 MHz 时，Ar/CF₄(0.5/0.5)放电中不同相位差下的 CF₃⁺密度分布：

(a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.15\pi$, (c) $\varphi = 0.33\pi$, (d) $\varphi = \pi$

Fig. 5.8 Distributions of CF₃⁺ density at different phase shift values: (a) $\varphi = 0$, (b) $\varphi = 0.15\pi$, (c) $\varphi = 0.33\pi$, (d) $\varphi = \pi$, for an Ar/CF₄(0.5/0.5) discharge sustained at 100 MHz

由于在甚高频放电中，不仅电磁效应和相位差效应会对等离子体产生影响，放电气体的电负性同样会影响等离子体特性。因此本小节重点研究了不同气体组分下（ CF_4 含量分别为 10%，50%和 90%），两个同频率电源之间的相位差对等离子体均匀性的影响，其中放电频率固定为 100 MHz。

图 5.7 给出了当混合气体比例为 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$ 时，不同相位差下 CF_3^+ 离子的密度分布。与图 5.5 中所给出的 Ar^+ 离子密度分布相比， CF_3^+ 离子的密度分布随相位差的变化趋势与 Ar^+ 相似，即当相位差为零时，密度的最大值出现在径向边缘处；随着两个同频率电源之间相位差的增加， CF_3^+ 离子的密度分布变得均匀；最后当 $\varphi=\pi$ 时，峰值又出现在径向边缘处。此外， CF_3^+ 离子密度的不均匀度随着相位差先减小后增加，当 $\varphi=0.25\pi$ 时，不均匀度到达最小值，仅为 0.018。由于在混合气体中， CF_4 的比例仅为 10%，因此在所考察的相位差条件下， CF_3^+ 离子的密度比 Ar^+ 低一个数量级。

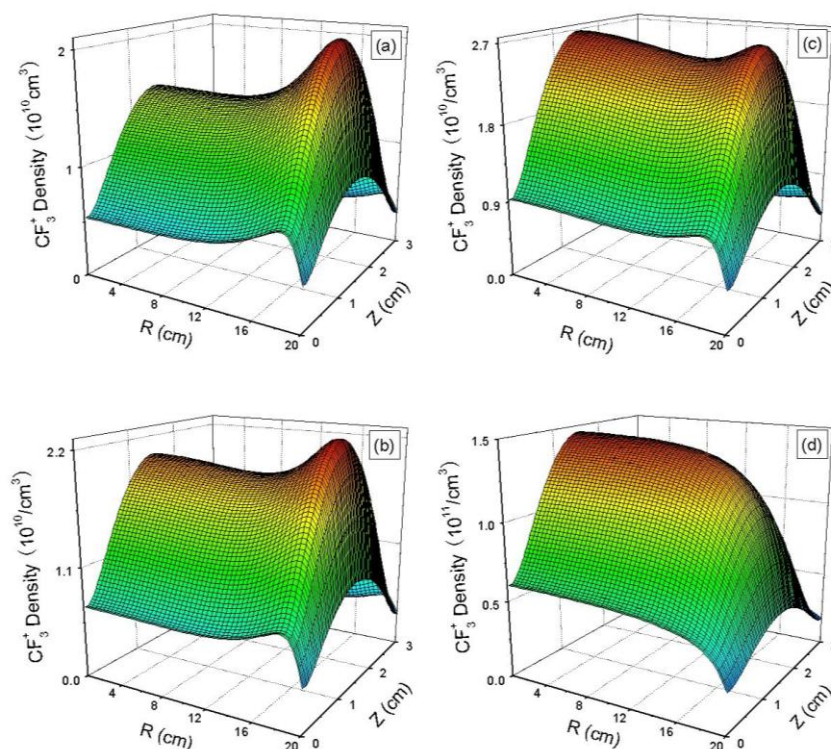


图 5.9 频率为 100 MHz 时， $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.1/0.9)$ 放电中不同相位差下的 CF_3^+ 密度分布：

(a) $\varphi=0$, (b) $\varphi=0.08\pi$, (c) $\varphi=0.12\pi$, (d) $\varphi=\pi$

Fig. 5.9 Distributions of CF_3^+ density at different phase shift values: (a) $\varphi=0$, (b) $\varphi=0.08\pi$, (c) $\varphi=0.12\pi$, (d) $\varphi=\pi$, for an $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.1/0.9)$ discharge sustained at 100 MHz

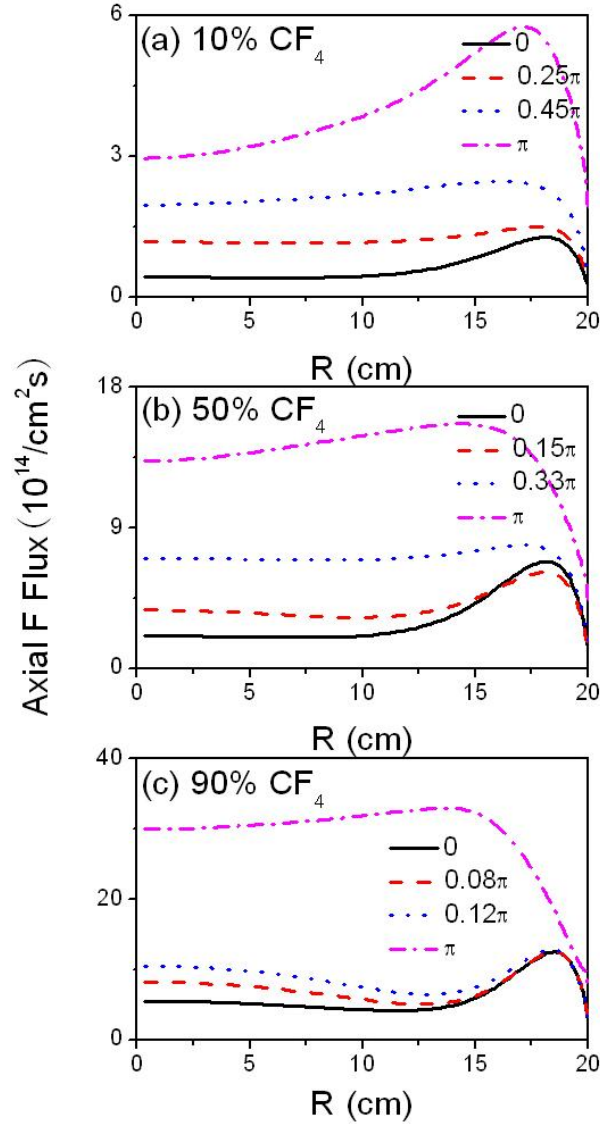


图 5.10 频率为 100 MHz 时, 在不同气体组分和不同相位差下, 下极板表面轴向 F 原子通量的径向分布: (a) Ar/CF₄=0.9/0.1, (b) Ar/CF₄=0.5/0.5, (c) Ar/CF₄=0.1/0.9

Fig. 5.10 Radial distributions of the axial F atom flux at the bottom electrode at different phase shift values for different CF₄ fractions: (a) Ar/CF₄=0.9/0.1, (b) Ar/CF₄=0.5/0.5, (c) Ar/CF₄=0.1/0.9, for a discharge sustained at 100 MHz

当混合气体比例为 Ar/CF₄=0.5/0.5 时, CF₃⁺离子的密度分布随相位差的变化趋势如图 5.8 所示。当两个电源同相位时, 即 $\varphi = 0$, 由于边缘效应, CF₃⁺离子的密度峰值偏离轴线, 与图 5.7(a)的分布相似, 但幅值为 $8.9 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$, 比 Ar/CF₄=0.9/0.1 时的密度

$1.0 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ 高出很多。随着相位差增加为 0.15π ，体等离子体区的密度显著增加，不均匀度约为 0.049，如图 5.8(b)所示。随着相位差继续增加，当 $\varphi = 0.33\pi$ 时，等离子体的径向均匀性最好，不均匀度仅为 0.003。当两个电源反相位时，如图 5.8(d)所示， CF_3^+ 离子的密度分布没有显著变化，但密度幅值是 $\varphi = 0.33\pi$ 时的两左右。此外，与 CF_4 含量为 10%时的结果相比($\alpha \approx 0.093$)， CF_4 含量为 50%时， CF_3^+ 离子的均匀性有显著提升($\alpha \approx 0.011$)，且密度明显增加（当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$ 时，密度幅值为 $7.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ ，当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.5/0.5$ 时，密度幅值为 $4.4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ）。这表明在此放电条件下，趋肤效应被 CF_4 的电负性抑制，因此对等离子体的影响不如低 CF_4 含量时那样明显。

当 CF_4 含量很高，为 90%时，图 5.9(a)中所示的 CF_3^+ 离子密度分布与图 5.8(a)相似，即峰值出现在偏离轴线的位置，但是幅值较高，约为 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.5/0.5$ 时的 2.5 倍左右。随着两个同频率电源之间的相位差增加为 0.08π 和 0.12π ， CF_3^+ 离子密度在放电中心处出现第二个峰值，且当 $\varphi = 0.12\pi$ 时，等离子体的径向均匀性较好，不均匀度仅为 $\alpha \approx 0.038$ ，如图 5.9(c)所示。当相位差增加为 π 时， CF_3^+ 离子密度从 $2.7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ($\varphi = 0.12\pi$) 增加为 $1.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ ($\varphi = \pi$)，且密度的最大值出现在放电中心处，这与低 CF_4 含量时的结果差异很大。这是由于此时等离子体中存在大量的负离子，尽管等离子体密度很高，但是趋肤效应受到 CF_4 电负性的抑制。

不同 CF_4 含量和不同相位差条件下，下极板表面 F 原子通量的径向分布如图 5.10 所示。如之前对图 5.6 的分析，随着相位差增加，电子碰撞分解过程增强，因此 F 原子通量有所增加。此外，随着 CF_4 含量的增加，F 原子通量显著提高。当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$ ， $\varphi = \pi$ 时，F 原子通量的最大值为 $6.0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ，约为 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.1/0.9$ 时的五分之一左右($3.0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)。当 $\varphi = \pi$ ， $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.1/0.9$ 时，由于趋肤效应受到电负性的限制，径向边缘处 F 原子通量的峰值变得不是非常明显，所以此时的径向均匀性优于低 CF_4 含量时的结果。

5.5 相位差效应对等离子体组分的影响

5.5.1 不同频率

图 5.11 给出了当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$ 时，在不同的频率和相位差下，放电中心处的带电粒子密度。其中 Ar^+ 是最主要的正离子，其密度比 CF_3^+ 高一个数量级。此外，与 Ar 放电不同的是，即使当 CF_4 含量很低，仅为 10%时，F 而非电子，是等离子体中最主要的携带负电荷的带电粒子。此外， CF_3^+ 和 CF_3^- 的含量很低。尽管由于放电条件不同，很难

比较密度的绝对值，但是模拟得到的等离子体各组分含量与 Georgieva 等人^[101]和 Donko 等人^[133]得到的结果相似。

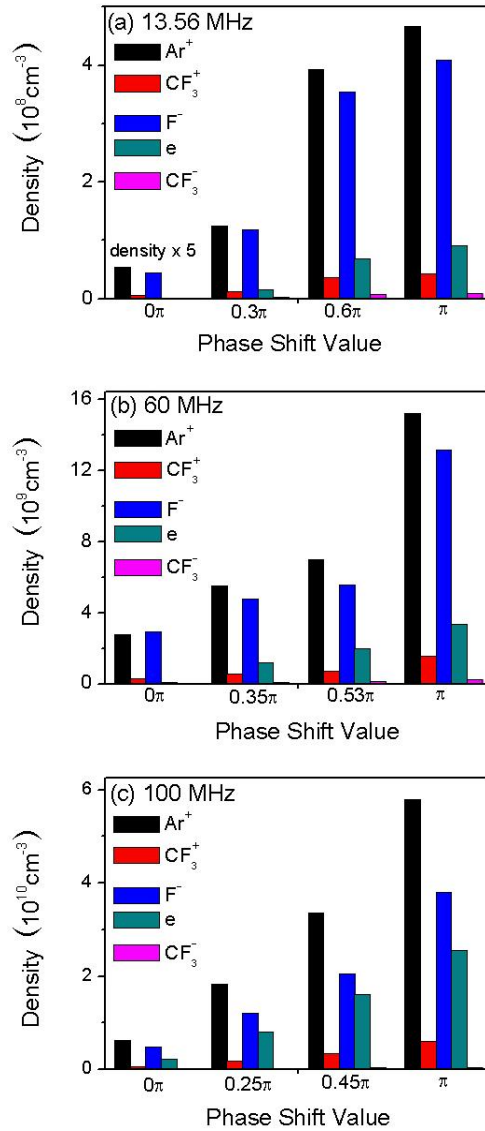


图 5.11 当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$ 时，在不同放电频率和不同相位差下，放电中心处的带电粒子密度：(a) 13.56 MHz，(b) 60 MHz，(c) 100 MHz

Fig. 5.11 Calculated densities of charged particles at the reactor center at different phase shift values for different frequencies: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz, for an $\text{Ar}/\text{CF}_4(0.9/0.1)$ discharge

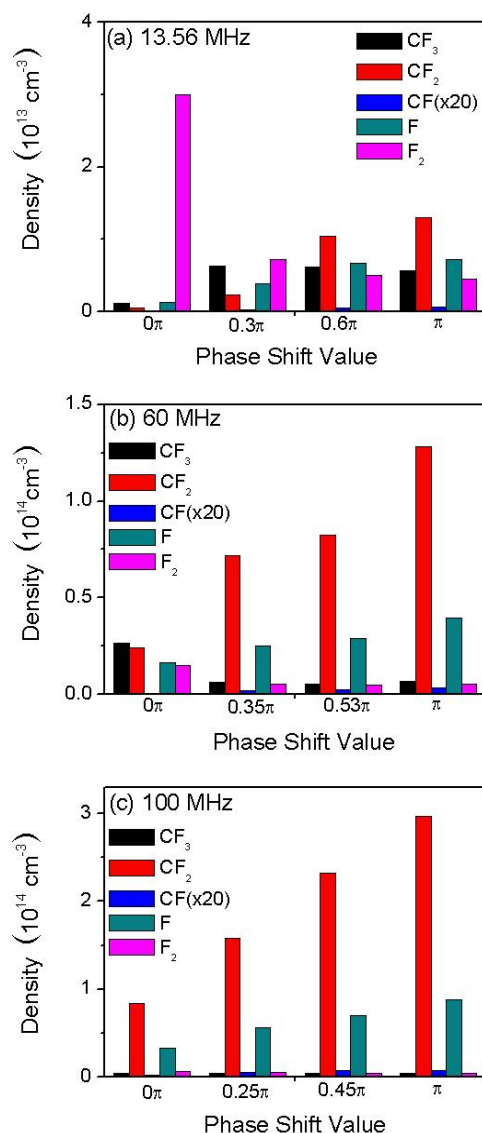


图 5.12 当 $Ar/CF_4=0.9/0.1$ 时, 在不同放电频率和不同相位差下, 放电中心处的中性粒子密度: (a) 13.56 MHz, (b) 60 MHz, (c) 100 MHz

Fig. 5.12 Calculated densities of neutral species at the reactor center at different phase shift values for different frequencies: (a)13.56 MHz, (b)60 MHz, (c)100 MHz, for an $Ar/CF_4(0.9/0.1)$ discharge

从图 5.11 可以观察到所有带电粒子的密度随着相位差和放电频率的增加而增加, 而负离子的密度之和与电子密度的比率则随着频率显著降低。例如当 $\varphi=\pi$ 时, 随着频率从 13.56 MHz 增加为 100 MHz, 该比率从 4.6 变为 1.5, 这个结果与 Segawa 等人^[117]在纯 CF_4 中观察到的结果相似。这是由于电子对于频率的依赖性比负离子强, 因此电子密

度随频率的增加更为明显。当频率为 13.56 MHz 时, 如图 5.11(a)所示, 这个比率随着相位差的增加单调减小。当频率为 60 MHz, 相位差小于 0.53π 时, 该比率随着相位差的增加而减小。当相位差从 0.53π 增加到 π 时, 该比率有所上升。当放电频率为 100 MHz 时, 该比率随相位差的变化趋势与 60 MHz 时的结果相似, 仅幅值较低。

不同放电条件下, 放电中心处的中性粒子密度如图 5.12 所示。由于 CF 在等离子体中的含量较低, 因此图示中将其密度放大 20 倍, 以便更清楚地观察其随相位差和频率的变化趋势。当放电频率为 13.56 MHz, $\varphi=0$ 时, F_2 为最主要的中性粒子, 其密度为 $3.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, 是 CF_3 和 F 密度的 25 倍, CF_2 密度的 60 倍。随着相位差的增加, 放电中心处 F_2 的密度显著下降, CF_2 的密度有所增加。当 $\varphi=\pi$ 时, CF_2 成为最主要的中性粒子, 如图 5.12(a)所示。当放电频率增加为 60 MHz, 相位差较大时($\varphi \geq 0.35\pi$), CF_2 是最主要的中性粒子, 其密度约为 F 密度的三倍左右。然而当 $\varphi=0$ 时, CF_2 的密度略低于 CF_3 。从图 5.12(b)中观察到, 随着相位差的增加, CF_3 的密度有所降低, 而 CF_2 和 F 的密度则有所增加。这是因为当相位差较大时, 更多的 CF_3 自由基发生分解反应, 产生 CF_2 和 F。当放电频率为 100 MHz, 在所考察的相位差条件下, CF_2 和 F 是最主要的两种粒子, 这说明在此放电条件下, 相位差效应对等离子体组分没有显著影响。

5.5.2 不同气体组分

为了进一步说明相位差效应对等离子体组分的影响, 图 5.13 给出了不同气体比率下, 放电中心处的带电粒子密度随相位差的变化趋势, 其中放电频率固定为 100 MHz。当混合气体中 CF_4 的含量从 10%增加为 50%时, CF_3^+ 的密度从 $6.0 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ 显著增加为 $4.3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ($\varphi=\pi$), 而 Ar^+ 的密度则略有降低。因此当 $Ar/CF_4=0.5/0.5$ 时, 等离子体中 CF_3^+ 的含量基本与 Ar^+ 相当。当 CF_4 含量增加为 90%时, 如图 5.13(c)所示, CF_3^+ 代替 Ar^+ 成为最主要的正离子, 这与 Georgieva 等人^[101]和 Efremov 等人^[134]得到的结果相似。在反相位的条件下, CF_3^+ 的密度为 $1.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, 是 Ar^+ 密度的四倍左右。此外, 负离子密度之和与电子密度的比率, 即等离子体的电负性随着 CF_4 的含量有所增加。当 $\varphi=\pi$, CF_4 含量为 10%时, 该比率为 1.5, 当 CF_4 含量增加为 90%时, 该比率为 2.6。另外, 在所考察的气体组分下, 该比率随着相位差的增加先下降后上升。

最后, 图 5.14 给出了不同气体组分及相位差下, 放电中心处各种中性粒子的密度。随着 CF_4 含量的增加, 所有中性粒子的密度均有所增加, 例如当 $\varphi=\pi$, $Ar/CF_4=0.9/0.1$ 时, CF_2 的密度为 $3.0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$; 而当 $Ar/CF_4=0.1/0.9$ 时, CF_2 的密度为 $1.0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 。这仍然是由于电子分解反应速率随着 CF_4 含量的增加而增加。此外, 在所考察的放电条件

下, CF_2 是等离子体中最主要的中性粒子。此外, 当 CF_4 含量较高时, 即 90%, CF 的密度有显著增加 (当 $\varphi = \pi$ 时, 为 10^{13} cm^{-3} 量级), 但仍比 CF_2 低两个数量级。

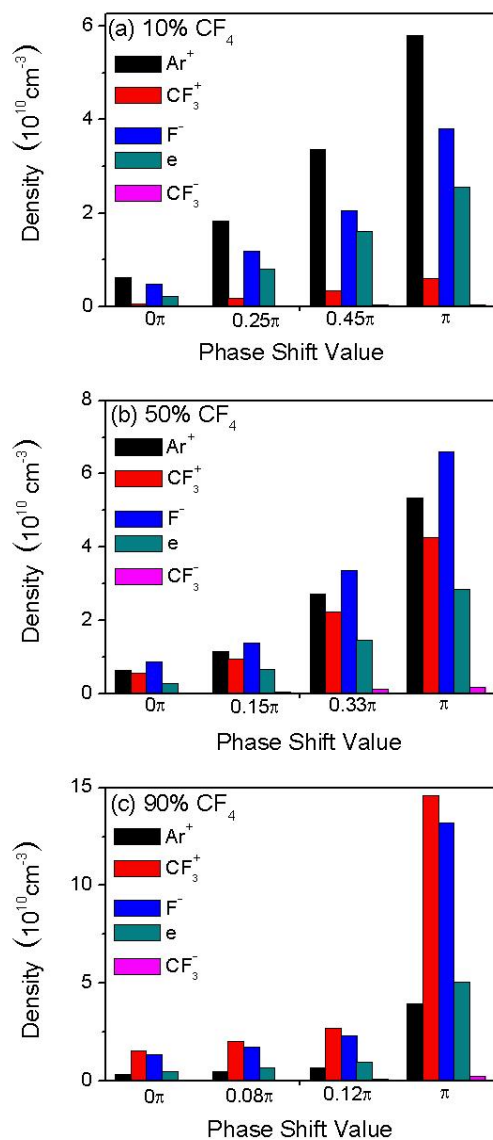


图 5.13 频率为 100 MHz 时, 在不同气体组分和不同相位差下, 放电中心处的带电粒子密度: (a) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$, (b) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.5/0.5$, (c) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.1/0.9$

Fig. 5.13 Calculated densities of charged particles at the reactor center at different phase shift values for different CF_4 fractions: (a) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$, (b) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.5/0.5$, (c) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.1/0.9$, for a discharge sustained at 100 MHz

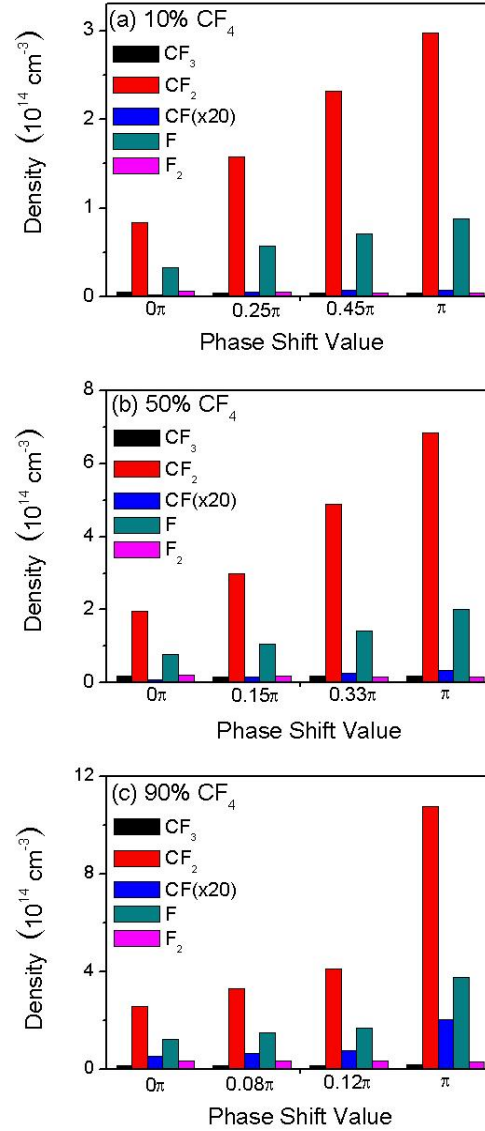


图 5.14 频率为 100 MHz 时, 在不同气体组分和不同相位差下, 放电中心处的中性粒子密度: (a) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$, (b) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.5/0.5$, (c) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.1/0.9$

Fig. 5.14 Calculated densities of neutral species at the reactor center at different phase shift values for different CF_4 fractions: (a) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$, (b) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.5/0.5$, (c) $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.1/0.9$, for a discharge sustained at 100 MHz

5.6 本章小结

本章采用第二章建立的二维流体力学模型, 并麦克斯韦方程组耦合, 系统研究了 Ar/CF_4 放电中, 两个同频率电源之间的相位差对等离子体特性的影响。首先比较了通过

静电模型和电磁模型计算得到的电子密度和电子温度的分布。当放电频率较低时, 由于电磁效应较弱, 通过两种模型计算得到的结果相似。当频率增加为 60 MHz 时, 通过电磁模型计算得到的电子密度和电子温度的分布与静电模型相似, 但幅值较高。这是因为在电磁模型中, 电子不仅可以从静电场中获得能量, 同时还可以被电磁场加速, 因此增强了电离过程。当放电频率为 100 MHz 时, 由于趋肤效应显著, 因此电磁模型得到的电子密度的最大值出现在径向边缘处, 且幅值约为静电模型的四倍左右。以上结果表明, 在模拟甚高频放电时, 需要将电磁效应考虑在内, 才能得到更准确的结果。

当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$ 时, 不同频率下, 两个同频率电源之间的相位差对等离子体均匀性的影响可以通过 Ar^+ 离子的密度分布来说明。当频率为 13.56 MHz, $\varphi=0$ 时, 由于边缘效应, Ar^+ 离子密度的峰值偏离轴线。随着相位差的增加, 更多的电子在上下极板间运动, 显著增强了放电中心处的电离过程。因此当 $\varphi=\pi$ 时, 等离子体的径向均匀性得到显著提高。当放电频率为 60 MHz 时, 随着相位差从 0 增加为 0.45π , Ar^+ 离子的密度分布从边缘高变得均匀。然而当 $\varphi=\pi$ 时, 由于驻波效应, 在放电中心处出现了一个平缓的最大值, 这与在 H_2 放电中观察到的结果有所不同。当频率为 100 MHz 时, 随着相位差的增加, Ar^+ 离子的密度分布从边缘高逐渐变得均匀($\varphi=0.25\pi$); 当 $\varphi=\pi$ 时, 由于趋肤效应, 密度的最大值又出现在径向边缘处。

由于 F 原子不直接受到电场的影响, 因此极板表面 F 原子通量的径向分布主要依赖于电子碰撞分解过程。当频率为 13.56 MHz, $\varphi=0$ 时, F 原子通量在径向边缘处有一个显著的峰值, 随着相位差增加为 π , 其径向分布变得均匀。当频率为 100 MHz, $\varphi=0.25\pi$ 时, F 原子通量的均匀性最好。随着相位差增加为 π , 其通量的最大值又出现在径向边缘处。

为了进一步研究当 CF_4 含量较高时的相位差效应, 固定放电频率为 100 MHz, 分别给出了当 CF_4 含量为 10%、50% 和 90% 时, CF_3^+ 离子的密度分布。在所考察的混合气体组分下, 当 $\varphi=0$ 时, CF_3^+ 离子密度的最大值始终出现在径向边缘处。当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.5/0.5$, $\varphi=0.33\pi$ 时, CF_3^+ 离子密度的均匀性最好。随着相位差增加为 π , 其空间分布没有变化, 仅幅值有所增加, 均匀性明显优于 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$ 时的结果。当 CF_4 含量为 90% 时, CF_3^+ 离子密度呈现出不同的分布。当 $\varphi=0.12\pi$ 时, CF_3^+ 离子密度在放电中心和径向边缘处出现两个最大值。当 $\varphi=\pi$ 时, 由于趋肤效应受到电负性的抑制, 密度的最大值出现在放电中心处。

最后, 本文研究了不同频率以及不同混合气体比率下, 两个同频率电源之间的相位差对等离子体组分的影响。当 CF_4 含量较低, 为 10% 时, Ar^+ 是最主要的正离子, 其密

度比 CF_3^+ 高一个数量级。F 取代电子，成为最主要的携带负电荷的粒子。此外，随着频率增加，总的负离子密度与电子密度的比率，即等离子体的电负性有所降低。当 CF_4 含量增加为 50% 时， CF_3^+ 密度显著增加，与 Ar^+ 密度相当。当 $\text{Ar}/\text{CF}_4=0.1/0.9$ 时， CF_3^+ 成为等离子体中最主要的正离子。同时，负离子密度之和与电子密度的比率随 CF_4 含量的增加而增加，即从 1.5($\text{Ar}/\text{CF}_4=0.9/0.1$, $\varphi=\pi$) 增加到 2.6($\text{Ar}/\text{CF}_4=0.1/0.9$, $\varphi=\pi$)。

6 双频 CF_4/O_2 等离子体中的电磁效应

6.1 引言

在等离子体刻蚀工艺中，人们通常采用碳氟气体，如 CF_4 ，对硅和多晶硅进行各向异性刻蚀。在实际的薄膜处理过程中，具有弱电负性的 O_2 也常被用作工作气体。此外， O_2 也是等离子体辅助沉积二氧化硅和氮氧化化合物的基本工作气体之一。因此系统地研究 CF_4/O_2 等离子体放电中的物理化学过程，对于优化等离子体刻蚀和沉积工艺，有着至关重要的作用。

在实验研究方面，Mogab 等人^[135]发现随着 CF_4/O_2 混合气体中 O_2 含量的增加，F 原子的密度先增加后减小。随后，d'Agostino 等人^[136]采用发射光谱，系统测量了 CO 、 CO_2 、F 和 O 等基团的相对密度随 CF_4/O_2 比例的变化关系。Kim 等人^[137]重点研究了在 CF_4/O_2 等离子体中反应性离子对于氧化铝薄膜刻蚀过程的影响，结果表明刻蚀率依赖于粒子的轰击能量。

在理论研究方面，Plumb 等人^[138]采用模拟的方法，系统考察了气相中各种自由基的反应。Dalvie 和 Jensen^[139]通过研究原子 F 的密度分布和刻蚀率，证实了 CF_4/O_2 放电过程中自由基复合反应的重要性。此外，Kimura 和 Noto^[140]采用了整体模型研究了在 ICP 放电中，不同气压下 F 原子密度随 O_2 含量的变化趋势，并与实验结果进行了对比。

在上述针对 CCP 的研究中，放电过程通常是由单频源驱动的。然而在单频放电中，无法对基片表面的离子通量和离子能量进行独立控制。因此，为了满足线宽的精细度，实现高选择性和低介质损伤的刻蚀过程，双频 CCP 放电获得了人们越来越广泛的关注。Booth 等人^[141]通过衰荡光谱，测量了在 2/27 MHz 双频 Ar/CF_4 和 $\text{Ar}/\text{CF}_4/\text{O}_2$ 放电中氟负离子的密度。测量结果表明：当在 27 MHz 单频放电中添加低频源时，F⁻离子的密度有所降低。最近，Song 和 Kushner^[142]采用二维模型，研究了双频脉冲 CCP 放电中的电子能量分布函数(Electron Energy Distribution Function, EEDF)。研究结果表明：通过改变脉冲重复频率和占空比，可以调节 EEDF，进而影响入射到基片表面的离子和自由基的通量，从而实现对刻蚀和沉积过程的调制。

近年来，为了提高等离子体密度，降低离子轰击能量，甚高频源被广泛应用于双频 CCP 放电中。Hebner 等人^[66]研究发现：当高频频率固定为 60 MHz 时，电子密度并不随低频功率而改变。随后，Barnat 等人^[69]揭示了在 13.56/60 MHz 双频放电中，鞘层电势降的径向不均匀性。Bear 等人^[51]采用模拟和实验手段，证实了采用混合甚高频源，可以

有效地调制等离子体的均匀性。Yang 和 Kushner^[57,58]采用全波麦克斯韦求解器，重点研究了双频 CCP 放电中，等离子体特性随放电参数的变化规律。

众多研究结果表明，在甚高频放电中，电磁效应会显著影响等离子体的径向均匀性。本文的第四章和第五章，重点研究了两个同频率电源之间的相位差对等离子体特性的影响。最近，Chabert 和 Braithwaite^[143]提出施加低频源，也可以在一定程度上抑制由电磁效应引起的径向不均匀性。为了研究双频放电中的电磁效应，以及射频源功率对等离子体均匀性的影响，本章采用 HPEM (Hybrid Plasma Equipment Model)模型，系统模拟了双频 CF₄/O₂ 放电中的等离子体特性，并与实验测量的刻蚀率进行了比较。

6.2 HPEM 模型

HPEM 模型是由 Kushner 等人合作研发的，即可用于模拟等离子体中的基本物理现象，也可用于辅助腔室设计^[107]。HPEM 的应用十分广泛，可用于对电子回旋共振^[144]、磁增强反应离子刻蚀^[145]、磁控管^[146]、容性耦合等离子体^[119]、感性耦合等离子体^[8]、螺旋波等离子体^[147]、脉冲直流放电^[148]、物理气相沉积^[149]等进行模拟。

表 6-1 HPEM 主要模块^[107]

Tab. 6.1 Major modules in the HPEM^[107]

		Inputs	Outputs
ASM	Analytic sheath module	$N\phi T(\vec{r}), \vec{B}_s(\vec{r}, \phi)$	$\Delta\Phi_b(t)$
MSM	Magnetostatic module	$\vec{j}_E(\vec{r}, \phi), \vec{M}_s(\vec{r}, \phi)$	$\vec{B}_s(\vec{r}, \phi)$
EMM	Electromagnetics module	$\vec{B}_s(\vec{r}, \phi), \sigma(\vec{r}, \phi), \vec{j}(\vec{r}, \phi), \vec{j}_E(\vec{r}, \phi)$	$\vec{E}\vec{B}(\vec{r}, \phi)$
EETM	Electron energy transport module	$N(\vec{r}), \vec{E}\vec{B}_s(\vec{r}, \phi), \vec{E}\vec{B}(\vec{r}, \phi)$	$f(\varepsilon, \vec{r}, \phi), kS_e(\vec{r}, \phi)$
FKPM	Fluid kinetics-poisson module	$\vec{E}\vec{B}(\vec{r}, \phi), \vec{B}_s(\vec{r}, \phi), kS_e(\vec{r}, \phi), \alpha_s(\vec{r}), \beta_s(\vec{r})$	$N\phi T(\vec{r}), \Phi\vec{E}_s(\vec{r}, \phi)$
SKM	Surface kinetics module	$f(\varepsilon, \vec{r}, \phi), \vec{\phi}(\vec{r})$	$\alpha(\vec{r}), \beta_{ij}(\vec{r})$
DTM	Dust transport module	$\vec{E}\vec{B}(\vec{r}, \phi), \vec{B}_s(\vec{r}, \phi), \Phi\vec{E}_s(\vec{r}, \phi), N\phi T(\vec{r})$	Dust particle positions and trajectories
RTMCM	Radiation transport Monte Carlo module	$N\phi T(\vec{r})kS_e(\vec{r}, \phi), kS(\vec{r}, \phi)$	$\vec{\phi}_p(v, \vec{r})$
PCMPM	Plasma chemistry Monte Carlo module	$N\phi T(\vec{r})kS_e(\vec{r}, \phi), kS(\vec{r}, \phi)$	$\vec{\phi}(\vec{r})$
RTCM	Real time control module	Sensor readings of plasma and circuit parameters	Changes in actuator settings
SM	Sputter module	$N\phi T(\vec{r})kS_e(\vec{r}, \phi), kS(\vec{r}, \phi)$	$\vec{\phi}(\vec{r}), \Delta H(\vec{r})$
IMCS	Ion Monte Carlo simulation	$N\phi T(\vec{r})kS_e(\vec{r}, \phi), kS(\vec{r}, \phi)$	$f(\varepsilon, \vec{r}, \phi)_{\text{ION}}$
CM	Circuit module	$\vec{j}(\vec{r}, \phi)$	Voltages on electrodes

HPEM 由电磁模块、电子能量输运模块、流体动力学模块等一系列不同的计算模块组成，用来模拟研究不同的物理过程。当放电条件或激发模式改变时，需要相应地调用不同的计算模块，以达到最佳模拟效果。此外，对于相同的物理过程，HPEM 还可以提供不同的算法进行模拟。例如在研究电磁波与等离子体相互作用时，既可以选择在频域内进行求解，也可以采用时域有限差分算法，这取决于哪种算法更适合当前的模拟条件。而其它模块的运行，如等离子体输运模块等，仅需要电磁场模块的输出结果，而不依赖于电磁场模块中采用的算法。

HPEM 的主要模块，以及相应的输入输出变量如表 6-1 所示。在实际的低温等离子体模拟中，所有的物理量都直接或间接地依赖于其它物理量。例如采用麦克斯韦方程组描述电磁波在等离子体中的传播过程时，需要用到电导率的空间分布。电导率是带电粒子密度和碰撞频率的函数，而电子密度和碰撞频率又依赖于电子能量分布函数。电子能量分布函数也不是独立变化的，它依赖于电场、等离子体密度以及摩尔分数等。

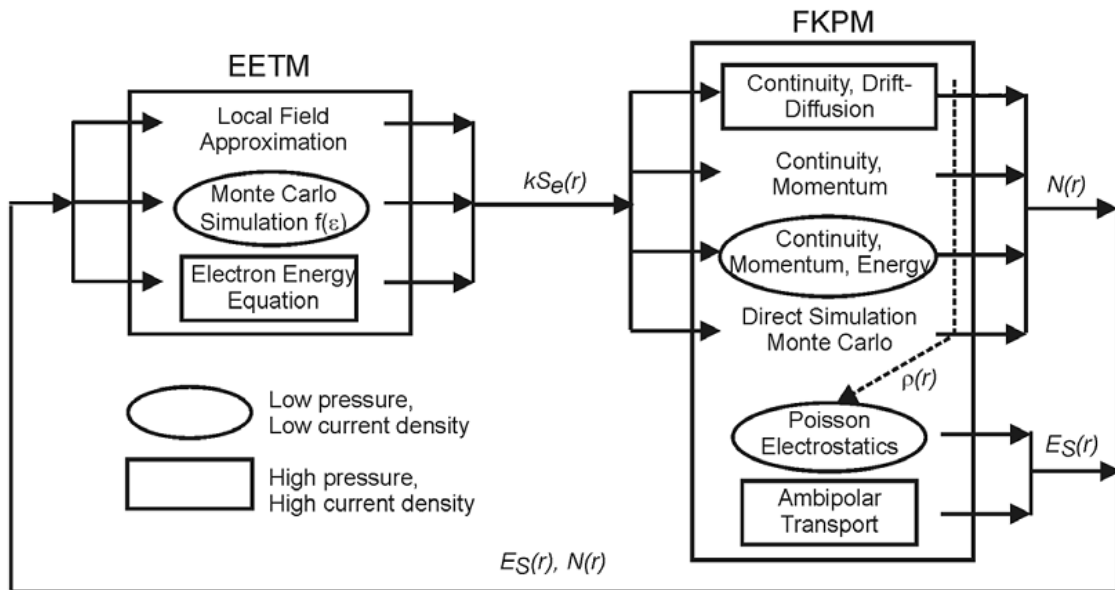


图 6.1 HPEM 流程图^[107]

Fig. 6.1 Paths through the EETM and FKPM for a case operating at low pressure with low current density; and a case operation at high pressure with high current density^[107]

当使用 HPEM 模拟 ICP 放电时，需要采用电磁模块(electromagnetic module, EMM)求解麦克斯韦方程组。在 EMM 模块中，需要输入线圈电流、材料属性以及等离子体电导率等。EMM 输出的电磁场的空间分布，则作为输入参量被传输到其它模块中。例如当采用电子蒙特卡洛模块(electron Monte Carlo simulation, EMCS)求解电子能量分布函

数时，需要用到电磁场的空间分布。同样的，在流体模块(fluid kinetics-Poisson module, FKPM)中需要输入电子碰撞系数、源项以及电磁场的分布，来求解带电粒子和中性粒子的密度、动量和温度等。由于静电场与带电粒子密度之间的耦合非常紧密，因此在流体模块中需要同时求解泊松方程。由于模拟中需要考虑甚高频放电中的电磁效应，因此在 FKPM 中采用全波麦克斯韦求解器，求解电磁场和静电场。

以最简单的直流放电为例，在模拟中仅需要调用电子能量输运模块(electron energy transport module, EETM)求解电子碰撞源项，以及 FKPM 求解等离子体密度和静电场，具体调用流程如图 6.1 所示。如果模拟高压高电流密度的放电过程，在 EETM 中需要求解电子能量方程，并将计算得到的源项输入 FKPM，通过连续性方程和漂移扩散近似进一步求解等离子体密度。对于低气压低电流密度的放电过程，则需要采用 EMCS 来描述电子的输运过程；在 FKPM 中，则需要求解完整的动量方程来代替漂移扩散近似。

在使用 HPEM 时，并非所有的模块都是必须的。例如模拟 CCP 放电时，由于不存在感性电场，因此不必调用 EMM。除了上述三个基本模块之外，HPEM 中还耦合了其它模块，用于满足特殊的模拟需求。每次迭代结束，程序会自动记录一个周期内电场和源项等参量的时空分布。通过这些数据，等离子体化学蒙特卡洛模块(plasma chemistry Monte Carlo module, PCMSM)可以求解入射到基片表面的离子和自由基的能量分布和角度分布。而用来描述表面反应的表面化学模块(surface chemistry module, SCM)，不仅可以为 HPEM 提供边界条件，同时还可以用来计算材料表面的反应速率，如刻蚀率等。

本文作者在安特卫普大学学习期间，有幸得到 M. Kushner 博士的授权，使用 HPEM 模型针对 CF_4/O_2 放电进行一系列的模拟研究工作。

6.3 CF_4/O_2 等离子体化学反应模型

在 CF_4/O_2 等离子体化学反应模型中，包含了多种中性粒子，如 CF_3 , CF_2 , CF , C , F , F_2 , O , CO_2 , CO , COF , COF_2 , FO , O^* , F^* 。此外，还包含 9 种正离子和 3 种负离子，即 CF_3^+ , CF_2^+ , CF^+ , F^+ , F_2^+ , O_2^+ , O^+ , CO_2^+ , CO^+ , CF_3^- , F^- , O^- ，以及电子。其中，激发态 O^* 包含了 4s 和 4p 的所有能态。由于电子与 O_2 的振动反应会影响电子的能量损失，化学反应模型中包含了 O_2 的振动激发反应。但 O_2 激发态的密度分布并非本文研究的重点，所以并未将其作为单独的粒子进行计算^[150-152]。因此在化学模型中， O_2 包含了基态分子，阈值能量为 8.4 eV、10.0 eV 的激发态，以及相应的振动激发态。

在 CF_4/O_2 等离子体中，电子参与的碰撞反应如表 6-2 所示。其中包括电子与不同的分子、自由基、激发态原子以及离子的碰撞反应，如激发反应、电离反应、分解反应、

分解吸附反应和复合反应等。对于大部分电子参与的碰撞反应，反应系数均通过相应的碰撞截面计算得到。此外，模型中包含的重粒子反应，以及相应的反应系数，如表 6-3 所示。

表 6-2 CF_4/O_2 等离子体中的电子碰撞反应Tab. 6.2 Electron impact reactions for the CF_4/O_2 plasma included in the model

反应	系数(cm^3s^{-1})	参考文献
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{F}^- + \text{CF}_3$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^- + \text{F}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3 + \text{F} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_2 + 2\text{F} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF} + \text{F} + \text{F}_2 + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{F}^- + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{F} + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{F}^+ + 3\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_2^+ + 2\text{F} + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}^+ + \text{F} + \text{F}_2 + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_4 \rightarrow \text{F}^+ + \text{CF}_3 + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{F}^- + \text{CF}_2$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{F} + \text{CF}_2 + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_3^+ + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_2^+ + \text{F} + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}^+ + 2\text{F} + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{F}^+ + \text{CF}_2 + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_2 \rightarrow \text{F}^- + \text{CF}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF} + \text{F} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF}_2^+ + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF}^+ + \text{F} + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF}_2 \rightarrow \text{F}^+ + \text{CF} + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	129
$\text{e} + \text{CF} \rightarrow \text{C} + \text{F} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	153
$\text{e} + \text{CF} \rightarrow \text{CF}^+ + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	153
$\text{e} + \text{F}_2 \rightarrow \text{F}_2^+ + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	130
$\text{e} + \text{F}_2 \rightarrow 2\text{F} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	130

表 6-2 续
 Tab. 6.2 Cont

反应	系数(cm^3s^{-1})	参考文献
$\text{e} + \text{F}_2 \rightarrow \text{F}^- + \text{F}$	Cross-section ¹⁾	130
$\text{e} + \text{F} \rightarrow \text{F}^* + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	132
$\text{e} + \text{F} \rightarrow \text{F}^+ + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	132
$\text{e} + \text{F}^* \rightarrow \text{F} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	132
$\text{e} + \text{F}^* \rightarrow \text{F}^+ + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	132
$\text{e} + \text{CF}_3^+ \rightarrow \text{CF}_2 + \text{F}$	Cross-section ¹⁾	132
$\text{e} + \text{CF}_2^+ \rightarrow \text{CF} + \text{F}$	Cross-section ¹⁾	132
$\text{e} + \text{F}_2^+ \rightarrow 2\text{F}$	Cross-section ¹⁾	132
$\text{e} + \text{F}^+ \rightarrow \text{F}$	Cross-section ¹⁾	132
$\text{e} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^+ + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	154
$\text{e} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^* + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	154
$\text{e} + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{O} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	154
$\text{e} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}^* + \text{O} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	154
$\text{e} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}^- + \text{O}$	Cross-section ¹⁾	154
$\text{e} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}^+ + \text{O} + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	154
$\text{e} + \text{O}_2^+ \rightarrow 2\text{O}$	$1.2 \times 10^{-8} T_e^{-0.7}$	155
$\text{e} + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O}^* + \text{O}$	$8.88 \times 10^{-9} T_e^{-0.7}$	155
$\text{e} + \text{O}^- \rightarrow \text{O} + 2\text{e}$	$1.95 \times 10^{-12} T_e^{-0.5} \exp[-3.4/T_e]$	155
$\text{e} + \text{O} \rightarrow \text{O}^+ + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	156
$\text{e} + \text{O} \rightarrow \text{O}^* + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	156
$\text{e} + \text{O}^* \rightarrow \text{O}^+ + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	156
$\text{e} + \text{O}^* \rightarrow \text{O} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	156
$\text{e} + \text{CO} \rightarrow \text{C} + \text{O} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	157
$\text{e} + \text{CO} \rightarrow \text{CO}^+ + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	157
$\text{e} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CO} + \text{O}^-$	Cross-section ¹⁾	158
$\text{e} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CO}_2^+ + 2\text{e}$	Cross-section ¹⁾	158
$\text{e} + \text{CO}_2^+ \rightarrow \text{CO} + \text{O}$	Cross-section ¹⁾	158
$\text{e} + \text{COF}_2 \rightarrow \text{COF} + \text{F} + \text{e}$	Cross-section ¹⁾	129

注1) 需根据碰撞截面用 Maxwell 分布估算

表 6-3 CF_4/O_2 等离子体中重粒子之间的碰撞反应Tab. 6.3 Heavy particle reactions for the CF_4/O_2 plasma included in the model

反应	系数(cm^3s^{-1})	参考文献
$\text{F}^- + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_4 + \text{e}$	4.0×10^{-10}	155
$\text{F}^- + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF}_3 + \text{e}$	3.0×10^{-10}	155
$\text{F}^- + \text{CF} \rightarrow \text{CF}_2 + \text{e}$	2.0×10^{-10}	155
$\text{F}^- + \text{C} \rightarrow \text{CF} + \text{e}$	1.0×10^{-10}	155
$\text{F}^- + \text{F} \rightarrow \text{F}_2 + \text{e}$	1.0×10^{-10}	155
$\text{F}^- + \text{CF}_3^+ \rightarrow \text{CF}_2 + \text{F}_2$	8.7×10^{-8}	155
$\text{F}^- + \text{CF}_3^+ \rightarrow \text{CF}_2 + 2\text{F}$	3.0×10^{-7}	155
$\text{F}^- + \text{CF}_3^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{F}$	8.7×10^{-7}	155
$\text{F}^- + \text{CF}_2^+ \rightarrow \text{CF} + \text{F}_2$	9.1×10^{-8}	155
$\text{F}^- + \text{CF}_2^+ \rightarrow \text{CF}_2 + \text{F}$	9.1×10^{-8}	155
$\text{F}^- + \text{CF}^+ \rightarrow \text{CF} + \text{F}$	9.8×10^{-8}	155
$\text{F}^- + \text{CF}^+ \rightarrow \text{C} + 2\text{F}$	4.0×10^{-7}	155
$\text{F}^- + \text{F}_2^+ \rightarrow \text{F}_2 + \text{F}$	9.4×10^{-8}	155
$\text{F}^- + \text{F}^+ \rightarrow 2\text{F}$	3.1×10^{-7}	155
$\text{CF}_3^- + \text{CF}_3^+ \rightarrow 2\text{CF}_3$	1.5×10^{-7}	155
$\text{CF}_3^- + \text{CF}_2^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{CF}_2$	2.0×10^{-7}	155
$\text{CF}_3^- + \text{CF}^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{CF}$	2.0×10^{-7}	155
$\text{CF}_3^- + \text{F}^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{F}$	2.5×10^{-7}	155
$\text{CF}_3^- + \text{F}_2^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{F}_2$	2.0×10^{-7}	155
$\text{CF}_2^+ + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{CF}_3$	4.0×10^{-10}	155
$\text{CF}_2^+ + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{CF}_2$	1.48×10^{-9}	155
$\text{CF}_2^+ + \text{CF} \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{C}$	2.06×10^{-9}	155
$\text{CF}_2^+ + \text{C} \rightarrow \text{CF}^+ + \text{CF}$	1.04×10^{-9}	155
$\text{CF}^+ + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{CF}_2$	1.8×10^{-10}	155
$\text{CF}^+ + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{CF}$	1.71×10^{-9}	155
$\text{CF}^+ + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF}_2^+ + \text{CF}$	1.0×10^{-9}	155
$\text{F}^+ + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{F}_2$	1.0×10^{-9}	155
$\text{F}^+ + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_2^+ + \text{F}_2$	2.9×10^{-9}	155
$\text{F}^+ + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF}^+ + \text{F}_2$	2.28×10^{-9}	155
$\text{F}^+ + \text{F}_2 \rightarrow \text{F}_2^+ + \text{F}$	7.94×10^{-10}	155

表 6-3 续
 Tab. 6.3 Cont

反应	系数(cm^3s^{-1})	参考文献
$\text{F}_2^+ + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{F} + \text{F}_2$	1.0×10^{-10}	155
$\text{F}_2^+ + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_3^+ + 2\text{F}$	1.6×10^{-9}	155
$\text{F}_2^+ + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF}_2^+ + \text{F}_2$	1.0×10^{-9}	155
$\text{F}_2^+ + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{F}$	1.79×10^{-9}	155
$\text{F}_2^+ + \text{CF} \rightarrow \text{CF}_2^+ + \text{F}$	2.18×10^{-9}	155
$\text{F}_2^+ + \text{C} \rightarrow \text{CF}^+ + \text{F}$	1.04×10^{-9}	155
$\text{CF}_3^- + \text{F} \rightarrow \text{CF}_3 + \text{F}^-$	5.0×10^{-8}	155
$\text{O}^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^+ + \text{O}$	2.0×10^{-11}	151
$\text{O}^+ + \text{O}^- \rightarrow 2\text{O}$	$2.7 \times 10^{-7} [T / 298]^{-0.5}$	151
$\text{O}_2^+ + \text{O}^- \rightarrow \text{O} + \text{O}_2$	$2.0 \times 10^{-7} [T / 298]^{-0.5}$	151
$\text{O}_2^+ + \text{O}^- \rightarrow 3\text{O}$	1.0×10^{-7}	151
$\text{O}^- + \text{O} \rightarrow \text{O}_2 + \text{e}$	2.0×10^{-10}	151
$\text{O}^* + \text{O} \rightarrow 2\text{O}$	8.0×10^{-12}	151
$\text{O}^* + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O}_2$	$2.56 \times 10^{-11} \exp[67.0 / T]$	151
$\text{O}^* + \text{CF}_4 \rightarrow \text{O} + \text{CF}_4$	1.8×10^{-13}	155
$\text{O}^* + \text{CF}_3 \rightarrow \text{COF}_2 + \text{F}$	3.1×10^{-11}	155
$\text{O}^* + \text{CF}_2 \rightarrow \text{COF} + \text{F}$	1.4×10^{-11}	155
$\text{O}^* + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CO} + 2\text{F}$	4.0×10^{-12}	155
$\text{O}^* + \text{CF} \rightarrow \text{CO} + \text{F}$	2.0×10^{-11}	155
$\text{O}^* + \text{COF}_2 \rightarrow \text{O} + \text{COF}_2$	5.3×10^{-11}	155
$\text{O}^* + \text{COF}_2 \rightarrow \text{F}_2 + \text{CO}_2$	2.1×10^{-11}	155
$\text{O}^* + \text{COF} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{F}$	9.3×10^{-11}	155
$\text{O}^* + \text{FO} \rightarrow \text{O}_2 + \text{F}$	5.0×10^{-11}	155
$\text{O} + \text{FO} \rightarrow \text{O}_2 + \text{F}$	2.7×10^{-11}	155
$\text{C} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CO} + \text{O}$	1.6×10^{-11}	155
$\text{COF} + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF}_3 + \text{CO}$	3.0×10^{-13}	155
$\text{COF} + \text{CF}_2 \rightarrow \text{COF}_2 + \text{CF}$	3.0×10^{-13}	155
$\text{COF} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_4 + \text{CO}$	1.0×10^{-11}	155
$\text{COF} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{COF}_2 + \text{CF}_2$	1.0×10^{-11}	155

表 6-3 续
Tab. 6.3 Cont

反应	系数(cm^3s^{-1})	参考文献
$\text{COF} + \text{COF} \rightarrow \text{COF}_2 + \text{CO}$	1.0×10^{-11}	155
$\text{O} + \text{CF} \rightarrow \text{CO} + \text{F}$	6.6×10^{-11}	155
$\text{O} + \text{CF}_2 \rightarrow \text{COF} + \text{F}$	3.1×10^{-11}	155
$\text{O} + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CO} + 2\text{F}$	4.0×10^{-12}	155
$\text{O} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{COF}_2 + \text{F}$	3.3×10^{-11}	155
$\text{O} + \text{COF} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{F}$	9.3×10^{-11}	155
$\text{O}_2 + \text{CF} \rightarrow \text{COF} + \text{O}$	3.3×10^{-11}	155
$\text{CO}^+ + \text{O} \rightarrow \text{O}^+ + \text{CO}$	1.4×10^{-10}	155
$\text{CO}^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^+ + \text{CO}$	1.2×10^{-10}	155
$\text{CO}^+ + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{COF}$	7.0×10^{-10}	155
$\text{CO}^+ + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_2^+ + \text{COF}$	7.0×10^{-10}	155
$\text{CO}^+ + \text{CF}_2 \rightarrow \text{CF}^+ + \text{COF}$	7.0×10^{-10}	155
$\text{F}^+ + \text{O} \rightarrow \text{O}^+ + \text{F}$	1.0×10^{-10}	155
$\text{F}^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^+ + \text{F}$	7.14×10^{-10}	155
$\text{F}^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}^+ + \text{FO}$	5.04×10^{-11}	155
$\text{O}^+ + \text{CF}_4 \rightarrow \text{CF}_3^+ + \text{FO}$	1.4×10^{-9}	155
$\text{F}^- + \text{O} \rightarrow \text{F} + \text{O} + \text{e}$	1.0×10^{-10}	155
$\text{CF}_3^- + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{O}_2$	2.0×10^{-7}	155
$\text{CF}_3^- + \text{O}^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{O}$	2.5×10^{-7}	155
$\text{CF}_3^- + \text{CO}^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{CO}$	2.0×10^{-7}	155
$\text{CF}_3^- + \text{CO}_2^+ \rightarrow \text{CF}_3 + \text{CO}_2$	2.0×10^{-7}	155 ¹⁾
$\text{F}^- + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{F} + \text{O}_2$	3.0×10^{-7}	155
$\text{F}^- + \text{CO}^+ \rightarrow \text{F} + \text{CO}$	3.0×10^{-7}	155
$\text{F}^- + \text{CO}_2^+ \rightarrow \text{F} + \text{CO}_2$	3.0×10^{-7}	155 ¹⁾
$\text{F}^- + \text{O}^+ \rightarrow \text{F} + \text{O}$	3.0×10^{-7}	155
$\text{O}^- + \text{CF}_3^+ \rightarrow \text{O} + \text{CF}_3$	2.0×10^{-7}	155
$\text{O}^- + \text{CF}_2^+ \rightarrow \text{O} + \text{CF}_2$	2.0×10^{-7}	155
$\text{O}^- + \text{CF}^+ \rightarrow \text{O} + \text{CF}$	2.0×10^{-7}	155
$\text{O}^- + \text{F}^+ \rightarrow \text{O} + \text{F}$	2.0×10^{-7}	155
$\text{O}^- + \text{F}_2^+ \rightarrow \text{O} + \text{F}_2$	1.5×10^{-7}	155

表 6-3 续
Tab. 6.3 Cont

反应	系数(cm^3s^{-1})	参考文献
$\text{O}^- + \text{CO}^+ \rightarrow \text{O} + \text{CO}$	2.0×10^{-7}	155
$\text{O}^- + \text{CO}_2^+ \rightarrow \text{O} + \text{CO}_2$	2.0×10^{-7}	155 ¹⁾

注1) 根据 CO^+ 的反应系数估算得到

6.4 实验装置及诊断系统

为了系统地研究双频 CCP 放电中的电磁效应，高低频功率对等离子体均匀性的影响，并与模拟结果互相验证，我与比利时 IMEC(Interuniversity Microelectronics Centre) 研究中心合作，从实验上研究了不同放电条件下，晶片表面刻蚀率的径向分布。



图 6.2 2300 Exelan Flex 刻蚀机^[159]

Fig. 6.2 2300 Exelan Flex Etcher^[159]

IMEC 成立于 1984 年,总部设在比利时鲁汶,是世界上最大的微电子独立研究中心,其研究方向主要集中在 CMOS 缩放、无线网络通信、微电子技术在生命科学中的应用、图像传感器及视觉系统、传感器系统在工业中的应用,以及信息通讯系统技术等。IMEC 致力于集成信息通讯系统设计,硅加工工艺,硅制程技术和元件整合,纳米技术,微系统、元件及封装,太阳能电池,以及微电子领域的高级培训。本章中的实验部分是由 IMEC 研究中心的 Peter De Schepper 完成的。Peter 自 2008 年 9 月起在 IMEC 担任工程师一职,并于 2010 年 9 月起攻读博士学位。

在实验诊断中,采用的是 LAM 公司生产的型号为 2300 Exelan Flex 的刻蚀机,如图 6.2 所示。刻蚀机中的 CCP 反应腔室具有柱对称结构,并被用于对 300 mm 的芯片进行刻蚀。在实验中,反应气体通过位于上极板的淋浴头入口进入反应腔室,被刻蚀的晶片置于下极板上方。上极板接地,下极板接单频或双频源。此外,下极板被一圈硅介质包围,由于其材料属性与晶片相似,因此可以减弱边缘效应对等离子体均匀性的影响。在硅介质的外围有一圈石英环,该石英环介电常数较低,因此可以减弱侧壁附近的电场,获得较好的均匀性。

实验中采用的晶片是单晶硅材质,并被一层厚度为 70-150 nm 的致密非晶碳层覆盖。通过采用 KLA Tencor Spectra CD 椭偏仪测量实验前后非晶碳层的厚度,来计算刻蚀速率。

实验中,放电气压固定为 50 mTorr, CF_4 流速为 90 sccm, O_2 流速为 10 sccm。低频源频率为 2 MHz,高频源频率分别为 27 MHz 和 60 MHz,射频源功率为 300 W-1000 W。

6.5 结果与讨论

模拟中采用的腔室结构与实验中一致,如图 6.3 所示。

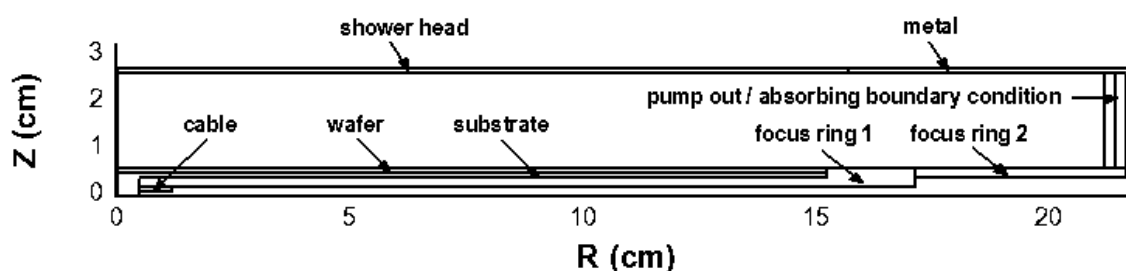


图 6.3 腔室结构示意图

Fig. 6.3 Schematic picture of the reactor configuration

为了详细地说明电磁效应对 CF_4/O_2 等离子体特性的影响, 本节中比较了在 27 MHz 和 60 MHz 单频放电中, 通过静电模型和电磁模型计算得到的电子密度的分布, 如图 6.5 和 6.6 所示。

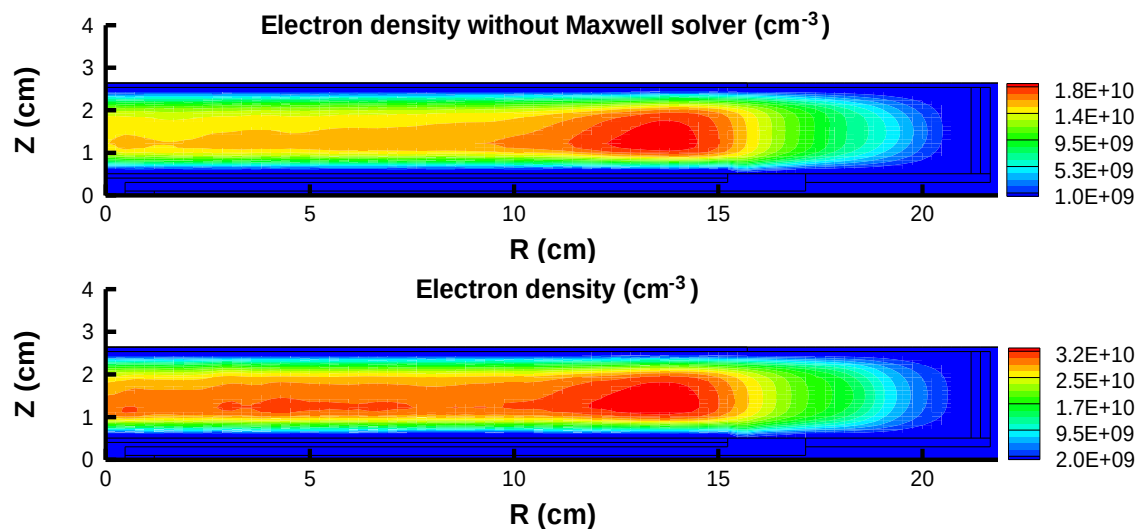


图 6.5 27 MHz 时, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的电子密度分布
Fig. 6.5 Comparison between the spatial distributions of electron density in the electrostatic model and the electromagnetic model, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 27 MHz

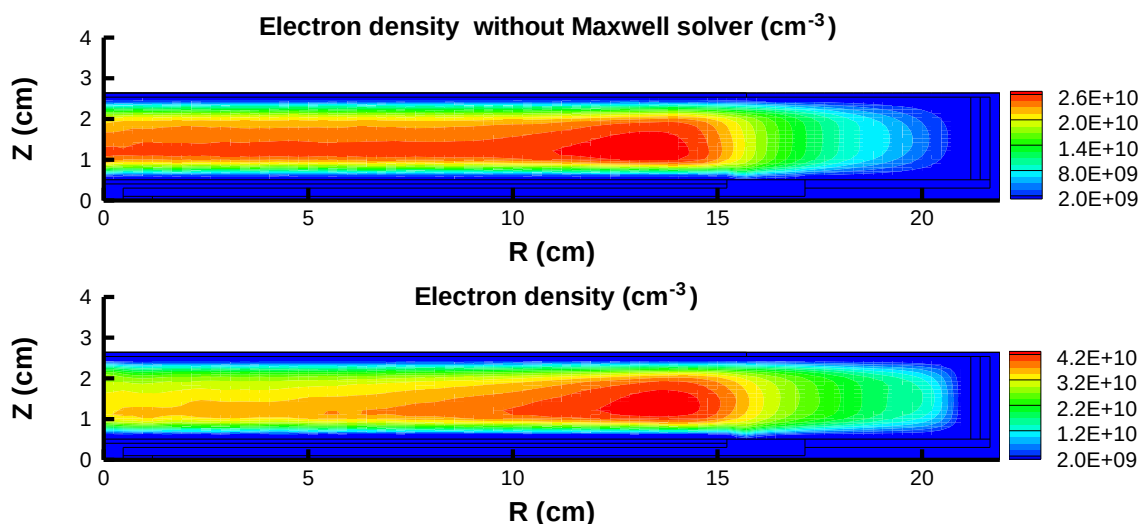


图 6.6 60 MHz 时, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的电子密度分布
Fig. 6.6 Comparison between the spatial distributions of electron density in the electrostatic model and the electromagnetic model, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 60 MHz

通过图 6.5 和图 6.6 可以观察到, 无论当放电频率为 27 MHz 还是 60 MHz 时, 电磁效应均对电子密度的空间分布影响显著。当放电频率为 27 MHz 时, 通过静电模型计算得到的电子密度的最大值出现在边缘处。而当考虑电磁效应的影响时, 电子密度的空间均匀性略有提升, 且峰值从 $1.8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 增加为 $3.2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 。当放电频率增加为 60 MHz 时, 电磁效应同样使得电子密度的最大值从 $2.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 增加为 $4.2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, 且径向分布变得不均匀。需要注意的是, 当频率为 60 MHz 时, 由于 CF_4/O_2 等离子体的电负性, 电子密度的最大值出现在边缘处, 这与在纯 Ar 放电中观察到的现象是不一样的。

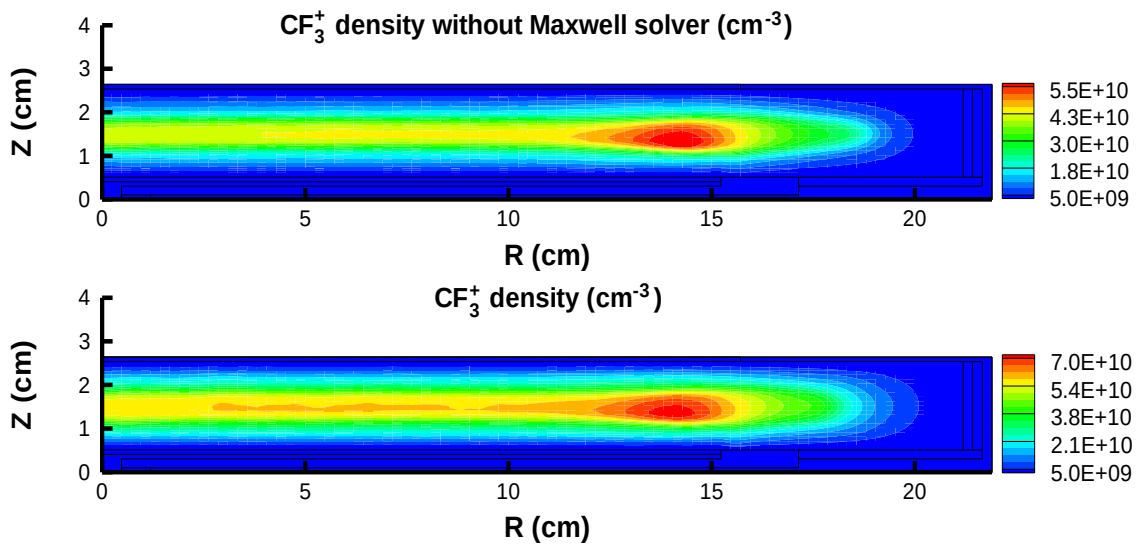


图 6.7 27 MHz 时, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的 CF_3^+ 密度分布
Fig. 6.7 Comparison between the spatial distributions of CF_3^+ density in the electrostatic model and the electromagnetic model, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 27 MHz

图 6.7 和 6.8 分别给出了放电频率为 27 MHz 和 60 MHz 时, 通过静电模型和电磁模型计算得到的 CF_3^+ 离子的密度分布。由于 CF_3^+ 主要是通过 CF_4 与电子的碰撞电离过程产生的, 因此 CF_3^+ 离子的密度分布基本是由电离源项决定的。由于边缘处电子温度较高, 电离过程更为显著, 因此 CF_3^+ 离子密度的最大值出现在边缘处。同样的, 在所考察的两个放电频率下, 电磁效应均对 CF_3^+ 的空间分布产生影响, 并使得 CF_3^+ 离子的密度有所增加。这是因为在电磁模型中, 电子不仅可以被静电场加速, 同时还受到电磁场的作用, 因此高能电子有所增加, 增强了电离过程。

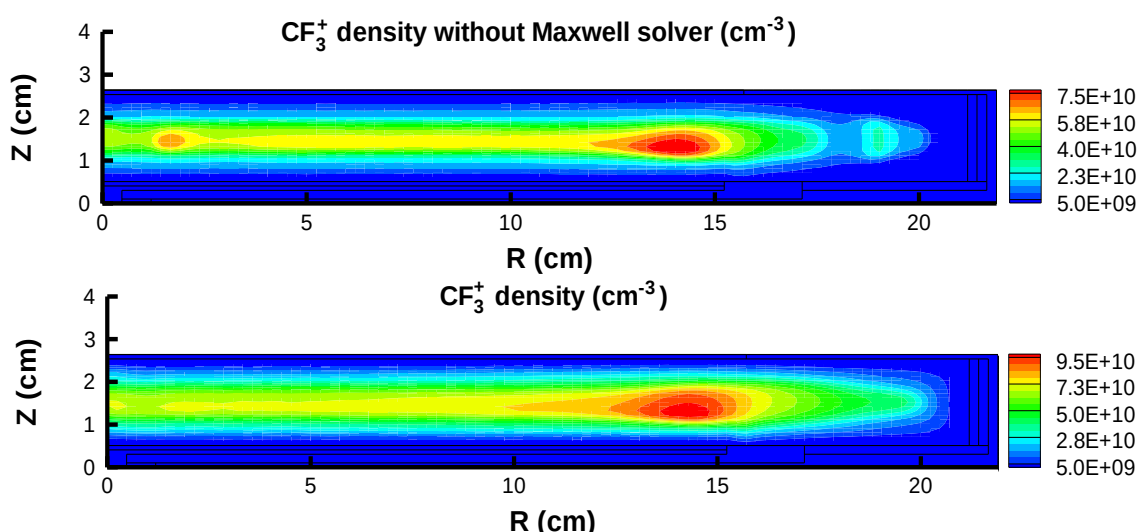


图 6.8 60 MHz 时, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的 CF_3^+ 密度分布
 Fig. 6.8 Comparison between the spatial distributions of CF_3^+ density in the electrostatic model and the electromagnetic model, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 60 MHz

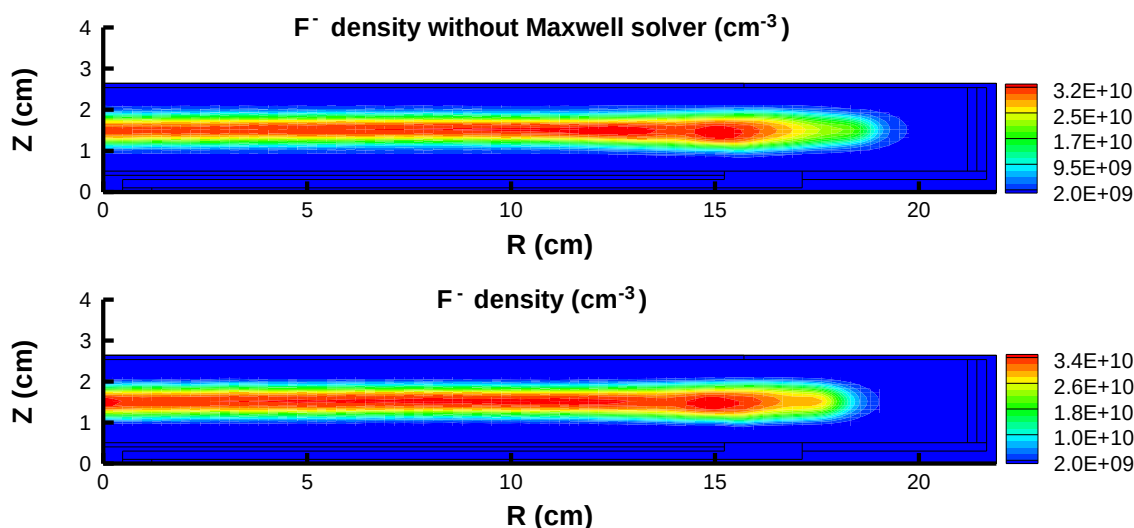


图 6.9 27 MHz 时, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的 F^- 密度分布
 Fig. 6.9 Comparison between the spatial distributions of F^- density in the electrostatic model and the electromagnetic model, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 27 MHz

当放电频率为 27 MHz 时, 通过静电模型和电磁模型计算得到的 F^- 离子的密度分布如图 6.9 所示。通过比较可以观察到, 在此放电条件下电磁效应并未对 F^- 离子的密度分布产生显著影响。在两种模型中, 其空间分布比较均匀, 且幅值没有很大差异。而当放电频率增加为 60 MHz 时, 两种模型之间的差异变得明显, 如图 6.10 所示。在静电模型

中, F 离子密度的径向分布比较均匀, 与 27 MHz 时的结果相似。当考虑电磁效应后, F 离子密度的最大值从 $4.4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 增加为 $5.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, 且径向均匀性变差。这说明, 当频率较高时, 电磁效应对等离子体的影响更为显著。

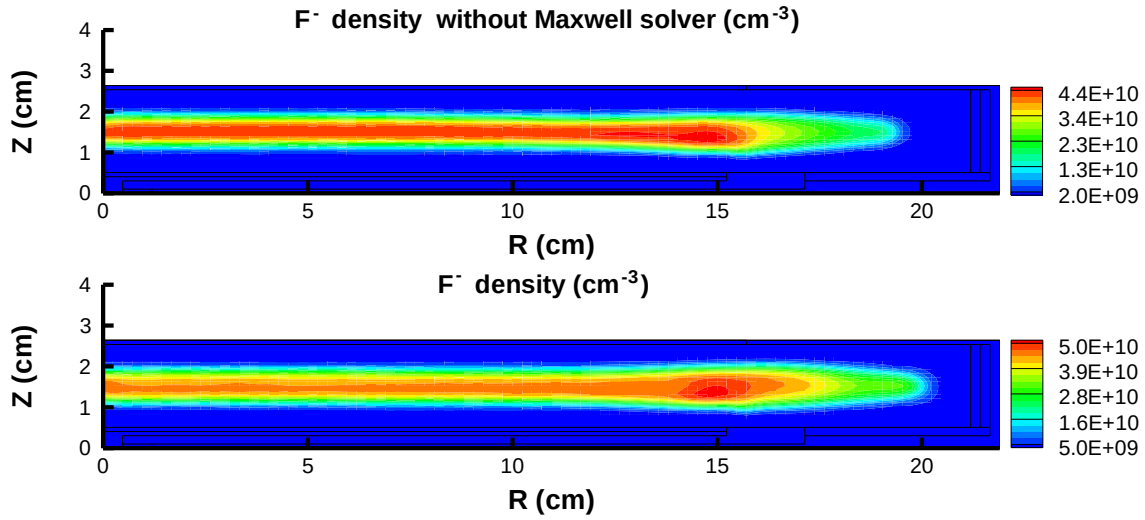


图 6.10 60 MHz 时, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的 F 密度分布
Fig. 6.10 Comparison between the spatial distributions of F^- density in the electrostatic model and the electromagnetic model, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 60 MHz

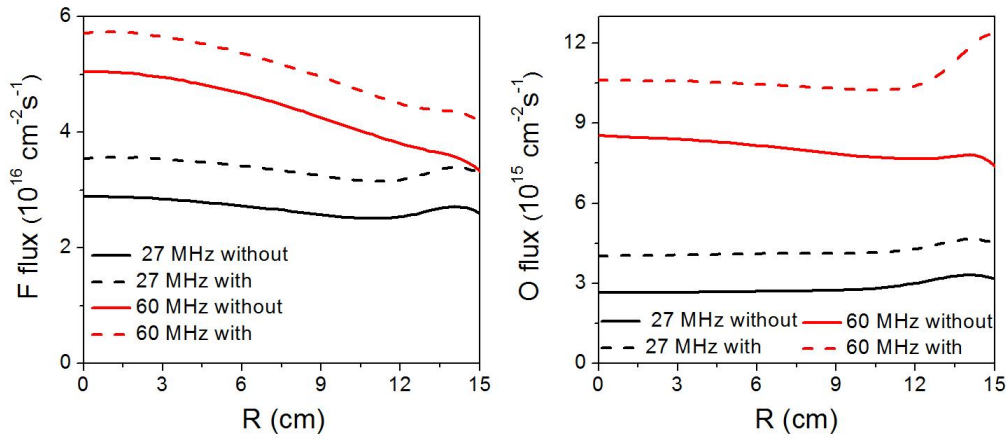


图 6.11 不同放电频率下, CF_4/O_2 等离子体中通过静电模型和电磁模型得到的晶片表面
(a) F 原子通量和 (b) O 原子通量的径向分布

Fig. 6.11 Comparison between the radial distributions of (a) F flux, (b) O flux above the wafer in the electrostatic model and the electromagnetic model, for a CF_4/O_2 discharge sustained at different frequencies

图 6.11 给出了 CF_4/O_2 等离子体中, 通过静电模型和电磁模型得到的晶片表面 F 原子和 O 原子的通量分布。通过比较可以看出, 电磁效应对等离子体的特性有着显著影响, 尤其是当放电频率较高时, 电磁效应不仅使得晶片表面的粒子通量有所增加, 还改变其径向分布。此外, 随着频率的增加, 晶片表面粒子通量的均匀性变差。如当放电频率为 60 MHz 时, 通过电磁模型计算得到的 F 原子通量的最大值出现在放电中心处, 而 O 原子通量的最大值则出现在边缘处。

6.5.2 低频源功率对粒子通量及刻蚀率的影响

由上述分析可知: 在 CF_4/O_2 等离子体中, 尤其是当频率较高时, 电磁效应会对晶片表面的粒子通量产生影响, 进而影响刻蚀过程的均匀性。因此本节从模拟和实验两个方面重点考察了双频放电中, 2 MHz 的低频源对粒子通量及刻蚀率均匀性的影响。其中, 高频源功率固定为 300 W。

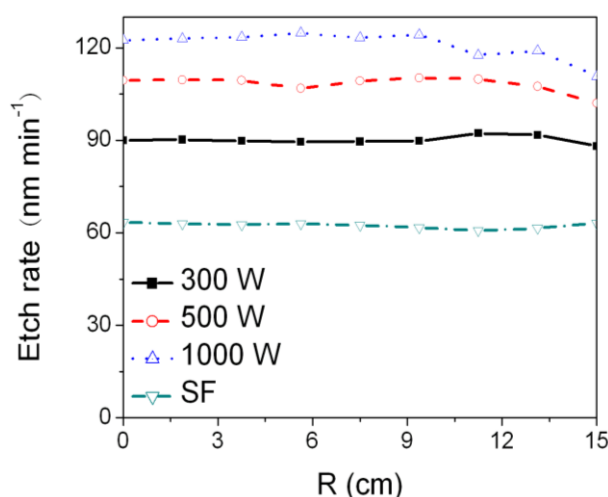


图 6.12 2/27 MHz 时, 实验测量的不同低频功率下刻蚀率的径向分布^[164]

Fig. 6.12 Measured etch rates as a function of radial position at different LF powers, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 2/27 MHz^[164]

图 6.12 给出了放电频率为 2/27 MHz 时, 不同低频功率下实验测量得到的刻蚀率的径向分布。在 27 MHz 单频放电中, 由于频率不是很高, 因此刻蚀速率的径向均匀性较好, 但幅值较低, 仅为 63 nm/min 左右。当在放电过程中加入低频源时, 刻蚀速率显著上升。当低频源功率为 300 W 时, 刻蚀率增加为 90 nm/min 左右, 且仍具有较好的径向均匀性。随着低频源功率的进一步增加, 刻蚀率虽然继续提高, 但其均匀性变差, 即放电中心处的刻蚀率高于边缘处。

刻蚀率受到晶片表面多种粒子通量的影响：由于 F 原子可以在没有离子轰击的情况下，自发地与硅和二氧化硅发生反应，因此刻蚀率在很大程度上受到晶片表面附近气相中 F 原子通量的影响。当 F 原子通量给定时，如果有足够多且能量足够高的离子轰击硅表面，刻蚀率可以增加 5 到 10 倍，因此刻蚀率在一定程度上也受到晶片表面离子通量的影响。此外，在 CF_4/O_2 放电中还存在大量的 O 原子。由于 O 原子在 SiF_x 晶格上会与 F 原子竞争化学吸附位，使得表面层被“氧化”，因此在某些放电条件下，O 原子的存在会减小刻蚀速率^[1]。此外， CF_2 自由基被认为是沉积聚合物薄膜的最重要的先驱粒子^[160-163]。聚合物薄膜越厚，对晶片的刻蚀越难实现。综上，刻蚀率的径向分布受到 F 原子、离子、 CF_2 自由基和 O 原子的共同影响。

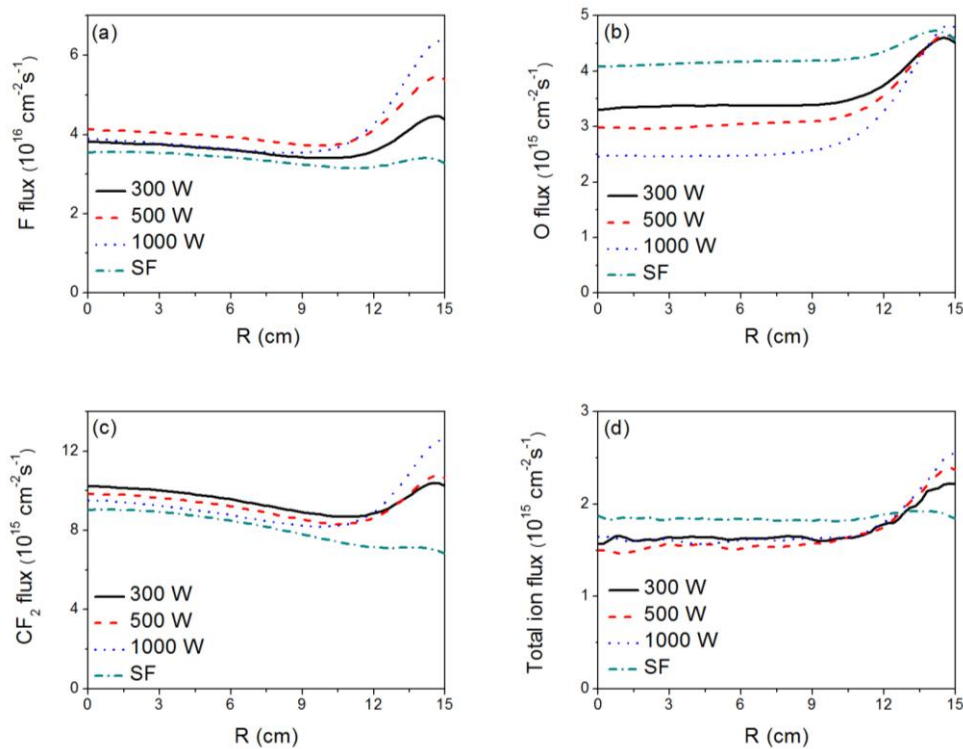


图 6.13 2/27 MHz 时，模拟得到的不同低频功率下晶片表面 (a) F 原子通量，(b) O 原子通量，(c) CF_2 通量，(d) 总的离子通量的径向分布

Fig. 6.13 Calculated (a) F flux, (b) O flux, (c) CF_2 flux, (d) total ion flux above the wafer as a function of radial position at different LF powers, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 2/27 MHz

借助于 HPEM 程序的模拟, 图 6.13 给出了晶片表面各种粒子通量的径向分布。在单频放电中, 由于 F 原子通量较低, O 原子通量较高, 因此刻蚀率较低。当在放电中增加功率为 300 W 的低频源时, F 原子通量有所增加, O 原子通量显著降低, 因此刻蚀率有所增加。此外, 虽然 F 原子通量和总的离子通量的最大值均出现在边缘处, 但是 O 原子通量也呈现出边缘高的分布, 所以此时刻蚀率的径向分布仍然比较均匀。随着低频源功率进一步增加, 各种粒子通量的不均匀性变得更加明显。当低频源功率为 500 W 和 1000 W 时, 边缘处较高的 O 原子通量和 CF_2 通量显著地减弱了刻蚀过程, 因此刻蚀率呈现出中心高的不均匀分布。

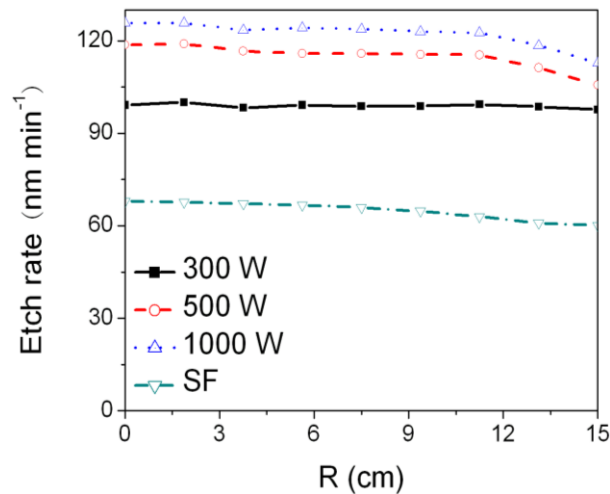


图 6.14 2/60 MHz 时, 实验测量的不同低频功率下刻蚀率的径向分布^[164]

Fig. 6.14 Measured etch rates as a function of radial position at different LF powers, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 2/60 MHz^[164]

当高频频率增加为 60MHz 时, 不同低频功率下实验测量得到的刻蚀率的径向分布如图 6.14 所示。当低频功率为 0 时, 由于电磁效应的影响, 放电中心处的刻蚀率略高于边缘处, 这与在单频 27 MHz 放电中观察到的现象是不一致的。这说明, 当放电频率较高时, 电磁效应使得刻蚀率的均匀性变差。当低频功率增加为 300 W 时, 刻蚀率显著从 65 nm/min 增加为 98 nm/min, 且均匀性有所改善。随着低频源功率继续增加, 放电中心处的刻蚀率显著上升, 但边缘处的刻蚀率上升较为缓慢, 因此刻蚀率最终呈现出不均匀的分布。

图 6.15 给出了在 2/60 MHz 放电中, 模拟得到的不同低频功率下晶片表面多种粒子通量的径向分布。当低频功率为 0 时, 放电中心处的 F 原子通量高于边缘处, 总的离子通量的径向分布则比较均匀。虽然边缘处的 O 原子通量略高于放电中心处, 但其非均匀

性并不十分明显。在它们的共同作用下，单频 60 MHz 时，放电中心处的刻蚀率略高于径向边缘处。当低频功率增加为 300 W 时，径向边缘处的 F 原子通量显著上升，进而提高了边缘处的刻蚀率。虽然 O 原子通量的峰值也出现在边缘处，但由于中心处的 CF_2 通量高于边缘处，因此综合作用下，刻蚀率的径向均匀性有所改善。随着低频源功率进一步增加，晶片表面所有粒子通量的最大值均出现在径向边缘处。但此时，O 原子和 CF_2 自由基对刻蚀过程的影响更为显著。它们在径向边缘处的通量较高，减弱了那里的刻蚀过程。因此当低频功率较高时，径向边缘处的刻蚀率低于中心处，呈现出不均匀分布，如图 6.14 所示。

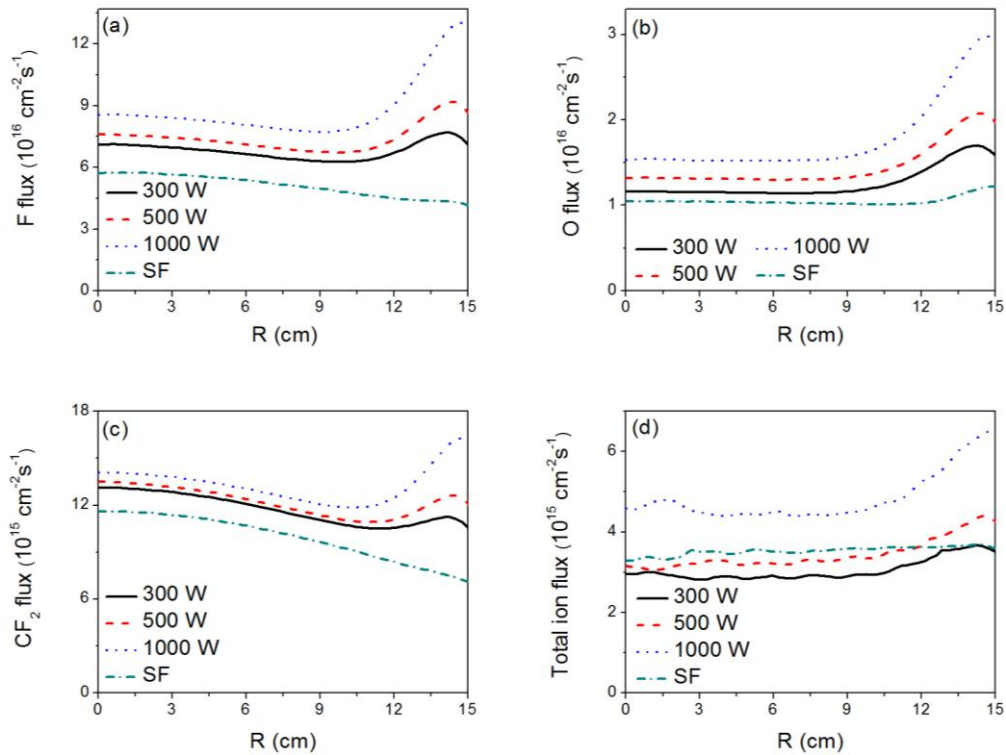


图 6.15 2/60 MHz 时，模拟得到的不同低频功率下晶片表面 (a) F 原子通量，(b) O 原子通量，(c) CF_2 通量，(d) 总的离子通量的径向分布

Fig. 6.15 Calculated (a) F flux, (b) O flux, (c) CF_2 flux, (d) total ion flux above the wafer as a function of radial position at different LF powers, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 2/60 MHz

综上，得出结论：当高频频率为 27 MHz 时，添加低频源可以显著提高刻蚀率；当高频频率为 60 MHz 时，添加低频源不仅可以提高刻蚀率，还可以优化其均匀性。

6.5.3 高频源功率对粒子通量及刻蚀率的影响

在本节中，固定 2 MHz 低频源的功率为 300 W，通过改变高频源功率，在实验上重点观察了高频源功率对刻蚀率径向分布的影响，并通过模拟得到的晶片表面粒子通量的径向分布对其解释。

图 6.16 给出了在 2/27 MHz 放电中，不同高频功率下实验测量得到的刻蚀率的径向分布。可以观察到，随着高频源功率从 300 W 增加为 1000 W，放电中心处的刻蚀率从 92 nm/min 增加为 122 nm/min，边缘处的刻蚀率从 90 nm/min 增加为 102 nm/min。因此可以得出结论：随着高频源功率的增加，刻蚀率显著上升，但均匀性变差。同样的，刻蚀速率随高频源功率的变化趋势，也可以通过晶片表面的粒子通量来解释。

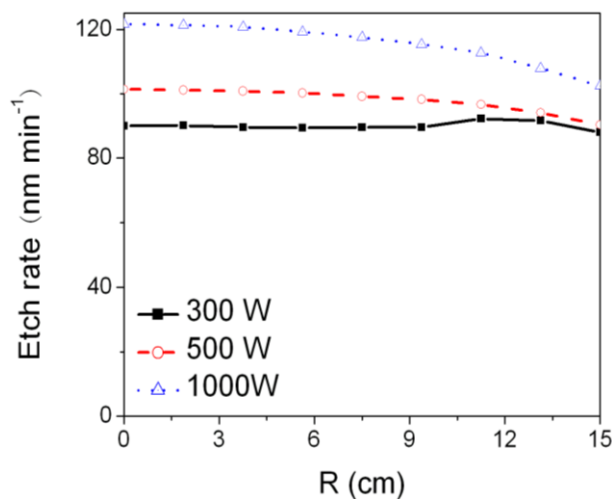


图 6.16 2/27 MHz 时，实验测量的不同高频功率下刻蚀率的径向分布^[164]

Fig. 6.16 Measured etch rates as a function of radial position at different HF powers, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 2/27 MHz^[164]

在 2/27 MHz 放电中，随着高频源功率的增加，模拟得到的晶片表面的粒子通量显著增加。这是因为在双频放电中，等离子体密度主要是由高频源功率决定的。F 原子通量和总的离子通量的增加，决定了刻蚀速率的增加。此外，随着高频源功率的增加，边缘处的 O 原子通量显著增加，减弱了刻蚀过程，因此刻蚀速率的径向不均匀性加剧。

当高频频率从 27 MHz 增加为 60 MHz 时，由于电子能够更有效地被加热，因此实验测量得到的刻蚀速率显著增加。此外，随着高频功率增加，放电中心处的刻蚀率从 100 nm/min 增加为 141 nm/min，而边缘处的刻蚀率则增加为 114 nm/min，可见刻蚀率的均匀性显著变差，如图 6.18 所示。

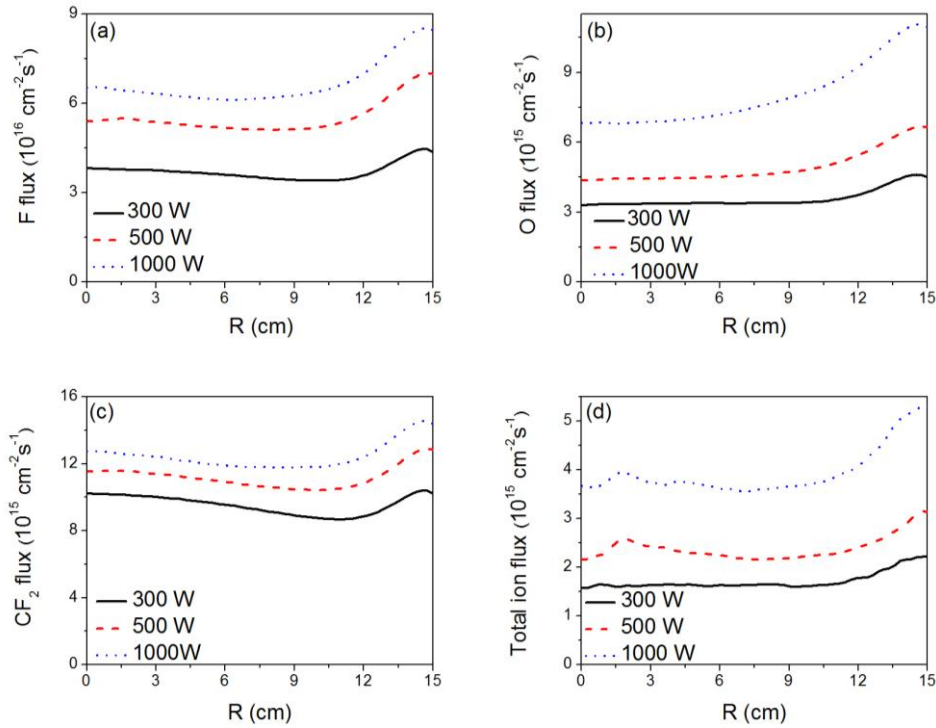


图 6.17 2/27 MHz 时，模拟得到的不同高频功率下晶片表面 (a) F 原子通量，(b) O 原子通量，(c) CF_2 通量，(d) 总的离子通量的径向分布

Fig. 6.17 Calculated (a) F flux, (b) O flux, (c) CF_2 flux, (d) total ion flux above the wafer as a function of radial position at different HF powers, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 2/27 MHz

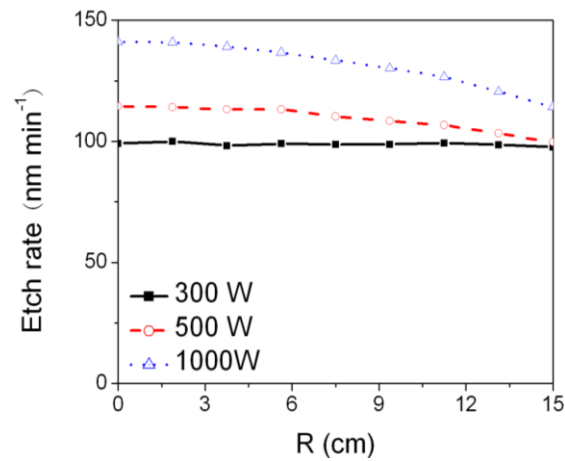


图 6.18 2/60 MHz 时，实验测量的不同高频功率下刻蚀率的径向分布^[164]

Fig. 6.18 Measured etch rates as a function of radial position at different HF powers, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 2/60 MHz^[164]

2/60 MHz 放电中, 不同高频源功率下, 晶片表面粒子通量的模拟结果如图 6.19 所示。在所考察的放电条件下, 尤其是当高频源功率较高时, F 原子通量在放电中心处和边缘处存在两个最大值, 且边缘处的峰值更为明显。晶片表面的 CF_2 通量同样存在两个最大值, 但与 2/27 MHz 的结果相比, 此时放电中心处的峰值更为明显。当高频源功率较高时, 由于 O 原子通量在边缘处出现显著的峰值, 减弱了的刻蚀过程, 因此刻蚀率的最大值出现在放电中心处。

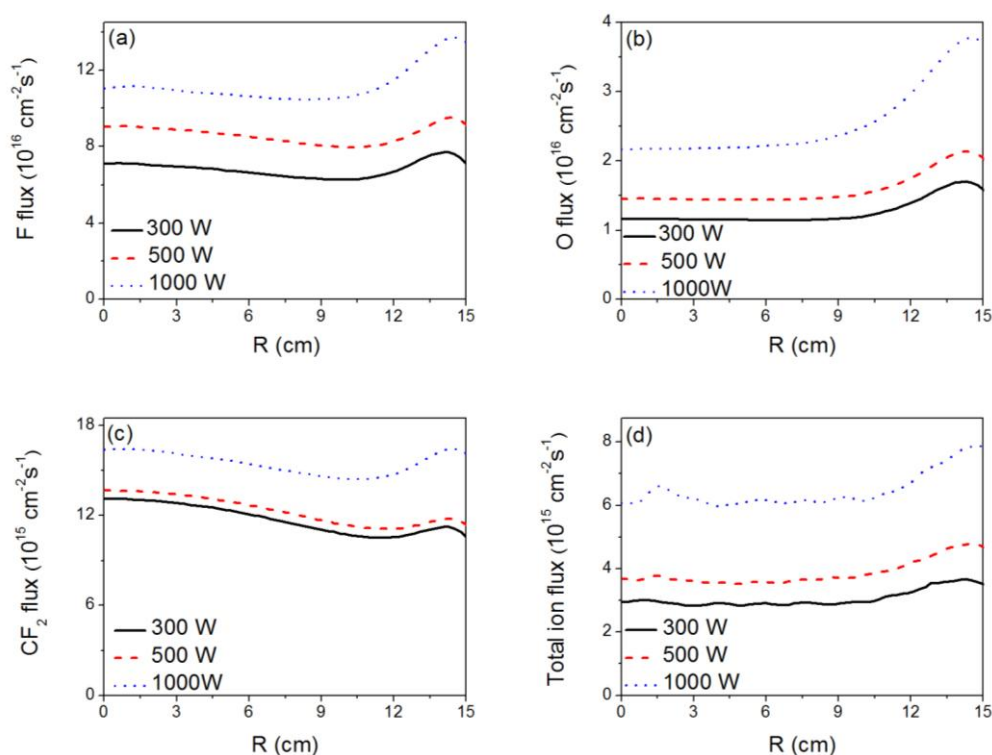


图 6.19 2/60 MHz 时, 模拟得到的不同高频功率下晶片表面 (a) F 原子通量, (b) O 原子通量, (c) CF_2 通量, (d) 总的离子通量的径向分布

Fig. 6.19 Calculated (a) F flux, (b) O flux, (c) CF_2 flux, (d) total ion flux above the wafer as a function of radial position at different HF powers, for a CF_4/O_2 discharge sustained at 2/60 MHz

综上, 得出结论: 由于 F 原子通量和总的离子通量随着高频源功率的增加而增加, 因此刻蚀率显著提高。然而, 由于高功率下的粒子通量, 尤其是 O 原子通量的均匀性较差, 因此刻蚀率的均匀性随着高频功率的增加而下降。

6.6 本章小结

本章采用 HPEM 模型，耦合全波麦克斯韦求解器，自洽地模拟了单频 CF_4/O_2 等离子体中的电磁效应。随后，通过比较实验测量得到的不同低频功率和高频功率下的刻蚀率，以及模拟得到的晶片表面 F 原子、O 原子、 CF_2 自由基和总的离子通量的径向分布，说明了在双频放电中，低频源功率和高频源功率对等离子体特性，尤其是其径向均匀性的影响。

在 27 MHz 和 60 MHz 单频放电中，通过对静电模型和电磁模型计算得到的等离子体密度分布进行比较，说明电磁效应对等离子体的确有着显著的影响。当考虑电磁效应时，无论是电子密度还是 CF_3^+ 离子密度，均有明显增加。这是因为在电磁模型中，电子不仅可以被静电场加速，同时还受到电磁场的作用，因此电子温度升高，电子碰撞过程增强。不同放电频率下，电磁效应对 F 离子的影响则略有不同。当频率为 27 MHz 时，静电模型和电磁模型得到的 F 离子分布几乎一样。然而当频率为 60 MHz 时，二者之间的差异变得明显。这也说明当频率较高时，电磁效应对等离子体的影响更为显著。

固定高频源功率为 300 W，本章从模拟和实验两个方面研究了不同低频功率下，晶片表面粒子通量以及刻蚀率的径向分布。在 2/27 MHz 放电中，当低频源功率为 0 时，由于高频频率并不是很高，因此刻蚀率的径向均匀性较好。随着低频源功率的增加，刻蚀速率显著上升。当低频源功率增加为 500 W 和 1000 W 时，虽然刻蚀速率继续上升，但其均匀性变差。这是由于刻蚀速率不仅由 F 原子和总的离子通量决定，同时还受到 O 原子以及 CF_2 自由基的影响。当低频源功率很高时，径向边缘处的 O 原子以及 CF_2 自由基的通量较高，减弱了刻蚀过程，因此刻蚀率的最大值出现在放电中心处。在 2/60 MHz 放电中，当低频源功率为 0 时，电磁效应使得刻蚀率的最大值出现在放电中心处。随着低频源功率增加为 300 W，由于边缘处的 F 原子通量显著增加，因此刻蚀率的径向均匀性得到明显改善。然而随着低频源功率进一步增加，虽然刻蚀率有所上升，但由于 O 原子以及 CF_2 自由基的影响，刻蚀率的径向均匀性变差。高频源功率对刻蚀率的影响则较为简单：随着高频源功率的增加，刻蚀率上升，均匀性变差，这同样是多种粒子共同作用的结果。

通过以上分析，得出结论：在 CF_4/O_2 放电中，电磁效应对等离子体的影响是非常显著的。在双频放电中，尤其是当高频频率较高时，低频源确实能够在一定程度上优化等离子体的径向均匀性，进而对刻蚀过程产生影响。

7 结论与展望

7.1 主要结论

本文的主要工作为：基于全波电磁场理论，建立了甚高频容性耦合等离子体放电的二维流体力学模型。采用该模型系统地研究了不同的放电条件（放电频率、射频源电压和放电气压）下电磁效应对等离子体特性的影响。同时，针对 H_2 和 Ar/CF_4 等离子体，通过调节两个同频率电源之间的相位差，观察了相位差效应对等离子体瞬时行为以及径向均匀性的影响。最后，采用 HPEM 程序研究了双频 CF_4/O_2 放电中的电磁效应，以及电源功率对等离子体特性的影响，并与实验测量的刻蚀率进行了比较。

在二维流体力学模型中，通过求解电子、正负离子和中性粒子的连续性方程，来确定等离子体的密度分布。由于电子质量较小，因此可以采用漂移扩散方法来描述其输运过程，离子通量则需要通过求解完整的动量平衡方程来获得。由于在该模型中假设离子和中性粒子的温度与室温相等，因此仅需要求解电子能量平衡方程。此外，该模型还包含了完整的麦克斯韦方程组，用来自洽地描述电磁场的时空分布，进而实现对电磁效应的模拟。主要结论如下：

（1）采用二维流体力学模型，模拟研究了不同的放电条件下，电磁效应对 Ar 等离子体特性的影响。通过比较，发现在甚高频放电中，电磁效应对电子密度和电子温度的分布有着重要影响。当频率为 100 MHz 时，通过电磁模型计算得到的电子密度是静电模型的 4 倍。随着频率从 13.56 MHz 增加为 60 MHz，由于驻波效应的影响，电离率的最大值从径向边缘处转移到放电中心处。然而当频率继续增加为 100 MHz 时，由于趋肤效应的显著影响，电离率的峰值又出现在侧壁附近。当放电频率固定为 100 MHz 时，电磁效应对等离子体的影响随着电压的增加而减弱。此外，随着电压增加，趋肤效应对等离子体的影响增强；随着气压升高，边缘效应的影响则有所减弱。

（2）针对 H_2 等离子体，系统地研究了两个同频率电源之间的相位差 φ 对等离子体动力学行为以及径向均匀性的影响。研究结果表明：相位差对等离子体各参量的时空分布有着显著影响。当频率为 13.56 MHz， $\varphi = 0$ 时，轴向运动的电子首先向放电中心处聚集，随后方向反转；而当 $\varphi = \pi$ 时，轴向电子通量则变得均匀。当频率为 100 MHz，相位差为 π 时，径向电子通量出现正负交替，且在一个周期内出现四个峰值。此外，两个同频率电源之间的相位差对等离子体的径向均匀性也有着显著的调制作用。如当频率为 13.56 MHz， $\varphi = \pi$ 时，等离子体的径向均匀性得到明显改善。当频率为 60 MHz 时，随

着相位差增加, 等离子体密度分布从边缘高, 逐渐变得均匀, 随后密度的最大值又出现在放电中心处。而当频率为 100 MHz, $\varphi = 0.19\pi$ 时等离子体的径向均匀性最好。

(3) 对于 Ar/CF₄ 混合气体放电, 电磁效应的影响同样显著。当 Ar/CF₄=0.9/0.1, 频率为 60 MHz 时, 随着相位差的增加, Ar⁺离子的密度分布从边缘高逐渐变得均匀; 当上下极板反相位时, 其密度在放电中心处出现一个平缓的最大值。固定放电频率为 100 MHz, 当 CF₄ 含量为 50%且相位差为 $\varphi = 0.33\pi$ 时, CF₃⁺密度的径向均匀性最好。此外, 当相位差为 π 时, 其均匀性明显优于 Ar/CF₄=0.9/0.1 时的结果。当 CF₄ 含量增加为 90%, 上下极板反相位时, 由于趋肤效应受到电负性的抑制, CF₃⁺离子密度的最大值出现在放电中心处。此外, 随着 CF₄ 含量的增加, 等离子体电负性增强, 且 CF₃⁺取代 Ar⁺成为等离子体中最主要的正离子。

(4) 最后, 采用 HPEM 模型并耦合全波麦克斯韦方程组, 模拟了电磁效应对 CF₄/O₂ 等离子体的影响。模拟结果表明: 在模拟过程中考虑电磁效应时, 等离子体的密度有所增加, 且呈现出不同的空间分布。此外, 还与 IMEC 合作, 在 2300 Exelan Flex 刻蚀机上对单晶硅片进行了刻蚀实验。实验结果表明: 在甚高频放电中辅助低频源, 可以使得刻蚀速率显著上升。尤其在 60 MHz 单频放电中辅助功率为 300 W 的低频源时, 刻蚀率不仅增加, 其径向均匀性也得到显著改善。此外, 在双频放电中, 刻蚀率随着电源功率的增加而增加, 且均匀性变差。

7.2 创新点摘要

(1) 针对甚高频大面积容性耦合等离子体放电腔室, 建立了基于全波电磁场理论的等离子体流体输运模型, 自主开发出一套用于模拟甚高频容性耦合放电过程的通用程序, 可以实现对甚高频 CCP 放电中的电磁效应的精确模拟。以 Ar 放电为例, 模拟结果表明: 随着放电频率的增加, 等离子体中先后出现边缘效应、驻波效应及趋肤效应。

(2) 基于自主开发的程序, 分别模拟了 H₂ 和 Ar/CF₄ 的放电过程, 系统地揭示了两个同频率电源之间的相位差对放电的瞬时行为、等离子体密度的径向均匀性以及活性基团成分的调制行为。结果表明: 通过调节两个同频率电源之间的相位差, 能够优化等离子体的径向均匀性。

(3) 从模拟和实验两个方面系统地研究了 CF₄/O₂ 等离子体中的电磁效应, 以及双频放电中射频源功率对刻蚀率的影响。研究表明: 随着射频源功率的增加, 刻蚀率显著提高且均匀性变差; 低频源在一定程度上能够抑制由甚高频放电引起的不均匀性。

7.3 展望

综上,本文主要采用自主研发的二维流体力学模型以及 HPEM 模型,研究了电磁效应对等离子体特性的影响,以及相位差效应和射频源功率对等离子体均匀性的影响,但仍有一些工作还需要进一步完善:

首先,需要对程序本身的算法进行进一步地优化,以提升计算效率。在目前的程序中,尤其是在与麦克斯韦方程组耦合之后,需要更小的时间及空间步长,才能维持程序的稳定,但这同时也大幅增加了程序的计算量。因此优化数值算法,提高程序的稳定性是非常必要的。

其次,目前的程序仅能实现对简单腔室的模拟。然而在实际的等离子体工艺过程中,所采用的腔室结构要复杂很多。而且腔室的几何结构以及腔室材料的属性,均在一定程度上影响等离子体的分布。因此需要将腔室的结构及材料属性考虑在内,才能更为精确的模拟等离子体特性。

再次,目前的程序仅采用电子能量守恒方程求解电子温度分布,相应的电子碰撞反应系数也是在麦克斯韦分布(EEDF)的基础上通过积分得到的。然而在实际的放电过程中,当气压较低时,EEDF 将偏离麦克斯韦分布。因此,需要采用 MC 方法,实现对电子碰撞过程的模拟,并将统计得到的 EEDF 回代到流体模型中,用于电子碰撞系数的计算。只有这样,才能实现在低气压下对等离子体特性的自洽模拟。

最后,虽然本文中对 Ar、H₂、Ar/CF₄ 和 CF₄/O₂ 进行了研究,但是在实际的等离子体工艺过程中,所使用到的反应气体更为复杂。因此在下一步工作中,将针对实际工艺中所采用的气体,进一步研究电磁效应对等离子体特性的影响。

参 考 文 献

- [1] Lieberman M A and Lichtenberg A J. Principles of Plasma Discharges and Material Processing [M]. 2nd ed. New York: Wiley, 2005. 中文版为: 蒲以康译. 等离子体放电原理与材料处理 [M]. 北京: 科学出版社, 2007: 1-5.
- [2] Makabe T and Petrovic Z. Plasma Electronics: Applications in Microelectronic Device Fabrication [M]. New York, London: Taylor & Francis Group, 2005: 2.
- [3] Kuas S H and Wood P C. Inductively coupled plasma etching of poly-SiC in SF₆ chemistries [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 2005, 23: 947-952.
- [4] Choy K L. Chemical vapour deposition of coatings [J]. Prog. Mater. Sci., 2003, 48: 57-170.
- [5] Dipeso G, Vahedi V, Hewett D W, et al. Two dimensional self consistent fluid simulation of radio frequency inductive sources [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1994, 12: 1387-1396.
- [6] Barnes M S, Forster J C and Keller J H. Electron energy distribution function measurements in a planar inductive oxygen radio frequency glow discharge [J]. Appl. Phys. Lett., 1993, 62: 2622-2624.
- [7] O' Neill J A, Barnes M S and Keller J H. Optical ion energy measurements in a radio - frequency - induction plasma source [J]. J. Appl. Phys. 1993, 73: 1621-1626.
- [8] Ventzek P L G, Hoekstra R J and Kushner M J. Two dimensional modeling of high plasma density inductively coupled sources for materials processing [J]. J. Vac. Sci. Technol. B, 1994, 12: 461-477.
- [9] Ventzek P L G, Grapperhaus M and Kushner M J. Investigation of electron source and ion flux uniformity in high plasma density inductively coupled etching tools using two dimensional modeling [J]. J. Vac. Sci. Technol. B, 1994, 12: 3118-3137.
- [10] Graves D B. Plasma processing [J]. IEEE Trans. Plasma Sci., 1994, 22: 31-42.
- [11] Yang J G, Yoon N S, Kim B C, et al. Power absorption characteristics of an inductively coupled plasma discharge [J]. IEEE Trans. Plasma Sci., 1999, 27: 676-681.
- [12] Cunge G, Crowley B, Vender D, et al. Anomalous skin effect and collisionless power dissipation in inductively coupled discharges [J]. J. Appl. Phys., 2001, 89: 3580-3589.
- [13] Matsuo S and Kiuchi M. Low temperature chemical vapor deposition method utilizing an electron cyclotron resonance plasma [J]. Jpn. J. Appl. Phys., 1983, 22: L210-L212.

- [14] Asmussen J. Electron cyclotron resonance microwave discharges for etching and thin film deposition [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1989, 7: 883-893.
- [15] Boswell R W. Plasma production using a standing helicon wave [J]. Phys. Lett. A, 1970, 33: 457-458
- [16] Nagatsu M, Xu G, Ghanashev I, et al. Mode identification of surface waves excited in a planar microwave discharge [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 1997, 6: 427-434.
- [17] Sugau H, Ghanashev I, Nagatsu M. High density flat plasma production based on surface waves [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 1998, 7: 192-205.
- [18] Goto H H, Lowe H D and Ohmi T. Dual excitation reactive ion etcher for low energy plasma processing [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1992, 10: 3048-3054.
- [19] Goto H H, Lowe H D and Ohmi T. Independent control of ion density and ion bombardment energy in a dual RF excitation plasma [J]. IEEE Trans. Semicond. Manuf., 1993, 6: 58-64.
- [20] Kitajima T, Takeo Y, Nakano N, et al. Effects of frequency on the two-dimensional structure of capacitively coupled plasma in Ar [J]. J. Appl. Phys., 1998, 84: 5928-5936.
- [21] Vahedi V, Birdsall C K, Liberman M A, et al. Verification of frequency scaling laws for capacitive radio - frequency discharges using two dimensional simulations [J]. Phys. Fluids B, 1993, 5: 2719-2829.
- [22] Kalpakjian K M, Lieberman M A and Oldham W G. High frequency reactive ion etching of silylated photoresist [J]. J. Vac. Sci. Technol. B, 1994, 12: 1351-1361.
- [23] Colgan M J, Meyyappan M and Murnick D E. Very high-frequency capacitively coupled argon discharges [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 1994, 3: 181-189.
- [24] Perret A, Chabert P, Booth J P, et al. Ion flux nonuniformities in large-area high-frequency capacitive discharges [J]. Appl. Phys. Lett., 2003, 83: 243-245.
- [25] Perret A, Chabert P, Lolly J, et al. Ion energy uniformity in high-frequency capacitive discharges [J]. Appl. Phys. Lett., 2005, 86: 021501.
- [26] Vanier P E, Kampas F J, Corderman R R, et al. A study of hydrogenated amorphous silicon deposited by rf glow discharge in silane - hydrogen mixtures Ar [J]. J. Appl. Phys., 1984, 56: 1812-1820.
- [27] Kushner M J. A model for the discharge kinetics and plasma chemistry during plasma enhanced chemical vapor deposition of amorphous silicon [J]. J. Appl. Phys., 1988, 63: 2532-2551.
- [28] Curtins H, Wyrsh N, Favre M, et al. Influence of plasma excitation frequency for a-Si:H thin film deposition [J]. Plasma Chem. Plasma Process., 1987, 7: 267-273.
- [29] Oda S, Noda J and Matsumura M. Preparation of a-Si:H Films by VHF Plasma CVD [J]. Matter. Res. Soc. Symp. Proc., 1988, 118: 117-22.

- [30] Howling A A, Dorier J L, Hollenstein Ch, et al. Frequency effects in silane plasmas for plasma enhanced chemical vapor deposition [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1992, 10: 1080-1085.
- [31] Sansonnens L, Pletzer A, Magni D, et al. A voltage uniformity study in large-area reactors for RF plasma deposition [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 1997, 6: 170-178.
- [32] Lieberman M A, Booth J P, Chabert P, et al. Standing wave and skin effects in large-area, high-frequency capacitive discharges [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2002, 11: 283-293.
- [33] Meyyappan M, Colgan M J. Very high frequency capacitively coupled discharges for large area processing [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1996, 14: 2790-2794.
- [34] Chabert P, Raimbault J L, Rax J M, et al. Self-consistent nonlinear transmission line model of standing wave effects in a capacitive discharge [J]. Phys. Plasmas, 2004, 11: 1775-1785.
- [35] Chabert P, Raimbault J L, Rax J M, et al. Suppression of the standing wave effect in high frequency capacitive discharges using a shaped electrode and a dielectric lens: Self-consistent approach [J]. Phys. Plasmas, 2004, 11: 4081-4087.
- [36] Takatsuka H, Noda M, Yonekura Y, et al. Development of high efficiency large area silicon thin film modules using VHF-PECVD [J]. Solar Energy, 2004, 77: 951-960.
- [37] Sansonnens L. Calculation of the electrode shape for suppression of the standing wave effect in large area rectangular capacitively coupled reactors [J]. J. Appl. Phys., 2005, 97: 063301.
- [38] Rauf S. Simulations of magnetized capacitively coupled plasmas operating at constant power and voltage [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2005, 14: 329-335.
- [39] Chabert P, Raimbault J L, Levif P, et al. Inductive heating and E to H transitions in capacitive discharges [J]. Phys. Rev. Lett., 2005, 95: 205001.
- [40] Chabert P, Raimbault J L, Levif P, et al. Inductive heating and E to H transitions in high frequency capacitive discharges [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2006, 15: S130-S136.
- [41] Rakhimova T V, Braginsky O V, Ivanov V V, et al. Experimental and theoretical study of RF plasma at low and high frequency [J]. IEEE Trans. Plasma Sci., 2006, 34: 867-877.
- [42] A technique for uniform generation of very high frequency plasma suited to large area thin film deposition [J]. Appl. Phys. Lett., 2006, 88: 081502.
- [43] Sansonnens L, Howling A A and Hollenstein Ch. Electromagnetic field nonuniformities in large area, high-frequency capacitive plasma reactors,

- including electrode asymmetry effects discharges [J]. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2006, 15: 302–313.
- [44] Chabert P. Electromagnetic effects in high-frequency capacitive discharges used for plasma processing [J]. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2007, 40: R63–R73.
- [45] Lee I, Graves D B and Lieberman M A. Modeling electromagnetic effects in capacitive discharges [J]. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2008, 17: 015018.
- [46] Mussenbrock T, Hemke T, Ziegler D, et al. Skin effect in a small symmetrically driven capacitive discharge [J]. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2008, 17: 025018.
- [47] Rauf S, Bera K and Collins K. Self-consistent simulation of very high frequency capacitively coupled plasmas [J]. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2008, 17: 035003.
- [48] Bera K, Rauf S and Collins K. Control of plasma uniformity using phase difference in a VHF plasma process chamber [J]. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 2008, 36: 1366–1367.
- [49] Bera K, Rauf S, Ramaswamy K, et al. Effects of interelectrode gap on high frequency and very high frequency capacitively coupled plasmas [J]. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 2009, 27: 706–711.
- [50] Rauf S, Kenney J and Collins K. Three-dimensional model of magnetized capacitively coupled plasmas [J]. *J. Appl. Phys.*, 2009, 105: 103301.
- [51] Bera K, Rauf S, Ramaswamy K, et al. Control of plasma uniformity in a capacitive discharge using two very high frequency power sources [J]. *J. Appl. Phys.*, 2009, 106: 033301.
- [52] Kenney J, Rauf S and Collins K. Effect of azimuthally asymmetric reactor components on a parallel plate capacitively coupled plasma [J]. *J. Appl. Phys.*, 2009, 106: 103302.
- [53] Bera K, Rauf S, Balakrishna A, et al. Plasma profile control using external circuit in a capacitively coupled plasma reactor [J]. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 2010, 38: 3241–3248.
- [54] Bera K, Rauf S, Kenney J, et al. Influence of inhomogeneous magnetic field on the characteristics of very high frequency capacitively coupled plasmas [J]. *J. Appl. Phys.*, 2010, 107: 053302.
- [55] Rauf S, Chen Z and Collins K. Effect of resonance in external radio-frequency circuit on very high frequency plasma discharge [J]. *J. Appl. Phys.*, 2010, 107:093302.
- [56] Chen Z, Rauf S and Collins K. Self-consistent electrodynamics of large-area high-frequency capacitive plasma discharge [J]. *J. Appl. Phys.*, 2010, 108: 073301.
- [57] Yang Y and Kushner M J. Modeling of dual frequency capacitively coupled plasma sources utilizing a full-wave Maxwell solver: I. Scaling with high frequency [J]. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2010, 19: 055011.

- [58] Yang Y and Kushner M J. Modeling of dual frequency capacitively coupled plasma sources utilizing a full-wave Maxwell solver: II. Scaling with pressure, power and electronegativity [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2010, 19: 055012.
- [59] Yang Y and Kushner M J. Graded conductivity electrodes as a means to improve plasma uniformity in dual frequency capacitively coupled plasma sources [J]. J. Phys. D: Appl. Phys., 2010, 43: 152003.
- [60] Yang Y and Kushner M J. 450 mm dual frequency capacitively coupled plasma sources: Conventional, graded, and segmented electrodes [J]. J. Appl. Phys., 2010, 108: 113306.
- [61] Satake Koji, Yamakoshi H and Noda M. Experimental and numerical studies on voltage distribution in capacitively coupled very high frequency plasmas [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2004, 13: 436-445.
- [62] Schmidt H, Sansonnens L, Howling A A, et al. Improving plasma uniformity using lens-shaped electrodes in a large area very high frequency reactor [J]. J. Appl. Phys., 2004, 95: 4559-4564.
- [63] Howling A A, Derendinger L, Sansonnens L, et al. Probe measurements of plasma potential nonuniformity due to edge asymmetry in large area radio frequency reactors: The telegraph effect [J]. J. Appl. Phys., 2005, 97: 123308.
- [64] Sansonnens L, Schmidt H, Howling A A, et al. Application of the shaped electrode technique to a large area rectangular capacitively coupled plasma reactor to suppress standing wave nonuniformity [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 2006, 24: 1425-1430.
- [65] Kawamura K, Mashima H, Takeuchi Y, et al. Development of large-area a-Si:H films deposition using controlled VHF plasma [J]. Thin Solid Films, 2006, 506-507: 22-26.
- [66] Hebner G A, Barnat E V, Miller P A, et al. Frequency dependent plasma characteristics in a capacitively coupled 300 mm wafer plasma processing chamber [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2006, 15: 879-888.
- [67] Miller P A, Barnat E V, Hebner G A, et al. Spatial and frequency dependence of plasma currents in a 300 mm capacitively coupled plasma reactor [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2006, 15: 889-899.
- [68] Barnat E V, Miller P A, Hebner G A, et al. Electric fields in the sheath formed in a 300 mm, dual frequency capacitive argon discharge [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2007, 16: 330-336.
- [69] Barnat E V, Miller P A, Hebner G A, et al. Measured radial dependence of the peak sheath voltages present in very high frequency capacitive discharge [J]. Appl. Phys. Lett., 2007, 90: 201503.

- [70] Volynets V N, Ushakov A G, Sung D, et al. Experimental study of spatial nonuniformities in 100 MHz capacitively coupled plasma using optical probe [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 2008, 26: 406-415.
- [71] Ahn S K and Chang H Y. Experimental observation of the inductive electric field and related plasma nonuniformity in high frequency capacitive discharge [J]. Appl. Phys. Lett., 2008, 93: 031506.
- [72] Sung D, Jeong S, Park Y, et al. Effect on plasma and etch rate uniformity of controlled phase shift between rf voltages applied to powered electrodes in a triode capacitively coupled plasma reactor [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 2009, 27: 13-19.
- [73] Sung D, Woo J, Lim K, et al. Plasma uniformity and phase controlled etching in a very high frequency capacitive discharge [J]. J. Appl. Phys., 2009, 106: 023303.
- [74] Volynets V, Shin H, Kan D, et al. Experimental study of plasma non-uniformities and the effect of phast shift control in a very high frequency capacitive discharge [J]. J. Phys. D: Appl. Phys., 2010, 43: 085203.
- [75] Ryan K, O' Farrell D and Ellingboe A R. Spatial structure of plasma potential oscillation and ion saturation current in VHF multi-tile electrode plasma source [J]. Current Applied Physics, 2011, 11: S114-S116.
- [76] Abdel-Fattah E, Bazavan M and Sugai H. Electron energy distribution functions measured by Langmuir probe with optical emission spectroscopy in very high frequency capacitive discharge in nitrogen [J]. Phys. Plasmas, 2012, 19: 113503.
- [77] Abdel-Fattah E. Investigation of capacitively coupled argon plasma driven at various frequencies and validation of surface waves excitation [J]. Physics Letter A, 2013, 377: 297-302.
- [78] Abdel-Fattah E and Sugai H. Combined effects of gas pressure and exciting frequency on electron energy distribution functions in hydrogen capacitively coupled plasmas [J]. Phys. Plasmas, 2013, 20: 023501.
- [79] Abdel-Fattah E. Characteristics of capacitively coupled helium plasma driven by various frequencies under constant power conditions [J]. Vacuum, 2013, 97: 65-70.
- [80] Sansonnens L and Schmitt J. Shaped electrode and lens for a uniform radio-frequency capacitive plasma [J]. Appl. Phys. Lett., 2003, 82: 182-184.
- [81] Sansonnens L. Calculation of the electrode shape for suppression of the standing wave effect in large area rectangular capacitively coupled reactors [J]. J. Appl. Phys., 2005, 97: 063304.
- [82] Takeuchi Y, Nawata Y, Ogawa K, et al. Preparation of large uniform amorphous silicon films by VHF-PECVD using a ladder-shaped antenna [J]. Thin Solid Films, 2001, 386: 133-136.

- [83] Lieberman M A. Analytical solution for capacitive RF sheath [J]. IEEE Trans. Plasma Sci., 1988, 16: 638-644.
- [84] Godyak V A, Piejak R B and Sternberg N. A comparison of RF electrode sheath models [J]. IEEE Trans. Plasma Sci., 1993, 21: 378-382.
- [85] Kim H C, Lee J K and Shon J W. Analytic model for a dual frequency capacitive discharge [J]. Phys. Plasmas, 2003, 10: 4545-4551.
- [86] Turner M M and Chabert P. Collisionless heating in capacitive discharges enhanced by dual frequency excitation [J]. Phys. Rev. Lett., 2006, 96: 205001.
- [87] Ashida S, Lee C and Lieberman M A. Spatially averaged (global) model of time modulated high density argon plasmas [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1995, 13: 2498-2507.
- [88] Lee C and Lieberman M A. Global model of Ar, O₂, Cl₂, and Ar/O₂ high density plasma discharges [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1995, 13: 368-380.
- [89] Lee C, Graves D B, Lieberman M A, et al. Global model of plasma chemistry in a high density oxygen discharge [J]. J. Electrochem. Soc., 1994, 141: 1546-1555.
- [90] Chung T H, Yoon H J and Seo D C. Global model and scaling laws for inductively coupled oxygen discharge plasmas [J]. J. Appl. Phys., 1996, 86: 3536-3542.
- [91] Mussenbrock T, Ziegler D and Brinkmann R P. A nonlinear global model of a dual frequency capacitive discharge [J]. Phys. Plasmas, 2006, 13: 083501.
- [92] Graves D B and Jensen K F. A continuum model of DC and EF discharges [J]. IEEE Trans. Plasma Sci., 1986, 14: 78-91.
- [93] Gogolides E and Sawin H H. Continuum modeling of radio frequency glow discharges. I. Theory and results for electropositive and electronegative gases [J]. J. Appl. Phys., 1992, 72: 3971-3987.
- [94] Boeuf J P and Pitchford L C. Two dimensional model of a capacitively coupled rf discharge and comparisons with experiments in the gaseous electronics conference reference reactor [J]. Phys. Rev. E, 1995, 51: 1376-1390.
- [95] Meyyappan M and Govindan T R. Radio frequency discharge modeling: Moment equations approach [J]. J. Appl. Phys., 1993, 74: 2250-2259.
- [96] Lymberopoulos D P and Economou D J. Modeling and simulation of glow discharge plasma reactors [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1994, 12: 1229-1236.
- [97] Hammond E P, Mahesh K and Moin P. A numerical method to simulate radio frequency plasma discharges [J]. J. Comput. Phys., 2002, 176: 402-429.
- [98] Vender D and Boswell R W. Numerical modeling of low pressure RF plasmas [J]. IEEE Trans. Plasma Sci., 1990, 18: 725-732.

- [99] Nanbu K. Theory of cumulative small angle collisions in plasmas [J]. Phys. Rev. E, 1997, 55: 4642-4652.
- [100] Vahedi V and Surendra M. A Monte Carlo collision model for the particle-in-cell method: applications to argon and oxygen discharges [J]. Comput. Phys. Commun., 1995, 87: 179-198.
- [101] Georgieva V, Bogaerts A and Gijbels R. Particle-in-cell/Monte Carlo simulation of a capacitively coupled radio frequency Ar/CF₄ discharge: Effect of gas composition [J]. J. Appl. Phys., 2003, 93: 2369-2379.
- [102] Matyash K, Schneider R, Taccogna F, et al. Particle in cell simulation of low temperature laboratory plasmas [J]. Contrib. Plasma Phys., 2007, 47: 595-634.
- [103] Sato N and Tagashira H. A hybrid Monte Carlo/Fluid model of RF plasmas in a SiH₄/H₂ Mixture [J]. IEEE Trans. Plasma Sci., 1991, 19: 102-112.
- [104] Sommerer T J and Kushner M J. Numerical investigation of the kinetics and chemistry of rf glow discharge plasmas sustained in He, N₂, O₂, He/N₂/O₂, He/CF₄/O₂, and SiH₄/NH₃ using a Monte Carlo-fluid hybrid model [J]. J. Appl. Phys., 1992, 71: 1654-1673.
- [105] Kratzer M, Brinkmann R P, Sabisch W, et al. Hybrid model for the calculation of ion distribution functions behind a direct current or radio frequency driven plasma boundary sheath [J]. J. Appl. Phys., 2001, 90: 2169-2179.
- [106] Heil B G, Brinkmann R P and Czarnetzki U. A hybrid, one dimensional model of capacitively coupled radio frequency discharges [J]. J. Phys. D: Appl. Phys., 2008, 41: 225208.
- [107] Kushner M J. Hybrid modeling of low temperature plasmas for fundamental investigations and equipment design [J]. J. Phys. D: Appl. Phys., 2009, 42: 194013.
- [108] Yee K S. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media [J]. IEEE. Trans. Antennas Propag., 1966, 14: 302-307.
- [109] 葛德彪, 闫玉波. 电磁波时域有限差分方法(第二版) [M]. 西安: 西安电子科技大学出版社, 2005: 1-14.
- [110] 陆金甫, 关治. 偏微分方程数值解法(第二版) [M]. 北京: 清华大学出版社, 2004: 77-80.
- [111] Boris J P, Landsberg A M, Oran E S, et al. LCPFCT-flux-corrected transport algorithm for solving generalized continuity equations [R]. NRL/MR/6410-93-7192, 1993.
- [112] Yoon J S, Song M Y, Han J M, et al. Cross sections for electron collisions with hydrogen molecules [J]. J. Phys. Chem. Ref. Data, 2008, 37: 913-931.
- [113] Tawara H, Itikawa Y, Nishimura H, et al. Cross sections and related data for electron collisions with hydrogen molecules and molecular ions [J]. J. Phys. Chem. Ref. Data, 1990, 19: 617-636.

- [114] Salabs A and Brinkmann R P. Numerical investigation of dual frequency capacitively coupled hydrogen plasmas [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2005, 14: S53-S59.
- [115] Phelps A V. Cross sections and swarm coefficients for H^+ , H_2^+ , H_3^+ , H, H_2 , and H^- in H_2 for Energies from 0.1 eV to 10 keV [J]. J. Phys. Chem. Ref. Data, 1990, 19: 653-675.
- [116] Denpoh K and Nanbu K. Self-consistent particle simulation of radio-frequency CF₄ discharge with implementation of all ion - neutral reactive collisions [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1998, 16: 1201-1206.
- [117] Segawa S, Kurihara M, Nakano N, et al. Dependence of Driving Frequency on Capacitively Coupled Plasma in CF₄ [J]. Jpn. J. Appl. Phys., 1999, 38: 4416-4422.
- [118] Schulze J, Derzsi A and Donko Z. Electron heating and the electrical asymmetry effect in dual-frequency capacitive CF₄ discharges [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2011, 20: 045008.
- [119] Rauf S and Kushner M J. Argon metastable densities in radio frequency Ar, Ar/O₂ and Ar/CF₄ electrical discharges [J]. J. Appl. Phys., 1997, 82: 2805-2813.
- [120] Georgieva V and Bogaerts A. Numerical simulation of dual frequency etching reactors: Influence of the external process parameters on the plasma characteristics [J]. J. Appl. Phys., 2005, 98: 023308.
- [121] Georgieva V and Bogaerts A. Plasma characteristics of an Ar/CF₄/N₂ discharge in an asymmetric dual frequency reactor: numerical investigation by a PIC/MC model [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2006, 15: 368-377.
- [122] Li Z C, Chang D L, Li X S, et al. Experimental investigation of ion energy distributions in a dual frequency capacitively coupled Ar/CF₄ plasma [J]. Phys. Plasmas, 2010, 17: 033501.
- [123] Kitajima T, Takeo Y and Makabe T. Two-dimensional CT images of two-frequency capacitively coupled plasma [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1997, 17: 2510-2516.
- [124] Yagisawa T, Shimada T and Makabe T. Modeling of radial uniformity at a wafer interface in a 2f-CCP for SiO₂ etching [J]. J. Vac. Sci. Technol. B, 2005, 23: 2212-2217.
- [125] Rapp D and Englander-Golden P. Total cross sections for ionization and attachment in gases by electron impact. I. positive ionization [J]. J. Chem. Phys., 1965, 43: 1464-1479.
- [126] Tachibana K. Excitation of the 1s₅, 1s₄, 1s₃, and 1s₂ levels of argon by low-energy electrons [J]. Phys. Rev. A, 1986, 34: 1007-1015.
- [127] McFarland R H and Kinney J D. Absolute cross sections of lithium and other alkali metal atoms for ionization by electrons [J]. Phys. Rev., 1965, 137: A1058-A1061.

- [128] Lymberopoulos D P and Economou D J. Fluid simulations of glow discharges: Effect of metastable atoms in argon [J]. J. Appl. Phys., 1993, 73: 3668-3679.
- [129] Bonham R A. Electron Impact Cross Section Data for Carbon Tetrafluoride [J]. Jpn. J. Appl. Phys., 1994, 33: 4157-4164.
- [130] Hayashi M and Nimura T. Calculation of electron swarm parameters in fluorine [J]. J. Appl. Phys., 1983, 54: 4879-4882.
- [131] So S Y, Oda A, Sugawara H, et al. Transient behaviour of CF₄ rf plasmas after step changes of power source voltage [J]. J. Phys. D: Appl. Phys., 2001, 34: 1919-1927.
- [132] Zhao S X, Gao F, Wang Y N, et al. The effect of F₂ attachment by low-energy electrons on the electron behaviour in an Ar/CF₄ inductively coupled plasma [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2012, 21: 025008.
- [133] Donko Z and Petrovic Z L. Ion behavior in capacitively-coupled dual-frequency discharges [J]. J. Phys.: Conf. Ser., 2007, 86: 012011.
- [134] Efremov A, Woo J C, Kim G H, et al. Etching characteristics and mechanisms of the MgO thin films in the CF₄/Ar inductively coupled plasma [J]. Microelectron. Eng., 2007, 84: 638-645.
- [135] Mogab C J, Adams A C and Flamm D L. Plasma etching of Si and SiO₂—The effect of oxygen additions to CF₄ plasmas [J]. J. Appl. Phys., 1978, 49: 3796-3803.
- [136] d' Agostino R, Cramarossa F, De Benedictis S, et al. Spectroscopic diagnostics of CF₄-O₂ plasmas during Si and SiO₂ etching processes [J]. J. Appl. Phys., 1981, 52: 1259-1265.
- [137] Kim J W, Kim Y C and Lee W J. Reactive ion etching mechanism of plasma enhanced chemically vapor deposited aluminum oxide film in CF₄/O₂ plasma [J]. J. Appl. Phys., 1995, 78: 2045-2049.
- [138] Plumb I C and Ryan K R. A model of the chemical processes occurring in CF₄/O₂ discharges used in plasma etching [J]. Plasma Chem. Plasma Proess., 1986, 6: 205-230.
- [139] Dalvie M and Jensen K F. The importance of free radical recombination reactions in CF₄/O₂ plasma etching of silicon [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1990, 8: 1648-1653.
- [140] Kimura T and Noto M. Experimental study and global model of inductively coupled CF₄/O₂ discharges [J]. J. Appl. Phys., 2006, 100: 063303.
- [141] Booth J P, Corr C S, Curley G A, et al. Fluorine negative ion density measurement in a dual frequency capacitive plasma etch reactor by cavity ring-down spectroscopy [J]. Appl. Phys. Lett., 2006, 88: 151502.

- [142] Song S H and Kushner M J. Control of electron energy distributions and plasma characteristics of dual frequency, pulsed capacitively coupled plasmas sustained in Ar and Ar/CF₄/O₂ [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2012, 21: 055028.
- [143] Chabert P and Braithwaite N: Physics of radio frequency plasmas [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2011: 187–217.
- [144] Kinder R L and Kushner M J. Consequences of mode structure on plasma properties in electron cyclotron resonance sources [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1999, 17: 2421–2430.
- [145] Vasenkov A V and Kushner M J. Modeling of magnetically enhanced capacitively coupled plasma sources: Ar/C₄F₈/O₂ discharges [J]. J. Appl. Phys., 2004, 95: 834–845.
- [146] Vyas V and Kushner M J. Scaling of hollow cathode magnetrons for ionized metal physical vapor deposition [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 2006, 24: 1955–1969.
- [147] Kinder R L and Kushner M J. Wave propagation and power deposition in magnetically enhanced inductively coupled and helicon plasma sources [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 2001, 19: 76–86.
- [148] Agarwal A and Kushner M J. Characteristics of pulsed plasma doping sources for ultrashallow junction formation [J]. J. Appl. Phys., 2007, 101: 063305.
- [149] Lu J and Kushner M J. Trench filling by ionized metal physical vapor deposition [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 2001, 19: 2652–2663.
- [150] Tinck S, Boullart W and Bogaerts A. Investigation of etching and deposition processes of Cl₂/O₂/Ar inductively coupled plasmas on silicon by means of plasma-surface simulations and experiments [J]. J. Phys. D: Appl. Phys., 2009, 42: 095204.
- [151] Tinck S, Boullart W and Bogaerts A. Modeling Cl₂/O₂/Ar inductively coupled plasmas used for silicon etching: effects of SiO₂ chamber wall coating [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2011, 20: 045012.
- [152] Tinck S and Bogaerts A. Modeling SiH₄/O₂/Ar inductively coupled plasmas used for filling of microtrenches in shallow trench isolation (STI) [J]. Plasma Process. Polym., 2012, 9:522.
- [153] Meeks E, Larson R S, Vosen S R, et al. Modeling chemical downstream etch systems for NF₃/O₂ mixtures [J]. J. Electrochem. Soc., 1997, 144: 357–366.
- [154] Phelps A V. JILA Information Center Report No. 28 [R]. University of Colorado, 1985.

- [155] Vasenkov A V, Li X, Oehrlein G S and Kushner M J. Properties of c-C₄F₈ inductively coupled plasmas. II. Plasma chemistry and reaction mechanism for modeling of Ar/c-C₄F₈/O₂ discharges [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 2004, 22: 511-530.
- [156] Laher R R and Gilmore F R. Updated excitation and ionization cross sections for electron impact on atomic oxygen [J]. J. Phys. Chem. Ref. Data, 1990, 19: 277-305.
- [157] Liu W and Victor G A. Electron energy deposition in carbon monoxide gas [J]. Astrophys. J., 1994, 435: 909-919.
- [158] Lowke J J, Phelps A V and Irwin B W. Predicted electron transport coefficients and operating characteristics of CO₂/N₂/He laser mixtures [J]. J. Appl. Phys., 1973, 44: 4664-4671.
- [159] <http://www.caeonline.com/>
- [160] Gray D C, Sawin H H and Butterbaugh J W. Quantification of surface film formation effects in fluorocarbon plasma etching of polysilicon [J]. J. Vac. Sci. Technol. A, 1991, 9: 779-785.
- [161] Zhang D and Kushner M J. Surface kinetics and plasma equipment model for Si etching by fluorocarbon plasmas [J]. J. Appl. Phys., 2000, 87: 1060-1069.
- [162] Zhao S X, Gao F, Wang Y N, et al. Gas ratio effects on the Si etch rate and profile uniformity in an inductively coupled Ar/CF₄ plasma [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2013, 22: 015017.
- [163] Takagu S, Onoue S, Lyanagi K, et al. Predictable topography simulation of SiO₂ etching by C₅F₈ gas combined with a plasma simulation, sheath model and chemical reaction model [J]. Plasma Sources Sci. Technol., 2013, 22: S64-S71.
- [164] P. De Schepper. Interuniversity Microelectronics Centre, Kapeldreef 75 B-3001, Leuven, Belgium.

攻读博士学位期间科研项目及科研成果

1. **Yu-Ru Zhang**, Xiang Xu, and You-Nian Wang. Phys. Plasmas, 2010, 17(3): 033507. 主办单位: American Institute of Physics. SCI 和 EI 检索期刊, 本文 SCI 检索号: 000276210100063, 本文 EI 检索号: 20101512839235. (本博士学位论文第二章)

2. **Yu-Ru Zhang**, Xiang Xu, Shu-Xia Zhao, Annemie Bogaerts and You-Nian Wang. Phys. Plasmas, 2010, 17(11): 113512. 主办单位: American Institute of Physics. SCI 和 EI 检索期刊, 本文 SCI 检索号: 000285486500105, 本文 EI 检索号: 20105113507705. (本博士学位论文第三章)

3. **Yu-Ru Zhang**, Xiang Xu, Annemie Bogaerts and You-Nian Wang. J. Phys. D: Appl. Phys., 2012, 45(1): 015202. 主办单位: Institute of Physics. SCI 和 EI 检索期刊, 本文 SCI 检索号: 000298290000011, 本文 EI 检索号: 20115114618812. (本博士学位论文第四章)

4. **Yu-Ru Zhang**, Xiang Xu, Annemie Bogaerts and You-Nian Wang. J. Phys. D: Appl. Phys., 2012, 45(1): 015203. 主办单位: Institute of Physics. SCI 和 EI 检索期刊, 本文 SCI 检索号: 000298290000012, 本文 EI 检索号: 20115114618813. (本博士学位论文第四章)

5. **Yu-Ru Zhang**, Annemie Bogaerts and You-Nian Wang. J. Phys. D: Appl. Phys., 2012, 45(48): 485204. 主办单位: Institute of Physics. SCI 和 EI 检索期刊, 本文 SCI 检索号: 000311148300011, 本文 EI 检索号: 20124715685144. (本博士学位论文第五章)

6. Xiang Xu, Shu-Xia Zhao, **Yu-Ru Zhang**, and You-Nian Wang. J. Appl. Phys., 2010, 108(4): 043308. 主办单位: American Institute of Physics. SCI 和 EI 检索期刊, 本文 SCI 检索号: 000281857100030, 本文 EI 检索号: 20103613221299. (本博士学位论文第三章)

7. Zhen-Hua Bi, Zhong-Ling Dai, **Yu-Ru Zhang**, Dong-Ping Liu and You-Nian Wang. Plasma Sources Sci. Technol., 2013, 22(5): 055007. 主办单位: Institute of Physics. SCI 和 EI 检索期刊, 本文 SCI 检索号: 000325246400007, 本文 EI 检索号: 20134616968483. (本博士学位论文第二章)

8. 徐翔, 张钰如, 王友年. 软件著作权: 感性耦合等离子体放电模拟软件。

科研项目与科研成果

1. 等离子体工艺腔室的多场耦合仿真, 国家重大科技专项, 项目编号: 2011ZX02403, 负责人: 王友年, 起止年限: 2011.01-2014.12, 金额: 849 万
2. 等离子体工艺腔室仿真及实验评价, 国家国际科技合作专项项目, 项目编号: 2012DFG02150, 负责人: 王友年, 起止年限: 2012.06-2014.06, 金额: 89 万
3. 射频及脉冲偏压对感应耦合等离子体动力学行为影响的研究, 国家自然科学基金面上项目, 项目编号: 11275038, 负责人: 李雪春, 起止年限: 2012.01-2015.12, 金额: 70 万

致 谢

经过了四年半的学习，终于迎来了这一天。在论文即将完成的时刻，在这里对每一位帮助过我的人表示我最诚挚的谢意。

首先我要特别感谢我的导师王友年教授。我从本科毕业设计阶段，开始接触低温等离子体模拟。在初始阶段，王老师不厌其烦，耐心解答我提出的所有问题。从最初的数值求解偏微分方程，到后来的二维流体力学模型的建立，在王老师的悉心指导下，我逐步对低温等离子体物理有了系统的了解。每当科研遇到困难时，经王老师指点后总能柳暗花明。王老师严谨的治学态度和扎实的理论功底，都将永远是我学习的榜样。王老师不仅在学术上给予我充分的指导，并且为我创造了良好的学习环境和出国交流的机会。本论文的所有工作都是在王老师的指导下完成的，在此对王老师表达我内心最诚挚的感谢和敬意。

此外，还要感谢我的合作导师、比利时安特卫普大学化学系教授 Annemie Bogaerts 博士。在 Bogaerts 教授的帮助指导下，我的英文论文撰写水平有了很大的进步。对于我的每篇文章，Bogaerts 教授都会认真的修改文字错误，并提出许多宝贵的意见。在我博士学习的最后阶段，Bogaerts 教授为我提供了到安特卫普大学读取双博士学位的机会，并对我的工作和学习给予了极大的帮助与支持。

感谢 Mark Kushner 教授提供的 HPEM 代码，感谢 Peter De Schepper 为本论文的第六章提供实验数据。

感谢课题组的宋远红教授，李雪春教授，戴忠玲教授和徐翔副教授。从您们身上，我也学到很多。能在这样一个优秀的科研小组学习，我感到无比的光荣与自豪。感谢教授我课程的王德真教授，孙继忠教授，丁振峰教授和刘悦教授等。感谢您们耐心地讲解，使我在课堂上学到了很多知识，为我的科研学习打下了良好的基础。

感谢毕振华师兄，赵书霞师姐，高飞师兄，刘相梅师姐，姜巍师兄对我的帮助和指导，尤其感谢毕振华师兄在学术上的讨论和数值模拟方面的帮助，以及各方面对我的包容。感谢比利时安特卫普大学化学系的 Stefan Tinck 博士在 HPEM 模型以及相关软件等方面的帮助，与你的交流使我的学习生活丰富多彩了许多，在此对你表示感谢，尽管你可能看不懂这复杂的中文。

感谢毕振华，梁英爽，徐会静，刘岳在论文撰写方面的帮助。感谢课题组其他所有的同学，感谢你们对我学习工作的支持与帮助，感谢你们带给我的快乐时光。

感谢国家自然科学基金，国家重大科技专项等基金的支持。

感谢我的父母多年来对我的照顾，您们无微不至的关怀和无私的爱，是我前进的动力。每当我的工作生活遇到困难时，是您们的鼓励使我有继续前行的勇气。同时，感谢我所有的朋友为我的生活增添了色彩。

总之，这篇论文是在大家的帮助下完成的，在此再次向所有帮助过我的人表达我最诚挚的感谢，愿大家一切顺利！

作者简介

姓名：张钰如

性别：女

出生年月：1987 年 4 月

民族：汉

籍贯：河北省冀州市

研究方向：等离子体物理

简历：

2005.09-2009.07 大连理工大学 光信息科学与技术专业 本科

2009.09-2014.01 大连理工大学 等离子体物理专业 直博

2013.04-2013.10 比利时安特卫普大学 化学系 博士研究生



大连理工大学学位论文版权使用授权书

本人完全了解学校有关学位论文知识产权的规定，在校攻读学位期间论文工作的知识产权属于大连理工大学，允许论文被查阅和借阅。学校有权保留论文并向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子版，可以将本学位论文的全部或部分内容编入有关数据库进行检索，可以采用影印、缩印、或扫描等复制手段保存和汇编本学位论文。

学位论文题目： 甚高频容性耦合等离子体中电磁效应的数值研究

作者签名： _____ 日期： _____ 年 _____ 月 _____ 日

导师签名： _____ 日期： _____ 年 _____ 月 _____ 日