

### 13.56 MHz/2 MHz柱状感性耦合等离子体参数的对比研究

张改玲 滑跃 郝泽宇 任春生

Experimental investigation of plasma parameters in 13.56 MHz/2 MHz cylindrical inductively coupled plasma

Zhang Gai-Ling Hua Yue Hao Ze-Yu Ren Chun-Sheng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 68, 105202 (2019) DOI: 10.7498/aps.68.20190071

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190071>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

#### 您可能感兴趣的其他文章

##### Articles you may be interested in

高压空气环状感性耦合等离子体实验研究和参数诊断

Experimental investigation and parameter diagnosis of air high-pressure ring-shaped inductively coupled plasma

物理学报. 2015, 64(17): 175201 <https://doi.org/10.7498/aps.64.175201>

碰撞等离子体中电中性条件对单探针测量的约束

The electrical-neutrality constraint of single Langmuir probe measurement in collisional plasma

物理学报. 2015, 64(11): 115201 <https://doi.org/10.7498/aps.64.115201>

电磁波在非磁化等离子体中衰减效应的实验研究

Experimental investigation on attenuation effects of electromagnetic waves in an unmagnetized plasma

物理学报. 2015, 64(5): 055201 <https://doi.org/10.7498/aps.64.055201>

甚高频激发的容性耦合Ar+O<sub>2</sub>等离子体电负特性研究

Electronegativity of capacitively coupled Ar+O<sub>2</sub> plasma excited at very high frequency

物理学报. 2017, 66(18): 185202 <https://doi.org/10.7498/aps.66.185202>

放电参数对同轴枪中等离子体团的分离的影响

Influence of discharge parameters on blow-by in a coaxial plasma gun

物理学报. 2015, 64(7): 075201 <https://doi.org/10.7498/aps.64.075201>

# 13.56 MHz/2 MHz 柱状感性耦合等离子体参数的对比研究\*

张改玲 滑跃 郝泽宇 任春生†

(大连理工大学物理学院, 三束材料改性教育部重点实验室, 大连 116024)

(2019年1月14日收到; 2019年3月20日收到修改稿)

通过 Langmuir 双探针和发射光谱诊断方法, 对比研究了驱动频率为 13.56 MHz 和 2 MHz 柱状感性耦合等离子体中电子密度和电子温度的径向分布规律. 结果表明: 在高频和低频放电中, 输入功率的增加对等离子体参数产生了不同的影响, 高频放电中主要提升了电子密度, 低频放电中则主要提升了电子温度. 固定气压为 10 Pa, 分别由高频和低频驱动时, 电子密度的径向分布均为“凸型”. 而电子温度的分布差异比较明显, 高频驱动时, 电子温度在腔室中心较为平坦, 在边缘略有上升; 低频驱动时, 电子温度随径向距离的增加而逐渐下降. 为了进一步分析造成这种差异的原因, 在相同放电条件下采集了氩等离子体的发射光谱图, 利用分支比法计算了亚稳态粒子的数密度, 发现电子温度的径向分布始终与亚稳态粒子的径向分布相反. 继续升高气压到 100 Pa, 发现不论高频还是低频放电, 电子密度的径向分布均从“凸型”转变为“马鞍形”, 较低气压时电子密度的均匀性有了一定的提升, 但低频的均匀性更好.

**关键词:** 感性耦合等离子体, Langmuir 双探针, 发射光谱, 等离子体参数

**PACS:** 52.50.Qt, 52.70.-m, 52.70.Kz, 52.25.-b

**DOI:** 10.7498/aps.68.20190071

## 1 引言

射频感性耦合等离子体 (inductively coupled plasma, ICP) 源可以在较低的射频电压下产生密度较高的等离子体, 独立控制等离子体密度和入射到基片台上的离子能量, 且不存在电极干扰<sup>[1-3]</sup>. 近年来, 被广泛应用于超大规模集成电路制造、材料加工、薄膜沉积及等离子体刻蚀等领域<sup>[3-5]</sup>. 随着芯片面积越来越大, 刻蚀线宽越来越细, 对等离子体技术提出了更高的要求, 同时在薄膜沉积工艺中也面临大面积均匀与高密度并存的挑战. 这些工艺需求的提高, 不仅仅是一个技术问题, 更重要的是需要对等离子体工艺进程中涉及到的一些复杂的物理问题进行深入研究. 例如, 外界放电参数对

等离子体状态参数的调控, 以及等离子体状态参数与工艺过程的关系等. 而 ICP 源中等离子体的产生和维持主要是通过射频电流感应而来的时变电场加速电子与中性粒子发生非弹性碰撞来实现的, 其中电源的驱动频率直接影响感应电场的强弱<sup>[6-8]</sup>. 因此, 驱动频率作为产生和维持等离子体的重要参数, 与等离子体源的性能密切相关. 目前, 随着实验诊断手段和数值理论方法的不断发展, 国内外的众多学者关于驱动频率对 ICP 的影响从实验和理论两个方面展开了大量研究.

大部分研究选择了 13.56 MHz 作为 ICP 源的驱动频率. 如 Godyak 等<sup>[9]</sup>详细研究了该频率的 ICP 中输入功率和放电气压对等离子体参数的影响; Chang 等<sup>[10,11]</sup>在此频率下研究了天线尺寸和腔室长度对电子密度、电子温度等参数的影响, 发

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11475038) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: rchsh@dlut.edu.cn

现采用直径较大的线圈可以实现大面积放电,但是随着线圈直径变大,其长度也会增加,因此回路中的阻抗变大,进而导致天线上的电压增加,容性耦合随之变强,最终导致等离子体径向不均匀的发生.因此, Xu 等尝试使用了较低的频率 (500 kHz),分析了等离子体密度、电势、电子温度以及发射光谱强度,同时验证了  $E-H$  模式转换的过程,发现该频率的等离子体源具有大面积均匀以及低电路损耗等优点,但同时也存在等离子体电势较高、能量效率较低的问题<sup>[3]</sup>.而 Su 等<sup>[12]</sup>研究了更高频率 (40 MHz) 的 ICP 源的特性,主要分析了频率对电子能量分布函数的影响,研究发现在碰撞加热主导的条件下,电子能量分布函数与频率密切相关.以上研究均是在平面 ICP 源中进行的,单独分析了某个频率驱动下产生的等离子体的特性,缺乏对柱状 ICP 源的详细研究.而柱面 ICP 源在聚变点火中性束加热<sup>[13]</sup>、等离子体推进以及等离子体电离溅射镀膜<sup>[14]</sup>等领域有不可代替的优势.由于在不同的应用中对等离子体参数的要求也不尽相同,而驱动频率是影响等离子体特性及其空间分布的直接因素,对等离子体源的设计和调控至关重要.

因此,我们认为有必要对柱状 ICP 源进行深入研究.当外界条件一致时,详细对比不同驱动频率下产生的等离子体的差异.由于趋肤效应随频率的增加而更加明显,外部的能量很难耦合到等离子体中,因此,本文选择常用的 13.56 MHz 作为高频信号,而频率太低则很难实现点火放电,所以选择 2 MHz 作为低频信号,对比研究了这两种频率单独驱动放电时等离子体参数的特征,通过分析电子密度、电子温度以及亚稳态粒子的径向分布,进一步研究了频率对放电的影响,并通过计算等离子体特征参数,如趋肤深度、电子能量弛豫长度等,深入分析了高低频放电中输入功率、气压对等离子体参数的影响以及其中的物理机理,为不同工艺中选择不同频率的驱动电源提供参考.

## 2 实验装置

本实验所采用的射频感性耦合放电装置如图 1 所示.它主要由一个厚度为 4 mm,直径为 260 mm,高为 370 mm 的圆柱形石英腔和一个不锈钢真空底座组成,其中将石英腔室的底平面中心设置为  $z = 0$  cm,  $r = 0$  cm,  $z$  轴的正方向竖直向上.在圆

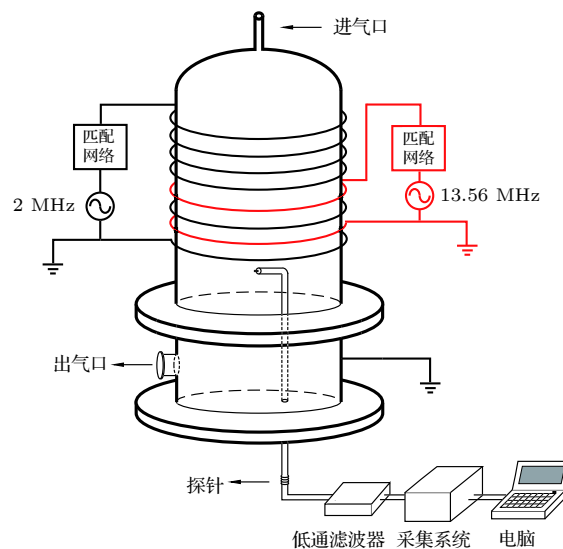


图 1 柱状感性耦合等离子体源的实验装置图

Fig. 1. A schematic diagram of the cylindrical inductively coupled plasma reactor.

柱形石英腔室的外表面缠绕八匝内径为 6 mm,外径为 8 mm 的空心铜管作为天线,其中两匝通过 L 型匹配网络与频率为 13.56 MHz 的高频电源 (SKY5000 W) 相连,另一端接地,高频电源的功率调节范围为 0—5000 W;其余六匝线圈通过 L 型匹配网络与频率为 2 MHz 的低频电源相连,另一端接地,低频电源的功率调节范围为 0—2000 W.在实验过程中,通过调节匹配使反射功率与总功率的比值小于 1%.为了防止线圈过热,向放电铜管内通入从低温冷却液循环泵 (DLSB-10/10°) 中流出的循环冷却水.抽气系统则由双极旋片真空泵 (中科科仪 RVP-4) 和涡轮分子泵 (中科科仪 F-110/110) 组合而成,可以达到的最低真空为  $2 \times 10^{-3}$  Pa.实验中采用氩气作为工作气体,并通过质量流量计 (D008-1D/ZM) 调节进气的流量,同时采用电离真空计 (ZJ-27) 监测放电腔室中的气压<sup>[15,16]</sup>.

实验中采用 Langmuir 双探针测量等离子体的相关参数,而探针诊断系统主要由探针、低通滤波器、采集系统以及笔记本电脑组成,其中探针是由两根直径为 0.2 mm 的圆柱形钨丝制成,彼此平行,暴露在等离子体中的长度均为 5 mm,其余部分由直径为 1 mm 的氧化铝陶瓷管覆盖.探针系统的工作电源由笔记本电脑的电池直接供电.通过给浸入等离子体中的裸露钨丝施加扫描电压,收集轰击到探针表面的电子流和离子流,从而得到电流-电压 ( $I-V$ ) 特征曲线,通过分析  $I-V$  曲线可以获取

等离子体的参数, 例如电子密度、电子温度等. 探针可以沿着轴向和径向自由移动, 以便测量等离子体参数的空间分布. 为了避免二次谐波甚至高次谐波对  $I$ - $V$  曲线的干扰进而导致测量结果的不准确, 在探针和采集系统之间连接低通滤波器, 整个测量系统对地悬浮 [7,15,16].

另一种诊断方式是采集发射光谱. 发射光谱诊断作为一种非侵入式的诊断方式, 不会对等离子体造成干扰, 大量文献表明, 通过这些丰富的谱线信息可以获得等离子体中激发态以及亚稳态粒子数密度的相关信息 [17-23]. 谱线强度表示了从较高能级  $j$  到低能级  $i$  过程中发射特定波长的光的强度, 如 (1) 式:

$$I_{ji} = K_{ji} n_j^* h \frac{c}{\lambda_{ji}} A_{ji}, \quad (1)$$

其中  $K_{ji}$  表示与等离子体体积相关的因子,  $n_j^*$  表示上能级的密度,  $h$  为普朗克常量,  $c$  为光速,  $\lambda_{ji}$  为光的波长,  $A_{ji}$  为跃迁概率, 光强的变化与氩等离子体中物质的数密度密切相关 [17]. 在采集光谱之前, 利用汞灯对实验中所用的光谱仪 (ACTON SpectraPro 2500i) 进行了校准, 测量过程中具体参数设置如下: 积分时间为  $1 \mu\text{s}$ , 狭缝宽度为  $10 \mu\text{m}$ , 所选光栅为  $1200 \text{条}/\text{mm}$ , 其闪耀波长  $500 \text{nm}$ . 在光纤前端安装准直器 (F240SMA-A), 将两者固定在距腔室顶部  $17 \text{cm}$  处, 即  $z = 54 \text{cm}$ ,  $r = 1 \text{cm}$  处, 并与腔室顶部垂直. 我们认为等离子体发出的平行光通过准直器会聚到光纤探头, 由于放电腔室不同发光位置的光会聚的点的位置也不相同, 所以沿径向平行移动准直器, 即可得到对应位置的发光强度, 进而测出放电腔室中径向不同位置的光谱 [19].

氩气放电中的典型谱线如图 2 所示, 其中波长为  $750.4 \text{nm}$  的谱线是氩原子由  $2p_1$  态退激发到  $1s_2$  态产生的, 而  $2p_1$  态主要由高能电子与处于基态的氩原子碰撞激发产生, 由高能级的级联跃迁过程忽略不计; 而  $811.5 \text{nm}$  这条谱线是氩原子由  $2p_9$  态退激发到  $1s_5$  亚稳态产生的,  $2p_9$  态主要由低能电子与基态氩原子以及亚稳态粒子碰撞激发产生 [22]. 根据 (2) 式:

$$\frac{I_{811}}{I_{750}} = C \left( \frac{k_{811}^{\text{dir}}}{k_{750}^{\text{dir}}} + \frac{k_{811}^{\text{m}} n_{\text{Ar}}^{\text{m}}}{k_{750}^{\text{dir}} n_{\text{Ar}}} \right), \quad (2)$$

其中  $C$  表示光谱仪测量谱线的灵敏度因子;  $k^{\text{dir}}$  和  $k^{\text{m}}$  分别表示基态和亚稳态的激发速率, 具体数值可以通过查阅文献 [24] 得知;  $n_{\text{Ar}}$  表示基态氩原子

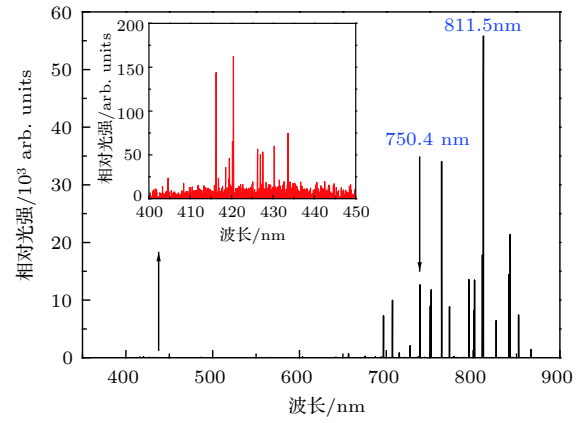


图 2 频率为  $13.56 \text{MHz}$ , 气压为  $10 \text{Pa}$ , 输入功率为  $400 \text{W}$ , 腔室中心 ( $r = 0 \text{cm}$ ) 处氩等离子体发射光谱全谱

Fig. 2. Argon plasma emission spectroscopy at  $10 \text{Pa}$  for  $13.56 \text{MHz}$  radio-frequency discharge. The radio-frequency power is fixed at  $400 \text{W}$  and the measurement plane is  $r = 0 \text{cm}$ .

的密度,  $n_{\text{Ar}}^{\text{m}}$  表示  $1s_5$  亚稳态粒子的数密度, 因此可以通过计算  $811.5 \text{nm}$  和  $750.4 \text{nm}$  这两条谱线的强度比来计算  $1s_5$  亚稳态粒子的浓度 [18,23]. 由 (2) 式可知  $1s_5$  亚稳态粒子的数密度与  $I_{811}/I_{750}$  的比值成正相关, 在本文中我们主要研究  $1s_5$  亚稳态粒子数密度的相对变化趋势.

### 3 实验结果与分析

为了研究驱动频率对等离子体参数的影响, 在保证气压不变的条件下, 利用 Langmuir 双探针分别测量了频率为  $13.56 \text{MHz}$  和  $2 \text{MHz}$  时, 电子密度和电子温度随输入功率以及径向位置的变化.

#### 3.1 高频和低频分别驱动时, 等离子体参数随功率的变化

固定气压为  $10 \text{Pa}$ , 在输入功率为  $200, 400, 600, 800, 1000 \text{W}$  时, 测量轴向位置  $z = 10 \text{cm}$ ,  $r = 0 \text{cm}$  处, 电子密度和电子温度随输入功率的变化情况如图 3 所示. 为了保证实验数据的准确性, 每个数据点都是至少三次测量结果的平均, 并通过计算数据的标准差得出了相应的误差棒.

从图 3(a) 中发现, 高频和低频放电中电子密度均随输入功率的增加而增加, 但在输入功率相同的条件下, 高频放电产生的电子密度高于低频. 从功率耦合的角度来说, 射频功率主要通过电子与涡旋电场之间的相互作用沉积到等离子体中 [16], 随

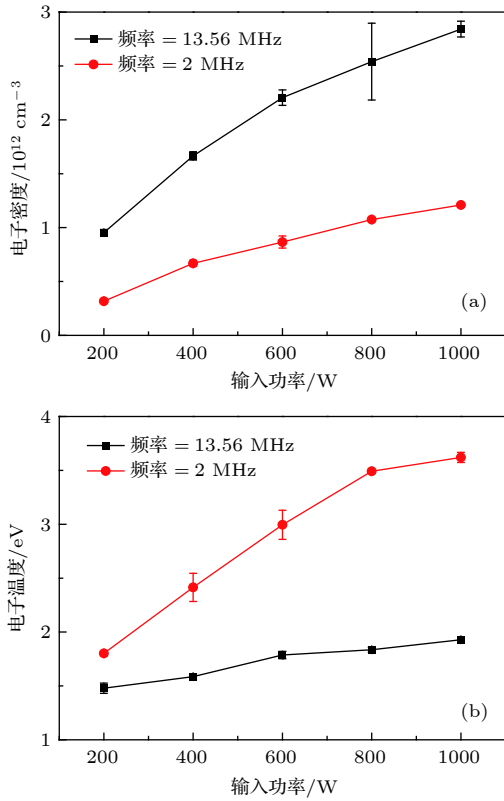


图3 气压为10 Pa时,在 $z = 10 \text{ cm}$ ,  $r = 0 \text{ cm}$ 处,13.56 MHz/2 MHz 放电中等离子体参数随功率的变化 (a) 电子密度; (b) 电子温度

Fig. 3. (a) The electron density and (b) electron temperature of 13.56 MHz/2 MHz discharge at different power. The gas pressure is fixed at 10 Pa and the measurement position is  $z = 10 \text{ cm}$ ,  $r = 0 \text{ cm}$ .

着输入功率的增加,电子在电场的作用下获得的能量增加<sup>[25]</sup>,与中性粒子碰撞后更容易电离产生电子;而频率表征了感应电磁场随时间变化的快慢,低频驱动时电磁场随时间变化慢,产生的感应电场较弱<sup>[26]</sup>,单个电子从涡旋电场中获得的能量较低,只能电离部分中性粒子,因此电子密度低于高频.从图3(b)中发现高频和低频放电中,电子温度也随输入功率的增加而增加,在之前的文献中也出现了相似的现象,一般认为是由中性气体加热效应所致<sup>[27,28]</sup>.仔细观察发现,高频放电时,电子温度随功率的增加从1.48 eV增加到1.93 eV,增幅较小,而低频放电时,电子温度的增幅较大,从1.80 eV增加到3.62 eV.在输入功率一定的条件下,低频放电中的电子温度高于高频,根据 $\nu_{\text{en}} = n_{\text{g}}K$ ,其中 $n_{\text{g}}$ 为中性粒子的数密度, $K$ 为电子与中性粒子的弹性碰撞速率系数,可以从文献[1]中查阅.在气压已知的条件下,由 $P = n_{\text{g}}kT$ ,其中 $k$ 为玻尔兹

曼常数, $T$ 为室温,实验中假设 $T = 300 \text{ K}$ ,即可得到中性粒子的数密度,进而求得电子与中性粒子的碰撞频率.比较得高频和低频的驱动频率均小于电子与中性粒子的碰撞频率,因此,根据碰撞趋肤深度的表达式:

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu_0 \omega \sigma_{\text{p}}}}, \quad (3)$$

$$\sigma_{\text{p}} = \frac{n_{\text{e}} e^2}{\nu_{\text{en}} m_{\text{e}}}, \quad (4)$$

其中 $\mu_0$ 为真空磁导率, $\omega$ 为驱动频率, $n_{\text{e}}$ 为电子密度, $e$ 为电子的电荷量, $m_{\text{e}}$ 为电子质量.发现趋肤深度与驱动频率成负相关<sup>[1,2]</sup>,计算得趋肤深度随输入功率的变化如图4所示.由图4可知,低频放电中趋肤深度大于高频,电场的穿透深度增加,加热区域变宽,可以加热更多电子,使电子的平均能量增加.综上所述,功率的增加产生了两方面的效果,一方面提高了电子密度,另一方面提升了电子温度<sup>[26]</sup>,对于高频而言,其感应产生的电磁场较强,单个电子获得的能量多,与中性粒子碰撞后更容易电离,因此能量主要用于提升电子密度;而低频驱动时,产生的电磁场较弱,单个电子获得的能量少,但趋肤深度较厚,加热的电子数量多,能量主要用于提升电子温度.

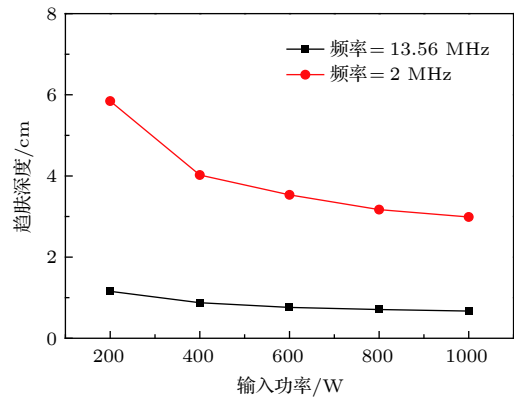


图4 气压为10 Pa时,13.56 MHz/2 MHz 放电中趋肤深度随功率的变化

Fig. 4. The skin depth versus input power for 13.56 MHz/2 MHz discharge at 10 Pa.

### 3.2 气压10 Pa、高频和低频分别驱动时等离子体参数的径向分布

固定气压为10 Pa,驱动频率分别为13.56 MHz和2 MHz,在输入功率为400,600,800,1000 W

时, 测量了径向平面 ( $z = 10$  cm) 上电子密度和电子温度的分布. 图 5(a) 和图 5(b) 分别为高频和低频放电时, 电子密度随径向位置的变化.

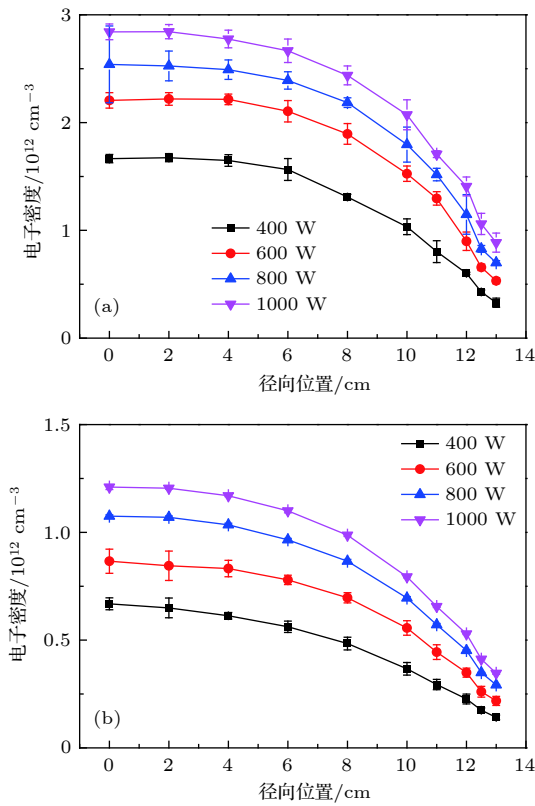


图 5 气压为 10 Pa 时,  $z = 10$  cm 处, 13.56 MHz/2 MHz 放电中电子密度的径向分布 (a) 高频 13.56 MHz; (b) 低频 2 MHz

Fig. 5. The radial distribution profiles of electron density for (a) 13.56 MHz and (b) 2 MHz discharge. The gas pressure is fixed at 10 Pa and the measurement plane is  $z = 10$  cm.

从图 5 中可以看出, 高频和低频分别放电时, 在功率一定的条件下, 电子密度的径向分布均呈现“凸型”分布, 这是因为等离子体具有抗磁性, 感应电场主要分布在靠近天线的位置, 因此电子加热主要发生在腔室边缘, 而被涡旋电场加热的电子可以在较短时间内穿过趋肤层并获得能量 [29,30], 之后在能量完全损失之前到达腔体内, 并与中性粒子发生非弹性碰撞产生电子, 各个方向的电子都向腔室中心堆积; 另外, 由于实验中采用的放电腔室, 其轴向长度为 370 mm, 径向宽度为 260 mm, 长宽比大于 1, 电子更容易在径向边缘与腔室壁发生复合损失, 而到达轴向边缘比较困难, 因此, 在轴向积累了较多的电子, 最终导致电子分布呈现中间高, 边缘低的“凸型”分布.

在相同的条件下, 测量了电子温度的径向分布

如图 6 所示, 由图可知, 在气压和输入功率相同的情况下, 高频放电中电子温度的径向分布较为平缓, 在腔室边缘略有上升, 这是由于电子主要通过腔室壁上的线圈感应而来的交变电磁场获得能量, 之后向腔室中心运动的过程中, 与中性粒子发生非弹性碰撞损失能量, 且低能电子不能克服腔室中心的双极性电势到达边缘加热 [16]; 而由于低频放电中感应产生的电场较弱, 单个电子在边缘获得的能量较少, 发生直接电离比较困难, 在腔室边缘获得能量之后先发生反应,  $\text{Ar} + e(11.4\text{eV}) \rightarrow \text{Ar}^* + e$ , 产生了大量  $\text{Ar}^*$  损失了较多的能量, 之后这些亚稳态粒子继续向腔室中心运动的过程中与电子碰撞电离,  $\text{Ar}^* + e(4.2\text{eV}) \rightarrow \text{Ar}^+ + 2e$ , 因此导致电子温度的径向分布为中间高, 边缘低的“凸型”分布.

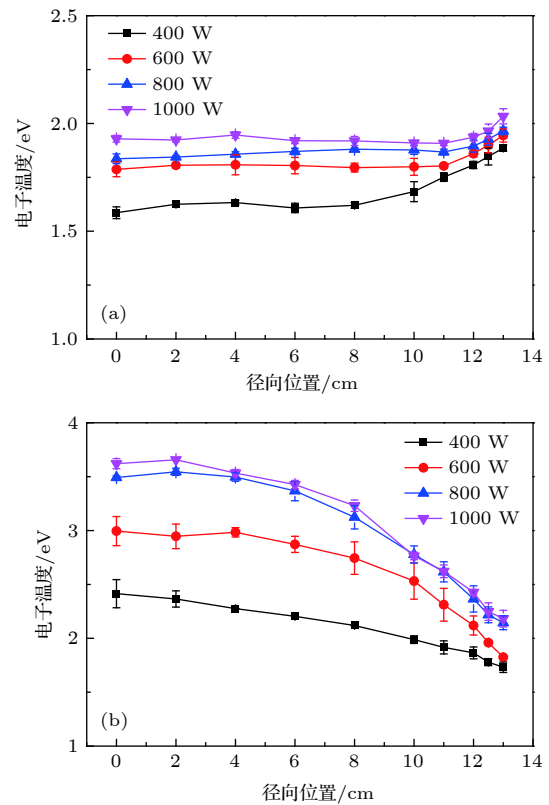


图 6 气压为 10 Pa 时, 高低频放电中电子温度的径向分布 (a) 高频 13.56 MHz; (b) 低频 2 MHz

Fig. 6. The radial distribution profiles of electron temperature for (a) 13.56 MHz and (b) 2 MHz discharge. The gas pressure is fixed at 10 Pa and the measurement plane is  $z = 10$  cm.

为了验证上述过程, 在相同的实验条件下, 通过测量发射光谱, 计算了波长为 811.5 nm 和 750.4 nm 的两条谱线的强度比, 比值随径向位置的变化如图 7 所示.

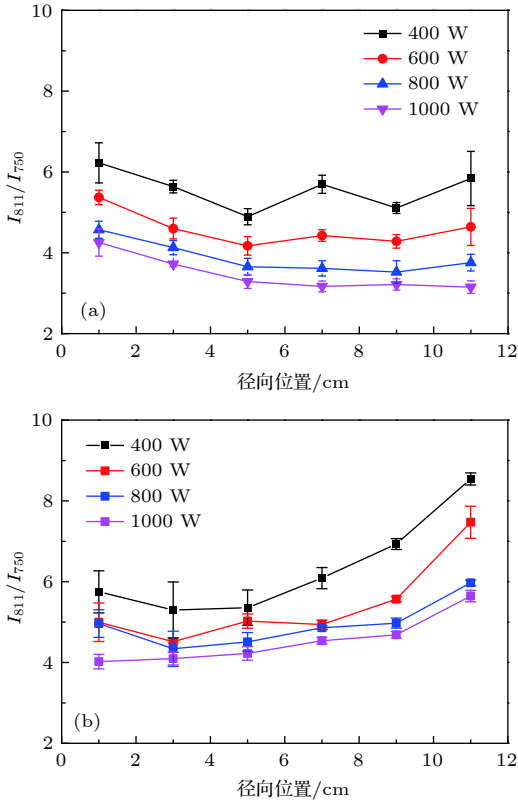


图 7 气压为 10 Pa 时, 高低频放电中亚稳态的径向分布 (a) 高频 13.56 MHz; (b) 低频 2 MHz  
 Fig. 7. The radial distribution profiles of metastable states for (a) 13.56 MHz and (b) 2 MHz discharge at 10 Pa.

从图 7 中可见, 高频放电条件下,  $I_{811}/I_{750}$  的比值在腔室中心较高, 随径向距离的增加缓慢下降, 高频放电中电子在边缘获得能量并向腔室中心运动的过程中主要发生直接电离, 同时也发生激发过程产生  $Ar^*$ , 由于  $Ar^*$  为电中性, 在扩散过程中不受电场和磁场作用, 各个方向产生的  $Ar^*$  均向腔室中心扩散, 导致中心处  $Ar^*$  密度较高.  $Ar^*$  的径向分布验证了图 6(a) 中相同条件下电子温度的分布. 而在低频放电中,  $I_{811}/I_{750}$  比值随径向距离的增加缓慢升高, 这是因为电子从靠近腔室壁的天线获得能量之后, 首先与中性氩原子发生非弹性碰撞激发产生大量的亚稳态粒子, 由于亚稳态粒子具有较长的寿命 [23], 继续向腔室中心运动的过程中与电子发生碰撞电离被消耗. 正是由于腔室边缘产生了大量的  $Ar^*$ , 导致边缘能量损失较多, 造成电子温度的下降, 这与图 6(b) 中低频放电时电子温度的径向分布一致, 同时验证了前文中关于低频放电由多步电离主导的分析.

### 3.3 气压 100 Pa、高频和低频分别驱动时等离子体参数的径向分布

为了进一步研究高压下频率对等离子体参数的影响, 将气压升高为 100 Pa, 驱动频率分别为 13.56 MHz 和 2 MHz, 在输入功率为 400, 600, 800, 1000 W 时, 测量了径向平面 ( $z = 10$  cm) 上电子密度和电子温度的分布. 图 8(a) 和图 8(b) 分别为 13.56 MHz 和 2 MHz 放电时, 电子密度随径向位置的变化.

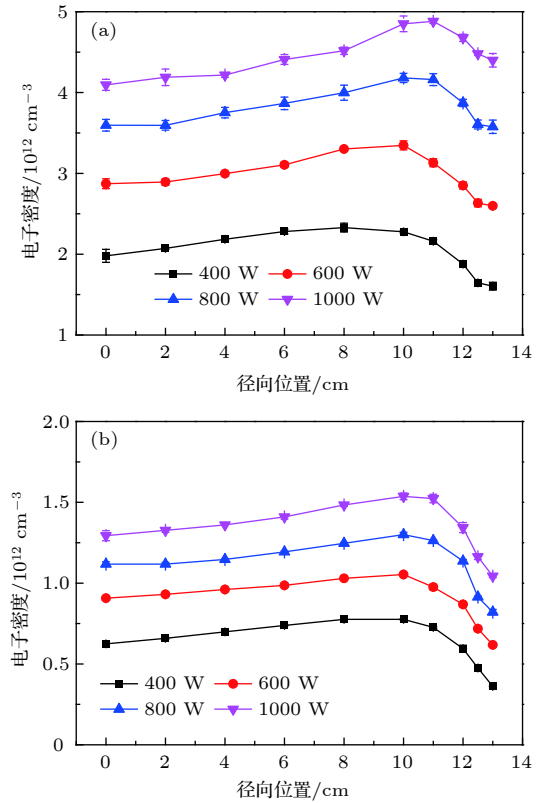


图 8 气压为 100 Pa 时高低频放电中电子密度的径向分布 (a) 频率为 13.56 MHz; (b) 频率为 2 MHz  
 Fig. 8. The radial distribution profiles of electron density (a) 13.56 MHz and (b) 2 MHz discharge. The gas pressure is fixed at 100 Pa and the measurement plane is  $z = 10$  cm.

从图 8 中可以看出, 无论在高频还是低频放电条件下, 电子密度的径向分布均为“马鞍形”, 峰值在  $R = 10-12$  cm 之间, 与图 5 中 10 Pa 条件下高频和低频放电中电子密度的径向分布相比, 其均匀性得到了改善, 但低频的均匀性优于高频. 图 9 所示为计算了不同气压下高频和低频放电中不均匀度随输入功率的变化, 与上述分析一致. 其中不均匀度可以衡量一个测量平面内电子密度的空间分布状况, 不均匀度越小代表该平面内电子密度的

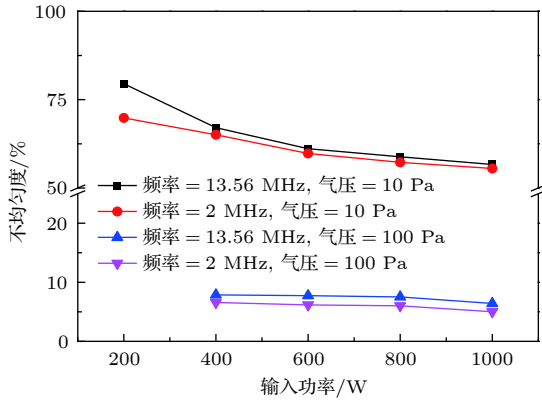


图9 气压为10 Pa和100 Pa时,在 $z = 10$  cm处,高低频放电中径向不均匀度随功率的变化

Fig. 9. The nonuniformity at different power for 13.56 MHz/2 MHz discharge. The gas pressure is fixed at 10 Pa and 100 Pa, the measurement plane is  $z = 10$  cm.

空间分布越均匀. 其表达式如下:

$$\text{不均匀度} = \frac{n_{\max} - n_{\min}}{n_{\max} + n_{\min}} \times 100\%, \quad (5)$$

式中 $n_{\max}$ 和 $n_{\min}$ 分别表示所测平面内电子密度的最大值和最小值<sup>[31]</sup>.

根据电子与中性粒子碰撞的平均自由程和电子能量弛豫长度计算公式:

$$\lambda_{\text{en}} = \frac{1}{n_{\text{g}}\sigma}, \quad (6)$$

$$\lambda_{\varepsilon} = \lambda_{\text{en}} \sqrt{\frac{2m_{\text{e}}}{M} + \frac{\nu_{\text{ee}}}{\nu_{\text{en}}}}, \quad (7)$$

$$\nu_{\text{ee}} = 2.91 \times 10^{-6} n_{\text{e}} T_{\text{e}}^{-3/2} \ln \Lambda, \quad (8)$$

$$\ln \Lambda = \begin{cases} 23 - \ln(n_{\text{e}}^{1/2} T_{\text{e}}^{-3/2}), & T_{\text{e}} \leq 10 \text{ eV} \\ 24 - \ln(n_{\text{e}}^{1/2} T_{\text{e}}^{-1}), & T_{\text{e}} > 10 \text{ eV} \end{cases}, \quad (9)$$

其中 $\sigma$ 为碰撞截面,  $M$ 为氩原子的质量,  $\nu_{\text{ee}}$ 为电子与电子的碰撞频率,  $\nu_{\text{en}}$ 为电子与中性粒子的碰撞频率,  $T_{\text{e}}$ 为电子温度<sup>[1,2]</sup>. 我们认为高频和低频放电中电子密度的径向分布均呈现“马鞍形”的原因是:随着气压的增加,中性粒子数密度增多,由(6)式可得随着气压的升高,中性粒子的数密度增加,电子的平均自由程减小,与中性粒子的碰撞频率增加,单位体积内产生更多的带电粒子,因此电子密度增加. 经过计算得出电子的能量弛豫长度如图10所示,随气压的升高,电子的能量弛豫长度急剧下降,在线圈周围加热的电子,在极短的自由程内与中性粒子发生非弹性碰撞,产生大量电子,

因此在 $R = 10-12$  cm之间出现峰值,这些损失了大量能量的电子,继续向腔室中心运动时,只能电离部分中性粒子,所以腔室中心电子密度较低<sup>[16]</sup>.

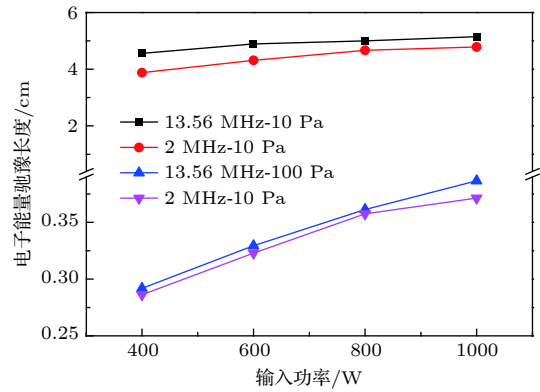


图10 气压为10 Pa和100 Pa时,13.56 MHz/2 MHz放电中电子能量弛豫长度随功率的变化

Fig. 10. The electron energy relaxation length versus input power for 13.56 MHz/2 MHz discharge. The gas pressure is fixed at 10 Pa and 100 Pa.

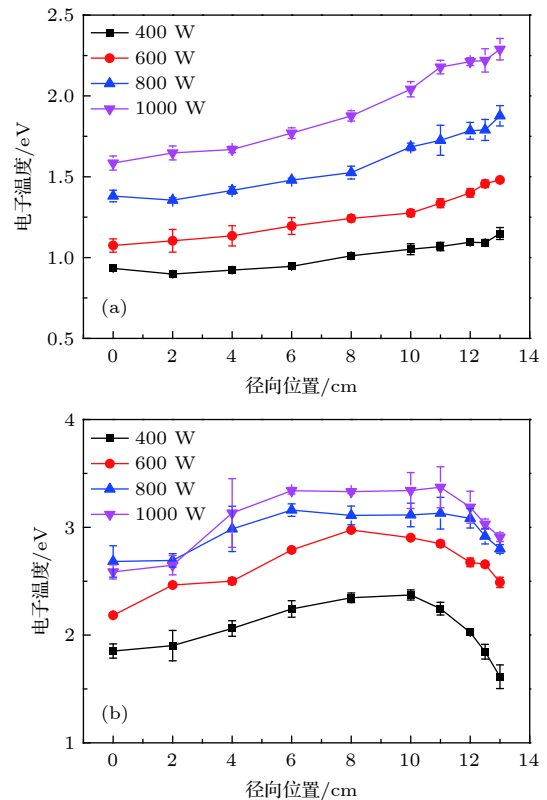


图11 气压为100 Pa时高低频放电中电子温度的径向分布 (a) 高频13.56 MHz; (b) 低频2 MHz

Fig. 11. The radial distribution profiles of electron temperature (a) 13.56 MHz and (b) 2 MHz discharge. The gas pressure is fixed at 100 Pa and the measurement plane is  $z = 10$  cm.

图 11(a) 和图 11(b) 为相同条件下电子温度的径向分布, 其中高频驱动时电子温度的分布情况与低频有较大差异. 高频放电时, 腔室边缘处的电子温度高于中心. 这是由于电子在腔室边缘获得能量后, 向中心运动的过程中与中性粒子发生非弹性碰撞, 导致能量损失. 其次, 由于与中性粒子发生非弹性碰撞产生了更多的电子, 电子与电子、电子与中性粒子之间的碰撞频率增加, 因此从边缘到中心电子温度缓慢下降<sup>[28]</sup>. 然而, 当低频驱动时, 电子温度随着径向距离的增加先缓慢增加之后下降, 在  $R = 10\text{--}12\text{ cm}$  范围内出现峰值, 通过计算得  $I_{811}/I_{750}$  比值的空间分布仍与电子温度的径向分布相反, 这与前文所述的原因一致, 进一步证明了高频放电中以直接电离为主, 低频放电中以多步电离为主.

## 4 结 论

本文结合 Langmuir 双探针和发射光谱两种诊断手段对柱状感性耦合等离子体中电子密度、电子温度以及亚稳态粒子的数密度等参数进行了研究. 由高频 (13.56 MHz) 和低频 (2 MHz) 分别驱动放电时, 随着输入功率的增加等离子体参数产生了不同的效果, 高频放电中感应而来的电磁场高于低频, 单个电子获得的能量较多, 与中性粒子碰撞后更容易电离产生电子, 输入功率主要提升了电子密度; 而在低频放电条件下, 趋肤层较厚, 加热的电子数量较多, 电子的平均能量增加, 功率主要提升了电子温度. 同时, 由于高频放电中以直接电离为主, 低频放电中主要以多步电离为主, 导致两种放电中电子温度的径向分布差异明显且总与亚稳态粒子的空间分布相反. 另外, 随着气压从 10 Pa 增加到 100 Pa, 高、低频放电中电子密度的径向分布均从“凸型”转变为“马鞍形”, 均匀性得到了改善, 但是低频的均匀性更好.

综上所述, 低频放电条件下, 可以产生均匀性较好的等离子体, 这为不考虑电子数密度的情况下, 提供了一种改善感性耦合等离子体不均匀性的解决方案, 但电子温度较高可能会产生溅射污染; 而高频放电产生的电子密度较高, 容易获得高密度的等离子体, 但高频放电中的趋肤效应更明显, 容易造成等离子体径向分布不均. 由此可见, 高频和低频单独放电各有优缺点, 本文的研究内容可以为不

同背景下选择合适的驱动频率提供一定的参考.

## 参考文献

- [1] Lieberman M A, Lichtenberg A J (translated by Pu Y K) 2004 *Principles of Plasma Discharge and Materials Processing* (Beijing: Science Press) pp1–19 (in Chinese) [迈克尔A.力伯曼, 阿伦J.里登伯格 著(蒲以康 译) 2004 等离子体放电原理与材料处理(北京: 科学出版社)第1—19页]
- [2] Chabert P (translated by Wang Y N) 2015 *Physics of Radio-Frequency Plasmas* (Beijing: Science Press) pp1–15 (in Chinese) [帕斯卡 夏伯特 著(王友年 译) 2015 射频等离子体物理学(北京: 科学出版社)第1—15页]
- [3] Xu S, Ostrikov K N, Li Y, Tsakadze E L, Jones I R 2000 *Phys. Plasmas* **45** 20
- [4] Saehoon U, Kyong-Ho L, Chang H Y, Chung C W 2004 *Phys. Plasmas* **11** 4830
- [5] Kim J H, Hwang H J, Kim D H, Cho J H, Chung C W 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 153302
- [6] Ding Z F, Yuan G Y, Gao W, Sun J C 2007 *Acta Phys. Sin.* **57** 4304 (in Chinese) [丁振峰, 袁国玉, 高巍, 孙景超 2007 物理学报 **57** 4304]
- [7] Gao F 2011 *Ph. D. Dissertation* (Dalian: Dalian University of Technology) (in Chinese) [高飞 2011 博士学位论文(大连: 大连理工大学)]
- [8] Zhao S X 2010 *Ph. D. Dissertation* (Dalian: Dalian University of Technology) (in Chinese) [赵书霞 2011 博士学位论文(大连: 大连理工大学)]
- [9] Godyak V A, Alexandrovich B M 2004 *Phys. Plasmas* **11** 3553
- [10] Lee H C, Chung C W 2015 *Phys. Plasmas* **22** 053505
- [11] Lee H C, Chung C W 2013 *Phys. Plasmas* **20** 101607
- [12] Jun H S, Chang H Y 2007 *Appl. Phys. Lett.* **92** 041501
- [13] Gao F, Zhang Y R, Li H, Liu Y, Wang Y N 2017 *Phys. Plasmas* **24** 073508
- [14] Liu F, Ren C S, Wang Y N, Qi X L, Ma T C 2006 *Vacuum* **81** 221
- [15] Hua Y, Song J, Hao Z Y 2018 *Plasma Sci. Technol.* **20** 065402
- [16] Hua Y, Song J, Hao Z Y, Zhang G L 2018 *Plasma Sci. Technol.* **20** 014005
- [17] Liu Y Z 2016 *M. S. Thesis* (Harbin: Harbin Institute of Technology) (in Chinese) [刘耀泽 2016 硕士学位论文(哈尔滨: 哈尔滨工业大学)]
- [18] Zhang J 2006 *M. S. Thesis* (Dalian: Dalian University of Technology) (in Chinese) [张健 2006 硕士学位论文(大连: 大连理工大学)]
- [19] Qi X L 2008 *Ph. D. Dissertation* (Dalian: Dalian University of Technology) (in Chinese) [齐雪莲 2008 博士学位论文(大连: 大连理工大学)]
- [20] Daltrini A M, Moshkalev S A, Monteiro M J R, Besseler E, Kostyukov A 2007 *J. Appl. Phys.* **101** 073309
- [21] Moshkalev S A, Steen P G, Gomez S, Graham W G 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 328
- [22] Han X 2015 *M. S. Thesis* (Harbin: Harbin Institute of Technology) (in Chinese) [韩雪 2015 硕士学位论文(哈尔滨: 哈尔滨工业大学)]
- [23] Daltrini A M, Moshkalev S A, Morgan T J 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 061504
- [24] Zhu X M, Pu Y K 2010 *J. Phys. D* **43** 015204
- [25] Czerwiec T, Graves D B 2004 *J. Phys. D* **37** 2827
- [26] Liu Y 2017 *M. S. Thesis* (Dalian: Dalian University of

- Technology) (in Chinese) [刘阳 2017 硕士学位论文(大连: 大连理工大学)]
- [27] Li H, Liu Y, Zhang Y R, Gao F, Wang Y N 2017 *J. Appl. Phys.* **121** 23302
- [28] Lee H C, Seo B H, Kwon D C, Kim J H, Seong D J, Oh S J, Chung C W, You K H, Shin C H 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 014106
- [29] Lee H C 2018 *Phys. Plasmas* **5** 011108
- [30] Lee H C, Lee M H, Chung C W 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 041503
- [31] Setsuhara Y, Tsukiyama D, Takenaka K 2008 *Surface & Coatings Technology* **202** 5238

# Experimental investigation of plasma parameters in 13.56 MHz/2 MHz cylindrical inductively coupled plasma\*

Zhang Gai-Ling   Hua Yue   Hao Ze-Yu   Ren Chun-Sheng<sup>†</sup>

(Key Laboratory of Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beams, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

(Received 14 January 2019; revised manuscript received 20 March 2019)

## Abstract

Inductively coupled plasmas are widely used in semiconductor and display process because of its desirable characteristics such as high plasma density, simple structure and independently controllable ion energy. The driving frequency is a significant parameter that generates and maintains the plasma. However, the effects of different driving frequencies on the radial distribution of the plasma parameters are hardly investigated. So a large area cylindrical inductively coupled plasma source driven separately by 2 MHz and 13.56 MHz is investigated. In order to perform a comprehensive investigation about the effect of driving frequency, the radially resolved measurements of electron density, electron temperature and density of metastable state atoms for the argon discharge are systematically analyzed by Langmuir double probe and optical emission spectroscopy at various power values and gas pressures. It is found that input power values at high frequency (13.56 MHz) and low frequency (2 MHz) have different effects on plasma parameters. When discharge is driven at high frequency, the electron density increases obviously with the increase of power. However, when discharge is driven at low frequency, the electron temperature increases evidently with the increase of power. This can be explained by calculating the skin depths in high and low frequency discharge. When the discharge is driven at high frequency, the induced electromagnetic field is higher than that at low frequency, and the single electron obtains more energy. It is easier to ionize, so the energy is mainly used to increase the electron density. When the discharge is driven at low frequency, the skin layer is thicker, the number of heated electrons is larger, and the average energy of electrons is increased, so the energy is mainly used to raise the electron temperature. At a gas pressure of 10 Pa, the electron density shows a ‘convex’ distribution and increases with the increase of input power for both the high-frequency and low-frequency discharge. While the distributions of electron temperature are obviously different. When the discharge is driven at high frequency, the electron temperature is relatively flat in the center of the chamber and slightly increases on the edge. When the discharge is driven at low frequency, the electron temperature gradually decreases along the radial position. This is due to the one-step ionization in the high-frequency discharge and the two-step ionization in the low-frequency discharge. In order to prove that the low-frequency discharge is dominated by two-step ionization, the spectral intensities of the argon plasma under the same discharge conditions are diagnosed by optical emission spectroscopy. The number density of metastable states is calculated by the branch ratio method. The results are consistent with the analyses. At a gas pressure of 100 Pa, the electron density increases and then decreases with the increase of radial distance, and the overall distribution shows a “saddle shape” for high frequency and also for low frequency discharge. Although the uniformity of electron density improves with the gas pressure, the uniformity at low frequency is better than that at high frequency. The reason can be attributed to the fact that the skin layer of low frequency is thicker and the heating area is wider.

**Keywords:** inductively coupled plasma, Langmuir double probe, optical emission spectroscopy, plasma parameters

**PACS:** 52.50.Qt, 52.70.-m, 52.70.Kz, 52.25.-b

**DOI:** 10.7498/aps.68.20190071

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11475038).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: rchsh@dlut.edu.cn