

# 带有射频偏压源的感性耦合 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 等离子体放电的混合模拟研究\*

佟磊 赵明亮 张钰如<sup>†</sup> 宋远红 王友年

(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)

(2023年8月22日收到; 2023年11月22日收到修改稿)

在刻蚀工艺中, 通常会在感性耦合等离子体源的下极板上施加偏压源, 以实现离子能量和离子通量的独立调控. 本文采用整体模型双向耦合一维流体鞘层模型, 在 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 放电中, 研究了偏压幅值和频率对等离子体特性及离子能量角度分布的影响. 研究表明: 当偏压频率为 2.26 MHz 时, 随着偏压的增加, 除了 Cl<sup>-</sup> 离子和 ClO<sup>+</sup> 离子的密度先增加后降低最后再增加外, 其余带电粒子、O 原子和 Cl 原子的密度都是先增加后基本保持不变最后再增加. 当偏压频率为 13.56 和 27.12 MHz 时, 除了 Cl<sup>-</sup> 离子和 Cl<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子外, 其余粒子密度随偏压的演化趋势与低频结果相似. 随着偏压频率的提高, 在低偏压范围内 (<200 V), 由于偏压源对等离子体加热显著增加, 导致了带电粒子、O 原子和 Cl 原子的密度增加; 而在高偏压范围内 (>300 V), 由于偏压源对等离子体加热先减弱后增强, 导致除了 Cl<sub>2</sub><sup>+</sup> 离子和 Cl<sup>-</sup> 离子外, 其余带电粒子、O 原子和 Cl 原子的密度都是先下降后增加的. 此外, 随着偏压频率的增加, 离子能量分布中的高能峰和低能峰彼此靠近, 离子能峰间距变窄, 并最终变成单峰结构. 本文的结论对于优化等离子体刻蚀工艺具有重要意义.

**关键词:** 感性耦合等离子体, 偏压源, 混合模型, 离子能量, 离子通量

**PACS:** 52.50.Qt, 52.65.-y

**DOI:** 10.7498/aps.73.20231369

## 1 引言

含氯的感性耦合等离子体 (inductively coupled plasma, ICP) 被广泛应用于半导体产业中, 主要有两个原因<sup>[1,2]</sup>: 第一, 采用含氯的等离子体进行刻蚀, 能够提高刻蚀的选择性和各项异性; 第二, 与含其他卤族元素的等离子体相比, 采用含氯的等离子体进行刻蚀, 易产生挥发性的刻蚀产物. 因此, 氯和含氯等离子体是半导体 (GaAs, GaSb, GaP)、金属 (Al, Cu, Pt, Mo, Nb) 和含 Sr, Bi, Ta, Ba 及 Ti 的复合铁电体薄膜材料的最佳刻蚀剂/反应物<sup>[3-5]</sup>.

在过去的几十年中, 人们针对 Ar, O<sub>2</sub>, Cl<sub>2</sub> 及其混合气体放电<sup>[6-35]</sup> 进行了大量的研究, 尤其重点

关注了不同材料的刻蚀速率和选择性<sup>[36-47]</sup>. 如 Fan 等<sup>[36]</sup> 在实验中发现当 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 的比例不变时, GaAs 的刻蚀速率随着气体总流速的增加而增加. Smith 等<sup>[37]</sup> 在实验中发现, 当在 Ar/Cl<sub>2</sub> 混合气体中添加少量的 O<sub>2</sub> 后, 可以显著地降低 AlN 的刻蚀速率, 而 GaN 的刻蚀速率几乎不变, 这显著地提高了 AlN 和 GaN 之间的选择性. Lee 等<sup>[38]</sup> 和 Taube 等<sup>[39]</sup> 在 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 等离子体放电中, 利用 X 射线光电子能谱 (XPS) 发现由于 AlGa<sub>3</sub>N 的表面能够形成耐腐蚀的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 层, 其刻蚀的选择性高于 GaN 和 InGa<sub>3</sub>N. Chung 等<sup>[40]</sup> 同样使用 XPS 研究了外界参数对在 Pt 薄膜上刻蚀 TiO<sub>2</sub> 掩膜的影响, 结果表明: 在 Ar/Cl<sub>2</sub> 混合气体中加入 O<sub>2</sub> 会导致 Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 和 TiO 的氧化, 从而降低 TiO<sub>2</sub> 的刻蚀速率.

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12275041, 11935005, 12020101005) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: yzhang@dlut.edu.cn

2002年, Park等<sup>[41]</sup>采用 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 等离子体刻蚀 SrBr<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (SBT) 薄膜, 结果表明: O<sub>2</sub> 的加入使 SBT 薄膜的结构趋于稳定, 进而导致了薄膜刻蚀速率的下降. Kwon等<sup>[42]</sup>与 Kang等<sup>[43]</sup>使用 Langmuir 探针研究了 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 等离子体中 Mo 和 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的刻蚀特性, 结果表明: Mo 薄膜的刻蚀速率随着 O<sub>2</sub> 含量的增加呈现出非单调的变化, 而 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的刻蚀速率是单调下降的. Tinck等<sup>[44-46]</sup>用混合等离子体设备模型 (HPEM) 研究了不同放电条件下 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 等离子体对 Si 晶圆刻蚀特性的影响, 他们发现随着气压和 O<sub>2</sub> 气流流速的增加, 由于晶圆被氧化, 刻蚀速率突然降低并趋于零. Hsu等<sup>[47]</sup>在实验中发现当 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 混合气体的总流速不变时, Ru 的刻蚀速率随着 O<sub>2</sub> 含量的增加先增加后降低.

此外, 人们还研究了外界参数对 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 等离子体特性的影响. 例如, Efremov等<sup>[48]</sup>使用 Langmuir 探针以及光发射谱 (optical emission spectroscopy, OES) 研究了不同的 Ar/Cl<sub>2</sub> (O<sub>2</sub> 比例恒定) 和 Ar/O<sub>2</sub> (Cl<sub>2</sub> 比例恒定) 比例对等离子体状态的影响, 结果表明: 即使 Cl<sub>2</sub> 的含量低于 O<sub>2</sub> 的含量, Cl 离子的密度依然远高于 O 离子的密度. Hsu等<sup>[47,49]</sup>使用 Langmuir 探针等多种诊断工具, 发现随着 O<sub>2</sub> 含量的增加, 电子能量分布函数、等离子体电势和流向器壁表面的离子流仅有微弱的变化. Tinck等<sup>[44-46]</sup>使用 HPEM 进行模拟, 发现虽然刻蚀速率随着 O<sub>2</sub> 流速的增加突然降低, 但是流向晶圆的粒子通量没有发生突变, 即等离子体特性并没有受到显著影响.

在 ICP 放电中, 为了实现对入射到晶圆上的离子能量和离子通量的独立控制, 人们通常会在下电极上施加一个独立的射频偏压源, 其中线圈源控制等离子体密度和离子通量, 偏压源控制轰击到偏压电极上的离子能量. 然而, 由于 ICP 源和射频偏压源之间存在耦合效应, 导致射频偏压源不仅仅会影响偏压电极附近鞘层的振荡行为, 还会影响体等离子体的特性. 例如, Lee 与 Chung<sup>[10]</sup>, Zhang 等<sup>[8]</sup> 和 Wen 等<sup>[6]</sup> 分别在实验和数值模拟上发现: 当 ICP 运行在感性模式时, 等离子体密度随偏压功率先降低后增加. Schulze 等<sup>[50]</sup> 在 Ne 放电中观察到, 即使当 ICP 功率远高于偏压源功率时, 由偏压源引起的鞘层加热也会对电子的动力学行为产生影响, 进而改变体等离子体密度和离子通量. Ahr 等<sup>[51]</sup>

发现当施加射频偏压源时, H<sub>2</sub> 放电中模式转换发生得更为平稳, 且随着偏压功率的增加, 模式转换发生在较低的 ICP 功率下.

尽管人们针对射频偏置的感性耦合等离子体特性进行了研究, 但偏压源对 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 混合气体放电特性的影响几乎没有报道; 另外, 入射到偏压电极上的离子能量分布函数 (ion energy distribution function, IEDF) 在刻蚀过程中也起着非常重要的作用, 然而 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 感性放电中的相关研究也非常有限. 因此, 本文将采用由整体模型、鞘层模型和离子蒙特卡罗碰撞 (Monte-Carlo collision, MCC) 模型组成的混合模型, 研究射频偏压源对 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 混合气体放电中带电粒子密度、基态中性粒子密度、解离率、电负度以及轰击到偏压电极上的 IEDF 的影响.

## 2 模型

图 1 显示了本文所模拟的腔室结构示意图, 其中等离子体区域被分为两部分, 即体等离子体区和鞘层区. 其中, 体等离子体区采用整体模型来描述, 即假设等离子体的空间分布是均匀的, 各种粒子的密度和电子温度由粒子数平衡方程以及电子功率平衡方程来描述. 此外, 采用一维流体模型来描述鞘层中带电粒子的产生及输运. 当模拟达到稳态后, 通过离子 MCC 模型来模拟鞘层中离子与中性粒子之间的碰撞过程, 进而统计得到电极表面的 IEDF. 需要注意的是, 尽管图 1 展示的是二维的腔室结构示意图, 但本文所采用的整体模型是零维模型, 而用来描述鞘层特性的模型则是一维流体模型. 下面详细叙述各模型.

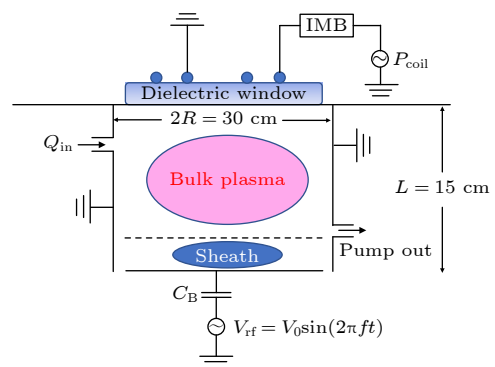


图 1 混合模型示意图

Fig. 1. Schematic of configuration for the hybrid model.

## 2.1 整体模型

### 2.1.1 粒子数平衡方程

在 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 混合气体中, 考虑的粒子种类如表 1 所列. 对于第  $l$  种重粒子 (中性粒子和离子), 粒子数平衡方程为<sup>[6,7,15,16]</sup>

$$\frac{dn_l}{dt} = \frac{L - d_{s,\max}}{L} \left( \sum_V R_{V,l}^+ - \sum_V R_{V,l}^- \right) + R_{in,l} - R_{out,l} + \sum_s R_{s,l}^+ - \sum_s R_{s,l}^-, \quad (1)$$

其中,  $n_l$  是第  $l$  种粒子的密度;  $L$  是反应腔室的高度. 由于鞘层内的电子密度比较低, 在计算体区内的碰撞源项时, 需要将最大鞘层厚度  $d_{s,\max}$  考虑进来.  $R_{V,l}^+$  和  $R_{V,l}^-$  分别是由于体区反应而引起的第  $l$  种粒子的产生和损失项, 具体的碰撞过程主要取自文献<sup>[6, 29–32, 35]</sup>.

表 1 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 混合气体放电中考虑的粒子  
Table 1. Plasma species considered in Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> discharges.

基态中性粒子	Ar, O <sub>2</sub> , O <sub>3</sub> , O, Cl <sub>2</sub> ( $\nu = 0$ ), Cl, ClO
激发态中性粒子	Ar <sup>m</sup> , Ar <sup>r</sup> , Ar(4p), O <sub>2</sub> (a), O(D), Cl <sub>2</sub> ( $\nu = 1$ ), Cl <sub>2</sub> ( $\nu = 2$ ), Cl <sub>2</sub> ( $\nu = 3$ )
正离子	Ar <sup>+</sup> , O <sub>2</sub> <sup>+</sup> , O <sup>+</sup> , Cl <sub>2</sub> <sup>+</sup> , Cl <sup>+</sup> , ClO <sup>+</sup>
负离子/电子	O <sup>-</sup> , Cl <sup>-</sup> , e

$R_{in,l} = 4.48 \times 10^{17} Q_{in,l}/V$ ,  $R_{out,l} = 1.27 \times 10^{-5} n_l Q_{in,\text{sum}}/(p_0 V)$  分别是由于气体流入和流出所引起的粒子的产生和损失项. 其中,  $Q_{in,l}$  是原料气体泵入腔室的流速,  $V$  表示腔室的体积,  $Q_{in,\text{sum}} = \sum_l Q_{in,l}$  是所有原料气体的入流流速之和,  $p_0$  是出流处的气压, 单位是 Torr. 由于在实际放电中, 只会泵入原料气体, 因此泵入源项  $R_{in,l}$  只会出现在原料气体的粒子数守恒方程中. 需要注意的是, 由于鞘层势垒的作用, 负离子只能被约束在放电腔室中心区域, 即气体泵出而引起的损失  $R_{out,l}$  只会影响中性粒子和正离子的密度<sup>[30–32,52–55]</sup>.

方程 (1) 中的最后两项表示粒子在器壁表面上的产生和损失, 包括正离子在器壁上的中性化、中性原子的复合以及激发态或亚稳态在器壁表面的淬灭 (退激发)<sup>[52,55,56]</sup>. 中性粒子  $l$  在器壁上的损失系数为<sup>[52]</sup>

$$K_{\text{loss}} = \left[ \frac{A_l^2}{D_l} + \frac{2V(2 - \gamma_l)}{A\nu_l\gamma_l} \right]^{-1}, \quad (2)$$

其中  $A$  是腔室的表面积;  $A_l$ ,  $D_l$ ,  $\nu_l$  和  $\gamma_l$  分别是中性粒子的扩散长度、扩散系数、热速度和复合/淬灭系数. 在 Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> 放电中, 各个中性粒子的复合系数  $\gamma_l$ , 如表 2 所列. 其中, Cl 原子在器壁表面的复合 (反应 1) 系数  $\gamma_{\text{Cl}}$  是由腔室的器壁材料以及氯原子和基态氯气分子的密度比值决定的. 本文中假设腔室的器壁为不锈钢, 则该反应的系数为<sup>[29,57]</sup>

$$\lg(\gamma_{\text{Cl}}) = -1.22 - 1.34 \exp\left(-1.48 \frac{n_{\text{Cl}}}{n_{\text{Cl}_2(\nu=0)}}\right). \quad (3)$$

表 2 中性粒子与器壁的相互作用<sup>[6,29–32,35]</sup>

Table 2. Reactions of neutral species on the wall<sup>[6,29–32,35]</sup>.

No.	Reaction	$\gamma_l$
1	Cl + wall $\rightarrow$ $\frac{1}{2}$ Cl <sub>2</sub> ( $\nu = 0$ )	方程(3)
2	Cl + wall $\rightarrow$ $\frac{1}{2}$ ClO	方程(4)
3	O + wall $\rightarrow$ $\frac{1}{2}$ O <sub>2</sub>	0.09
4	O(D) + wall $\rightarrow$ $\frac{1}{2}$ O <sub>2</sub>	0.09
5	Cl <sub>2</sub> ( $\nu$ ) + wall $\rightarrow$ Cl <sub>2</sub> ( $\nu - 1$ )	1
6	O <sub>2</sub> (a) + wall $\rightarrow$ O <sub>2</sub>	0.007
7	O(D) + wall $\rightarrow$ O	0.1
8	Ar* + wall $\rightarrow$ Ar	1

反应 2 的系数主要由氧气的含量决定<sup>[32,57,58]</sup>:

$$\log_{10}(\gamma_{\text{Cl}}) = 2.15 F_{\text{O}_2} - 2.62 \times \exp(0.002/F_{\text{O}_2}), \quad (4)$$

其中,  $F_{\text{O}_2} = Q_{\text{O}_2}/(Q_{\text{O}_2} + Q_{\text{Cl}_2(\nu=0)})$  是原料气体中氧气所占氧、氯总和的比值.

正离子在器壁表面的损失系数为<sup>[52]</sup>

$$K_{\text{loss}} = \frac{u_{B,+} + A_{\text{eff},+}}{V}, \quad (5)$$

其中,  $A_{\text{eff},+} = 2\pi R L h_{R,+} + 2\pi R^2 h_{L,+}$  是离子损失的有效面积,  $R$  是腔室的半径,  $h_{R,+}$  和  $h_{L,+}$  分别是径向和轴向的鞘层边缘与中心处的密度之比<sup>[29,30,32]</sup>. 玻姆速度的表达式为

$$u_{B,+} = \left[ \frac{eT_e(1 + \alpha_s)}{M_+(1 + \alpha_s\gamma_-)} \right]^{0.5}, \quad (6)$$

其中,  $e$  是单位电荷;  $M_+$  是离子质量;  $\alpha_s$  是鞘层边界处负离子密度与电子密度之比, 即鞘层边界处的电负度<sup>[59]</sup>.  $\gamma_- = T_e/T_-$  是电子温度  $T_e$  与负离子温度  $T_-$  的比值. 本文假设负离子温度  $T_-$  和正离子温度  $T_+$  是气压  $p$  (mTorr) 和背景气体温度  $T_{\text{gas}}$  (K)

的函数<sup>[15,16,54,60]</sup>:

$$T_{\pm} = \begin{cases} 0.5 \times 11605, & p \leq 1 \text{ mTorr}, \\ T_{\text{gas}} + (0.5 \times 11605 - T_{\text{gas}})/p, & p > 1 \text{ mTorr}. \end{cases} \quad (7)$$

需要注意的是, 尽管在一般条件下, 腔室的外壁不会变得很热 (通常在 300—330 K 之间), 但是放电中心处的气体温度可能较高, 尤其当 ICP 处于感性放电模式时. 因此, 背景气体的温度由下式确定<sup>[16,24,32]</sup>:

$$T_{\text{gas}}(\langle P_{\text{coil}} \rangle, p) = 300 + s(p) \times \log_{10} \left( \frac{\langle P_{\text{coil}} \rangle}{1860.5} \right), \quad (8)$$

$$s(p) = 780(1 - e^{-0.091 \times p}) + 250e^{-0.337 \times p}. \quad (9)$$

其中,  $\langle P_{\text{coil}} \rangle = P_{\text{coil}}/V$  是线圈的功率密度.

电子密度  $n_e$  可以通过准中性条件来确定:

$$\sum_{+} q_{+} n_{+} - \sum_{-} q_{-} n_{-} - e n_e = 0, \quad (10)$$

其中,  $q_{+}$ ,  $n_{+}$ ,  $q_{-}$  和  $n_{-}$  分别是正负离子的电荷及密度.

### 2.1.2 功率平衡方程

当放电达到稳定时, 等离子体从电源中吸收的功率与等离子体消耗的功率相等. 其中, 等离子体吸收的功率主要来自线圈功率和偏压源功率两部分; 而等离子体消耗的功率主要包括电子和背景气体发生弹性碰撞、激发碰撞和电离碰撞而引起的能量损失, 以及带电粒子流向器壁、介质窗和偏压电极而引起的功率损失. 因此, 功率平衡方程为<sup>[6,7,15,16]</sup>

$$\frac{d}{dt} \left( \frac{3}{2} e n_e T_e \right) = \frac{1}{V} (P_{\text{coil}} + P_{\text{bias}}) - P_c - \frac{1}{V} (P_{\text{wall}} + P_{\text{loss}}), \quad (11)$$

其中,  $P_{\text{coil}}$  是线圈功率, 它是一个外部输入参数.  $P_{\text{bias}}$  是由偏压源引起的沉积功率, 包括偏压源功率、欧姆加热功率和随机加热功率.  $P_c$  是单位体积内由于电子和中性粒子发生弹性碰撞和非弹性碰撞而损失的能量<sup>[29-32]</sup>:

$$P_c = e n_e \sum_n n_n k_{iz} \varepsilon_c. \quad (12)$$

$n_n$  是参与碰撞的基态中性粒子的密度,  $k_{iz}$  是电子和中性粒子发生电离碰撞的速率系数,  $\varepsilon_c$  是每产生一个电子-离子对所引起的能量损失<sup>[52]</sup>.

方程 (11) 中的  $P_{\text{wall}}$  表示带电粒子入射到器壁

和介质窗上而引起的功率损失, 其表达式为<sup>[6,7,15,16]</sup>

$$P_{\text{wall}} = \sum_{+} e u_{B,+} n_{+} [\pi R_1^2 h_{L,+} (\varepsilon_{+} + \varepsilon_e) + 2\pi R L h_{R,+} \bar{V}_g + \pi (R^2 - R_1^2) h_{L,+} \bar{V}_g], \quad (13)$$

其中, 介质窗的半径  $R_1 = 13 \text{ cm}$ ;  $\varepsilon_{+}$  和  $\varepsilon_e$  是每个离子和电子损失的平均动能;  $\bar{V}_g$  是接地电极表面的鞘层电压降. 根据无碰撞的 Child 定律<sup>[52]</sup>, 有  $\bar{V}_g = (A_{\text{bias}}/A_g)^4 \bar{V}_{\text{bias}}$ , 其中  $\bar{V}_{\text{bias}}$  是时间平均的鞘层电压降,  $A_{\text{bias}}$  和  $A_g$  分别是偏压电极和接地电极的面积.

方程 (11) 中的  $P_{\text{loss}}$  表示由流向偏压电极表面的正离子引起的能量损失, 其表达式为<sup>[6,7,15,16]</sup>

$$P_{\text{loss}} = \sum_{+} A_{\text{bias}} h_{L,+} u_{B,+} n_{+} e \bar{V}_{\text{bias}}. \quad (14)$$

## 2.2 流体鞘层模型

当在下电极上施加一个射频偏压源时, 偏压电极附近的鞘层属性将发生改变, 进而影响等离子体状态. 因此, 本文在整体模型的基础上耦合鞘层模型, 自治地模拟了偏压源参数对等离子体特性的影响. 在 ICP 中, 等离子体密度较高, 鞘层较薄, 即鞘层厚度远小于偏压电极半径, 因此可以采用一维鞘层模型来描述. 在鞘层区, 假设电子密度  $n_{es}$  和负离子密度  $n_{-s}$  满足玻尔兹曼分布:

$$n_{es} = n_e \exp \left[ \frac{V_p - \varphi_s}{T_e} \right], \quad (15)$$

$$n_{-s} = n_{-} \exp \left[ \frac{V_p - \varphi_s}{T_{-}} \right], \quad (16)$$

其中,  $n_e$  和  $n_{-}$  分别是整体模型计算得到的体等离子体区的电子密度和负离子密度, 等离子体电势  $V_p$  被设为 0.

鞘层内部的电势  $\varphi_s$  满足泊松方程:

$$\frac{\partial^2 \varphi_s}{\partial z^2} = -\frac{1}{\varepsilon_0} \left( \sum_{+} q_{+} n_{+s} - \sum_{-} q_{-} n_{-s} - e n_{es} \right), \quad (17)$$

其中,  $\varepsilon_0$  是真空介电常数.  $n_{+s}$  是鞘层内的正离子密度, 由连续性方程来确定<sup>[61-66]</sup>:

$$\frac{\partial n_{+s}}{\partial t} + \frac{\partial n_{+s} u_{+s}}{\partial z} = 0. \quad (18)$$

$u_{+s}$  为离子速度, 由动量守恒方程来确定:

$$\frac{\partial u_{+s}}{\partial t} + u_{+s} \frac{\partial u_{+s}}{\partial z} = -\frac{e}{M_{+}} \frac{\partial \varphi_s}{\partial z} - \frac{\nabla p_{+s}}{n_{+s} M_{+}} + \frac{M}{n_{+s} M_{+}}, \quad (19)$$

其中,  $p_{+s}$  是正离子压强,  $M$  是离子和背景气体碰撞引起的动量转移.

如图 1 所示, 偏压源通过一个隔直电容  $C_B$  连接到下极板上. 为了获得偏压电极上的电势  $V_e$  和以及偏压源的沉积功率  $P_{\text{bias}}$ , 在模型中还需要耦合一个电流平衡方程, 即  $I_i + I_e + I_d = I_{\text{bias}}$ . 其中  $I_i$ ,  $I_e$  和  $I_d$  分别是离子电流、电子电流和位移电流,  $I_{\text{bias}}$  是偏压源流向偏压电极的电流 [15,16]:

$$I_{\text{bias}} = C_B \frac{d(V_e - V_{\text{rf}})}{dt}, \quad (20)$$

其中, 偏压源的电压  $V_{\text{rf}}$  表示为

$$V_{\text{rf}} = V_0 \sin(2\pi ft), \quad (21)$$

式中,  $V_0$  是电压幅值,  $f$  是偏压源的频率.

由偏压源引起的总功率沉积由下式给出 [6,7,15,16]:

$$P_{\text{bias}} = \frac{1}{\tau_{\text{rf}}} \int_0^{\tau_{\text{rf}}} V_e (I_i + I_e + I_d) dt + P_{\text{ohm}} + P_{\text{stoc}}, \quad (22)$$

其中,  $\tau_{\text{rf}}$  是偏压源的射频周期;  $P_{\text{ohm}}$  是由于电子和中性粒子碰撞而引起的欧姆加热功率;  $P_{\text{stoc}}$  是由于鞘层振荡而引起的随机加热功率 [52,67].

### 2.3 离子蒙特卡罗碰撞模型

当整体模型和鞘层模型之间的迭代达到稳定后, 可以调用离子 MCC 模型计算偏压电极上的 IEDF. 为了消除统计误差, 在调用离子 MCC 之前, 通常在一个周期内将大量的粒子均匀地撒在

鞘层模型计算区域的边缘, 每种正离子的数量约为  $10^6$  个. 随着这些离子被电场力推动以及在碰撞过程的影响下, 离子的运动轨迹会发生改变. 当离子打到极板上时, 记录该离子的能量以及离子速度与极板之间的夹角. 当所有的离子都到达极板时, 即可统计得到归一化的 IEDF, 记作  $F(\varepsilon_i)$  [34]:

$$F(\varepsilon_i) = \frac{N(\varepsilon_i)}{\sum_{i=0}^{\text{nein}} N(\varepsilon_i)}, \quad \varepsilon_i = \frac{1}{2} M_+ (\nu_x^2 + \nu_y^2 + \nu_z^2), \quad (23)$$

其中,  $\text{nein}$  是统计 IEDF 时对应的离子能量的格点数;  $N(\varepsilon_i)$  是能量介于  $\varepsilon_i$  到  $\varepsilon_i + d\varepsilon$  的离子数量;  $\nu_x$ ,  $\nu_y$  和  $\nu_z$  分别是离子速度在  $x$ ,  $y$  和  $z$  三个方向上的分量. 离子蒙特卡罗碰撞模型中具体考虑的碰撞过程来自于文献 [6, 7, 18, 19, 68, 69].

## 3 结果与讨论

### 3.1 偏压幅值和频率对等离子体特性的影响

若无特殊说明, 后文研究条件一致: ICP 功率 100 W, 气压 10 mTorr, 腔室的半径和高度均为 15 cm. 不同偏压源频率下, 基态中性粒子密度随偏压幅值的演化, 如图 2 所示. 其中, 偏压幅值的变化范围为 10—400 V, 偏压源频率分别为 2.26, 6.78, 13.56 和 27.12 MHz, 标准状况下气体流速分

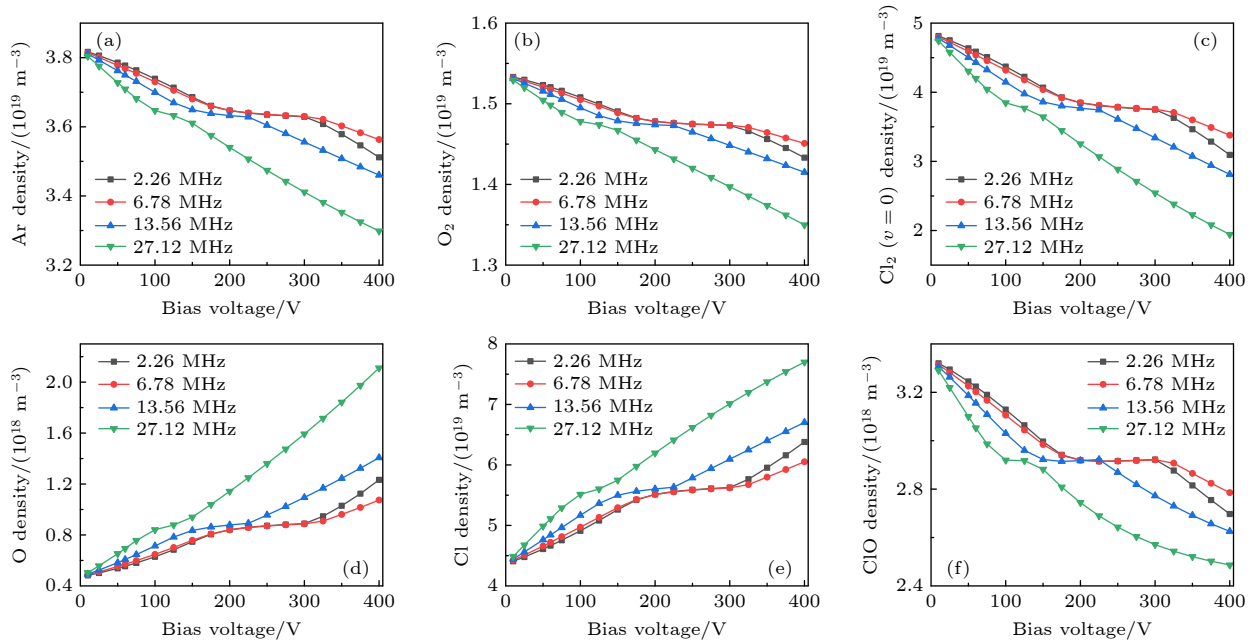


图 2 不同偏压频率下, 基态中性粒子密度随偏压幅值的变化

Fig. 2. Evolutions of the densities of ground state neutral particles with bias voltage for different bias frequencies.

别为  $\text{Ar}/\text{O}_2/\text{Cl}_2 = 50/20/100 \text{ mL}/\text{min}$ . 研究结果显示: 在固定的偏压频率下, 随着偏压幅值的增加, Ar 原子、 $\text{O}_2$  分子和  $\text{Cl}_2$  ( $\nu = 0$ ) 分子的密度先快速降低, 后缓慢下降/几乎保持不变, 最后再次快速降低; ClO 分子的密度则是先快速下降, 后几乎保持不变/略微增加, 最后再次显著下降; 而 O 原子和 Cl 原子的密度则是先快速增加, 随后几乎保持不变/略有增加, 最后再次快速增加. 此外, 偏压频率越低, 基态中性粒子密度的中间平稳过渡期越长. 另外, 当偏压幅值小于 200 V 时, Ar 原子、 $\text{O}_2$  分子、 $\text{Cl}_2$  ( $\nu = 0$ ) 分子以及 ClO 分子的密度随着偏压频率的增加而降低, 而 O 原子和 Cl 原子的密度随偏压频率的增加而提高. 当偏压幅值在 200—300 V 内变化时, 各种中性粒子的密度随着偏压频率先几乎保持不变, 随后原料气体密度和 ClO 分子密度下降, O 原子和 Cl 原子的密度增加. 继续提高偏压到 400 V, Ar 原子、 $\text{O}_2$  分子、 $\text{Cl}_2$  ( $\nu = 0$ ) 分子以及 ClO 分子的密度随着偏压频率的增加先增加后降低, 而 O 原子和 Cl 原子的密度则随着偏压频率先降低后增加.

图 3 给出了不同的偏压频率下, 吸收功率和损失功率随射频偏压的演化. 当偏压频率固定为 2.26 MHz 时 (图 3(a)), 随着偏压幅值的增加, 从偏压源中吸收的功率  $P_{\text{bias}}$  先是以约 0.6 倍的增长速率增加, 然后增长速率增加为 1.7; 而由等离子体流向偏压电极引起的功率损失  $P_{\text{loss}}$  先是略微增加, 后以约 0.6 倍的增长速度增加. 因此随着偏压幅值的增加, 从偏压源中吸收的净功率  $\Delta P = P_{\text{bias}} - P_{\text{loss}}$  先快速增加, 后保持不变, 最后更为明显地增加. 这表明当偏压从 10 V 增加到 200 V 时, 等离子体从偏压源中吸收了较多的能量, 导致更多的 Ar 原子、 $\text{O}_2$  分子和  $\text{Cl}_2$  ( $\nu = 0$ ) 分子发生非弹性碰撞, 增强了 O 原子和 Cl 原子的产生, 如图 2(d) 和图 2(e) 所示; 当偏压幅值增加到约 300 V 时, 偏压源对净吸收功率几乎没有影响, 这导致了 O 原子和 Cl 原子的密度几乎保持不变; 当偏压进一步增加到 400 V 时, 等离子体从偏压源中吸收的能量再次快速增加, 从而产生了更多的 O 原子和 Cl 原子.

当偏压源频率为 6.78 MHz (图 3(b)), 偏压幅值在 10—200 V 范围内时, 等离子体从偏压源中吸

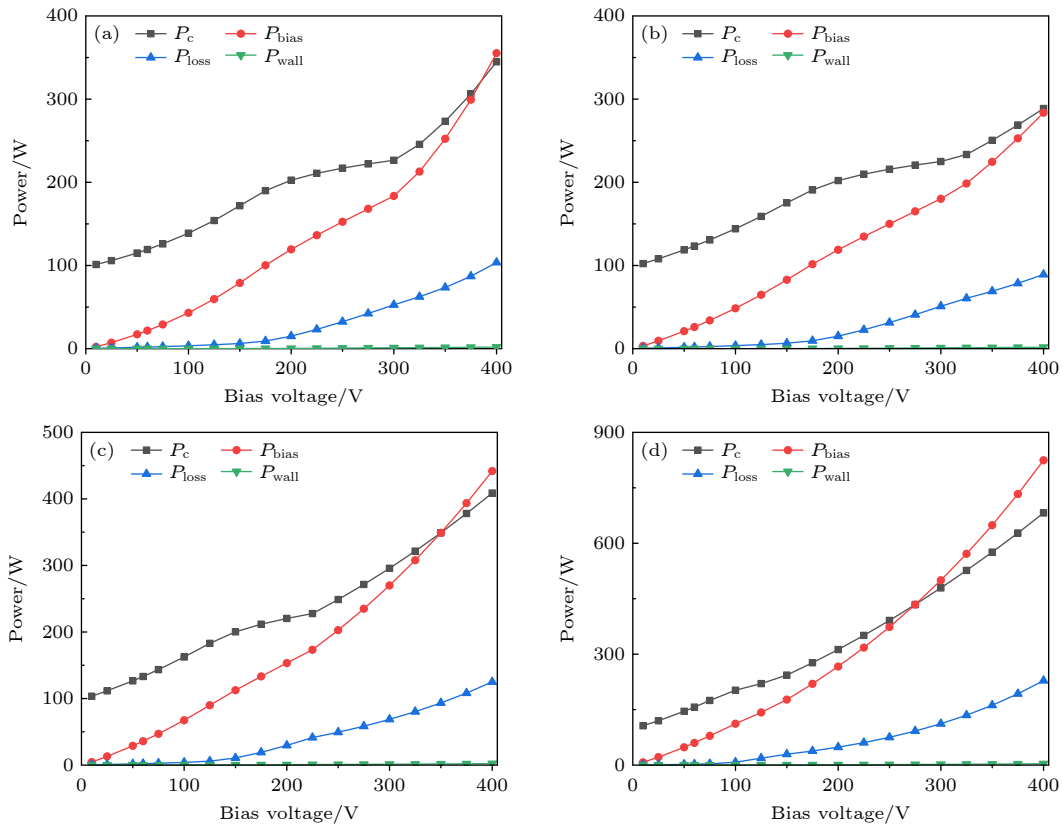


图 3 不同偏压频率下, 吸收功率和损失功率随偏压幅值的变化 (a) 2.26 MHz; (b) 6.78 MHz; (c) 13.56 MHz; (d) 27.12 MHz

Fig. 3. Evolutions of the power deposition and power loss with bias voltage for different bias frequencies: (a) 2.26 MHz; (b) 6.78 MHz; (c) 13.56 MHz; (d) 27.12 MHz.

收的净功率  $\Delta P$  仅略微高于 2.26 MHz 时的结果, 因此 O 原子和 Cl 原子的密度也略高 (见图 2). 而当偏压幅值增加到 300 V 时, 这两个偏压频率下等离子体吸收的净功率  $\Delta P$  几乎相等, 即偏压频率对等离子体的特性几乎没有影响. 进一步增加偏压到 400 V, 偏压频率为 6.78 MHz 时的净吸收功率  $\Delta P$  反而低于 2.26 MHz 的结果, 这导致了电子与原料气体的非弹性碰撞被减弱, 从而抑制了 O 原子和 Cl 原子的产生 (见图 2(d) 和图 2(e)). 当偏压频率进一步提高到 13.56 和 27.12 MHz 时, 偏压源对等离子体的加热更为有效, 这促进了 O 原子和 Cl 原子的产生, 并使得原料气体的密度进一步降低.

图 4 给出了不同偏压频率下, ClO 分子的主要产生项和损失项随偏压幅值的变化. 研究表明: ClO 分子最主要的产生途径是 Cl 原子在器壁上的复合, 并且其反应速率随着射频偏压的增加而增加; ClO 分子最主要的损失途径是电子碰撞解离. 随着偏压幅值的增加, 电子密度上升 (见图 5(i)),

因此电子碰撞解离 ClO 分子的反应速率随之提高, 最终导致 ClO 分子密度的降低.

图 5 给出了不同偏压频率下, 带电粒子密度随偏压幅值的变化规律. 研究结果显示: 当偏压频率较低时, 如 2.26 和 6.78 MHz, 随着偏压幅值从 10 V 增加到 400 V, 除了 Cl 和 ClO<sup>+</sup> 离子密度是先增加后降低最后再增加, 以及电子密度是先增加后略微下降, 最后再增加外, 其余带电粒子的密度都是先增加后基本保持不变/略微增加, 最后再继续增加. 为了解释 Cl 和 ClO<sup>+</sup> 离子密度随偏压变化的不同趋势, 图 6 和图 7 分别给出了二者的源项. 结果表明: Cl 离子最主要的来源是电子解离附着 Cl<sub>2</sub> ( $\nu = 0$ ) 分子. 如图 2(c) 和图 5(i) 所示, 当偏压小于 200 V 时, 尽管 Cl<sub>2</sub> ( $\nu = 0$ ) 分子密度随着偏压的增加而下降, 电子密度的增加趋势更为显著, 因此 Cl 离子的产生速率以及密度都是增加的; 当偏压进一步升高到 300 V 时, 一方面由于电子密度和 Cl<sub>2</sub> ( $\nu = 0$ ) 分子密度略微降低, 使得 Cl 离子的产生速率下降; 另一方面在偏压幅值为 200—

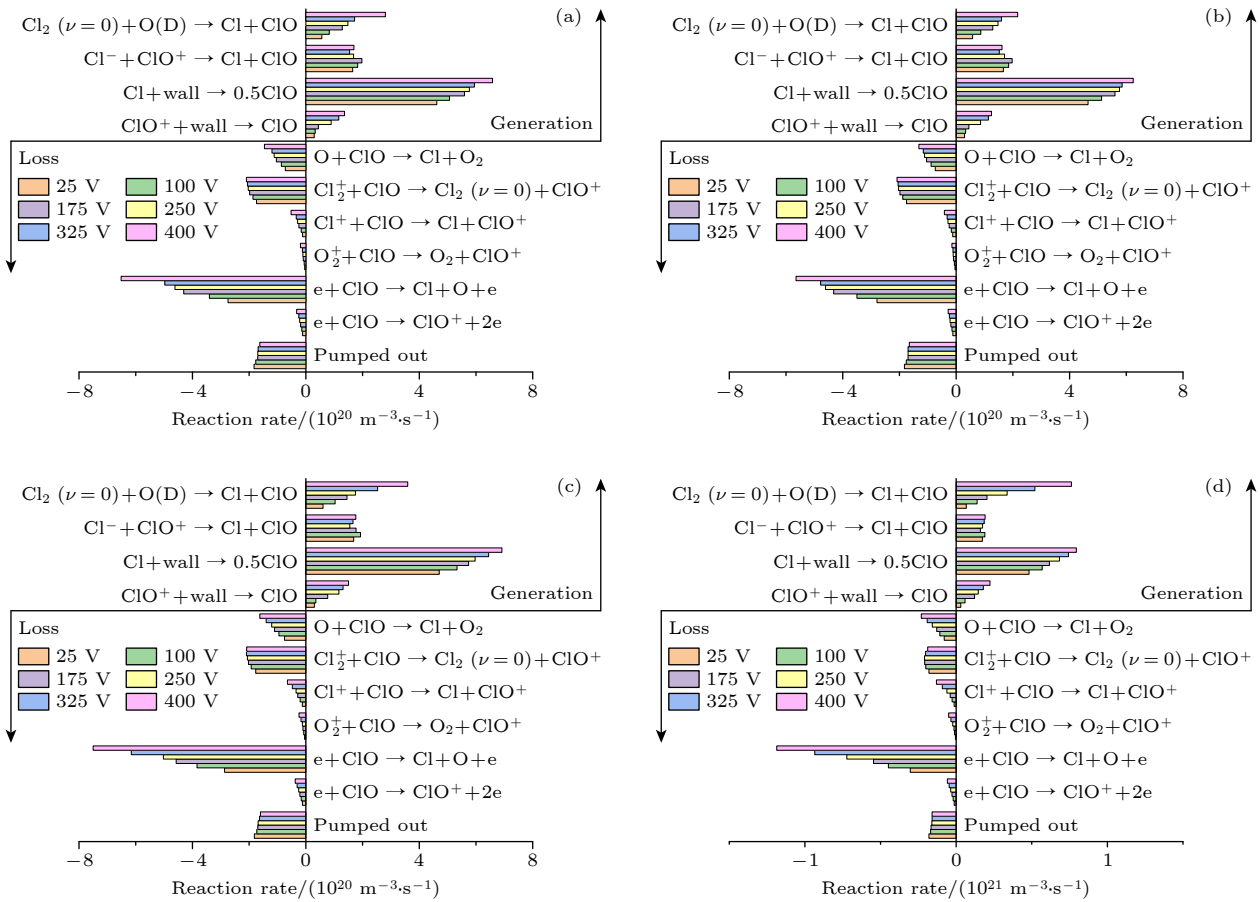


图 4 不同偏压频率下, ClO 分子的产生速率和损失速率随偏压幅值的变化 (a) 2.26 MHz; (b) 6.78 MHz; (c) 13.56 MHz; (d) 27.12 MHz  
 Fig. 4. Evolutions of the generation and loss rates of ClO molecules with bias voltage for different bias frequencies: (a) 2.26 MHz; (b) 6.78 MHz; (c) 13.56 MHz; (d) 27.12 MHz.

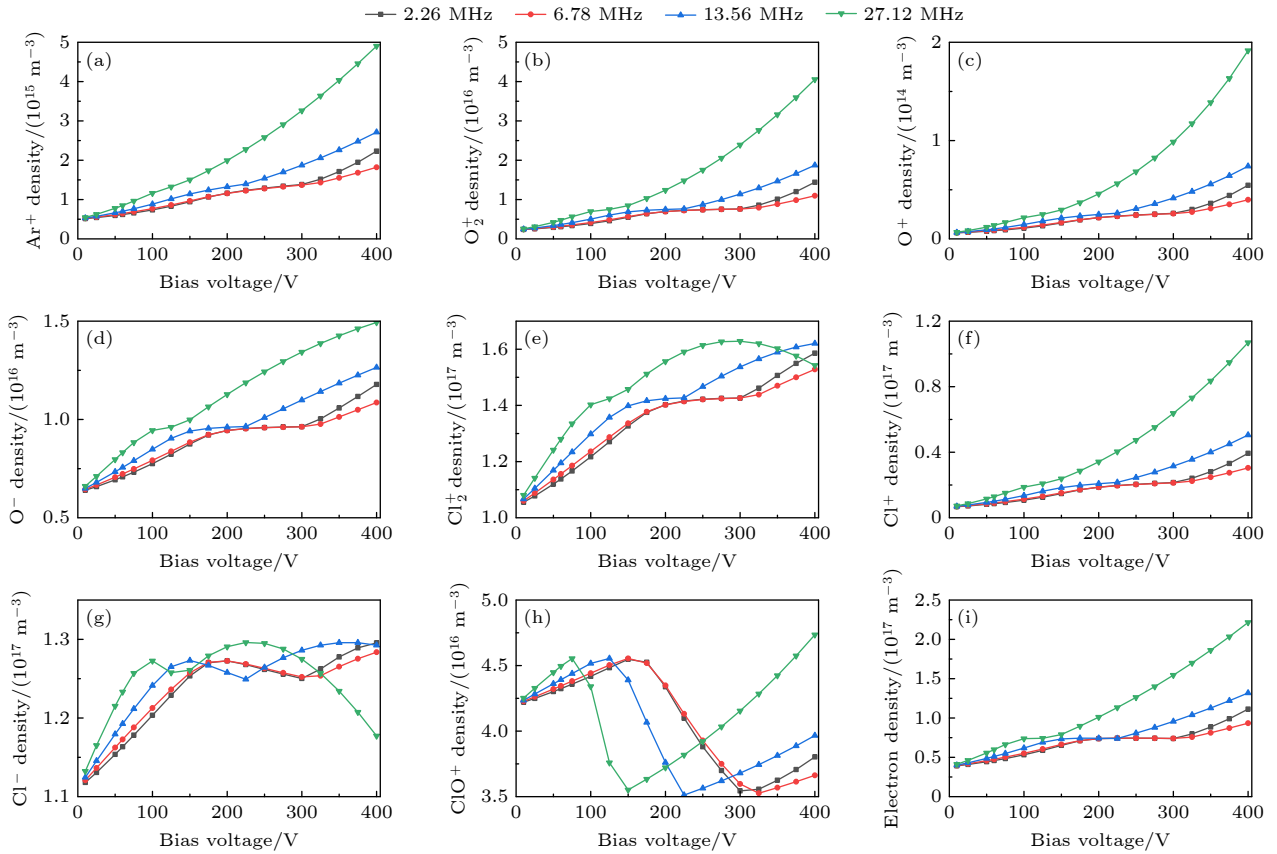


图 5 不同偏压频率下, 带电粒子密度随偏压幅值的变化 (a)  $\text{Ar}^+$ ; (b)  $\text{O}_2^+$ ; (c)  $\text{O}^+$ ; (d)  $\text{O}^-$ ; (e)  $\text{Cl}_2^+$ ; (f)  $\text{Cl}^+$ ; (g)  $\text{Cl}^-$ ; (h)  $\text{ClO}^+$ ; (i) 电子密度

Fig. 5. Evolutions of the densities of charged species with bias voltage for different bias frequencies: (a)  $\text{Ar}^+$ ; (b)  $\text{O}_2^+$ ; (c)  $\text{O}^+$ ; (d)  $\text{O}^-$ ; (e)  $\text{Cl}_2^+$ ; (f)  $\text{Cl}^+$ ; (g)  $\text{Cl}^-$ ; (h)  $\text{ClO}^+$ ; (i) electron density.

300 V 的范围内,  $\text{Cl}_2^+$  离子的密度几乎没有受到偏压的影响, 导致  $\text{Cl}^-$  离子的损失几乎保持不变. 最终, 以上两个因素使得  $\text{Cl}^-$  离子的密度呈下降趋势; 当偏压继续增加到 400 V 时, 同样是由于电子解离附着  $\text{Cl}_2$  ( $\nu = 0$ ) 分子的反应速率显著增加, 使得  $\text{Cl}^-$  离子的密度随之提高.

不同偏压幅值和频率下,  $\text{ClO}^+$  离子的产生率和损失率如图 7 所示. 显而易见,  $\text{ClO}^+$  离子最重要的产生途径是  $\text{ClO}$  分子和  $\text{Cl}_2^+$  离子之间的电荷交换碰撞. 以偏压频率为 2.26 MHz 为例, 当射频偏压增加到 150 V 时, 该碰撞过程的速率变高, 导致  $\text{ClO}^+$  离子的密度出现相同的变化趋势 (图 5(h)). 随着偏压幅值进一步增加到 300 V, 偏压对  $\text{ClO}$  分子和  $\text{Cl}_2^+$  离子的影响都比较微弱 (见图 2(f) 和图 5(e)), 因此  $\text{ClO}^+$  离子的产生速率微弱增加. 另外,  $\text{ClO}^+$  离子的主要损失途径为在器壁表面的中性化以及与  $\text{Cl}^-$  离子的中和反应. 尽管后者的速率随着偏压的增加而降低, 但此时  $\text{ClO}^+$  离子的密度

较高 (见图 5(h)), 即器壁上的损失过程显著增强. 因此,  $\text{ClO}^+$  离子的总损失速率是增加的, 最终导致  $\text{ClO}^+$  离子密度的降低. 随着偏压增加到 400 V, 由于此时  $\text{Cl}^+$  离子的密度较高 (图 5(f)),  $\text{Cl}^+$  离子与  $\text{ClO}$  分子之间的电荷交换碰撞速率显著增加, 最终导致  $\text{ClO}^+$  离子密度的继续增加.

如图 5 所示, 当偏压频率增加到 13.56 MHz 时, 随着偏压幅值的增加, 除了  $\text{Cl}^-$  离子密度 (见图 5(g)) 先线性增加后降低, 然后再增加, 最后再降低外, 其余离子的密度随偏压幅值的变化趋势与低偏压频率时的结果相似.  $\text{Cl}^-$  离子密度随偏压幅值的非单调变化趋势依然可以通过图 6(c) 中的源项来解释. 在前三个阶段中, 在电子和  $\text{Cl}_2^+$  离子的共同作用下,  $\text{Cl}^-$  离子密度呈现出先增加、后降低、再增加的趋势; 而最后一个阶段, 可能是由于此时的  $\text{Cl}^-$  离子密度较高, 使得由中和反应引起的损失速率有所提高, 如  $\text{Cl}^- + \text{Cl}^+ \rightarrow 2\text{Cl}$ , 最终导致  $\text{Cl}^-$  离子密度出现短暂的下降趋势.

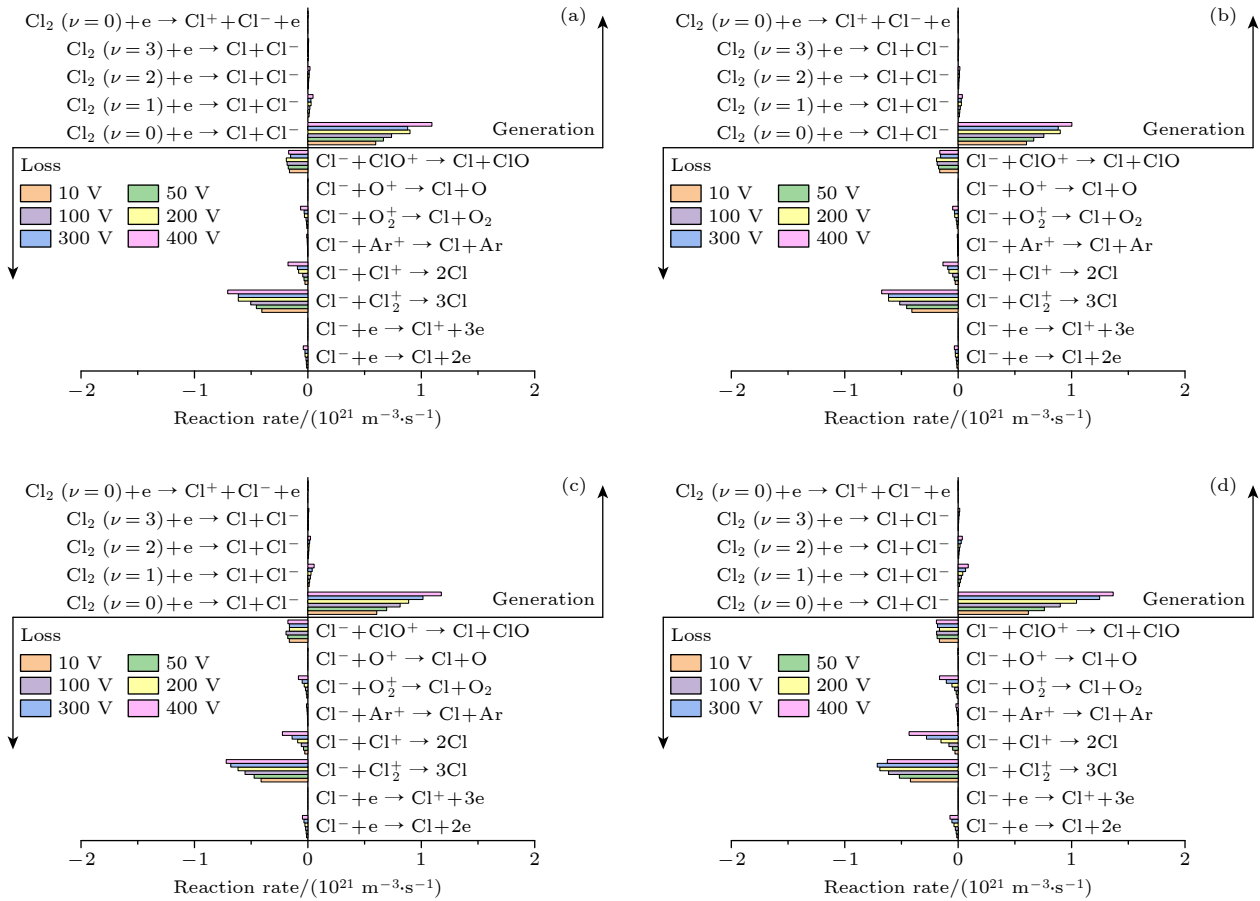


图6 不同偏压频率下, Cl 离子的产生速率和损失速率随偏压幅值的变化 (a) 2.26 MHz; (b) 6.78 MHz; (c) 13.56 MHz; (d) 27.12 MHz  
 Fig. 6. Evolutions of the generation and loss rates of Cl ions with bias voltage for different bias frequencies: (a) 2.26 MHz; (b) 6.78 MHz; (c) 13.56 MHz; (d) 27.12 MHz.

继续提高偏压频率到 27.12 MHz, 可以发现  $\text{Cl}_2^+$  离子的密度呈现出不同的变化趋势: 随着偏压幅值的增加,  $\text{Cl}_2^+$  离子的密度先是以 1.3 倍的增长速度增加, 然后其增速放缓, 最后当偏压幅值超过 300 V 时,  $\text{Cl}_2^+$  离子的密度有所降低, 如图 5(e) 所示. 为了解释  $\text{Cl}_2^+$  离子密度的变化趋势, 图 8 给出了偏压频率为 27.12 MHz 时, 不同偏压幅值下  $\text{Cl}_2^+$  离子的主要产生和损失过程. 观察到  $\text{Cl}_2^+$  离子最重要的产生途径是电子碰撞电离  $\text{Cl}_2 (\nu = 0)$  分子, 以及  $\text{Cl}^+$  离子和  $\text{Cl}_2 (\nu = 0)$  分子之间的电荷交换碰撞. 当偏压增加到 100 V 时, 这两个反应的速率都有所提高, 导致了  $\text{Cl}_2^+$  离子密度的增加 (图 5(e)). 进一步增加偏压到 300 V 时, 一方面, 电子密度和  $\text{Cl}^+$  离子密度的增加都增强了  $\text{Cl}_2^+$  离子的产生过程; 另一方面, 电子密度的升高也导致了电子和  $\text{Cl}_2^+$  离子的解离复合碰撞的加剧. 因此, 在该偏压范围内,  $\text{Cl}_2^+$  离子密度的上升趋势有所减缓. 当偏压增加到 400 V 时, 由于电子密度非常高 (图 5(i)), 电子与

$\text{Cl}_2^+$  离子之间的解离复合反应起主导作用, 最终使得  $\text{Cl}_2^+$  离子密度呈现下降的趋势.

当 ICP 功率为 100 W, 气压为 10 mTorr, 偏压频率不同时,  $\text{Cl}_2 (\nu = 0)$  分子的解离率  $n_{\text{Cl}} / [n_{\text{Cl}} + n_{\text{Cl}_2(\nu=0)}]$  和  $\text{O}_2$  分子的解离率  $n_{\text{O}}^* / (n_{\text{O}}^* + n_{\text{O}_2})$  随偏压幅值的变化规律如图 9 所示, 其中  $n_{\text{O}}^* = n_{\text{O}} + n_{\text{O(D)}}$ , 并且忽略了  $\text{O}_2$  分子的密度. 研究表明: 当偏压频率为 2.26 MHz 时,  $\text{Cl}_2 (\nu = 0)$  分子和  $\text{O}_2$  分子的解离率随着偏压先增加, 后基本保持不变, 最后再继续增加. 由图 3(a) 可知, 随着偏压从 10 V 增加到 200 V, 等离子体从偏压源中吸收功率的增长速度快于损失功率, 这促进了  $\text{Cl}_2 (\nu = 0)$  和  $\text{O}_2$  的解离 (见图 2(b) 和图 2(c)). 进一步增加偏压到 300 V, 由于净吸收功率  $\Delta P$  基本保持不变,  $\text{Cl}_2 (\nu = 0)$  和  $\text{O}_2$  的解离率也近似为一个常数. 当偏压增加到 400 V 时, 由于净吸收功率  $\Delta P$  的再一次显著增加, 促进了  $\text{Cl}_2 (\nu = 0)$  和  $\text{O}_2$  的解离. 此外, 当偏压幅值小于 200 V 时, 解离率

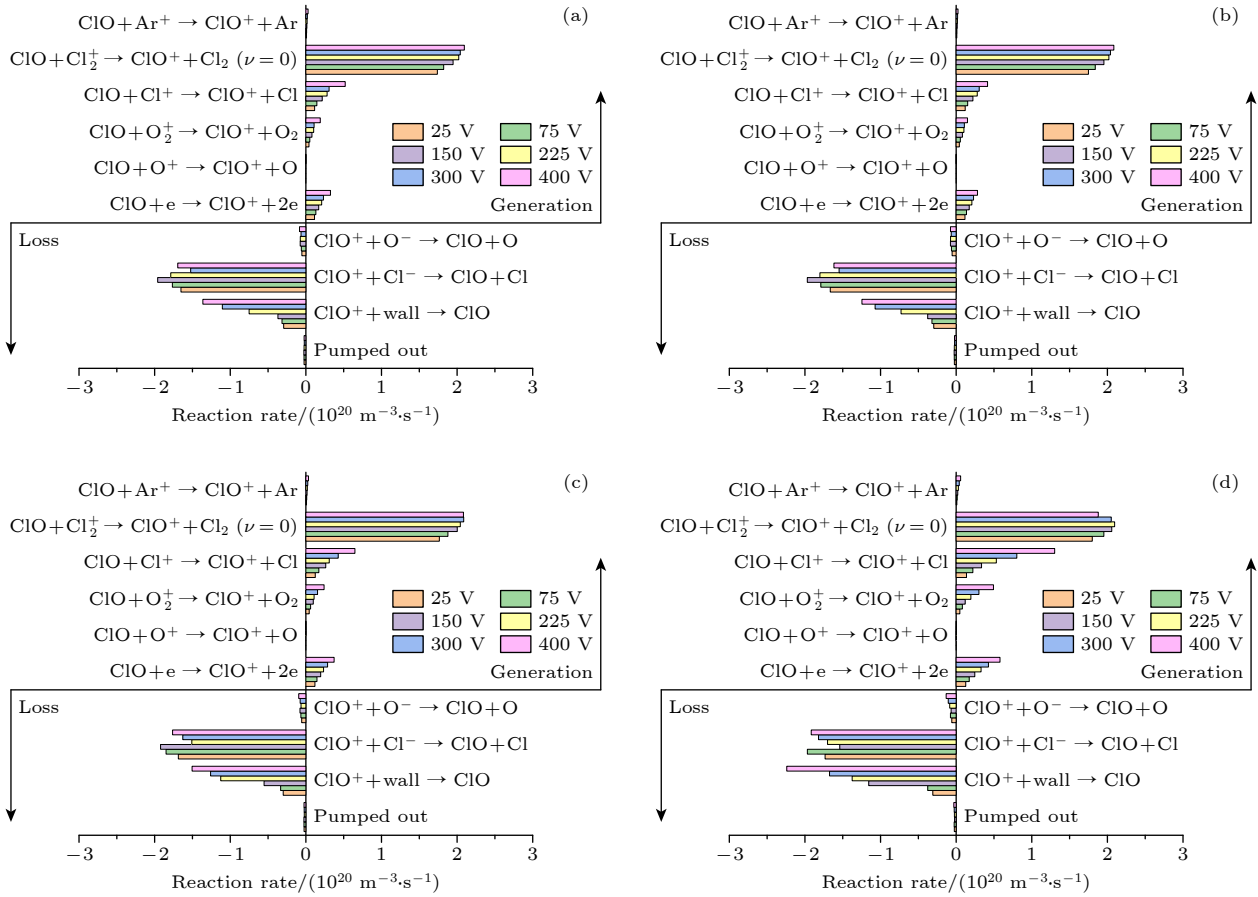


图 7 不同偏压频率下, ClO<sup>+</sup>离子的产生速率和损失速率随偏压幅值的变化 (a) 2.26 MHz; (b) 6.78 MHz; (c) 13.56 MHz; (d) 27.12 MHz  
 Fig. 7. Evolutions of the generation and loss rates of ClO<sup>+</sup> ions with bias voltage for different bias frequencies: (a) 2.26 MHz; (b) 6.78 MHz; (c) 13.56 MHz; (d) 27.12 MHz.

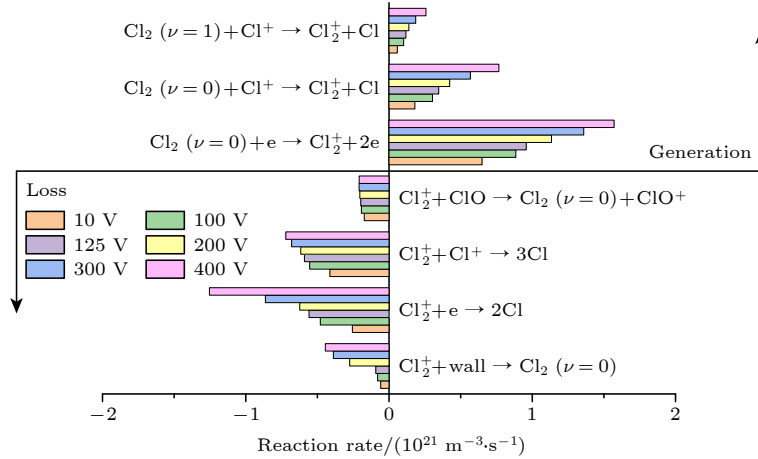


图 8 偏压频率为 27.12 MHz 时, Cl<sub>2</sub><sup>+</sup>离子的产生速率和损失速率随偏压幅值的变化  
 Fig. 8. Evolutions of the generation and loss rates of Cl<sub>2</sub><sup>+</sup> ions with bias voltage at bias frequency of 27.12 MHz.

随着偏压频率的增加而变得更高;当偏压幅值在 200 到 300 V 的范围内时,解离率随偏压频率先几乎保持不变,然后增加;当偏压幅值高于 300 V 时,解离率随着偏压频率先降低后增加.另外,还可以发现 Cl<sub>2</sub> (ν = 0) 分子的解离率始终在 45% 以上,

远高于 O<sub>2</sub> 分子(解离率不超过 15%).

图 10 给出了不同偏压频率下,等离子体的平均电负度  $\alpha = n_- / n_e$  随偏压幅值的变化规律.研究结果表明:固定偏压频率为 2.26 MHz 时,等离子体平均电负度随着偏压的增加先快速降低,后基本

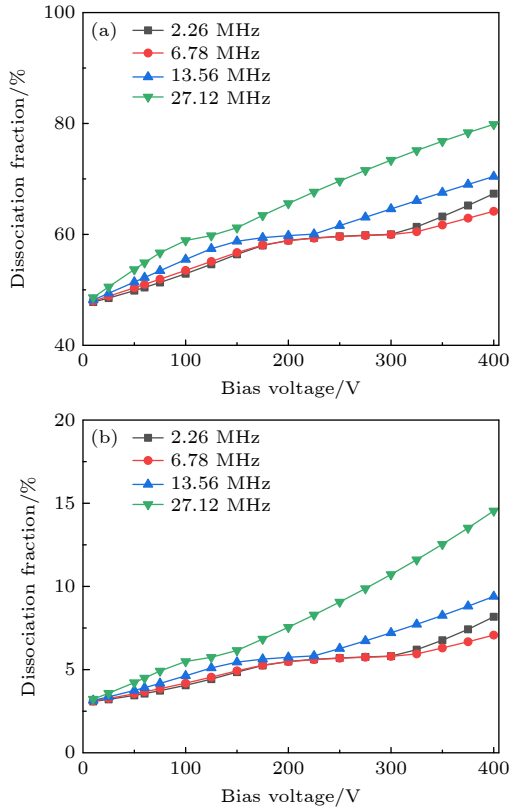


图9 不同偏压频率下, 解离率随偏压幅值的变化 (a)  $\text{Cl}_2$  ( $\nu = 0$ ); (b)  $\text{O}_2$

Fig. 9. Evolutions of the dissociation fraction with bias voltage for different bias frequencies: (a)  $\text{Cl}_2$  ( $\nu = 0$ ); (b)  $\text{O}_2$ .

保持不变, 最后再继续下降. 需要注意的是,  $\text{Cl}^-$  离子的密度比  $\text{O}^-$  离子的密度高一个数量级 (见图 5(d) 和图 5(g)), 因此等离子体的平均电负度主要由  $\text{Cl}^-$  离子密度和电子密度的比值决定, 即  $\alpha = n_{\text{Cl}^-} / n_e$ . 在较低和较高的偏压范围内, 尽管  $\text{Cl}^-$  离子的密度和电子密度都随偏压幅值的增加而增加, 但是由于等离子体从偏压源中获得的净能量显著增加,  $\text{Cl}_2$  ( $\nu = 0$ ) 分子的密度降低 (图 2(c)), 使得  $\text{Cl}^-$  离子的增长速度受到抑制 (见图 5(g)), 因而等离子体平均电负度随偏压幅值的增加呈下降趋势.

提高偏压频率到 6.78 MHz, 当偏压小于 200 V 时, 虽然电子密度和  $\text{Cl}^-$  离子的密度都有所增加, 电子密度的增幅更显著, 因此电负度随偏压频率的增加而降低. 当射频偏压在 300 V 以上时, 虽然电子密度和  $\text{Cl}^-$  离子的密度都有所降低, 电子密度的降幅更明显, 导致在此偏压范围内, 等离子体的平均电负度随偏压频率也有所提高. 当进一步提高偏压频率到 27.12 MHz 时, 电子密度和  $\text{Cl}^-$  离子的密度都显著增加, 尤其是电子密度, 导致了电负度的进一步降低.

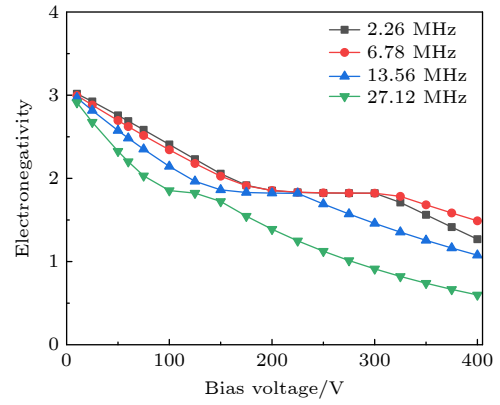


图10 不同偏压频率下, 电负度随偏压幅值的变化

Fig. 10. Evolution of the electronegativity with bias voltage for different bias frequencies.

### 3.2 偏压幅值和频率对离子能量分布的影响

在固定的 ICP 功率和气压下, 偏压频率和幅值对轰击到偏压电极上的  $\text{Ar}^+$  离子的能量角分布的影响, 如图 11 所示. 研究表明: 当偏压源频率由 2.26 MHz 增加到 27.12 MHz 时, 高能峰和低能峰逐渐向中间靠拢, 离子能峰宽度  $\Delta\epsilon_+$  逐渐减小. 这是因为当偏压源频率较低时, 离子渡越鞘层的时间  $\tau_+$  远小于射频周期  $\tau_{\text{rf}}$ , 即离子更能响应鞘层的振荡, 从而 IEDF 展示出更宽的双峰分布 [70], 这与 Hopkins 等 [71] 和 Gahan 等 [72] 的测量结果相吻合. 随着偏压频率的增加, 离子渡越鞘层的时间  $\tau_+$  与射频周期  $\tau_{\text{rf}}$  变得相当, 这使得离子能峰间距  $\Delta\epsilon_+$  变窄, 甚至在较低的射频偏压下近似呈现单峰分布, 这与 Edelberg 等 [73-75], Hayden 等 [71] 和 Gahan 等 [72] 的实验测量和 Wen 等 [6] 的数值模拟结果相符. 另外, 随着偏压幅值的增加, 所有的离子能峰均向高能方向移动, 且离子能峰宽度  $\Delta\epsilon_+$  逐渐增大. 这是因为在较低的偏压幅值下, 离子运动速度较慢, 离子渡越鞘层的时间  $\tau_+$  较长, 即 IEDF 对射频调制的响应较弱. 随着偏压幅值的提高, 时间平均的鞘层电压降  $\bar{v}_s$  不断增加, 如表 3 所列, 因此离子获得的能量较高, 即离子能峰向高能方向移动; 此外, 尽管时间平均的鞘层厚度  $\bar{d}_s$  也有所增加, 但是  $\bar{v}_s$  的增加更为明显, 因此离子渡越鞘层的时间  $\tau_+$  下降, 即鞘层振荡对 IEDF 的调制作用变得更为明显, 离子能峰宽度  $\Delta\epsilon_+$  增加.

图 12 是偏压为 125 V 时, 不同偏压频率下的  $\text{O}_2^+$ ,  $\text{O}^+$ ,  $\text{Cl}_2^+$  和  $\text{Cl}^+$  离子的能量分布. 除了离子能

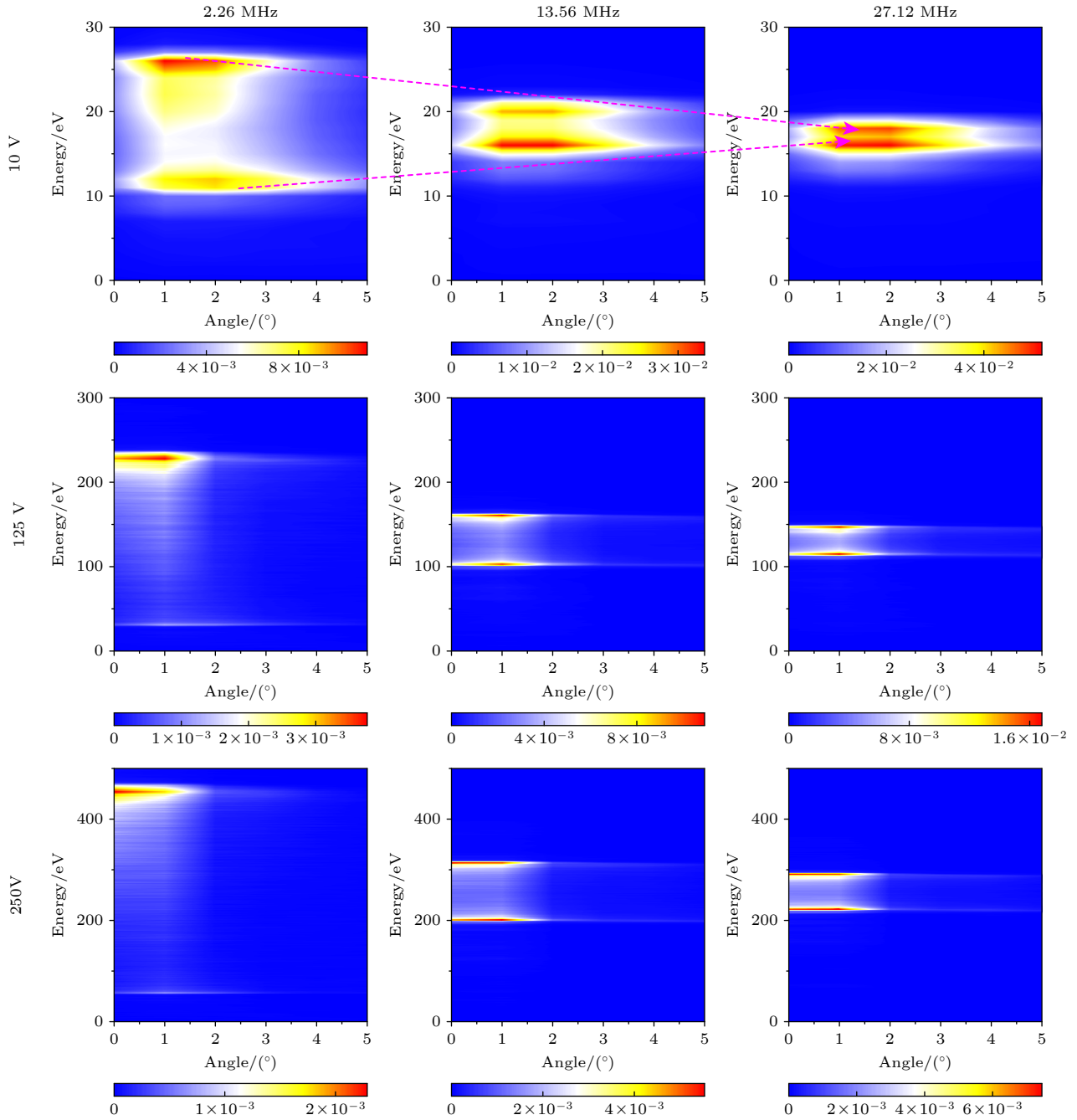


图 11 不同偏压频率和幅值下, Ar<sup>+</sup>离子的离子能量角度分布

Fig. 11. IEADFs of Ar<sup>+</sup> ions for different bias frequencies and bias voltages.

表 3 偏压频率为 13.56 MHz 时, 不同偏压幅值下的时间平均鞘层厚度和鞘层电压降

Table 3. Time-averaged sheath thickness and voltage drop across the sheath for different bias voltage amplitudes, at bias frequency of 13.56 MHz.

	25 V	50 V	75 V	100 V	125 V	150 V	175 V	200 V
$\bar{d}_s$ /mm	4.67	4.75	4.79	4.80	4.81	4.85	4.93	5.03
$\bar{V}_s$ /V	31.32	55.47	79.98	104.63	129.34	154.1	178.88	203.70

峰宽度不同外, 这四种离子的能量分布随偏压频率和幅值的变化趋势和 Ar<sup>+</sup>离子相似. 例如当偏压频率为 2.26 MHz 时, 这四种离子的高能峰分别出现在约 229 eV/233 eV/218 eV/228 eV 处, 低能峰

分别出现在约 28 eV/19 eV/41 eV/29 eV 处, 离子能峰宽度  $\Delta\epsilon_+$  依次为 201 eV/214 eV/177 eV/199 eV; 当偏压频率为 27.12 MHz 时, 这四种离子的高能峰分别出现在约 149 eV/154 eV/143 eV/

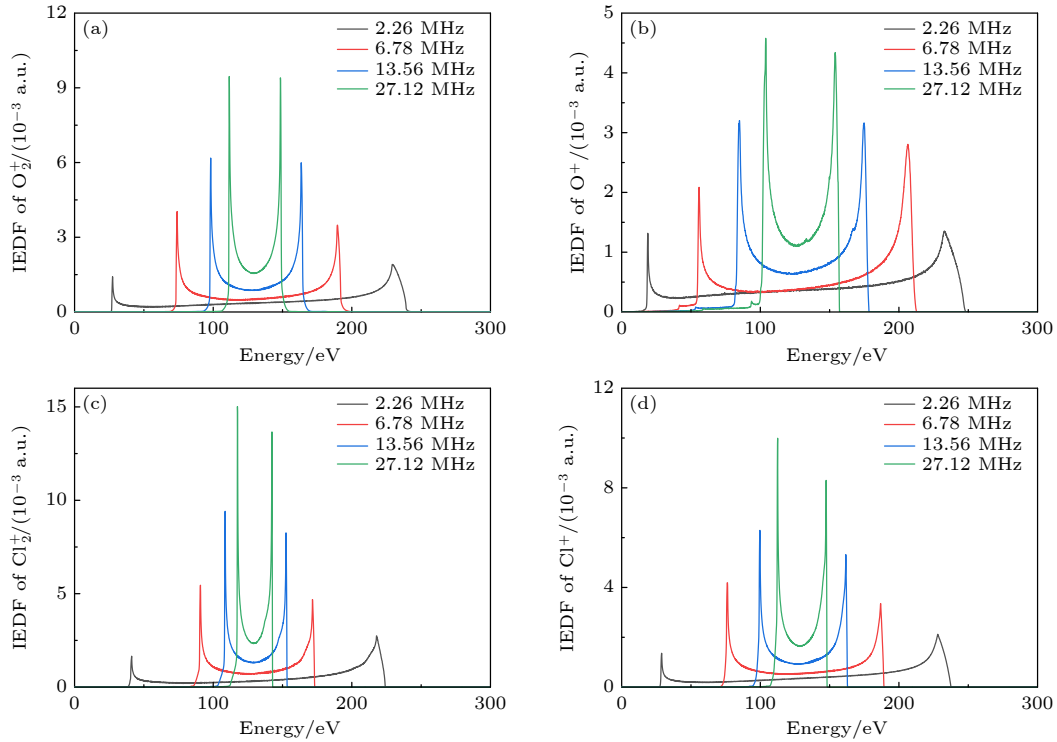


图 12 偏压幅值为 125 V, 不同偏压频率下各离子的能量分布 (a)  $O_2^+$ ; (b)  $O^+$ ; (c)  $Cl_2^+$ ; (d)  $Cl^+$   
 Fig. 12. IEDFs of ions for different bias frequencies at bias voltage of 125 V: (a)  $O_2^+$ ; (b)  $O^+$ ; (c)  $Cl_2^+$ ; (d)  $Cl^+$ .

148 eV 处, 低能峰分别出现在约 112 eV/104 eV/118 eV/113 eV 处, 离子能峰宽度  $\Delta\varepsilon_+$  依次下降为 37 eV/50 eV/25 eV/35 eV. 不同离子的能峰宽度, 依赖于其质量. 由于  $O^+$  离子的质量较轻, 在相同的鞘层电势降下,  $O^+$  离子的运动速度最快, 即跨越鞘层的时间  $\tau_+$  最短, 因此离子能峰宽度  $\Delta\varepsilon_+$  最大. 反之,  $Cl_2^+$  离子的运动速度最慢, 因此其对鞘层振荡的响应最弱, 即离子的能峰宽度  $\Delta\varepsilon_+$  最小.

## 4 结 论

本文采用由整体模型双向耦合鞘层模型、离子 MCC 模型组成的混合模型, 研究了带有偏压源的感性耦合 Ar/ $O_2$ / $Cl_2$  等离子体特性. 在 ICP 功率为 100 W, 气压为 10 mTorr 时, 探讨了偏压频率和幅值对基态中性粒子密度、带电粒子密度、解离率、电负度和偏压电极上的 IEDF 的影响.

研究表明: 当偏压频率为 2.26 MHz, 偏压幅值低于 50 V 时,  $Cl_2$  ( $\nu = 0$ ) 分子的密度最高; 当偏压高于 50 V 时, Cl 原子取代  $Cl_2$  ( $\nu = 0$ ) 分子成为密度最高的中性粒子,  $Cl_2^+$  离子和 Cl 离子分别是最重要的正负电荷携带者. 另外, 随着偏压幅值的增加, 除了 Cl 离子和  $ClO^+$  离子的密度先

增加后降低再增加外, 其余带电粒子、O 原子和 Cl 原子的密度均是先增加后基本保持不变最后再增加. 这一现象可以通过等离子体从偏压源中吸收的功率以及在偏压电极上耗散的功率来解释: 沉积功率随着射频偏压单调增加, 且在较高的偏压幅值下增幅更明显, 而耗散功率先是几乎保持不变随后线性增加. 因而, 在较低和较高的偏压范围内, 等离子体能够吸收更多的能量, 这增强了电子与  $O_2$  分子以及  $Cl_2$  ( $\nu = 0$ ) 分子的分解、电离等碰撞过程, 并导致 O 原子、Cl 原子和带电粒子的密度显著增加.

随着偏压频率的提高, 在低偏压范围内, 原料气体和 ClO 分子的密度以及电负度降低, 带电粒子、O 原子和 Cl 原子的密度以及解离率增加; 在高偏压范围内, 原料气体和 ClO 分子的密度以及电负度先增加后降低, 除了  $Cl_2^+$  离子和 Cl 离子的密度非线性变化外, 其余带电粒子、O 原子和 Cl 原子的密度以及解离率先降低后增加; 并且在频率为 27.12 MHz, 偏压超过 250 V 时, 电子取代 Cl 离子成为主要的负电荷携带者. 另外, 当偏压频率为 13.56 MHz 时, 除了 Cl 离子的密度随着偏压幅值先增加后降低再增加最后再降低外, 其余粒子密

度随偏压的变化趋势与低频结果相似. 当偏压频率为 27.12 MHz 时, 除了  $\text{Cl}_2^+$  离子随偏压幅值先快速增加后缓慢增加最后再降低外, 其余粒子密度的演化趋势与 13.56 MHz 的结果相似.

由于离子能量在刻蚀工艺中具有重要意义, 本文还研究了偏压源参数对轰击到偏压电极上的 IEDF 的影响. 随着偏压幅值的增加, 高能峰和低能峰都向高能方向移动, 并且离子能峰宽度变宽. 另外, 随着偏压频率的增加, 两个离子能峰逐渐向中间靠拢, 能峰宽度逐渐变小, 最终由双峰结构变成单峰结构. 研究结果有助于我们深入理解带有偏压源的感性耦合 Ar/ $\text{O}_2$ / $\text{Cl}_2$  等离子体的特性, 这对于优化等离子体工艺具有重要意义.

## 参考文献

- [1] Efremov A M, Kim D P, Kim C I 2004 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **32** 1344
- [2] Efremov A M, Kim D P, Kim C I 2003 *J. Vac. Sci. Technol., A* **21** 1568
- [3] Bogaerts A, Neyts E, Gijbels R, Van Der Mullen J 2002 *Spectrochim. Acta, Part B* **57** 609
- [4] Choi S K, Kim D P, Kim C I, Chang E G 2001 *J. Vac. Sci. Technol., A* **19** 1063
- [5] Lee Y J, Han H R, Lee J, Yeom G Y 2000 *Surf. Coat. Technol.* **131** 257
- [6] Wen D Q, Liu W, Gao F, Lieberman M A, Wang Y N 2016 *Plasma Sources Sci. Technol.* **25** 045009
- [7] Wen D, Zhang Y, Lieberman M A, Wang Y 2017 *Plasma Processes Polym.* **14** 1600100
- [8] Zhang Y R, Gao F, Li X C, Bogaerts A, Wang Y N 2015 *J. Vac. Sci. Technol., A* **33** 061303
- [9] Lee H C, Lee M H, Chung C W 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 071501
- [10] Lee H C, Chung C W 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 244104
- [11] Lee H C, Bang J Y, Chung C W 2011 *Thin Solid Films* **519** 7009
- [12] Lee C, Lieberman M A 1995 *J. Vac. Sci. Technol., A* **13** 368
- [13] Gudmundsson J T 2004 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37** 2073
- [14] Jung J, Kim M S, Park J, Lim C M, Hwang T W, Seo B J, Chung C W 2023 *Phys. Plasmas* **30** 023504
- [15] Tong L, Zhang Y R, Huang J W, Zhao M L, Wen D Q, Song Y H, Wang Y N 2021 *Phys. Plasmas* **28** 053512
- [16] Tong L, Zhao M L, Zhang Y R, Song Y H, Wang Y N 2023 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **56** 365202
- [17] Khater M H, Overzet L J 2004 *Plasma Sources Sci. Technol.* **13** 466
- [18] Dai Z L, Zhang S Q, Wang Y N 2013 *Vacuum* **89** 197
- [19] Zhang S Q, Dai Z L, Song Y H, Wang Y N 2014 *Vacuum* **99** 180
- [20] Levko D, Raja L L 2022 *J. Vac. Sci. Technol., B* **40** 052205
- [21] Levko D, Upadhyay R R, Suzuki K, Raja L L 2023 *J. Vac. Sci. Technol., A* **41** 012205
- [22] Malyshev M V, Donnelly V M, Colonell J I, Samukawa S 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 4813
- [23] Malyshev M V, Donnelly V M 2000 *Plasma Sources Sci. Technol.* **9** 353
- [24] Donnelly V M, Malyshev M V 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2467
- [25] Malyshev M V, Donnelly V M 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 1130
- [26] Malyshev M V, Fuller N C M, Bogart K H A, Donnelly V M, Herman I P 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 2246
- [27] Malyshev M V, Donnelly V M 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 6207
- [28] Malyshev M V, Donnelly V M 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 1642
- [29] Thorsteinsson E G, Gudmundsson J T 2010 *Plasma Sources Sci. Technol.* **19** 015001
- [30] Thorsteinsson E G, Gudmundsson J T 2010 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43** 115201
- [31] Thorsteinsson E G, Gudmundsson J T 2010 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43** 115202
- [32] Thorsteinsson E G, Gudmundsson J T 2010 *Plasma Sources Sci. Technol.* **19** 055008
- [33] Gudmundsson J T, Hjartarson A T, Thorsteinsson E G 2012 *Vacuum* **86** 808
- [34] Zhang Y R, Zhao Z Z, Xue C, Gao F, Wang Y N 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 295204
- [35] Liu W, Wen D Q, Zhao S X, Gao F, Wang Y N 2015 *Plasma Sources Sci. Technol.* **24** 025035
- [36] Fan H Z, Liu K, Huang Y Q, Cai S W, Ren X M, Duan X F, Wang Q, Liu H, Wu Y, Fei J R 2017 *Chin. J. Vac. Sci. Technol.* **37** 286 (in Chinese) [范惠泽, 刘凯, 黄永清, 蔡世伟, 任晓敏, 段晓峰, 王琦, 刘昊, 吴瑶, 费嘉瑞 2017 *真空科学与技术学报* **37** 286]
- [37] Smith S A, Lampert W V, Rajagopal P, Banks A D, Thomson D, Davis R F 2000 *J. Vac. Sci. Technol., A* **18** 879
- [38] Lee J M, Chang K M, Lee I H, Park S J 2000 *J. Vac. Sci. Technol., B* **18** 1409
- [39] Taube A, Kamiński M, Ekielski M, et al. 2021 *Mater. Sci. Semicond. Process.* **122** 105450
- [40] Chung C W, Chung I 2000 *J. Vac. Sci. Technol., A* **18** 835
- [41] Park J S, Kim T H, Choi C S, Hahn Y B 2002 *Korean J. Chem. Eng.* **19** 486
- [42] Kwon K H, Efremov A, Yun S J, Chun I, Kim K 2014 *Thin Solid Films* **552** 105
- [43] Kang S, Efremov A, Yun S J, Son J, Kwon K H 2013 *Plasma Chem. Plasma Process.* **33** 527
- [44] Tinck S, Boullart W, Bogaerts A 2009 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** 095204
- [45] Tinck S, Boullart W, Bogaerts A 2011 *Plasma Sources Sci. Technol.* **20** 045012
- [46] Tinck S, Bogaerts A, Shamiryan D 2011 *Plasma Processes Polym.* **8** 490
- [47] Hsu C C, Coburn J W, Graves D B 2006 *J. Vac. Sci. Technol., A* **24** 1
- [48] Efremov A, Amirov I, Izyumov M 2023 *Vacuum* **207** 111664
- [49] Hsu C C, Nierode M A, Coburn J W, Graves D B 2006 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** 3272
- [50] Schulze J, Schütingel E, Czarnetzki U 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 024102
- [51] Ahr P, Schütingel E, Schulze J, Tsankov T V, Czarnetzki U 2015 *Plasma Sources Sci. Technol.* **24** 044006
- [52] Lieberman M A, Lichtenberg A J 2005 *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing* (Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc.) p268
- [53] Zhang Y R, Gao F, Wang Y N A 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 095206 (in Chinese) [张钰如, 高飞, 王友年 2021 *物理学报* **70** 095206]
- [54] Yang W, Zhao S X, Wen D Q, Liu W, Liu Y X, Li X C, Wang Y N 2016 *J. Vac. Sci. Technol., A* **34** 031305
- [55] Toneli D A, Pessoa R S, Roberto M, Gudmundsson J T 2015 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48** 325202
- [56] Proto A 2021 *Ph. D. Dissertation* (Iceland: University of Iceland)

- [57] Stafford L, Khare R, Guha J, Donnelly V M, Poirier J S, Margot J 2009 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** 055206
- [58] Guha J, Donnelly V M 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 113307
- [59] Boyd R L F, Thomson J B 1959 *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **252** 102
- [60] Kokkoris G, Goodyear A, Cooke M, Gogolides E 2008 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41** 195211
- [61] Dai Z L, Wang Y N, Ma T C 2002 *Phys. Rev. E* **65** 036403
- [62] Dai Z L, Wang Y N 2004 *Phys. Rev. E* **69** 036403
- [63] Dai Z L, Wang Y N 2002 *Phys. Rev. E* **66** 026413
- [64] Dai Z L, Wang Y N 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 6428
- [65] Dai Z L, Wang Y N 2003 *Surf. Coat. Technol.* **165** 224
- [66] Wen D Q, Zhang Q Z, Jiang W, Song Y H, Bogaerts A, Wang Y N 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 233303
- [67] Hong Y H, Kim T W, Kim B S, Lee M Y, Chung C W 2022 *Plasma Sources Sci. Technol.* **31** 075008
- [68] Huang S, Gudmundsson J T 2013 *Plasma Sources Sci. Technol.* **22** 055020
- [69] Hennad A, Yousfi M 2010 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44** 025201
- [70] Manenschijn A, Janssen G C A M, Van Der Drift E, Radelaar S 1991 *J. Appl. Phys.* **69** 1253
- [71] Hayden C, Gahan D, Hopkins M B 2009 *Plasma Sources Sci. Technol.* **18** 025018
- [72] Gahan D, Dolinaj B, Hopkins M B 2008 *Rev. Sci. Instrum.* **79** 033502
- [73] Edelberg E A, Aydil E S 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 4799
- [74] Edelberg E A, Perry A, Benjamin N, Aydil E S 1999 *J. Vac. Sci. Technol., A* **17** 506
- [75] Edelberg E A, Perry A, Benjamin N, Aydil E S 1999 *Rev. Sci. Instrum.* **70** 2689

## Hybrid simulation of radio frequency biased inductively coupled Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> plasmas\*

Tong Lei    Zhao Ming-Liang    Zhang Yu-Ru<sup>†</sup>  
 Song Yuan-Hong    Wang You-Nian

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

( Received 22 August 2023; revised manuscript received 22 November 2023 )

### Abstract

In the etching process, a bias source is usually applied to the substrate of the inductively coupled plasma (ICP) to realize independent modulation of the ion energy and ion flux. In this work, a hybrid model, i.e. a global model combined bi-directionally with a fluid sheath model, is employed to investigate the plasma properties and ion energy distribution function (IEDF) in biased inductively coupled Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> plasmas. The results indicate that at a bias frequency of 2.26 MHz, the Cl<sup>-</sup> ion density and ClO<sup>+</sup> ion density first increase with bias voltage rising, and then they decrease, and finally they rise again, which is different from the densities of other charged species, such as O and Cl atoms. At the bias frequency of 13.56 MHz and 27.12 MHz, except Cl<sup>-</sup> and Cl<sub>2</sub><sup>+</sup> ions, the evolutions of other species densities with bias voltage are similar to the results at lower bias frequency. The evolution of the species densities with bias frequency depends on the bias voltage. For instance, in the low bias voltage range (< 200 V), the densities of charges species, O and Cl atoms increase with bias frequency increasing due to a significant increase in the heating of the plasma by the bias source. However, when the bias voltage is high, say, higher than 300 V, except Cl<sub>2</sub><sup>+</sup> and Cl<sup>-</sup> ions, the densities of other charged species, O and Cl atoms first decrease with bias frequency increasing and then they increase due to a decrease and then an increase in the heating of the plasma by the bias source. In addition, as the bias frequency increases, the peak separation of IEDF becomes narrow, the high energy peak and low energy peak approach each other and they almost merge into one peak at high bias frequency. The results obtained in this work are of significant importance in improving the etching process.

**Keywords:** inductively coupled plasma, bias source, hybrid model, ion energy, ion flux

**PACS:** 52.50.Qt, 52.65.-y

**DOI:** 10.7498/aps.73.20231369

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12275041, 11935005, 12020101005).

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

带有射频偏压源的感性耦合Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub>等离子体放电的混合模拟研究

佟磊 赵明亮 张钰如 宋远红 王友年

Hybrid simulation of radio frequency biased inductively coupled Ar/O<sub>2</sub>/Cl<sub>2</sub> plasmas

Tong Lei Zhao Ming-Liang Zhang Yu-Ru Song Yuan-Hong Wang You-Nian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 045201 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20231369

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231369>

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

低气压感性耦合等离子体源模拟研究进展

Numerical investigation of low pressure inductively coupled plasma sources: A review

物理学报. 2021, 70(9): 095206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202247>

13.56 MHz/2 MHz柱状感性耦合等离子体参数的对比研究

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

物理学报. 2019, 68(10): 105202 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190071>

纵磁作用下真空电弧单阴极斑点等离子体射流三维混合模拟

Three-dimensional hybrid simulation of single cathode spot vacuum arc plasma jet under axial magnetic field

物理学报. 2021, 70(5): 055201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201701>

射频容性耦合Ar/O<sub>2</sub>等离子体的轴向诊断

Axial diagnosis of radio-frequency capacitively coupled Ar/O<sub>2</sub> plasma

物理学报. 2021, 70(11): 115204 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202113>

大功率热平衡感应耦合等离子体数值模拟及实验研究

Numerical simulation and experimental study of high-power thermal equilibrium inductively coupled plasma

物理学报. 2021, 70(9): 095204 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201610>

非平衡感应耦合等离子体流场与电磁场作用机理的数值模拟

Numerical investigation on interaction mechanisms between flow field and electromagnetic field for nonequilibrium inductively coupled plasma

物理学报. 2019, 68(18): 185202 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190865>