

专题: 低温等离子体非平衡输运与主动调控

等离子体沉积和刻蚀中离子与中性基团 协同作用和表面形貌*

宋柳琴 董婉^{#†} 张逸凡^{#‡} 宋远红

(大连理工大学物理学院, 大连 116024)

(2025年9月9日收到; 2025年10月29日收到修改稿)

低温等离子体沉积与刻蚀技术在芯片制造、平板显示器和光伏等等离子体辅助制造领域中具有至关重要的作用。而等离子体与材料之间的物理、化学相互作用机理, 是揭示工艺过程本质、优化制程参数、提升器件性能与可靠性的重要科学基础。本工作基于流体混合模型并耦合表面形貌演化模型自洽模拟了不同放电参数下的等离子体放电特性以及沉积/刻蚀表面形貌, 给出了一些研究实例的模拟结果与讨论。在非晶硅薄膜沉积过程研究中发现, 等离子体放电过程所产生的电子密度径向分布不均匀, 会导致基片表面中性基团和离子通量分布乃至膜厚或膜质的不均匀。其中, 离子能量分布还会影响薄膜中各元素的含量和成键情况, 进而影响薄膜质量和性能。而在碳氟混合气体放电刻蚀 SiO₂ 研究中, 发现在裁剪电压波形的驱动下通过调节电极间距、谐波相位以及谐波次数, 可实现对离子与中性基团的灵活控制, 从而筛选出更优的放电参数以改善刻蚀效果。在感性耦合氯混合气体刻蚀 Si 的过程中, 采用裁剪电压波形会使离子能量主要分布在高能区, 这能显著提高刻蚀效率。综上, 通过混合模拟可以实现等离子体放电与沉积/刻蚀过程的自洽耦合, 总结离子与中性基团协同作用的本质规律, 为工艺与设备的优化提供参考。

关键词: 等离子体增强化学气相沉积, 等离子体刻蚀, 离子与中性基团协同作用**PACS:** 52.65.-y, 68.55.-a, 52.77.Bn**DOI:** 10.7498/aps.74.20251236**CSTR:** 32037.14.aps.74.20251236

1 引言

在芯片、光伏和平板显示等领域等离子体沉积与刻蚀工艺中^[1-3], 纳米级多层半导体、电介质和导体薄膜的精密设计与实现, 均依赖反应性气体(如硅烷混合气体、碳氟混合气体、氯混合气体等)的放电过程^[4-6]。在外加电源激励下, 发生电离、激发和附着等多种碰撞反应, 进而产生各种离子和具有化学活性的中性基团。在等离子体沉积过程中, 中

性基团(前驱物)在基底表面逐层累积以形成薄膜, 并最终达到目标厚度。在此过程中, 通常要求离子能量低于沉积材料的去除阈值, 以避免薄膜被溅射去除。但适度的离子轰击又有助于填补空位、提升薄膜的致密性。相比之下, 在等离子体刻蚀中, 一方面中性基团可以与目标材料发生反应, 形成钝化层, 进而降低目标材料的去除阈值; 另一方面离子在鞘层电势的作用下获得动能, 加速到达表面从而达到去除表层的钝化层, 甚至目标材料的刻蚀目的^[5,7-9]。由此可见, 在等离子体沉积与刻蚀过程中, 离子能

* 国家自然科学基金(批准号: 12020101005, 12475202, 12405289)、辽宁省自然科学基金联合基金(批准号: 2023-BSBA-089)和大连理工大学2025年度“卓越共创计划”国际交流基金(批准号: DUTIO-ZG-202502)资助的课题。

同等贡献作者。

† 通信作者。E-mail: wandong@dlut.edu.cn

‡ 通信作者。E-mail: zhangefan@dlut.edu.cn

量的精准控制以及中性基团与离子通量的合理调控,是优化工艺效果的关键。

针对上述关键问题,已有学者开展了相关研究。Funde 等^[10]发现 SiH_3 自由基是纳米晶硅 (nc-Si:H) 与非晶硅 (a-Si:H) 生长的共同前驱物,并关注到原子氢在 nc-Si:H 的结晶过程中起关键作用。Matsuda 和 Goto^[11-13]系统研究了射频功率密度和气体流量比对薄膜结构特性的影响。实验结果表明,当 SiH_4 含量较高时,薄膜表现出典型的非晶结构;随着 SiH_4 含量降低,薄膜逐渐呈现两相结构,微晶成分逐渐增多。这表明中性基团通量比例对微晶硅薄膜的结构与性能具有重要影响。此外,在沉积过程中,较高能离子通过增强表面吸附粒子的扩散能力^[14],影响薄膜的微观结构与界面质量,提升薄膜的致密度与附着力。但能量过高的离子又会轰击损伤薄膜,引发显著的溅射作用,抑制薄膜沉积速率的提高甚至损伤基底^[15]。此外,径向均匀性也是不可忽略的问题。Kim 等^[16-19]针对放电参数(如气压、气体比例、功率等)和腔室结构对含硅烷等离子体均匀性以及沉积薄膜厚度均匀性的影响进行了一系列研究,他们发现随气压升高会使电极边缘出现显著电子密度峰,导致等离子体密度分布非均匀,从而引发沉积薄膜均匀性变差。

在刻蚀过程中,Huang 等^[5]利用混合等离子体设备模型 (hybrid plasma equipment model, HPEM) 研究了 $\text{Ar}/\text{C}_4\text{F}_8/\text{O}_2$ 刻蚀 SiO_2 的多尺度模拟,并且还关注了中性基团通量与离子通量比值大小对刻蚀速率的影响,但该研究仅主要集中在传统双频源,并且结果显示双频源很难使离子能量与离子、中性通量解耦。近十几年来,有研究显示裁剪电压波形 (tailored voltage waveforms, TVW) 可以在一定程度上通过调控离子和电子的动力学特性,实现离子能量和离子通量的独立控制^[20-26]。比如,Schulze 等^[24]使用幅值非对称双频电压波形研究了 CF_4 气体的放电特性,发现改变谐波之间的相位角能使得极板两侧附近的电子动力学特性发生差异,导致在极板一侧形成较大的自偏压,进而可以调制离子能量,而此时由于使用的频率和电压幅值没有变化,离子通量几乎不变。此外,Bruneau 等^[25,26]使用斜率非对称电压波形研究了 Ar , H_2 , CF_4 的放电特性,并给出了离子通量和离子能量的变化趋势。他们发现当增加谐波次数时,离子通量被有效增大,而离子能量却几乎不变。

然而,以上针对沉积或者刻蚀的研究大都集中在实验研究、放电特性模拟,对于自洽描述等离子体放电特性、离子与中性基团协同作用以及表面反应机制的系统研究鲜有报道。此外,许多现有研究虽针对均匀性展开,但仅通过电子密度或表面基团通量的径向分布来衡量表面形貌分布和沉积/刻蚀速率的均匀性。根据前面的讨论来看,无论是薄膜沉积过程还是刻蚀过程,都会受到多种中性基团与表面反应、离子轰击的协同作用,所以仅通过某个等离子体参量来衡量表面形貌的刻蚀/沉积质量是不够的。

目前,用于研究沉积或刻蚀表面形貌的模拟方法有很多,常见的包括分子动力学方法^[27,28]和元胞法^[29]。Ju 等^[27]采用分子动力学结合实验的方法,对薄膜表面生长过程展开了详细研究,其中包括原子键断裂/形成等微观粒子之间的交互作用。但这种方法的计算成本极高,计算的空间与时间尺度也受到限制。Ruan 等^[29]采用元胞法对氮化硅薄膜生长过程进行了模拟,并与实验结果取得了较好验证。然而,在他们的研究中,等离子体状态是假设的,并非经过自洽计算得出。另外,由于实验研究中受到观测手段的限制,研究人员只能对刻蚀结果和薄膜的整体结构进行宏观统计分析,难以获取更深入的微观结构信息,无法对不同工艺条件下制备的薄膜结构或给出的刻蚀形貌进行理论分析,也就难以深入理解薄膜性能、刻蚀形貌随工艺演变规律的本质。

综上,本文采用流体混合模型计算等离子体放电特性,同时耦合表面形貌演化模型计算沉积/刻蚀的表面形貌。通过改变放电参数、驱动波形,分析等离子体放电特性对沉积/刻蚀薄膜形貌、速率和质量的影响,揭示等离子体放电特性与沉积/刻蚀表面形貌之间的内在物理规律,以期为实际工艺提供指导。

2 模型介绍

2.1 流体混合模型

本模拟工作主要采用流体模型求解等离子体状态,基于有限体积法将连续性方程(离子和电子)、漂移-扩散近似方程(离子和电子)以及电子能量方程与泊松方程耦合求解。对于中性基团,耦合求解连续性方程和扩散方程。以上提到的具体方程形式和边界条件在之前的工作^[30]中已有详细

介绍. 由于刻蚀和沉积的放电参数范围的不同, 其放电模型略有一些差异. 刻蚀相关放电过程使用了离子全动量方程描述离子的输运过程, 并且耦合电子蒙特卡罗模型自洽计算了电子能量分布函数和电子与中性基团的碰撞反应速率系数^[31]. 本文分别对容性耦合等离子体 (capacitively coupled plasma, CCP) 以及感性耦合等离子体 (inductively coupled plasma, ICP) 进行模拟研究, 二者的流体模块是通用的. ICP 的电磁场通过求解麦克斯韦方程组来确定, 由电荷分离和偏压电源产生的静电场和由流经线圈的射频电流所激发的涡旋电场组成.

在非晶硅薄膜沉积研究中, 工艺气体为 SiH_4/H_2 混合气体, 其放电考虑了相关的 11 种粒子和 24 个反应^[32,33]. 刻蚀过程考虑 SiO_2 和 Si 的刻蚀, 对应的工艺气体分别为 Ar/CF_4 , Ar/CHF_3 和 Ar/Cl_2 . Ar/CF_4 反应集中考虑了 15 种粒子和 51 个反应, Ar/CHF_3 反应集包含了 20 种粒子和 55 个反应, 而 Ar/Cl_2 反应集囊括了 8 种粒子和 13 个气相化学反应, 反应列表、截面和系数等也已在之前的工作中详细介绍^[6,31,34-36].

2.2 表面形貌演化模型

刻蚀/沉积形貌演化模型采用了元胞法 (cellular method), 并包括了表面蒙特卡罗 (surface Monte-Carlo)、粒子追踪、充电效应等模块来实现形貌演化模拟^[31,34]. 元胞法的基本思想是将计算区域按照正交网格等距划分为若干元胞, 并为每个元胞赋予对应的材料属性. 通常, 单个元胞的模拟尺度处于纳米量级, 每个元胞仅包含一个原子、分子或化合物. 在本文研究中, 单个元胞的边长被设定为 0.2 nm. 下面介绍表面形貌模块中最主要的 3 个步骤.

1) 更新电场. 进入形貌演化计算区域的带电粒子轰击到极板材料表面 (如 Si, SiO_2 等) 会有电荷积累, 当新的带电粒子进入计算区域时会受到前面粒子累积产生电场的影响.

2) 追踪粒子并判断发生反射、反应概率. 离子的初始速度和角度根据离子能量角度分布函数 (IEAD) 随机抽样获得, 中性基团的初始角度是随机抽样得出, 其分布是各向同性的, 初始速度为对应中性基团的热速度. 离子和中性基团在计算区域中被跟踪, 直到到达材料表面, 该粒子以一定几率发生表面反射、吸附、解吸附、表面扩散及再沉积

等反应.

3) 更新表面元胞. 如果入射粒子的入射角过大发生反射后, 持续追踪粒子的运动, 直到再次与材料表面接触发生反应, 这些表面反应的速率系数、溅射能量阈值等参数来源于文献^[37-40]. 本文设定基片温度保持不变, 相关表面反应系数在本文放电参数范围内波动幅度可忽略, 通常设为固定值. 发生表面反应时, 原来的元胞所对应的材料属性更改为新生成的材料属性, 如此周而复始即可模拟出沉积/刻蚀形貌演化过程.

2.3 流体混合模型与形貌演化模型的耦合

等离子体放电特性对微观形貌的调控机制, 既是沉积/刻蚀工艺优化中的关注重点, 亦是跨尺度模拟该过程面临的难点之一, 同时需要平衡模型的复杂程度与计算效率. 针对以上问题, 首先基于流体混合模型自洽计算的等离子体状态到达稳态后, 给出周期平均的电极表面离子和中性基团通量的径向分布, 并通过离子蒙特卡罗模型与流体模型实时耦合计算 50 个射频周期内接地电极表面径向向不同位置处的 IEAD. 随后, 将粒子通量和 IEAD 传输至表面形貌演化模型, 计算得到时间分辨的二维表面形貌分布. 此外, 基于沉积过程中对表面反应类型、离子溅射概率、生成物的空间位置等信息的统计, 可以得到薄膜中的元素含量、反应类型占比以及空位占比等反映薄膜质量的参数, 各参数的统计方法在下文结果讨论中详细介绍.

3 结果与讨论

3.1 SiH_4/H_2 混合气体放电和沉积薄膜形貌

3.1.1 气压对 SiH_4/H_2 混合气体放电和非晶硅薄膜形貌的影响

本节重点关注非晶硅薄膜的沉积过程, 采用的放电气体为 SiH_4/H_2 混合气体, 驱动频率为 13.56 MHz, 驱动电压为 50 V. 放电腔室的电极间距为 2 cm, 电极半径为 11 cm, 腔室半径为 12 cm. 重点关注气压 (2—4 Torr, 1 Torr = 133 Pa) 和气体比例 (SiH_4 含量 10%—90%) 对等离子体放电特性、沉积形貌及沉积特性的影响.

图 1 展示了硅烷含量为 10%, 2—4 Torr 气压下周期平均电子密度和沉积薄膜主要前驱物 SiH_3

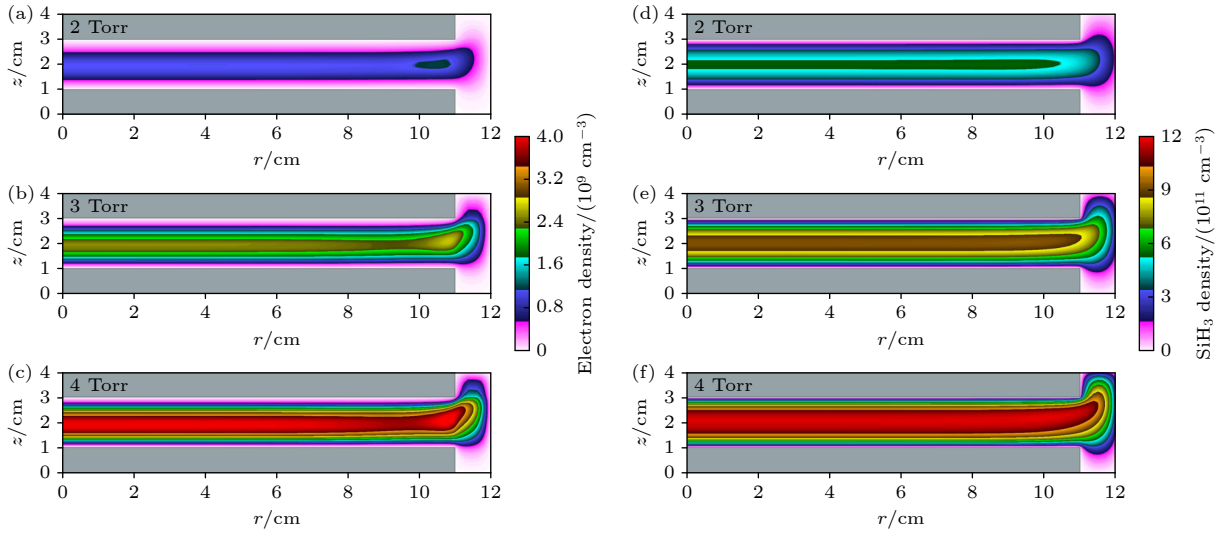


图 1 不同气压(2—4 Torr)下, SiH₄/H₂ 混合气体放电中, 放电条件为电极长度 11 cm, 电极间距 2 cm, 驱动频率 13.56 MHz, 电压幅值 50 V, 气体比例固定为 SiH₄/H₂ = 1/9 (a)–(c) 周期平均电子密度; (d)–(f) SiH₃ 基团密度的空间分布

Fig. 1. In the discharge of SiH₄/H₂ at different pressures (2–4 Torr), the discharge conditions are two parallel plates with a length of 11 cm and a distance of 2 cm between them, driving frequency is 13.56 MHz and a voltage amplitude of 50 V, and SiH₄/H₂ gas ratio is fixed at 1/9: (a)–(c) Period-averaged electron density; (d)–(f) spatial distribution of SiH₃ density.

密度的空间分布. 结果显示, 随着气压从 2 Torr 升高到 4 Torr, 电子密度升高, 在电极径向边缘附近的提升更为显著, SiH₃ 密度分布变化规律也类似, 表明随着气压升高放电的边缘效应逐渐显著. 此外, 由于侧壁接地, 接地电极与侧壁面积之和大于驱动电极面积, 因此 SiH₃ 密度轴向上存在一定程度的不对称.

基于图 1 所示的等离子体状态, 图 2 给出了不同气压下沉积时间为 30 s 时的沉积形貌分布和不均匀度, 其中不均匀度由 $\frac{H_{Max} - H_{Min}}{H_{Max} + H_{Min}} \times 100\%$ 计算得到, H_{Max} 和 H_{Min} 分别表示沉积薄膜厚度的最大值和最小值, 该公式与 Zhang 等 [32,33] 的计算方法一致. 结果显示, 沉积时间相同的情况下随气压升高, 沉积的薄膜显著变厚, 薄膜的均匀性略微提升. 薄膜的沉积速率主要受前驱物通量和离子能量的大小影响. 随气压升高, 前驱物通量显著增大. 而高能离子轰击对薄膜有溅射作用, 可以使薄膜更为致密, 对薄膜过快生长存在一定的抑制作用. 图 3 给出了 2—4 Torr 气压下, 径向中心处和电极边缘处接地电极表面的离子能量分布 (IED). 随气压升高, 无论是径向中心还是径向边缘处, 由于碰撞更加剧烈, 高于 15 eV 溅射阈值的高能离子占比显著降低. 以上原因共同作用使得薄膜沉积速率随着气压增大从 0.383 nm/s(2 Torr) 显著提升至 0.695 nm/s (4 Torr). 此外, 在相同气压下, 径向边缘处离子能

量相对更低, 如图 3(b) 所示. 随气压从 2 Torr 升高到 4 Torr, 径向中心处和边缘处的中性基团通量增

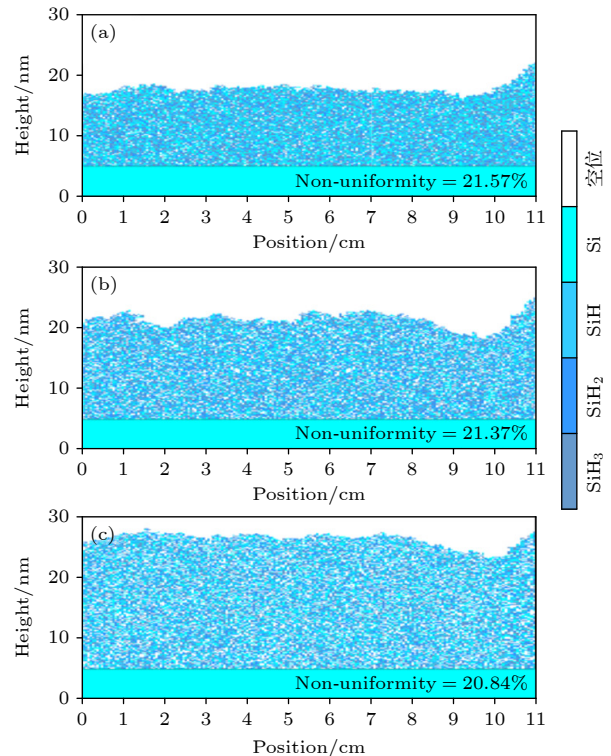


图 2 沉积时间为 30 s 时, 不同气压下 SiH₄/H₂ 混合气体放电的薄膜的表面形貌径向分布, 放电条件与图 1 一致 (a) 2 Torr, (b) 3 Torr, (c) 4 Torr

Fig. 2. Profiles formed after deposition time of 30 s for different pressures: (a) 2 Torr; (b) 3 Torr; (c) 4 Torr. the discharge conditions are the same as in Fig. 1.

幅分别为 138.8% 和 125.6%，差距为 13.2%；而径向中心处和边缘处的沉积速率增幅分别为 83.9% 和 76.4%，差距为 7.5%，差距明显减小。这一定程度上与离子对薄膜的溅射作用有关。从图 3 可知，径向中心处高能粒子较多，离子轰击作用将影响沉积速率，使其增幅减慢，而径向边缘处高能离子较少，因而离子轰击对沉积速率的影响较弱。沉积薄膜厚度的径向均匀性同样受到前驱物通量和离子能量的共同影响。随气压升高，到达接地电极的前驱物径向通量不均匀度从 24.29% 降低至 21.77%，而沉积薄膜厚度的不均匀度仅从 21.57% 降低至 20.84%。沉积薄膜厚度的不均匀度相比前驱物通量的不均匀度变化幅度有所减小。这主要是由于气压较低时，虽然径向的通量不均匀度较大，但高能粒子溅射作用不可忽略，尤其在径向中心处，而径向边缘处的离子的溅射作用不显著。因此，较低气压下薄膜沉积不均匀度与径向通量不均匀度相差较大。而当气压进一步增大时，离子的高能成分减少，使得离子溅射作用不再重要，因此通量不均匀度与薄膜厚度均匀度相差不大。

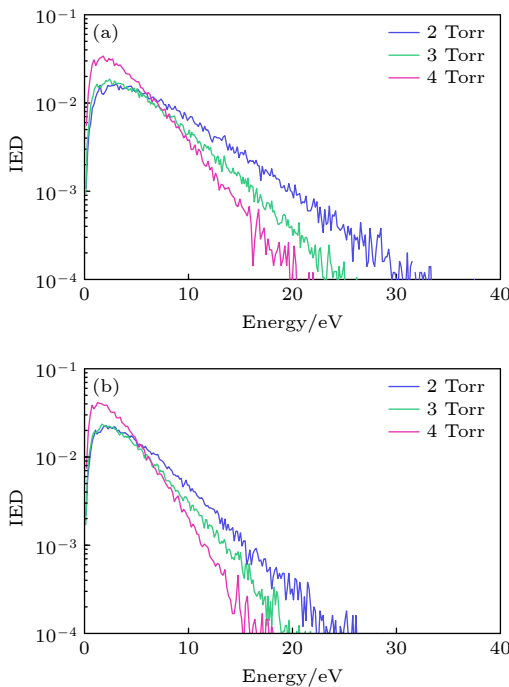


图 3 不同气压 (2—4 Torr) 下 SiH_4/H_2 混合气体放电中的离子能量分布，放电条件与图 1 一致 (a) 径向中心处；(b) 电极边缘处接地电极表面

Fig. 3. The ion energy distribution in SiH_4/H_2 mixed gas discharge at different pressures (2—4 Torr): (a) At the radial center; (b) ground the electrode surface at the edge of the electrode; the discharge conditions are the same as in Fig. 1.

除了薄膜的沉积速率和均匀性，薄膜质量也是沉积工艺中十分关注的问题。有研究表明，薄膜中的氢含量越高，最终生成的薄膜越趋向于非晶硅^[11,36]，因此薄膜中的氢含量是表征薄膜质量的一个重要参数。根据化学键变化，可以将表面生长反应分为两种类型。I 类反应过程为前驱物经物理吸附直接在表面形成固态物质，如 $\text{SiH}_{(s)} + \text{SiH}_2(g) \rightarrow \text{SiH}_{(s)} + \text{SiH}_2(s)$ ， $\text{SiH}_2(s) + \text{SiH}_3(g) \rightarrow \text{SiH}_3(s) + \text{SiH}_2(s)$ 。II 类反应过程为前驱物发生化学脱氢，与此同时在表面形成固态物质，如 $\text{SiH}_3(s) + \text{H}(g) \rightarrow \text{SiH}_2(s) + \text{H}_2(g)$ ， $\text{SiH}_2(s) + \text{H}(g) \rightarrow \text{SiH}(s) + \text{H}_2(g)$ 。I 类反应产生的固态物质被离子溅射作用剥离表面的能量阈值为 15 eV，而 II 类反应产生的固态物质被离子溅射去除的离子能量阈值通常大于 35 eV。这意味表面生长中 II 类反应占比越高，薄膜中通过化学键结合形成的分子越多，最终形成的薄膜致密性和附着力越高。此外，薄膜中的空位占比也是反映薄膜致密性的一个重要参数。图 4 展示了不同气压下，沉积薄膜中的氢含量、II 类反应占比和空位占比，其中氢含量由 $\frac{3N_{\text{SiH}_3} + 2N_{\text{SiH}_2} + N_{\text{SiH}}}{4N_{\text{SiH}_3} + 3N_{\text{SiH}_2} + 2N_{\text{SiH}} + N_{\text{空位}}} \times 100\%$ 统计得到， N_x 为某表面物质 x 的浓度。结果显示，随气压升高，薄膜中的氢含量和空位占比增大，II 类反应占比下降。薄膜中的氢含量主要与前驱物通量比例有关。随气压升高， $\text{SiH}_4(g) + \text{H}(g) \rightarrow \text{SiH}_3(g) + \text{H}_2(g)$ 反应速率显著升高^[16]，前驱物中 SiH_3 含量也显著升高，最终导致薄膜中的氢含量升高。由于沉积速率显著增大，部分表面位点尚未发生化学脱氢

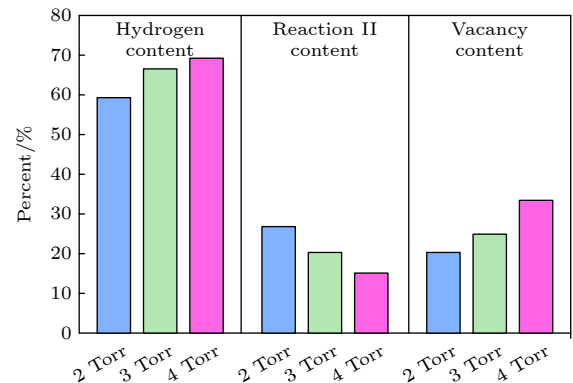


图 4 SiH_4/H_2 混合气体放电中，不同气压 (2—4 Torr) 下沉积薄膜的氢含量、II 类反应占比以及空位占比，放电条件与图 1 一致

Fig. 4. The hydrogen content, reaction II content and vacancy content for different pressures (2—4 Torr), the discharge conditions are the same as in Fig. 1.

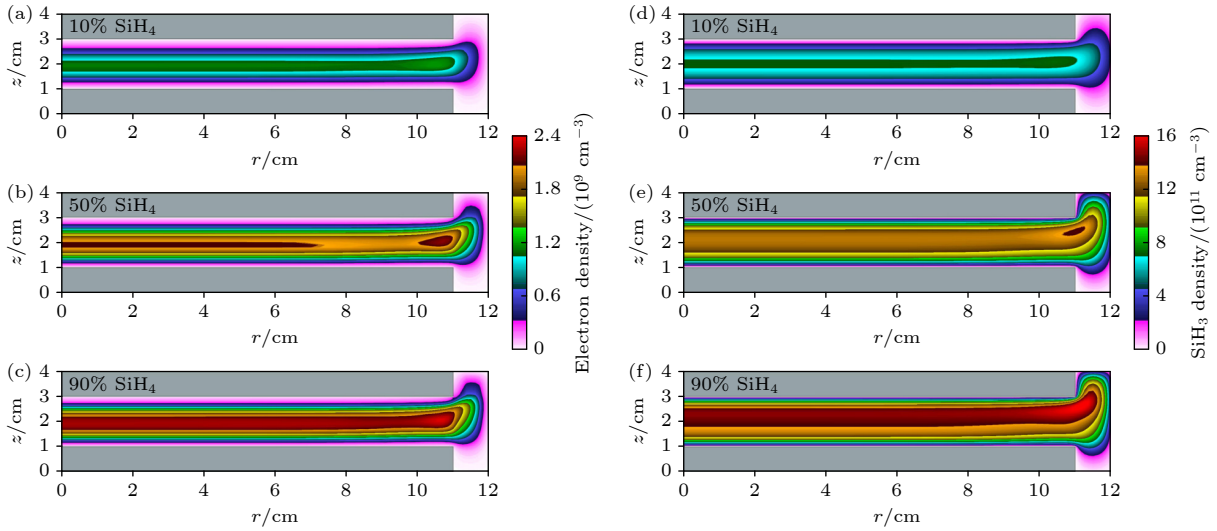


图5 SiH₄/H₂混合气体放电中,不同SiH₄含量(10%—90%)下(a)—(c)周期平均电子密度和(d)—(f)SiH₃基团密度的空间分布. 放电条件:电极长度11 cm,电极间距2 cm,驱动频率13.56 MHz,电压幅值50 V,气压2 Torr

Fig. 5. Spatially resolved and RF period-averaged electron density (a)–(c) and SiH₃ density (d)–(f) for different SiH₄ contents (10%–90%). Discharge condition: Two parallel plates with a length of 11 cm and a distance of 2 cm between them. The frequency used in this work is 13.56 MHz and a voltage amplitude of 50 V. The discharge pressure is 2 Torr.

反应,甚至并未发生表面反应即被覆盖,这是薄膜中Ⅱ类反应占比下降、空位占比提升的主要原因.同时,能量大于15 eV的离子占比降低导致经Ⅰ类反应形成的固态物质发生溅射作用而被去除的概率降低,进一步导致了薄膜中Ⅱ类反应占比下降.这些薄膜质量参数的变化意味着随气压升高,沉积薄膜致密性变差,附着力变弱,更趋向于向非晶硅薄膜转化. Fukawa 等^[41]实验结果表明气压从2 Torr升高到4 Torr,结晶度显著下降,沉积产物趋向于非晶硅薄膜,氢含量增大,这与本文结论一致.

3.1.2 SiH₄含量对SiH₄/H₂混合气体放电和非晶硅薄膜形貌的影响

图5展示了气压为2 Torr时, SiH₄含量为10%, 50%, 90%下周期平均电子密度和沉积薄膜主要前驱物SiH₃密度的空间分布. 结果显示,随着SiH₄含量从10%升高到90%,电子密度升高, SiH₃基团密度分布轴向不对称的现象更加显著,这同样与极板面积不对称有关.

图6展示了沉积时间为30 s, SiH₄含量为10%, 50%, 90%条件下的沉积形貌分布. 结果显示,沉积时间相同的情况下随SiH₄含量增大,沉积的薄膜厚度增大,沉积速率从10% SiH₄含量下的0.383 nm/s升高到90% SiH₄含量下的0.583 nm/s,但薄膜的均匀性呈现下降趋势. 值得注意的是,硅烷含量从10%升高至90%与气压从2 Torr升高至4 Torr,

前驱物通量的增长幅度几乎相同. 然而,硅烷含量升高带来的沉积速率增幅为52.6%,而增加气压带来的沉积速率增幅为81.6%,该现象与离子能量的

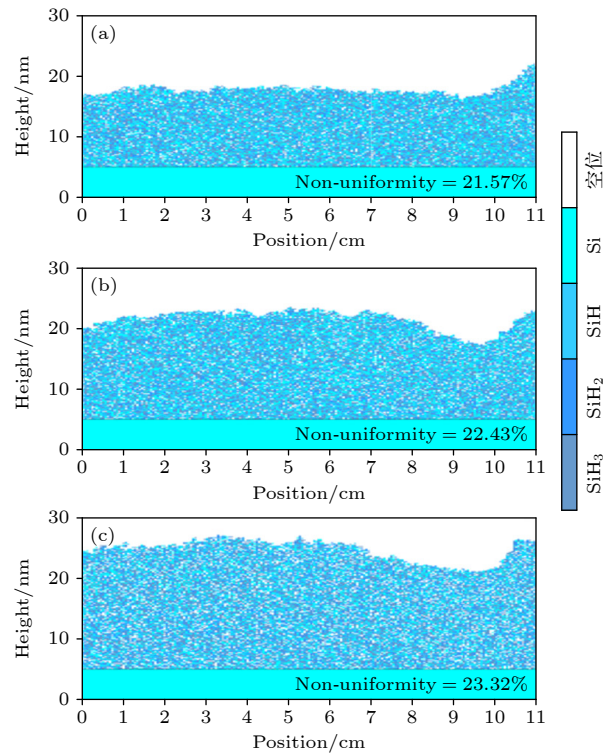


图6 沉积时间为30 s时,不同SiH₄含量下SiH₄/H₂混合气体放电的薄膜的表面形貌径向分布,放电条件与图5一致 (a) 10%; (b) 50%; (c) 90%

Fig. 6. Profiles formed after deposition time of 30 s for different SiH₄ contents: (a) 10%; (b) 50%; (c) 90%. The discharge conditions are the same as in Fig. 5.

变化有关. 图 7 展示了 SiH₄ 含量为 10%, 50%, 90% 下, 径向中心处和电极边缘处接地电极表面的离子能量分布 (IED). 随着 SiH₄ 含量从 10% 升高到 90%, 离子能量显著增大, 部分离子的能量超过 35 eV. 此时, 经 II 类反应产生的表面固态物质也会发生溅射作用, 离子轰击对薄膜生长的抑制作用显著增强. 此时, 随硅烷含量增大, 接地电极表面前驱物径向通量的不均匀度从 24.29% 显著升高至 35.04%, 而沉积薄膜厚度的不均匀度由 21.57% 仅上升至 23.32%, 再次证明不同位置离子能量的差异会对沉积薄膜厚度的径向均匀性产生影响.

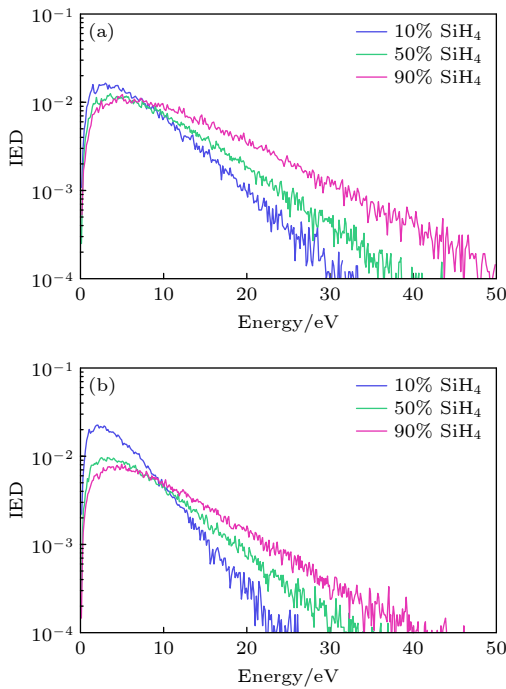


图 7 不同 SiH₄ 含量 (10%—90%) 下 SiH₄/H₂ 混合气体放电中 (a) 径向中心处和 (b) 电极边缘处接地电极表面的离子能量分布, 放电条件与图 5 一致

Fig. 7. The ion energy distribution in SiH₄/H₂ mixed gas discharge at different SiH₄ contents (from 10% to 90%): (a) At the radial center; (b) ground the electrode surface at the edge of the electrode. The discharge conditions are the same as in Fig. 5.

薄膜均匀性和质量仍然是研究的关注点. 图 8 给出了不同 SiH₄ 含量下, 沉积薄膜中的氢含量、II 类反应占比和空位占比. 结果显示, 随 SiH₄ 含量增大, 薄膜中的氢含量增大, II 类反应占比先增大后减小, 空位占比下降. 薄膜中的氢含量呈现上升趋势的原因, 同样是随 SiH₄ 含量增大, 主要前驱物 SiH₃ 通量占比显著升高, Fukawa 等^[41] 和 Abe 等^[42] 的实验研究结果也有类似的结论. Fukawa 等^[41] 测定薄膜的结晶度随 SiH₄ 含量增大呈现下降趋势,

沉积薄膜也趋向于非晶硅薄膜. Abe 等^[42] 分析该趋势的原因是, 高硅烷浓度将致使含氢前驱物 SiH₃ 在表面大量吸附, 最终形成高氢含量薄膜. SiH₄ 含量从 10% 升高到 50%, 能量分布在 15—35 eV 区间的离子数量增加, 这有效去除了经 I 类反应生成的表面固态物质, 但 II 类反应生成的表面固态物质被保留, 促使 II 类反应占比增大; SiH₄ 含量继续升高到 90% 时, 能量分布在 35—45 eV 区间的离子数量显著增加, 经 I 类和 II 类反应生成的表面固态物质都可能由于高能离子轰击而被溅射. 由于 II 类反应路径更长, 最终导致 II 类反应的占比下降, 这表明需要调节离子能量至恰当的窗口才能有效提升薄膜质量. 此外, 由于离子能量较高, 离子轰击对薄膜生长的抑制作用较强, 因此空位占比呈现随硅烷含量升高而下降的趋势. 综合以上结果可以发现, 沉积薄膜厚度、均匀性与薄膜质量等参数均受前驱物通量和离子能量的协同作用影响, 单一的电子密度分布或前驱物通量的变化难以反映薄膜厚度和薄膜质量变化. 此外, 需要精细调节放电参数, 使前驱物通量配比合理的同时离子能量处于溅射阈值窗口, 才能制备出致密性、附着力等参数满足生产要求的薄膜.

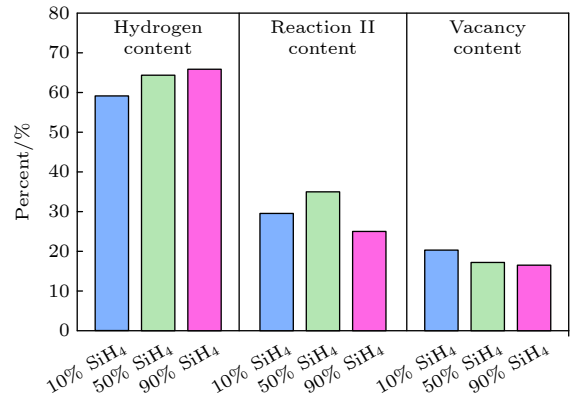


图 8 SiH₄/H₂ 混合气体放电中, 不同 SiH₄ 含量 (10%—90%) 下的氢含量、II 类反应占比以及空位占比, 放电条件与图 5 一致

Fig. 8. The hydrogen content, reaction II content and vacancy content for different SiH₄ contents (from 10% to 90%), the discharge conditions are the same as in Fig. 5.

3.2 氩/碳氟和氩/氯混合气体放电以及刻蚀形貌

3.2.1 碳氟混合气体放电刻蚀 SiO₂ 的模拟

本节采用一维流体耦合电子/离子蒙特卡罗模型结合刻蚀形貌演化模型研究容性耦合 Ar/CF₄

和 Ar/CHF₃ 混合气体刻蚀 SiO₂^[31,35]. 首先讨论基频与倍频之间的相位角 θ 的变化对放电特性以及刻蚀形貌的影响. 本工作在下电极施加双频幅值非对称电压波形 $V(t)_{x=0} = V_{lf} \cos(2\pi ft) + V_{hf} \cos(4\pi ft)$ 、上电极接地, 其中, $V_{lf} = V_{hf} = 100$ V, $f = 13.56$ MHz, 基频与倍频之间的相位角 θ 分别为 0°, 15°, 30°, 45°, 60°, 75°, 90°. 图 9 给出了不同相位角下双频幅值非对称电压波形以及自偏压和平均离子能量变化情况. 从图 9 可知, 随着相位角逐渐增大, 自偏压值逐渐增大, 而平均离子能量反而逐渐减小. 图 10 给出了不同相位角下的中性通量和离子通量. 可以看出随着相位角的变化, 通量的变化很小.

为了探讨相位变化对刻蚀形貌的影响, 此处选取了几个具有代表性的相位角 (即 15°, 60°, 90°) 进行分析, 分别对应离子能量的最大值、中间值以及最小值. 图 11 给出了相位角分别为 15°, 60°, 90° 时刻蚀时间为 70 s 的刻蚀形貌图. 其中白色位置

是材料被移除的位置或者无材料, 浅灰色表示光刻胶, 黑色表示 SiO₂, 其他颜色表示钝化层、聚合物. 形貌图左侧为元胞层数, 元胞的边长为 0.2 nm, 一个元胞代表一个原子或者分子. 在相同刻蚀时间下, 3 种条件下的侧壁聚合物吸附和侧壁垂直度差异不大, 但刻蚀深度存在一定区别. 其中, 相位角为 15° 时, 刻蚀深度约为 35 nm (175 个原子层); 相位角为 60° 时, 刻蚀深度约为 30.6 nm (153 个原子层); 而在 90° 条件下, 刻蚀深度最小, 仅约 29.8 nm (149 个原子层). 这一差异主要源于相位角分别为 15°, 60°, 90° 时对应的自偏压为 -61.3 V, 6.8 V 和 60.1 V, 导致平均离子能量从 70.68 eV 逐步降低至 45.51 eV 和 25.71 eV. 随着低于刻蚀阈值的低能离子比例增加, 能够有效参与刻蚀的离子数量减少, 从而使刻蚀速率略有降低, 最终导致刻蚀深度减小.

此外, 本节还考虑了不同电极间距对刻蚀形貌的影响. 电极间距选取 3 cm, 4 cm, 5 cm, 相位角

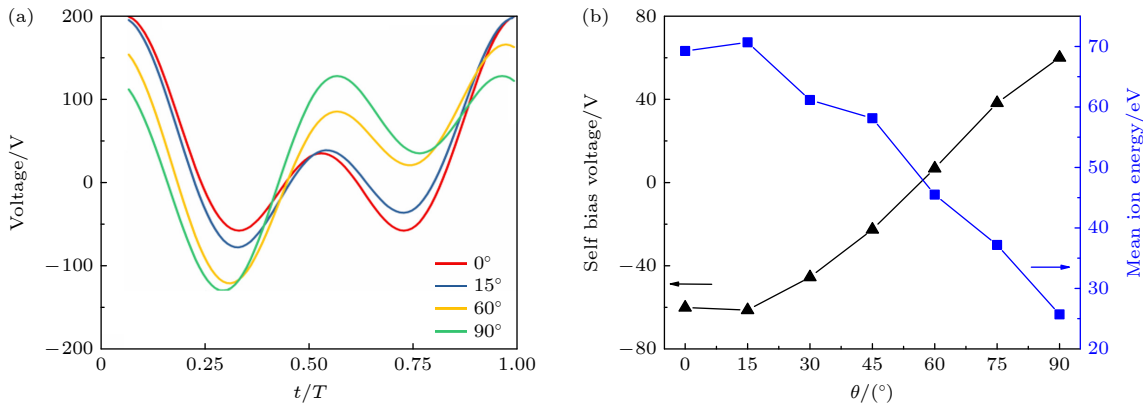


图 9 (a) 不同相位角下双频幅值非对称电压波形; (b) 自偏压和平均离子能量变化情况^[31]

Fig. 9. (a) Dual-frequency tailored voltage waveforms; (b) variations of self-bias voltage and mean ion energy as a function of phase^[31].

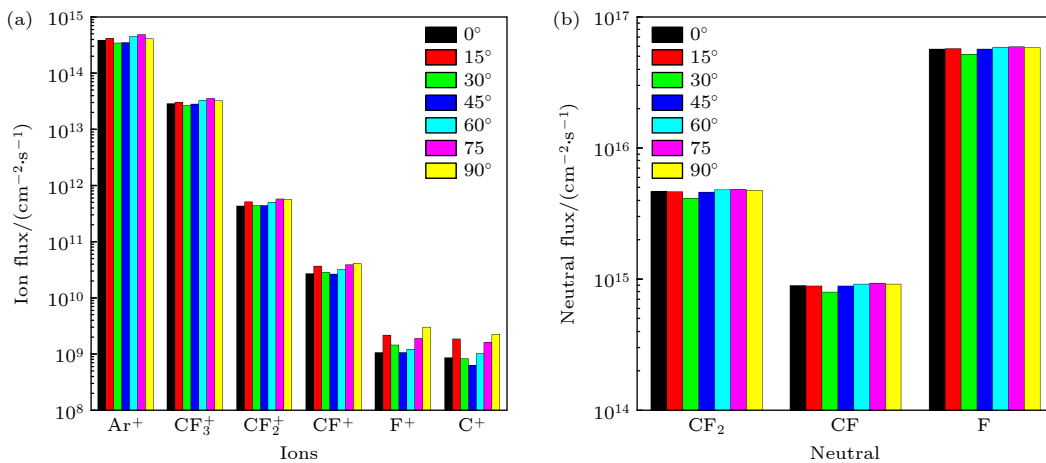


图 10 不同相位角 θ 下驱动极板处的 (a) 离子通量和 (b) 中性基团通量^[31]

Fig. 10. (a) Ion fluxes and (b) neutral fluxes at the powered electrode for different phase angle θ , respectively^[31].

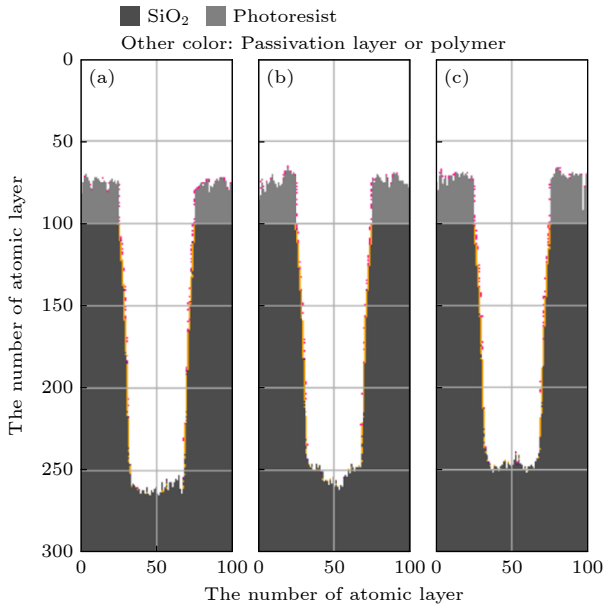


图 11 不同相位角下的刻蚀形貌 (刻蚀时间: 70 s)^[31] (a) $\theta = 15^\circ$; (b) $\theta = 60^\circ$; (c) $\theta = 90^\circ$

Fig. 11. The etching profiles at different phase angle (etching time: 70 s)^[31]: (a) $\theta = 15^\circ$; (b) $\theta = 60^\circ$; (c) $\theta = 90^\circ$.

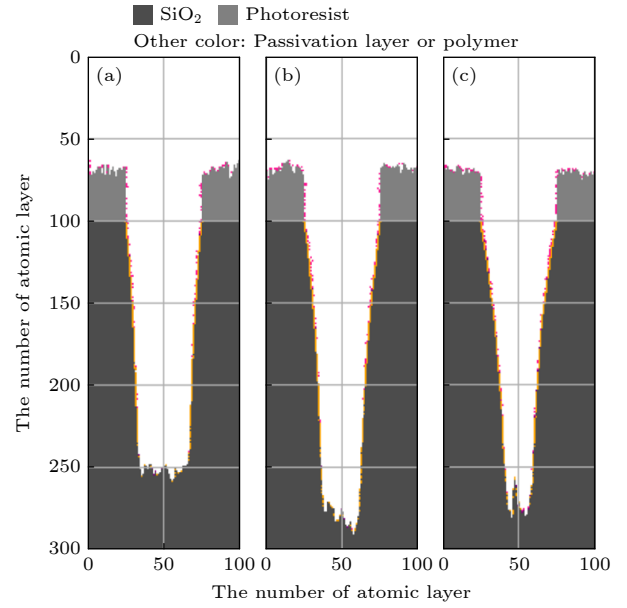


图 12 不同电极间距下的刻蚀形貌^[31] (a) 3 cm; (b) 4 cm; (c) 5 cm

Fig. 12. Etching profiles for different gap distance^[31]: (a) 3 cm; (b) 4 cm; (c) 5 cm.

为 0° , 其他放电参数与前文讨论一致. 通过分析发现, 电极间距的增加对离子能量分布影响不大, 但对中性基团通量与离子通量的比值 $\frac{\Gamma_{CF_2} + \Gamma_{CF}}{\sum \Gamma_{ion}}$ 影响较大, 其中, Γ_{CF_2} , Γ_{CF} , $\sum \Gamma_{ion}$ 分别为 CF_2 和 CF 通量, 以及所有离子通量之和. 随着电极间距逐渐增大, 中性基团通量与离子通量的比值依次为 16.42, 30.68, 51.77, 这意味着中性基团 CF_2 与 CF 通量的增大速率远大于离子通量的增加速率. 图 12 给出了刻蚀时间为 70 s、电极间距为 3 cm, 4 cm, 5 cm 下刻蚀形貌. 可以看出刻蚀深度随着电极间距的增大, 刻蚀深度呈现出先增加后减小的趋势. 从图 12(a), (b) 刻蚀形貌来看, 中性基团通量与离子通量的比值从 16.42 增至 30.68, 这使得更多的中性基团用于与 SiO_2 表面反应形成钝化层, 使得表面的钝化层覆盖度增加, 并与离子协同, 使得刻蚀速率增加. 但是如果中性基团通量与离子通量的比值增大到 51.77, 刻蚀速率开始减慢. 这是因为更多的中性基团在表面不仅产生钝化层还会生成大量的聚合物, 聚合物的存在一定程度上阻碍了离子对目标材料的刻蚀, 因此刻蚀深度减小.

此外, 本节还将讨论斜率非对称电压波形对刻蚀形貌的影响. 在下电极施加了单频、锯齿波形, 具

体波形公式为 $V(t)_{x=0} = V_{pp} \sum_{k=1}^N \frac{1}{k} \sin(kwt)$, 上电极接地. 其中基频频率为 13.56 MHz, 谐波次数 N 为 1—3, 电压峰值 V_{pp} 为 500 V. 图 13 给出了谐波次数为 $N = 1, 2, 3$ 时, 刻蚀时间为 150 s, 接地极板和驱动极板处的刻蚀形貌图. 明显可以看出, 在谐波次数为 2 和 3 时, 接地侧的刻蚀速率明显大于驱动侧的结果. 并且, 随着谐波次数的增加, 接地侧的刻蚀深度逐渐增加. 而相比于接地侧, 驱动侧的刻蚀深度, 反而随着谐波次数的增加呈现先减小后略微增加的趋势.

为了解释刻蚀形貌的变化情况, 图 14 给出了不同谐波次数下总离子通量, CF_2 , CF , H 等中性基团通量之和, 上述两者的比值以及平均离子能量值. 从图 13 可以看出, 对于 $N = 2$ 和 $N = 3$ 的情况, 接地电极侧的刻蚀深度及刻蚀速率均高于加电电极侧, 原因主要有以下两点: i) 接地电极侧的离子通量更高, 而两电极侧的平均离子能量均高于 SiO_2 去除阈值; ii) 功率电极侧的中性通量与离子通量的比值大于接地电极侧, 较高的比值导致聚合物沉积量增加, 从而减缓 SiO_2 的刻蚀过程. 此外, 在功率电极侧, 随着 N 从 1 增至 3, 刻蚀深度先减小后略有增加, 从约 74 nm 变化为 69 nm, 71 nm. 这是由于总离子通量随 N 的变化先减小后增大, 而总中性基团通量则随 N 单调增大. 在接地电极

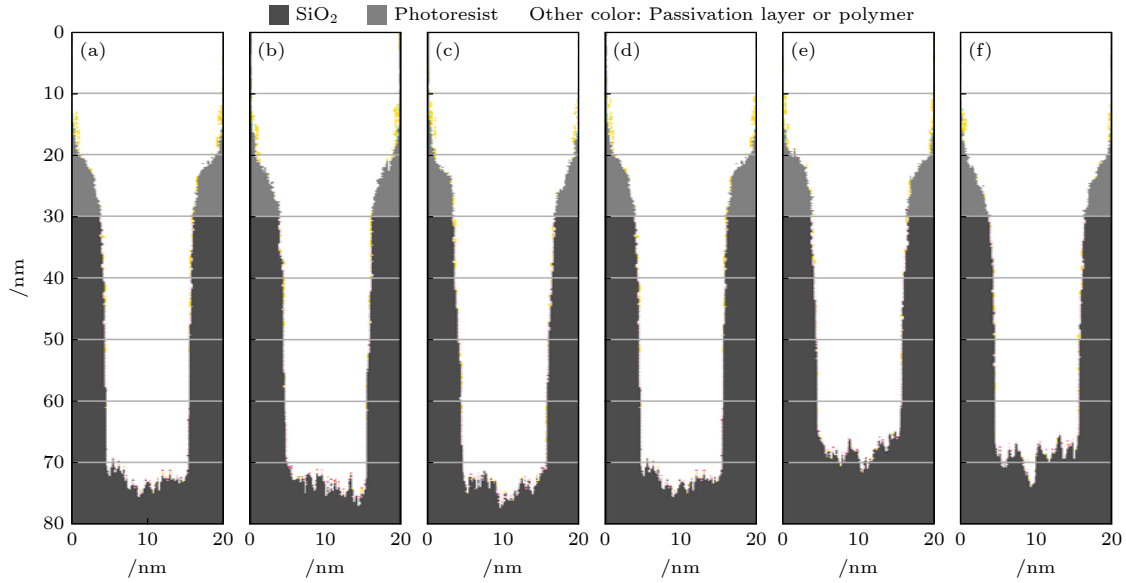


图 13 刻蚀时间为 150 s 时, 在接地电极处的刻蚀形貌 (a) $N = 1$, (b) $N = 2$, (c) $N = 3$; 在功率电极处的刻蚀形貌 (d) $N = 1$, (e) $N = 2$, (f) $N = 3$; 放电条件与图 3 相同, 灰色部分为光刻胶, 黑色部分为 SiO_2 , 其余颜色表示材料表面上的聚合物或钝化层^[35]

Fig. 13. Etching profiles at the grounded electrode for (a) $N = 1$, (b) $N = 2$, (c) $N = 3$; and at the powered electrode for (d) $N = 1$, (e) $N = 2$, (f) $N = 3$ after an etching time of 150 s, the discharge conditions are the same as those in Fig. 3, grey material is the photoresist, black material is SiO_2 , other colors represent polymer or passivation layers on the material surface^[35].

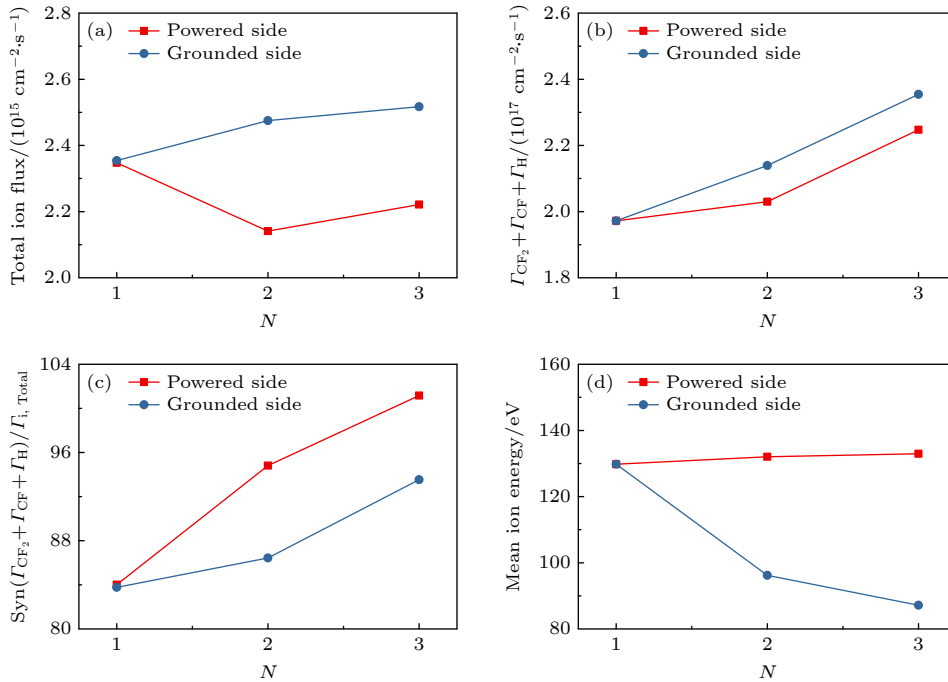


图 14 $N = 1, 2, 3$ (a) 功率电极与接地电极处的总离子通量; (b) CF_2 , CF 和 H 通量之和; (c) 中性通量与离子通量比值 ($(\Gamma_{\text{CF}_2} + \Gamma_{\text{CF}} + \Gamma_{\text{H}}) / \Gamma_{i, \text{Total}}$); (d) 平均离子能量^[35]

Fig. 14. Total ion flux (a), the sum of the CF_2 , CF and H fluxes (b), the Syn value (defined as $(\Gamma_{\text{CF}_2} + \Gamma_{\text{CF}} + \Gamma_{\text{H}}) / \Gamma_{i, \text{Total}}$) (c), and the mean ion energy (d) at the powered and the grounded electrodes at $N = 1, 2, 3$ ^[35].

侧, 刻蚀深度则随着 N 的增大由约 74 nm 缓慢增大至 75 nm, 77 nm, 这主要归因于总离子通量的增大. 综上, 随着 N 的增大, 刻蚀深度并未出现显著变化. 这与以下事实有关: 虽然离子通量增大, 但

中性通量与离子通量比值以及中性基团通量在两电极侧均随谐波数 N 的增大而逐渐升高, 从而在一定程度上抵消了离子通量增大带来的刻蚀速率增大的效应.

3.2.2 Ar/Cl₂ 混合气体放电刻蚀硅的模拟

本工作使用二维流体混合模型结合刻蚀形貌演化模型自洽模拟感性耦合 Ar/Cl₂ 混合气体放电刻蚀硅。图 15 给出了感性耦合等离子体源腔室结构和网格剖分示意图以及下极板施加的裁剪电压波形图。从图 15(a) 可看出, 源功率由 4 匝线圈组成, 其功率为 600 W, 频率为 13.56 MHz。腔室半径为 12 cm, 其中下极板半径为 10 cm, 腔室顶部到极板的距离为 11.5 cm, 放电区域间距为 8.5 cm。本模型还考虑了气流, 在腔室器壁处 (inlet) 有背景气体流入, 腔室下边界处 (outlet) 有气体流出。本工作使用的 Ar/Cl₂ 气流分别为 80/20 sccm (标

准大气压 1 sccm = 1 mL/min), 气压为 5 mTorr。下极板施加的偏压波形频率为 0.5 MHz, 偏压幅值的绝对值为 125 V。该波形的好处在于波形的缓慢下降将使得极板缓慢充电, 使得由于充电导致的自偏压值较小, 进而使得离子能量较窄。此外, 该波形的频率较小不会引起电磁效应, 进而不易导致等离子体径向分布的不均匀性。此外, 为了突出该波形对刻蚀的优势, 本文还使用了射频偏压波形, 波形的幅值绝对值为 85 V, 频率为 13.56 MHz。

图 16 给出了 Cl, Ar⁺, Cl⁺以及 Cl₂⁺ 密度剖面图。从图 16(a) 可以看出, Cl 密度集中分布在靠近下极板以及出流口附近, 这主要是由于气流的作用,

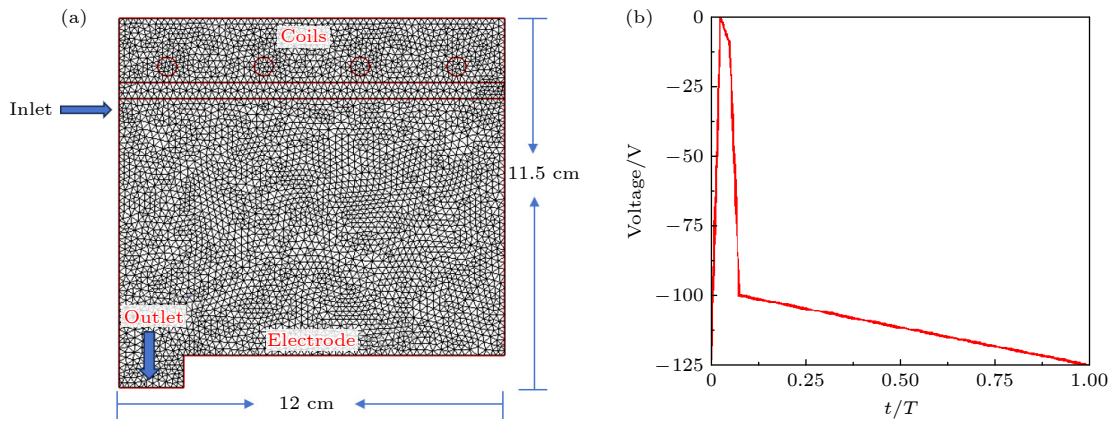


图 15 (a) 放电腔室结构和网格剖分示意图; (b) 下极板施加的裁剪电压波形

Fig. 15. (a) The schematic of discharge chamber structure and mesh grid; (b) the schematic of the tailored bias waveform applied to the lower electrode.

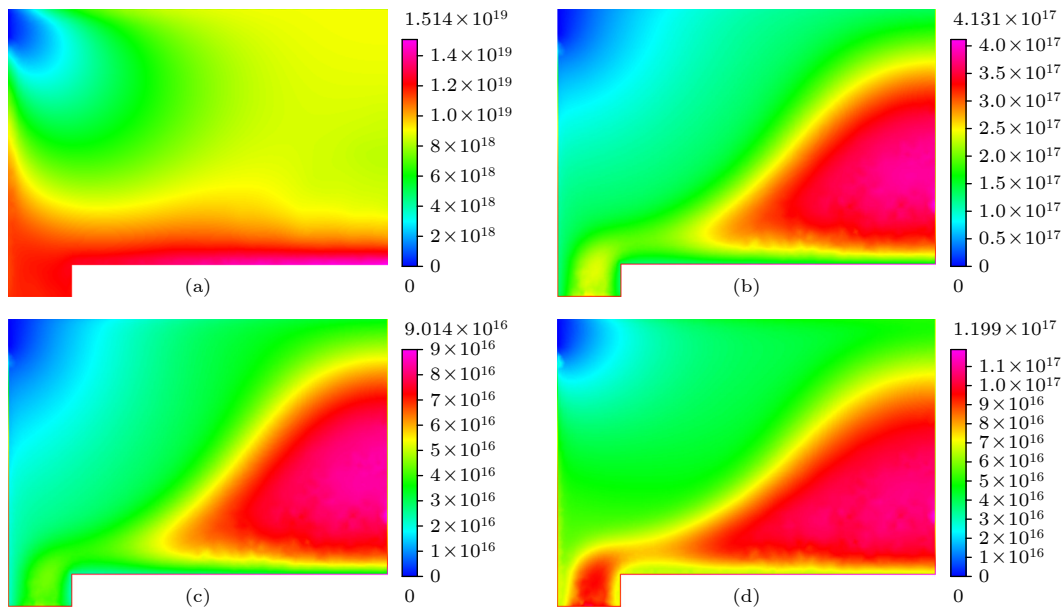


图 16 密度剖面图 (a) Cl; (b) Ar⁺; (c) Cl⁺; (d) Cl₂⁺

Fig. 16. Density profiles: (a) Cl; (b) Ar⁺; (c) Cl⁺; (d) Cl₂⁺.

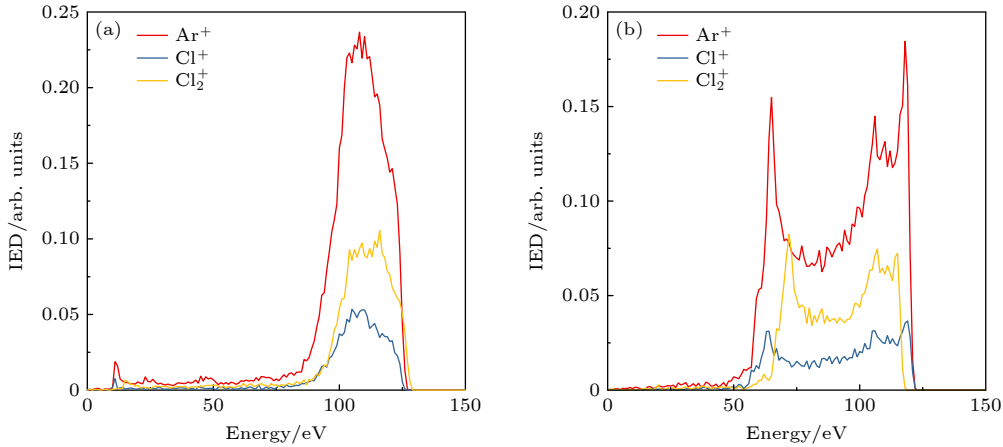


图 17 离子能量分布 (a) 裁剪电压波形; (b) 射频偏压波形

Fig. 17. Ion energy distribution: (a) The tailored bias voltage waveform; (b) radio frequency (RF) bias waveform.

导致背景气体 Cl_2 和 Ar 密度峰值主要集中在下极板和出口附近. 因此, 该处的 Cl 生成源项较大, 进而该处密度较高. 此外出口附近的 Cl, Ar^+ , Cl^+ 以及 Cl_2^+ 密度均较低, 这也与出口附近的背景气体密度较小有关. 此外, 相比离子, Cl 密度在下极板附近相对均匀. 而离子密度在靠近下极板附近有逐渐减小的趋势, 尤其是 Ar^+ 和 Cl^+ .

图 17 给出了基于图 15(b) 所示的裁剪电压波形以及射频偏压波形所获得的离子能量分布. 比较两种离子能量分布, 最突出的区别在于: 裁剪电压波形给出的能量分布为窄的单能峰, 而射频偏压波形对应的离子能量分布基本呈现双能峰且能展较大. 下极板施加的偏压波形直接影响了鞘层动力学和鞘层电势, 进而影响离子能量分布. 此外, 本文使用的裁剪电压波形的斜面斜率以及电压最大值和最小值一定程度上决定了离子能量以及展宽. 因此, 在选用偏压波形的时候可以通过调节斜面的斜率以及电压最大值和最小值来优化离子能量分布. 由于两种情况下对应的中性基团、离子密度和通量的径向分布差别不大, 这里不再详述.

为了比较两种偏压波形对刻蚀形貌的影响, 图 18 展示了刻蚀时间为 9 s 时的刻蚀结果, 其中灰色区域代表光刻胶, 绿色区域代表 Si. 可以看出, 采用裁剪电压波形时的刻蚀深度显著大于射频偏压波形的结果. 其原因在于, 裁剪电压波形能够使更多离子处于高能区间, 而反应发生的概率与离子能量和反应阈值能的差值成正比, 因此较高离子能量将对应较高反应发生概率, 进而导致刻蚀速率增

大. 相比之下, 射频偏压波形下近一半离子能量集中在低能峰附近, 这在一定程度上削弱了离子的刻蚀效率, 因而刻蚀速率较低.

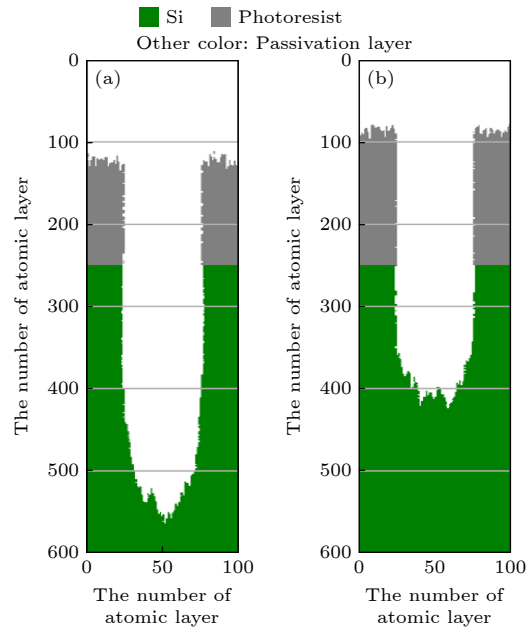


图 18 (a) 裁剪电压波形和 (b) 射频偏压波形下的放电中心处刻蚀形貌图 (刻蚀时间: 9 s)

Fig. 18. Etching profiles at the discharge center under the tailored bias waveform (a) and the RF bias waveform (b) (etching time: 9 s).

4 结 论

本文分别对 SiH_4/H_2 混合气体放电的非晶硅薄膜沉积过程、碳氟混合气体放电的 SiO_2 刻蚀过程以及 Ar/Cl_2 放电的 Si 刻蚀过程展开了研究.

在沉积过程中, 随气压升高, 前驱物通量增加、离子能量降低, 沉积速率随之增大. 沉积形貌的径向分布主要受到前驱物通量的调控, 但离子能量对薄膜厚度均匀性也有一定的调节作用, 薄膜的均匀性有所改善. 此外, 随气压升高, SiH_3 中性基团通量占比升高, 薄膜中的氢含量增大; 同时离子轰击对薄膜过快生长的抑制作用较弱, 过快的沉积速率造成薄膜中空位占比显著增大, II 类反应占比降低, 薄膜致密性、附着力变差. 随 SiH_4 含量增大, 前驱物通量与离子能量均升高, 沉积速率也随之增大, 但增幅相对较小, 离子轰击对薄膜过快生长的抑制作用显著增强, 薄膜的均匀性呈下降趋势. 当离子能量位于溅射阈值窗口时, II 类反应占比明显升高, 空位占比降低, 薄膜致密性、附着力提升; 而离子能量过高或过低时均难以实现该效果, 可见沉积硅基薄膜的“最佳能量窗口”为 25—45 eV. 工业生产中需要精细调节放电参数, 使前驱物通量配比合理的同时离子能量处于溅射阈值窗口, 才能制备出致密性、附着力等参数满足生产要求的薄膜.

在容性耦合等离子体源刻蚀 SiO_2 研究中发现, 区别于单频源, 调节幅值非对称电压波形的相位可以有效调节平均离子能量, 而保持离子通量和中性通量基本不变. 发现当谐波相位为 15° 时, 平均离子能量较大, 进而导致刻蚀速率相对较快. 并且增加电极间距为 4 cm 时, 离子通量增加明显, 刻蚀过程加快. 而斜率非对称电压波形 (锯齿上升波形) 可以使得接地侧的离子通量明显增加, 进而该侧刻蚀效率较高. 利用上述放电特性的规律可以灵活调控离子与中性基团的协同作用, 进而调节刻蚀速率. 而在感性耦合等离子体源刻蚀 Si 研究中, 裁剪电压波形能有效调制离子能量维持在单能峰, 相比单频偏压波形, 该情况下更多离子处于高能峰, 高能离子会使得离子的物理溅射和化学溅射的概率增加, 进而提升了刻蚀效率.

综上, 本文系统研究了气压和 SiH_4 含量对非晶硅沉积形貌的影响, 以及强调了裁剪电压波形能控制离子与中性基团的协同作用, 并给出了不同谐波次数、谐波相位、电极间距等放电参量下的刻蚀形貌, 并进行了理论分析. 研究发现, 在沉积中, 离子能量存在一个“最佳窗口”为 25—45 eV, 既能致密化薄膜又不至于损伤; 在刻蚀中, 中性基团与离子的通量比是决定各向异性和侧壁形貌的关键. 今后, 将继续开展 Si_3N_4 等材料的沉积和刻蚀工作, 并

逐步将研究领域拓宽至第三代半导体等新兴材料.

参考文献

- [1] Chabert P, Braithwait N (translated by Wang Y N, Xu J, Song Y H) 2015 *Physics of Radio-Frequency Plasmas* (Beijing: Science Press) (in Chinese) [帕斯卡·夏伯特, 尼古拉斯·布雷斯特韦 著 (王友年, 徐军, 宋远红 译) 2015 射频等离子体物理学 (北京: 科学出版社)]
- [2] Lieberman M A, Lichtenberg A J (translated by Pu Y K) 2007 *Principles of Plasma Discharges and Material Processing* (Beijing: Science Press) (in Chinese) [力伯曼, 里登伯格 著 (蒲以康 译) 2007 等离子体放电原理与材料处理 (北京: 科学出版社)]
- [3] Vossen J L, Kern W 1991 *Thin Film Processes II* (Academic Press) p525
- [4] Yu C, Gao K, Peng C W, He C R, Wang S B, Shi W, Allen V, Zhang J T, Wang D Z, Tian G Y, Zhang Y F, Jia W Z, Song Y H, Hu Y Z, Colwell J, Xing C F, Ma Q, Wu H T, Guo L Y, Dong G Q, Jiang H, Wu H H, Wang X Y, Xu D C, Li K, Peng J, Liu W Z, Chen D, Lennon A, Cao X M, De Wolf S, Zhou J, Yang X B, Zhang X H 2023 *Nat. Energy* **8** 1375
- [5] Huang S, Huard C, Shim S, Nam S K, Song I C, Lu S Q, Kushner M J 2019 *J. Vacuum Sci. Technol. A* **37** 031304
- [6] Ma X Q, Zhang S Q, Dai Z L, Wang Y N 2017 *Plasma Sci. Technol.* **19** 085502
- [7] Huard C M, Sriraman S, Paterson A, Kushner M J 2018 *J. Vacuum Sci. Technol. A* **36** 06B101
- [8] Huard C M, Zhang Y T, Sriraman S, Paterson A, Kanarik K J, Kushner M J 2017 *J. Vacuum Sci. Technol. A* **35** 031306
- [9] Huard C M 2018 *Ph. D. Dissertation* (Ann Arbor: University of Michigan)
- [10] Funde A M 2011 *Ph. D. Dissertation* (Maharashtra: Pune University)
- [11] Matsuda A, Goto T 1989 *MRS Online Proceedings Library* **164** 3
- [12] Matsuda A 1983 *J. Non-Cryst. Solids* **59** 767
- [13] Matsuda A 2004 *J. Non-Cryst. Solids* **338** 1
- [14] Crose M G 2018 *Ph. D. Dissertation* (University of California)
- [15] Tinck S, Bogaerts A 2012 *Plasma Process. Polym.* **9** 522
- [16] Kim H J 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 065001
- [17] Kim H J, Lee K, Park H 2023 *Plasma Sources Sci. Technol.* **32** 115008
- [18] Kim H J, Kim J S, Lee H J 2019 *J. Appl. Phys.* **126** 173301
- [19] Kim H J, Lee H J 2016 *Plasma Sources Sci. Technol.* **25** 065006
- [20] Donkó Z, Schulze J, Heil B G, Czarnetzki U 2009 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** 025205
- [21] Schulze J, Schungel E, Czarnetzki U 2009 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** 092005
- [22] Czarnetzki U, Heil B J, Schulze J, Donkó Z, Mussenbrock T, Brinkmann R P, 2009 *J. Phys. : Conf. Ser.* **162** 012010
- [23] Schulze J, Schungel E, Czarnetzki U 2011 *Plasma Sources Sci. Technol.* **20** 015017
- [24] Schulze J, Derzsi A, Donkó Z 2011 *Plasma Sources Sci. Technol.* **20** 045008
- [25] Bruneau B, Lafleur T, Gans T, Connell D O', Greb A, Korolov I, Derzsi A, Donkó Z, Brandt S, Schüngel E, Schulze J, Diomedea P, Economou D J, Longo S, Johnson E V, Booth J P 2016 *Plasma Sources Sci. Technol.* **25** 01LT02
- [26] Bruneau B, Novikova T, Lafleur T, Booth J P, Johnson E V 2014 *Plasma Sources Sci. Technol.* **23** 065010

- [27] Ju S P, Weng C I, Chang J G, Hwang C C 2002 *Am. Vacuum Soc.* **20** 946
- [28] Zhai S M, Liao H S, Zhou N G, Huang H B, Zhou L 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 076801 (in Chinese) [翟世铭, 廖黄盛, 周耐根, 黄海宾, 周浪 2020 物理学报 **69** 076801]
- [29] Ruan C, Sun X M, Song Y X 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 038201 (in Chinese) [阮聪, 孙晓民, 宋亦旭 2015 物理学报 **64** 038201]
- [30] Jia W Z 2018 *Ph. D. Dissertation* (Dalian: Dalian University of Technology) (in Chinese) [贾文柱 2018 博士学位论文 (大连: 大连理工大学)]
- [31] Dong W 2022 *Ph. D. Dissertation* (Dalian: Dalian University of Technology) (in Chinese) [董婉 2022 博士学位论文 (大连: 大连理工大学)]
- [32] Zhang Y F, Dong W, Jia W Z, Song Y H 2025 *Plasma Sources Sci. Technol.* **34** 065011
- [33] Zhang Y F 2025 *Ph. D. Dissertation* (Dalian: Dalian University of Technology) (in Chinese) [张逸凡 2025 博士学位论文 (大连: 大连理工大学)]
- [34] Dong W, Zhang Y F, Dai Z L, Schulze J, Song Y H, Wang Y N 2022 *Plasma Sources Sci. Technol.* **31** 025006
- [35] Dong W, Song L Q, Zhang Y F, Wang L, Song Y H, Schulze J 2025 *Plasma Process. Polym.* **22** 70026
- [36] Song L Q, Jia W Z, Dong W, Zhang Y F, Dai Z L, Song Y H 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 170201 (in Chinese) [宋柳琴, 贾文柱, 董婉, 张逸凡, 戴忠玲, 宋远红 2022 物理学报 **71** 170201]
- [37] Qu C H, Sakiyama Y, Agarwal P, Kushner M J 2021 *J. Vac. Sci. Technol. A* **39** 052403
- [38] MA Z Q 2007 *Int. J. Mod. Phys. B* **21** 4299
- [39] Amanatides E, Stamou S, Mataras D 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 5786
- [40] Kessels W M M, van de Sanden M C M, Severens R J, Schram D C 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 3313
- [41] Fukawa M, Suzuki S, Guo L H, Kondo M, Matsuda A 2001 *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **66** 217
- [42] Abe Y, Ishikawa K, Takeda K, Tsutsumi T, Fukushima A, Kondo H, Sekine M, Hori M 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 043902

SPECIAL TOPIC—Non-equilibrium transport and active control strategy in low-temperature plasmas

Synergistic effect of ions and neutrals and surface morphology in plasma deposition/etching processes*

SONG Liuqin DONG Wan^{#†} ZHANG Yifan^{#‡} SONG Yuanhong

(School of Physics, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

(Received 9 September 2025; revised manuscript received 29 October 2025)

Abstract

Low-temperature plasma deposition and etching technologies play a vital role in plasma-assisted manufacturing fields such as semiconductor chip fabrication, flat-panel displays, and photovoltaic devices. The physical and chemical interaction mechanisms between plasma and materials form the fundamental scientific basis for elucidating the nature of process dynamics, optimizing processing parameters, and improving device performance and reliability.

In this work, by using a fluid hybrid model coupled with a surface profile evolution model, the plasma discharge characteristics and the deposition/etching surface profile under different discharge parameters are self-consistently simulated, and the simulation results and discussions of some research cases are also presented.

During amorphous silicon thin-film deposition, it is found that the radial distribution of electron density generated in the plasma discharge process is non-uniform, which can lead to the non-uniform distribution of neutral and ion fluxes on the substrate surface, as well as the non-uniformity of film thickness or film quality. Moreover, the ion energy distribution strongly influences the composition and bonding configurations in the film, thereby affecting its quality and performance.

In the studies of SiO₂ etching using fluorocarbon mixed-gas discharges, it is found that under voltage waveform tailoring, adjusting the electrode gap, phase, and harmonic number can flexibly control ion and neutral fluxes. This allows the discharge parameters to be optimized in order to improve etching performance. During Si etching with inductively coupled Ar/Cl₂ plasma, the application of tailored bias waveform causes the ion energy to accumulate predominantly in the high-energy range, which can significantly enhance etching efficiency.

In summary, this work systematically investigates how the self-consistent coupling between plasma discharge and deposition/etching processes can be achieved through the hybrid simulation, while further elucidating the essential synergistic roles of ions and neutral radicals. It is hoped that these findings will serve as valuable references for the optimizing plasma processes and equipment.

Keywords: plasma-enhanced chemical vapor deposition, plasma etching, synergistic effect of ions and neutrals

PACS: 52.65.-y, 68.55.-a, 52.77.Bn

DOI: 10.7498/aps.74.20251236

CSTR: 32037.14.aps.74.20251236

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12020101005, 12475202, 12405289), the Joint Fund of the Natural Science Foundation of Liaoning Province, China (Grant No. 2023-BSBA-089), and the International Exchange Fund of Dalian University of Technology 2025 “Excellence Co-creation Program”, China (Grant No. DUTIO-ZG-202502).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: wandong@dlut.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: zhangefan@dlut.edu.cn



等离子体沉积和刻蚀中离子与中性基团协同作用和表面形貌

宋柳琴 董婉 张逸凡 宋远红

Synergistic effect of ions and neutrals and surface morphology in plasma deposition/etching processes

SONG Liuqin DONG Wan ZHANG Yifan SONG Yuanhong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 235208 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20251236

CSTR: 32037.14.aps.74.20251236

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20251236>

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

容性耦合放电等离子体增强氧化硅薄膜沉积模拟研究

Numerical investigation of SiO₂ film deposition enhanced by capacitively coupled discharge plasma

物理学报. 2022, 71(17): 170201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220493>

等离子体刻蚀建模中的电子碰撞截面数据

Electron collision cross section data in plasma etching modeling

物理学报. 2024, 73(9): 095201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231598>

非热等离子体材料表面处理及功能化研究进展

Recent progress of non-thermal plasma material surface treatment and functionalization

物理学报. 2021, 70(9): 095203 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202233>

低磁场螺旋波等离子体中Trivelpiece-Gould波的功率沉积特性

Analysis of power deposition characteristics of Trivelpiece-Gould wave in low magnetic field helicon plasma

物理学报. 2025, 74(15): 155201 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250303>

高能离子在稠密等离子体中的能量沉积和电子离子能量分配

Energy deposition and electron-ion energy partition of high-energy ions in dense plasmas

物理学报. 2025, 74(9): 093401 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241763>

等离子体中激光能量沉积系数、电子热传导系数和电阻率的统一推导

Unified derivation of laser energy deposition coefficient, electron thermal conduction coefficient and resistivity in plasma

物理学报. 2025, 74(12): 125201 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250340>