

## 射频感应耦合远端氢等离子体源的二维流体模拟\*

张宇 罗倩 黄高煌 高飞† 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)

(2025 年 9 月 4 日收到; 2025 年 10 月 14 日收到修改稿)

氢等离子体由于具有独特的物理和化学特性, 是反应室清洗时的首选气体. 为了更好地理解氢等离子体中的输运和扩散机理, 本文通过 COMSOL 仿真软件构建了二维流体模型, 系统研究了在不同放电参数和几何参数下射频感应耦合远端氢等离子体源的特性. 结果发现, 输入功率的影响主要体现在电子密度上而非电子温度. 这种现象可能是由于稳态放电中电离速率和损失速率之间的平衡机制造成的. 气压对驱动区和空间后辉光区中的等离子体有着相反的影响. 随着气压的升高, 驱动区电子密度逐渐增大, 但空间后辉光区电子密度逐渐减小. 这可能是由于随着气压的逐渐增大, 非局域电子动力学向局域转变导致的. 增大输入功率可以有效提高氢自由基密度和扩散通量, 这表明高功率有利于氢自由基向空间后辉光区的输运. 提高工作气压也可以产生相同的效果, 但会降低空间后辉光区氢自由基密度. 此外, 在固定放电参数下, 适当增大几何参数有利于在后辉光区产生较高密度且较为均匀的氢自由基.

**关键词:** 感应耦合等离子体, 远端等离子体源, 二维流体模型, 氢自由基**DOI:** 10.7498/aps.75.20251202**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251202

## 1 引言

远端等离子体源 (remote plasma source, RPS) 对等离子体输运、等离子体均匀性和化学反应控制等方面具有良好的调控, 被广泛应用于薄膜沉积、高选择性刻蚀以及大面积均匀等离子体等领域<sup>[1-13]</sup>. RPS 通常由驱动区和空间后辉光区两部分组成. 驱动区是一个感应耦合等离子体 (inductively coupled plasma, ICP) 装置. 空间后辉光区连接驱动区末端, 用于等离子体扩散和输运. 在其他文献中, RPS 也被称为双腔室 ICP 源<sup>[14]</sup> 或串联等离子体源<sup>[15]</sup>. 特别是对于远端氢等离子体源, 近年来被广泛应用于反应室清洗和表面清洁等领域<sup>[16,17]</sup>. 这得益于氢等离子体独特的物理和化学性质.

众所周知, 氢原子外层只有一个电子, 具有强烈的获得或共享电子以形成稳定氢分子的倾向. 这

使得其具有极高的还原性和反应性, 能轻易地与多种表面原子或分子反应. 由于氢原子是电中性, 不会因电场作用被加速从而轰击表面, 避免了离子造成的晶格损伤、缺陷注入以及溅射等影响. 相较于离子和电子, 氢自由基在腔室中存活时间更长, 能更均匀地扩散到复杂结构 (如高深宽比沟槽) 的各个表面. 此外, 远端放电的结构设计降低了高能离子轰击损伤或引入杂质的风险, 极大地发挥了氢自由基的化学活性<sup>[18,19]</sup>.

基于氢等离子体在清洗领域的诸多优点, 近年来得到了许多关注. 目前已经开发了各种选择性清洗方法, 包括氢原子清洗、激光诱导氢等离子体清洗和反射器自驱动放电氢等离子体清洗等. Braginsky 等<sup>[20]</sup> 研究了在氢等离子体中从钼硅 (molybdenum/silicon, Mo/Si) 多层镜面去除非晶碳 (carbon, C) 和锡 (stannum, Sn) 薄膜. 结果发现在后辉光中 Sn 和 C 薄膜的去除机制仅由氢自

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12075049) 和中央高校基本科研业务费 (批准号: DUT25Z2707) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: fgao@dlut.edu.cn

由基驱动, 并且由于离子能量和通量较低, 氢自由基在去除 Sn 原子中占主导地位. Maffini 等<sup>[21]</sup> 在托卡马克相关条件下研究了金属第一反射镜的激光清洗技术. 结果表明, 激光清洗技术可以在几分钟内完成相关区域内的清洗, 并且由于污染物抑制了近红外光子的吸收, 因此选择紫外脉冲清洗会更有效. Sporre 等<sup>[22]</sup> 开发了一种利用氢等离子体从被污染器件中去除 Sn 的原位方法. 结果发现, 在 80 mTorr (1 Torr = 133 Pa), 50 sccm (1 sccm = 1 mL/min, 标准大气压), 1000 W 的优化条件下, 清洗速率高达  $(130 \pm 10)$  nm/min. 最近, Wang 等<sup>[23]</sup> 利用反射器自放电清洗技术探究了不同基板上 Sn 污染物的去除特性. 结果发现, 表面 Sn 的去除率相对较快, 并且随着污染物厚度的减小而缓慢下降, 但却无法完全清除, 而是会达到一个固定值 (残留 Sn 比例约为 0.35%) 并保持稳定.

尽管人们对氢等离子体清洗进行了研究, 并得到了许多重要结果, 但放电参数和几何参数对射频感应耦合远端氢等离子体源的影响几乎未见报道. 此外, 氢自由基的空间分布在清洗过程中也起着重要作用, 然而对氢自由基产生和损失相关的研究也非常有限. 因此, 本文采用二维流体模型, 研究了不同参数对氢等离子体中的电子密度、电子温度以及氢自由基的影响, 并给出了各个参数下氢自由基源项和损失项的相关反应. 本研究有助于理解 RPS 特性和氢等离子体清洗机理, 并对优化 RPS 设计提供参考数据.

## 2 模型介绍

本文采用二维流体模型来模拟射频感应耦合 RPS, 其结构示意图如图 1 所示. 装置整体可以被分为两部分, 即驱动区和空间后辉光区. 其中, 驱动区是一个 ICP 系统, 高度为 14 cm, 半径为 3—7 cm 可调, 侧壁缠绕 5 匝铜线圈, 一端接频率为 13.56 MHz 的射频电源, 另一端和腔室器壁一起接地. 空间后辉光区用于等离子体扩散和运输, 半径为 10 cm, 高度为 3—15 cm 可调.

该模型基于 COMSOL 多物理场仿真软件中的等离子体模块和电磁场模块, 来模拟不同参数条件下的等离子体运输. 该软件已被用于等离子体方向的相关研究, 并得到许多重要成果<sup>[13,25,29,30]</sup>. 下文对该理论模型进行详细介绍.

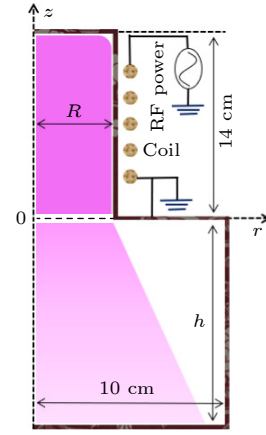


图 1 射频感应耦合远端等离子体源结构示意图

Fig. 1. Schematic diagram of the radio frequency inductively coupled remote plasma source.

### 2.1 等离子体模块

用连续性方程和能量守恒方程描述电子数密度和电子能量密度:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_e = R_e, \quad (1)$$

$$\frac{\partial n_\epsilon}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_\epsilon + \mathbf{E} \cdot \Gamma_e = R_\epsilon + P_{\text{ind}}, \quad (2)$$

其中  $n_e$  和  $n_\epsilon$  分别是电子密度和电子能量密度,  $\Gamma_e$  和  $\Gamma_\epsilon$  分别是电子通量和电子能量通量,  $\mathbf{E}$  为静电场,  $P_{\text{ind}}$  为感应功率沉积 (见 2.2 节),  $R_e$  表示电子的产生和损失,  $R_\epsilon$  是由非弹性碰撞引起的能量源项:

$$R_e = \sum_i k_i n_a n_b, \quad (3)$$

$$R_\epsilon = \sum_i k_i n_a n_b \epsilon_i, \quad (4)$$

其中  $n_a$  和  $n_b$  为反应物数密度,  $\epsilon_i$  为第  $i$  个反应的阈值能. 根据截面  $\sigma_i$  可以得到反应  $i$  的速率系数  $k_i$ :

$$k_i = \gamma \int_0^\infty \epsilon_e \sigma_i f_e d\epsilon_e, \quad (5)$$

其中  $\gamma = (2e/m_e)^{1/2}$  是一个系数,  $e$  是电子电荷量,  $m_e$  是电子质量,  $\epsilon_e$  为电子能量,  $f_e$  为电子能量分布函数, 本文假设其为麦克斯韦分布.

用漂移扩散方程描述了电子通量和电子能通量:

$$\Gamma_e = -n_e \mu_e \mathbf{E} - D_e \nabla n_e, \quad (6)$$

$$\Gamma_\epsilon = -n_\epsilon \mu_\epsilon \mathbf{E} - D_\epsilon \nabla n_\epsilon, \quad (7)$$

其中  $\mu_e$ ,  $D_e$ ,  $\mu_\epsilon$ ,  $D_\epsilon$  分别是电子和电子能的迁移率和扩散系数:

$$\mu_e = \frac{e}{m_e \nu_{\text{eff}}}, \quad (8)$$

$$D_e = \frac{T_e}{m_e \nu_{\text{eff}}}, \quad (9)$$

$$\mu_\varepsilon = \frac{5}{3} \mu_e, \quad (10)$$

$$D_\varepsilon = \frac{5}{3} D_e, \quad (11)$$

其中  $T_e$  为电子温度,  $\nu_{\text{eff}}$  为有效碰撞频率 (见 2.2 节).

重粒子 (离子和中性粒子) 的输运由多组分方程描述:

$$\rho \frac{\partial}{\partial t} (w_m) = \nabla \cdot \Gamma_m + R_m, \quad (12)$$

$$\Gamma_m = \rho w_m \mathbf{V}_m, \quad (13)$$

$$\mathbf{V}_m = D_m \nabla \ln w_m + D_m \nabla \ln M_n - q_m \mu_m \mathbf{E}, \quad (14)$$

其中  $w_m$ ,  $\Gamma_m$  和  $\mathbf{V}_m$  分别为重粒子  $m$  的质量分数、质量通量和速度,  $R_m$  为源项.  $\rho = M_n P_A / (RT)$  是混合物密度,  $M_n$  是平均摩尔质量,  $P_A$  是气压,  $R$  是通用气体常数,  $T$  是中性气体温度, 固定设置为 300 K.  $D_m$  和  $\mu_m$  分别为重粒子  $m$  的扩散系数和迁移率,  $q_m$  为带电量. 对于中性粒子, (14) 式的最后一项可忽略. 离子和中性粒子的扩散系数为

$$D_m = \frac{1 - w_m}{\sum_{n \neq m} \frac{x_n}{D_{mn}}}, \quad (15)$$

其中  $D_{mn}$  是重粒子  $m$  和重粒子  $n$  之间的二元扩散系数,  $x_n$  是重粒子  $n$  的摩尔分数. 根据爱因斯坦关系  $D_m / \mu_m = T/e$  可求得离子迁移率  $\mu_m$ . 一般情况下 ( $> 20$  mTorr) 采用漂移扩散近似描述等离子体可以得到合理的结果. 但是对于低气压放电需要讨论漂移扩散近似的适用性. 在低气压下, 影响离子和中性粒子碰撞速率的有效离子速度是离子漂移速度  $|\mathbf{u}_i|$  而不是离子热速度  $v_{\text{thi}}$ . 也就是说在大部分放电区域里, 都有  $|\mathbf{u}_i| > v_{\text{thi}}$ . 在此情况下, 离子和中性粒子的碰撞频率可以写为  $\nu_m \approx |\mathbf{u}_i| / \lambda_i$ , 其中  $\lambda_i$  是离子的平均自由程. 此时, 低气压下离子迁移率可由变迁移率模型 [24] 描述:

$$\mu_i = \frac{2e\lambda_i}{\pi m_i |\mathbf{u}_i|}. \quad (16)$$

假设由电场引起的漂移速度远高于压力梯度引起的速度, 可得

$$\mathbf{u}_i = \mu_i \mathbf{E}. \quad (17)$$

由此可得高场近似下的离子迁移率 [25]:

$$\mu_i = \sqrt{\frac{2e}{\pi m_i N_n \sigma |\mathbf{E}|}}, \quad (18)$$

其中  $N_n$  为中性粒子数密度,  $\sigma$  是离子和中性粒子之间反应的横截面. 根据爱因斯坦的关系计算离子扩散系数  $D_i$ . 与漂移扩散近似的区别在于, 高场近似考虑了惯性项作用 [26–28]. 在文献 [29] 中, 已详细讨论了不同气压下分别采用这两种近似的模型的差别. 结果发现, 使用两种模型得到的等离子体密度的差异随着气压的降低而逐渐增大. 在较高气压下采用漂移-扩散近似是合理的, 但本模型中的气压较低 (0.3–2.0 Pa), 因此需要对离子采用高场近似.

在忽略漂移效应、二次电子发射以及热发射下 [27,30], 电子通量和电子能量通量的边界条件为

$$\mathbf{n} \cdot \Gamma_e = \frac{1 - r_e}{1 + r_e} \left( \frac{1}{2} \nu_{e,\text{th}} n_e \right), \quad (19)$$

$$\mathbf{n} \cdot \Gamma_\varepsilon = \frac{1 - r_e}{1 + r_e} \left( \frac{5}{6} \nu_{e,\text{th}} n_e \right), \quad (20)$$

其中  $\mathbf{n}$  是外法矢量,  $\nu_{e,\text{th}} = \sqrt{8T_e / (\pi m_e)}$  为电子热速度,  $r_e$  为反射系数. 考虑到中性粒子和离子一般损失在器壁上, 向内的质量通量表示为

$$\mathbf{n} \cdot \Gamma_m = M_m R_m + M_m c_m q_m \mu_m (\mathbf{E} \cdot \mathbf{n}), \quad (21)$$

其中  $M_m$  和  $c_m$  分别为物质  $m$  的摩尔质量和摩尔浓度, 并且 (21) 式中的最后一项只适用于离子. 此外模型中考虑的反应列于表 1.

## 2.2 电磁场模块

流体模型中的电磁场由麦克斯韦方程组描述:

$$(\mathbf{j}\omega\sigma_p - \omega^2 \varepsilon_0 \varepsilon_r) \mathbf{A} + \nabla \times (\mu_0^{-1} \mu_r^{-1} \mathbf{B}) = \mathbf{J}_c, \quad (22)$$

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}, \quad (23)$$

其中  $\mathbf{j}$  是虚数单位,  $\omega$  为角频率,  $\varepsilon_0$  和  $\varepsilon_r$  分别是真空中介电常数和相对介电常数,  $\mu_0$  和  $\mu_r$  分别是真空磁导率和相对磁导率,  $\mathbf{A}$  是磁矢势,  $\mathbf{B}$  是磁感应强度,  $\mathbf{J}_c$  为线圈电流密度. 方程 (22) 中的等离子体电导率表示为

$$\sigma_p = \frac{n_e e^2}{m_e (\nu_{\text{eff}} - \mathbf{j}\omega)}, \quad (24)$$

$$\nu_{\text{eff}} = \nu_{ec} + \nu_{\text{stoc}}, \quad (25)$$

表 1 模型中考虑的反应  
 Table 1. Reactions included in this model.

Reaction	Description	Ref.
$e + H_2 \rightarrow e + H_2$ $e + H_2 \rightarrow e + H_2$	Elastic scattering	[31]
$e + H \rightarrow e + H$	Elastic scattering	[31]
$e + H_2 \rightarrow 2e + H + H^+$ $e + H_2 \rightarrow 2e + H + H^+$	Dissociative ionization	[32]
$e + H_2 \rightarrow 2e + H_2^+$	Molecular ionization	[32]
$e + H_2 \rightarrow e + H + H$ $e + H_2 \rightarrow e + H + H$	Dissociation	[33]
$e + H_2 \rightarrow e + H + H(n=2)$ $e + H_2 \rightarrow e + H + H(n=2)$	Dissociation	[34]
$e + H \rightarrow 2e + H^+$ $e + H \rightarrow 2e + H^+$	Ionization	[32]
$e + H \rightarrow e + H(n=2,3)$ $e + H \rightarrow e + H(n=2,3)$	Excitation	[32]
$e + H(n=2,3) \rightarrow 2e + H^+$ $e + H(n=2,3) \rightarrow 2e + H^+$	Ionization	[32]
$e + H_2^+ \rightarrow e + H^+ + H$ $e + H_2^+ \rightarrow e + H^+ + H$	Dissociative excitation	[32]
$e + H_2^+ \rightarrow e + H^+ + H(n=2)$ $e + H_2^+ \rightarrow e + H^+ + H(n=2)$	Dissociative excitation	[34]
$e + H_2^+ \rightarrow H + H$ $e + H_2^+ \rightarrow H + H$	Dissociative recombination	[35]
$e + H_3^+ \rightarrow e + 2H + H^+$ $e + H_3^+ \rightarrow e + 2H + H^+$	Dissociative excitation	[34]
$e + H_3^+ \rightarrow 3H$ $e + H_3^+ \rightarrow 3H$	Recombination	[35]
$e + H_2^+ \rightarrow 2e + 2H^+$ $e + H_2^+ \rightarrow 2e + 2H^+$	Dissociative	[32]
$e + H_2 \rightarrow e + H_2(v=1-14)$ $e + H_2 \rightarrow e + H_2(w=1,2,3)$	Radiative decay and excitation: EV	[36]
$e + H_2(v=1-14) \rightarrow e + 2H$ $e + H_2(w=1,2,3) \rightarrow e + 2H$	Dissociation	[37]
$e + H_2(v=1-14) \rightarrow H + H^-$ $e + H_2(w=1,2,3) \rightarrow H + H^-$	Dissociative electron attachment: DA	[32]
$H_2^+ + H_2 \rightarrow H_3^+ + H$ $H_2^+ + H_2 \rightarrow H_3^+ + H$	Ion formation	[38]
$e + H^- \rightarrow 2e + H$ $e + H^- \rightarrow 2e + H$	Electron detachment: ED	[34]
$H_2^+ + H^- \rightarrow H + H_2$ $H_2^+ + H^- \rightarrow H + H_2$	Mutual neutralization: MN	[39]
$H_3^+ + H^- \rightarrow 2H_2$	Mutual neutralization: MN	[39]
$H + H^- \rightarrow e + H_2$ $H_3^+ + H^- \rightarrow 2H_2$	Associative detachment: AD	[39]
$H_3^+ + \text{wall} \rightarrow H_2 + H$	Ion wall recombination	[40]
$H_2^+ + \text{wall} \rightarrow H_2$	Ion wall recombination	[40]
$H^+ + \text{wall} \rightarrow H$	Ion wall recombination	[40]
$H + H + \text{wall} \rightarrow H_2$ $H + H^- \rightarrow e + H_2$	H wall recombination	[41,42]
$H(n=2,3) + \text{wall} \rightarrow H$ $H_3^+ + \text{wall} \rightarrow H_2 + H$	H(n) wall recombination	[41,43]
$H_2(v=1-14) + \text{wall} \rightarrow H_2$	Vibrational de-excitation: WD	[41,44]
$H^- + \text{wall} \rightarrow H \rightarrow H_2$	Ion wall recombination	[45]

其中  $\nu_{ec}$  为弹性碰撞频率,  $\nu_{stoc}$  为随机加热频率. 当放电气压较低时 (小于 2 Pa), 相较于欧姆加热, 随机加热起主导作用, 因此定义了一个有效碰撞频率  $\nu_{eff}$ . 随机加热频率可以表示为

$$\nu_{stoc} \approx \frac{\nu_{e,th}}{4\delta_{eff}}, \quad (26)$$

其中  $\delta_{eff}$  为反常趋肤深度:

$$\delta_{eff} \approx \left( \frac{\nu_{e,th} c^2}{\omega \omega_{pe}^2} \right)^{1/3}, \quad (27)$$

式中  $c$  为真空中的光速,  $\omega_{pe}$  为等离子体频率.

此外, 感性沉积功率密度可表示为

$$P_{ind} = \frac{1}{2} \text{Re} (\mathbf{E}_{ind}^* \cdot \mathbf{J}_p), \quad (28)$$

其中  $\mathbf{J}_p$  为等离子体电流密度, 根据欧姆定律可将其表示为  $\mathbf{J}_p = \sigma_p \cdot \mathbf{E}_{ind}$ ,  $\mathbf{E}_{ind}^*$  为感应电场  $\mathbf{E}_{ind}$  的复共轭.

等离子体中的电势和静电场由泊松方程描述:

$$\nabla^2 V = -\frac{\rho_V}{\epsilon_0}, \quad (29)$$

$$\mathbf{E} = -\nabla V. \quad (30)$$

其中  $\rho_V$  是电荷密度. 由于腔室器壁外侧接地, 所以电势的边界条件为在器壁处  $V = 0$ .

### 3 结果讨论

根据二维流体模型, 系统探究了在不同输入功率、工作气压、驱动区半径以及后辉光区长度下, 远端氢等离子体源中等离子体参数和反应粒子的分布特性, 包括电子密度、电子温度、氢自由基等.

#### 3.1 放电参数的影响

在固定放电气压 0.6 Pa、不同输入功率下, 氢等离子体中的电子密度、电子温度以及氢自由基的横向和轴向分布如图 2 所示. 如无特别注释, 本文中横向分布位置均为驱动区中心处 ( $z = 7$  cm), 轴向分布位置均为装置中心轴线 ( $r = 0$  cm). 从图 2(a), (b) 可以看出, 电子密度在驱动区中心处最高, 这是由于射频功率通过驱动线圈馈入到等离子体中, 电子密度最大值所在位置与线圈中心位置几乎一致. 随着远离驱动区, 由于没有功率馈入, 电子密度沿两侧逐渐下降. 在较低的工作气压下, 等离子体中随机加热占主导地位. 电子能在一个射频周期内无碰撞地穿过趋肤层来获得净能量. 此外, 由于电子动力学的非局域特性, 从射频电场中获能的高能电子通过热运动可以运动到距离驱动

区较远的地方, 使得即使没有功率馈入的空间后辉光区也能维持一定密度的等离子体.

输入功率的改变可以直接影响电子密度, 但是对电子温度的影响却有些不同. 如图 2(c), (d) 所示, 随着输入功率的增大, 驱动区中心处电子温度的变化非常小. 靠近驱动区边界处, 电子温度随功率略微增大. 在轴向上, 功率的改变对电子温度几乎无影响. 对于低气压放电, 在稳态时, 电离速率  $S = n_e n_g \kappa_i$  和损失速率  $L = n_e D_a / \Lambda^2$  达到平衡, 于是有  $n_g \kappa_i = D_a / \Lambda^2$ , 其中  $n_g$  为背景中性气体密度,  $\kappa_i$  为电离速率系数,  $D_a$  为双极扩散系数,  $\Lambda$  为特征扩散长度. 当固定气压和放电腔时,  $n_g$  和  $\Lambda$  保持不变, 因此电离平衡本质上是  $\kappa_i$  和  $D_a$  之间的平衡. 二者作为电子温度  $T_e$  的函数, 在特定放电条件下总是存在一个  $T_e$  的平衡点. 当  $T_e$  高于平衡点时, 电离速率大于损失速率, 这会导致电子密度上升, 从而降低电子温度使放电回到平衡, 反之亦然. 图 3(b) 给出的不同功率下氢离子的二维分布也可以侧面验证这一点. 从图 3 可以看出, 随着功率的升高, 氢离子密度逐渐增大. 当功率增大时, 系统必须提高电离速率以维持电离平衡. 因此, 在低气压 RPS 中, 输入功率的影响主要体现在电子密度上而非电子温度. 其他研究者也发现了类似的结果 [12].

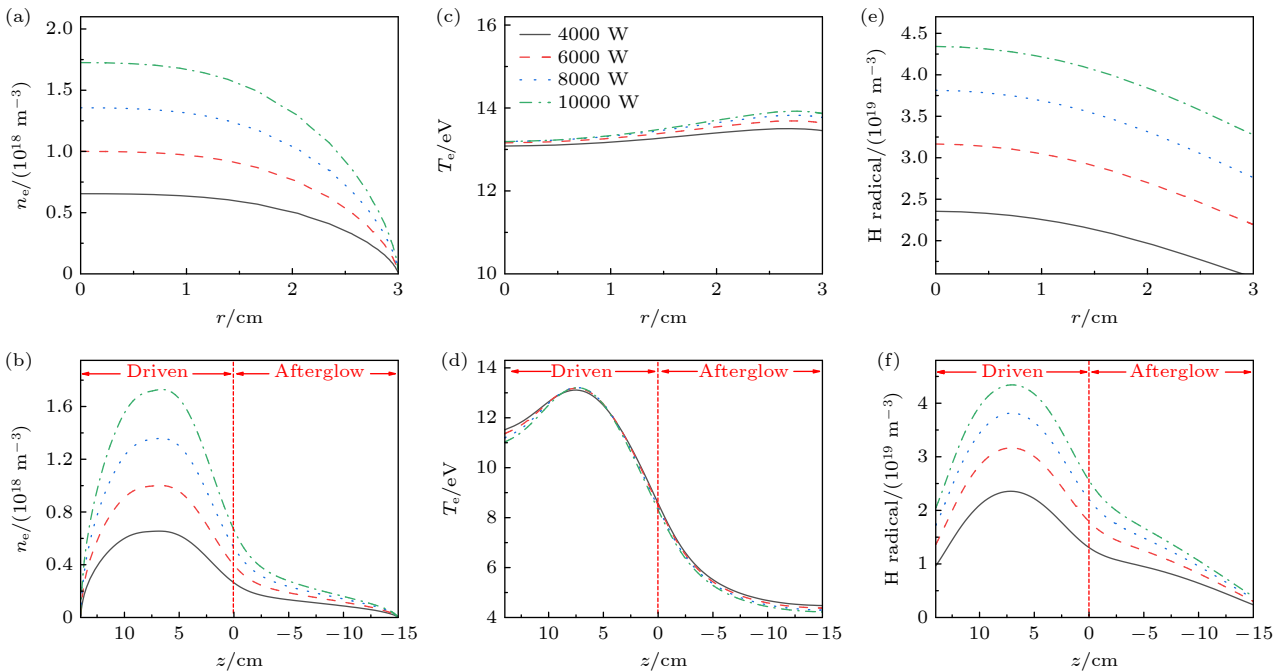


图 2 放电气压为 0.6 Pa, 不同输入功率下 (a), (b) 电子密度径向和轴向分布; (c), (d) 电子温度径向和轴向分布; (e), (f) 氢自由基径向和轴向分布

Fig. 2. (a), (b) Electron density distribution radially and axially; (c), (d) electron temperature distribution radially and axially; (e), (f) hydrogen radical distribution radially and axially at a discharge pressure of 0.6 Pa under different input powers.

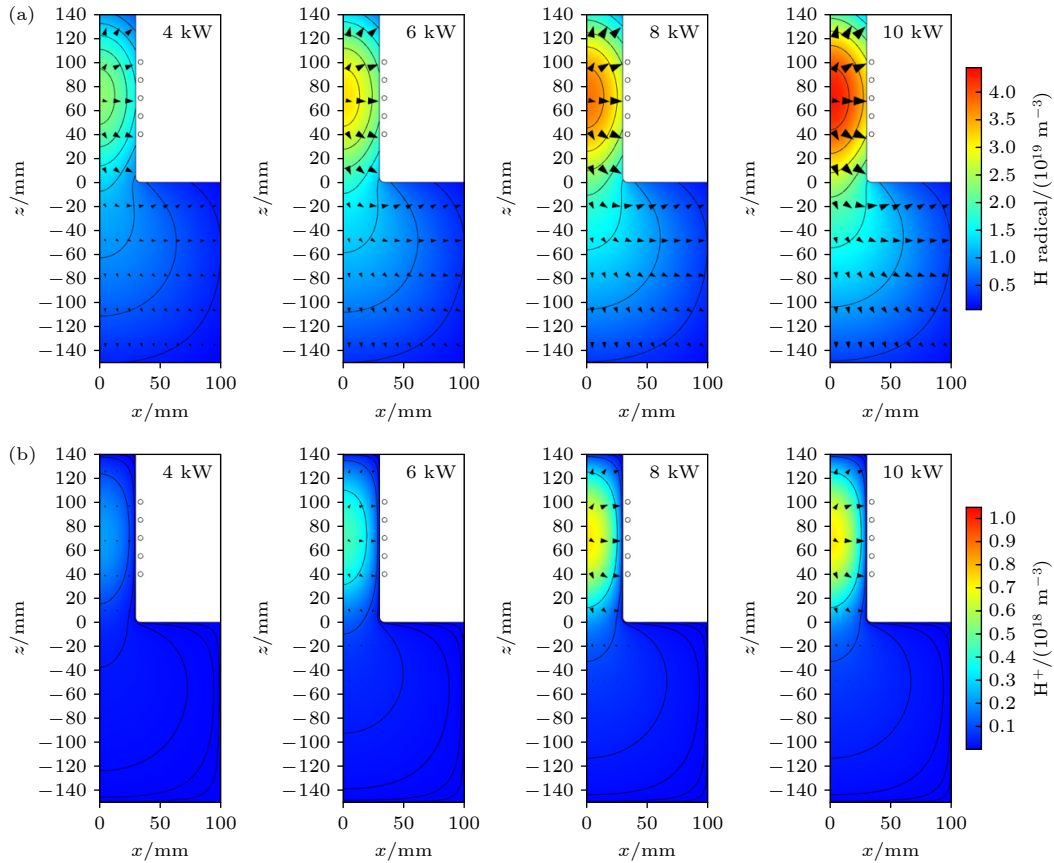


图3 放电气压0.6 Pa、不同输入功率下 (a) 氢自由基和(b) 氢离子的二维分布, 箭头表示通量

Fig. 3. Two-dimensional distribution of (a) hydrogen radicals and (b) hydrogen ions at a discharge pressure of 0.6 Pa under different input powers, where arrows indicate the flux.

图2(e), (f) 给出了不同功率下氢自由基的横向和轴向分布. 从图2可以看出, 在驱动区中, 氢自由基密度在中心处取得最大值, 而且随输入功率几乎线性增大. 在轴向上, 随着远离驱动区, 氢自由基密度向两侧逐渐下降. 与电子密度情况类似, 输入功率可以直接影响氢自由基密度. 为了进一步探究输入功率对氢自由基的影响, 还给出了在气压0.6 Pa、不同输入功率下, 氢自由基的二维分布, 如图3(a)所示. 结果表明, 增大输入功率, 可以有效提高氢自由基密度和扩散通量. 这说明高功率有助于氢自由基向空间后辉光区输运.

除了输入功率, 我们还研究了工作气压的影响. 在固定输入功率4 kW、不同工作气压下, 氢等离子体中的电子密度、电子温度以及氢自由基的横向和轴向分布如图4所示. 其中, 图4(a), (b) 给出了气压对电子密度的影响. 从图4可以看出, 在驱动区中, 电子密度在中心处取得最大值, 并且随着气压的增大逐渐增大. 在轴向上, 驱动区和空间后辉光区却有着相反的趋势. 沿轴向, 电子密度先在

驱动区中心处达到最大值, 之后向空间后辉光区逐渐下降. 随着气压的逐渐增大, 空间后辉光区中电子密度下降速度逐渐加快. 驱动区电子密度越高, 空间后辉光区电子密度反而越低. 这是由于随着气压的逐渐增大, 非局域电子动力学向局域转变导致的. 与低气压下的表现相反, 在较高气压下, 等离子体主要集中在驱动区. 当远离驱动区时, 等离子体密度迅速下降. 气压对电子温度的影响如图4(c), (d)所示. 在固定功率下, 随着气压的增大, 电子温度逐渐降低. 这可以由能量守恒来理解.

图4(e), (f) 给出了不同气压下氢自由基的横向和轴向分布. 可以看出, 氢自由基密度在驱动区中心处取得最大值, 并且随着气压的增大而逐渐增大. 在轴向上, 氢自由基随气压的演化趋势与电子随气压的演化趋势相似, 即驱动区氢自由基密度越高, 空间后辉光区氢自由基密度越低. 为了进一步探究气压对氢自由基的影响, 还给出了在输入功率4 kW、不同工作气压下, 氢自由基的二维分布, 如图5所示. 从图5可以看出, 随着气压的增大,

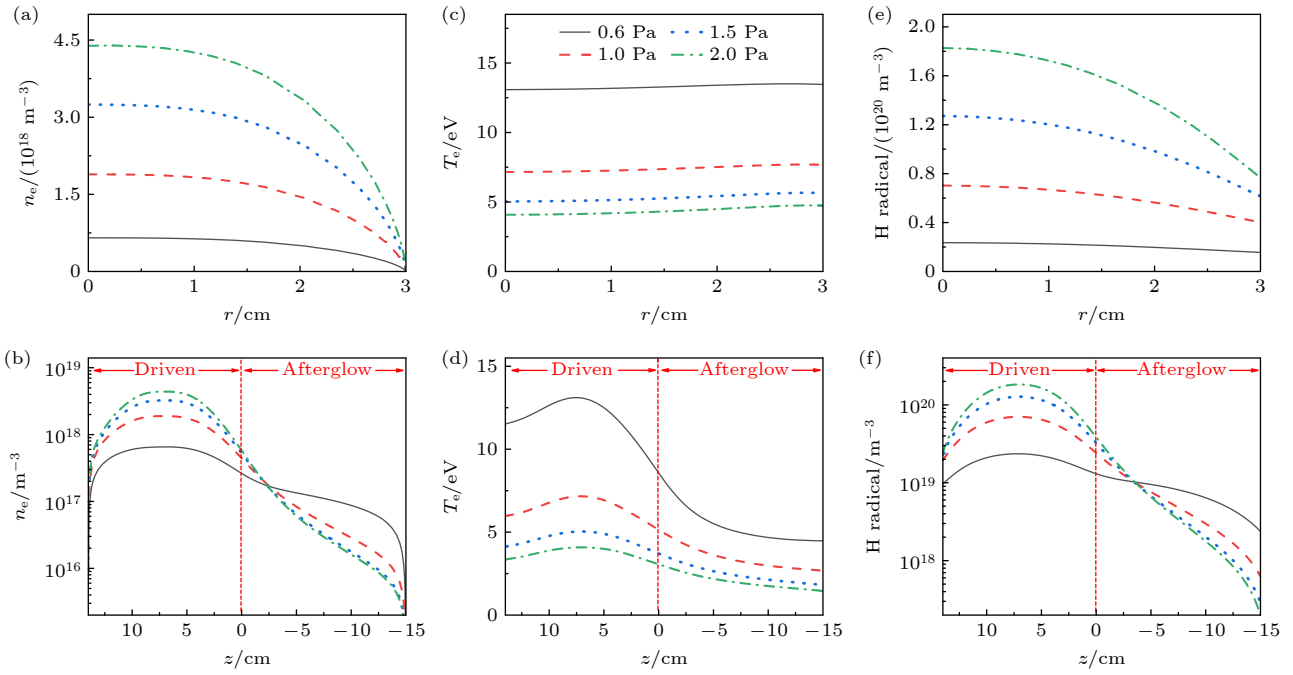


图 4 输入功率 4 kW、不同放电气压下 (a), (b) 电子密度径向和轴向分布; (c), (d) 电子温度径向和轴向分布; (e), (f) 氢自由基径向和轴向分布

Fig. 4. (a), (b) Electron density distribution radially and axially; (c), (d) electron temperature distribution radially and axially; (e), (f) hydrogen radical distribution radially and axially at an input power of 4 kW under different discharge pressures.

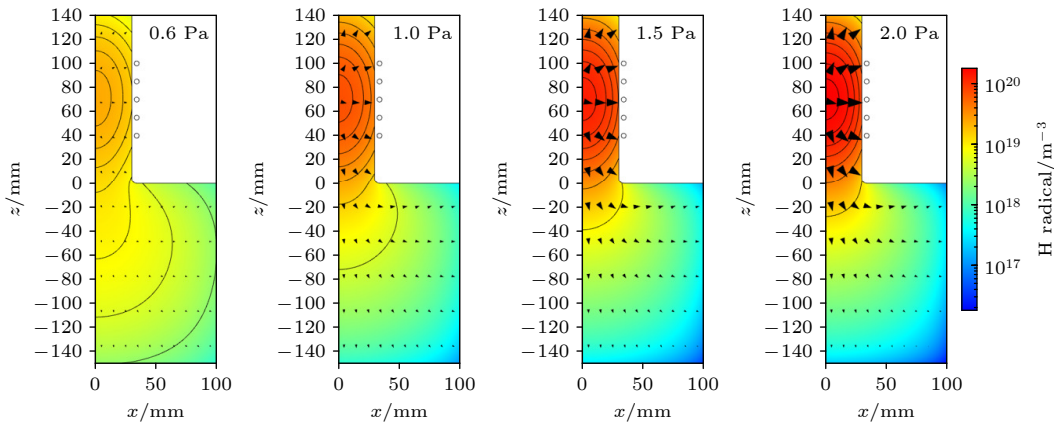


图 5 输入功率 4 kW、不同工作气压下, 氢自由基的二维分布, 箭头表示氢自由基通量

Fig. 5. Two-dimensional distribution of hydrogen radicals at an input power of 4 kW under different discharge pressures, where arrows indicate the flux of hydrogen radicals.

氢自由基的通量逐渐提高, 驱动区中的氢自由基密度逐渐增大, 但空间后辉光区中的氢自由基密度逐渐降低. 随着气压的升高, 氢自由基整体向驱动区收缩, 呈现出类似的局域性. 这表明, 增大气压有助于氢自由基的输运, 但是会降低氢自由基的密度.

通过比较输入功率和放电气压对氢等离子体的影响, 我们发现氢自由基对放电参数的响应与电子具有极其相似的演化规律. 为了进一步探究氢自由基的演化机制, 我们还计算了不同放电参数下的

氢自由基源项和损失项. 图 6 给出了不同放电参数下, 氢自由基的体产生速率和体损失速率. 从图 6 可以看出, 在体等离子体中氢自由基主要由电子与氢分子发生解离反应生成. 随着输入功率和工作气压的增大, 氢自由基的体产生速率逐渐升高, 这与图 2(f) 和图 4(f) 中的结果一致. 这也是氢自由基随放电参数的演化规律与电子十分相似的原因. 氢自由基在体等离子体中的损耗主要由电子与氢原子之间的激发反应以及氢原子与负氢离子之间的

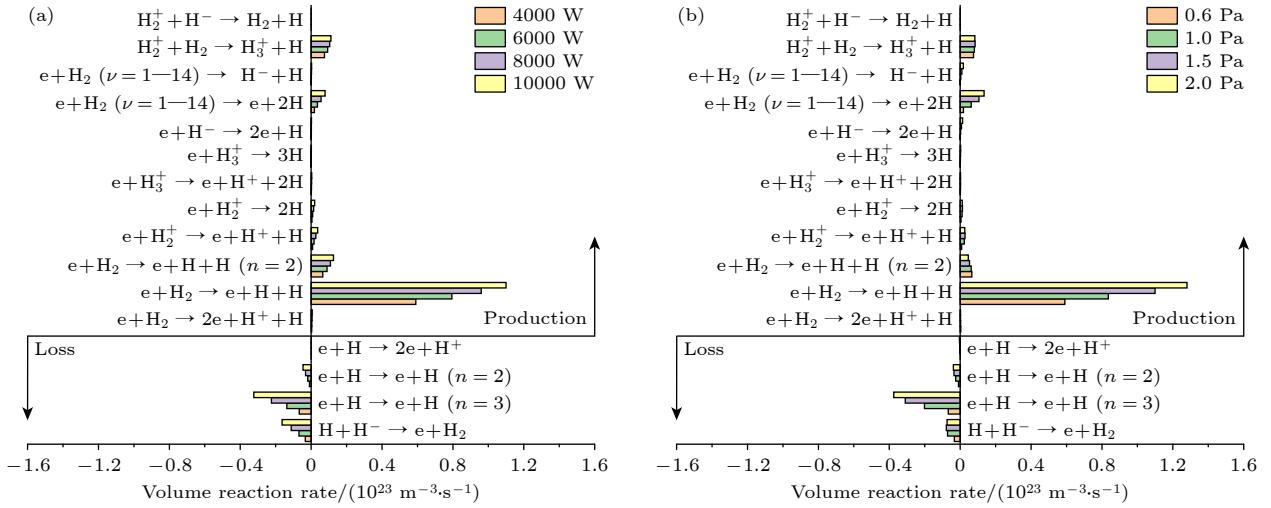


图 6 不同放电参数对氢自由基产生速率和体损失速率的影响 (a) 输入功率; (b) 工作压力

Fig. 6. Dependence of the volumetric production and loss rates of hydrogen radicals on discharge parameters: (a) Input power; (b) discharge pressure.

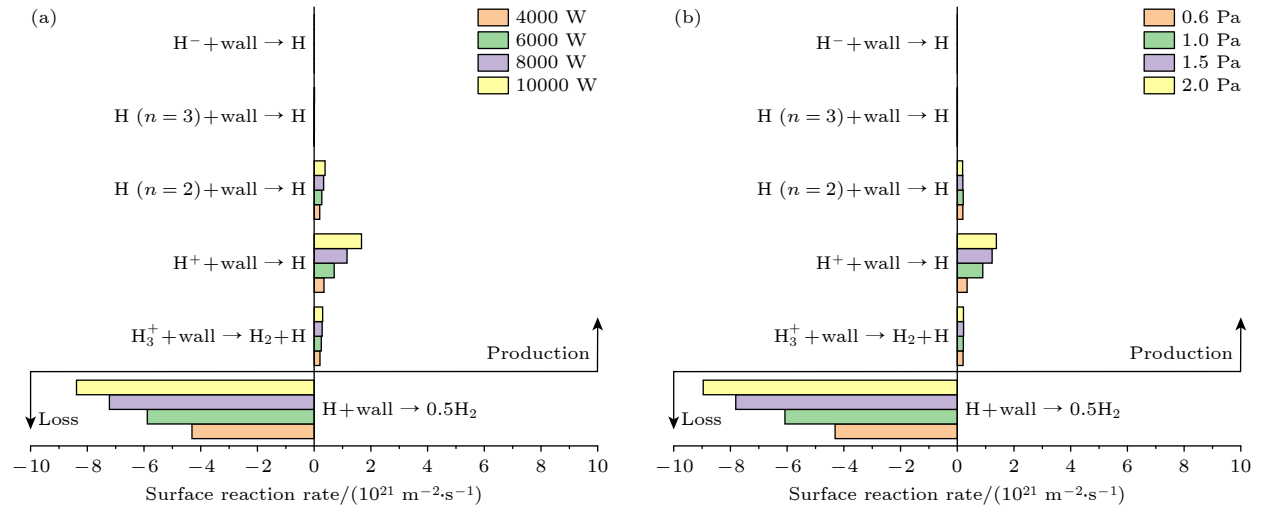


图 7 不同放电参数对氢自由基表面产生速率和表面损失速率的影响 (a) 输入功率; (b) 工作压力

Fig. 7. Dependence of the surface production and loss rates of hydrogen radicals on discharge parameters: (a) Input power; (b) discharge pressure.

关联解离造成. 显然, 氢自由基的体产生速率要明显大于体损失速率. 图 7 给出了不同放电参数下, 氢自由基的表面产生速率和表面损失速率. 结果表明, 在器壁表面, 氢自由基主要由  $\text{H}^+$  发生离子壁复合反应生成, 并通过氢原子壁复合反应而损耗. 与体反应速率的相同点在于, 氢自由基的表面反应速率也会随着放电参数的增大而提高. 而不同点在于, 氢自由基的表面损失速率要明显大于表面产生速率.

### 3.2 几何参数的影响

我们还研究了几何参数的影响. 在固定输入功率 4 kW、工作压力 0.6 Pa、不同驱动区半径下, 氢

等离子体中的电子密度、电子温度以及氢自由基的横向和轴向分布如图 8 所示. 其中图 8(a), (b) 给出了驱动区半径对电子密度的影响. 从图中可以看出, 电子密度最大值仍然在驱动区中心处, 并且随着驱动区半径的增大, 电子密度峰值逐渐上升, 在  $R = 4 \text{ cm}$  时达到最大值. 之后继续增大驱动区半径, 电子密度峰值逐渐下降. 沿轴向, 输运到空间后辉光区中的等离子体密度逐渐下降, 但随着驱动区半径的增大, 下降速率逐渐变缓, 并且空间后辉光区电子密度逐渐增大. 相较于电子密度, 驱动区半径对电子温度的影响较大. 如图 8(c), (d) 所示, 当驱动区半径为 3 cm 时, 电子温度高达 13 eV. 随着

驱动区半径逐渐增大, 电子温度迅速降低. 可以发现, 电子温度对驱动区半径的响应与工作气压类似, 如图 4(d) 所示. 但不同的地方在于, 气压会影响电子自由程和碰撞频率, 而驱动区半径则会影响放电体积. 在固定功率下, 增大驱动区半径相当于降低有效放电功率. 因此, 相较于电子密度, 驱动区半径对电子温度的影响更大, 这与输入功率对氢等离子体的影响效果相反.

图 8(e), (f) 给出了不同驱动区半径下氢自由

基的横向和轴向分布. 与预期的结果部分符合, 即氢自由基随驱动区半径的变化和电子类似, 均是随驱动区半径的增大而先增后减, 并且空间后辉光区氢自由基密度逐渐增大. 不同点在于氢自由基在  $R = 5$  cm 时密度才达到峰值. 此外, 还给出了不同驱动区半径下氢自由基的二维分布, 如图 9 所示. 从图 9 可以看出, 随着驱动区半径增大, 氢自由基通量逐渐提高, 空间后辉光区氢自由基含量明显上升. 这表明增大驱动区半径, 有利于提高氢自由基

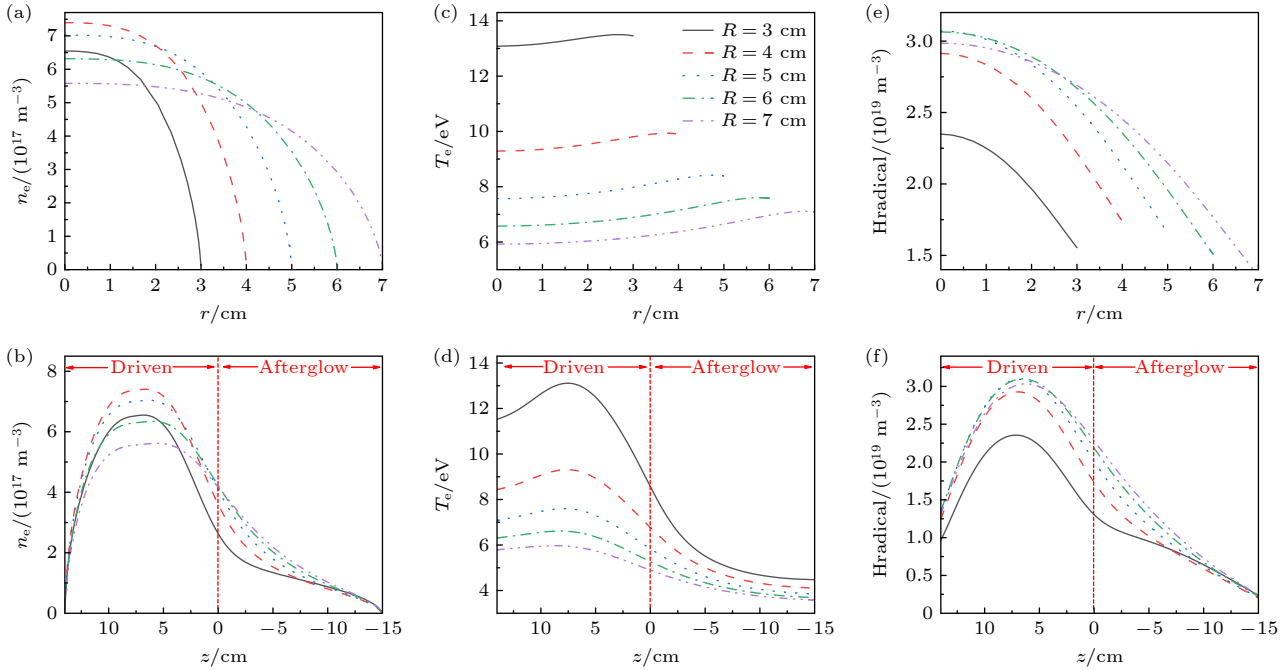


图 8 输入功率 4 kW、工作气压 0.6 Pa、不同驱动区半径下 (a), (b) 电子密度径向和轴向分布; (c), (d) 电子温度径向和轴向分布; (e), (f) 氢自由基径向和轴向分布

Fig. 8. (a), (b) Electron density distribution radially and axially; (c), (d) electron temperature distribution radially and axially; (e), (f) hydrogen radical distribution radially and axially at an input power of 4 kW and a discharge pressure of 0.6 Pa for different driver region radii.

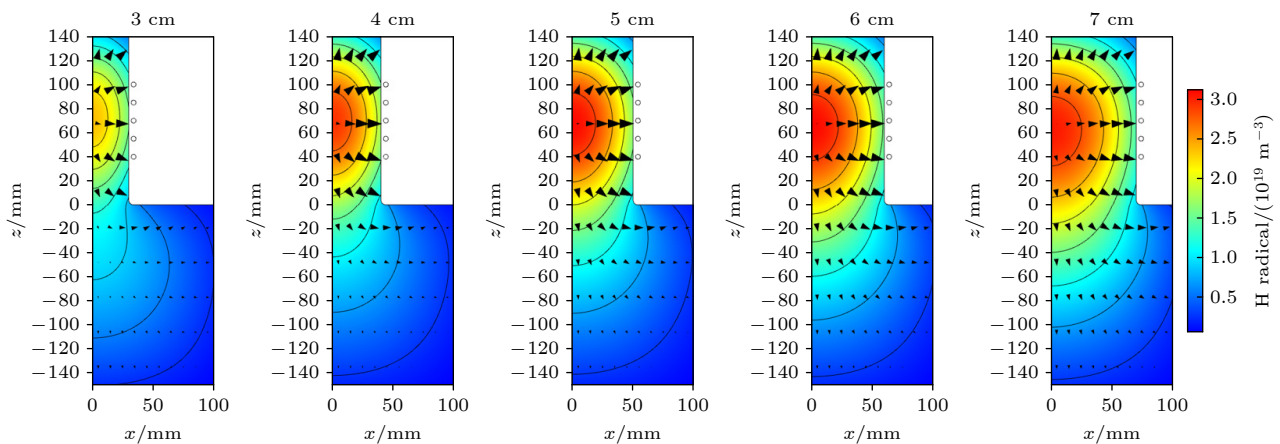


图 9 输入功率 4 kW、工作气压 0.6 Pa、不同驱动区半径下, 氢自由基的二维分布, 箭头表示氢自由基通量

Fig. 9. Two-dimensional distribution of hydrogen radicals at an input power of 4 kW and a discharge pressure of 0.6 Pa for different driver region radii, where arrows indicate the flux of hydrogen radicals.

密度以及加强氢自由基向空间后辉光区的运输.

最后, 还研究了后辉光区长度的影响. 在固定输入功率 4 kW、工作气压 0.6 Pa、不同后辉光区长度下, 氢等离子体中电子密度、电子温度以及氢自由基的横向和轴向分布如图 10 所示. 其中, 图 10(a), (b) 给出了后辉光区长度对电子密度的影响. 从图 10 可以看出, 增大后辉光区长度会略微降低电子密度. 当后辉光区长度增至 9 cm 后, 电子密度降至最低. 之后, 继续增大后辉光区长度

对两个区域的电子密度分布几乎无影响. 然而, 后辉光区长度对两个区域的电子温度分布的影响则有所不同. 如图 10(c), (d) 所示, 在驱动区, 后辉光区长度对电子温度几乎无影响, 然而在后辉光区, 随着长度逐渐增大电子温度逐渐降低. 这是由于驱动区放电参数和几何参数没有发生改变, 电子被射频电场加热的过程没有被影响, 因此电子温度几乎不变. 然而随着后辉光区长度的增大, 装置的特征尺寸也随之改变, 电子在热运动的过程中能量不断

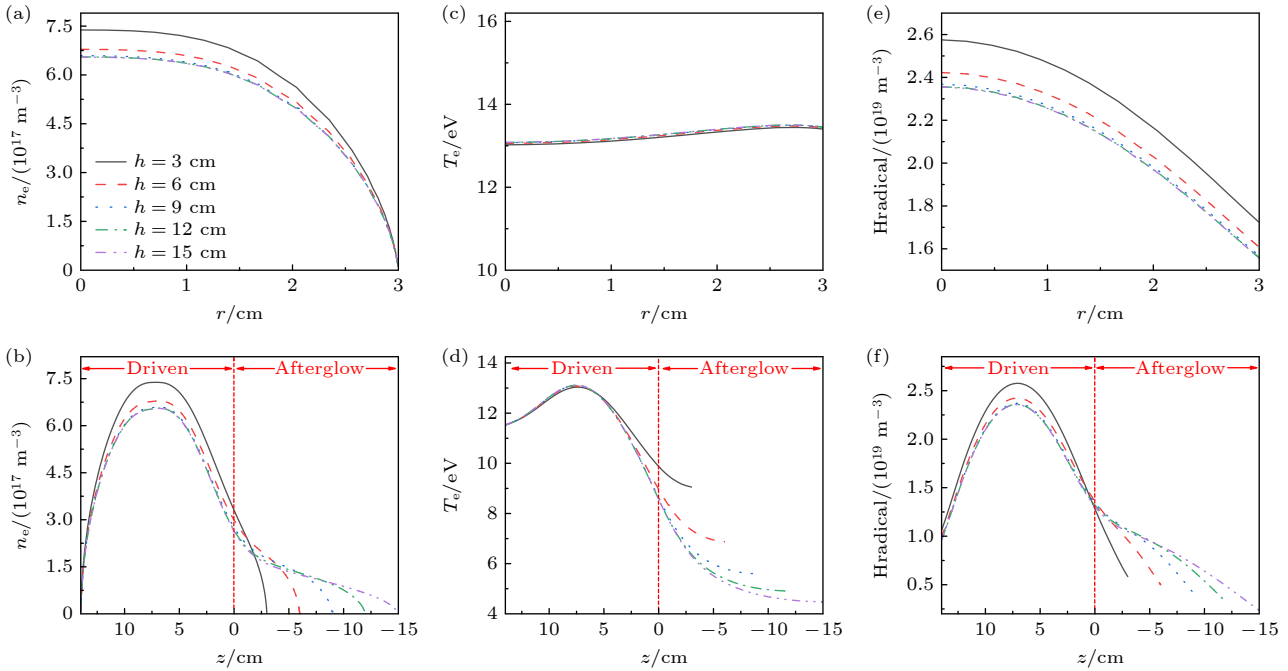


图 10 输入功率 4 kW、工作气压 0.6 Pa、不同后辉光区长度下 (a), (b) 电子密度径向和轴向分布; (c), (d) 电子温度径向和轴向分布; (e), (f) 氢自由基径向和轴向分布

Fig. 10. (a), (b) Electron density distribution radially and axially; (c), (d) electron temperature distribution radially and axially; (e), (f) hydrogen radical distribution radially and axially at an input power of 4 kW and a discharge pressure of 0.6 Pa for afterglow region lengths.

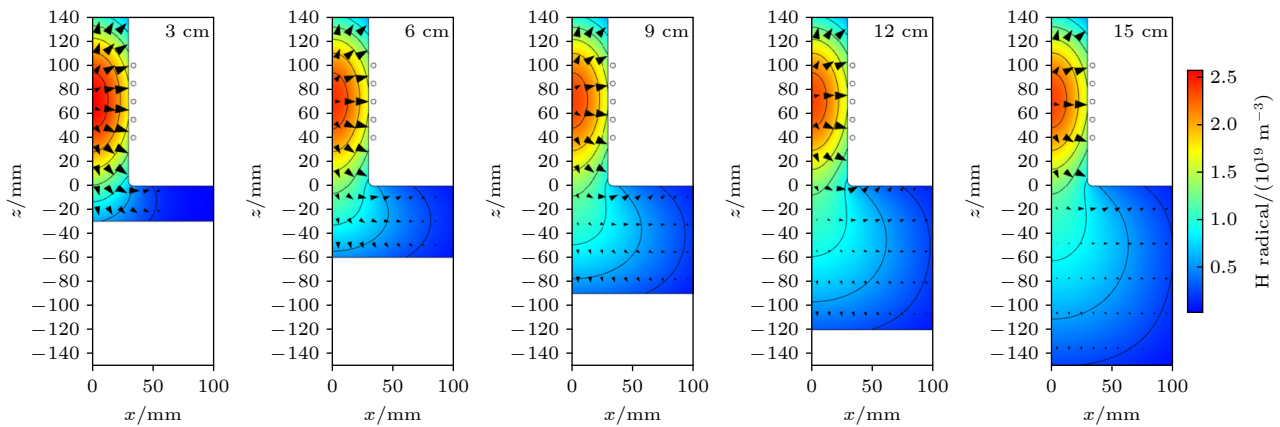


图 11 输入功率 4 kW、工作气压 0.6 Pa、不同后辉光区长度下, 氢自由基的二维分布, 箭头表示氢自由基通量

Fig. 11. Two-dimensional distribution of hydrogen radicals at an input power of 4 kW and a discharge pressure of 0.6 Pa for afterglow region lengths, where arrows indicate the flux of hydrogen radicals.

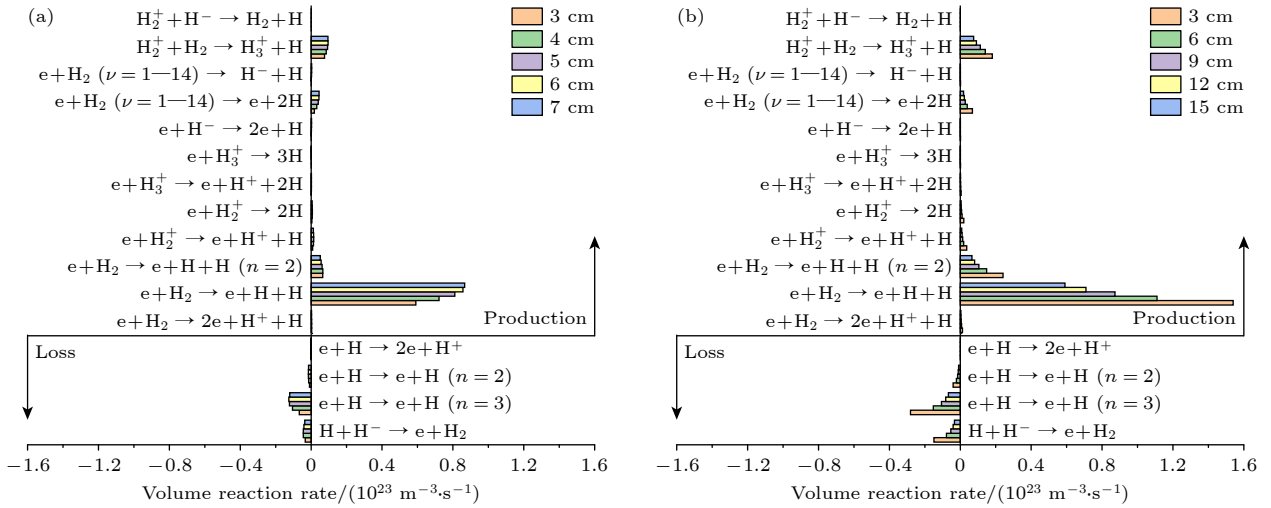


图 12 不同几何参数对氢自由基产生速率和体损失速率的影响 (a) 驱动区半径; (b) 后辉光区长度

Fig. 12. Dependence of the volumetric production and loss rates of hydrogen radicals on geometric parameters: (a) Driver region radius; (b) afterglow region length.

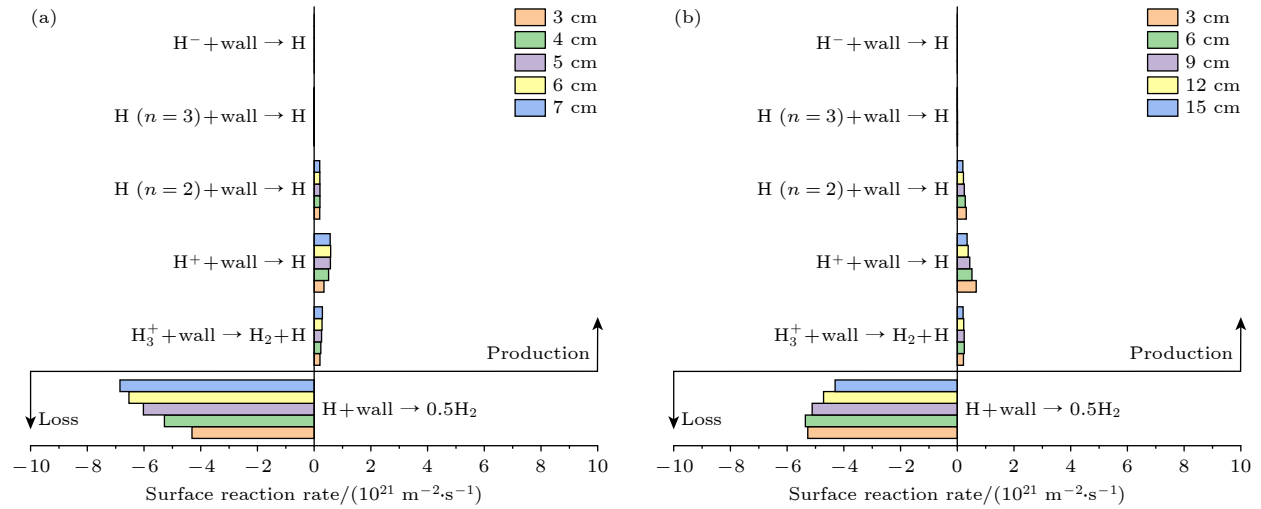


图 13 不同几何参数对氢自由基表面产生速率和表面损失速率的影响 (a) 驱动区半径; (b) 后辉光区长度

Fig. 13. Dependence of the surface production and loss rates of hydrogen radicals on geometric parameters: (a) Driver region radius; (b) afterglow region length.

损耗, 因此后辉光区电子温度逐渐降低. 这表明增大后辉光区长度, 可以有效冷却电子.

图 10(e), (f) 给出了不同后辉光区长度下氢自由基的横向和轴向分布. 与电子分布类似, 随着后辉光区长度的增大, 氢自由基密度略微下降, 直至  $h = 9$  cm 时达到最小值. 在后辉光区, 情况与电子有所不同. 从轴向分布可以看出, 增大后辉光区长度, 可以减缓氢自由基的下降速率. 图 11 给出了不同后辉光区长度下氢自由基的二维分布. 结果表明, 随着后辉光区长度的增大, 驱动区氢自由基密度逐渐降低, 后辉光区氢自由基密度逐渐上升, 氢自由基的通量逐渐下降, 但横向通量逐渐趋于均

匀. 这表明增大后辉光区长度有利于改善后辉光区氢自由基的横向均匀性.

最后我们计算了不同几何参数下氢自由基的源项和损失项. 图 12 给出了不同几何参数下, 氢自由基的体产生速率和体损失速率. 从图中可以看出, 电子与氢分子之间的解离反应速率随着驱动区半径的增大而逐渐提高, 但却随着后辉光区长度的增大而逐渐降低. 这可能是由于后辉光区长度的增大降低了电子温度导致的. 氢自由基的体损失速率也有着类似的规律, 但在数值上损失速率要远低于产生速率. 图 13 给出了不同几何参数下, 氢自由基的表面产生速率和表面损失速率. 结果表明, 随着

驱动区半径的增大, 表面损失速率逐渐升高. 这是因为增大驱动区半径会使得器壁表面积迅速增大, 从而提高了表面损失. 然而, 随着后辉光区长度的增大, 氢自由基的表面损失却逐渐降低. 这可能是因为增大后辉光区长度使得氢自由基向器壁的通量降低, 从而减小了表面损失. 以上结果表明, 在放电参数固定时, 适当增大几何参数有利于在后辉光区产生较高密度且较为均匀的氢自由基.

## 4 结 论

本文通过模拟计算的方法, 研究了放电参数和几何参数对射频感应耦合远端氢等离子体源特性的影响. 结果发现, 在低气压 RPS 中, 输入功率对等离子体的影响主要体现在电子密度上, 而对电子温度几乎无影响. 在固定几何参数下, 增大输入功率和工作气压可以增强氢自由基的扩散通量, 但是增大工作气压会使氢自由基向驱动区收缩, 从而导致空间后辉光区中的氢自由基密度下降. 通过计算氢自由基的源项和损失项, 我们发现氢自由基主要由电子与氢分子发生解离反应生成, 并通过与电子的激发反应、与负氢离子的关联解离以及壁复合反应而损耗. 氢自由基的产生速率和损失速率均随着放电参数的增大而逐渐增大, 但从数值上看, 氢自由基的产生速率要远大于损失速率. 在固定放电参数下, 增大驱动区半径会明显降低电子温度, 但会提高氢自由基密度和扩散通量. 后辉光区长度对驱动区等离子体的影响较小, 但随着长度的增大, 后辉光区电子温度会逐渐降低. 这表明增大后辉光区长度, 可以有效冷却电子. 此外, 增大后辉光区长度还有利于改善后辉光区氢自由基的横向均匀性.

## 参考文献

[1] Zhang Y R, Gao F, Wang Y N 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 095206 (in Chinese) [张钰如, 高飞, 王友年 2021 *物理学报* **70** 095206]  
 [2] Zhao M L, Xing S Y, Tang W, Zhang Y R, Gao F, Wang Y N 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 215201 [赵明亮, 邢思雨, 唐雯, 张钰如, 高飞, 王友年 2024 *物理学报* **73** 215201]  
 [3] Yamada Y, Yamada T, Tasaka S, Inagaki N 1996 *Macromolecules* **29** 4331  
 [4] Lucovsky G, Richard P D, Tsu D V, Lin S Y, Markunas R J 1986 *J. Vac. Sci. Technol. A* **4** 681  
 [5] Guo Y N, Ong T M B, Xu S Y 2019 *Appl. Surf. Sci.* **487** 146  
 [6] Pae J Y, Medwal R, Vas J V, Matham M V, Rawat R S 2019 *J. Vac. Sci. Technol. B* **37** 041201  
 [7] Kim B, Lee N, Lee J, Park T, Park H, Kim Y, Jin C, Lee D,

Kim H, Jeon H 2021 *Appl. Surf. Sci.* **541** 148482  
 [8] Claflin B, Grzybowski G J, Ware M E, Zollner S, Kiefer A M 2020 *Front. Mater.* **7** 44  
 [9] Erwine P, Camille P E, Laurène Y, Gaspard T, Sylvain D 2019 *J. Vac. Sci. Technol. A* **37** 040601  
 [10] Volynets V, Barsukov Y, Kim G, Jung J E, Nam S K, Han K, Huang S, Kushner M J 2020 *J. Vac. Sci. Technol. A* **38** 023007  
 [11] Huang S, Volynets V, Hamilton J R, Nam S K, Song I C, Lu S Q, Tennyson J, Kushner M J 2018 *J. Vac. Sci. Technol. A* **36** 021305  
 [12] Yang K C, Shin Y J, Tak H W, Lee W, Lee S B, Yeom G Y 2019 *Vacuum* **168** 108802  
 [13] Wang P Y, Xing S Y, Han D M, Zhang Y R, Li Y, Zhou C, Gao F, Wang Y N 2024 *Plasma Sci. Technol.* **26** 125401  
 [14] Li H, Liu Y, Zhang Y R, Gao F, Wang Y N 2017 *J. Appl. Phys.* **121** 233302  
 [15] Tsankov T, Kiss'ovski Z, Djermanova N, Kolev S 2006 *Plasma Process. Polym.* **3** 151  
 [16] Gangoli S P, Johnson A D, Fridman A A, Pearce R V, Gutsol A F, Dolgopolsky A 2007 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40** 5140  
 [17] Zhang A X, Lee M Y, Lee H W, Moon H J, Chung C W 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 025009  
 [18] Van Herpen M M J W, Klunder D J W, Soer W A, Moors R, Banine V 2010 *Chem. Phys. Lett.* **484** 197  
 [19] Pachecka M, Sturm J M, van de Kruijs R W E, Lee C J, Bijkerk F 2016 *AIP Adv.* **6** 075222  
 [20] Braginsky O V, Kovalev A S, Lopaev D V, Malykhin E M, Rakhimova T V, Rakhimov A T, Vasilieva A N, Zyryanov S M, Koshelev K N, Krivtsov V M, van Kaampen M, Glushkov D 2012 *J. Appl. Phys.* **111** 093304  
 [21] Maffini A, Uccello A, Dellasega D, Passoni M 2016 *Nucl. Fusion* **56** 086008  
 [22] Sporre J, Lofgren R E, Ruzic D N, Khodykin O V, Myers D W 2011 *Proc. SPIE Extreme Ultraviolet (EUV) Lithography II* 796929  
 [23] Wang S S, Ye Z B, Wu A D, Gao T, Wei J J, Gou F J 2025 *J. Alloy. Compd.* **1030** 180912  
 [24] Lieberman M A, Lichtenberg A J 2005 *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing* (2nd Ed.) (New York: Wiley)  
 [25] Xing S Y, Gao F, Zhang Y R, Wang Y J, Lei G J, Wang Y N 2023 *Plasma Sci. Technol.* **25** 105601  
 [26] Lishev S T, Shivarova A P, Tarnev K H 2011 *J. Plasma Phys.* **77** 469  
 [27] Lishev S, Schiesko L, Wunderlich D, Wimmer C, Fantz U 2018 *Plasma Sources Sci. Technol.* **27** 125008  
 [28] Smirnov B M 2015 *Theory of Gas Discharge Plasma* (Cham: Springer International Publishing)  
 [29] Zhang Y, Yang W, Lyu X Y, Gao F, Wang Y N 2025 *J. Appl. Phys.* **138** 023301.  
 [30] Xing S Y, Gao F, Zhang Y R, Zhao M, Lei G J, Wang Y N 2024 *Nucl. Fusion* **64** 056015  
 [31] Petrov G M, Giuliani J L 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 619  
 [32] Janev R K, Reiter D, Samm U 2003 *Collision Processes in Low-Temperature Hydrogen Plasma* (Jülich: Forschungszentrum Zentralbibliothek)  
 [33] Yoon J S, Song M Y, Han J M, Hwang S H, Chang W S, Lee B j, Itikawa Y 2008 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **37** 913  
 [34] Janev R K, Langer W D, Jr. Evans K 1989 *Elementary Processes in Hydrogen-Helium Plasmas: Cross Sections and Reaction Rate Coefficients* (Berlin: Springer)  
 [35] Hjartarson A T, Thorsteinsson E G, Gudmundsson J T 2010

- Plasma Sources Sci. Technol.* **19** 065008
- [36] Celiberto R, Janev R K, Laricchiuta A, Capitelli M, Wadehra J M, Atoms D E 2001 *At. Data Nucl. Data Tables* **77** 161
- [37] Celiberto R, Capitelli M, Laricchiuta A 2002 *Phys. Scr. T* **96** 32
- [38] Bowers M T, Elleman D D, King J 1969 *J. Chem. Phys.* **50** 4787
- [39] Matveyev A A, Silakov V P 1995 *Plasma Sources Sci. Technol.* **4** 606
- [40] Lee C, Lieberman M A 1995 *J. Vac. Sci. Technol. A* **13** 368
- [41] Booth J P, Sadeghi N 1991 *J. Appl. Phys.* **70** 611
- [42] Gorse C, Capitelli M, Bacal M, Bretagne J, Laganà A 1987 *Chem. Phys.* **117** 177
- [43] Averkin S N, Gatsonis N A, Olson L 2015 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **43** 1926
- [44] Hiskes J R, Karo A M 1989 *Appl. Phys. Lett.* **54** 508
- [45] Boeuf J P, Hagelaar G J M, Sarrailli P, Fubiani G, Kohen N 2011 *Plasma Sources Sci. Technol.* **20** 015002

## Two-dimensional fluid simulation of a radio-frequency inductively coupled remote hydrogen plasma source\*

ZHANG Yu LUO Qian HUANG Gaohuang GAO Fei<sup>†</sup> WANG Younian

(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 4 September 2025; revised manuscript received 14 October 2025 )

### Abstract

Due to its unique physical and chemical properties, hydrogen plasma is the preferred gas for cleaning reaction chambers. To better understand the transport and diffusion mechanism in hydrogen plasma, this work presents a two-dimensional fluid model by using COMSOL simulation software, and systematically investigates the characteristics of a radio-frequency inductively coupled remote hydrogen plasma source under varying discharge and geometric parameters. The results show that input power primarily affects electron density rather than electron temperature. This phenomenon may result from the balancing mechanism between the ionization rate and the loss rate in steady state discharges. The pressure has an opposite effect on the plasma in the driven region compared with that in the spatial afterglow region. As the pressure rises, the electron density in the driven region increases gradually, while the electron density in the spatial afterglow region decreases gradually. This may be due to the shift from non-local to local electron kinetics as the pressure rises. Increasing input power effectively enhances hydrogen radical density and diffusion flux, indicating that high power facilitates the transport of hydrogen radicals into the spatial afterglow region. However, elevating operating pressure has a similar effect while reducing hydrogen radical density in the spatial afterglow region. Furthermore, under fixed discharge conditions, increasing geometric parameters appropriately promotes the generation of higher and more uniform hydrogen radical densities within the afterglow region.

**Keywords:** inductively coupled plasma, remote plasma source, 2-dimensional fluid modeling, hydrogen radicals

**DOI:** 10.7498/aps.75.20251202

**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251202

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12075049) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Ministry of Education of China (Grant No. DUT25Z2707).

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