

电非对称双频容性耦合 $\text{CF}_4/\text{Ar}$ 放电电极间距对放电模式和刻蚀剖面的影响

董婉 徐海文 戴忠玲 宋远红 王友年

Gap length effect on discharge mode and etching profiles in asymmetric dual frequency capacitive  $\text{CF}_4/\text{Ar}$  discharges

Dong Wan Xu Hai-Wen Dai Zhong-Ling Song Yuan-Hong Wang You-Nian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 095213 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210546

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210546>

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

相位角对容性耦合电非对称放电特性的影响

Effect of phase angle on plasma characteristics in electrically asymmetric capacitive discharge

物理学报. 2018, 67(22): 225203 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181400>

旋转滑动弧放电等离子体滑动放电模式的实验研究

Experimental study on gliding discharge mode of rotating gliding arc discharge plasma

物理学报. 2020, 69(19): 195203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200672>

放电参数对爆燃模式下同轴枪强流脉冲放电等离子体的影响

Influence of discharge parameters on pulsed discharge of coaxial gun in deflagration mode

物理学报. 2019, 68(10): 105203 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190218>

非对称条形纳磁体的铁磁共振频率和自旋波模式

Ferromagnetic resonance frequency and spin wave mode of asymmetric strip nanomagnet

物理学报. 2020, 69(5): 057501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191622>

甚高频激发的容性耦合 $\text{Ar}+\text{O}_2$ 等离子体电负特性研究

Electronegativity of capacitively coupled  $\text{Ar}+\text{O}_2$  plasma excited at very high frequency

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

氩氦射频容性放电发射光谱分析

Emission spectral diagnosis of argon-helium plasma produced by radio frequency capacitive discharge

物理学报. 2018, 67(14): 145202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180274>

专题: 等离子体物理及其材料处理

# 电非对称双频容性耦合 $\text{CF}_4/\text{Ar}$ 放电电极间距对放电模式和刻蚀剖面的影响\*

董婉 徐海文 戴忠玲 宋远红<sup>†</sup> 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)

(2021年3月22日收到; 2021年4月24日收到修改稿)

容性耦合等离子体技术广泛应用于半导体工业、生物医药、环境等领域, 是不可替代的核心处理技术. 基于电非对称双频源驱动的容性耦合等离子体因其可以实现离子能量和离子通量的相对独立调控而一直被寄予厚望. 本文采用一维流体耦合蒙特卡罗模型和刻蚀槽模型, 对基于电非对称效应的双频容性耦合  $\text{CF}_4/\text{Ar}$  混合气体放电进行了模拟研究. 研究表明, 随着电极间距的增大, 自偏压的绝对值和电负性均减小. 此外, 由于放电区域变大但边界损失保持不变, 会导致外部馈入功率显著增加和等离子体密度增大. 本文采用  $\text{CF}_4/\text{Ar}$  混合气体, 其中 Ar 含量很高, 气体电负性不是很高, 因此放电模式在不同的电极间距下都是  $\alpha$  模式和双极扩散模式的共同作用. 在电极间距逐渐变大的过程中, 因为自偏压的变化导致离子能量分布中最大离子能量减小并且离子能量展宽变窄, 功率极板处离子通量的变化不明显, 中性基团通量的增大十分显著, 这些变化最终导致相同时间内的刻蚀速率和形貌发生改变. 所以, 在未来研究中, 不仅离子能量和通量的独立控制, 优化离子通量和中性基团通量的协同作用达到调节刻蚀速率、改善刻蚀形貌同样是重要研究内容.

**关键词:** 电非对称效应, 离子和中性基团的协同作用, 电极间距, 放电模式

**PACS:** 52.65.-y, 52.25.Jm, 52.77.Bn

**DOI:** 10.7498/aps.70.20210546

## 1 引言

等离子体刻蚀相比于传统的湿法刻蚀具有各向异性的特性使其已经成为芯片制造中不可缺少的关键步骤<sup>[1,2]</sup>, 可以实现对多晶硅 (Si)<sup>[3]</sup>、氮化硅 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ )<sup>[4]</sup>、氧化硅 ( $\text{SiO}_2$ )<sup>[5]</sup> 和金属材料<sup>[6,7]</sup> 的刻蚀. 随着芯片特征尺寸的缩小, 人们对等离子体刻蚀技术提出了更高的要求, 也开展了相应的深入研究. 例如: Huang 等<sup>[8]</sup> 模拟研究了  $\text{Ar}/\text{C}_4\text{F}_8/\text{O}_2$  容性放电中深宽比近 100:1 的介质刻蚀; 为实现准原子层刻蚀, Takayoshi 等<sup>[9]</sup> 研究了等离子体和材料相互作用的自限制性, 以期获得接近理想的等离子体刻蚀速率和精细刻蚀.

在等离子体刻蚀中, 离子和中性基团的协同作用起着至关重要的作用<sup>[10,11]</sup>. 如果只使用准直的高

子轰击去除目标材料, 效率会非常低<sup>[12]</sup>. 例如在碳氟化合物气体放电中产生诸如  $\text{CF}_2$  之类的中性基团, 它们与  $\text{SiO}_2$  表面反应会生成钝化层, 从而降低  $\text{SiO}_2$  的去除阈值, 与离子轰击直接去除  $\text{SiO}_2$  相比, 刻蚀率更高<sup>[13,14]</sup>. 然而, 在等离子体刻蚀中, 如果产生过多  $\text{CF}_2$  基团还可能彼此结合形成聚合物并积累在钝化层之上<sup>[15,16]</sup>, 离子首先要去除聚合物, 然后才能刻蚀钝化层, 实现去除目标材料的目的, 所以聚合物的堆积会影响刻蚀速率. 因此, 很多的研究工作<sup>[17-24]</sup> 会关注该领域科学问题, 特别是关心其中离子和中性基团的协同作用. 针对碳氟气体刻蚀 Si 材料, Winters 等<sup>[19]</sup> 在实验上不仅详细研究了离子在刻蚀中的作用, 还发现中性基团和表面材料 (Si) 的结合物有利于加快刻蚀速度, 并

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12020101005, 11975067) 资助的课题.

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

且强调 F 基团在其中的重要作用. 在  $\text{CHF}_3/\text{O}_2$  等离子体放电中研究还发现, 聚合物薄膜的存在会减少反应离子刻蚀硅基片的损伤<sup>[21]</sup>, 并且  $\text{O}_2$  含量的多少, 影响着薄膜厚度, 两者呈现反比关系. Capps 等<sup>[22]</sup> 考虑了  $\text{CHF}_3$  等离子体中离子轰击对  $\text{CF}_2$  生成的贡献, 研究了  $\text{CF}_2$  自由基与表面相互作用以及  $\text{CF}_2$  表面生成机理. 此外, 在  $\text{CF}_4$  气体稳态和脉冲调制感应耦合等离子体放电实验中给出了空间分辨的 CF 和  $\text{CF}_2$  轴向密度分布, 进而研究了它们的生成和损失机理<sup>[24]</sup>. 近年来, 离子和中性基团在原子层刻蚀 (ALE) 中的协同作用也受到关注<sup>[25,26]</sup>. 在 ALE 中协同作用使用公式  $S_y = \frac{EPC - (\alpha + \beta)}{EPC}$  来表示<sup>[26]</sup>, 其中  $EPC = 1$  表示理想 ALE 一个周期刻蚀的原子层数;  $\alpha, \beta$  表示只在钝化、刻蚀阶段的放电条件下对材料进行刻蚀得出的平均一个 ALE 周期内的刻蚀速率.  $\alpha$  和  $\beta$  值越小说明自限制性越好, 公式得到的  $S_y$  值就越大, 也就说明离子和中性的协同作用越好.

尽管研究人员对离子和中性基团的协同作用进行了大量研究, 但在电非对称 (EAE) 波形作用下的研究很少. EAE 理论是 Heil 等<sup>[27]</sup> 在 2008 年提出的, 他们采用一个基频电源和其偶数次谐波频率的电源共同驱动放电的方式, 通过调节电源之间的相位差, 有效调节驱动电极自偏压, 从而达到离子能量和通量独立控制的目的. 目前, 关于 EAE 的大多数研究都集中在离子能量和离子通量的解耦<sup>[28,29]</sup>, 改善等离子体均匀性<sup>[30,31]</sup> 和加热模式的分析<sup>[32,33]</sup> 这几个方面. 例如, Zhang 等<sup>[31]</sup> 使用电非对称电压波形在  $\text{H}_2$  等离子体中通过调节相位角来优化等离子体均匀性, 这在一定程度上说明使用非对称电压波形可以改善电磁效应导致的等离子体不均匀. 由于 EAE 可能会在下一代刻蚀工艺中发挥至关重要作用, 因此研究 EAE 作用下中性基团和离子的协同作用同样具有意义. 本文使用非对称双频电压波形通过调整电极间距来控制放电和电子加热过程, 研究离子和中性粒子的协同作用, 优化中性基团覆盖度及刻蚀速率.

## 2 模型介绍

本文的计算模型按照计算尺度分成两部分, 包括 cm 尺度的放电模块, nm 尺度刻蚀槽模块. 放电

模块主要是由一维流体以及电子和离子蒙特卡罗 (MC) 组成; 刻蚀槽模块主要由表面反应模块、离子跟踪模块、充电效应模块等组成. 下面将详细介绍各个模块及其作用.

### 2.1 放电模块

本文采用一维流体模型耦合泊松方程、电子和离子 MC 模型. 流体模型描述电子、离子及中性基团的输运过程, 包括连续性方程、动量平衡方程、能量方程. 电子的惯性项可以忽略, 使用迁移扩散近似来描述电子在电场和扩散作用下的通量变化情况. 而气压较低的情况下, 离子的惯性项通常不能忽略, 所以离子的输运通常使用全动量方程进行描述. 中性粒子的输运基于连续性方程和扩散方程进行描述. 等离子体中的电势、电场分布可以用泊松方程获得

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^2} = -\frac{e}{\epsilon_0} (n_+ - n_e - n_-), \quad (1)$$

其中  $n_e$  为电子密度,  $n_+$  为正离子密度,  $n_-$  为负离子密度,  $\Phi$  为电势,  $\epsilon_0$  为真空介电常数,  $e$  表示电荷.

离子作为冷流体来近似, 所以离子的温度为常数, 一般取和室温一致. 电子温度和电子能量使用电子 MC 模型<sup>[34]</sup> 进行计算, 其中电子温度通常与电子无规热速度有关, 而电子能量是根据电子热速度和定向速度之和计算得到的. 在该模型中, 电子将在全计算区域中被追踪, 考虑了电子与中性基团之间的碰撞, 包括弹性碰撞、电离碰撞、激发碰撞、解离附着碰撞共 20 个反应, 碰撞截面可参阅文献<sup>[35–37]</sup>. 电子在电场中被加速, 电子和中性基团发生碰撞之后, 电子的能量、速度及位置被更新, 通过统计可以给出电子能量分布函数, 并计算以下积分获得各种反应的速率系数

$$k_j(z, t) = \int_0^\infty f(\epsilon_e, z, t) \left( \frac{2\epsilon_e}{m_e} \right)^{1/2} \sigma_j(\epsilon_e) d\epsilon_e, \quad (2)$$

其中, 下角标  $j$ ,  $f(\epsilon_e, z, t)$ ,  $\sigma_j(\epsilon_e)$ ,  $\epsilon_e$ ,  $(2\epsilon_e/m_e)^{1/2}$  分别表示反应类型、电子能量分布函数、反应的碰撞截面、电子能量以及电子速度 (电子热速度和电子定向速度之和).

本工作模块之间的耦合描述如下: 通过流体模型计算电场分布并代入电子 MC 模型, 每个周期含时计算获得反应速率系数和电子温度, 据此在流

体模型中计算各种粒子输运过程. 整个模型将运行近 3 万个基频周期直到达到稳定. 在该模型中考虑了 9 种带电粒子、6 种中性基团, 涉及 50 多种气相反应, 考虑的带电粒子和中性粒子包括: 电子,  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{CF}_3^+$ ,  $\text{CF}_2^+$ ,  $\text{CF}^+$ ,  $\text{F}^+$ ,  $\text{C}^+$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{CF}_3^-$ ,  $\text{Ar}^*$ ,  $\text{CF}_3$ ,  $\text{CF}_2$ ,  $\text{CF}$ ,  $\text{F}$ ,  $\text{F}_2$ , 除了电子和中性基团的碰撞反应, 还考虑了 30 多种电子与离子、离子与离子、离子与中性基团之间的气相化学反应, 反应速率系数具体可参考文献 [38, 39].

离子 MC 模块的计算区域只在鞘层附近, 与电子 MC 模型类似, 我们在鞘层边界处撒代表某种离子的宏粒子, 跟踪离子在鞘层电场中的运动, 并在碰撞后更新速度和位置, 直到离子达到电极边界, 统计粒子的能量和角度分布函数. 整个过程中需要跟踪离子在鞘层电场中的运动, 并在碰撞后更新速度和位置. 离子与背景气体之间碰撞包括电荷交换碰撞和弹性碰撞. 由于容性耦合等离子体的解离率比较低, 因此可以忽略离子与除背景气体 ( $\text{Ar}$  和  $\text{CF}_4$  气体) 以外的其他粒子之间的碰撞. 其中  $\text{Ar}^+$  离子和背景气体  $\text{Ar}$  的电荷交换碰撞截面  $\sigma_{\text{cx}}$  和弹性碰撞截面  $\sigma_{\text{el}}$  [2] 分别为

$$\sigma_{\text{cx}} = 57.2(1.0 - 0.0577\ln\varepsilon)^2, \quad (3)$$

$$\sigma_{\text{el}} = 48.05(1.0 - 0.563\ln\varepsilon)^2, \quad (4)$$

其中  $\varepsilon$  表示离子能量.  $\text{Ar}^+$  离子和  $\text{CF}_4$  的碰撞以及其他离子和中性的碰撞截面将使用郎之万碰撞截面确定 [2].

射频容性耦合等离子体通常通过恒定电压源或者恒定电流源驱动放电. 在模拟计算中如果采用电压源, 电压波形一般作为电势的边界条件. 而对于功率源, 则需先假设一个给定电压幅值, 利用  $p = \frac{1}{T} \int_0^T V_{\text{Total}}(t) I(t) dt$  (其中  $V_{\text{Total}}(t)$  是功率源极板施加的电压波形和自偏压之和, 而  $I(t)$  是在极板位置处位移电流、传导电流之和,  $T$  为一个基频周期) 计算实际沉积功率, 再调整电压反复迭代, 直到找到接近要求功率的电压幅值. 本文采用非对称双频电压源波形,  $x=0$  是功率电极,  $x=d$  是接地电极, 电势在功率电极和接地电极的边界条件分别是  $V(t)|_{x=0} = \phi_{\text{rf}} \cos(2\pi ft) + \phi_{\text{hf}} \cos(4\pi ft)$  和  $V(t)|_{x=d} = 0$ , 其中  $\phi_{\text{rf}}$  和  $\phi_{\text{hf}}$  分别表示基频、倍频电压, 功率极板对应的电压波形如图 1 所示. 电子密度在边界处遵循玻尔兹曼分布  $n_e = n_{e0}(-\Phi/T_e)$ ,

电子通量满足  $\Gamma_{e,x}|_{x=0,d} = \mp \frac{1}{4} n_e u_{\text{th},e} (1 - \Theta) - \gamma \Gamma_i|_{x=0,d}$ , 其中  $n_{e0}$ ,  $T_e$  表示该处的电子密度、电子温度,  $\Theta = 0.25$  为电子在电极上的反射系数,  $u_{\text{th},e} = \sqrt{\frac{8kT_e}{\pi m_e}}$  是电子热速度,  $\gamma$  是二次电子发射系数. 二次电子发射系数与极板处离子能量相关, 根据文献 [35] 给出. 电子热传导项在边界被忽略, 只考虑对流项  $\Gamma_w|_{x=0,d} = \frac{5}{2} T_e \Gamma_e|_{x=0,d}$ . 正、负离子密度以及通量的边界条件均考虑为第二类边界条件. 中性基团的边界条件设置成  $\Gamma_n = \frac{s_j}{2(2-s_j)} n_a u_{\text{th},n}$ , 其中  $n_a$ ,  $s_j$  和  $u_{\text{th},n}$  是中性基团密度、黏滞系数和中性基团热速度.

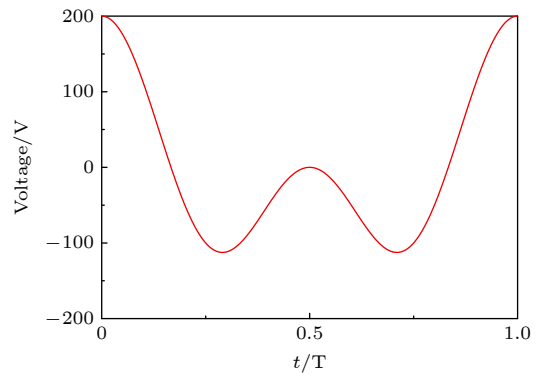


图 1 非对称双频电压波形图

Fig. 1. Asymmetrical dual-frequency voltage waveform used in this work.

利用流平衡条件 [32] 计算非对称放电在功率极板附近形成的自偏压值  $V_{\text{dc}}$ , 即: 当  $Q_n/Q_p > 1$ ,  $V_{\text{dc}} = V'_{\text{dc}} - \Delta V$ ;  $Q_n/Q_p < 1$ ,  $V_{\text{dc}} = V'_{\text{dc}} + \Delta V$ , 其中  $Q_p$ ,  $Q_n$ ,  $V'_{\text{dc}}$  表示基频周期内到达功率极板的正、负电荷量以及上一个基频周期的自偏压值,  $\Delta V$  为一个小量一般取 0.01 V, 不断迭代直到  $V_{\text{dc}}$  的值基本稳定, 保证正、负电荷量基本相等, 进而最终实现流平衡.

## 2.2 刻蚀槽模块

在刻蚀槽模块中, 采用元胞模块, 耦合表面 MC 模块及粒子追踪模块来计算获取刻蚀剖面. 从放电模型获得的参数如离子通量、中性基团通量和离子能量角度分布 (IEAD), 被输入到刻蚀槽模型中. 离子和中性粒子被视为伪粒子. 通过 IEAD 中随机抽样获得离子的速度和角度, 中性基团的速度、角度根据麦克斯韦分布函数随机抽取得到. 跟



踪每个伪粒子所经历的各种碰撞过程,直到其到达某个元胞.此时,表面反应的是否发生取决于反应发生概率和阈值,由表面 MC 模型决定.如果该粒子满足条件,则此处的元胞属性将发生改变.每进行一步,边界的元胞属性都会有所更新.本模块包括的近 200 个表面反应均引用自文献 [40],其中包括化学刻蚀、物理刻蚀和钝化反应等等.此外,如果离子入射角度小于  $60^\circ$ ,则认为它不被反射.但是,其动能小于 30 eV 时,即使入射角较小,也会发生离子反射.

充电效应导致电力线偏转,会影响到离子和电子的运动.在刻蚀槽模型中,使用撒宏粒子的方法来计算充电效应,宏粒子带正电荷表示正离子,带负电荷表示电子,考虑到容性耦合等离子体的电子和正离子在一个周期内到达极板上的通量是一致的,所以设定电子和正离子的宏粒子个数一致.宏粒子在电场的作用下被跟踪,得到离子和电子在材料表面的分布,之后使用拉普拉斯方程计算电势的

分布.本文将元胞尺寸设置为 0.20 nm,每个元胞代表一个原子,刻蚀槽口设置为 50 个元胞,也就是槽口设置为 10 nm,最上面 50 个元胞是空的,向下依次为 50 个元胞 (10 nm) 的光刻胶,以及高度是 200 个元胞 (40 nm) 的刻蚀材料  $\text{SiO}_2$ .

### 3 结果与讨论

本文所使用的双频 EAE 驱动电压波形为  $V(t)|_{x=0} = \phi_{\text{lf}} \cos(2\pi ft) + \phi_{\text{hf}} \cos(4\pi ft)$ ,其中基频频率  $f = 13.56$  MHz,高低频电压都是 100 V,放电气体是  $\text{CF}_4/\text{Ar} = 10/90$ ,气压为 50 mTorr ( $1 \text{ Torr} = 1.33322 \times 10^2 \text{ Pa}$ ),电极间距分别选取 3, 4, 5 cm.为了理解电极间距变化对等离子体的影响,图 2 和图 3 分别给出了不同电极间距周期平均的主要离子包括  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{CF}_3^+$ ,  $\text{CF}_2^+$ ,  $\text{CF}_3^-$ ,  $\text{F}^-$  的密度分布及时空演化的电子密度分布图.虽然  $\text{CF}_4$  气体只占 10%,等离子体仍然表现出明显的电负性气体的放电特征,即体区正负离子密度峰值远

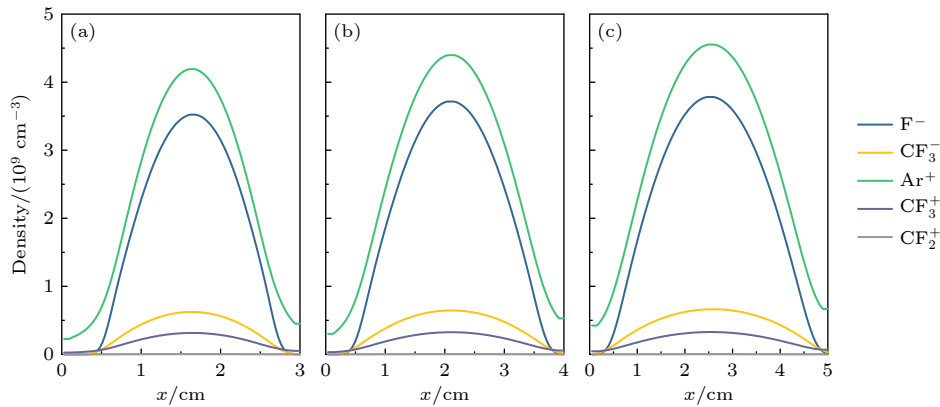


图 2 电极间距为 (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm 下主要离子  $\text{F}^-$ ,  $\text{CF}_3^-$ ,  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{CF}_3^+$ ,  $\text{CF}_2^+$  的周期平均密度

Fig. 2. Period averaged densities of  $\text{F}^-$ ,  $\text{CF}_3^-$ ,  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{CF}_3^+$ , and  $\text{CF}_2^+$  for different gap distance of (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm.

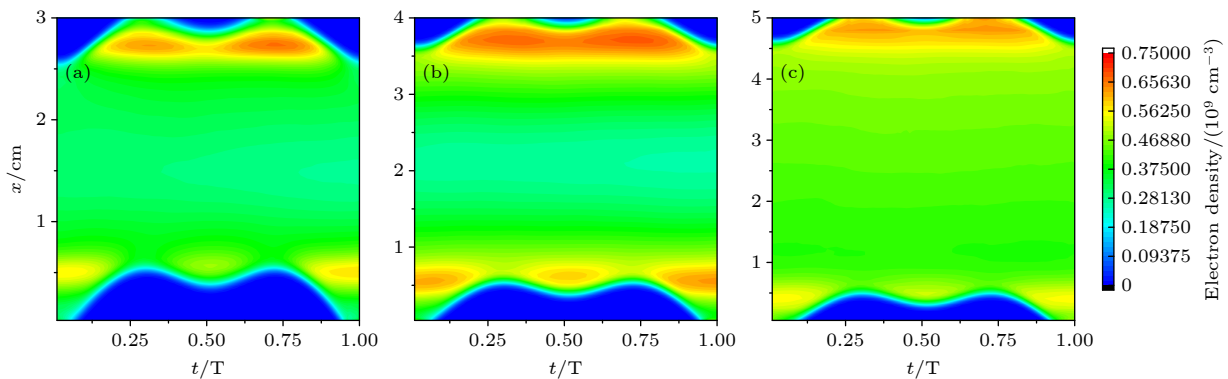


图 3 在不同电极间距 (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm 下时空演化的电子密度

Fig. 3. Spatio-temporal evolution of electron density for different gap distance of (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm.

高于电子密度. 受鞘层电场作用负离子被限制在体区, 电子密度在鞘层边界会有略高的峰值. 随着间距增大, 各种离子密度、电子密度在体区都有所增加, 但是各种离子密度从最高到最低的变化顺序没有改变, 依然是  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{CF}_3^-$ ,  $\text{CF}_3^+$ ,  $\text{CF}_2^+$ , 所以主要正负离子分别是  $\text{Ar}^+$ 和  $\text{F}^-$ . 而且, 通过计算, 在电极间距为 3, 4, 5 cm 时, 馈入功率密度分别是 174.5, 199.3, 243.03  $\text{W}/\text{m}^2$ . 随着有效放电区域增大, 带电粒子特别是电子在体区参与的与放电有关各种碰撞的概率更大, 在边界上被损失掉的概率变小, 等离子体的产生得到提高, 所以会导致电子密度、沉积功率的提高. 此外, 由于在电非对称电压波形的驱动下, 功率电极附近的电子密度和离子密度要低于接地电极的密度, 与非对称放电不同的加热模式和鞘层特性有关.

图 4 给出了时空平均的放电电负性 (黑色点线) 和自偏压 (蓝色点线) 随着电极间距的变化. 电负性  $\beta = (D_{\text{F}^-} + D_{\text{CF}_3^-})/D_{\text{e}^-}$ , 其中,  $D_{\text{F}^-}$ ,  $D_{\text{CF}_3^-}$ ,  $D_{\text{e}^-}$  分别表示  $\text{F}^-$ ,  $\text{CF}_3^-$ , 电子密度的基频周期和空间平均值, 自偏压计算方法如放电模块介绍. 可以看出随着电极间距的增加电负性及自偏压的绝对值都呈现减小的趋势. 这里我们是以电压源驱动容性放电, 当极板间距增大时, 根据图 2 和图 3, 等离子体密度增加, 等离子体中所沉积的功率随之增大, 电子会获得更多的能量参与电离, 电负性自然会有所下降. 根据解析模型的研究结果<sup>[33]</sup>, 自偏压满足方程  $\eta = -\frac{\tilde{\phi}_{\max} + \varepsilon\tilde{\phi}_{\min}}{1 + \varepsilon} + \frac{\phi_{\text{sp}}^f + \varepsilon\phi_{\text{sg}}^f}{1 + \varepsilon} + \frac{\phi_{\max}^b + \varepsilon\phi_{\min}^b}{1 + \varepsilon}$ , 其中  $\tilde{\phi}_{\max}$ ,  $\tilde{\phi}_{\min}$ ,  $\phi_{\text{sp}}^f$ ,  $\phi_{\text{sg}}^f$ ,  $\phi_{\max}^b$ ,  $\phi_{\min}^b$ ,  $\varepsilon$  分别表示施加电压波形的最大值和最小值、功率极板和接地极板悬浮电势、体区电势的最大值和最小值及对称参数. 通常, 鞘层的悬浮电势基本可以忽略<sup>[32]</sup>, 所以可以不考虑公式中  $(\phi_{\text{sp}}^f + \varepsilon\phi_{\text{sg}}^f)/(1 + \varepsilon)$  对自偏压的贡献. 对称参数  $\varepsilon$  近似为  $(\bar{n}_{\text{sp}})/\bar{n}_{\text{sg}}$ , 其中  $\bar{n}_{\text{sp}}$  和  $\bar{n}_{\text{sg}}$  分别为功率电极和接地电极上的平均有效电荷密度<sup>[32]</sup>, 计算得到  $\varepsilon$  在不同电极间距下分别为 0.763, 0.939, 1.05. 已知  $\tilde{\phi}_{\max} = 200 \text{ V}$ ,  $\tilde{\phi}_{\min} = -112.5 \text{ V}$ , 通过计算可以得到在不同电极间距下电压波形对自偏压的贡献分别是 -64.7, -48.66, -39.9 V, 而体区电势对自偏压的贡献大约在  $\pm 1 \text{ V}$ , 所以可以看出解析计算得到的自偏压的绝对值也随着电极间距的增加而减小, 这和我们的模拟结果基本一致. 在本工作参数范围内, 体区压降对自偏压的变化影响

不大, 但是可以看到随着极板间距增大, 体区有效放电区域增大, 功率极板处鞘层变薄明显, 接近接地极板鞘层厚度, 导致两侧鞘层的非线性效应相互抵消, 削弱了两端的非对称性, 会导致自偏压绝对值减小, 所以本质上还是沉积功率和电子密度提高引起的.

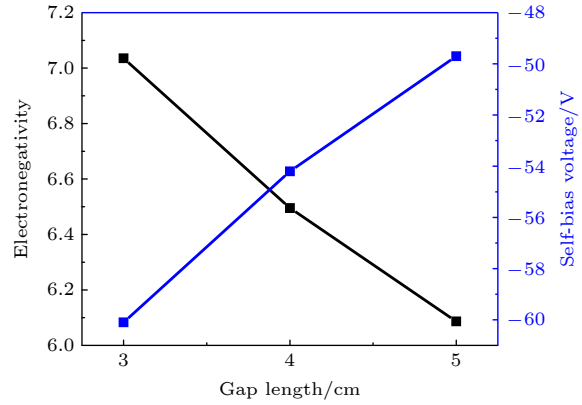


图 4 不同电极间距下的自偏压以及时空平均的电负性  
Fig. 4. Self-bias voltage and time-space averaged electronegativity for different gap distance.

图 5 给出了时空演化的体区电场在不同电极间距下的变化情况. 受非对称电压波形影响, 除了在基频周期下随着鞘层扩张和回缩, 体区电场出现峰值, 在半个基频周期附近, 随着鞘层振荡也会出现局域的次峰值. 特别是在间距小的情况下, 电负性强、体区电子密度低、电导性差, 为维持放电导致体区电场增强, 这种现象就更加明显. 随着电极间距的增加, 体区电场逐渐变弱, 但是峰值仍然存在. 经过计算发现, 随着电极间距的增加体区压降变化不大, 分别为 0.619, 0.44, 0.369 V, 但是体区有效放电宽度增大, 分别约为 2.07, 2.96, 3.95 cm. 此外, 还可以看到, 当间距为 3 cm 时, 由于电负性较强, 不仅体区电场强, 在鞘层附近, 特别是接地电极处在 0.25 T 到 0.75 T 时间范围内出现较强的双极扩散场, 其峰值绝对值可达到 -11.5  $\text{V}/\text{cm}$  左右; 而当间距为 5 cm 时, 体区电场变弱的同时, 电场在功率极板附近的峰值相对比较容易观察到 (0.9 T), 大约 7.5  $\text{V}/\text{cm}$ .

图 6 给出了在不同电极间距下时空演化的电子功率吸收 ( $J_e \cdot E$ ) 的变化情况. 通常, 容性耦合放电主要有  $\alpha$  模式和迁移扩散 (DA) 模式两种放电加热模式. 其中, 把鞘层振荡加热引起的放电模式称为  $\alpha$  模式, 而把电子在体区受到漂移场加速和鞘

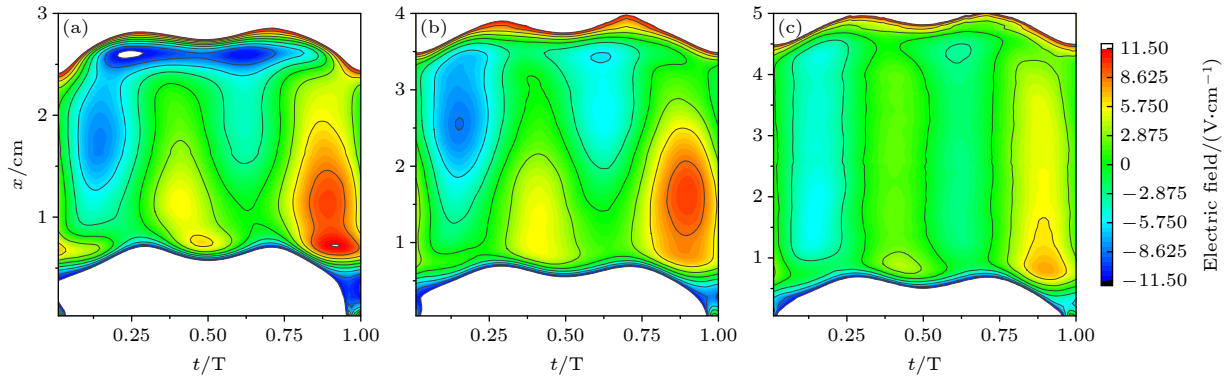


图 5 在不同电极间距下时空演化的电场 (a) 3 cm; (b) 4 cm; (c) 5 cm

Fig. 5. Spatio-temporal evolution of electric field for different gap distance of (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm.

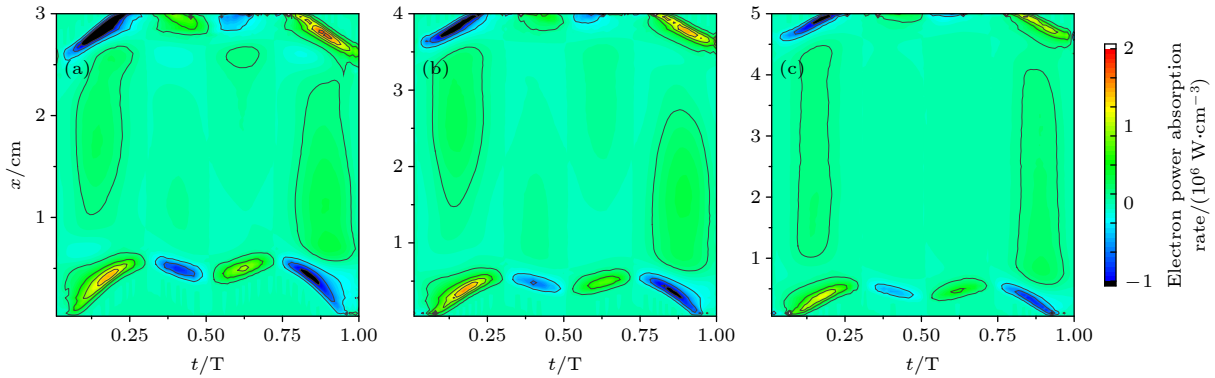


图 6 在不同电极间距下时空演化的电子功率吸收 (a) 3 cm; (b) 4 cm; (c) 5 cm

Fig. 6. Spatio-temporal evolution of electron power absorption rate for different gap distance of (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm.

层附近受到双极性电场加速的放电模式称为 DA 模式, 后者通常发生在电负性气体放电中 [41]. 从图 6 可以看出, 特别是间距在 3 cm 和 4 cm 时, 鞘层振荡加热、漂移场和双极电场加热都能明显观察到, 考虑到这里是 Ar 和 CF<sub>4</sub> 混合放电, CF<sub>4</sub> 只占 10%, 共同作用是合理的. 随着电极间距的增加, 体区电负性和电场都相对变弱, 导致了体区电子加热相应减小. 虽然放电空间大自偏压变低, 鞘层振荡仍然是主要的加热方式. 图 7 给出了在不同电极间距下电子能量分布函数 (EEDF) 基频周期平均空间演化情况. 从图 7 可以看出, 电极间距为 3 cm 时, 电子能量分布高能尾加强, 在体区和鞘层附近电子都可以获得相对较高能量, 与图 5、图 6 中电场、电子加热时空分布相符.

图 8 给出了在不同电极间距下 Ar 电离率的时空演化情况. 这里的电离率是指电子连续性方程中与电离有关的电离源项, 电离率与电子和 Ar 的密度以及 (2) 式相对应的速率系数有关. 我们知道, Ar 的电离阈值在 15.7 eV, 只有能量高于该阈值的电子才能参与 Ar 的电离过程, 图 8 反映了高能电

子的时空分布情况. 从图 8 可以看出, 放电模式始终是  $\alpha$  和 DA 的混合模式. 对比来看, 在较小的放电间距时 (例如 3 cm 和 4 cm), 电离率在接地极板

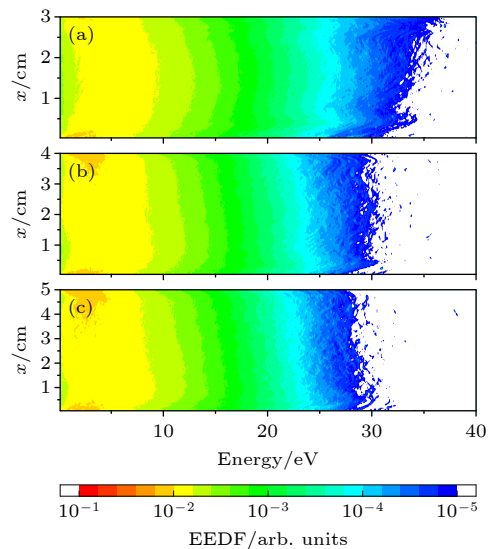


图 7 在不同电极间距下, 基频周期平均的电子能量分布函数 (EEDF) 的空间演化图 (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm

Fig. 7. Time averaged EEDF for different gap distance of (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm.



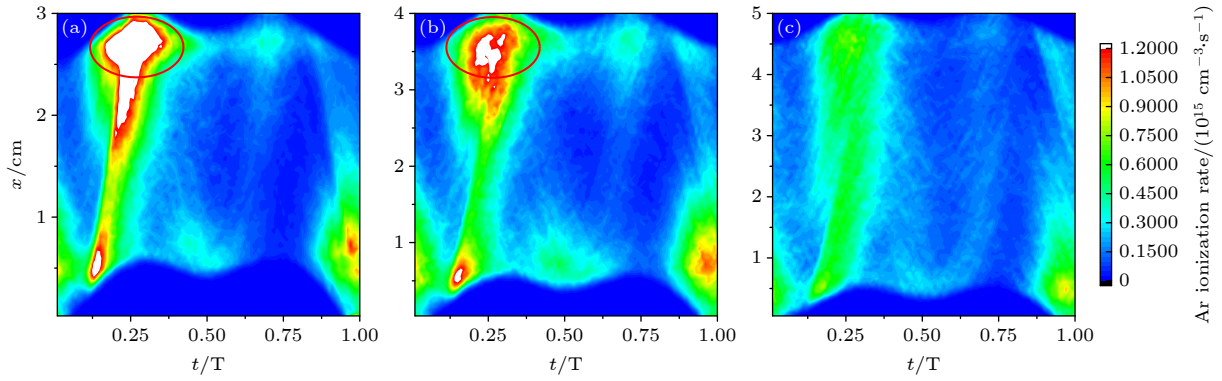


图 8 在不同电极间距下时空演化的电离率 ( $\text{Ar}+\text{e}\rightarrow\text{Ar}^++2\text{e}$ ) (a) 3 cm; (b) 4 cm; (c) 5 cm

Fig. 8. Spatio-temporal evolution of ionization rate ( $\text{Ar}+\text{e}\rightarrow\text{Ar}^++2\text{e}$ ) for different gap distance of (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm.

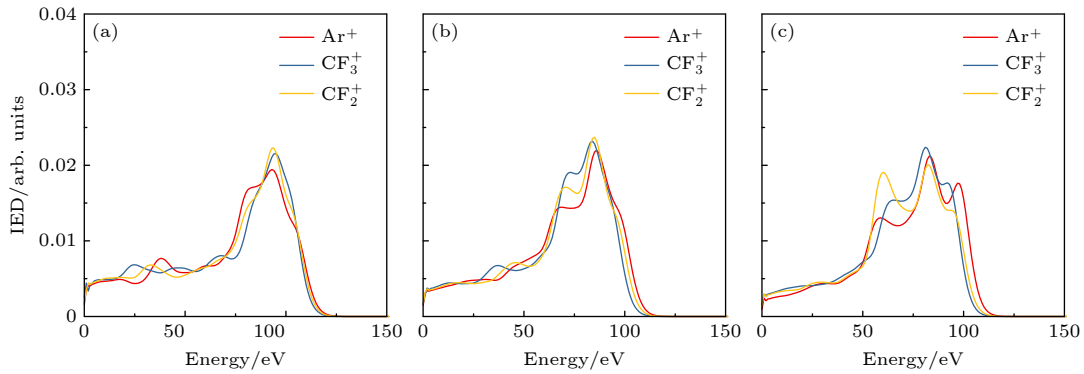


图 9 在电极间距为 (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm 下功率电极处的离子能量分布函数.

Fig. 9. Ion energy distribution (IED) at the powered electrode for different gap distance of (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm.

附近出现了最大值 (图中红色圆圈位置), 呈现了比较强的电离过程. 在基频周期起始时刻, 功率电极附近鞘层开始扩张, 此时自偏压、体区电场最强, 电子受鞘层作用获得能量, 并同时受体区较强电场作用加速打向接地电极. 电子到达接地极板附近时正遇鞘层塌缩, 而且双极扩散场很强, 此时该位置电子密度也比较高, 所以电离率很快达到峰值. 但随着电极间距的增加, 自偏压减小, 体区电场变弱, 这种电子被加速并在接地极板附近发生集中电离的现象逐渐消失, 在极板间距为 5 cm 时就基本没有观察到这种现象. 此外, 如图 8 所示, 另外一个电离率峰值发生在功率极板附近电场峰值所在位置, 这个次电离峰值在不同的极板间距条件下都能被观察到. 通过分析发现, 这个峰值是接地极板鞘层扩张、体区加速、功率极板鞘层塌缩、双极扩散场加热电子所引起的. 但是, 可以看到, 在放电区域小的时候, 由功率极板附近鞘层扩张电子加速打到接地极板鞘层附近的电离相对较强, 而放电间隙较大时, 电离源项的最大值发生在功率极板附近.

下面讨论与刻蚀相关的离子能量分布函数、离子和中性基团通量及刻蚀形貌. 图 9 给出了基频周期平均  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{CF}_3^+$ ,  $\text{CF}_2^+$  的离子能量分布函数在不同电极间距下的演化情况. 可以看出, 随着电极间距的增加, 离子能量的最大值会逐渐减小, 分别为 122, 116, 114 eV. 这和自偏压有关, 自偏压越大离子在鞘层电场作用下获得更多能量的概率就会越大, 相应的能量分布展宽也会变窄. 此外, 还发现在电极间距为 3 cm 时, 离子能量分布函数更趋向于单能; 而随着电极间距增大, 离子能量分布呈现两个甚至 3 个能量峰值, 这种现象产生的原因比较复杂, 受多个因素的影响, 比如鞘层压降、离子和中性基团的碰撞及离子渡越鞘层的时间, 值得之后的工作来进一步研究分析.

图 10 给出功率电极附近的离子通量和中性基团通量随着电极间距的变化图. 从图 10 可以看出, 随着极板间距的增大, 电离阈值较低 (10—20 eV 左右) 的离子, 例如  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{CF}_3^+$ ,  $\text{CF}_2^+$  的通量值有略微增加, 而电离阈值相对大 (20—35 eV 左右) 一些离子  $\text{CF}^+$ ,  $\text{F}^+$ ,  $\text{C}^+$  通量呈现一个减小的趋势. 从



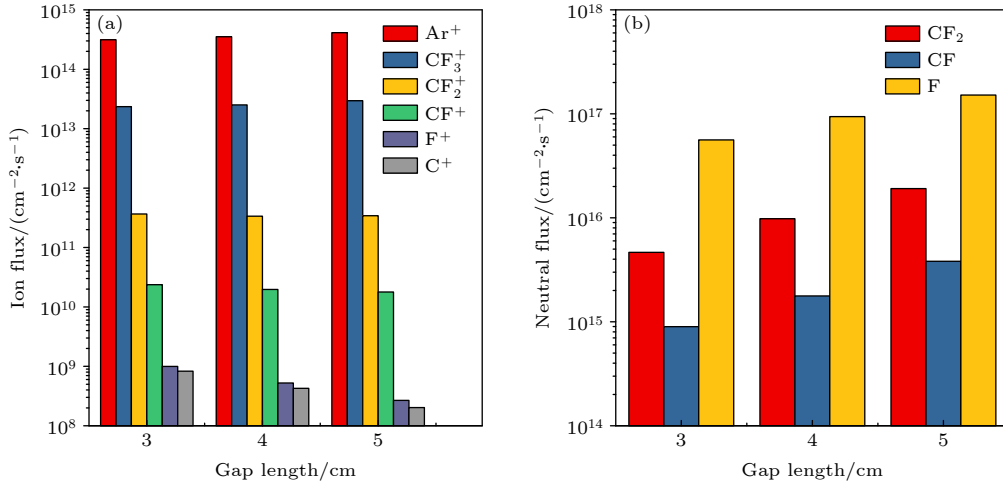


图 10 功率电极附近基频周期平均的 (a) 离子通量和 (b) 中性基团通量在不同电极间距下的变化情况  
 Fig. 10. (a) Ion flux and (b) neutral flux at the powered electrode for different gap distance.

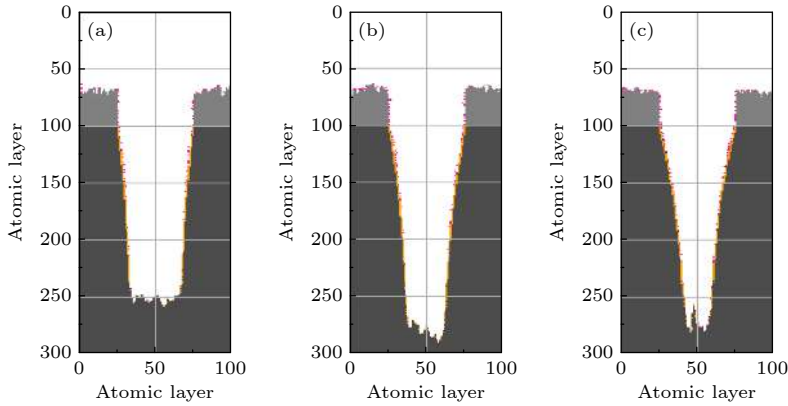


图 11 在电极间距为 (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm 下刻蚀形貌  
 Fig. 11. Etching profiles for different gap distance of (a) 3 cm, (b) 4 cm, (c) 5 cm.

图 7 可知, 电离阈值较高的离子通量减小的原因主要是高能电子在放电区域大的时候所占的比率减小导致的. 而随着电极间距的增加, 实际馈入功率和等离子体密度都会相应增大, 电子密度有所上升导致电离阈值较低的离子通量有所增加. 各种中性基团通量同样呈现一个增加的趋势, 如图 10(b) 所示. 中性基团的解离能量阈值和  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{CF}_3^+$ ,  $\text{CF}_2^+$  的电离相当, 阈值都在 10—20 eV 范围内, 所以随着电极间距的增加, 中性基团通量的增加和  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{CF}_3^+$ ,  $\text{CF}_2^+$  通量的增加的原因类似, 是电子密度增加引起的.

图 11 给出了在不同电极间距刻蚀时间均为 70 s 下的刻蚀形貌图, 其中白色位置是材料被移除的位置, 浅灰色表示光刻胶, 黑色表示  $\text{SiO}_2$ , 其他颜色表示钝化层、聚合物. 在相同的刻蚀时间下, 刻蚀的深度越深, 说明在该条件下的刻蚀速率越

快. 从图 11 可知, 随着电极间距的增加, 刻蚀速率先增加后减小. 我们知道中性基团通量明显增加, 比如  $\text{CF}_2$  和  $\text{CF}$ , 一方面增加钝化层的覆盖度, 加速目标材料的刻蚀, 另一方面, 如果中性基团过多就会形成大量的聚合物附着在钝化层上面, 阻碍了离子对钝化层的刻蚀. 通常, 会利用变量  $A = (\Gamma_{\text{CF}_2} + \Gamma_{\text{CF}}) / (\Gamma_{\text{Ar}^+} + \Gamma_{\text{CF}_3^+} + \Gamma_{\text{CF}_2^+} + \Gamma_{\text{CF}^+} + \Gamma_{\text{F}^+} + \Gamma_{\text{C}^+})$ , 即功率极板处中性基团通量和离子通量的比值来解释刻蚀槽形貌的变化情况, 这里只有  $\text{CF}_2$  和  $\text{CF}$  能参与生成聚合物. 随着电极间距的增加,  $A$  值分别为 16.42, 30.68, 51.77, 这说明中性基团相比于离子的增加幅度更高, 这是因为中性基团的损失源项相比离子少所导致的. 从刻蚀形貌来看, 图 11(a) 和图 11(b),  $A$  值从 16.42 增加到 30.68, 中性基团增加并与离子协同, 使得刻蚀速率增加. 但是如果  $A$  值继续增大到 51.77, 如图 11(c), 刻蚀

速率开始减慢, 聚合物在钝化层表面的覆盖削弱了离子对目标材料的刻蚀. 所以, 在电非对称波形下调节电极间距能够使离子和中性基团在一定程度上解耦, 有助于调节中性基团的覆盖度, 达到控制刻蚀速率及优化刻蚀形貌的目的.

## 4 结 论

本文基于一维流体耦合 MC 模型及二维刻蚀槽模型研究了电非对称双频容性耦合  $\text{CF}_4/\text{Ar}$  等离子体放电和相应的刻蚀过程. 模拟研究表明, 随着电极间距的增大, 放电的电负性和功率极板自偏压的绝对值会相应减小, 等离子体密度和实际馈入功率明显增加. 受非对称电压波形驱动, 除了在基频周期下随着鞘层扩张和回缩, 体区电场出现峰值, 在半个基频周期附近, 体区电场也会出现局部的次峰值, 而且随着间距变大, 体区电场变弱, 但是仍然能够观察到峰值. 本文研究的  $\text{CF}_4/\text{Ar}$  混合气体放电中,  $\text{CF}_4$  只占 10%, 放电模式随着电极间距的变化始终是 DA 模式和  $\alpha$  模式的共同作用. 随着电极间距的增加, 体区电场随着电负性减小相对变弱, DA 模式所能发挥的作用逐渐变得有限. 在放电区域相对小的时候, 能参与电离的高能电子主要聚集在鞘层附近, 而且接地极板鞘层附近的电离相对较强, 而放电间隙较大时, 高能电子能够电离的区域变大, 但电离源项的最大值发生在功率极板附近.

中性基团的增加能够提高材料表面钝化层覆盖度, 有利于刻蚀, 但是中性基团过多时, 就会在钝化层表面形成大量的聚合物, 反而不利于离子对目标材料的刻蚀. 在电非对称双频电压波形放电中, 通过改变电极间距, 可以使得离子通量和中性基团通量解耦. 表现在刻蚀形貌上, 就是随着电极间距的增加, 中性基团通量的提高速度明显高于离子通量, 导致刻蚀速率增加后逐渐趋于饱和, 刻蚀形貌也不够理想. 综上, 对于电非对称容性耦合等离子体的研究, 不应仅着眼于离子能量和通量的独立调控, 还应深入研究复杂工艺气体中离子通量和中性通量的协同作用对刻蚀速率和质量的影响, 这也是我们未来研究工作的重要内容.

## 参考文献

[1] Makabe T, Petrović Z 2006 *Plasma Electronics: Applications in Microelectronic Device Fabrication* (London: Taylor and Francis) pp3–9  
 [2] Lieberman M A, Lichtenberg A J 2005 *Principles of Plasma*

*Discharges and Materials Processing* (New York: Wiley) pp1–750  
 [3] Agarwal A, Kushner M J 2009 *J. Vac. Sci. Technol. A* **27** 37  
 [4] Sherpa S D, Ranjan A 2016 *J. Vac. Sci. Technol. A* **35** 01A102  
 [5] Sekine M 2002 *Appl. Surf. Sci.* **192** 270  
 [6] Kanarik K J, Tan S, Gottscho R A 2018 *J. Phys. Chem. Lett.* **9** 4814  
 [7] Kanarik K J, Hudson E A, Gottscho R A, et al. 2015 *J. Vac. Sci. Technol. A* **33** 020802  
 [8] Huang S, Huard C, Shim S, Nam S K, Song I C, Lu S, Kushner M J 2019 *J. Vac. Sci. Technol. A* **37** 031304  
 [9] Takayoshi T, Hiroki K, HoriMasaru Z M, Akiko K, Toshihisa N, Nobuyoshi K 2016 *J. Vac. Sci. Technol. A* **35** 01A103  
 [10] Booth J P, Cunge G, Chabert P, Sadeghi N 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 3097  
 [11] Williams K L, Martin I T, Fisher E R 2002 *J. Am. Soc. MASS Spectrom.* **13** 518  
 [12] Flamm D L, Herb G K 1989 *WITHDRAWN: Plasma Etching Technology—An Overview* (Pittsburgh: Academic Press) pp1–89  
 [13] Sankaran A, Kushner M J 2004 *J. Vac. Sci. Technol. A* **22** 1260  
 [14] Gasvoda R J, Van De Steeg A W, Bhowmick R, Hudson E A, Agarwal S 2017 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9** 31067  
 [15] Stoffels W W, Stoffels E, Tachibana K 1998 *J. Vac. Sci. Technol. A* **16** 87  
 [16] Cunge G, Booth J P 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 3952  
 [17] Zhang D, Kushner M J 2000 *J. Vac. Sci. Technol. A* **18** 2661  
 [18] Metzler D, Engelmann S, Bruce R L, Oehrlein G S, Joseph E A, Li C 2015 *J. Vac. Sci. Technol. A* **34** 01B101  
 [19] Winters H F, J.W.Coburn 1992 *Surf. Sci. Rep.* **14** 161  
 [20] Sasaki K, Furukawa H, Suzuki C, Kadota K 1999 *J. Appl. Phys.* **38** 954  
 [21] Kimizuka M, Ozaki Y, Watanabe Y 1997 *J. Vac. Sci. Technol. B* **15** 66  
 [22] Capps N E, Mackie N M, Fisher E R 1998 *J. Appl. Phys.* **84** 4736  
 [23] Fendel P, Francis A, Czarnetzki U 2005 *Plasma Sources Sci. Technol.* **14** 1  
 [24] Booth J P, Abada H, Chabert P, Graves D B 2005 *Plasma Sources Sci. Technol.* **14** 273  
 [25] Kanarik K J, Tan S, Yang W, et al. 2017 *J. Vac. Sci. Technol. A* **35** 05C302  
 [26] Huard C M, Sriraman S, Kanarik K J, Zhang Y, Kushner M J, Paterson A 2017 *J. Vac. Sci. Technol. A* **35** 031306  
 [27] Heil B G, Czarnetzki U, Brinkmann R P, Mussenbrock T 2008 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41** 165202  
 [28] Zhang Y, Kushner M J, Sriraman S, Marakhtanov A, Holland J, Paterson A 2015 *J. Vac. Sci. Technol. A* **33** 031302  
 [29] Zhang Y, Zafar A, Coumou D J, Shannon S C, Kushner M J 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 233302  
 [30] Zhang Y R, Hu Y T, Gao F, Song Y H, Wang Y N 2018 *Plasma Sources Sci. Technol.* **27** 55003  
 [31] Zhang Y R, Hu Y T, Wang Y N 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 84003  
 [32] Schulze J, Derzsi A, Donkó Z 2011 *Plasma Sources Sci. Technol.* **20** 045008  
 [33] Brandt S, Berger B, Donkó Z, Derzsi A, Schüngel E, Koepke M, Schulze J 2019 *Plasma Sources Sci. Technol.* **28** 95021  
 [34] Wang X F, Jia W Z, Song Y H, Zhang Y Y, Dai Z L, Wang Y N 2017 *Phys. Plasmas* **24** 113503  
 [35] Phelps A V, Petrović Z L 1999 *Plasma Sources Sci. Technol.* **8** 06B101  
 [36] Tinck S, Boullart W, Bogaerts A 2009 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** 095204  
 [37] Brandt S, Berger B, Schüngel E, et al. 2016 *Plasma Sources*

- [38] Vasenkov A V, Li X, Oehrlein G S, Kushner M J 2004 *J. Vac. Sci. Technol. A* **22** 511
- [39] Zhao S X, Gao F, Wang Y N, Bogaerts A 2012 *Plasma Sources Sci. Technol.* **21** 025008
- [40] Huard C M, Sriraman S, Paterson A, Kushner M J 2018 *J. Vac. Sci. Technol. A* **36** 06B101
- [41] Schulze J, Derzsi A, Dittmann K, Hemke T, Meichsner J, Donkó Z 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 275001

SPECIAL TOPIC—Several problems in plasma physics and material treatment

## Gap length effect on discharge mode and etching profiles in asymmetric dual frequency capacitive CF<sub>4</sub>/Ar discharges\*

Dong Wan Xu Hai-Wen Dai Zhong-Ling

Song Yuan-Hong<sup>†</sup> 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 March 2021; revised manuscript received 24 April 2021 )

### Abstract

The capacitive CF<sub>4</sub>/Ar discharges driven by a dual frequency source based on the electrical asymmetry effect (EAE) are studied by using a one-dimensional fluid coupled with Monte-Carlo (MC) model and a two-dimensional trench model. The effects, induced by varying the relative gap distance, on self-bias voltage, electronegativity, ion flux, neutral flux and other plasma characteristics are systematically discussed. In this asymmetric discharge, as the gap distance increases, the absolute value of the self-bias voltage and electronegativity decrease. Meanwhile, the plasma density and absorption power increase accordingly because the effective discharge area expands but the boundary loss is still limited. In addition, both  $\alpha$  mode and drift-ambipolar (DA) mode can play their important roles in the discharges with different gap distances, though DA mode is weakened in large gap discharge. Owing to the fact that the self-bias is larger and electronegativity is stronger for the case of smaller gap distance, the sheath expansion electric field at the powered electrode and the bulk electric field heat the electrons, leading the ionization rate to greatly increase near the collapse of the sheath at the grounded electrode. Besides, at the larger gap distance, the maximum value of the ionization rate decreases due to the reduction of electrons with relatively high-energy, and the ionization rate near the grounded electrode is reduced evidently. Moreover, with the increase of the gap distance, the maximum ion energy decreases and the ion energy distribution width becomes smaller due to the reduction of the self-bias voltage. Meanwhile, the etching rate increases a lot since the neutral flux increases significantly near the powered electrode. However, as the gap distance increases to 5 cm, the etching rate stops increasing and the trench width at the bottom becomes narrow because the neutral flux increases greatly compared with ion flux, forming a thick layer of polymer. So, besides separately controlling the ion energy and flux, optimizing the synergistic effect of ion flux and neutral group flux to adjust the etching rate and improve the etching morphology is also an interesting topic in the asymmetric CF<sub>4</sub>/Ar discharges.

**Keywords:** electrical asymmetry effect, the synergy of ions and neutrals, gap distance, discharge mode

**PACS:** 52.65.-y, 52.25.Jm, 52.77.Bn

**DOI:** 10.7498/aps.70.20210546

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12020101005, 11975067).

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