

负偏压射频放电过程的流体力学模拟^{*}

朱武飏 王友年 邓新禄 马腾才

(大连理工大学三束材料改性国家重点实验室, 大连 116023)

(1995年5月29日收到)

采用流体力学方法研究了负偏压射频放电的物理过程, 计算了带电粒子密度及电场的时空分布, 分析了在不同的近似条件下, 离子动量平衡方程中各项的贡献.

PACC: 5265; 5240K; 5280

1 引 言

由于射频(RF)放电产生的等离子体的电离度高, 它已被广泛地应用于新材料制备及材料表面改性等工艺中. 在等离子体加工工艺中, 加工后的工件的质量及性能在很大程度上取决于它与等离子体的相互作用过程. 因此, 研究射频放电的物理机制及放电参量对加工过程的影响是十分必要的.

人们在研究射频放电的物理过程时, 采用了许多方法, 如 Lieberman 和 Godyak 等的解析模型^[1-3]. 在这种方法中他们把整个放电室分成鞘层区和准中性的均匀等离子体区, 并对鞘层区的电子密度进行了唯象假定, 从而解析地研究了鞘层的演化过程. 然而, 事实上电子在鞘层中的分布是连续的, 很难准确地区分鞘层区和等离子体区. 这种方法对它们之间的过渡区难以准确地分析, 而且为了能够解析求解, 这种方法假定较多. 而目前采用较多的是较为严格的流体力学模拟方法^[4-7]. 由于在等离子体中, 电子和离子的运动状态近似于流体, 因此, 通常可以把等离子体看作一种双流体, 采用流体力学方程组对其进行分析研究. 在这种方法中, 对电子的动量平衡方程基本上都采用了迁移-扩散近似, 其主要差别在于对离子的动量平衡方程所作的不同近似. 如: 采用同电子一样的迁移-扩散近似^[4,5], 忽略了离子的对流项^[6]和离子的扩散项^[7]. 事实上, 扩散项和对流项在不同的放电区对离子运动所起的作用各不相同, 如在鞘层区中由于电场较强, 对流项起主要作用, 而在等离子体区中由于电场较弱, 扩散项占主导地位. 因此上述各种方法都有一定的不足之处.

在边界条件的选取上, 一些作者假定离子密度在边界上为零^[6,8,9]. 由于离子鞘层的存在, 边界上离子的密度是不可能为零的, 因此该假定显然是不合理的.

此外, 在实际应用中, 如薄膜沉积工艺, 通常采用在工件上施加负偏压的方法来改变入射离子的密度和能量分布, 从而提高沉积速率以及增强膜与基体的附着力. 目前尚未见

^{*} 国家自然科学基金资助的课题.

到考虑施加负偏压情形的文献。

本文采用较为严格的离子动量平衡方程和比较合理的边界条件,对射频放电的物理过程进行分析和计算,并采用不同的近似方法比较了离子动量平衡方程中各项的贡献。

2 理论模型

在以下讨论中,本文假设放电是在两个平行的平板电极之间进行的,待处理的工件置于其中一个电极上,等离子体可以看作是由电子和离子组成的双流体。为了简化计算,对空间采用一维模型。带电粒子的密度和流速满足如下连续性方程和动量平衡方程:

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} + \frac{\partial(N_e u_e)}{\partial x} = k_i N_e N_n, \quad (1)$$

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} + \frac{\partial(N_i u_i)}{\partial x} = k_i N_e N_n, \quad (2)$$

$$m_e N_e \left(\frac{\partial u_e}{\partial t} + u_e \frac{\partial u_e}{\partial x} \right) = -e N_e E - \frac{\partial}{\partial x} (k_B T_e N_e) - m_e N_e \nu_{en}^{(e)} u_e, \quad (3)$$

$$m_i N_i \left(\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_i \frac{\partial u_i}{\partial x} \right) = e N_i E - \frac{\partial}{\partial x} (k_B T_i N_i) - m_i N_i \nu_{in}^{(e)} u_i, \quad (4)$$

其中 N , u , m , T 和 $\nu^{(e)}$ 分别为密度、速度、质量、温度和带电粒子与中性粒子的弹性碰撞频率,角标 e, i 和 n 分别为电子、离子和中性原子, E 为电场强度, k_i 为电离率系数, k_B 为 Boltzmann 常数。

对于电子,由于其质量很小,而且对流项的贡献远小于迁移项和扩散项的贡献,因此,在以下的讨论中,我们忽略了电子的惯性项和对流项,即采用迁移-扩散近似。由方程(3)可得

$$u_e = -\mu_e E - \frac{1}{N_e} \frac{\partial}{\partial x} (D_e N_e), \quad (5)$$

其中 $\mu_e = \frac{e}{m_e \nu_{en}^{(e)}}$ 为电子的迁移率, $D_e = \frac{k_B T_e}{m_e \nu_{en}^{(e)}}$ 为电子的扩散系数。将(5)式代入方程(1),得到在迁移-扩散近似下,电子密度随时空变化的方程:

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = \mu_e \frac{\partial (E N_e)}{\partial x} + D_e \frac{\partial^2 N_e}{\partial x^2} + k_i N_e N_n. \quad (6)$$

对于离子的运动,分如下几种情形进行讨论。

1) 类似于电子的运动,对方程(4)略去惯性项和对流项,采用迁移-扩散近似^[4,5],于是可得

$$u_i = \mu_i E - \frac{1}{N_i} \frac{\partial}{\partial x} (D_i N_i), \quad (7)$$

其中 $\mu_i = \frac{e}{m_i \nu_{in}^{(e)}}$ 为离子的迁移率, $D_i = \frac{k_B T_i}{m_i \nu_{in}^{(e)}}$ 为离子的扩散系数。

2) 在上述方法的基础上,加上离子的惯性项^[6]。这种方法是基于这样一种考虑,由于离子的惯性质量较大,其运动跟不上电场的快速振荡,因此必须考虑离子的惯性运动。在

以下的处理中,令 $u_i = u_E + u_D$, 其中 u_E 为电场引起的离子迁移速度, u_D 为密度梯度引起的扩散速度. 由于离子的密度随时间变化较慢, 可以近似认为 $\frac{\partial u_D}{\partial t} = 0$. 这样, 由方程(4)可得

$$u_D = -\frac{1}{N_i} \frac{\partial}{\partial x} (D_i N_i), \quad (8)$$

$$\frac{\partial u_E}{\partial t} = \frac{eE}{m_i} - \frac{e u_E}{\mu_i m_i}. \quad (9)$$

引入离子的有效电场 $\tilde{E} = u_E/\mu_i$, 则 E 满足的方程为

$$\frac{d\tilde{E}}{dt} = \frac{e}{\mu_i m_i} (E - \tilde{E}). \quad (10)$$

这样有

$$u_i = \mu_i \tilde{E} - \frac{1}{N_i} \frac{\partial}{\partial x} (D_i N_i). \quad (11)$$

3) 只考虑方程(4)中的惯性项和对流项, 略去扩散项^[7], 则方程(4)变为

$$\frac{\partial u_i}{\partial t} = \frac{eE}{m_i} - \frac{e u_i}{\mu_i m_i} - u_i \frac{\partial u_i}{\partial x}. \quad (12)$$

同样, 作类似于情形 2) 的处理, 引入离子的有效电场 $\tilde{E} = u_i/\mu_i$, 则 $\tilde{E}$ 满足的方程为

$$\frac{\partial \tilde{E}}{\partial t} = \frac{e}{\mu_i m_i} (E - \tilde{E}) - \mu_i \tilde{E} \frac{\partial \tilde{E}}{\partial x}. \quad (13)$$

4) 严格按照方程(4)求解. 仍把离子速度 u_i 分为 u_E 和 u_D 两部分, 并且认为对流项主要是由于电场引起的, 因此有

$$u_D = -\frac{1}{N_i} \frac{\partial}{\partial x} (D_i N_i), \quad (14)$$

$$\frac{\partial u_E}{\partial t} = \frac{eE}{m_i} - \frac{e u_E}{\mu_i m_i} - u_E \frac{\partial u_E}{\partial x}. \quad (15)$$

同样, 定义离子的有效电场 $\tilde{E} = u_E/\mu_i$, $\tilde{E}$ 满足的方程与方程(13)相同.

表 1 中归纳了上述四种情形 (V 表示考虑了该项的贡献, × 表示略去了该项).

表 1

	迁移项	扩散项	惯性项	对流项
1)	V	V	×	×
2)	V	V	V	×
3)	V	×	V	V
4)	V	V	V	V

根据上面的分析, 可以把离子密度随时空变化的方程统一写成

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = -\mu_i \frac{\partial(\tilde{E} N_i)}{\partial x} + D_i \frac{\partial^2 N_i}{\partial x^2} + k_i N_e N_n. \quad (16)$$

四种情形的差别在于, 第一种情形中, 方程(16)中的 $\tilde{E}$ 即为瞬时电场 E , 而后面三种情形下, $\tilde{E}$ 对应着分别定义的有效电场. 另外在第三种情形中, 离子扩散系数 $D_i = 0$.

对瞬时电场, 采用泊松方程进行求解:

$$\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} = -\frac{e}{\epsilon_0} (N_i - N_e), \quad (17)$$

$$E = -\frac{\partial V}{\partial x}. \quad (18)$$

在方程(1)和(2)中用到的电离率系数 k_i 为电子平均能量 ϵ_e (等价于电子温度 T_e) 的函数, 因此, 为了使计算自洽, 还需引入 ϵ_e 随时空变化的方程, 即能量平衡方程:

$$\begin{aligned} \frac{\partial(N_e \epsilon_e)}{\partial t} = & D_e \frac{\partial^2(N_e \epsilon_e)}{\partial x^2} + \mu_e \frac{\partial(N_e \epsilon_e E)}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left(N_e D_e \frac{\partial \epsilon_e}{\partial x} \right) \\ & + \left(D_e \frac{\partial N_e}{\partial x} + \mu_e N_e E \right) eE - k_l N_e N_n, \end{aligned} \quad (19)$$

其中 k_l 为包括弹性和非弹性碰撞在内的碰撞能量损失系数. 这样, 方程(6), (16), (17)和(19)构成了一套封闭的方程组.

以 Ar 等离子体为例, k_i 和 k_l 分别由以下二式求得^[6]:

$$k_i = \begin{cases} 0.0 & \epsilon_e < 5.3, \\ 8.7 \times 10^{-9} (\epsilon_e - 5.3) \exp \left(\frac{-4.9}{(\epsilon_e - 5.3)^{0.5}} \right) & \epsilon_e \geq 5.3, \end{cases} \quad (20)$$

$$k_l = \begin{cases} 0.0 & \epsilon_e < 5.3, \\ -\epsilon_e k_i + 8.1 \times 10^{-9} (\epsilon_e - 5.3)^2 & \epsilon_e \geq 5.3. \end{cases} \quad (21)$$

这里已假定: 当电子的平均能量 $\epsilon_e < 5.3$ eV 时, 将没有明显的电离发生.

对于 Ar 等离子体, D, μ 仅与压强 p 有关. 它们的值分别为^[6]: $\mu_e p = 3.0 \times 133.322 \times 10^5 \text{ cm}^2 \cdot \text{Pa/V} \cdot \text{s}$; $D_e p = 1.2 \times 133.322 \times 10^6 \text{ cm}^2 \cdot \text{Pa/s}$; $\mu_i p = 1444 \times 133.322 \text{ cm}^2 \cdot \text{Pa/V} \cdot \text{s}$; $D_i p = 40 \times 133.322 \text{ cm}^2 \cdot \text{Pa/s}$.

选取边界条件时, 考虑到离子鞘层的存在以及电子和离子在鞘层中运动特性的差异, 对电子和离子采用了不同的边界条件. 对于电子密度, 根据通量守恒, 可得到如下边界条件:

$$-N_e \mu_e E - D_e \frac{\partial N_e}{\partial x} = \pm \frac{1}{4} u_{th} N_e \quad (x = 0, d), \quad (22)$$

其中正、负号分别对应于 $x = d$ 和 $x = 0$, $u_{th} = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}}$ 为电子的热速度. 对于离子, 假定其密度在边界附近没有明显的变化, 因此有

$$\frac{\partial N_i}{\partial x} = 0, \quad (x = 0, d). \quad (23)$$

在通常情况下, 射频场和直流负偏压加在同一电极上, 而另一电极接地. 这样, 电势的边界条件为

$$V = \begin{cases} V_{RF} \sin \omega t - V_D & (x = 0), \\ 0 & (x = d), \end{cases} \quad (24)$$

其中, V_{RF} 为射频场的幅值电压, V_D 为所加负偏压的大小, ω 为射频场的角频率.

此外, 还可以近似地认为电子的平均能量在边界上没有明显的变化, 即

$$\frac{\partial \epsilon_e}{\partial x} = 0 \quad (x = 0, d), \quad (25)$$

我们设定,在初始时电子和离子是均匀分布的,且密度相等,即 $N_e = N_i = N_0$, 电子平均能量是空间均匀的,取 $\epsilon_e = 1 \text{ eV}$, 两电极之间电场为零.

3 数值结果与分析

因为方程(6),(16)和(19)是一套非线性的偏微分方程组,在进行数值差分时,为了确保计算过程的稳定性,对空间的差分,我们采用所谓“迎风”差分格式,对空间的计算采用了四阶定步长的龙格-库塔积分方法.对泊松方程(17)可以采用三对角矩阵“追赶”法.

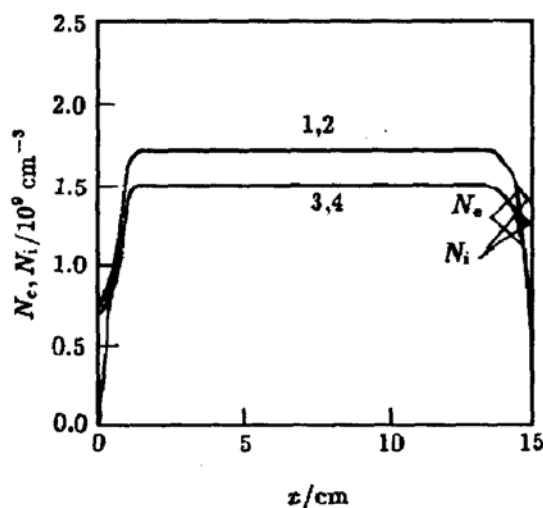


图1 电子、离子密度的空间分布
曲线1—4对应着四种计算方法

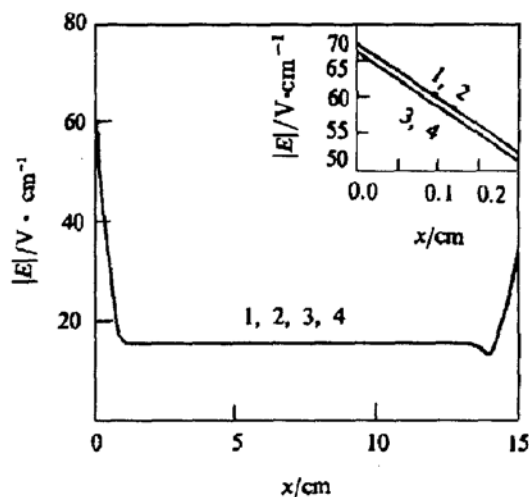


图2 电场强度绝对值的空间分布
曲线说明同图1

此外,为保证差分格式稳定,空间和时间的步长应满足:

$$\left| \frac{\Delta t}{\Delta x} \cdot u \right| < 1. \quad (26)$$

由于 u 的大小与 N_n , E 等多种因素有关,故在选取 Δt 和 Δx 时应格外注意.

根据常见的射频等离子体放电过程,本文对各放电参量选取如下:两电极间距 $d = 15 \text{ cm}$, 中性气体的密度 $N_n = 0.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $V_{\text{RF}} = 400 \text{ V}$, $V_D = 70 \text{ V}$.

图1为用四种方法求出的电子和离子密度在一个射频周期内取平均后随空间位置的分布.可以看出,用前两种方法得到的结果基本相同,而用后两种方法得到的结果也基本相同.这说明离子运动的惯性项对带电粒子密度的空间分布影响不大,而对流项却对其有较大的影响.对流项改变了离子的有效电场,进而使离子密度发生变化,这一变化影响了瞬时电场,从而使电子密度也发生变化.从图1中还可以看出,在电极附近约 1 cm 的范围内,有一明显的离子鞘层区,在该区内,电子密度迅速减小并趋于零,而离子密度则明显地不为零(尤其是在电极上).在鞘层区以外,电子和离子密度相等并接近空间均匀,即所谓

准中性的均匀等离子体区。

图 2 为电场强度在一个射频周期内取平均后,随空间位置的分布.右上角的小图为电极附近局部放大图.总体看来,四种方法求出的电场强度差别不大,但事实上用前两种方法和用后两种方法得到的结果还是不同的,尤其是在电极附近差别比较明显,在等离子体区,电场强度的差别较小.结合图 1 可以看出,在鞘层区内,由于离子密度与电子密度不相等,形成了一个空间电荷区,从而具有较强的鞘层电场.事实上,正是由于这一鞘层电场的排斥作用,使得电子密度在鞘层区内迅速减小并趋于零,二者是互为因果、相互影响的.在等离子体区,电场近似均匀.

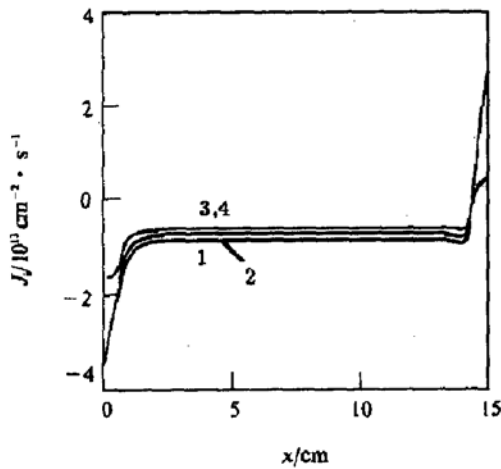


图 3 离子流密度的空间分布
曲线说明同图 1

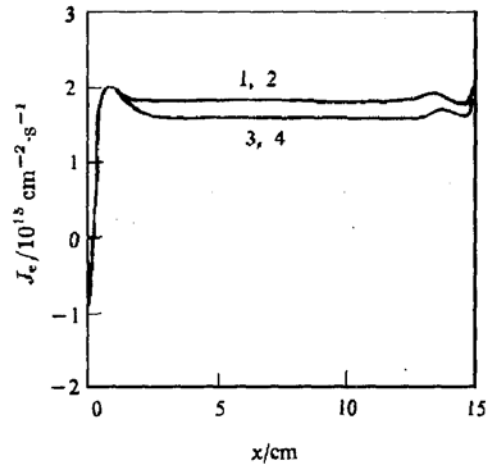


图 4 离子流密度的空间分布
曲线说明同图 1

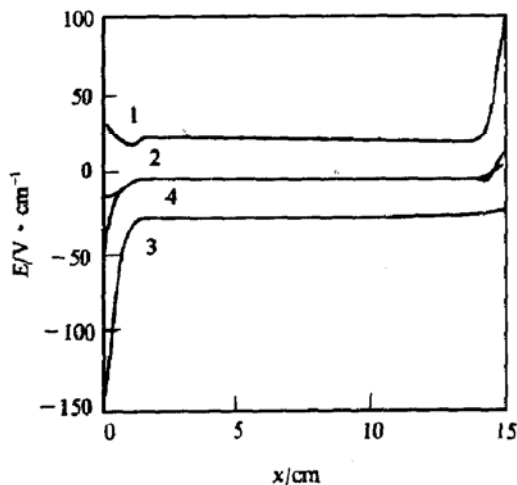


图 5 电场强度的空间分布 曲线 1 为 $\omega t = \frac{\pi}{2}$;
曲线 2 为 $\omega t = \pi$; 曲线 3 为 $\omega t = \frac{3\pi}{2}$; 曲线 4 为 $\omega t = 2\pi$

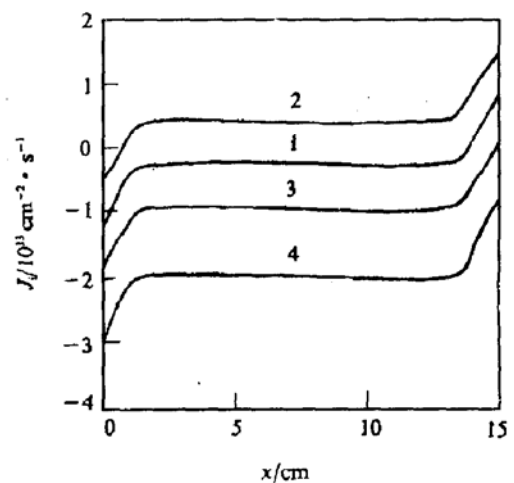


图 6 离子流密度的空间分布
曲线说明同图 5

图 3 和图 4 分别示出用四种方法求出的离子流密度和电子流密度在一个射频周期内取平均后随空间位置的分布. 对照图 1 和图 2, 可见离子运动的惯性项对离子流的大小有明显的影响.

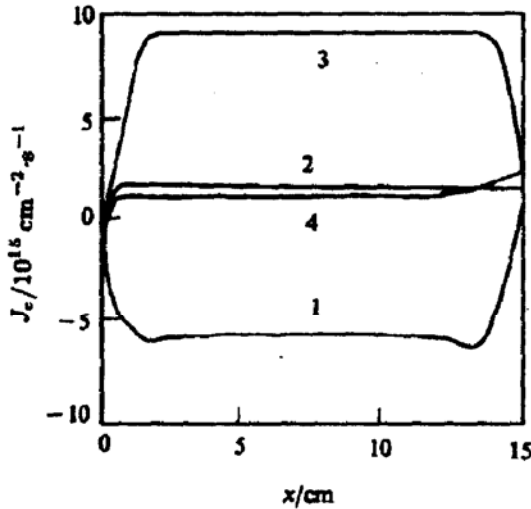


图 7 电子流密度的空间分布
曲线说明同图 5

分析图 1 至图 4, 我们认为: 离子动量平衡方程中, 惯性项和对流项都是很重要的, 计算中不应忽略. 至于扩散项, 虽然从上面的结果来看, 似乎作用不大, 而事实上, 在电场较弱的区域(如鞘层以外的区域), 扩散项也是很重要的, 只不过在我们的计算中, 等离子体区密度梯度较小, 扩散不很明显. 为了使计算更准确, 计算中扩散项也应考虑. 图 5 至图 9 为采用严格离子动量平衡方程计算所得的结果.

图 5、图 6 和图 7 分别示出一个周期内四个不同时刻的电场强度、离子流密度和电子流密度随空间位置的分布.

由于在等离子体加工中, 被加工的工件置于其中一个电极上, 因此, 人们往往更关心电极附近及鞘层区的情形.

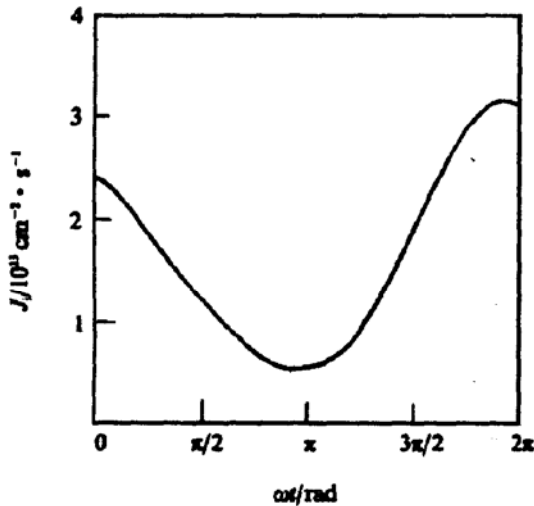


图 8 流入电极($x=0$)的离子流密度随时间的变化曲线

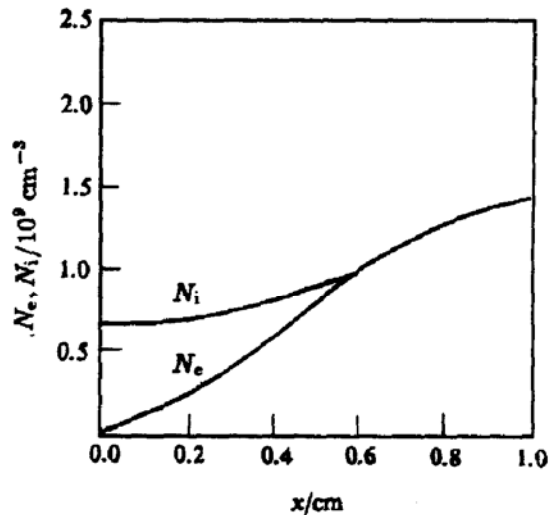


图 9 鞘层区电子和离子密度的空间分布

图 8 为流入电极($x=0$)的离子流密度随时间的变化情况. 这是一个等离子体加工中十分重要的物理量. 图 9 为放大的鞘层区内电子和离子密度在一个射频周期内取平均后随空间位置的分布. 从中可以更清楚地看出空间电荷区的存在, 同时还可看出, 鞘层区和等离子体区并不是截然分开的, 它们之间存在一过渡区.

4 结 论

根据上面的讨论和分析,可以得出如下结论:

1. 电极附近存在一明显的离子鞘层区,在该区内,电子密度迅速减小并趋于零,而离子密度则明显不为零(尤其是在电极上).在鞘层区以外,是电子和离子密度相等的均匀等离子体区.鞘层区内,有较强的电场,而在等离子体区内,电场较弱,且是均匀分布的.

2. 在离子动量平衡方程中,惯性项、对流项和扩散项有着各自的作用,在计算中都是很重要的,不应忽略.

3. 带电粒子密度的空间分布是连续的,鞘层区和等离子体区之间没有明显的界线,用本文的方法,即用统一的方程对其求解是比较合理的.

- [1] M. A. Lieberman, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **16**(1988), 638.
- [2] M. A. Lieberman, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **17**(1989), 338.
- [3] V. A. Godyak and N. Sternberg, *Phys. Rev.*, **A42**(1990), 2299.
- [4] J. P. Boeuf, *Phys. Rev.*, **36**(1987), 2782.
- [5] Yong-Ho Oh, Nak-Heon Choi and Duk-In Choi, *J. Appl. Phys.*, **67**(1990), 3264.
- [6] A. D. Richards, B. E. Thompson and H. H. Sawin, *Appl. Phys. Lett.*, **50**(1987), 492.
- [7] T. E. Nitschke and D. B. Graves, *J. Appl. Phys.*, **76**(1994), 5646.
- [8] V. A. Feoktistov, A. M. Popov, O. B. Popovicheva, A. T. Rakhimov, T. V. Rakhimova and E. A. Volkova, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **19**(1991), 163.
- [9] A. V. Lukyanova, A. T. Rakhimov and N. V. Suetin, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **19**(1991), 197.

HYDRODYNAMICS SIMULATION OF RF DISCHARGE COURSES WITH NEGATIVE BIAS

ZHU WU-BIAO WANG YOU-NAIN DENG XIN-LU MA TENG-CAI

(State Key Laboratory for Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beams,

Dalian University of Technology, Dalian 116023)

(Received 29 May 1995)

ABSTRACT

In this paper, we have analysed the physical procedures of RF discharges with negative bias, using the hydrodynamics method, and have calculated the spatiotemporal distributions of charged particles and the electric field. The contributions of each terms in momentum-balance equation of ions are also discussed under different approximations.

PACC: 5265; 5240K; 5280