Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д.В. Скобельцына

На правах рукописи

Волошин Дмитрий Григорьевич

Исследование процессов в плазме высокочастотных емкостных разрядов низкого давления, возбуждаемых на одной и двух частотах

01.04.08 – физика плазмы

ΑΒΤΟΡΕΦΕΡΑΤ

диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Москва – 2011

Работа выполнена в отделе микроэлектроники НИИ Ядерной физики имени Д.В. Скобельцына МГУ имени М.В. Ломоносова.

Научный руководитель:	кандидат физико-математических наук,
	Рахимова Татьяна Викторовна
Официальные оппоненты:	доктор физико-математических наук, профессор, Александров Андрей Федорович (Физический факультет МГУ имени М. В. Ломоносова, г. Москва)
	доктор физико-математических наук, Филиппов Анатолий Васильевич, (Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований, г. Троицк)
Ведущая организация:	Санкт-Петербургский государственный политехнический университет

Защита состоится 27 апреля 2011 г. в 15 часов на заседании совета по защите докторских и кандидатских диссертаций Д.501.001.45 при Московском Государственном Университете имени М. В. Ломоносова, расположенном по адресу: 119991, Россия, г. Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 5, НИИ ядерной физики имени Д. В. Скобельцына МГУ имени М. В. Ломоносова (19-й корпус), аудитория 2-15.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИИ ядерной физики имени Д. В. Скобельцына МГУ имени М. В. Ломоносова.

Автореферат разослан 23 марта 2011 г.

Ученый секретарь совета по защите докторских и кандидатских диссертаций Д.501.001.45, кандидат физико-математических наук

Вохник О. М.

Общая характеристика работы

Актуальность работы. Интерес к изучению неравновесной низкотемпературной плазмы газовых разрядов связан с ее интенсивным использованием в современной технологии. Это и обработка материалов в плазменных реакторах, которая включает в себя: травление, очистку, напыление (получение материалов с заданными свойствами), и получение интенсивных источников излучения.

Современные исследования в области масштабирования полупроводниковых приборов направлены на решение проблемы создания структур на субмикронном уровне. Выполнение этой задачи требует решения многих сложных фундаментальных и технологических проблем. Плазменное травление является важнейшим звеном в решении проблемы. В плазменных реакторах анизотропность травления достигается за счет того, что ионы в электрическом поле в приэлектродном слое ускоряются в направлении, перпендикулярном электроду. Скорость процессов определяется величиной потока ионов и радикалов из плазмы, которая непосредственно зависит от плотности плазмы. Селективность процессов травления обеспечивается за счет плазмохимических процессов на поверхности обрабатываемого материала. В этом заключается уникальность использования плазмы в технологии, совокупность физических и химических свойств которой позволяет производить механическое воздействие за счет ускоренных ионов, приводящее к распылению обрабатываемой поверхности; добавляя различные газы, можно добиться необходимых плазмохимических процессов на поверхности обрабатываемого образца.

На данный момент наиболее изучены процессы в ВЧ емкостной плазме, возбуждаемой на частоте 13,56 МГц. Детальное исследование самоорганизации такой плазмы осуществлялось в условиях разрядной ячейки GEC Reference Cell [1], когда плотность плазмы не превышала 10¹⁰ см⁻³.

В настоящее время идет поиск плазменных систем для нового поколения реакторов травления субмикронных структур при высокой скорости, анизотропии и селективности процесса. Для этого необходимо создать плазму высокой плотности (порядка 10¹¹ см⁻³), а также должна существовать возможность эффективного управления энергией ионов, воздействующих на подложку. Для функционального разделения этих процессов в последнее время стали использовать плазму, возбуждаемую ВЧ емкостными разрядами на двух сильно разнесенных частотах (ДЧ ВЧЕ разряды). В таких разрядах плотность плазмы контролируется высокой частотой, а энергия ионов – низкой. Диапазоны изменения низкой (НЧ) и очень высокой (ОВЧ) частот мегагерцового диапазона лежат в пределах от 0,5 до 13,56 МГц и от 27 до 160 МГц, соответственно [2].

Одно из главных применений ВЧ емкостной плазмы – травление диэлектрических материалов [2]. Травление новых диэлектрических материалов с низкой константой диэлектрической проницаемости (low-k материалы), являющихся пористыми материалами, необходимо проводить с прецизионной точностью для минимизации дефектов в процессе травления. Поэтому для травления таких материалов исследуется возможность применения плазмы ДЧ разряда [3].

Известно, что для правильного и адекватного описания процессов травления необходимо знать плотность электронов, ионов, радикалов и энергию ионов на поверхности обрабатываемого материала в плазме сложного состава [2]. Например, процессы анизотропного травления low-k материалов илут во фторуглеродной или фторуглеводородной плазме, где буферным газом является аргон. В плазме фторуглеродов большую роль в установлении параметров плазмы играет образование полимерной фторуглеродной пленки на поверхности обрабатываемых образцов (электродов). Реакции на поверхности (стенках камеры) с участием фторуглеродных радикалов приводят к росту пленки [2]. При этом разрушение пленки атомарным фтором и ионами ведет, наоборот, к выходу полимерных фторуглеродных частиц (молекул) в газовую фазу. Этот процесс во многом определяет баланс фторуглеродных радикалов в объеме плазмы.

Управление энергией и потоком ионов и процессом образования активных частиц в плазме является одним из ключевых звеньев в процессе травления. В связи с этим, для управления параметрами плазмы в ВЧЕ реакторах нового поколения, возбуждаемых одновременно на низкой (~ 2 МГц) и высокой (~ 27 – 81 МГц) частотах, необходимо исследование особенностей самоорганизации плазмы, как раздельно на каждой из частот, так и в двухчастотном режиме, в зависимости от параметров разряда и от состава газовой смеси.

Целью диссертационной работы является исследование процессов в плазме высокочастотных емкостных разрядов низкого давления, возбуждаемых на одной (1,76, 27 и 81 МГц) и двух (1,76 МГц – 27 МГц, 1,76 МГц – 81 МГц) частотах. Для данного исследования был создан ряд моделей движения частиц в плазме, сконструированы и протестированы наборы сечений рассеяния электронов в сложных газах и разработана и протестирована на экспериментальных данных кинетика процессов в сложных газовых смесях.

Научная новизна работы состоит в следующем. Разработана самосогласованная модель емкостного разряда на основе метода «Частиц в Ячейке» с Монте-Карло столкновениями (МЧЯ МК), в которой в кинетическом подходе рассматривается движение не только электронов и ионов, но и быстрых нейтральных частиц, что позволяет адекватно

описывать поверхностные процессы на электроде. Впервые получен аналитический вид функции распределения ионов по энергии в двухчастотном разряде в промежуточном частотном диапазоне, который реализуется в большинстве реальных приложений двухчастотного разряда. Создана полуаналитическая модель движения ионов в слое, позволяющая проводить экспресс-диагностику ионного спектра с учетом столкновений ионов с нейтральными частицами. Разработан самосогласованный набор сечений рассеяния электронов на молекуле CHF₃ и выявлены особенности кинетики разряда в смесях Ar/CHF₃ и Ar/CF₄.

Практическая значимость. Расчеты, проведенные в данной работе, позволили объяснить ряд особенностей электронной и плазмохимической кинетики в разрядах и газовых средах, широко используемых в современных технологиях.

Исследование кинетики ионов и электронов в плазме одночастотных и двухчастотных разрядов является необходимым этапом для создания адекватных моделей, позволяющих рассчитывать сложные плазмохимические реакторы для различных процессов в технологии.

На защиту выносятся следующие основные результаты и положения:

• Набор сечений рассеяния электронов на молекуле CHF₃, описывающий транспортные характеристики как в чистом газе, так и в смесях с аргоном, а также согласующийся с имеющимися экспериментальными данными по диссоциации и ионизации CHF₃;

• Сравнение существующих наборов сечений рассеяния электронов на молекуле CF₄ с результатами их использования при моделировании транспортных характеристик;

• Объяснение влияния динамических эффектов в слое в случае низкочастотного разряда на несинусоидальность разрядного тока в симметричном ВЧ разряде;

• Результаты исследования влияния поверхностных процессов на электроде на параметры плазмы;

• Результаты самосогласованного расчета по методу «Частиц в Ячейке» с Монте-Карло столкновениями одночастотного разряда 1,76 МГц, 27 МГц, 81 МГц, двухчастотного разряда 1,76 МГц – 81 МГц и 1,76 МГц – 27 МГЦ в аргоне, а также высокочастотного разряда 81 МГц в смесях Ar/CHF₃ и Ar/CF₄ с указанием особенностей плазмохимических реакций в данных смесях;

• Аналитическая модель функции распределения ионов по энергии (ФРИЭ) в двухчастотном разряде в промежуточном частотном режиме;

• Результаты полуаналитического моделирования спектров ионов на электроде в двухчастотном разряде и их сравнение с самосогласованными расчетами;

• Критерии разделения функций двух частот с точки зрения возможности контроля энергии ионов независимо от мощности на высокой частоте и с точки зрения возможности контроля плотности плазмы независимо от мощности на низкой частоте.

Апробация работы была проведена в процессе публикаций и докладов результатов работы на ряде российских и международных конференций. Материалы, изложенные в диссертации, докладывались на следующих конференциях:

- Международная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых по фундаментальным наукам "Ломоносов-2005", Москва, Россия, 2005;

- IV Международный симпозиум по теоретической и прикладной плазмохимии, Звенигород, 2005;

- International Workshop and Summer School on Plasma Physics, Китен, Болгария, 2005;

- Всероссийская конференция по физике низкотемпературной плазмы ФНТП—2007, Петрозаводск, Россия, 2007;

- XXVIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases, Прага, Чехия, 2007;

- Third International Workshop and Summer School on Plasma Physics, Китен, Болгария, 2008;

- 19th International Symposium on Plasma Chemistry, Бохум, Германия, 2009;

- 59th Annual Gaseous Electronics Conference, Париж, Франция, 2010;

- IV Всероссийская Школа-семинар. Инновационные аспекты фундаментальных исследований. Звенигород – Москва, 2010;

Публикации. Материалы диссертации опубликованы в 22 печатных работах, из них: 7 статей в рецензируемых журналах [А1 - А7], 10 статей в сборниках трудов конференций [А8 - А17] и 5 тезисов докладов [А18 - А22].

Личный вклад автора. Содержание диссертации и основные положения, выносимые на защиту, отражают персональный вклад автора в опубликованные работы. Подготовка к публикации полученных результатов проводилась совместно с соавторами, причем вклад диссертанта был определяющим. Все представленные в диссертации теоретические и численные результаты получены лично автором. Автором разработаны модели расчета функции распределения электронов по энергии (ФРЭЭ) и кинетических коэффициентов при движении в постоянном электрическом поле на основе метода Монте-Карло И полуаналитическая модель движения ионов в приэлектродном слое. Самосогласованная модель на основе метода Частиц в Ячейке с Монте-Карло столкновениями [4] была расширена автором на случай кинетического описания движения ионов, что позволило правильно описывать поведение плазмы в разрядах низкого давления 20 – 45 мТор.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, обзора литературы, 5 глав, заключения и библиографии. Общий объем диссертации составляет 154 страницы. Библиография включает 190 наименований на 15 страницах. Первая глава посвящена описанию используемых в данной работе моделей. Вторая глава описывает создание самосогласованного набора сечений рассеяния электронов на молекуле CHF₃, а также тестирование существующих наборов сечений для молекулы CF₄. Третья глава моделирования посвящена результатам самосогласованного емкостного разряда, возбуждаемого на одной частоте в аргоне. Рассматривается низкочастотный разряд 1,76 МГц и высокочастотные разряды 27 МГц и 81 МГц. Четвертая глава описывает результаты моделирования емкостного разряда в аргоне, возбуждаемого на двух частотах. Представлена аналитическая теория формирования спектра ионов в ДЧ разряде, а результаты данной теории сравниваются с полуаналитическими и самосогласованными численными расчетами. Также представлены экспериментальные данные о параметрах плазмы в ДЧ разряде. Пятая глава посвящена результатам МЧЯ МК моделирования высокочастотного разряда 81 МГц в смесях аргона с фторуглеродами. Проведено сравнение экспериментальных и расчетных данных о плотности радикалов CF₂, H, F. Указаны особенности плазмохимических реакций в рассматриваемых смесях. В заключении сформулированы основные результаты и выводы работы.

Содержание работы

Во введении обоснована актуальность диссертационной работы, сформулирована цель и аргументирована научная новизна исследований, показана практическая значимость полученных результатов, представлены выносимые на защиту научные положения.

В обзоре литературы приведены классификация и описание основных численных и аналитических методов моделирования газовых разрядов. Представлен обзор работ, посвященных исследованию высокочастотного емкостного разряда, исследованию функции распределения ионов по энергии в таких разрядах. Также описаны имеющиеся работы по исследованию процессов во фторуглеродной плазме.

В первой главе описаны разработанные модели для изучения кинетики частиц плазмы.

В <u>разделе 1.1</u> представлена модель вычисление ФРЭЭ в заданных полях методом Монте-Карло. Данная модель используется как при построении нового самосогласованного набора сечений рассеяния электрона на молекуле CHF₃ (раздел 2.1), так и для тестирования существующих наборов сечений для Ar (раздел 2.1) и для молекулы CF₄ (раздел 2.2) по

экспериментальным данным, полученным в дрейфовых трубках. В качестве входных данных модель принимает тестируемый или предложенный новый набор сечений рассеяния электрона на заданном газе. В процессе моделирования траектории частиц рассчитываются исходя из уравнений Ньютона, тогда как столкновения трактуются статистически согласно сечениям процессов с использованием случайных чисел для определения типа столкновения, угла рассеяния и направления вектора скорости электрона после рассеяния.

Рассчитываются ФРЭЭ, дрейфовая скорость и средняя энергия электронов, коэффициенты продольной и поперечной диффузии, а также константы процессов возбуждения и ионизации в зависимости от значения приведенного электрического поля *E*/*N*.

В <u>разделе 1.2</u> описана полуаналитическая модель движения ионов в приэлектродном слое в заданном электрическом поле с целью получения их функции распределения по энергии на электроде. Модель предназначена для быстрой оценки вида ФРИЭ на электроде, а также для тестирования аналитических видов ФРИЭ (раздел 4.1). Модель включает в себя уравнения для электрического поля в слое, уравнение движения границы слоя и метод Монте-Карло для учета столкновений иона с нейтральными частицами. Входные параметры для данной модели могут быть получены из глобальной модели разряда или из имеющихся экспериментальных данных. В данной работе полуаналитическая модель использована в ОЧ и ДЧ ВЧЕ разрядах для анализа движения ионов Ar^+ . При движении ионов учитываются резонансная перезарядка Ar^+ и упругое рассеяние ионов Ar^+ на атомах Ar. Выражение для электрического поля в слое записывается в виде:

$$E(x,t) = \begin{cases} \frac{2V}{s_m^2} (x - s_1(t)), & x < s_1(t) \\ 0, & x > s_1(t) \end{cases}$$
(1), (1),

где s_m – максимальная ширина слоя, V – напряжение на электродах (в случае двухчастотного разряда – сумма напряжений V₁ и V_h на низкой и высокой частотах соответственно), $s_1(t)$ - подвижная граница слоя, движение которой описывается формулой:

в одночастотном случае
$$s_1(t) = \frac{s_m}{2} (1 + \cos wt)$$
 (2),

и в двухчастотном случае
$$s_1(t) = \frac{s_m}{2} \left(1 + \frac{V_l}{V_l + V_h} \cos(w_l t) + \frac{V_h}{V_l + V_h} \cos(w_h t) \right)$$
 (3)

Линейная пространственная зависимость электрического поля в слое соответствует предположению о постоянном профиле концентрации ионов в слое. Такой случай можно рассматривать в качестве первого приближения, так как градиент концентрации ионов в области слоя гораздо меньше градиента концентрации ионов на границе плазмы и слоя.

В разделе 1.3 представлена самосогласованная модель емкостного разряда на основе

метода Частиц в ячейке с Монте-Карло столкновениями. Это полная модель, включающая кинетическое рассмотрение движения электронов, ионов и быстрых нейтральных частиц, уравнение Пуассона для самосогласованного электрического поля, а также уравнения для пространственного распределения концентраций нейтральных частиц в гидродинамическом приближении. Данная модель позволяет проводить моделирование ВЧ разрядов из первых принципов. С помощью такого подхода исследована кинетика частиц и структура одночастотного разряда в аргоне (глава 3), двухчастотного разряда в аргоне (глава 4), а также высокочастотного разряда в смесях Ar/CHF₃, Ar/CF₄ (глава 5).

На каждом временном шаге последовательно решались уравнения движения для электронов, ионов и быстрых атомов, уравнения непрерывности для нейтральных компонент, а также уравнение Пуассона для определения самосогласованного электрического поля. На каждом временном шаге каждая квазичастица может участвовать в столкновениях с нейтральными частицами.

В качестве входного параметра модели использована вложенная в разряд мощность в ОЧ случае и полная вложенная мощность и напряжение на низкой частоте в ДЧ случае. Предполагается, что напряжение имеет синусоидальную форму $V = V_0 \sin wt$ в ОЧ случае и представляет сумму двух синусоид $V = V_l \sin w_l t + V_h \sin w_h t$ в двухчастотном случае. Амплитуда напряжения на низкой частоте V₁ задается или принимается равной экспериментальному значению. Значение V_h (V₀ в ОЧ случае) варьируется в процессе вычислений таким образом, чтобы значение средней вложенной мощности было равно заданному.

В модели учтена вторичная эмиссия электронов (ВЭЭ) под действием потока ионов, быстрых атомов, метастабильных частиц и фотонов. Вероятность вылета электрона из электрода под ударом ионов и быстрых атомов g зависит не только от поверхности электрода, но и от энергии налетающей частицы e. Поэтому в данной работе использована зависимость g от энергии ионов Ar⁺ и быстрых атомов Ar^{fast}, предложенная в [5]. Зависимость g(e) приведена на рисунке 1.

В случае разряда на низкой частоте и в определенных режимах ДЧ разряда электронный ток на электрод в данную фазу может быть равен максимальному полному току. Поэтому необходимо правильно учитывать процессы электрон-электронной эмиссии. В модель включено упругое и неупругое отражение электронов от поверхности электродов, а также рождение вторичных электронов под действием налетающего потока электронов. В моделируемых экспериментах электроды разряда были сделаны из алюминия. На рисунке 2 приведены коэффициенты полного отражения s и неупругого отражения h для

алюминиевого электрода [6].





Рис. 2. Коэффициенты электронэлектронной эмиссии (включая отражение электронов)

Во второй главе рассмотрено рассеяние электронов на молекулах CF₄ и CHF₃. Процессы анизотропного травления диэлектрических материалов в OЧ и ДЧ ВЧЕ разрядах идут во фторуглеродной или фторуглеводородной плазме. Для моделирования такой плазмы необходимы данные о сечениях рассеяния электронов на сложных молекулах фторуглеродов и фторуглеводородов. Однако трудность построения набора сечений для таких молекул заключается в отсутствии экспериментальных данных по низкопороговому рассеянию электронов, в частности, по сечениям возбуждения колебательных уровней. Вследствие этого имеется некоторая неопределенность в выборе таких сечений при построении набора сечений из расчетов транспортных коэффициентов только в собственном газе.

<u>Раздел 2.1</u> посвящен созданию набора сечений рассеяния электронов на молекуле CHF₃. При создании самосогласованного набора сечений, необходимого для моделирования процессов в плазме, требуется, чтобы расчеты, проведенные с данным набором, правильно описывали экспериментальные данные по транспортным коэффициентам, как в собственном газе, так и в различных смесях. Опубликованные ранее наборы для молекулы CHF₃ [7, 8] были протестированы на транспортных коэффициентах только в чистом газе. В одном из наборов [8] сечения диссоциации имеют значительные расхождения с экспериментальными данными. Также в сечениях диссоциации этого набора отсутствует резонансное припороговое поведение, полученное в квантовомеханических расчетах в работе [7]. Именно припороговые значения сечения главным образом определяют константу диссоциации в исследуемом диапазоне полей.

На основе имеющихся экспериментальных и теоретических данных по сечениям рассеяния электронов на молекуле CHF₃, а также на основе экспериментальных транспортных

коэффициентов (дрейфовая скорость, коэффициент ионизации) в смесях CHF₃ с Ar и чистом CHF₃ с помощью модели, описанной в разделе 1.1, был построен новый самосогласованный набор сечений рассеяния электронов на молекуле CHF₃. Данный набор показан на рисунке 3. Этот набор является физически обоснованным и описывает транспортные коэффициенты как в чистом CHF₃, так и в различных смесях CHF₃:Ar [A1].



Рис. 3. Набор сечений рассеяния электрона на молекуле CHF₃

В <u>разделе 2.2</u> приводятся результаты сравнения существующих наборов сечения для молекулы CF₄ вместе с результатами расчетов транспортных коэффициентов при использовании данных наборов. Тетрафторметан активно используется в плазменных реакторах травления. Поэтому для моделирования процессов в таких реакторах необходимо выбрать набор сечений для расчетов, а также понимать, к чему может привезти использование разных наборов.

Для сравнения наборов сечений проведен расчет кинетических коэффициентов в постоянном приведенном электрическом поле (см. раздел 1.1). Было показано, что переход от режима с низкой характеристической энергией к режиму с высокой характеристической энергией электронов происходит при разных значениях приведенного электрического поля в зависимости от используемого набора сечений. Наибольшие отличия от экспериментальных

данных в рассчитанных транспортных коэффициентах, а также переход от режима с низкой энергией электронов к режиму с высокой энергией электронов происходят в области приведенных электрических соответствующей отрицательной полей, области Данный эффект обусловлен наличием больших дифференциальной проводимости. колебательных сечений в области Рамзауэровского минимума транспортного сечения. Как показали проведенные тестовые расчеты, значение транспортных коэффициентов оказывается очень чувствительным к значениям сечений колебательного возбуждения. Как и в случае молекулы CHF₃, большие колебательные сечения являются значительным каналом неупругих потерь и определяют вид ФРЭЭ при не слишком высоких значениях Е/N или энергии электронов.

Результаты второй главы опубликованы в работах [А1, А3, А7, А8, А18, А20].

В третьей главе представлены результаты самосогласованного моделирования одночастотного разряда в аргоне, возбуждаемого на низкой частоте 1,76 МГц и на высокой частоте 27 МГц и 81 МГц.

В <u>разделе 3.1</u> на основе расчетов по самосогласованной модели МЧЯ МК приведено объяснение экспериментальной несинусоидальной формы разрядного тока в низкочастотном симметричном разряде. На рисунке 4 представлена экспериментальная осциллограмма разрядного тока и напряжения в зависимости от времени. Гладкая синусоидальная кривая на рисунке соответствует измеренному напряжению на электродах. Ток в разряде представлен кривой, близкой к треугольной.

Показано, что наблюдаемый эффект связан с динамическими процессами в приэлектродном слое в разряде на низкой частоте, когда время движении ионов в слое τ_{ion} соотносится с периодом электрического поля t_{RF} как $t_{ion} / t_{RF} <<1$, а Бомовское время $t_B = \frac{s_m}{\sqrt{T_e / M}} << t_{RF}$ (s_m – характерная ширина слоя, T_e – температура электронов, M - масса

иона). Бомовское время описывает характерный временной промежуток, необходимый ионному потоку из области квазинейтральной плазмы для поддержания профиля концентрации ионов в приэлектродном слое.

На рисунке 5 показано движение границы слоя в течение одного периода из самосогласованного моделирования. В данном динамическом случае слой движется к электроду в 3 раза быстрее, чем от него. В результате такого движения границы слоя электронный ток на электрод приобретает несинусоидальную (практически треугольную) форму, которая отчетливо видна на рисунке 5. Доля тока проводимости в полном токе в области слоя становится выше с понижением частоты приложенного напряжения. При

частоте 1,76 МГц электронный ток в определенные фазы НЧ периода (когда плазма прижимается к электроду) становится равным максимальному полному току в разряде. Поэтому в данном динамическом случае разрядный ток принимает несинусоидальную, близкую к треугольной форму. Показано, что в отличие от рассмотренных в литературе режимов квазистационарного слоя, в динамическом режиме ионы значительную часть периода двигаются со звуковой (v_i~v_b = $\sqrt{\kappa T_e/M_{ion}}$) скоростью.



Рис. 4. Экспериментальная осциллограмма тока и напряжения. 1,76 МГц, 60 Вт, 45 мТор





Также в данном разделе представлен ряд динамических эффектов, характерных для разрядов возбуждаемых на низкой частоте: модуляция ФРЭЭ, режим горения разряда без области стационарной квазинейтральной плазмы.

<u>Раздел 3.2</u> посвящен исследованию влияния процессов на поверхности электрода с участием потока заряженных частиц на структуру разряда. В одночастотном разряде на частоте 1,76 МГц, а также в двухчастотном разряде 1,76 МГц – 81 МГц амплитуда напряжение на низкой частоте может достигать значений порядка 1700 В. При таких падениях напряжения на приэлектродном слое следует уделить особое внимание учету вторичной электронной эмиссии от падающих на электрод частиц.

С целью определения влияния различных подходов в описании процессов вторичной электронной эмиссии (ВЭЭ) на структуру разряда была проведена серия расчетов низкочастотного разряда 1,76 МГц с постоянным коэффициентом g = 0,1 и с учетом зависимости g от энергии ионаg = g(E). По результатам расчетов учет зависимости g = g(E) приводит к росту концентрации электронов, уширению области квазинейтральной плазмы, росту средней энергии электронов, уменьшению напряжения на электроде при

заданной мощности.

В диапазоне исследуемых параметров доля ВЭЭ в низкочастотном разряде на частоте 1,76 МГц от разных источников располагается примерно следующим образом: 46 % - от потока быстрых атомов Ar, 37 % - от потока ионов Ar⁺, 12 % - от метастабильных атомов Ar*, 5 % - от резонансного излучения. Таким образом, основной вклад во вторичную электронную эмиссию в разряде в аргоне вносят процессы взаимодействия быстрых атомов и ионов с электродами. Однако для полного описания взаимодействия плазмы с поверхностью электродов необходимо также учитывать процессы, связанные с потоком электронов на электрод.

Проведенные расчеты показали, что выбор полной модели отражения электронов и рождения истинно вторичных электронов (далее для краткости вторичная электронэлектронная эмиссия - ВЭЭЭ) должен быть хорошо физически обоснованным, так как данные процессы оказывают большое влияние на разряд в целом.

Необходимость учета процессов отражения электронов в исследуемых условиях проиллюстрирована сравнением экспериментальных данных по пространственновременному распределению функции возбуждения состояния Ar (2p1) с результатами расчетов по самосогласованной модели. Показано, что только с учетом ВЭЭЭ возможно объяснение пространственно-временных профилей функции возбуждения. Учет ВЭЭЭ увеличивает долю периода, в которой происходит возбуждение состояния Ar (2p1), а также вызывает возбуждение состояния Ar (2p1) вблизи электрода, что более соответствует экспериментальным данным.

В <u>разделе 3.3</u> приведены основные различия в параметрах одночастотного разряда на низкой и высокой частоте. Продемонстрировано изменение динамики нагрева электронов при увеличении частоты разряда: от нагрева в приэлектродных слоях в низкочастотном разряде к нагреву на границе плазмы и слоя в высокочастотном разряде (смотри рисунок 6).

Показаны изменения параметров разряда: ширина приэлектродных слоев, концентрация плазмы, напряжение на электроде, ФРЭЭ при переходе от низкой частоты 1,76 МГц к высокой частоте 81 МГц.

Результаты третьей главы опубликованы в работах [А6, А21].

В четвертой главе представлены результаты исследования двухчастотного емкостного разряда в аргоне. Интерес к использованию двухчастотных разрядов вызван возможностью более гибкого контроля над параметрами плазмы.



Как было впервые показано экспериментально в нашей группе [A2], добавление даже малой мощности на низкой частоте приводит к изменению формы функции распределения ионов по энергии с моноэнергитичной в высокочастотном случае на бимодальную в двухчастотном случае (см. рис. 7). Такое изменение спектра ионов связано и изменением динамики приэлектродных слоев.





ДЧ разряд 1,76 - 81 МГц, давление 20 мТор, мощность на высокой частоте 5, 10, 20 Вт, мощность на низкой частоте ~ 1 Вт

В <u>разделе 4.1</u> впервые представлен аналитический расчет ФРИЭ в двухчастотном разряде для промежуточного частотного диапазона ($w_l \ll w_i \ll w_h$) [A4]. Данный режим типичен для многих технологических приложений ДЧ разряда.

Получено выражение для минимальной и максимальной энергии ионов в функции распределения ионов по энергии на электроде в ДЧ разряде:

$$\boldsymbol{e}_{i}^{\min} = \frac{3}{8} \boldsymbol{a}_{h}^{2} \boldsymbol{e} \boldsymbol{V}_{0}, \qquad \boldsymbol{e}_{i}^{\max} = \left(\frac{3}{8} \boldsymbol{a}_{h}^{2} + \boldsymbol{a}_{h} \boldsymbol{a}_{l} + \boldsymbol{a}_{l}^{2}\right) \boldsymbol{e} \boldsymbol{V}_{0}, \qquad (5)$$

где $a_l = \frac{V_l}{V_l + V_h}$, $a_h = \frac{V_h}{V_l + V_h}$, параметры, определяющие долю напряжения на каждой из

частот.

Аналитическое выражение для ширины спектра:

$$\Delta \boldsymbol{e} = \boldsymbol{e}_i^{\max} - \boldsymbol{e}_i^{\min} = \boldsymbol{e} \boldsymbol{V}_l \tag{6}$$





Рис. 8. Аналитический вид ФРИЭ в двухчастотном ВЧ разряде в промежуточном случае. По оси х отложено нормированное значение энергии ионов e_i/eV_0 . Набор графиков приведен для ряда значений параметра a_i в диапазоне от 0 до 1.



Рис. 9. Сравнение результатов МЧЯ МК моделирования ФРИЭ в ДЧ разряде с результатами полуаналитического моделирования, сделанного с учетом коррекции скоростей ионов при входе в слой. Напряжения V_h = 250 B; V_l =100 B.

Таким образом, для минимизации влияния высокой частоты на спектр ионов необходимо, чтобы амплитуда напряжения на низкой частоте была значительно больше амплитуды напряжения на высокой частоте. При таком режиме в масштабах ширины ФРИЭ (определяемой V₁) разница в положении первого максимума (определяемого V_h) при изменении мощности на высокой частоте становится менее существенной.

Результаты аналитической теории находятся в хорошем согласии с данными численного расчета ФРИЭ в двухчастотном разряде в рамках полуаналитического подхода (раздел 1.2), а также с данными, полученными методом МЧЯ МК.

Показано, что полуаналитический расчет ФРИЭ с учетом амбиполярного потенциала плазмы находятся в хорошем согласии с результатами МЧЯ МК. Результат расчета

представлен на Рис. 4.9, где на одном графике приведены ФРИЭ полуаналитической модели и МЧЯ МК, полученные при значениях $V_l = 100$ В, $V_h = 250$ В. Как видно из рисунка, спектры практически совпадают.

В разделе 4.2 приведен анализ экспериментальных данных ДЧ ВЧЕ разряда в аргоне, используемых при исследовании процессов на основе самосогласованного моделирования. На рисунке 10 показана плотность электронов в центре разрядного промежутка в зависимости от вложенной мощности на низкой частоте при постоянной мощности, вкладываемой на высокой частоте. Давление аргона составляло p = 20мТор. определить Представленные результаты позволяют параметры разряда, наиболее благоприятные для контроля над концентрацией плазмы независимо от мощности на низкой частоте: широко разнесенные частоты – 1,76 МГц и 81 МГц, давление газа р <= 45 мТор, соотношение напряжений и мощностей: $V_1 >> V_h$, $P_1 \sim P_h$.



Рис. 11. Плотность плазмы в зависимости от вложенной мощности на частоте 1,76 МГц. Мощность на частоте 81 МГц: 11, 22, 28, 42 Вт. Давление газа р = 20 мТор

Рис. 12. Концентрация электронов в центре разряда в зависимости от напряжения на низкой частоте. ДЧ разряд 1,76 МГц – 81 МГц

<u>Раздел 4.3</u> посвящен результатам самосогласованного моделирования ДЧ ВЧЕ разряда в аргоне на частотах 1,76 МГц – 27 МГц и 1,76 МГц – 81 МГц. Показаны различия ДЧ разрядов при разных значениях высокой частоты. Выявлены особенности структуры разряда в зависимости от изменения напряжения на каждой частоте. На рисунке 12 показана зависимость концентрации плазмы в центре разряда от напряжения на низкой частоте при фиксированном напряжении на высокой частоте для разных давлений нейтрального газа. Из рисунка видно, что в данном диапазоне параметров плазмы увеличение напряжения на низкой частоте приводит к уменьшению концентрации плазмы за счет увеличения приэлектродных слоев и уменьшения области квазинейтральной плазмы. Данный эффект присутствует также в экспериментальных данных при низком давлении 20 мТор (смотри

рисунок 11).

Результаты четвертой главы опубликованы в работах [А2, А4, А9 - А15, А19].

В пятой главе представлены результаты моделирования процессов в плазме фторуглеводородов на основе МЧЯ МК модели емкостного ВЧ разряда на частоте 81МГц в газовых смесях Ar/CF₄ и Ar/CHF₃. Сравнительный анализ экспериментальных данных и результатов вычислений позволил выявить основные особенности емкостного ВЧ разряда в Ar/CF₄ и Ar/CHF₃. Были использованы экспериментальные данные, полученные в лаборатории ОМЭ НИИЯФ МГУ. Пространственные распределения радикалов CF₂, атомов F и H были измерены методами пространственно разрешенной эмиссионной спектроскопии и абсорбционной спектроскопии. В газовой смеси Ar/CHF₃ произведены также зондовые измерения плотности плазмы и температуры электронов в разряде.



Рис. 12. Пространственные распределения заряженных (а) и нейтральных (б) частиц в ВЧ разряде в смеси Ar/CF₄=70/30. Кривые – результаты расчетов; символы – экспериментальные данные: квадрат- концентрация F; круг – концентрация CF₂; пунктирная кривая на рисунке (б) – экспериментальная концентрация CF₂, измеренная методом абсорбционной спектроскопии.

Все численные расчеты проведены для следующих параметров разряда: частота 81МГц, газовые смеси Ar/CF₄=70/30 и Ar/CHF₃=70/30 при давлении газа 45 мТор и вложенной в разряд мощности 10 Вт. На рисунке 12 представлены расчеты пространственных распределений заряженных и нейтральных частиц в разряде в смеси Ar/CF₄. В разряде в смеси Ar/CF₄ основным источником радикалов CF₂ является прямая диссоциация CF₄ электронным ударом. Экспериментальная и рассчитанная концентрация CF₂ в Ar/CHF₃ разряде примерно в пятьдесят раз превышает концентрацию этих радикалов в разряде Ar/CF₄ при одинаковой вложенной в разряд мощности. Было обнаружено, что

механизм цепных реакций играет определяющую роль в образовании радикалов CF_x в Ar/CHF_3 разряде и объясняет аномально высокую концентрацию радикалов CF_2 , наблюдаемую в эксперименте.



Рис. 13. Пространственные распределения заряженных (а) и нейтральных (б) частиц в ВЧ разряде в смеси Ar/CHF₃ =70/30. Кривые – результаты расчетов; символы – экспериментальные данные: ромб – суммарная концентрация положительных ионов; звездочка – средняя энергия электронов; квадрат- концентрация F; круг – концентрация CF₂; треугольник – концентрация H. Пунктирная кривая на рисунке (б) – экспериментальная концентрация CF₂, измеренная методом абсорбционной спектроскопии.

Результаты расчетов в смеси Ar/CHF₃ приведены на рисунке 13, где представлены пространственные распределения заряженных (а) и нейтральных (б) частиц в разряде.

Результаты пятой главы опубликованы в работах [А5, А16, А22].

В Заключении представлены основные выводы и результаты диссертации.

Основные результаты диссертационной работы

1. С использованием разработанной на основе метода Монте-Карло модели движения электронов в постоянном электрическом поле получен набор сечений рассеяния электронов на молекуле CHF₃. Данный набор сечений описывает транспортные коэффициенты как в чистом CHF₃, так и в смесях CHF₃/Ar, а сечения диссоциации в нейтральные и ионные компоненты согласуются с имеющимися экспериментальными данными. Получено, что транспортные характеристики чувствительны к использованию при моделировании различных существующих наборов сечений рассеяния электронов на молекуле CF₄. Показано, что переход от режима с низкой характеристической энергией к режиму с высокой

характеристической энергией электронов происходит при разных значениях приведенного электрического поля в зависимости от используемого набора сечений.

2. На основе расчетов по самосогласованной модели МЧЯ МК дано объяснение несинусоидальной формы разрядного тока в одночастотном симметричном разряде на низкой частоте 1,76 МГц. Показано, что корректный учет поверхностных процессов на электроде (зависимость коэффициента вторичной электронной эмиссии от энергии падающей частицы, а также эмиссия от потока налетающих электронов) существенно влияет на параметры плазмы. Продемонстрировано изменение динамики нагрева электронов при увеличении частоты разряда: от нагрева в приэлектродных слоях в низкочастотном разряде к нагреву на границе плазмы и слоя в высокочастотном разряде. Показаны изменения параметров разряда: ширина приэлектродных слоев, концентрация плазмы, напряжение на электроде, ФРЭЭ при переходе от низкой частоты 1,76 МГц к высокой частоте 81 МГц.

3. Получен аналитический вид функции распределения ионов по энергии в двухчастотном разряде в промежуточном частотном режиме. Ширина функции распределения определяется напряжением на низкой частоте, а положение на энергетической оси – как напряжением на высокой частоте, так и параметром, учитывающим относительный вклад каждой из частот. На основе данного вида функции распределения получен критерий возможности контроля энергии ионов независимо от мощности на высокой частоте: напряжение на низкой частоте должно быть много больше напряжения на высокой частоте.

4. Самосогласованное моделирование ДЧ разряда показало особенности формирования спектра ионов в двухчастотном разряде. Получены результаты, описывающие динамику столкновений и вкладываемой мощности в электронную подсистему разряда. На основе численных расчетов показаны параметры разряда, наиболее соответствующие возможности контроля энергии ионов независимо от мощности на высокой частоте и возможности контроля плотности плазмы независимо от мощности на низкой частоте. Данные параметры подтверждаются также анализом экспериментальных данных для ДЧ разряда.

5. Продемонстрирована возможность использования полуаналитической модели движения ионов в приэлектродном слое для оценки энергетического спектра ионов на электроде в двухчастотном разряде. Данная модель включает в себя заданное выражение для электрического поля в предположении постоянной концентрации ионов в слое и метод Монте-Карло для учета столкновений ионов с нейтральными частицами. Дополнительный учет амбиполярного потенциала плазмы позволяет получить спектры ионов практически идентичные спектрам, полученным в самосогласованном расчете, при гораздо меньших вычислительных затратах.

6. Сравнительный анализ экспериментальных данных и результатов вычислений позволил выявить основные особенности емкостного ВЧ разряда в Ar/CF₄ и Ar/CHF₃. Так, в Ar/CF₄ разряде основным источником радикалов CF₂ является прямая диссоциация CF₄ электронным ударом. Экспериментальная и рассчитанная концентрация CF₂ в Ar/CHF₃ разряде примерно в пятьдесят раз превышает концентрацию этих радикалов в разряде Ar/CF₄ при одинаковой вложенной в разряд мощности. Обнаружено, что механизм цепных реакций играет определяющую роль в образовании радикалов CF_x в Ar/CHF₃ разряде.

Полученные в данной работе результаты позволят продолжить дальнейшее исследование свойств ДЧ разрядов в сложных газовых смесях, используемых в плазменных реакторах травления.

Список публикаций

- A1. Voloshin D. G., Rakhimova T. V., Klopovskiy K. S., Mankelevich Y. A. Development of the electron impact cross section set for CHF3. Monte Carlo simulation of the swarm experiments in pure CHF₃ and CHF₃/Ar mixtures // Journal of Physics: Conference Series. 2006. Vol. 44, no. 1. P. 121.
- A2. Rakhimova T. V., Braginsky O. V., Ivanov V. V. et al. Experimental and Theoretical Study of Ion Energy Distribution Function in Single and Dual Frequency RF Discharges // Plasma Science, IEEE Transactions on. 2007. – oct. Vol. 35, no. 5. Pp. 1229 –1240.
- A3. Voloshin D. G., Klopovskiy K. S., Mankelevich Y. A. et al. Simulation of Gas-Phase Kinetics in CHF₃: H₂: O₂ Mixtures // IEEE Transactions on Plasma Science. 2007. Vol. 35. Pp. 1691–1703.
- A4. Olevanov M., Proshina O., Rakhimova T., Voloshin D. Ion energy distribution function in dual-frequency rf capacitively coupled discharges: Analytical model // Phys. Rev. E. 2008. Aug. Vol. 78, no. 2. P. 026404.
- A5. Rakhimova T. V., Braginsky O. V., Klopovskiy K. S. et al. Experimental and Theoretical Studies of Radical Production in RF CCP Discharge at 81-MHz Frequency in Ar/CF₄ and Ar/CHF₃ Mixtures // IEEE Transactions on Plasma Science. 2009. Vol. 37. Pp. 1683–1696.
- A6. Voloshin D., Proshina O., Rakhimova T. Dynamic effects in dual-frequency capacitively coupled discharges // Journal of Physics: Conference Series. 2010. Vol. 207, no. 1. P. 012026.
- A7. Proshina O. V., Rakhimova T. V., Rakhimov A. T., Voloshin D. G. Two modes of capacitively coupled rf discharge in CF₄ // Plasma Sources Science and Technology. 2010. Vol. 19, no. 6. P. 065013.
- А8. Волошин Д. Г., Клоповский К. С., Попов Н. А., Рахимова Т. В. Моделирование

газофазной кинетики CF₄:CHF₃:O₂ смесей // IV Международный симпозиум по теоретической и прикладной плазмохимии (2005 г.) Сборник трудов. 2005. Т. 1.

- А9. Волошин Д. Г., Иванов В. В., Ковалев А. С. и др. Теоретическое изучение функции распределения ионов по энергии в двухчастотных емкостных разрядах // Физика низкотемпературной плазмы – 2007. Материалы Всероссийской (с международным участием) конференции. 2007. Т. 2. С. 74–79.
- А10. Волошин Д. Г., Олеванов М. А., Рахимова Т. В. Аналитический расчет функции распределения ионов по энергии в двухчастотном емкостном разряде // Физика низкотемпературной плазмы – 2007. Материалы Всероссийской (с международным участием) конференции. 2007. Т. 2. С. 143–148.
- А11. Волошин Д. Г., Брагинский О. В., Васильева А. Н. и др. Экспериментальное изучение двухчастотного разряда в аргоне при различных давлениях // Физика низкотемпературной плазмы – 2007. Материалы Всероссийской (с международным участием) конференции. 2007. Т. 2. С. 149–152.
- A12. Voloshin D. G., Ivanov V. V., Kovalev A. S. et al. Theoretical study of ion energy distribution function in dual frequency rf discharges // Proceedings of the XXVIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases. P. 5P09–15.
- A13. Voloshin D. G., Olevanov M. A., Rakhimova T. V. Analytical calculation of ion energy distribution function in dual frequency RF discharges // Proceedings of the XXVIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases. P. 5P09–16.
- A14. Voloshin D. G., Braginsky O. V., Kovalev A. S. et al. Evolution of electron temperature and density distributions in the interelectrode gap of DF CCP discharge during the rf period // Proceedings of the XXVIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases. P. 5P09–26.
- A15. Voloshin D. G., Braginsky O. V., Kovalev A. S. et al. Experimental study of dual frequency RF discharges in argon for different gas pressures // Proceedings of the XXVIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases. P. 5P09–21.
- A16. Braginsky O. V., Klopovskiy K., Kovalev A. et al. Radical production in RF CCP discharge at 81 MHz frequency in Ar/CF₄ and Ar/CHF₃ mixtures. Theory and experiment // Proceedings of the 19th International Symposium on Plasma Chemistry. P. 2.2.39.
- A17. Braginsky O. V., Kovalev A. S., Lopaev D. V. et al. Interaction of O and H Atoms with low-k SiOCH films pretreated in He plasma // Mater. Res. Soc. Symp. Proc. 2009. Vol. 1156. Pp. 1156–D01–06.
- А18. Волошин Д. Г. Создание самосогласованного набора сечений рассеяния электронов на молекуле CHF₃ // Международная конференция студентов, аспирантов и молодых

ученых по фундаментальным наукам «Ломоносов-2005» секция «Физика» сборник тезисов. 2005. Т. 1.

- A19. Proshina O., Braginsky O., Kovalev A. et al. Experimental and Theoretical Study of Ion Energy Distribution in SF and DF CCP discharges // 59th Annual Gaseous Electronics Conference. 2006. P. SRP1.00018.
- A20. Proshina O., Rakhimova T., Rakhimov A., Voloshin D. Two modes of ccp rf discharge in CF₄ // 63th Annual Gaseous Electronics Conference. 2010. P. CTP.00143.
- A21. Voloshin D., Braginsky O., Kovalev A. et al. Experimental and theoretical study of dynamic effects in low-frequency capacitively coupled discharges // 63th Annual Gaseous Electronics Conference. 2010. P. CTP.00150.
- А22. Волошин Д. Г. Особенности плазмы двухчастотных емкостных разрядов, используемых в технологических процессах микроэлектроники // XIII Школа молодых ученых «Актуальные проблемы физики». Сборник трудов. С. 99.

Цитированная литература

- 1. Brake M. L., Pender J., Fournier J. // Phys. Plasmas. 1999. Vol. 6. P. 2307.
- Lieberman M. A., Lichtenberg A. J. Principles of Plasma Discharges and Material Processing. New York: Wiley, 1994.
- Ishihara K., Shimada T., Yagisawa T., Makabe T. // Plasma Physics and Controlled Fusion. 2006. Vol. 48, no. 12B. P. B99.
- Rakhimova T. V., Braginsky O. V., Ivanov V. V. et al. // IEEE Trans. Plasma Sci. 2006. Vol. 34. Pp. 867–877.
- Phelps A. V., Petrovic Z. L. // Plasma Sources Science and Technology. 1999. Vol. 8, no. 3. P. R21.
- 6. Бронштейн И. М., Фрайман Б. С. Вторичная электронная эмиссия. Москва, 1969.
- Morgan W. L., Winstead C., McKoy V. // Journal of Applied Physics. 2001. Vol. 90, no. 4. Pp. 2009–2016.
- 8. Kushner M. J., Zhang D. // Journal of Applied Physics. 2000. Vol. 88, no. 6. Pp. 3231–3234.

Напечатано с готового оригинал-макета

Издательство ООО "МАКС Пресс" Лицензия ИД N 00510 от 01.12.99 г. Подписано в печать 18.03.2011 г. Формат 60×90 1/16. Усл.печ.л. 1,0. Тираж 110 экз. Заказ 113. Тел. 939-3890. Тел./Факс 939-3891. 119992, ГСП-2, Москва, Ленинские горы, МГУ им. М.В. Ломоносова, 2-й учебный корпус, 627 к.