

## SiH<sub>4</sub> 플라즈마 반응기에서 플라즈마 화학과 결합된 입자 거동 분석

김교선<sup>†</sup> · 김동주

강원대학교 공과대학 화학공학과  
(2000년 6월 9일 접수, 2000년 8월 31일 채택)

## Analysis on Particle Movements Combined with the Plasma Chemistry in SiH<sub>4</sub> Plasma Reactor

Kyo-Seon Kim<sup>†</sup> and Dong-Joo Kim

Department of Chemical Engineering, Kangwon National University, Chuncheon, Kangwon-Do, Korea  
(Received 9 June 2000; accepted 31 August 2000)

### 요 약

본 연구에서는 플라즈마 화학 기상 증착(PCVD: Plasma Chemical Vapor Deposition)을 이용한 반도체 제조 공정 중에 생성되는 화학종들 및 입자들의 농도 분포를 공정변수 변화에 따라 모델을 사용하여 고찰하였다. 화학종들에 대한 물질 수지식에는 플라즈마 화학반응, 유체대류, 확산 및 전기적 이동 등의 영향을 고려하였으며, 입자 거동에 대한 모델식에는 유체대류, 입자확산, 외부힘(이온항력, 정전기력, 중력) 등의 영향을 고려하였다. SiH<sub>x</sub><sup>+</sup> 이온의 농도는 날카로운 최고점을 보이며 두 sheath 영역에서 0에 접근하였다. 두 sheath 영역에서 음이온의 농도는 0에 접근하였고, 대부분의 음이온들은 벌크 플라즈마 영역에 존재하였다. 유체대류의 영향으로 하류 sheath 근처에서의 음이온 농도가 상류 sheath 근처에서보다 높게 나타났다. 대부분의 입자들은 전기적인 반발력과 이온항력이 균형을 이루고 있는 두 sheath 경계 영역에 분포하여 두 sheath 영역과 벌크 플라즈마 영역에서의 입자 농도는 각각 0에 접근하였다. 유체대류의 영향으로 하류 sheath 경계 영역에서의 입자 농도가 상류 sheath 경계 영역에서 보다 높게 나타났다. 입자 크기가 0.1 μm에서 10 μm으로 증가함에 따라 유체대류의 영향에 의해 대부분의 입자들이 하류 sheath 경계 영역에 위치하였다. 양이온과 음이온의 거동은 SiH<sub>4</sub> PCVD에서 이온 항력이 입자 거동에 미치는 영향을 계산하는데 중요하게 작용하였다.

**Abstract** – The distributions of chemical species and particles inside a silane plasma chemical vapor deposition (PCVD) reactor were theoretically investigated under various plasma conditions. We included the effects of chemical reactions, fluid convection, diffusion and electrical migration on the governing equations of chemical species. The effects of fluid convection, particle diffusion and external forces (ion drag, electrostatic and gravitational forces) on the movement of particles inside the plasma reactor were also examined. The SiH<sub>x</sub><sup>+</sup> concentration profiles showed sharp peaks at the reactor center, but almost zero in the sheath regions. The concentrations of negative ions in the sheath region became almost zero and most of them were contained inside the bulk plasma. The concentrations of negative ions at the downstream sheath boundary were higher than those at the upstream sheath boundary due to the effect of fluid convection. Most of those particles were located in the region near the sheath boundaries by the balance between the ion drag and electrostatic forces, but the particle concentrations in the sheath region and in the bulk plasma were almost zero. The particle concentrations were greater at the downstream sheath boundary than at the upstream sheath boundary by the effect of fluid convection. As the particle size increased from 0.1 to 10 μm, most particles were located at the downstream sheath boundary by the effect of fluid convection. It was found that the movements of negative ions as well as the positive ions were also important for determining the ion drag force acting on particles in silane PCVD.

**Key words** : SiH<sub>4</sub> PCVD, Plasma Chemistry, Particle Movement, External Forces on Particles

### 1. 서 론

증착, 식각, 스퍼터링과 같은 반도체 제조 공정에 널리 이용되고 있는 플라즈마 화학 기상 증착(PCVD: Plasma Chemical Vapor Deposition) 반응기에서는 미립자들이 많이 생성되고 있다. 현재의 반도체 제

조 기술 수준으로 볼 때 대부분의 미립자들은 청정실(cleanroom)에서 또는 플라즈마 공정 밖에서 유입되기보다는 플라즈마 공정 자체에서 생성, 성장되는 것으로 추측되고 있다. 플라즈마 공정 중에 생성되는 미립자들에 의해 박막 특성, 박막의 균일성 및 반응기 효율성 등이 저하되는 심각한 미립자 오염 문제가 유발되고 있다. 플라즈마 공정에 의한 반도체 제품의 세제적 생산량에 비추어 볼 때 플라즈마 내 미립자 오염에 의한 경제적 손실은 전세계적으로 막대할 것으로 추측되고

<sup>†</sup>E-mail: kkyoseon@cc.kangwon.ac.kr

있으며, 전자부품의 최소화 및 박막화 추세에 즈음하여 미립자 오염 문제의 상대적 중요성은 더욱 증가하고 있다[1-18].

반도체 제조 공정에서의 미립자 오염문제가 매우 중요하므로 여러 분야의 전공 지식을 배경으로 한 많은 연구자들이 미립자 생성과 거동 및 입자 특성에 대해 연구하여 왔다. Watanabe 등[1, 2]은 광산란법 등을 이용하여  $\text{SiH}_4$  플라즈마 반응기내에서 미립자 농도 분포를 측정하였다. Selwyn 등[3, 4]은 실험적으로 플라즈마 반응기내에서의 미립자 오염을 측정하였으며 반응기 설계를 변화시킴으로써 미립자 오염을 감소시키는 방법에 대한 연구를 하였다. 그들의 실험결과에 의하면 대부분의 미립자들은 박막 근처의 plasma-sheath 경계에 존재하는 것으로 나타났다. Howling 등[5, 6]은 실험적으로 플라즈마 내 음이온의 성장과정을 측정하였으며 미립자의 nucleation 과정에 대한 예측을 하였다. Kushner[7-9]는 유체 모델 및 Monte Carlo 계산에 의해 플라즈마 반응기의 모델식 및 미립자의 거동에 대하여 예측하였다. Graves 등[10, 11]은 플라즈마와 미립자의 상호작용에 대하여 연구하였고, 플라즈마 내의 미립자에 작용하는 여러 가지 힘에 대하여 분석하였다. Goree[12]는 플라즈마 영역에서 입자 농도, electron emission, ion trapping과 charge fluctuation 등을 고려하여 입자 전하를 계산하였다. Bouchoule 등[13]은 dusty plasma에 대한 실험적, 이론적 분석 결과를 발표하였다. Tachibana 등[14]은 laser Mie 광산란 방법을 사용하여 플라즈마 반응기내에서 입자 밀도와 크기 분포를 측정하였다. Garrity 등[15]은 postplasma에서 반응기 구조 변화에 따른 입자 거동을 이론적으로 연구한 바 있다.

플라즈마 반응기내에서 입자 생성 및 성장과 거동에 대한 많은 연구가 수행되었으나 플라즈마 화학과 미립자 동역학을 고려한 체계적인 분석은 아직 미비한 상태에 있다. 본 연구에서는 반도체 공정에 대표적으로 많이 이용되는  $\text{SiH}_4$  PCVD 반응기내에서의 플라즈마 화학 및 입자 거동을 모델식을 이용하여 분석하였다.  $\text{SiH}_4$  플라즈마 반응기내에서 화학종들에 대한 물질수지식에는 플라즈마 화학반응, 유체대류, 확산 및 전기적 이동(electrical migration) 등의 영향을 고려하였고, 입자 거동에 영향을 미치는 힘으로 유체대류, 입자확산, 외부힘[이온항력(ion drag force, I.D.F), 정전기력(electrostatic force, E.F), 중력(gravitational force, G.F)] 등을 고려하였다. 공정변수 변화가 플라즈마 화학과 입자 거동에 미치는 영향을 분석하기 위해 공급 기체 유량, 반응기내 압력 및 입자 크기 등을 변화시켰다.

## 2. 이론적 배경

$\text{SiH}_4$  플라즈마 반응기내에서 플라즈마 화학반응 현상에 대한 이론적 모델식 및 입자 거동을 고찰하기 위해 본 연구에서는 particle-in-cell/Monte Carlo 수치모사 또는 Monte Carlo와 유체 모델을 혼합하여 이용한 속도론적 접근 방법보다는 계산 시간이 비교적 적게 들고, 전달 현상을 근거로 한 유체 모델 방법을 사용하였다. 본 연구에서 모델화한 반응기는 Watanabe 등[16]에 의해 제안된 것으로서 Fig. 1에 개략도를 나타냈다. Fig. 1에서 반응기 위쪽에 설치된 상부의 전원공급 전극은 shower head 형으로서 스테인레스판에 많은 기공을 가지고 있으며, 반응기 아래쪽에 설치된 접지 전극은 스테인레스로 만들어진 200 mesh의 체를 사용하였다. 두 전극의 외부직경은 8.5 cm이며, 내부직경은 6.5 cm이다. 두 전극에는 많은 기공이 뚫려져 있어 두 전극간의 유체 흐름이 1차원 관형 흐름이 되도록 하여 모델식에서 반응기내의 모멘텀 수지식을 무시할 수 있도록 하였다. 본 연구에서는 두 전극간의 거리를 2 cm로 가정하였으며, 반응기내에서 유체는 전원공급 전극( $x=0$ )에서 접지 전극( $x=2$ )으로 흐르는 것을 가정하였다.

### 2-1. $\text{SiH}_4$ PCVD에서의 플라즈마 화학

$\text{SiH}_4$  PCVD 반응기에서는 50개 이상의 화학종과 200가지 이상의

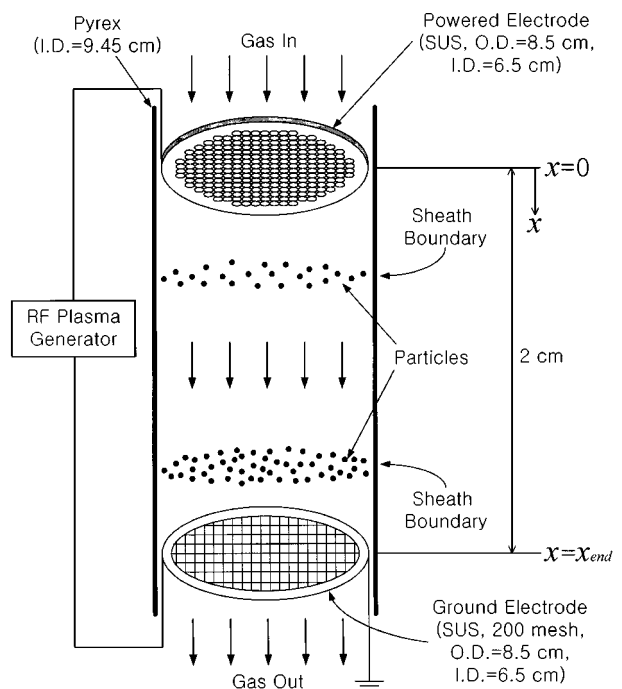


Fig. 1. Schematic illustration of a silane PCVD reactor for modeling.

화학반응이 관여하고 있는 것으로 알려져 있다[5-11]. 특히 플라즈마 반응기내에서의 양이온과 음이온의 농도 분포는 입자 거동에 대한 이온항력의 영향을 계산하는데 중요하며 플라즈마 화학에 의해 강하게 영향을 받게 된다. 본 연구에서는  $\text{SiH}_4$  PCVD에서  $\text{SiH}_x^+$ 과  $\text{Si}_n\text{H}_x^-$  ( $n=1-13$ )이 주요한 양이온과 음이온으로 각각 작용하는 것으로 가정하였다. 공정변수 변화에 따른 양이온과 음이온의 농도 분포를 계산하기 위해  $\text{SiH}_4$  PCVD에 존재하는 화학종들 중 양이온과 음이온의 생성과 소멸에 중요하게 관련된 18개의 화학종과 23개의 화학반응을 고려하여 Table 1에 나타냈다[17]. 화학종에 대한 농도를 계산하는데 필요한 시간을 줄이기 위해 플라즈마 반응기내에서 전자 농도는 균일한 것으로 가정하였으며, 플라즈마 화학반응들( $R_1-R_{23}$ )에 대한 속도 상수( $k_1-k_{23}$ )는

Table 1. The main plasma reactions in a silane PCVD

(Note: e represents the electron. The  $\text{SiH}_4(v_1, 3)$  and  $\text{SiH}_4(v_2, 4)$  are the vibrationally excited states of  $\text{SiH}_4$ )

Reactions	Rate constants	
$\text{SiH}_4 + e \rightarrow \text{SiH}_x^- (\text{SiH}_2^- \text{ or } \text{SiH}_3^-) + (\text{H or H}_2)$	$k_1 = 4 \times 10^{-13}$	R1
$\text{SiH}_4 + e \rightarrow \text{SiH}_x^- (\text{neutrals}) + (\text{H or H}_2)$	$k_2 = 2 \times 10^{-10}$	R2
$\text{SiH}_4 + e \rightarrow \text{SiH}_x^+ + (\text{H or H}_2)$	$k_3 = 1.43 \times 10^{-11}$	R3
$\text{SiH}_4 + e \rightarrow \text{SiH}_4(v_2, 4) + e$	$k_4 = 8.34 \times 10^{-9}$	R4
$\text{SiH}_4 + e \rightarrow \text{SiH}_4(v_1, 3) + e$	$k_5 = 8.74 \times 10^{-9}$	R5
$\text{SiH}_4(v_2, 4) + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH}_4 + \text{H}_2$	$k_6 = 3.05 \times 10^{-12}$	R6
$\text{SiH}_4(v_1, 3) + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH}_4 + \text{H}_2$	$k_7 = 6.08 \times 10^{-11}$	R7
$\text{SiH}_x^+ + e \rightarrow \text{SiH}_x (\text{neutrals}) + \text{H}$	$k_8 = 1.68 \times 10^{-7}$	R8
$\text{SiH}_x + e \rightarrow \text{SiH}_x^-$	$k_9 = 4 \times 10^{-13}$	R9
$\text{SiH}_x^- + \text{SiH}_x^+ \rightarrow \text{Si}_2\text{H}_x (\text{neutrals}) + (\text{H or H}_2)$	$k_{10} = 5 \times 10^{-7}$	R10
$\text{Si}_n\text{H}_x^- + \text{SiH}_4 \rightarrow \text{Si}_{n+1}\text{H}_x^- + (\text{H or H}_2) (n: 1-13)$	$k_{11} = 10^4$	R11-23
	$k_{12} = 2.5 \times 10^3$	
	$k_{13} = 2.8 \times 10^3$	
	$k_{14} = 3.2 \times 10^3$	
	$k_{15} = 3.6 \times 10^3$	
	$k_{16-23} = 4 \times 10^3$	

문헌에 발표된 값들을 참조하였다[5, 6, 8, 11, 18-24]. R<sub>1</sub>에서 R<sub>10</sub>까지는 2차 반응이므로 반응속도상수(k<sub>1</sub>-k<sub>10</sub>)의 단위는 cm<sup>3</sup>/s이다. Howling 등 [5]은 R<sub>11</sub>부터 R<sub>23</sub>까지를 음이온 농도에 대한 준 1차 반응으로 가정하여 각각의 반응식에 대한 속도상수(k<sub>11</sub>-k<sub>23</sub>, 단위: s<sup>-1</sup>)를 실험적으로 얻었다. 본 연구에서는 R<sub>11</sub>-R<sub>23</sub>에 대한 속도상수 값으로 Howling 등의 실험결과에 SiH<sub>4</sub> 농도를 나누어 사용하였다[17].

플라즈마 반응기내에서 화학종들은 공정변수 변화에 따라 입자들보다 매우 빠르게 반응하므로 입자들이 거동하는 동안 화학종들의 농도 분포는 이미 정상 상태에 도달한다고 볼 수 있다. 본 연구에서는 정상 상태에서의 화학종에 대한 물질수지식을 다음과 같이 표현하여 18개의 화학종에 대한 농도(N<sub>i</sub>)를 계산하였다.

$$\sum_{j=1}^{23} \alpha_{ij}(RXN)_j - \nabla \cdot (uN_i - \delta_i \mu_i EN_i - D_i \nabla N_i) = 0 \quad (i=1-18) \quad (1)$$

식 (1)에서  $\alpha_{ij}$ 는 화학종 i에 대한 j번째 화학반응에서의 화학양론 계수를 나타내며, (RXN)<sub>j</sub>는 j번째 화학반응의 반응속도를 나타낸다. u는 반응기내에서의 유체속도를 나타내며,  $\delta_i$ 는 화학종이 양이온일 때는 1, 음이온일 때는 -1, 중성이온일 때는 0의 값을 가진다.  $\mu_i$ 는 화학종 i의 전기적 이동계수(electrical migration coefficient), E는 전기장의 세기, D<sub>i</sub>는 화학종 i의 확산계수를 나타낸다[25, 26]. 식 (1)에서 첫 번째 항은 플라즈마 화학반응, 두 번째 항은 유체대류, 세 번째 항은 전기장에 의한 화학종들의 전기적 이동, 네 번째 항은 확산의 영향을 나타낸다.

E는 벌크 플라즈마 영역( $x_{pos} \leq x \leq x_{neg}$ )에서 0의 값을 가지며, 두 sheath 영역( $0 \leq x \leq x_{pos}$ ,  $x_{neg} \leq x \leq x_{end}$ )에서는 비충돌 플라즈마 영역에서 적용될 수 있는 Child-Langmuir식에 의해 각각 다음과 같이 표현된다 [17, 27].

$$E = E_{max} \left[ 1 - \left( \frac{x}{x_{pos}} \right)^{1/3} \right] \quad \text{for } 0 \leq x \leq x_{pos} \quad (2)$$

$$E = 0 \quad \text{for } x_{pos} \leq x \leq x_{neg} \quad (3)$$

$$E = E_{min} \left[ 1 - \left( \frac{x_{end} - x}{x_{end} - x_{neg}} \right)^{1/3} \right] \quad \text{for } x_{neg} \leq x \leq x_{end} \quad (4)$$

식 (2)에서 E<sub>max</sub>은 전원공급 전극에서의 최대 평균 전기장의 세기를 나타내며, 식 (4)에서 E<sub>min</sub>은 접지 전극에서의 최소 평균 전기장의 세기를 나타낸다. x<sub>pos</sub>와 x<sub>neg</sub>는 전원공급 전극과 접지 전극 근처에서 각각 평균 전기장의 세기가 0이 되는 반응기 길이를 나타내며, 반응기 내 압력의 함수이다. Sato 등[28]은 hybrid Monte Carlo/유체 모델을 사용하여 SiH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> RF 플라즈마를 수치모사하였으며, 두 전극간의 길이가 2.5 cm이고 반응기 내 압력이 0.25 Torr일 때 sheath 영역의 두께가 0.3 cm인 것으로 나타났다. Sheath 영역의 두께는 압력에 따라 다소 변화할 것으로 예측되나 본 연구에서는 sheath 영역의 두께를 0.3 cm로 가정하여 x<sub>pos</sub>와 x<sub>neg</sub>를 0.3, 1.7 cm로 각각 가정하였다. x<sub>end</sub>(=2.0)은 전체 반응기 길이를 나타낸다.

플라즈마 반응기내 전위(V)는  $\int E dx$ 로 표현되며, 벌크 플라즈마와 두 sheath 영역에서의 V는 식 (2)-(4)로 표현된 E를 축간 길이, x에 대해 적분하고 접지 전극에서의 V가 0이 되도록 하면 플라즈마 전위는 각 영역에서 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$V = -\frac{1}{4}E_{min}(x_{end} - x_{neg}) - \frac{1}{4}E_{max}x_{pos} + E_{max}x \left[ 1 - \frac{3}{4} \left( \frac{x}{x_{pos}} \right)^{1/3} \right] \quad \text{for } 0 \leq x \leq x_{pos} \quad (5)$$

$$V = -\frac{1}{4}E_{min}(x_{end} - x_{neg}) \quad \text{for } x_{pos} \leq x \leq x_{neg} \quad (6)$$

$$V = -E_{min}(x_{end} - x) \left[ 1 - \frac{3}{4} \left( \frac{x_{end} - x}{x_{end} - x_{neg}} \right)^{1/3} \right] \quad \text{for } x_{neg} \leq x \leq x_{end} \quad (7)$$

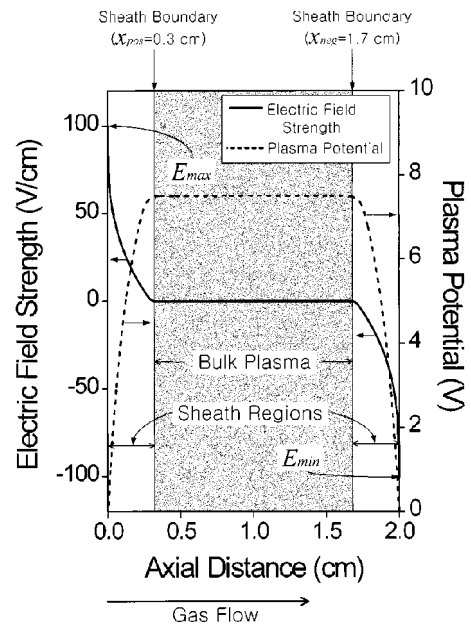


Fig. 2. Distributions of electric field strength and plasma potential in a silane PCVD reactor ( $E_{max} = -E_{min} = 100$  V/cm).

플라즈마 반응기내에 두 전극에서의 전기장 세기로  $E_{max} = 100$  V/cm,  $E_{min} = -100$  V/cm로 하였을 때 E와 V의 분포를 두 전극간의 거리에 따라 Fig. 2에 나타냈다.

물질수지식에 대한 초기조건으로 SiH<sub>4</sub>를 제외한 모든 화학종들의 초기 농도는 0으로 가정하였고, 두 전극에서의 경계조건으로 양이온, 음이온 및 중성 라디칼의 부착계수(sticking coefficient)가 각각 1, 0, 0.15로 가정하였다. 부착계수는 두 전극에서 화학종들의 표면 반응 상수를 계산하는데 사용되며, 표면 반응을 포함한 물질수지식으로부터 두 전극에서의 화학종들의 농도를 계산하였다. 정상 상태에서 화학종들의 농도를 계산하기 위해 18개의 화학종에 대한 물질수지식[식 (1)]을 각각의 화학종 농도에 대해 선형화하였다. R10-R23은 2차 반응[(RXN)<sub>i</sub> = kN<sub>j</sub>N<sub>i</sub>]이므로 i 화학종 농도(N<sub>i,new</sub>)에 대해 선형화하기 위해 바로 앞 iteration에서 계산된 N<sub>j,old</sub>(i ≠ j)을 사용하였다. 선형화된 물질수지식은 유한차분법을 x방향으로 적용하여 각 grid에서 tridiagonal matrix로 전개하였으며, tridiagonal matrix는 TRIDAG subroutine을 이용하여 18개의 화학종에 대하여 농도를 계산하였고, 매 iteration마다 오차[(N<sub>i,new</sub> - N<sub>i,old</sub>)/N<sub>i,new</sub>]를 계산하여 그 값이 10<sup>-4</sup>보다 작을 때 18개의 화학종에 대한 농도 계산을 종료하도록 하였다.

## 2-2. SiH<sub>4</sub> PCVD에서 입자 거동

플라즈마 반응기내에서 공정변수 변화에 따른 입자 농도 분포를 계산하기 위한 모델식은 다음과 같다.

$$\left( \frac{\partial n_p}{\partial t} \right) = -\nabla \cdot (u n_p - D_p \nabla n_p - u_{p,ext} n_p) \quad (8)$$

식 (8)에서 하첨자 p는 입자를 나타내며, n<sub>p</sub>는 입자 농도를 나타내고, t는 시간을 나타낸다. 우변의 첫 번째 항은 입자 거동에 대한 유체대류의 영향, 두 번째 항은 입자확산의 영향, 세 번째 항은 외부힘에 의한 영향을 나타낸다. D<sub>p</sub>는 free molecule regime에서의 입자 확산 계수로서 식 (9)와 같이 표현된다[29].

$$D_p = \frac{k_B T}{f_p} \quad (9)$$

식 (9)에서 k<sub>B</sub>는 Boltzmann 상수를 나타내며 T는 기체 온도를 나타

낸다.  $f_p$ 는 입자에 대한 유체의 마찰계수로서 다음과 같이 표현된다[29].

$$f_p = \frac{2}{3} d_p^2 \rho_f \left( 1 + \frac{\pi \alpha}{8} \right) \sqrt{\frac{2 \pi k_B T}{m}} \quad (10)$$

식 (10)에서  $d_p$ ,  $\rho_f$ ,  $m$ ,  $\alpha$ 는 각각 입자 크기, 유체밀도, 기체 분자 질량, accommodation coefficient를 나타낸다. 외부힘에 의한 속도  $u_{p,ext}$ 는 이온항력과 정전기력 및 중력 등의 영향을 고려하여 다음과 같이 표현된다[17].

$$u_{p,ext} = \frac{1}{f_p} [(I.D.F.) + (E.F.) + (G.F.)] \quad (11)$$

I.D.F.는 음전하를 띤 입자들 주위를 움직이는 양이온과 음이온에 의해 가해지는 힘이다. 플라스마 반응기내에서 입자는 양이온과 전자간의 흐름차이에 의해 주로 음전하를 띤고 있으며 플라스마 조건이나 입자크기에 따라 입자가 가지는 전하량은 변화한다[1-6, 12, 18, 19, 21, 30, 31] 양이온들은 전기적인 인력에 의해 입자들과 충돌하거나 양이온 이동 경로가 변화될 수 있고 음이온의 경우 전기적인 반발력에 의해 음이온들의 이동 경로가 변화될 수 있다. I.D.F.는 입자 전하량( $z_p$ ), 이온 농도( $N_i$ ), 이온 질량( $m_i$ ), 입자와 이온간의 평균 상대 속도( $u_{i,r}$ )에 의존하며 식 (12)와 같이 표현된다[21].

$$I.D.F. = K_{mi} m_i N_i u_{i,r} \quad (12)$$

$$K_{mi} = \frac{2 C_1 B^2}{\sqrt{\pi} u_i^3} \left[ \ln \left( 1 + \frac{1}{\alpha_1} \right) \right]^2 \quad (13)$$

$$C_1 = 0.9369, \quad B = \frac{z_p e^2}{2 \pi \epsilon_0 m_{+ion}}$$

$$\alpha_1 = \frac{B}{\lambda u_i^2 \sqrt{C_2}}, \quad C_2 = 61.32$$

$$u_i = \left( \frac{2 k_B T_{+ion}}{m_{+ion}} \right)^{1/2}$$

$$\frac{1}{\lambda} = \left[ \frac{e^2 N_+}{\epsilon_0} \left( \frac{1-\eta}{k_B T_e} + \frac{\eta}{k_B T_{-ion}} + \frac{1}{2 E_0} \right) \right]^{1/2}$$

식 (13)에서  $B$ ,  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $\alpha_1$ ,  $\lambda$ 는 상수이고,  $e$ 는 단위 전하량을,  $\epsilon_0$ 는 진공상상태에서의 유전율을 각각 나타낸다.  $u_i$ 는 양이온의 속도,  $T_{+ion}$ 는 양이온 온도를,  $N_+$ 은 양이온 농도를,  $\eta(=N_-/N_+)$ 는 양이온 농도( $N_+$ )에 대한 음이온 농도( $N_-$ )의 비율을,  $T_e$ 는 전자 온도를,  $T_{-ion}$ 는 음이온 온도를,  $E_0$ 는 양이온 에너지를 나타낸다. 식 (12)에서  $K_{mi}$ 는 전자 온도( $T_e$ )와 이온 온도( $T_i$ ), 이온 속도, 이온 질량, 입자 전하량( $z_p$ ) 등의 함수로서 식 (13)과 같이 표현된다[21]. 플라스마 반응기내에서 입자 전하량은 입자로의 전자 흐름과 이온 흐름간의 균형에 의해 결정되며, RF 플라스마 반응기내에서 입자들이 대전되기 위한 시간은  $10^{-8}$ - $10^{-4}$  s 정도이나[30], 본 연구에서 플라스마 반응기내에서 입자 거동이 정상 상태에 도달하는데 소요되는 시간이 0.01-0.03 s이므로 입자들이 움직이는 동안 입자 전하량은 정상 상태에 도달한 것으로 볼 수 있다. 입자 전하량은  $d_p$ ,  $T_e$ ,  $T_{+ion}$ 의 함수로서 다음과 같이 표현된다[31].

$$z_p = -2.586 \times 10^{-12} d_p^{0.15} T_{+ion}^{0.15} T_e^{0.85} \quad (14)$$

공정변수 변화에 따라 식 (1)에 의해 계산된 양이온과 음이온의 농도 분포는 식 (12)에 대입하여 I.D.F.를 계산하는데 사용하였다. E.F.는 전기장에서 전하를 띤고 있는 입자에 가해지는 힘으로서 식 (15)와 같이 입자 전하량과 전기장 세기의 곱으로 표현된다[17].

$$E.F. = z_p E \quad (15)$$

G.F.는 입자에 대한 중력의 영향을 나타내며, 구형입자를 가정 할 경우 입자 크기의 함수로 다음과 같이 표현된다[17].

$$G.F. = \left( \frac{\pi d_p^3}{6} \right) \rho_p g \quad (16)$$

식 (16)에서  $\rho_p$ 는 입자 밀도를,  $g$ 는 중력 가속도를 나타낸다.

플라스마 반응기내에서 입자들은 음으로 대전되어 있어 두 sheath 영역에 있는 입자들은 전기적인 반발력에 의해 벌크 플라스마 영역으로 이동하게 되므로 경계조건으로 두 전극에서의 입자 농도로 0을 사용하였다. 입자 거동에 대한 모델식[식 (8)]을 풀기 위해 모델식을 x방향으로는 유한차분법을 적용하고, t에 대해서는 미분항을 그대로 유지시키는 'method of lines'을 적용하여 상미분 방정식으로 변환한 후 비정상 상태에서의 입자 농도 분포를 수치모사로 풀었다.

### 3. 결과 및 고찰

$\text{SiH}_4$  플라스마 반응기내에서 공정변수 변화가 화학종 분포와 입자 농도 분포에 미치는 영향을 분석하기 위해 공정변수로서 전체 기체유량(Q), 반응기내 압력(P), 입자 크기( $d_p$ ) 등을 변화시켰다. 공정변수에 대한 기준 조건으로 Q는 25 sccm, P는 0.1 Torr,  $d_p$ 는 0.1  $\mu\text{m}$ , 반응기 내 온도는 800 K로 하였고 Q, P,  $d_p$ 에 대해 10-100 sccm, 0.05-0.2 Torr, 0.1-10  $\mu\text{m}$ 로 각각 변화시켰다.

전체 기체유량 변화에 따른  $\text{SiH}_4$ 의 농도 분포를 Fig. 3에 두 전극간의 축간거리에 따라 나타냈다.  $\text{SiH}_4$ 가 반응기내에서 플라스마 반응에 의해 소모되므로 반응기 입구( $x=0$ )에서의 농도가 반응기 출구( $x=2$ )에서의 농도보다 높게 나타나고 있다. 전체 기체유량이 증가함에 따라 플라스마 반응기내에서  $\text{SiH}_4$ 의 체류시간은 감소하게 되므로 플라스마 화학반응에 의한  $\text{SiH}_4$ 의 전환율은 감소하게 되어  $\text{SiH}_4$  농도가 증가하고 있다. Fig. 4에서는 반응기내 압력 변화에 따른  $\text{SiH}_x$  라디칼의 농도 분포를 두 전극간의 거리에 따라 나타냈다. 반응기내 압력이 증가함에 따라  $\text{SiH}_4$  농도의 증가로  $\text{SiH}_x$ 로부터 직접 생성되는  $\text{SiH}_x$  라디칼의 농도는 증가하고 있다. 반응기내에서 생성된  $\text{SiH}_x$  라디칼은 두 전극 방향으로 작용하는 확산에 의해 두 전극 방향으로 이동하여 반응하

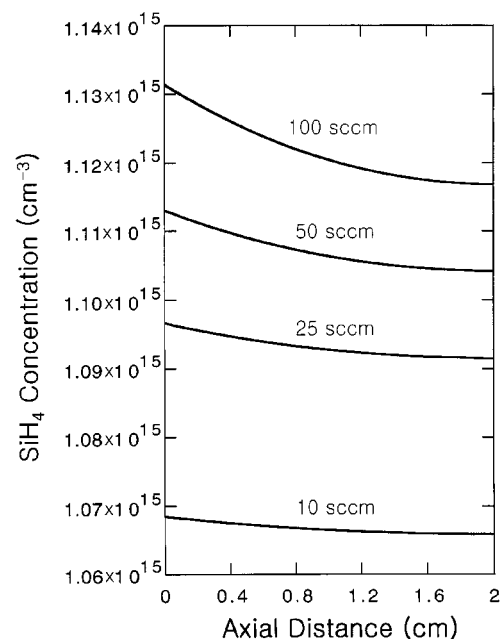


Fig. 3. Evolution of  $\text{SiH}_4$  concentration profiles along the axial distance for various total gas flow rates ( $P=0.1$  Torr,  $E_{max}=-E_{min}=100$  V/cm).

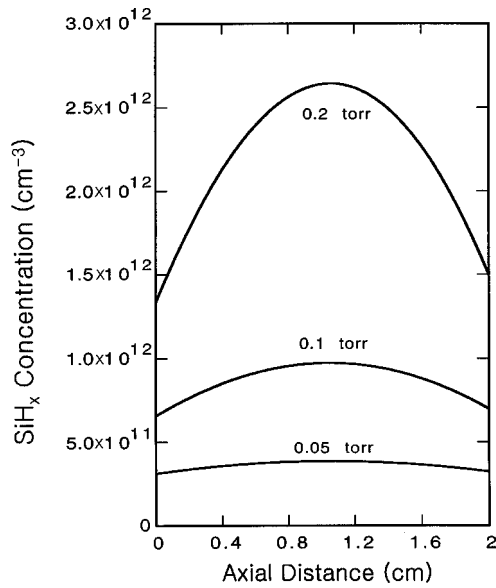


Fig. 4. Evolution of SiH<sub>x</sub> concentration profiles along the axial distance for various pressures ( $u=280$  cm/s,  $E_{max}=-E_{min}=100$  V/cm).

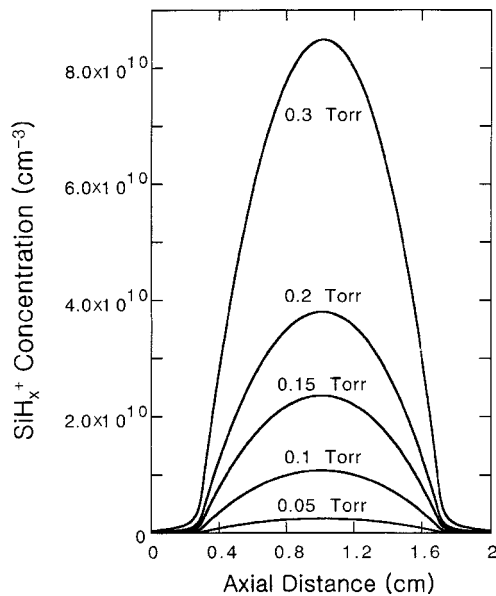


Fig. 5. Evolution of SiH<sub>x</sub><sup>+</sup> concentration profiles along the axial distance for various pressures ( $u=280$  cm/s,  $E_{max}=-E_{min}=100$  V/cm).

로 반응기 중앙에서의 SiH<sub>x</sub> 라디칼 농도가 두 전극 근처에서보다 높게 나타나고 있다. Fig. 5에서는 반응기내 압력 변화에 따른 SiH<sub>x</sub><sup>+</sup> 이온의 농도 분포를 두 전극간의 거리에 따라 나타냈다. 두 전극 근처의 sheath 영역에서는 양이온에 작용하는 두 전극 방향으로의 전기적 이동 속도가 매우 빠르게 되므로 두 sheath 영역에서의 SiH<sub>x</sub><sup>+</sup> 이온 농도는 0에 접근하고 있으며, 반응기 중앙 근처의 벌크 플라즈마 영역에서는 날카로운 최고점을 보이고 있다. 반응기내 압력이 증가함에 따라 SiH<sub>4</sub>로부터 SiH<sub>x</sub><sup>+</sup> 이온의 생성 속도가 증가하여 SiH<sub>x</sub><sup>+</sup> 이온의 농도가 증가하고 있다.

전체 기체유량 변화에 따른 Si<sub>6</sub>H<sub>x</sub><sup>-</sup>, Si<sub>10</sub>H<sub>x</sub><sup>-</sup>, Si<sub>13</sub>H<sub>x</sub><sup>-</sup>의 농도 분포는 두 전극간의 거리에 따라 Fig. 6에 나타냈다. 두 sheath 영역에서 생성된 음이온들은 전기적인 반발력에 의해 반응기 중앙의 벌크 플라즈마내에 존재하게 되므로 두 sheath 영역에서의 음이온 농도는 0이 된다. 전체

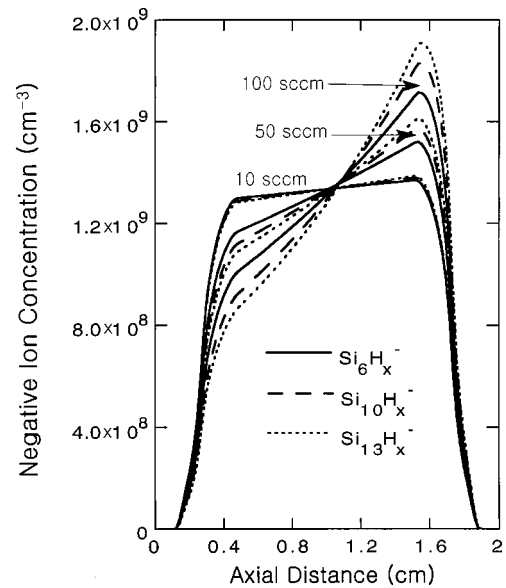


Fig. 6. Evolution of concentration profiles of negative ions along the axial distance for various total gas flow rates ( $P=0.1$  Torr,  $E_{max}=-E_{min}=100$  V/cm).

기체유량이 증가함에 따라 유체대류의 영향은 증가하게 되므로 유체가 흐르는 방향으로 음이온들이 더 많이 밀리게 되어 상류 sheath 경계 ( $x=0.3$ ) 근처에서 음이온들의 농도는 감소하고 하류 sheath 경계 ( $x=1.7$ ) 근처에서는 증가하고 있다. Si 원자 숫자가 증가함에 따라  $D_i$ 와  $\mu_i$ 의 감소로 인한 확산과 전기적 이동의 영향은 감소하게 되고, 상대적으로 유체대류의 영향은 증가하게 되어 유체가 흐르는 방향으로 밀리는 음이온들의 양은 증가하게 되므로 상류 sheath 경계 근처에서의 음이온 농도는 감소하고 있고 하류 sheath 경계 근처에서는 증가하고 있다. Fig. 7에서는 반응기내 압력 변화에 따른 Si<sub>6</sub>H<sub>x</sub><sup>-</sup>, Si<sub>10</sub>H<sub>x</sub><sup>-</sup>, Si<sub>13</sub>H<sub>x</sub><sup>-</sup>의 농도 분포를 두 전극간의 거리에 따라 나타냈다. 플라즈마 반응기 내에서 음이온들의 농도 분포는 Fig. 6에서와 같은 경향성을 나타

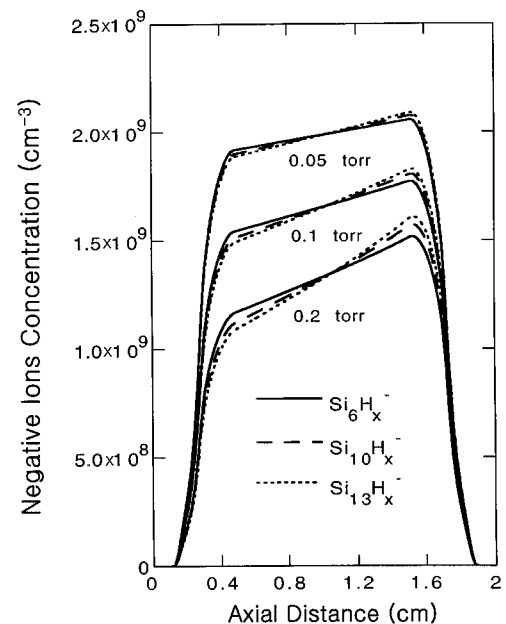


Fig. 7. Evolution of concentration profiles of negative ions along the axial distance for various pressures ( $u=280$  cm/s,  $E_{max}=-E_{min}=100$  V/cm).

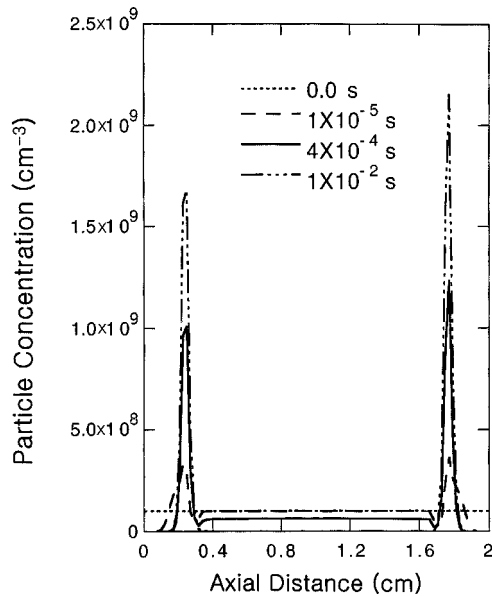


Fig. 8. Concentration profiles of monodisperse particles ( $d_p=0.1 \mu\text{m}$ ) along the axial distance for various times ( $Q=25 \text{ sccm}$ ,  $P=0.1 \text{ Torr}$ ,  $E_{\text{max}}=-E_{\text{min}}=100 \text{ V/cm}$ ).

내고 있다.  $\text{Si}_6\text{H}_x^+$ ,  $\text{Si}_{10}\text{H}_x^+$ ,  $\text{Si}_{13}\text{H}_x^+$  등의 음이온들은  $\text{SiH}_x^-$  이온을 출발물질로 하여 R11-R23에 의해 생성된다.  $\text{SiH}_x^-$  이온의 생성속도(R1, R9)는 1차 반응인데 비해  $\text{SiH}_x^+$  이온과  $\text{SiH}_4$ 과의 반응에 의한 소모속도(R10, R11)는 2차 반응이므로  $\text{SiH}_x^-$  이온의 소모속도가 압력 변화에 더욱 민감하며 압력이 증가함에 따라  $\text{SiH}_x^-$  이온의 소모반응 속도는 증가하게 되어  $\text{SiH}_x^-$  이온 농도는 감소하였다. 따라서 반응기내 압력이 증가함에 따라  $\text{SiH}_x^-$  이온 농도의 감소로 인해 음이온들( $\text{Si}_6\text{H}_x^+$ ,  $\text{Si}_{10}\text{H}_x^+$ ,  $\text{Si}_{13}\text{H}_x^+$ )의 농도가 감소하고 있다.

플라즈마 반응기내에서 입자들은 반응기내에 존재하는 여러 힘들의 작용에 의해 농도 분포가 변화하게 된다. 초기에 플라즈마 반응기내 입자 농도 분포가  $1 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ 로 균일한 것으로 가정하여 시간 변화에 따른 입자들의 농도 분포 변화를 두 전극간의 거리에 따라 Fig. 8에 나타냈다. 플라즈마 반응기내에서 입자들은 음으로 대전되어 있어 두 sheath 영역에 있는 입자들은 두 sheath 영역에서 작용하는 전기적인 반발력에 의해 벌크 플라즈마 쪽으로 이동하게 되므로 시간이 지남에 따라 입자 농도는 감소하여 0에 접근하고 있다. 벌크 플라즈마 영역에서는 두 전극 방향으로의 빠른 양이온 흐름에 의해 이온항력이 유발되어 벌크 플라즈마 영역에 있던 입자들이 두 전극 방향으로 이동하게 되므로 벌크 플라즈마 영역에서의 입자 농도가 시간이 지남에 따라 감소하고 있으며  $1 \times 10^{-2} \text{ s}$ 에서 입자 농도가 0에 접근하였다. 대부분의 입자들은 Selwyn 등[3, 4]이 실험적으로 발견한 결과와 마찬가지로 정전기력과 이온항력이 균형을 이루고 있는 두 sheath 경계 근처에 위치하고 있으며,  $1 \times 10^{-2} \text{ s}$ 에서 입자 농도 분포가 정상 상태에 도달하였다. 유체대류의 영향으로 유체가 흐름의 방향으로 입자들이 밀리게 되므로 상류 sheath 경계 근처에서의 입자 농도가 하류 sheath 경계 근처에서 보다 낮게 나타나고 있다.

Fig. 9에서는 정상 상태에서 입자 크기 변화에 따른 입자들의 농도 분포를 두 전극간의 거리에 따라 나타냈다. 입자 크기가  $0.1 \mu\text{m}$ 일 경우 대부분의 입자들은 두 sheath 영역에서의 전기적인 반발력과 벌크 플라즈마로부터의 이온항력이 균형을 이루고 있는 두 sheath 경계에 위치하고 있어서 두 sheath 경계에서의 입자 농도는 날카로운 최고점을 보이고 있는 반면에 두 sheath 영역과 벌크 플라즈마 영역에서의 입자 농도는 0에 접근하고 있다. 또한 유체대류의 영향으로 하류

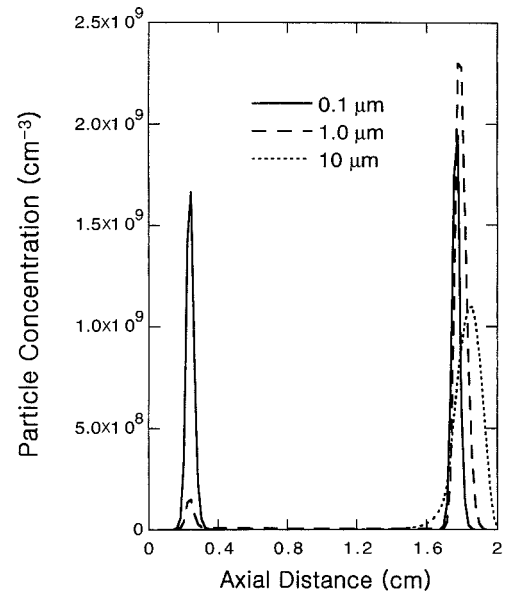


Fig. 9. Concentration profiles of monodisperse particles along the axial distance for various particle sizes ( $Q=25 \text{ sccm}$ ,  $P=0.1 \text{ Torr}$ ,  $E_{\text{max}}=-E_{\text{min}}=100 \text{ V/cm}$ ).

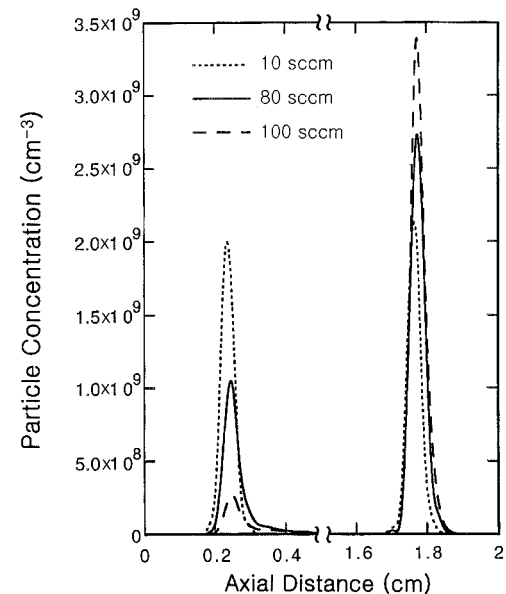


Fig. 10. Concentration profiles of monodisperse particles ( $d_p=0.1 \mu\text{m}$ ) along the axial distance for various total gas flow rates ( $P=0.1 \text{ Torr}$ ,  $E_{\text{max}}=-E_{\text{min}}=100 \text{ V/cm}$ ).

sheath 경계에서의 입자 농도가 상류 sheath 경계에서보다 높게 나타나고 있다. 입자 크기가 증가함에 따라 유체대류와 중력의 영향은 증가하지만 확산, 이온항력, 정전기력의 영향은 상대적으로 감소하게 된다. 따라서 입자 크기가  $0.1 \mu\text{m}$ 에서  $10 \mu\text{m}$ 으로 증가함에 따라 상류 sheath 경계 영역에 있었던 입자들이 유체대류에 의해 하류 sheath 경계 영역으로 이동하게 되므로 대부분의 입자들이 하류 sheath 경계 영역에 위치하게 된다.

Fig. 10에서는 전체 기체유량 변화에 따른 입자들의 농도 분포를 두 전극간의 거리에 따라 나타냈다. 플라즈마 반응기내 입자에 작용하는 전기적인 반발력과 이온항력의 균형에 의해 대부분의 입자들이 두 sheath 경계 영역에 위치하게 되고 두 sheath 영역과 벌크 플라즈마

영역에서의 입자 농도는 0에 접근하였다. 전체 기체유량이 증가함에 따라 유체대류의 영향에 의해 유체가 흐르는 방향으로 이동하는 입자들의 양은 증가하게 되므로 상류 sheath 경계 영역에서의 입자 농도는 감소하고 하류 sheath 경계 영역에서는 증가하고 있었다.

반응기내 압력 변화에 따른 입자들의 농도 분포를 두 전극간의 거리에 따라 Fig. 11에 나타냈다. 대부분의 입자들이 두 sheath 경계 영역에 분포하고 있으며, 두 sheath 영역과 벌크 플라즈마 영역에서의 입자 농도는 0에 접근하고 있다. 반응기내 압력이 증가함에 따라 입자에 대한 마찰계수( $f_p$ )가 증가하게 되어 입자 거동에 대한 외부힘(I.D.F.,

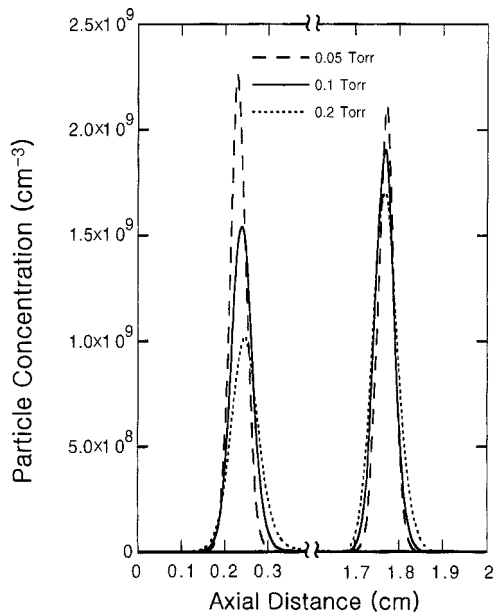


Fig. 11. Concentration profiles of monodisperse particles( $d_p=0.1 \mu\text{m}$ ) along the axial distance for various reactor pressures( $u=280 \text{ cm/s}$ ,  $E_{\text{max}}=-E_{\text{min}}=100 \text{ V/cm}$ ).

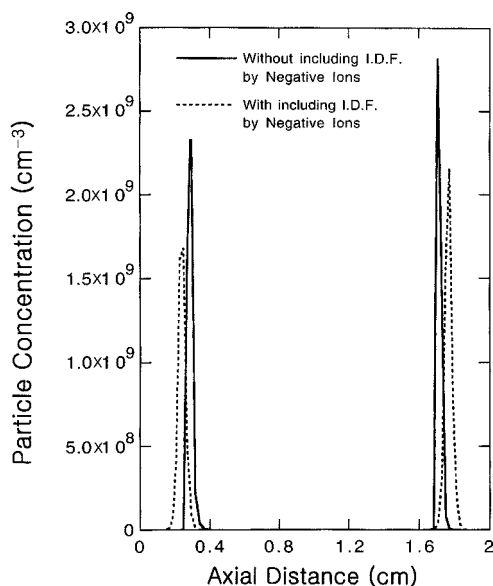


Fig. 12. Evolution of particle concentration profiles of monodisperse particles( $d_p=0.1 \mu\text{m}$ ) along the axial distance with including and excluding the ion drag force by negative ions( $Q=25 \text{ sccm}$ ,  $P=0.1 \text{ Torr}$ ,  $E_{\text{max}}=-E_{\text{min}}=100 \text{ V/cm}$ ).

E.F., G.F.)의 영향은 유체대류 영향에 비해 상대적으로 감소하게 되므로 플라즈마 반응기내에서 입자들이 비교적 넓게 분포하고 있고 두 sheath 경계 영역에서의 입자 농도가 감소하고 있다. 반응기내 압력이 감소함에 따라 양이온 농도가 감소하고(Fig. 5) 음이온 농도는 증가하게 되므로(Fig. 7) 음이온에 의한 이온항력의 영향이 양이온에 의한 이온항력보다 상대적으로 증가하게 된다. 따라서 벌크 플라즈마 영역에 있던 입자들이 상류 sheath 경계 영역으로 더 많이 밀리게 되므로 0.05 Torr에서는 상류 sheath 경계 영역에서의 입자 농도가 하류 sheath 경계 영역에서보다 높게 나타나고 있다.

Fig. 12에서는 이온항력에 양이온과 음이온의 영향을 고려했을 경우와 양이온의 영향만 고려했을 경우, 입자들의 농도 분포를 두 전극간의 거리에 따라 나타냈다. 종래에는 이온항력 계산에 주로 양이온의 영향만을 고려했으나, SiH<sub>4</sub> 플라즈마에서는 다량의 음이온이 존재하여 움직이고 있으므로 음이온도 이온항력에 상당한 영향을 끼칠 것으로 보인다. 음이온에 의한 이온항력은 음이온이 움직이는 방향, 즉 벌크 플라즈마에서 두 전극 방향으로 작용하게 된다. 따라서 이온항력에 음이온의 영향을 고려했을 경우, 입자 농도 peak가 두 전극 방향으로 더욱 이동하였으며 또한 두 sheath 경계 영역에서의 입자 농도 분포가 더욱 넓어졌다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 SiH<sub>4</sub> PCVD 반응기에서 여러 공정변수들이 화학종들 및 입자들의 농도 분포에 미치는 영향을 모델식을 사용하여 고찰하였다. 화학종들에 대한 물질수지식에서는 18개의 화학종들에 대한 플라즈마 화학반응, 유체대류, 확산 및 전기적 이동 등의 영향을 고려하였으며 입자 거동에 대한 모델식에는 유체대류, 입자확산, 이온항력, 정전기력, 중력 등의 영향을 고려하였다.

SiH<sub>4</sub> PCVD 반응기내에서 전체 기체유량이 증가함에 따라 SiH<sub>4</sub>의 체류시간은 감소하게 되므로 SiH<sub>4</sub> 농도는 증가하였다. 두 전극에 가까울수록 양이온에 대한 전기적 이동 속도는 증가하게 되므로 두 전극 방향으로 SiH<sub>4</sub><sup>+</sup> 이온이 매우 빠르게 손실되어 반응기 중앙에서 SiH<sub>4</sub><sup>+</sup> 이온 농도는 날카로운 최고점을 보였으며 두 sheath 영역에서는 0에 접근하였다. 음이온의 경우 두 전극에서의 전기적인 반발력에 의해 두 sheath 영역에서의 음이온들의 농도는 0에 접근하였고 대부분의 음이온들은 벌크 플라즈마에 존재하였다. 또한 유체대류의 영향으로 상류 sheath 근처에서 음이온들의 농도가 하류 sheath 근처에서보다 높게 나타났다. 반응기내 압력이 증가함에 따라 SiH<sub>4</sub>로부터 생성된 SiH<sub>3</sub>와 SiH<sub>2</sub><sup>+</sup>의 농도가 증가하였으며 음이온들의 농도는 감소하였다.

Selwyn 등[3, 4]이 실험적으로 발견한 바와 같이 플라즈마 반응기내에서 대부분의 입자들은 전기적인 반발력과 이온항력이 균형을 이루고 있는 두 sheath 경계 영역에 분포하였다. 두 전극에서의 전기적인 반발력과 벌크 플라즈마 영역에서의 이온항력에 의해 두 sheath 영역과 벌크 플라즈마 영역에서의 입자들의 농도는 각각 0에 접근하였다. 입자 크기가 0.1 μm에서 10 μm으로 증가함에 따라 유체대류가 입자 거동에 미치는 상대적인 영향은 증가하였으며 대부분의 입자들이 유체대류의 영향으로 하류 sheath 경계 근처에 분포하였다. 전체 기체 유량이 증가함에 따라 상류 sheath 경계 영역에서의 입자 농도가 감소하였고 하류 sheath 경계 영역에서는 증가하였다. 반응기내 압력이 감소함에 따라 입자 거동에 대한 유체대류의 상대적인 영향은 증가하게 되므로 플라즈마 반응기내에서 입자들이 비교적 넓게 분포하였다.

#### 감 사

본 연구는 한국과학재단 특정기초연구(과제번호 KOSEF 95-0502-08-01-3) 지원으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

## 참고문헌

1. Watanabe, Y., Shiratani, M., Fukuzawa, T., Kawasaki, H., Ueda, Y., Singh, S. and Ohkura, H.: *J. Vac. Sci. Technol.*, **A14**(3), 995(1996).
2. Watanabe, Y.: *J. Appl. Phys.*, **79**(1), 104(1996).
3. Selwyn, G. S.: *Semiconductor Int.*, **72**(1993).
4. Selwyn, G. S. and Patterson, E. F.: *J. Vac. Sci. Technol.*, **A10**, 1053(1992).
5. Howling, A. A., Sansonnens, L., Dorier, J.-L. and Hollenstein, Ch.: *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **26**, 1003(1993).
6. Howling, A. A., Sansonnens, L., Dorier, J.-L. and Hollenstein, Ch.: *J. Appl. Phys.*, **75**, 1340(1994).
7. Kushner, M. J.: *J. Appl. Phys.*, **62**(12), 4763(1987).
8. Kushner, M. J.: *J. Appl. Phys.*, **63**, 2532(1988).
9. Kushner, M. J.: *J. Appl. Phys.*, **71**(9), 4173(1992).
10. Graves, D. B. and Jensen, K. F.: *Plasma IEEE Trans. on Plasma Sci.*, **62**(1), 88(1987).
11. Graves, D. B., Daugherty, J. E., Kilgore, M. D. and Porteous, R. K.: *Plasma Sources Sci. Technol.*, **3**, 433(1994).
12. Goree, J.: *Plasma Sources Sci. Technol.*, **3**, 400(1994).
13. Bouchoule, A., Plain, A., Boufendi, L., Blondeau, J. Ph. and Laure, C.: *J. Appl. Phys.*, **70**, 1991(1991).
14. Tachibana, K., Hayashi, Y., Okuya, T. and Tatsuta, T.: *Plasma Sources Sci. Technol.*, **3**, 314(1994).
15. Garrity, M. P. and Peterson, T. W.: *J. Vac. Sci. Technol.*, **A13**(6), 2939(1995).
16. Fukuzawa, T., Obata, K., Kawasaki, H., Shiratani, M. and Watanabe, Y.: *J. Appl. Phys.*, **80**(6), 1(1996).
17. Kim, K. S. and Ikegawa, M.: *Plasma Sources Sci. Technol.*, **5**, 311(1996).
18. Daugherty, J. E., Porteous, R. K., Kilgore, M. D. and Graves, D. B.: *J. Appl. Phys.*, **72**, 3934(1992).
19. Doughty, D. A. and Gallagher, A.: *J. Appl. Phys.*, **67**, 139(1989).
20. Hollenstein, Ch., Dorier, J.-L., Dutta, J., Sansonnens, L. and Howling, A. A.: *Plasma Sources Sci. Technol.*, **3**, 278(1994).
21. Kilgore, M. D., Daugherty, J. E., Porteous, R. K. and Graves, D. B.: *J. Appl. Phys.*, **73**(11), 7195(1993).
22. Matsuda, A. and Tanaka, K.: *J. Appl. Phys.*, **60**, 2351(1986).
23. Scott, B. A., Reimer, J. A. and Longeway, P. A.: *J. Appl. Phys.*, **54**, 6853(1983).
24. Weakliem, H. A., Estes, R. D. and Longeway, P. A.: *J. Vac. Sci. Technol.*, **A5**, 29(1987).
25. Chen, F. F.: "Introduction to Plasma Physics and Controlled Fusion" 2nd edn, Plenum, New York(1984).
26. Reid, R. C., Prausnitz, J. H. and Sherwood, T. K.: "The Properties of Gases and Liquids" 3rd ed., McGraw-Hill, New York(1977).
27. Chapman, B.: "Glow Discharge Process: Sputtering and Plasma Etching" Wiley, New York(1980).
28. Sato, N. and Tagashira, H.: *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **19**(2), 102(1991).
29. Friedlander, S. K.: "Smoke, Dust and Haze: Fundamentals of Aerosol Behavior" Wiley, New York(1977).
30. Schweigert, V. A. and Schweigert, I. A.: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **29**, 655(1996).
31. Nowlin, R. N. and Carlile, R. N.: *J. Vac. Sci. Technol.*, **A9**, 2825(1991).