

# 增强辉光放电等离子体离子注入的 三维 PIC/MC 模拟\*

何福顺<sup>†</sup> 李刘合 李芬 顿丹丹 陶婵偲

(北京航空航天大学机械工程及自动化学院, 北京 100191)

(2012 年 3 月 30 日收到; 2012 年 6 月 7 日收到修改稿)

采用三维粒子模拟/蒙特卡洛模型自洽地模拟了增强辉光放电等离子体离子注入过程中离子产生和注入, 获得了放电空间的离子总数、电势分布、等离子体密度分布和离子入射剂量等信息. 模拟结果表明, 5  $\mu\text{s}$  时鞘层达到稳定扩展, 15  $\mu\text{s}$  时离子的产生与注入达到平衡, 证实了增强辉光放电等离子体离子注入能在一定条件下实现自持的辉光放电. 注入过程中, 在点状阳极正下方存在一个高密度的等离子体区域, 证实了电子聚焦效应. 除靶台边缘外, 离子的注入速率稳定且入射剂量均匀. 脉冲负偏压提高时注入速率增加但入射剂量的均匀性变差.

**关键词:** 三维粒子模拟, 蒙特卡洛, 等离子体浸没离子注入, 数值模拟

**PACS:** 52.65.Rr, 52.65.Pp, 52.77.Dq, 52.65.-y

## 1 引言

等离子体浸没离子注入 (PIII)<sup>[1]</sup> 已广泛应用于各种材料的表面改性, 包括改善材料的物理、化学、光学、电学、磁学等性能, 其应用领域从冶金扩展到半导体、微电子及生物工程等领域<sup>[2-5]</sup>. 传统的 PIII 方法需要通过射频、微波、热丝和真空电弧等方法产生等离子体<sup>[6]</sup>. 本课题组发明了一种增强辉光放电等离子体离子注入 (EGD-PIII) 方法<sup>[6-8]</sup>, 该方法采用空心点状阳极和面积圆形阴极靶台产生聚焦电场, 利用电场对电子的聚焦作用及电子与中性粒子在阳极附近的碰撞产生等离子体, 不需要额外的离子源设备即可实现稳定的辉光放电<sup>[9]</sup>. EGD-PIII 的等离子体密度 (约  $10^{16} \text{ m}^{-3}$ ) 比常规的 PIII 方法高<sup>[10]</sup>, 在同样的注入参数下, EGD-PIII 方法的保留剂量高斯峰峰值约是 RF-PIII 注入剂量峰值的 1.5 倍<sup>[11]</sup>.

目前对 EGD-PIII 已有大量的理论和实验研

究<sup>[11-15]</sup>. 鉴于 EGD-PIII 特殊的放电特性, 研究鞘层的动力学扩展行为对于改善注入效果至关重要. Lu<sup>[16]</sup>, Li<sup>[17]</sup> 等用二维柱坐标系的 PIC 模型研究了 EGD-PIII 的鞘层扩展及注入剂量的均匀性. 由于 EGD-PIII 注入过程中电子与中性粒子的碰撞是等离子体的产生来源, 而二维 PIC 模型无法研究这一问题. 因此本文采用三维 PIC/MC 方法对 EGD-PIII 自持放电物理过程进行模拟, 重点跟踪二次电子与中性粒子碰撞产生等离子体的过程及离子的在鞘层中的运动.

## 2 模型及模拟过程

图 1 为三维模型示意. 模拟的区域为  $0.0512 \text{ m} \times 0.0512 \text{ m} \times 0.0656 \text{ m}$ , 网格尺寸为  $dx = dy = dz = 0.0008 \text{ m}$ , 即模型具有  $64 \times 64 \times 82$  个三维网格. 初始时每个网格随机地放置 1 个离子. 由于同时跟踪离子和电子的运动, 而电子的运动速度远超过离子, 采用多时标法推动

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11075012) 资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: hefushun169@163.com

粒子, 离子和电子时间步长分别设为  $0.9dz/v_{i\max}$  和  $0.9dz/v_{e\max}$ ,  $v_{i\max}$  和  $v_{e\max}$  分别为离子和电子可能的最大速度. 阴极圆形靶台半径为  $25dx$ , 材料为铝, 二次电子发射系数<sup>[18]</sup>  $r = A + B \times E_i^{0.5}$ , 其中  $A = -3.836$ ,  $B = 0.0995$ ,  $E_i$  为离子能量 (单位 eV).

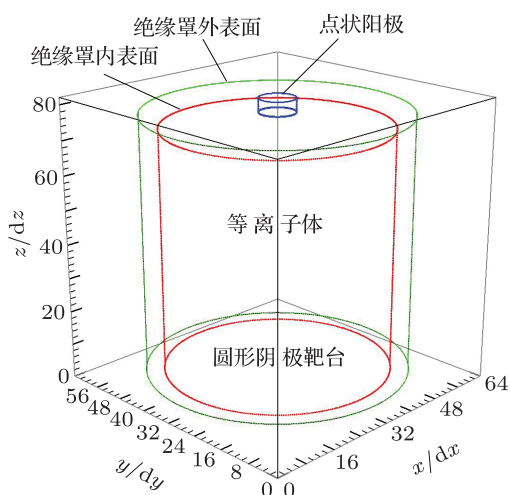


图1 模拟区域示意图

初始时离子密度  $n_i$ 、电子密度  $n_e$  及等离子体密度  $n_0$  均为  $1.0 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ , 放电气压为  $5.0 \text{ Pa}$ . 阴极靶台电势为零, 在开始后的  $1 \mu\text{s}$  线性增加到最大值 ( $-10 \text{ kV}$ ), 并维持最大值至脉冲结束 (脉冲宽  $51 \mu\text{s}$ ), 空心点状阳极接地. 等离子体为氩等离子体, 电子温度为  $8 \text{ eV}$ , 绝缘罩的相对介电常数为  $7.5$ . 为研究 EGD-PIII 自持的辉光放电机理, 初始化时随机地在每个网格中放置 1 个离子. 虽然初始时离子数目很少但不会影响模拟计算的准确性, 这是由于考虑了粒子的碰撞, 模拟过程中离子数量和空间电场分布都较为稳定<sup>[19]</sup>. 本文重点跟踪了离子和快电子 (二次电子以及其与中性粒子离子化碰撞产生的电子) 的运动, 未跟踪大量的慢电子的运动, 并假设快电子的数量不足以影响空间电子密度分布, 即电子密度满足波尔兹曼分布规律.

由于带电粒子可能位于网格上的任意位置, 采用一阶权重 (线性插值) 法将带电粒子权重到周围节点 (三维模型下为体积权重), 作为求解泊松方程<sup>[20]</sup> 的源项, 假设电子密度满足波尔兹曼分布规律并采用线性近似替换

$$\frac{\partial^2 \varphi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \varphi}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \varphi}{\partial z^2} = -\frac{e}{\epsilon_0}(n_i - n_e), \quad (1)$$

$$n_e = n_0 \exp\left(\frac{e\varphi}{kT_e}\right), \quad (2)$$

$$\exp\left(\frac{e\varphi}{kT_e}\right) = \exp\left(\frac{e\phi}{kT_e}\right) \left(1 + \frac{e(\varphi - \phi)}{kT_e}\right). \quad (3)$$

式中  $k$  和  $T_e$  分别为波尔兹曼常数和电子温度,  $\varphi$  和  $\phi$  分别为节点当前和上一时刻的电势. 泊松方程只能求解等离子体区域内的节点电势; 对于绝缘罩节点和绝缘罩外部节点的电势, 用拉普拉斯方程求解

$$\frac{\partial^2 \varphi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \varphi}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \varphi}{\partial z^2} = 0. \quad (4)$$

采用有限差分法求解泊松方程和拉普拉斯方程即可得到相应节点的电势. 边界节点 (绝缘罩内外表面节点) 的电势采用高斯法则求解. 由于模型中的边界节点不都在初始化生成的方格节点上, 为使用高斯法则, 需要引入虚拟节点. 本文采用类似文献<sup>[21]</sup> 的办法向边界节点两侧插入虚拟节点 (图 2). 节点  $B$  的电势可通过下式求解:

$$\frac{\epsilon_r(\varphi_C - \varphi_B)}{\Delta BC} - \frac{\varphi_B - \varphi_A}{\Delta BC} = \rho_B, \quad (5)$$

式中  $\epsilon_r$  为绝缘罩的相对介电常数,  $\rho_B$  为节点  $B$  处的电荷面密度. 虚拟节点的电势  $\varphi_A$  和  $\varphi_C$  分别通过节点 1—4 和节点 5—8 电势线性插值得到. 绝缘罩外表面没有电荷积累, 假设  $D, E, F$  分别为绝缘罩一侧节点, 绝缘罩外表面节点 (外边界节点) 和真空一侧节点, 则有

$$\frac{\epsilon_r(\varphi_E - \varphi_D)}{\Delta DE} - \frac{\varphi_F - \varphi_D}{\Delta EF} = 0. \quad (6)$$

得到节点电势及电场后, 采用一阶线性权重法 (体积权重) 将节点电场权重到带电粒子所在位置以计算粒子的受力.

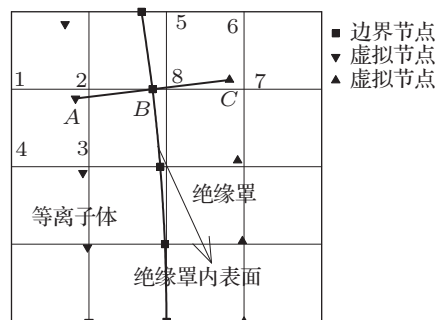


图2 高斯法则求边界节点电势

采用蛙跳算法<sup>[22]</sup> 处理粒子的运动, 给出  $(n-1)\Delta t$  时刻离子的速度和  $(n-1/2)\Delta t$  时刻粒子的

位置和加速度,即可推算出  $n\Delta t$  时刻粒子的速度和  $(n+1/2)\Delta t$  时刻粒子的位置和加速度:

$$v_x^n = v_x^{(n-1)} + a_x^{(n-1/2)}\Delta t, \quad (7)$$

$$v_y^n = v_y^{(n-1)} + a_y^{(n-1/2)}\Delta t, \quad (8)$$

$$v_z^n = v_z^{(n-1)} + a_z^{(n-1/2)}\Delta t, \quad (9)$$

$$x^{(n+1/2)} = x^{(n-1/2)} + v_x^n\Delta t, \quad (10)$$

$$y^{(n+1/2)} = y^{(n-1/2)} + v_y^n\Delta t, \quad (11)$$

$$z^{(n+1/2)} = z^{(n-1/2)} + v_z^n\Delta t. \quad (12)$$

在电子两次运动间隔之间加入 Monte Carlo 算法考虑粒子的碰撞. 由 PIC 方法得到电子各方向的速度分量,第  $i$  个电子的动能及总碰撞概率分别为

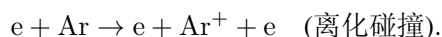
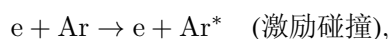
$$\varepsilon_i = \frac{1}{2}m_e(v_{ix}^2 + v_{iy}^2 + v_{iz}^2), \quad (13)$$

$$P_i = 1 - \exp\left(-\Delta t \sum_j v_i \sigma_j(\varepsilon_i) n_j(x_i)\right), \quad (14)$$

其中  $m_e$  和  $\varepsilon_i$  分别为电子的动能和质量,  $\sigma_j(\varepsilon_i)$  为第  $j$  类碰撞的碰撞截面,  $n_j(x_i)$  为第  $j$  类靶粒子在电子所在位置处的密度,  $\Delta t$  为时间步长. 第  $j$  类碰撞发生的分概率为

$$P_j = \frac{v_i \sigma_j(\varepsilon_i) n_j(x_i)}{\sum_j v_i \sigma_j(\varepsilon_i) n_j(x_i)}. \quad (15)$$

Monte Carlo 方法处理粒子碰撞的步骤是先计算  $P_i$ , 比较  $P_i$  与一个均匀随机数的大小判断是否发生碰撞,若发生碰撞,则根据各种分类型的碰撞概率  $P_j$  和另一个均匀随机数大小来判断发生何种类型碰撞<sup>[23]</sup>. 确定碰撞类型后,根据碰撞的动力学理论<sup>[24]</sup>来处理粒子碰撞后的速度和位置的变化以及粒子的产生与消失. 电子与中性粒子的碰撞类型有三种:



采用文献<sup>[25]</sup>的实证经验公式计算电子与中性原子的碰撞截面. 采用类似的方法处理弹性碰撞和激励碰撞,没有单独跟踪激励后的原子,把激励碰撞看作一种电子消失能量的方式<sup>[23]</sup>. 本文重点研究 EGD-PIII 的电子聚焦效应和自持的辉光放电特性,未考虑离子在运动过程中与中性粒子的电荷交换碰撞和弹性散射碰撞.

### 3 计算结果及讨论

统计了放电空间的离子总数随时间的变化,并与未考虑碰撞的结果比较. 如图 3 所示,未考虑碰撞时离子总数随着注入进行逐渐减少,考虑碰撞时离子数上升到最大值后维持稳定. 这是因为未考虑碰撞时离子只有注入没有产生,而考虑碰撞后离子既有注入又有产生,注入开始一段时间后离子的产生和注入达到平衡. 图 4 为实验测量的注入电压和注入电流随时间的变化,可看出电压稳定后注入电流也较为稳定,说明 EGD-PIII 过程中有稳定数量的离子来维持辉光放电,可见考虑碰撞的模型更能反映 EGD-PIII 自持的辉光放电特性.

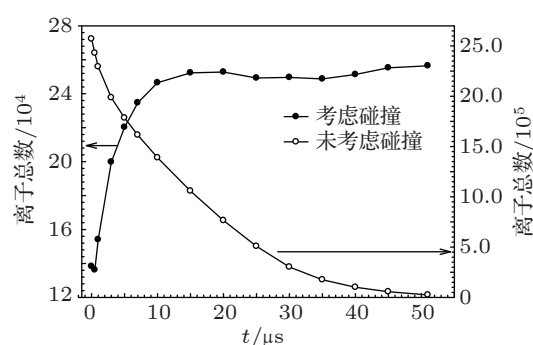


图 3 空间中离子总数随时间的变化

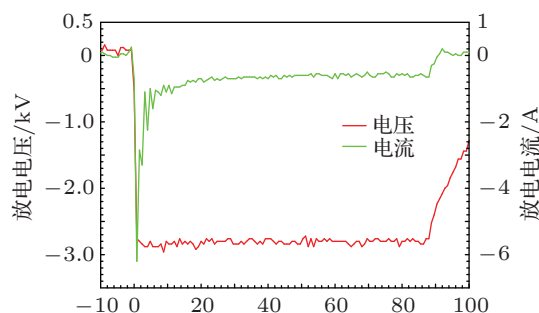


图 4 注入电压和注入电流随时间变化 (偏压 -3 kV, 脉冲宽 100 μs)

图 5 为  $XZ$  平面上不同时刻的归一化电势分布图,  $1 \mu\text{s}$  时鞘层处于扩展阶段,  $5 \mu\text{s}$  时离子总数为最大值的 80% 左右 (图 3), 鞘层基本达到稳定扩展, 说明此时二次电子与中性粒子的碰撞产生足够的离子, 离子进入鞘层的速率和注入靶台的速率基本相等. 之后的注入过程中, 由于离子的产生速率与注入效率达到平衡, 鞘层能够一直维持稳定状态, 这之前二维柱坐标的 PIC 模型<sup>[16,17]</sup>中鞘层的持续扩展结果明显不同.

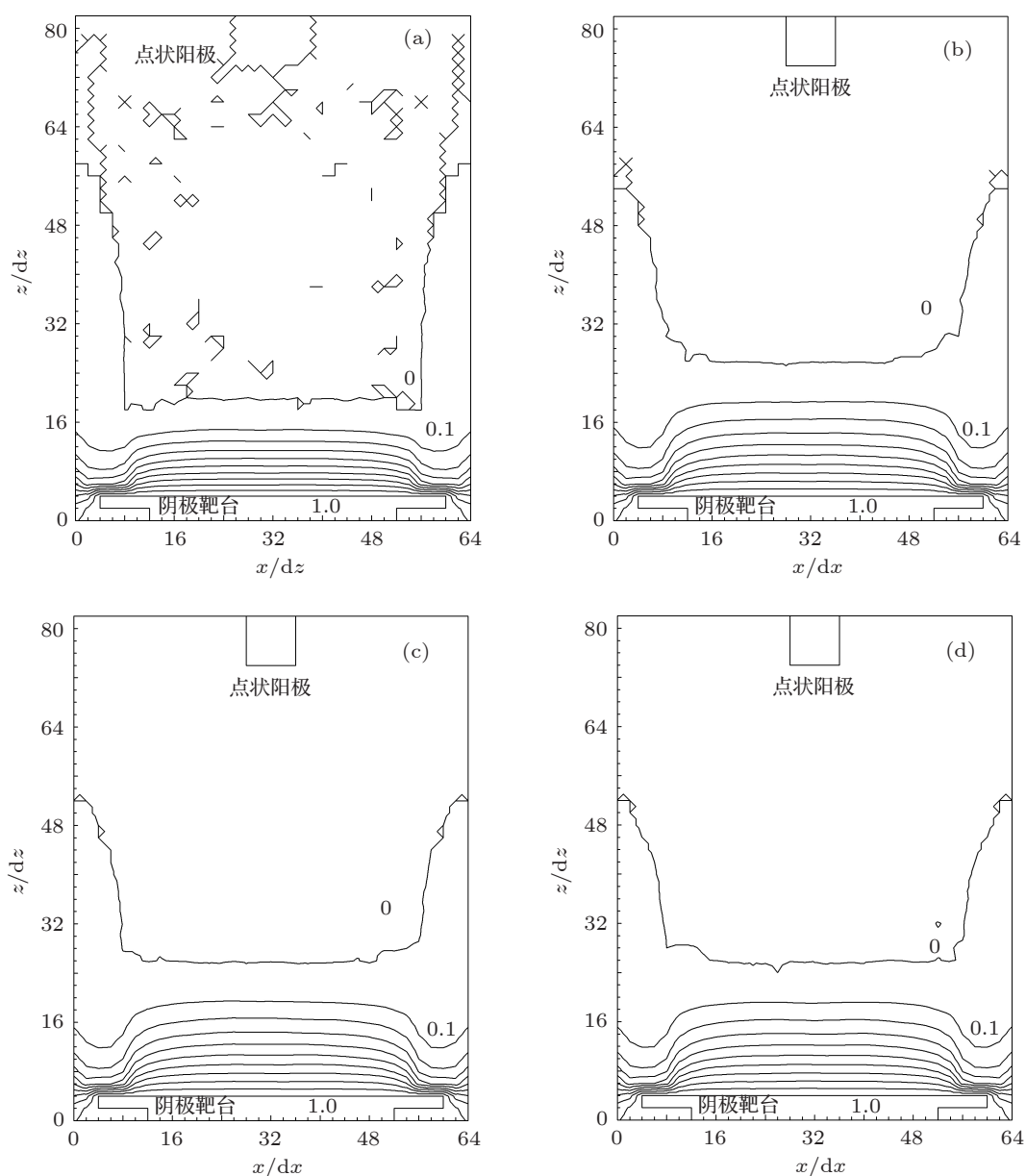


图5 XZ平面上不同时刻的归一化电势 (a) 1 μs; (b) 5 μs; (c) 30 μs; (d) 51 μs

鞘层稳定后, 空间中始终维持较高的等离子体密度, 直至脉冲结束. 图 6 为脉冲结束时 (51 μs) XZ 平面上等离子体密度分布. 可看出鞘层外离子和电子密度普遍高于  $2 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ , 在靠近阳极正下方不远的区域, 等离子体密度更高, 约为  $(3.5\text{—}5.5) \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ . 这与之前的实验结果 [26] 较为相近, 应用聚焦电场的作用及电子与中性粒子的碰撞可解释该现象. EGD-PIII 特殊的放电结构使得放电空间形成聚焦电场, 离子经鞘层电场加速后以较高的能量注入靶台并发射二次电子. 二次电子穿过鞘层后具有向点状阳极聚焦的趋势, 在向点状阳极运动的过程中与中性粒子发生碰撞,

碰撞使得大量中性粒子被电离, 导致阳极正下方有较高的等离子体密度. 理论上阳极附近电子聚焦效应最明显, 此处的等离子体密度也最高, 这一结论已得到实验结果 [26] 的支持. 但模拟结果显示最大等离子密度并不在阳极处而是距阳极有一段距离. 这是因为模拟时假设中性粒子的密度是均匀的, 而实际注入时蒸气状态的原子从空心阳极进入腔体, 阳极附近气体粒子密度最高. 另一原因是模拟没有考虑到电子撞到阳极上的反射及空心阳极管内电子与原子的碰撞. 电子密度和离子密度分布很相似, 不同之处是鞘层区只有离子而没有电子.

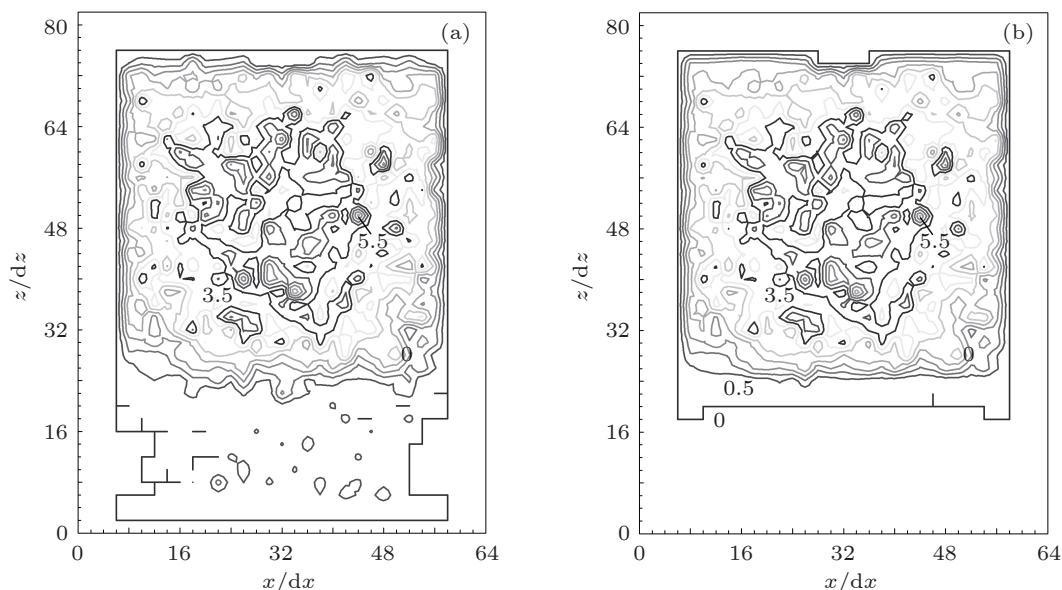


图6 51 μs时 XZ 平面的粒子密度分布 (a) 离子, (b) 电子 (单位  $10^{15} \text{m}^{-3}$ , 相邻等值线相差 0.5)

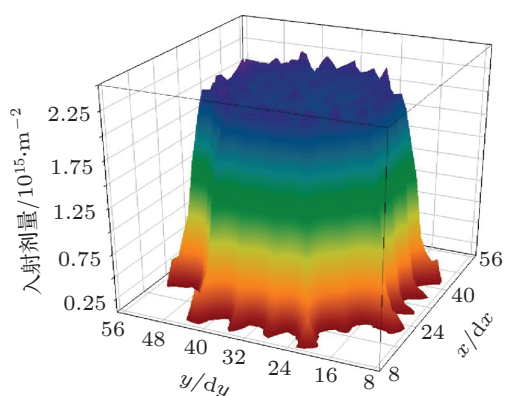


图7 单个脉冲时间内靶台的入射剂量

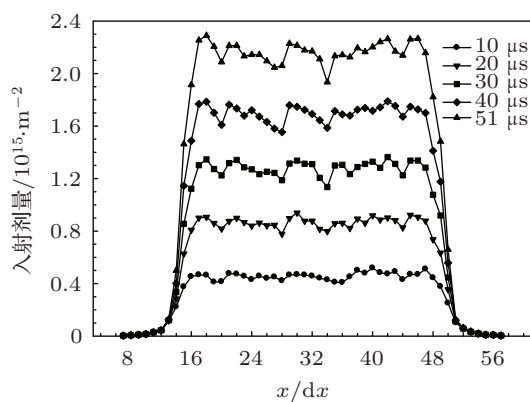


图8 不同时刻 x 轴方向的入射剂量

图7为单个脉冲时间内靶台上的入射剂量分布,除边缘外靶台上的入射剂量较为均匀,与之前

硅片注氢实验的结果<sup>[11]</sup>较为符合.靠近靶台中心的区域入射剂量较高且分布比较均匀,距靶台中心约 16dx 位置处入射剂量最大,靶台边缘少有离子注入.图8为 x 轴方向入射剂量随时间的变化,不同时刻的入射剂量分布形状很相似,入射剂量随时间基本呈线性增加,说明注入过程平稳,注入速率较为均匀.

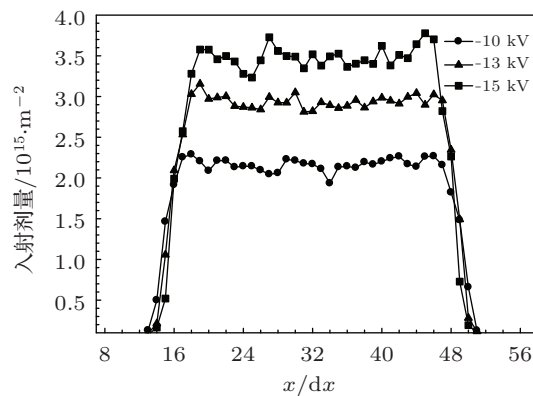


图9 偏压与入射剂量的关系

改变脉冲负偏压,其他参数不变,比较单个脉冲时间内的入射剂量,结果如图9所示.单个脉冲的入射剂量随脉冲负偏压升高而增加,但剂量的均匀性变差.这是由于脉冲负偏压越高,离子和二次电子的能量越大,离子的产生和注入速率越高.但由于提高负偏压时鞘层厚度增加,而且提高负偏压时,离子在靠近样品表面时速度和惯性较大,鞘层

改变离子运动方向的能力减弱,所以入射剂量的均匀性变差.

## 4 结论

本文运用三维 PIC/MC 模型自洽地模拟了 EGD-PIII 自持的辉光放电过程,得到不同脉冲时刻粒子的运动及碰撞信息.结果表明,5  $\mu\text{s}$  时鞘层扩展达到平衡,15  $\mu\text{s}$  后离子的产生与注入达到平衡,放电空间离子总数基本保持不变.模拟结果证

实在一定条件下 EGD-PIII 能够通过二次电子与中性粒子的碰撞产生等离子体来维持辉光放电.由于聚焦电场的作用,注入过程中阳极正下方聚焦了大量的二次电子,二次电子与中性粒子碰撞并使之离化,因而此处等离子体密度最高,证实了 EGD-PIII 的电子聚焦效应.除边缘外靶台上的入射剂量较为均匀.增大偏压后注入速率增加但入射剂量均匀性变差.综上所述,三维 PIC/MC 模型能自洽地模拟 EGD-PIII 过程中离子的产生和注入,并能体现 EGD-PIII 自持的辉光放电特性和电子聚焦效应.

- [1] Conrad J R, Radtke J L, Dodd R A, Worzala F G, Tran N C 1987 *J. Appl. Phys.* **62** 4591
- [2] Tendys J, Donnelly I J, Kenny M J, Pollock J T A 1988 *Appl. Phys. Lett.* **53** 2143
- [3] Li X C, Wang Y N 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2667 (in Chinese) [李雪春, 王友年 2004 物理学报 **53** 2666]
- [4] Chu P K 2004 *J. Vac. Sci. Technol. B* **22** 289
- [5] Walter K C 1994 *J. Vac. Sci. Technol. B* **12** 945
- [6] Li L H, Chu P K 2007 *Surf. Coat. Technol.* **201** 6516
- [7] Chu P K, Li L H *U.S. Patent* 8 119 208 B2 [2012-02-21]
- [8] Li L H, Poon R W Y, Kwok S C H, Chu P K, Wu Y Q, Zhang Y H 2003 *Rev. Sci. Instrum.* **74** 4301
- [9] Lu Q Y, Li L H, Fu R K Y, Chu P K 2008 *Phys. Lett. A* **372** 6183
- [10] Li L H, Wu Y Q, Zhang Y H, Fu R K Y, Chu P K 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 113301
- [11] Lu Q Y, Li L H, Li J H, Fu R K Y, Chu P K 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 061503
- [12] Lu Q Y, Li L H, Fu R K Y, Chu P K 2008 *J. Appl. Phys.* **104** 043303
- [13] Li L H, Lu Q Y, Fu R K Y, Chu P K 2009 *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. Sect. B* **267** 1696
- [14] Lu Q Y, Wang Z, Li L H, Fu R K Y, Chu P K 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 033304
- [15] Wang Z, Zhu Y, Li L H, Lu Q Y, He F S, Dun D D, Li F, Fu R K Y, Chu P K 2011 *Riew. Sci. Instrum.* **82** 023503
- [16] Kwok D T K, Lu Q Y, Li L H, Li J H, Fu R K Y, Chu P K 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 091501
- [17] Li L H, Li J H, Kwok D T K, Wang Z, Chu P K 2009 *J. Appl. Phys.* **106** 013313
- [18] En W, Cheung N W 1996 *IEEE. Trans. Plasma Sci.* **24** 1184
- [19] Kwok DTK, Li J H, Ma X B, Chu P K 2010 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43** 095203
- [20] Wang P, Tian X B, Wang Z J, Gong C Z, Y S Q 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 085206 (in Chinese) [王蓬, 田修波, 汪志健, 巩春志, 杨士勤 2011 物理学报 **60** 085206]
- [21] Kwok D T K 2006 *IEEE. Trans. Plasma. Sci.* **34** 1059
- [22] Shao F Q 2002 *Plasma Particle Simulation* (Beijing: Science Press) p28 (in Chinese) [邵福球 2002 等离子体粒子模拟 (北京: 科学出版社) 第 28 页]
- [23] Yang C, Liu D G, Wang X M, Liu L Q, Wang X Q, Liu S G *Acta Phys. Sin.* **61** 045204 (in Chinese) [杨超, 刘大刚, 王小敏, 刘腊群, 王学琼, 刘盛刚 2012 物理学报 **61** 045204]
- [24] Vahedi V, Surendra M 1995 *Comput. Phys. Commun.* **87** 179
- [25] Brusa R S, Karwasz G P, Zecca A 1996 *Z. Phys. D: At. Mol. Clusters.* **38** 279
- [26] Li L H, Fu R K Y, Poon R W Y, Kwok S C H, Chu P K, Wu Y Q, Zhang Y H, Cai X, Chen Q L, Xu M 2004 *Surf. Coat. Technol.* **186** 165

# Numerical simulation of enhanced glow discharge plasma immersion ion implantation using three-dimensional PIC/MC model\*

He Fu-Shun<sup>†</sup> Li Liu-He Li Fen Dun Dan-Dan Tao Chan-Cai

(School of Mechanical Engineering and Automation, Beihang University, Beijing 100191, China)

(Received 30 March 2012; revised manuscript received 7 June 2012)

## Abstract

Enhanced glow discharge plasma immersion ion implantation is self-consistently simulated using a three-dimensional PIC/MC model. The information about ion counts, space potential, plasma density and ion incident dose is obtained. The results show that the sheath has fully expanded at 5  $\mu$ s. There is a stable equilibrium of ion counts at 15  $\mu$ s, which corroborates the characteristic of self-sustaining glow discharge of EGD-PIII. In the space just below anode where is found a highest plasma density, verifying the electron focusing effect. The rate of implantation is steady and the incident dose is relatively uniform except at the rim of target. A higher pulse negative bias may increase the injection rate but reduce the dose uniformity at the same time.

**Keywords:** three-dimensional particle-in-cell, Monte Carlo, plasma immersion ion implantation, numerical simulation

**PACS:** 52.65.Rr, 52.65.Pp, 52.77.Dq, 52.65.-y

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11075012).

<sup>†</sup> E-mail: hefushun169@163.com