

蒙特卡罗模拟在辉光放电鞘层离子 输运研究中的应用*

王建华 金传恩

(合肥工业大学理学院,合肥 230009)

(2003 年 4 月 1 日收到,2003 年 6 月 25 日收到修改稿)

利用蒙特卡罗方法模拟氩气直流辉光放电鞘层内离子的运动过程.模拟基于离子与中性原子的电荷转移和弹性散射两种主要的散射过程,考虑了碰撞截面与能量相关和不相关两种情况.在弹性散射中采用了势场相互作用模型和刚性球碰撞两种模型.通过模拟得到不同气压和不同放电电压下离子入射阴极的能量分布和角度分布,并对几种模型的模拟结果进行了比较和讨论.

关键词:辉光放电,等离子体鞘层,蒙特卡罗模拟

PACC: 5225F, 5280H

1. 引言

近年来,等离子体化学汽相淀积和等离子体刻蚀等辉光放电等离子体技术在微电子工艺中的应用越来越广泛.辉光放电的阴极位降区即等离子体鞘层是维持放电必不可少的区域,同时由于该区基本上集中了两极间的全部电位降,离子在其中受到强电场的加速而飞向阴极并与阴极碰撞,因而离子在等离子体鞘层中的输运特性在低温等离子体的应用中起着关键的作用.

鞘层中离子输运特性的研究基本上采用两种方法:一种是以求解玻尔兹曼方程为主的解析方法,如文献 [1, 2] 利用 Davis^[3]模型通过求解阴极位降区的玻尔兹曼方程,得到了离子轰击阴极的能量分布;另一种是数值模拟方法.由于鞘层区的非均匀性和复杂性,使得求解玻尔兹曼方程非常困难,因而计算机模拟特别是能够模拟粒子运动过程的蒙特卡罗方法,由于其良好的精确性而受到了普遍的重视.许多作者采用一定的假设和模型,对鞘层中的离子输运进行模拟,从不同角度和层面提供了对离子输运特性的认识.文献 [4] 假设离子和中性原子仅发生电荷转移碰撞,得到了电荷转移碰撞对离子能量和运动定向性的影响.文献 [5, 6] 分别考虑了电荷转移碰撞和弹性散射(采用 9-6-4 相互作用势形式)两种过程,不考虑碰撞截面与能量的相关性,得到了离子的能量分布和角度分布.

本文基于离子与中性原子发生电荷转移碰撞和弹性散射两种主要的碰撞过程,考虑碰撞截面与能量相关和不相关两种情况,对平板氩气直流辉光放电鞘层中的离子进行了蒙特卡罗模拟,得到了不同放电参数下离子的能量和角度分布.在讨论弹性散射时采用了势场相互作用(Molier 势形式)和刚性球碰撞两种模型,并对几种模型所得到的结果进行了比较和讨论.

2. 模拟基础

我们所考虑的是低压、常温、弱电离的氩气平板直流辉光放电,如图 1 所示,取垂直阴极并指向阴极的方向为 z 轴的正方向,原点取在负辉光区和鞘层边界.鞘层区的电场方程采取 Warren 的实验观测结果^[7],此时电场 F 可以看作沿轴向线性变化,即

$$\frac{F(z)}{P} = -\frac{1}{P} \frac{dV(z)}{dz} = -\frac{1}{P} \frac{2zV_c}{d_c^2}, \quad (1)$$

式中 P 是氩气压强, $F(z)$ 是 z 处的电场, d_c 是鞘层厚度,阴极负辉光区与阴极暗区的交界处 $z=0$, 则阴极处 $z=d_c$, V_c 是加在鞘层上的直流电压.

2.1. 离子在鞘层中的运动

当离子自负辉光区进入鞘层后,在阴极位降的作用下加速向阴极运动,其运动轨迹由牛顿定律加以描述.

设离子在初始位置 $r_0(x_0, y_0, z_0)$ 受到电场 $F(r_0)$

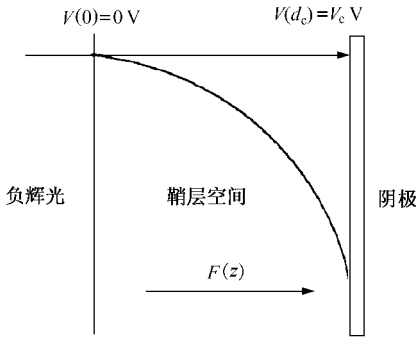


图 1 平板直流辉光放电电位分布

加速,经 Δt 时间后到达新的位置 $r_1(x_1, y_1, z_1)$,由于电场 F 仅沿轴向 z ,若 Δt 较小,则有

$$\begin{aligned} z_1 &= z_0 + v_z(r_0)\Delta t, \\ x_1 &= x_0 + v_x(r_0)\Delta t, \end{aligned} \quad (2)$$

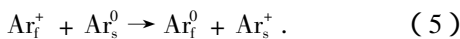
$$\begin{aligned} y_1 &= y_0 + v_y(r_0)\Delta t, \\ v_z(r_1) &= v_z(r_0) + \frac{e}{m_i} F(r_0)\Delta t, \\ v_x(r_1) &= v_x(r_0), \\ v_y(r_1) &= v_y(r_0), \end{aligned} \quad (3)$$

式中 $v(r_0)$ 为离子初始速度, m_i 为离子质量, e 为离子电荷. 离子在 $F(z_0)$ 处的能量为

$$E(z_0) = \frac{eV_c}{d_c^2} z_0^2. \quad (4)$$

2.2. 离子在鞘层中的碰撞

离子在受到电场加速到达阴极之前,会受到多次碰撞或散射. 由于在辉光放电过程中,中性氩原子的浓度远大于电子、离子和快原子的浓度,所以一般只考虑离子与中性氩原子的碰撞,在此我们考虑了离子与稳态氩原子发生电荷转移(交换)碰撞和弹性散射两种主要的碰撞过程. 当快速运动的氩离子 Ar_i^+ 与静止的稳态氩原子 Ar_s^0 仅发生电荷转移碰撞时,电子从氩原子转移到氩离子,同时两粒子能量保持不变,所以产生一个快速运动的氩原子 Ar_i^0 和一个静止的氩离子 Ar_s^+ ,这一过程可以表示为



新离子从静止开始运动,而碰撞后其能量为 0 eV,方向沿电场方向,即

$$E_0\theta_0 \rightarrow E_1 = 0 \text{ eV}, \quad \theta_1 = 0^\circ, \quad (6)$$

式中 E_0 , E_1 和 θ_0 , θ_1 分别为碰撞前后的离子能量和运动方向与主轴 z 的夹角.

对于弹性碰撞,本文分别采用刚性球模型和 Molier 势场作用模型加以处理. 两种模型中,离子的散射方位角 ψ 具有各向同性的散射特性,因而可以用 $[0, 1]$ 上的随机数 ξ 进行如下抽样来确定离子散射后的方位角:

$$\psi = 2\pi\xi, \quad \xi \in [0, 1]. \quad (7)$$

对于离子的散射角,即碰撞后离子运动方向与碰撞前离子运动方向的夹角 χ 和离子散射后的能量 E ,分两种情况考虑.

在刚性球模型中,将氩离子和氩原子看成半径为 R 的两个等质量刚性球,此时离子的散射角 χ 和散射后的能量 E 可以由一个碰撞参数 b 唯一确定,

$$\chi = \frac{\pi}{2} - \arcsin\left(\frac{b}{2R}\right), \quad (8)$$

$$E = E_0(b/2R)^2, \quad (9)$$

式中 b 为碰撞前两粒子质心的垂直距离,显然当 $b > 2R$ 时没有碰撞发生,当有碰撞发生时, b 为 $[0, 2R]$ 上的一随机值,因而可以用 $[0, 1]$ 上的随机数 ξ 进行如下抽样;

$$b = 2R \times \xi. \quad (10)$$

对于势场作用模型,需要知道原子间的相互作用势的形式,本文采用 Molier 屏蔽库仑势,其形式为

$$V(r) = (Z_1 Z_2 e^2 / r) \cdot f(r), \quad (11)$$

式中 Z_1 和 Z_2 是质量为 m_1 和 m_2 的两个相互作用原子的质子数, r 是原子间距离, e 是单位电荷, $f(r)$ 是屏蔽函数,其形式为

$$f(r) = 0.35e^{-0.3r/a_s} + 0.55e^{-1.2r/a_s} + 0.1e^{-6r/a_s}, \quad (12)$$

式中 a_s 是屏蔽常数.

文献^[8]利用幂函数分段近似 Molier 势的方法,得到了质心参照系下的散射角 χ_{com} 的表达式^[8]

$$\sin^2\left(\frac{\chi_{\text{com}}}{2}\right) = \left[1 + \frac{p^2 \epsilon^{2/r}}{k_n^2 \beta_n^2}\right]^{-n}, \quad (13)$$

式中简约能量

$$\epsilon = \left[\frac{Em_2}{m_1 + m_2}\right] \times \left[\frac{a_s}{z_1 z_2 e^2}\right].$$

简约碰撞参数 $p = b/a_s$, 参数 n 是简约能量 ϵ 的函数, k_n 和 β_n 均是简约能量 ϵ 和碰撞参数 p 的函数. 通过下式将 χ_{com} 转化到实验室参照系的散射角 χ :

$$\tan \chi = \frac{\sin \chi_{\text{com}}}{\frac{m_1}{m_2} + \cos \chi_{\text{com}}}. \quad (14)$$

此时入射氩离子散射后的能量为

$$E = E_0 \left[1 - \sin^2 \left(\frac{\chi_{\text{com}}}{2} \right) \right]. \quad (15)$$

当碰撞发生时,根据 Wronski^[9]的碰撞参数近似公式,可对碰撞参数 b 进行如下抽样:

$$b = [A \times (\ln E)^2 + B \times (\ln E) + C] \times \xi, \quad \xi \in [0, 1], \quad (16)$$

其中 ξ 为 $[0, 1]$ 上的随机数, A, B, C 是由实验求出的常数.

3. 模拟过程

3.1. 确定碰撞位置

设离子初始位置位于鞘层和负辉光区的交界处 ($z = 0$), 离子速度遵守麦克斯韦分布, 可由该分布抽样选取初始速度. 离子在阴极位降区因碰撞和电场作用, 其运动轨迹是一条曲线. 设前一次碰撞发生在空间坐标 $t_0(x, y, z)$ 点, 在电场的作用下离子运动到 $t(x', y', z')$ 点, 则离子在 t_0 到 t 点发生碰撞的概率为

$$p(t) = 1 - \exp \left[- \int_{t_0}^t Q(E(t)) dt \right], \quad (17)$$

式中 $E(t)$ 为 t 点的离子能量, 由(4)式决定, $Q(E)$ 为与能量相关的碰撞总截面, $Q(E)$ 定义为

$$Q(E(t)) = N \times \sigma(E(t)), \quad (18)$$

式中 N 为由气压 P 决定的粒子浓度, $\sigma(E)$ 为与能量相关的微观碰撞截面. 利用如下方法进行抽样:

$$\int_{t_0}^t Q(E) dt = -\ln(1 - \xi), \quad (19)$$

就可由一组随机数 ξ_M 产生一系列碰撞位置 T_M .

在本文中, 能量相关的碰撞截面解析公式是由文献^[10]根据 Phelps 的数据拟合而来的, 氩离子的电荷转移碰撞截面 σ_x 和弹性碰撞截面 σ_e 分别为:

$$\sigma_x(E) = (59.67 - 4.821 \ln E) \times 10^{-16} \text{ cm}^2, \quad (20)$$

$$\sigma_e(E) = (118.80 - 9.77 \ln E) \times 10^{-16} \text{ cm}^2, \quad (21)$$

式中能量 E 的单位为 eV. 总的碰撞截面 σ_i 为

$$\sigma_i = \sigma_x + \sigma_e. \quad (22)$$

在考虑碰撞截面与能量非相关的刚性球碰撞模型中, 根据 Cramer^[11]的实验结果, 以及 Phelps^[12]的推荐值, 为简单起见, 此时氩离子电荷转移碰撞截面和

弹性碰撞截面都取为 $2.5 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$.

3.2. 确定碰撞类型

当碰撞发生后要进一步确定碰撞的类型. 发生电荷转移碰撞或弹性散射是一随机事件, 相应概率分别为 P_x 和 P_e . 碰撞截面的物理意义为碰撞的概率, 因而发生各种碰撞的概率与相应的碰撞截面成正比, 所以相应的碰撞概率为

$$P_x = \sigma_x(E) / \sigma_i(E), \quad (23)$$

$$P_e = \sigma_e(E) / \sigma_i(E). \quad (24)$$

可利用一随机数 $\xi \in [0, 1]$ 进行抽样, 当 $0 < \xi < P_x$ 时电荷转移碰撞发生, 当 $P_x \leq \xi \leq 1$ 时弹性碰撞发生.

3.3. 确定碰撞后的离子能量和运动方向

当发生电荷转移碰撞时, 其碰撞后的能量与方向由(6)式决定. 当发生弹性碰撞时, 离子的散射方位角 ψ 由(7)式确定, 刚性球碰撞模型中离子的散射角 χ 和散射后的能量 E 则由(8)和(9)式确定, 而势场作用模型中离子的散射角 χ 和散射后的能量 E 则由(13)(14)(15)式确定.

在三维坐标系下, 根据碰撞前离子运动方向的主夹角 θ_0 和方位角 ϕ_0 以及离子的散射角 χ 和散射方位角 ψ , 通过坐标系变换可以求出碰撞后速度的主夹角 θ 和方位角 ϕ . 离子散射前后的坐标系如图 2 所示.

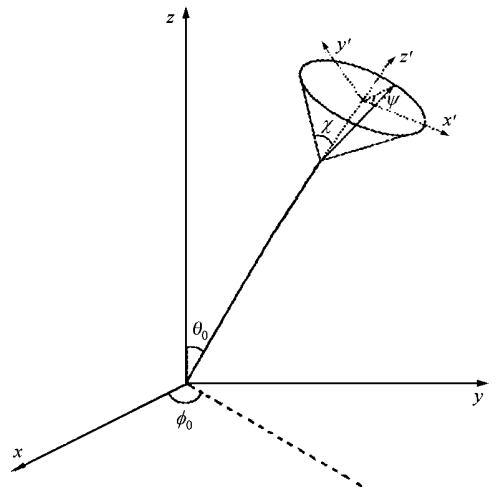


图 2 离子散射前后的坐标系

4. 模拟结果及分析

在模拟中根据碰撞截面与离子能量的相关性,

我们考虑两类模型:碰撞截面与离子能量相关性模型和碰撞截面与离子能量非相关性模型.在第一类模型中我们讨论了两个模型:模型 1,包括电荷转移碰撞和势场作用弹性散射(以下简称相关性势场模型)模型 2,包括电荷转移碰撞和刚性球碰撞弹性散射(以下简称相关性刚性球模型).在第二类中我们考虑了包含电荷转移碰撞和刚性球弹性散射两种过程的模型(以下简称非相关性刚性球模型),即模型 3.通过采用几种模型的蒙特卡罗模拟,主要研究不同放电参数对离子能量分布和角度分布的影响,同时也对各种模型间的异同进行了比较.

4.1. 放电参数的模拟

利用相关势场作用模型,在阴极位降 $V_c = 200$ V,气压分别为 $P = 10, 100$ Pa 时的放电参数进行模拟.图 3 和图 4 分别给出了离子轰击阴极的能量分布和角度分布的模拟结果.通过比较图 3(a)和(b)可以看到,能量分布基本一致.这说明,阴极位降 V_c 保持恒定时,气压 P 变化对离子轰击阴极的能量分布几乎没有影响.文献 [13] 根据 Angel 和 Francis 的实验关系式对上述模拟结果进行了解释,并得到了阴极位降 V_c 、气压 P 和鞘层厚度 d_c 之间的关系^[13]

$$Pd_c = A \times 10^{-B} + C, \quad (25)$$

式中 $A = 1.04 \times 10^2$ Pa·cm, $B = 2.82 \times 10^{-3} V_c$ 和 $C = 7.19$ Pa·cm.显然在阴极位降 V_c 恒定的情况下, Pd_c 保持不变,离子在鞘层内的平均碰撞次数基本不随气压变化而变化,因而归一化能量分布也应基本一致.

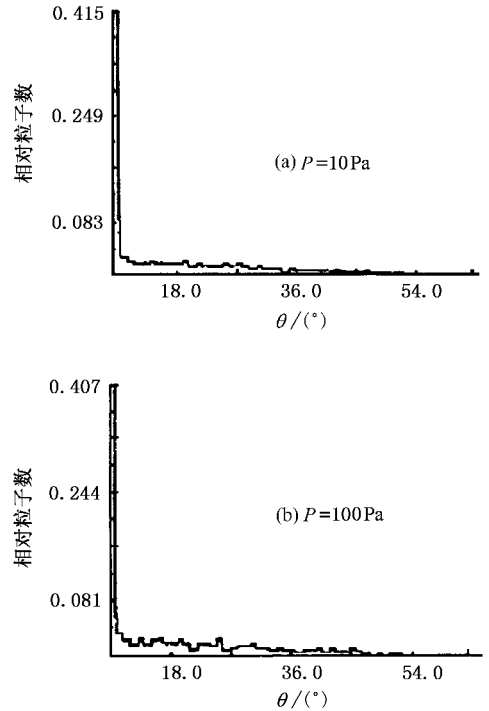


图 4 阴极位降恒定时 ($V_c = 200$ V),不同气压下离子入射阴极的角度分布 (a) $P = 10$ Pa (b) $P = 100$ Pa

从图 4(a)和(b)的比较中可以看出,离子入射阴极角度分布与气压的关系不大,并且大部分离子接近于垂直入射.对其他放电参数的模拟结果也十分相似.例如,曾对 $P = 4$ Pa 而 $V_c = 470, 2500$ V 两种情况进行模拟,发现随着 V_c 增大,离子入射阴极的角度虽向小角度方向有所移动,但并不显著.这可能是由于鞘层内的电场强度大,离子与中性离子的碰撞散射对离子运动方向影响不大^[14].

4.2. 典型参数的模拟

用与放电参数模拟相同的模型,控制气压 P 恒为 4 Pa 的情况下对阴极位降 V_c 分别为 470 和 2500 V 两个典型值的情况进行模拟.图 5(a)和(b)是相应离子入射阴极的能量分布图.通过比较可以发现:气压 P 保持恒定时,增大阴极位降 V_c 将有更多的高能离子到达阴极,甚至有部分离子无碰撞地到达阴

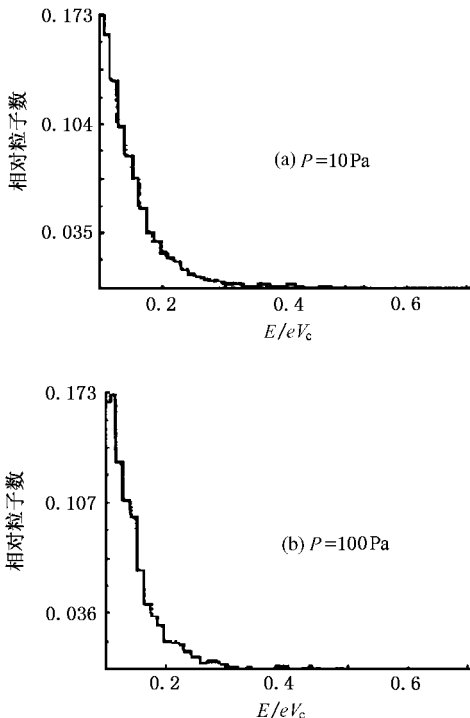


图 3 阴极位降恒定时 ($V_c = 200$ V),不同气压下离子入射阴极的能量分布 (a) $P = 10$ Pa (b) $P = 100$ Pa

极.其原因在于:气压 P 保持恒定时,离子的平均自由程不变.随着阴极位降 V_c 的增大,鞘层厚度 d_c 减小,鞘层内的电场变得更强,离子在一个自由程内可以获得更多的能量.另外,由于鞘层变薄,而 P 恒定,离子的平均自由程不变,所以离子碰撞次数减少,损失的能量也相应减少^[15].因而随着阴极位降 V_c 的增大,能量分布曲线向高能端移动.

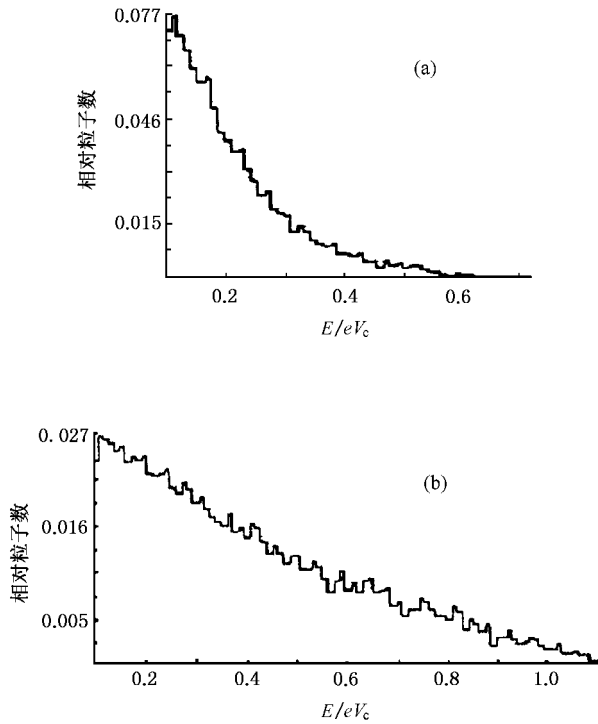


图5 基于相关性势场作用模型,当气压恒定($P = 4.0$ Pa)时,不同阴极位降下离子入射阴极的能量分布 (a) $V_c = 470$ V (b) $V_c = 2500$ V

4.3. 利用相关性势场模型和相关性刚性球模型的模拟

利用文献[3]给出的放电参数,分别采用相关性势场模型和相关性刚性球模型进行了模拟,两个模型均采用相同的能量相关碰撞截面,由(20)(21)式确定.图6(a)和(b)分别是两种模型得到的离子入射阴极的能量分布.可以看到,两种模型模拟得到的能量分布较为接近.但与文献[3]的结果相比,相关性势场模型的模拟结果与其实验结果一致,而刚性球模型的模拟结果则与其基于玻尔兹曼方程的理论分布较为接近.此外也可看到相关性势场模型模拟结果中的高能离子数比相关性刚性球模型中的多.这是因为势场模型中弹性散射是各向异性的,前向散射占优势,而

刚性球的弹性散射是各向同性的,同样的入射角,后者散射角较大,失去的能量较多.

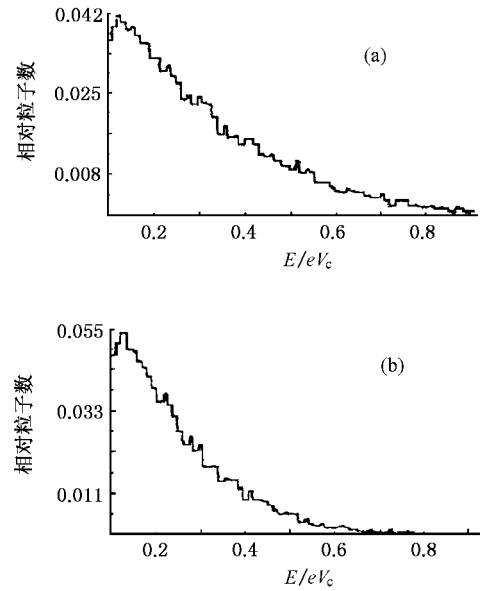


图6 基于不同模型离子入射阴极的能量分布 (a)相关势场作用模型 (b)相关性刚性球模型

4.4. 非相关性刚性球模型的模拟

由于不考虑碰撞截面与能量相关性的刚性球模

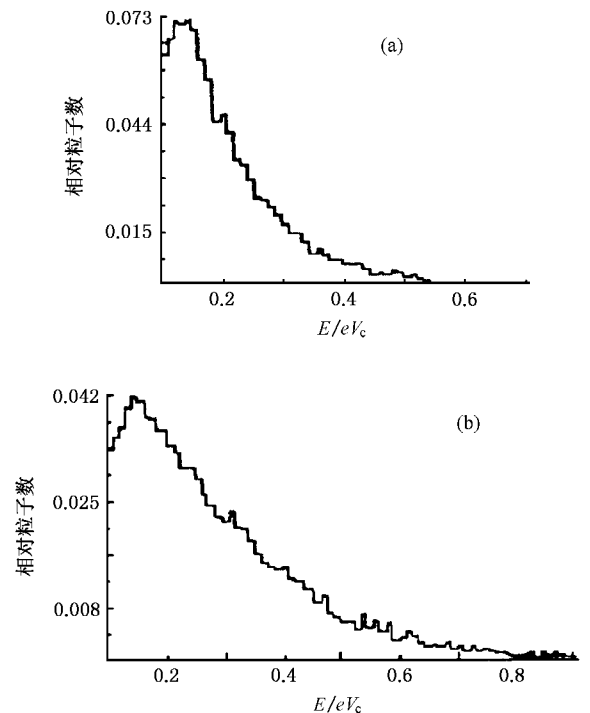


图7 基于非相关性的刚性球模型,当气压恒定($P = 4.0$ Pa)时,不同阴极位降下离子入射阴极的能量分布 (a) $V_c = 470$ V (b) $V_c = 2500$ V

型即模型 3 比较简单而多被采用. 为了解其适用范围, 利用该模型, 对图 5 中所给出的放电参数进行了模拟, 并与考虑相关性的图 5 结果进行比较, 结果如图 7(a) 和 (b) 所示. 将图 7 与图 5 比较后可以看出, $V_c = 470$ V 的两个分布图基本相同, $V_c = 2500$ V 的两个分布图差别很大. 图 5(b) 中的高能离子数远大于图 7(b) 中的高能离子数. 这说明, 当阴极位降 V_c 不太大时, 碰撞截面与能量非相关的刚性球模型是适用的, 但是当阴极位降 V_c 很大时不再适用, 此时非相关刚性球模型与相关势场模型的结果有很大差异.

从 (20) (21) 式可知, 在能量相关模型中, 碰撞截面随能量的上升而减小, 能量损失也减小. 所以随着阴极位降的上升, 相关性刚性球模型中的高能离子数有多于非相关性刚性球模型中的高能离子数的趋势. 当阴极位降 V_c 较小时, Pd_c 值较大, 离子在鞘层内的碰撞极为频繁, 因而离子的能量变化范围较小, 此时碰撞截面变化亦不显著, 所以两模型差别不大. 但是随着阴极位降 V_c 的增加, Pd_c 值变小, 使碰

撞次数减少, 另一方面离子在碰撞前获得更大的能量, 此时碰撞截面也有所减小, 因而碰撞次数进一步减少. 两方面共同作用的结果, 使得能量相关模型中能量损失减少, 因而能量相关性模型和能量非相关性模型间差异较大.

5. 结 论

就本文中所讨论的几种模型, 在蒙特卡罗模拟中, 碰撞截面与能量相关势场模型是最为理想的, 碰撞截面与能量非相关的刚性球模型在较低放电电压下适用. 当阴极位降 V_c 保持恒定时, 由于 Pd_c 基本保持不变, 压强 P 的变化对离子能量分布几乎没有影响. 当压强 P 保持恒定时, 随着阴极位降 V_c 的增大, Pd_c 减小, 离子入射阴极的能量分布曲线向高能端移动. 对离子的能量分布和角度分布的模拟表明, 离子入射阴极的角度分布对放电参数的变化不敏感, 大部分离子接近于垂直入射阴极.

-
- [1] Rickards J 1984 *Vacuum* **34** 559
 [2] Lawler J E 1985 *Phys. Rev. A* **32** 2977
 [3] Davis W D, Vanderslice T A 1963 *Phys. Rev.* **131** 219
 [4] Kushner M J 1985 *J. Appl. Phys.* **58** 4074
 [5] Manenschin A, Cadheer W J 1991 *J. Appl. Phys.* **69** 2923
 [6] Thompson B E, Savin H H 1988 *J. Appl. Phys.* **63** 72241
 [7] Warren R 1955 *Phys. Rev.* **98** 1650
 [8] Sielanko J 1984 *Rad. Eff. Lett.* **86** 185
 [9] Wronski Z 1991 *Vacuum* **42** 635
 [10] Wang D Z 1994 *J. Appl. Phys.* **75** 1338
 [11] Cramer W H 1959 *J. Chem. Phys.* **30** 641
 [12] Phelps A V 1994 *J. Appl. Phys.* **76** 747
 [13] Carman R J 1989 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **22** 55
 [14] Zheng J, Liu W D *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 721 (in Chinese)
 [郑 坚、刘万东等 2001 物理学报 **50** 721]
 [15] Wang X X, Lu M Z *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2778 (in Chinese)
 [王新新、芦明则等 2002 物理学报 **51** 2778]

Application of Monte Carlo simulation to the research of ions transport plasma sheaths of glow discharge

Wang Jian-Hua Jin Chuan-En

(College of Science , Hefei University of Technology , Hefei 230009 , China)

(Received 1 April 2003 ; revised manuscript received 25 June 2003)

Abstract

In this paper , Monte Carlo method was used to simulate the motion of ions in the cathode fall zone of glow discharge . Energy distributions and angle distributions at different pressures and voltages are presented . The simulations are based on two main scattering processes of charge transfer and elastic scattering . Either the ion energy dependence or independence of collision cross-sections is taken into account . For elastic scattering , the potential interaction and hard-sphere models are considered . The parameter Pl_c has a great influence on the energy distribution , but the angle distribution of ions is not sensitive to discharge parameters . Simulation results obtained by different models have been compared and discussed . The model that includes charge transfer and potential interaction scattering processes and is based on the dependence of collision cross-section on the ion energy is obviously the best .

Keywords : glow discharge , plasma sheath , Monte Carlo simulation

PACC : 5225F , 5280H