

05;10;11

ВЛИЯНИЕ ОБЪЕМНОЙ СВЯЗИ НА ВЕЛИЧИНЫ ПОРОГОВЫХ ЭНЕРГИЙ КАСКАДОВ РАСПЫЛЕНИЯ ТВЕРДЫХ ТЕЛ

© И.П. Сошников, Н.А. Берт

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия
(Поступило в Редакцию 18 января 1995 г.
В окончательной редакции 19 апреля 1995 г.)

Проведен анализ модели Ямамуры–Богдански для определения энергий эффективного порога распыления твердых тел, который показал присутствие систематической ошибки в теории. Поэтому было сделано предположение, что расхождение теории и эксперимента объясняется неупругими энергопотерями, вызванными разрывом объемных связей атома. В результате анализа расширенной модели получена параметрическая формула для определения пороговых энергий различных каскадов распыления. Сравнение зависимостей пороговой энергии каскадов распыления, рассчитанных с помощью дополненной модели, показывает хорошее согласие теории и эксперимента. Предложен алгоритм определения каскадных параметров, который основан на анализе приближений легких и тяжелых ионов.

Бомбардировка твердых тел ускоренными частицами вызывает столкновительное движение атомов в приповерхностной области. Такое движение, называемое каскадом столкновений, может приводить к эмиссии атомов мишени, т.е. к ее распылению. Эффективность распыления зависит от энергии, угла падения и типа бомбардирующих частиц, типа мишени и состояния ее поверхности. Если начальная энергия частиц ниже некоторого порогового значения, то эффект распыления отсутствует. Исследования ^[1,2] показывают, что выход распыления в области низких энергий и скользящего падения частиц, применяемых в исследовательской технике, параметрически связан с величиной пороговой энергии. Поэтому задача определения пороговой энергии распыления имеет важное значение для развития представлений о явлении распыления.

Аналитическое рассмотрение такой задачи проведено Ямамурой и Богдански ^[3] в приближении нескольких столкновений каскада распыления. В результате анализа уравнений энергобаланса для каскадов распыления ими получены выражения для пороговой энергии E_{th} для двух типов каскадов. Для каскадов $1D$, в которых первое же столкновение налетающего иона с атомом приводит к эмиссии этого атома

после k столкновений с другими атомами, Ямамура и Богдански получили выражение

$$\frac{E_{th}}{U_s} = \frac{1}{\gamma} \cdot \frac{1}{\sin^{2k+2} \left(\frac{(k+1)\pi + 2\theta}{2(k+1)} \right)}, \quad (1)$$

где U_s — поверхностная энергия связи атомов мишени; γ — параметр столкновения частиц ($\gamma = 4\mu/(1 + \mu)^2$); μ — соотношение масс атома мишени и иона ($\mu = M_t/M_i$); θ — угол падения ионов на поверхность мишени, отсчитываемый от нормали к поверхности.

Для каскада $2C$, в котором эмиссия атома выбитого после n -ого рассеяния иона происходит после однократного рассеяния этого атома на других атомах мишени, в [3] получено выражение

$$\frac{E_{th}}{U_s} = \frac{1}{\gamma} \frac{(1 + \mu)^{2n} (1 + 2\mu \cos \Psi + \mu^2)^{3-n}}{(1 + \mu \cos \Psi)^0}, \quad (2)$$

причем угол рассеяния иона в системе центра масс Ψ удовлетворяет уравнению

$$n \operatorname{arctg} \left(\frac{\sin \Psi}{\mu + \cos \Psi} \right) + 3 \operatorname{arctg} \left(\frac{\mu \sin \Psi}{1 + \mu \cos \Psi} \right) = \pi - \theta. \quad (3)$$

Проведенные Ямамурой и Богдански в [3] расчеты позволили проследить зависимость пороговой энергии от ряда параметров: величины поверхностного барьера, соотношения масс атомов мишени и бомбардирующих ионов. Однако сравнение экспериментальных данных и результатов моделирования обнаруживает некоторое расхождение, которое наиболее заметно в области соотношения масс $\mu \geq 1$, где величина пороговой энергии слабо зависит от энергопотерь в межатомных столкновениях. Такой характер различий теории и эксперимента, по-видимому, связан с недостаточностью модельных предположений об условиях протекания процессов распыления. Поэтому в настоящей работе изучается влияние на результаты моделирования дополнительного фактора — объемной энергии связи U_v .

Аналогично [3] моделируем процесс каскадного распыления, представляя его состоящим из четырех этапов. На первом этапе налетающий ион испытывает n рассеяний на атомах мишени, распыления которых не происходит. Каждый из таких актов рассеяния рассматривается в приближении упругих парных столкновений. Тогда изменение параметров движения иона в отдельном рассеянии описывается известным выражением [4]

$$E' = E \left(1 - \gamma \sin^2 \frac{\Psi}{2} \right), \quad (4)$$

где E и E' — энергия рассеиваемой частицы до и после столкновения соответственно.

Затем в $(n + 1)$ -ом столкновении иона происходит смещение (выбивание) атома мишени из равновесного положения с последующей его эжекцией. В отличие от работы Ямамуры-Богдански [3] предполагается, что выбивание атомов из равновесных положений протекает с

разрывом объемной связи смещаемых атомов с соседними. При этом считаем, что этот процесс (разрыв объемных связей атомов) протекает без изменения направления движения частиц. В силу сказанного имеем

$$E' = \gamma E \cos^2 \alpha - U_v, \quad (5)$$

где α — угол рассеяния атома в лабораторной системе координат.

На третьем этапе выбитый атом испытывает $k-1$ рассеяние на неподвижных атомах мишени. Элементарные акты рассеяния на этом этапе также рассматриваются в приближении парных столкновений. Учитывая, что в данном случае сталкивающиеся частицы имеют одинаковую массу, $\gamma = 1$ и

$$E' = E \cos^2 \alpha, \quad (6)$$

После $k-1$ рассеяния атом достигает поверхности и покидает мишень, преодолевая поверхностный барьер U_s . Условие эмиссии атома через плоский потенциальный барьер записывается в виде

$$E \cos^2 \beta \geq U_s, \quad (7)$$

где β — угол эжекции атомов, отсчитанный от нормали к поверхности.

Используя формулы (4)–(7) для элементарных процессов, находим энергию распыляемого атома в конце каскада

$$E_{n,k} = \left[\gamma E_0 \cos^2 \alpha_1 \prod_{i=1}^n \left(1 - \gamma \sin^2 \frac{\Psi_i}{2} \right) - U_v \right] \prod_{j=2}^k \cos^2 \alpha_j, \quad (8)$$

где E_0 — начальная энергия падающего иона; $E_{n,k}$ — энергия атома в конце каскада; i, j — порядковые номера столкновений до и после смещения распыляемого атома.

Кроме того, для угла эжекции распыляемого атома β можно написать

$$\beta = \pi - \theta - \sum_i \phi - \sum_j \alpha, \quad (9)$$

где ϕ — угол рассеяния иона при столкновении с атомами в лабораторной системе отсчета.

Связь между углами рассеяния в системе центра масс и лабораторной определяется уравнением [4]

$$\operatorname{tg} \phi_i = \frac{\mu \sin \Psi_i}{1 + \mu \cos \Psi_i}. \quad (10)$$

Таким образом, условие распыления атома есть

$$\left[\gamma E_0 \cos^2 \alpha_1 \prod_{i=1}^n \left(1 - \gamma \sin^2 \frac{\Psi_i}{2} \right) - U_v \right] \cos^2 \beta \prod_{j=2}^k \cos^2 \alpha_j \geq U_s. \quad (11)$$

Поскольку пороговая энергия каскада распыления есть минимальная начальная энергия иона E_0 , при которой выполняется условие (11), то

$$(E_{th})_{k,n} = \min \left[E_0(\Psi, \alpha, \beta) \Big|_{k,n} \right],$$

$$E_0(\Psi, \alpha, \beta) \Big|_{k,n} = \left[\frac{U_s + U_v \cos^2 \beta \prod_{j=2}^k \cos^2 \alpha_j}{\gamma \cos^2 \beta \prod_i^n (1 - \gamma \sin^2 \frac{\Psi_i}{2}) \prod_{j=1}^k \cos^2 \alpha_j} \right]. \quad (12)$$

Нетрудно показать, что в процессах многократных упругих рассеяний частицы на одинаковых центрах рассеяния минимум энергопотерь достигается при условии равенства углов рассеяния (см. Приложение), т.е.

$$\begin{aligned} \phi_i &= \phi_j \equiv \phi, \\ \alpha_i &= \alpha_j \equiv \alpha. \end{aligned} \quad (13)$$

Поскольку угол β входит в выражение (12) в той симметрии, что и углы α , то следует ожидать равенства этих углов $\beta = \alpha$. Тогда для α имеем

$$\alpha = \frac{\pi - \theta - n\phi}{k+1}. \quad (14)$$

После подстановки в уравнение (12) равенств (13) и (14) получаем

$$\frac{(E_{th})_{k,n}}{U_s} = \min \left[\frac{1 + \frac{U_v}{U_s} \cos^{2k} \left(\frac{\pi - \theta - n\phi}{k+1} \right)}{\gamma \cos^{2k+2} \left(\frac{\pi - \theta - n\phi}{k+1} \right) \left(1 - \gamma \sin^2 \frac{\Psi}{2} \right)^n} \right], \quad (15)$$

Заметим, что формула (15) при $U_v = 0$ имеет вид

$$\frac{(E_{th})_{k,n}}{U_s} = \left[\gamma \cos^{2k+2} \left(\frac{\pi - \theta - n\phi}{k+1} \right) \left(1 - \gamma \sin^2 \frac{\Psi}{2} \right)^n \right]^{-1}, \quad (16)$$

где углы Ψ удовлетворяют условию

$$n \operatorname{arctg} \left(\frac{\sin \Psi}{\mu + \cos \Psi} \right) + (k+1) \operatorname{arctg} \left(\frac{\mu \sin \Psi}{1 + \mu \cos \Psi} \right) = \pi - \theta. \quad (17)$$

Выражение (16) является обобщенной формулой для случая упругих столкновений и при соответствующем выборе параметров (числа ионных и атом-атомных столкновений) переходит в формулы (1) и (2).

Формулы (2) и (15) использовались для численного моделирования кривых зависимости пороговой энергии различных каскадов распыления от параметра масс μ . На рис. 1 приведены результаты расчетов для каскадов с $n = 1$ и $k = 4-6$. Отметим, что при расчетах использованы значения отношения объемной и поверхностной энергий $U_v/U_s = 1.0$ и 0.5 .

Сравнение представленных кривых показывает, что введение фактора объемной связи приводит к увеличению пороговой энергии каскадов распыления. В области легких ионов ($\mu \gg 1$) расчетные кривые не зависят от числа столкновений атом-атом и хорошо аппроксимируются зависимостью

$$E_{th}/U_s \cong (1 + U_v/U_s)/(\gamma(1 - \gamma)). \quad (18)$$

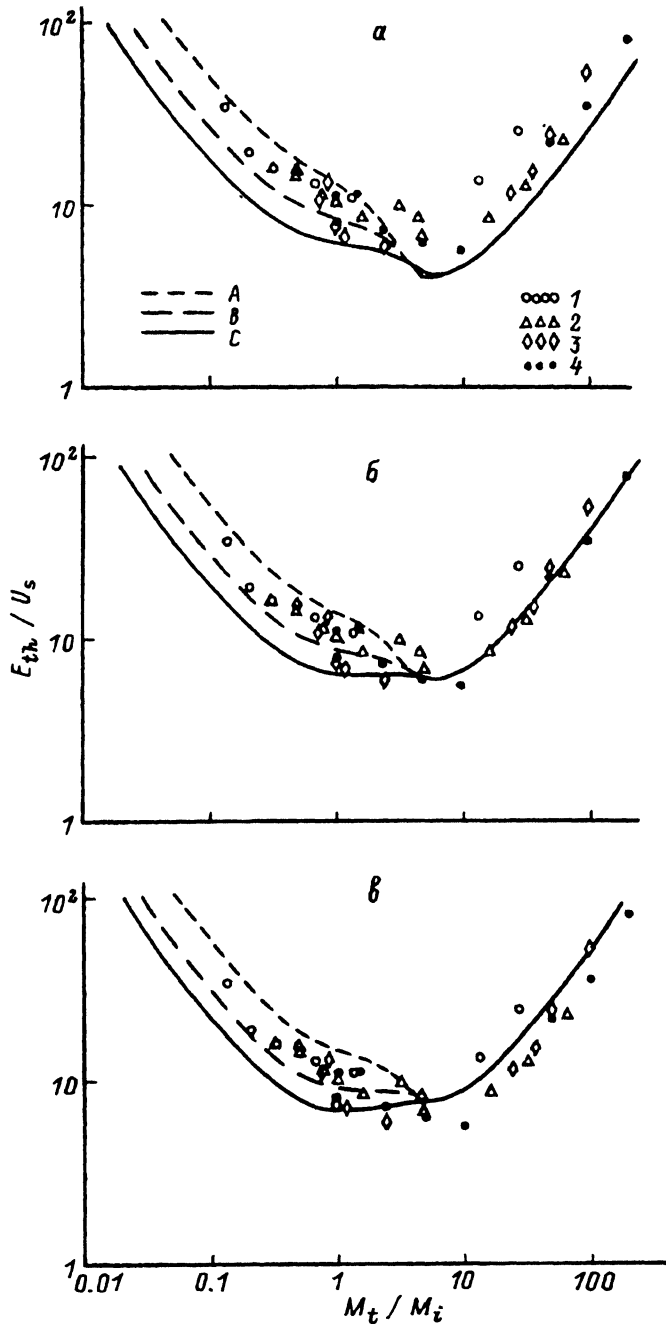


Рис. 1. Сравнение результатов моделирования зависимостей пороговых энергий каскадов по формуле (15) и экспериментальных значений энергий эффективного порога распыления при нормальном падении ионов.

A — $n = 1$, $k = 4$, *B* — $k = 5$, *C* — $k = 6$; $U_v / U_s = 1$: *a* — 0, *б* — 0.5, *в* — 1; экспериментальные данные: 1 — Al, 2 — Cu, 3 — Mo, 4 — Au [4,5].

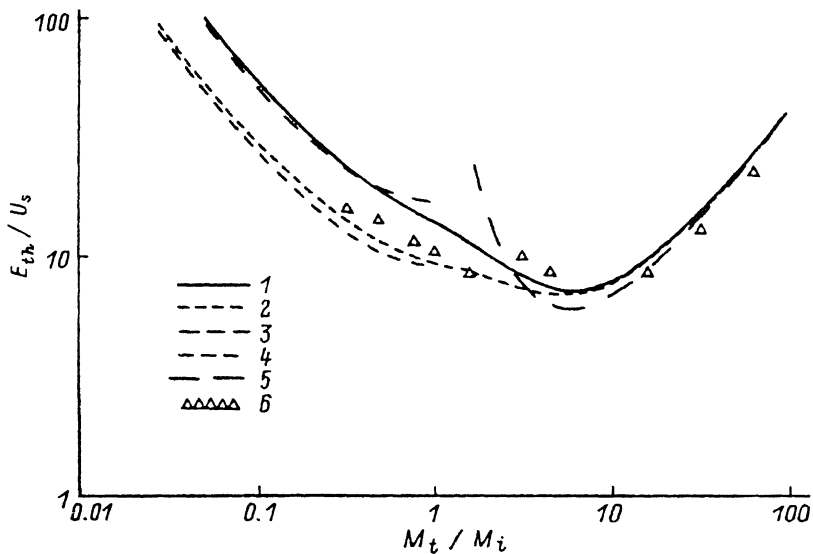


Рис. 2. Результаты моделирования с использованием алгоритма определения параметров каскада для Cu.

1, 2 — расчет по формуле (15) при $n = 1$, $U_v/U_s = 0.45$, $k = 4$ и 5 соответственно; 3 — приближение легких ионов (формула (18)) при $U_v/U_s = 0.45$; 4, 5 — приближение тяжелых ионов (формула (19)) при $U_v/U_s = 0.45$, $k = 4$ и 5 соответственно, 6 — экспериментальные значения энергий эффективного порога распыления Cu при нормальном падении ионов.

Это приближение является следствием свойства легких частиц при столкновениях менять направление импульса при малых изменениях энергии, в результате чего определяющей пороговую энергию каскада оказывается его ионная часть.

В области тяжелых ионов ($\mu \ll 1$) наблюдается зависимость расчетных кривых от атомной части каскада, что обусловлено обратным эффектом: тяжелые частицы в отличие от легких при столкновениях очень неэффективно изменяют направление своего движения. В этом случае модельные зависимости хорошо аппроксимируются кривыми

$$\frac{(E_{th})_{k,n}}{U_s} \cong \frac{1 + \frac{U_v}{U_s} \cos^{2k} \left(\frac{\pi - \theta}{k+1} \right)}{\gamma \cos^{2k+2} \left(\frac{\pi - \theta}{k+1} \right)}. \quad (19)$$

Сопоставление расчетных кривых с экспериментальными данными [5,6] показывает, что модель Ямамуры-Богдански дает заниженную оценку пороговой энергии. В то же время, как видно из рис. 1, б, кривые, рассчитанные по формуле (15), хорошо согласуются с экспериментальными данными.

Лучшее согласие изучаемой модели и эксперимента достигается правильным выбором значений соотношения энергий связи и числа атом-атомных столкновений k для каждого материала мишени индивидуально. Для оценки каскадных параметров предлагается следующий алгоритм.

Используя приближение легких ионов ($\mu \gg 1$), определяем соотношение объемной и поверхностной энергий связи U_v/U_s . Сопоставление

модельного приближения к экспериментальным данным показывает, что для большинства материалов величина соотношения U_v/U_s укладывается в промежуток от 0.4 до 1.5.

Для определения атомного числа рассеяний в каскадах, превалирующих в пороговом распылении, необходимо проводить анализ экспериментальных данных с помощью приближения тяжелых ионов ($\mu \ll 1$).

При выборе величины параметра k , по видимому, надо отдавать предпочтение значению, определяющему меньшие пороговые энергии. Заметим, что в рамках настоящей модели хорошо согласуются с экспериментом модельные кривые для каскадов с $k = 4$, $n = 1$ и $k = 5$, $n = 1$.

Предлагаемый алгоритм не является строгим в силу некоторой неопределенности типа каскада в области сопоставимых масс. Однако этот метод позволяет получать хорошие результаты, что можно видеть на примере, представленном на рис. 2.

Таким образом, показано, что учет влияния объемной связи атомов при определении пороговых энергий каскадов распыления позволяет достичь лучшего согласия с экспериментом. Кроме того, предложен метод определения величины соотношения энергий объемной и поверхностной связи U_v/U_s и числа рассеяний распыляемого атома k .

Авторы выражают благодарность Международному научному фонду (фонд Сороса), без поддержки которого по программе индивидуальных грантов настоящая работа была бы невозможна.

Приложение

Задача определения условий минимума энергопотерь в процессах многократного рассеяния не является новой. Однако авторам не удалось найти описание решения этой задачи. Поэтому ниже приводится это описание.

Частица a движется с заданной начальной кинетической энергией E_0 и испытывает k рассеяний на частицах b . По окончании процесса движется с энергией E_k в направлении под углом θ к первоначальному импульсу. Связь между начальной и конечной энергиями выражается в виде

$$E_k = E_0 \prod_{i=1}^k \left(1 - \gamma \sin^2 \frac{\Psi_i}{2} \right), \quad (\text{П1})$$

где γ — параметр столкновения ($\gamma = 4\mu/(1+\mu)^2$), μ — соотношение масс сталкивающихся частиц ($\mu = M_b/M_a$), Ψ_i — углы рассеяния частицы a в системе центра масс.

Кроме того, модельный процесс рассеяния должен удовлетворять условию

$$\sum \phi_i = \theta, \quad (\text{П2})$$

где θ — угол направления импульса частицы a после рассеяния, ϕ_i — углы рассеяния частиц в лабораторной системе координат.

Связь между углами ϕ_i и Ψ_i выражается формулой

$$\text{tg } \phi_i = \frac{\mu \sin \Psi_i}{1 + \mu \cos \Psi_i}. \quad (\text{П3})$$

Для решения поставленной задачи удобно работать с функциями

$$F(\phi_i, i = 1, \dots, k) = \ln(E_k/E_0),$$

$$f(x) = \ln(1 - \gamma \sin^2(y/2)), \quad \operatorname{tg} x = \frac{\mu \sin y}{1 + \mu \cos y}. \quad (\text{П4})$$

Очевидно, что положение условного экстремума модельной функции F совпадает с условием минимума энергопотерь процесса рассеяния. Кроме того, для модельных функций F и f выполняется равенство

$$F(\phi_i, i = 1, \dots, k) = \sum_{i=1}^k f(\phi_i). \quad (\text{П5})$$

Для определения условного максимума функции F рассмотрим функционал

$$L = F + \lambda \Omega, \quad (\text{П6})$$

где $\Omega \equiv \sum \phi_i - \theta = 0$, λ — некоторое собственное число.

Согласно [7], в точке условного экстремума должно выполняться

$$\partial L / \partial \phi_i = 0, \quad i = 1, \dots, k; \quad \partial L / \partial \lambda = 0. \quad (\text{П7})$$

Или то же более подробно

$$\partial F / \partial \phi_i + \lambda = 0, \quad i = 1, \dots, k; \quad (\text{П8})$$

$$\partial L / \partial \lambda = \Omega = 0. \quad (\text{П9})$$

Условие (П9) является тривиальным и выполняется по определению. Сравнение уравнений (П1) показывает, что в искомой точке все частные производные

$$\partial F / \partial \phi_i = -\lambda, \quad i = 1, \dots, k \quad (\text{П10})$$

и, следовательно, должно выполняться

$$\partial F / \partial \phi_i = \partial F / \partial \phi_j; \quad i, j = 1, \dots, k. \quad (\text{П11})$$

Последнее равенство в силу характера симметрии функции F (см. выражение (П5)) выполняется в случае равенства компонент между собой

$$\phi_i = \phi_j \equiv \phi; \quad i, j = 1, \dots, k. \quad (\text{П12})$$

В итоге в поставленной задаче для углов рассеяния получаем

$$\phi = \theta/k. \quad (\text{П13})$$

Список литературы

- [1] *Falcone G.* // *Rev. Nuovo Cimento*. 1990. Vol. 13. N 1. P. 1-52.
 - [2] *Yamamura Y.* // *Rad. Eff.* 1984. Vol. 80. P. 52-72.
 - [3] *Yamamura Y., Bohdansky J.* // *Vacuum*. 1985. Vol. 35. N 12. P. 561-571.
 - [4] *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Теоретическая физика. Т. 1. Механика. М.: Наука, 1988.
 - [5] *Андерсен Х.Х., Бай Х.* // Распыление твердых тел ионной бомбардировкой / Под ред. Р. Бериша. М.: Мир, 1984. (Andersen H.H., Bay H.L. // *Sputtering by Particle Bombardment 1 Physical Sputtering of Single-Element Solids* / Ed. R. Behrisch. Springer, 1981. *Topics in Appl. Phys.* Vol. 47.)
 - [6] *Natsunami N. et al.* // *Atom. Data and Nucl. Data Tabl.* 1984. Vol. 31. P. 1-80.
 - [7] *Бронштейн И.Н., Семендяев К.А.* Справочник по математике. М.: Наука, 1980. С. 386.
-