

01

## Зависимость коэффициента распыления от угла падения ионов на поверхность мишени

© А.И. Толмачев,<sup>1</sup> Л. Форлано<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Российский новый университет,  
105005 Москва, Россия

<sup>2</sup>Университет Калабрии,  
87036 Козенца, Италия

e-mail: tolmachev.alex@rambler.ru, forlano@vegachess.com

Поступило в Редакцию 4 января 2022 г.

В окончательной редакции 27 февраля 2022 г.

Принято к публикации 27 февраля 2022 г.

Исследована зависимость коэффициента распыления от угла падения ионов на поверхность твердого тела. Диапазон углов падения менялся от  $0^\circ$  (нормальное падение) до  $90^\circ$  (предельное скользкое падение). Компьютерное моделирование выполнялось с помощью программы PAOLA. Теоретический анализ основан на численном решении интегрального уравнения Чандрасекара. Полученные результаты сопоставлены с результатами других авторов.

**Ключевые слова:** распыление под действием ионной бомбардировки, наклонное падение, коэффициент распыления, компьютерное моделирование, теоретический анализ.

DOI: 10.21883/JTF.2022.05.52369.2-22

### Введение

Распыление твердых тел под действием ионной бомбардировки играет важную роль при создании термоядерных реакторов, производстве тонких пленок, развитии методов анализа поверхности, ионной имплантации. За последнее время накоплено большое число экспериментальных данных для различных параметров распыления [1,2]. Одной из важных характеристик является коэффициент распыления, т.е. отношение числа распыленных атомов к числу падающих на мишень ионов. Зависимость коэффициента распыления от угла падения для тяжелых ионов является немонотонной. Сначала коэффициент распыления  $Y$  растет от своего значения при нормальном падении  $Y(0^\circ)$  до максимального значения, а затем убывает до величины  $Y(90^\circ)$  при скользком падении. Расчеты по программе SRIM-2013 [3] дают конечные значения  $Y(90^\circ)$ , но в работе [4] расчеты по программе OKSANA дали нулевые значения  $Y(90^\circ)$  при моделировании распыления кремния ионами инертных газов.

Измерение коэффициента распыления при скользком падении ионов на поверхность мишени представляет собой сложную экспериментальную задачу. В литературе [2] известны результаты измерений только для углов падения, не превышающих  $85^\circ$ . В связи с этим дополнительное исследование явления необходимо и весьма желательно. В настоящей работе задача о зависимости коэффициента распыления от угла падения ионов рассматривается методами компьютерного моделирования и теоретически. Мы обобщаем наши предыдущие результаты для нормального падения [5] на случай наклонного падения ионов.

### 1. Компьютерное моделирование

Компьютерное моделирование было выполнено с помощью программы PAOLA, основанной на модели бинарных столкновений и экранированном кулоновском потенциале [5]. Программа PAOLA содержит значительно меньше подгоночных параметров, чем программа SRIM-2013, и способна моделировать различные предельные режимы, например случай взаимодействия частиц по закону твердых сфер.

Перед каждым упругим столкновением генерируются три случайных числа  $R_1, R_2, R_3$  в диапазоне от 0 до 1. Эти числа определяют пробег частицы между столкновениями  $\lambda = \lambda_0 \ln(1/R_1)$ , полярный угол рассеяния  $\omega$  в системе центра масс

$$\cos \omega = \frac{2(1 + \varepsilon)R_2 - 1}{1 + 2R_2\varepsilon} \quad (1)$$

и азимутальный угол рассеяния  $\varphi = 2\pi R_3$ , где  $\lambda_0$  обозначает среднюю длину свободного пробега, а  $\varepsilon$  — приведенную энергию. Углы рассеяния налетающей частицы  $\Omega_1$  и атома отдачи  $\Omega_2$  в лабораторной системе координат получаются из уравнений

$$\cos \Omega_1 = \frac{A + \cos \omega}{\sqrt{1 + 2A \cos \omega + A^2}}, \quad A = \frac{M_1}{M_2}, \quad (2)$$

$$\cos \Omega_2 = \sqrt{\frac{1 - \cos \omega}{2}}, \quad (3)$$

где  $M_1$  и  $M_2$  — массы иона и атома мишени соответственно. Если энергия налетающей частицы перед столкновением равна  $E$ , то после столкновения эта

частица и атом отдачи будут иметь энергии

$$E_1 = E(1 - \gamma \cos^2 \Omega_2), \quad (4)$$

$$E_2 = \gamma E \cos^2 \Omega_2, \quad (5)$$

где  $\gamma = 4A/(1 + A)^2$ .

Следует заметить, что уравнения (1)–(5) носят универсальный характер и справедливы как для легких ионов ( $A \leq 1$ ), так и для тяжелых ( $A \geq 1$ ).

Статистика каскадных атомов учитывается следующим образом. Каждый атом отдачи характеризуется двумя целыми числами: номером поколения в каскаде и порядковым номером внутри данного поколения. Регистрация каскада включает в себя последовательное рассмотрение первичных атомов отдачи, вторичных выбитых атомов и дальнейших поколений атомного каскада. Каскад прекращается, когда частица покидает мишень, или ее энергия уменьшается до энергии отсечки  $E_{\min}$ , недостаточной для выбивания атома мишени из положения равновесия.

## 2. Теоретический анализ

Теоретическое рассмотрение каскадного размножения частиц в явлении распыления обычно ведется в рамках тех или иных упрощающих предположений. В теории [6] используется приближение изотропного углового распределения распыленных атомов. В теориях [7–9] угловое распределение представлено в виде суммы нескольких сферических функций. Однако дельтаобразное граничное условие на поверхности, описывающее вход ионов в мишень, не может быть с достаточной точностью описано двумя или тремя сферическими функциями. В теории [10] метод дискретных потоков позволил решить проблему граничного условия, но три дискретных потока достаточны только для рассмотрения нормального падения ионов. В случае наклонного падения число дискретных потоков должно быть увеличено, и теоретическое решение из аналитического превращается в численное.

В общем случае теория распыления рассматривает систему из двух транспортных уравнений: одно уравнение для ионов, другое — для каскадных атомов. Для иллюстрации метода мы рассмотрим случай самораспыления, при котором ионы и атомы мишени имеют равные массы и неразличимы между собой. Функция распределения самораспыленных атомов  $f(x, \mu, u)$  зависит от нормированной глубины мишени  $x$ , косинуса угла  $\theta$  между скоростью атома и внутренней нормалью к поверхности,  $\mu = \cos \theta$ , и относительной энергии  $u = E/E_0$ , где  $E_0$  — энергия бомбардирующих ионов.

Преобразование Меллина по энергетической переменной

$$F(x, \mu, s) = \int_0^1 u^{s-1} f(x, \mu, u) du \quad (6)$$

сводит транспортное уравнение к односкоростному уравнению переноса

$$\mu \frac{\partial F(x, \mu, s)}{\partial x} + F(x, \mu, s) = \int_{-1}^1 \sigma(\mu, \mu') F(x, \mu', s) d\mu'. \quad (7)$$

Дельтаобразное граничное условие для уравнения (7) имеет вид  $F(0, \mu) = \delta(\mu - \mu_0)$  и означает, что угол падения ионов равен  $\theta_0$ ,  $\mu_0 = \cos \theta_0$ . Функция  $\sigma(\mu, \mu')$  обозначает взвешенное сечение рассеяния, усредненное по азимутальному углу

$$\sigma(\mu, \mu') = \frac{2}{\pi} \int_0^\pi \sigma(\cos \Omega) (\cos^{2s} \Omega + \sin^{2s} \Omega) d\varphi, \quad (8)$$

где  $\Omega$  — угол рассеяния в лабораторной системе координат,

$$\cos \Omega = \mu\mu' + \sqrt{1 - \mu^2} \sqrt{1 - \mu'^2} \cos \varphi. \quad (9)$$

Два слагаемых в скобках интеграла столкновений (8) означают, что в результате упругого столкновения образуются два атома, движущиеся по двум взаимно перпендикулярным направлениям. Если подставить  $s = 1$ , то выражение в скобках обращается в единицу в полном согласии с законом сохранения энергии.

Выбор атомного потенциала является важной проблемой для любого теоретического исследования. Потенциал ZBL [1], применяемый в программе SRIM-2013, содержит слишком много параметров и не может быть использован для теоретического рассмотрения. В работе [11] был предложен потенциал, основанный на расчете плотности атомных состояний (потенциал DFT), но авторы не приводят никаких аналитических формул. В настоящей работе мы используем экранированный кулоновский потенциал, для которого дифференциальное сечение рассеяния в лабораторной системе координат может быть записано в аналитическом виде [12]

$$\sigma(\cos \Omega) = \begin{cases} \frac{2\eta(1+\eta)\cos \Omega}{(1+\eta-\cos^2 \Omega)^2} & \text{for } \cos \Omega \geq 0 \\ 0 & \text{for } \cos \Omega \leq 0 \end{cases}, \quad (10)$$

через  $\eta = [4\varepsilon(1 + \varepsilon)]^{-1}$  обозначен параметр экранирования. При малых энергиях ( $\eta \gg 1$ ) сечение рассеяния (10) соответствует рассеянию на потенциале твердых сфер, при больших энергиях ( $\eta \ll 1$ ) — резерфордскому рассеянию на кулоновском потенциале.

Одним из возможных методов решения уравнения переноса (7) является деление интервала интегрирования на  $N$  равных частей и вычисление значений неизвестной функции распределения в  $N + 1$  дискретной точке. Для того чтобы найти эти значения, решение разлагается в ряд экспоненциально убывающих по глубине функций, и определяются собственные значения и собственные

векторы квадратной матрицы размера  $N \times N$ , описывающей угловое распределение. Константы разложения определяются из граничного условия после решения системы из  $N$  алгебраических уравнений. Недостаток метода состоит в том, что решение содержит дополнительную информацию, в которой мы не нуждаемся: мы получаем значения функции распределения на всех глубинах мишени, в то время как нас интересуют только значения функции на поверхности.

Альтернативный метод состоит в решении нелинейного интегрального уравнения, полученного Чандрасекаром после применения к уравнению (7) принципа инвариантности [13,14]. Этот метод не содержит распределения атомов по глубине мишени и рассматривает только их угловое распределение на поверхности. В методе Чандрасекара функция отражения  $R(\mu_0, \mu_1, s)$  зависит только от двух переменных — угла падения ионов  $\theta_0$  и угла выхода распыленного атома из мишени  $\theta_1$ ,  $\mu_1 = \cos \theta_1$ . Интегрирование по всем углам выхода дает коэффициент распыления как функцию параметра  $s$ :

$$Y(\mu_0, s) = \int_0^1 \mu_1 R(\mu_0, \mu_1, s) d\mu_1, \quad (11)$$

и обратное преобразование приводит к энергетическому распределению распыленных атомов. Интегрирование энергетического распределения дает коэффициент распыления.

Для того чтобы применить метод Чандрасекара, разделим дифференциальное сечение рассеяния (8) на две части

$$\begin{aligned} p(\mu, \mu') &= \sigma(\mu, \mu') \text{ for } \mu\mu' < 0, \\ q(\mu, \mu') &= \sigma(\mu, \mu') \text{ for } \mu\mu' > 0. \end{aligned} \quad (12)$$

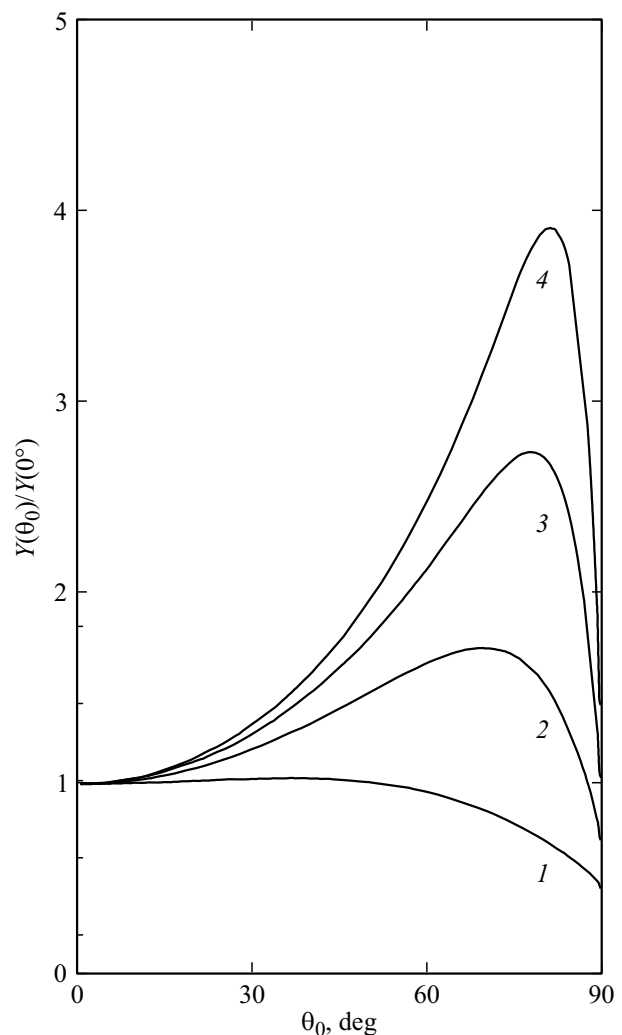
Сечение рассеяния  $p(\mu, \mu')$  относится к атомам, скорость которых в результате столкновения изменила свое направление с направления внутрь мишени на направление наружу, и наоборот. Сечение рассеяния  $q(\mu, \mu')$  относится к атомам, скорость которых после столкновения сохранила свое направление либо внутрь мишени, либо наружу. Интервал интегрирования  $[0,1]$  мы разбили на  $N$  равных частей и заменили интеграл конечными суммами. Если обозначать функцию отражения и оба сечения рассеяния только двумя индексами  $R_{01}$ ,  $p_{01}$ ,  $q_{01}$ , то интегральное уравнение Чандрасекара может быть записано в тензорной форме

$$\begin{aligned} (\mu_0 + \mu_1)R_{01} &= p_{01} + \mu_0 R_{02} q_{21} \\ &+ q_{02} R_{21} \mu_1 + \mu_0 \mu_1 R_{02} p_{23} R_{31}, \end{aligned} \quad (13)$$

где предполагается суммирование по совпадающим индексам. Интегральное уравнение (13) было решено методом последовательных приближений.

Обратное преобразование Меллина может быть выполнено двумя способами. Первый способ состоит в

рассмотрении только вещественных значений параметра  $s$  в уравнении (6) и подгонке полученных численных значений под одну из известных табличных функций [15]. Точность такого способа непредсказуема и требует дополнительного обоснования. Другой способ заключается в рассмотрении комплексных значений параметра  $s = 1 + i\omega$  и выполнении интегрирования на комплексной плоскости. При этом усложняется решение интегрального уравнения (13), которое должно быть записано как для действительной, так и для мнимой частей функции отражения. Но зато в результате обратное преобразование Меллина сводится к вычислению единственного интеграла, и точность решения зависит только от числа разбиений  $N$  интервала интегрирования. Сходимость решения контролировалась путем увеличения числа  $N$ , максимальное значение которого составило  $N = 500$ . Корректность метода была проверена на ряде тестовых задач, имеющих аналитическое решение, а также с помощью программы PAOLA.



**Рис. 1.** Зависимость коэффициента распыления  $Y$  от угла падения ионов  $\theta_0$  для различных соотношений масс  $M_1/M_2 = 1$  (кривая 1), 5 (кривая 2), 10 (кривая 3), 15 (кривая 4) при  $E_0/E_{\min} = 1000$ .

### 3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 и 2 показаны результаты моделирования с помощью программы PAOLA, представленные в виде сглаженных кривых. Теоретические результаты, полученные путем решения интегрального уравнения, отличаются от результатов моделирования не более чем на 2%.

Рис. 1 показывает зависимость коэффициента распыления от угла падения ионов при фиксированной энергии ионов и различных отношениях масс иона и атома мишени  $A = M_1/M_2$ . Все коэффициенты нормированы на значения при нормальном падении. При  $A = 1$  коэффициент распыления монотонно убывает с увеличением угла падения ионов. При увеличении массы ионов ( $A > 1$ ) на угловой зависимости появляется максимум в области углов падения от  $70^\circ$  до  $80^\circ$ , высота максимума увеличивается с ростом отношения  $A$ . В предельном случае углов падения, близких к  $90^\circ$ , все распределения принимают конечные, а не нулевые значения.

На рис. 2 изображена зависимость коэффициента распыления от угла падения ионов при фиксированной массе и различных энергиях ионов. Можно видеть,

что высота максимума распределения уменьшается с увеличением энергии. В случае предельных скользящих углов падения коэффициент распыления по-прежнему принимает конечные значения.

Полученные результаты согласуются с результатами расчетов по программе SRIM, но противоречат расчетам по программе OKSANA. В работе [4] указано, что различие результатов связано с различной интерпретацией первого столкновения иона после входа в мишень. В программе SRIM-2013 первое столкновение происходит на глубине, равной длине свободного пробега  $\lambda_0$ . В программе OKSANA первое столкновение происходит на глубине, равной радиусу действия атомного потенциала  $d$ . В случае кремниевой мишени мы имеем  $d < \lambda_0$ , что приводит к уменьшению коэффициента распыления. В программе PAOLA первое столкновение происходит на глубине  $\lambda = \lambda_0 \ln(1/R_1) \cos \theta_0$ , которая может быть как меньше, так и больше глубины  $\lambda_0$ . Это не позволяет сделать выводы в пользу того или иного подхода, но вполне определенно указывает на конечные значения коэффициента распыления при скользящих углах падения ионов.

### Заключение

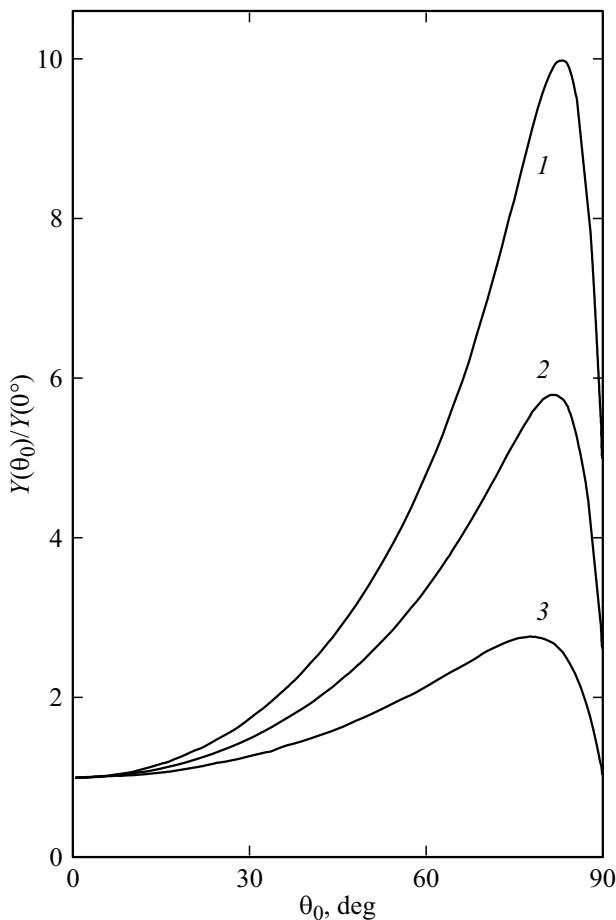
При углах падения ионов, близких к  $90^\circ$ , коэффициент распыления принимает конечные значения при любых комбинациях ион-мишень и любых энергиях ионов. Этот результат получен двумя независимыми способами — путем моделирования по программе PAOLA и с помощью численного решения интегрального уравнения Chandrasekara. Вывод о нулевом значении коэффициента распыления при скользящем падении ионов может быть связан с неточной интерпретацией первого столкновения иона при входе в мишень.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] W. Eckstein. *Computer Simulation of Ion–Solid Interactions* (Springer, Berlin, 1991)
- [2] *Sputtering by Particle Bombardment*, ed. by R. Behrisch, W. Eckstein (Springer, Berlin, 2007)
- [3] J.F. Ziegler. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B **136–138**, 141 (1998).
- [4] V.I. Shulga. Appl. Surf. Sci., **439**, 456 (2018). <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2018.01.039>
- [5] А.И. Толмачев, Л. Форлано. ЖТФ, **88** (10), 1502 (2018). DOI: 10.21883/JTF.2022.05.52369.2-22 [A.I. Tolmachev, L. Forlano. Tech. Phys., **63** (6), 1455 (2018). DOI: 10.1134/S1063784218100225]
- [6] P. Sigmund. Phys. Rev., **184** (2), 383 (1969).
- [7] J.B. Sanders, H.E. Roosendaal. Radiation Effects, **24**, 161 (1975).



**Рис. 2.** Зависимость коэффициента распыления  $Y$  от угла падения ионов  $\theta_0$  для различных энергий ионов  $E_0/E_{\min} = 100$  (кривая 1), 200 (кривая 2), 1000 (кривая 3) при  $M_1/M_2 = 10$ .

- [8] M. Vicanek, H.M. Urbassek. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. **B 30**, 507 (1988).
- [9] G. Falcone. Rivista del Nuovo Cimento, **13** (1), 1 (1990).
- [10] A.I. Tolmachev. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. **B 93** (4), 415 (1994).
- [11] А.Н. Зиновьев, П.Ю. Бабенко. Письма в ЖТФ, **46** (18), 23 (2020). DOI: 10.21883/JTF.2022.05.52369.2-22  
[A.N. Zinoviev, P.Yu. Babenko. Tech. Phys. Lett., **46**, 909 (2020). DOI: 10.1134/S106378502009031X]
- [12] G. Leibfreid, O.M. Oen. J. Appl. Phys., **33** (7), 2257 (1962).
- [13] S. Chandrasekhar. *Radiative Transfer* (Clarendon Press, Oxford, 1950).
- [14] V.S. Remizovich, A.V. Radkevich. Laser Phys., **10**, 560 (2000).
- [15] H. Bateman, A. Erdelyi. *Tables of Integral Transforms*. (McGraw Hill, NY, 1954), v. 1.