

02;13

Пороги распыления при бомбардировке ионами различных мишеней

© П.Ю. Бабенко, В.С. Михайлов, А.Н. Зиновьев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: babenko@npd.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 22 декабря 2023 г.

В окончательной редакции 20 февраля 2024 г.

Принято к публикации 9 марта 2024 г.

Анализируются столкновительные модели, приводящие к объяснению положения энергетических порогов при распылении различных материалов. Совокупность имеющихся экспериментальных и расчетных данных удается описать в рамках модели, учитывающей многократные столкновения. Предлагается эмпирическая кривая для описания положения порогов во всем возможном диапазоне соотношений масс сталкивающихся частиц. Показано сильное влияние формы поверхностного потенциального барьера на положение энергетического порога распыления.

Ключевые слова: атомные столкновения, распыление, энергетический порог распыления, поверхностный потенциальный барьер.

DOI: 10.61011/PJTF.2024.12.58055.19851

Распыление материалов при ионной бомбардировке используется для очистки и травления поверхностей, изготовления тонких пленок, анализа поверхности. Распыление определяет разрушение электродов в электротехнике и конструкционных материалов в плазменных установках. Исследования процессов распыления ведутся широким фронтом [1–7]. В наших работах [8–10] исследовалось распыление изотопами водорода Ве и W — перспективных материалов для первой стенки и дивертора в токамаке ИТЭР.

Зависимость коэффициента распыления Y от энергии налетающей частицы E_0 носит пороговый характер (рис. 1). Линией на рис. 1 представлен наш расчет для плоскостного барьера, точками — результаты экспериментальных работ, приведенных в [11]. Следует отметить, что экспериментальные данные вблизи порога распыления крайне ограничены [5,12–15]. Точное знание порогов распыления крайне важно для термоядерных исследований. В условиях, когда температура ионов в приповерхностной плазме ниже порога распыления, небольшое изменение указанного порога приводит к резкому возрастанию числа частиц плазмы, участвующих в распылении, что может привести к катастрофическому разрушению материала первой стенки токамака-реактора.

Чтобы частица распылилась, она должна преодолеть энергию сублимации U_s [16] (энергию поверхностной связи). Как видно из рис. 2, энергии сублимации меняются весьма значительно. Они существенно влияют на процесс распыления. В настоящей работе рассмотрен случай нормального падения пучка на мишень.

Для поверхностного потенциального барьера, который препятствует вылету частицы из мишени, различают два случая: для сферического потенциального барьера условие вылета записывается как $E_2 > U_s$ [17], а для плоскостного потенциального барьера (гладкая поверхность) условие вылета меняется на $E_2 \cos^2 \theta > U_s$ [17],

где E_2 — энергия распыленной частицы, θ — угол вылета этой частицы относительно нормали к поверхности. На рис. 3,а представлены экспериментальные результаты [12,14,15], данные из работы [11], полученные с помощью компьютерного моделирования для плоскостного потенциального барьера, а также данные нашего расчета для двух случаев поверхностного потенциального барьера.

Энергия E_2 , передаваемая при столкновении рассеянной частицей атому мишени, равна

$$E_2 = E_0 \gamma \cos^2 \theta_1, \quad \gamma = \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2}, \quad (1)$$

где θ_1 — угол рассеяния частицы отдачи. На рис. 3,а приведена зависимость параметра $P = \gamma E_{th}/U_s$ (где E_{th} — пороговая энергия) от отношения M_2/M_1 .

Как видно из рис. 3,а, экспериментальные данные характеризуются большим разбросом и расположены между результатами наших расчетов для двух предельных случаев поверхностного потенциального барьера. Данные нашего расчета для двух мишеней Ве и W хорошо согласуются между собой. В области $M_2/M_1 < 1$ расчетные данные Бериша [11] для плоскостного потенциального барьера лежат на 16% выше результатов нашего расчета. При $M_1 > M_2$ налетающая частица передает энергию множеству частиц отдачи. В последующем каскаде соударений частица с энергией, превышающей энергию поверхностной связи, покидает поверхность и считается распыленной. Процесс распыления в этом случае описывается каскадной теорией Зигмунда [17]. В случае $M_1 < M_2$ физика процесса распыления меняется и значительный вклад в распыление вносит распыление поверхностных слоев потоком обратнорассеянных частиц. Теоретическое описание данного случая было приведено в [18]. В работе [19] для описания пороговой энергии было предложено условие $E_{th} = U_s/[\gamma(1-\gamma)]$,

т.е. $P = 1/(1 - \gamma)$. Как видно из рис. 3, *a*, эта формула удовлетворительно работает при $M_2/M_1 > 5$.

Рассмотрим случай сферического потенциального барьера, при этом $E_2 > U_s$. При рассеянии на угол β энергия налетающей частицы E_1 описывается выражением

$$\frac{E_1}{E_0} = \left[\frac{M_1}{M_1 + M_2} \right]^2 \times \left(\cos \beta \pm \left\{ \left(\frac{M_2}{M_1} \right)^2 - \sin^2 \beta \right\}^{1/2} \right)^2 = K_1(\beta), \quad (2)$$

где E_0 — энергия налетающего иона, M_1 и M_2 — массы налетающего иона и атома поверхности соответственно, β — угол рассеяния. Если налетающая частица рассеивается на поверхностном слое, то частица отдачи летит в глубь мишени и может вносить вклад в распыление только вследствие каскада соударений с другими атомами мишени. Рассмотрим случай, когда налетающая частица, пройдя в мишени расстояние d , рассеивается на угол β , при этом она должна развернуться на угол более 90° и выбить поверхностный атом. В этом случае $E_1/E_0 \leq (M_2 - M_1)/(M_2 + M_1) = (1 - \gamma)^{0.5}$, энергия распыленной частицы $E_2 = \gamma E_1 = \gamma(1 - \gamma)^{0.5}$. Введем поправку на потерю энергии, связанную с торможением на электронах налетающей частицы при пролете туда-обратно расстояния между частицами мишени d . В этом случае $E_1 = (1 - \gamma)^{0.5} E_0 - dE/dx \cdot 2d$, $E_2 = \gamma E_1 > U_s$. Здесь dE/dx — электронные тормозные способности для пороговой энергии E_{th} . Для параметра P получаем выражение

$$P = \frac{\gamma E_{th}}{U_s} = (1 - \gamma)^{-0.5} \left(1 + \frac{\gamma}{U_s} \frac{dE}{dx} 2d \right). \quad (3)$$

Как видно из рис. 3, *b*, модель однократного столкновения описывает данные для сферического барьера только при $M_2/M_1 > 10$. Как известно, в случае двукратного столкновения при рассеянии на угол $\beta/2$ частица теряет меньше энергии, чем при однократном рассеянии на угол β . Если зафиксировать суммарный угол разворота траектории быстрой частицы, то минимальная потеря энергии получается в случае, когда углы рассеяния равны и оба рассеяния происходят в одной плоскости. В этом случае формула (3) для двукратного случая преобразуется в

$$P = \gamma \frac{E_{th}}{U_s} = \frac{1}{K_1^2(\beta)} \times \left(1 + \frac{\gamma}{U_s} \frac{d}{\sin \beta} \left(\frac{dE}{dx}(E_1) + K_1(\beta) \frac{dE}{dx}(E_0) \right) \right). \quad (4)$$

В формуле (4) $dE/dx(E_1)$ и $dE/dx(E_0)$ — электронные потери для энергии налетающей частицы E_1 и E_0 соответственно, $K_1(\beta)$ описано выше (см. (2)). Рассматривая изменение кинетической энергии и торможение на электронах мишени на разных участках траектории, можно

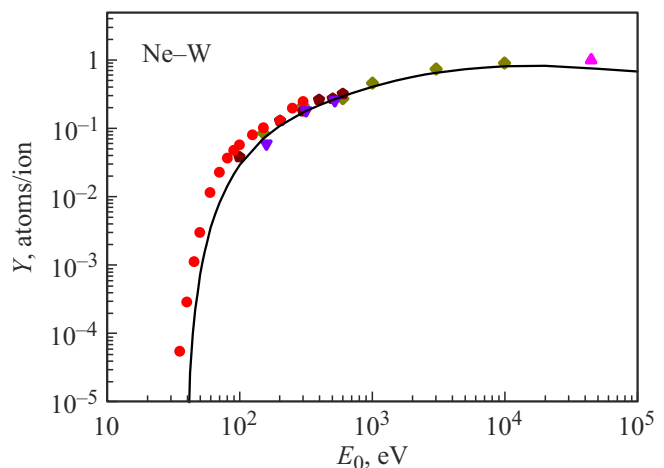


Рис. 1. Коэффициент распыления Y мишени из вольфрама атомами Ne в зависимости от энергии бомбардирующих частиц E_0 . Линия — наш расчет для плоскостного барьера. Точками показаны результаты экспериментальных работ, приведенных в монографии [11].

получить выражение для любой кратности соударения m налетающей частицы и n частицы мишени.

Как видно из рис. 3, *b*, модель двукратного рассеяния ($m = 2$) хорошо описывает данные для сферического барьера при $M_2/M_1 > 1.5$. При $M_2 \approx M_1$ возможен вклад трехкратного рассеяния ($m = 3$).

В случае $M_2/M_1 < 1$ доминирует каскадный механизм. Налетающая частица передает энергию $\gamma E_0 \cos^2 \theta_1$ атому отдачи, где θ_1 — угол рассеяния атома отдачи. В последующем каскаде сталкиваются частицы равных масс. После первого соударения частиц равных масс энергия второй частицы равна $E_2 = \gamma E_0 \cos^2 \theta_1 \cos^2 \theta_2$. Максимальное значение произведения косинусов достигается при $\theta_1 = \theta_2 = \theta$, если сумма $\theta_1 + \theta_2$ зафиксирована. Предполагаем, что $\theta_1 + \theta_2 \geq 90^\circ$. Получаем $E_2 = 0.25 \gamma E_0 = U_s$, $P = \gamma E_{th}/U_s = 4$. Для трехкратного столкновения $\theta = 30^\circ$, $P = 1/\cos^6 \theta = 2.37$. Учет поправки на торможение частиц увеличивает значение P . В случае $n = 2$ имеем $P = 4.36$, в случае $n = 3 - P = 2.58$.

В случае плоскостного барьера условие вылета распыленной частицы меняется на $E_2 \cos^2 \theta \geq U_s$. В случае однократного рассеяния $E_2 = \gamma E_0 K_1(\beta)$, т.е. $\gamma E_0 K_1(\beta) \cos^2 \theta \geq U_s$. Максимальное значение энергии E_2 соответствует лобовому столкновению. Следовательно, $\theta = \pi - \beta$. Ищем максимальное значение параметра $K_1(\beta) \cos^4 \beta$ при $\beta > \pi/2$. Оно достигается при $\beta = \pi$. Вводим поправку на электронное торможение налетающей частицы в мишени. Как видно из рис. 3, *c*, однократное рассеяние не описывает данные при $M_2/M_1 < 10$. Учет двукратного и трехкратного рассеяния дает значения P , которые лежат близко к обсуждаемым данным при $M_2/M_1 > 1.4$. Вблизи $M_2 \approx M_1$ анализируемые данные лучше описывает трехкратное рассеяние. Учет

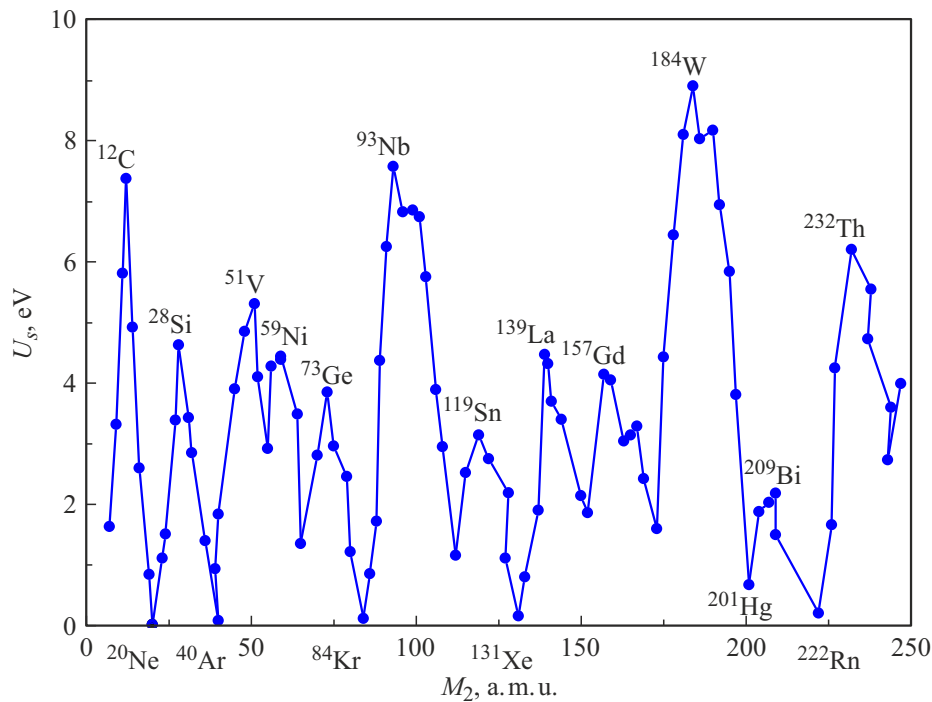


Рис. 2. Энергии сублимации для различных материалов [16].

Зависимость параметра $P = \gamma E_{th}/U_s$ от числа столкновений без учета и с учетом поправки на торможение на электронах мишени

n	P	$\theta, ^\circ$	P_{cor} (Be)			P_{cor} (W)		
			$\alpha = 1.5$	$\alpha = 1$	$\alpha = 0.5$	$\alpha = 1$	$\alpha = 0.7$	$\alpha = 0.5$
2	64	60	66.2	65.5	64.7	66.9	66.1	65.5
3	16	45	17.9	17.3	16.6	18.6	17.8	17.3
4	8.33	36	10.2	9.58	8.94	10.9	10.1	9.59
5	5.62	30	7.63	6.93	6.26	8.40	7.50	6.94
6	4.31	25.7	6.46	5.70	4.98	7.31	6.32	5.71
7	3.55	22.5	5.87	5.03	4.26	6.81	5.72	5.05
8	3.06	20	5.57	4.65	3.82	6.62	5.41	4.67
9	2.73	18	5.44	4.43	3.53	6.60	5.26	4.45
10	2.48	16.4	5.41	4.31	3.34	6.69	5.21	4.33
11	2.30	15	5.46	4.26	3.20	6.87	5.24	4.28

поправки на торможение частиц увеличивает величину P и позволяет добиться лучшего согласия с анализируемыми данными при $M_2/M_1 < 10$. Отметим, что ранее предложенная кривая $P = 1/(1 - \gamma)$ лежит на 20% ниже при $M_2/M_1 > 50$.

Рассмотрим поведение кривой в области работы каскадного механизма и при плоскостном потенциальном барьере. Отношение энергий E_1/E_0 при одном упругом столкновении быстрой частицы описывается величиной $K_1(\beta)$. Поскольку частицы мишени имеют равные массы, отношение энергий при одном столкновении между двумя частицами мишени характеризуется величиной $\cos^2 \beta$, где β — угол поворота траектории. При $M_2/M_1 < 1$ величина $\cos^2 \beta > K_1(\beta)$, поэтому в указанном случае минимальная потеря энергии реализуется в

каскадах с участием частиц мишени, а в противоположном случае (при $M_2/M_1 > 1$) потери энергии меньше в каскадах с участием быстрых частиц.

В первом соударении быстрая частица передает энергию частице мишени: $E_1 = E_0 \gamma \cos^2 \beta$. Угол β всегда меньше 90° , и для вылета частицы из мишени требуется еще одно или более столкновений между частицами мишени. Рассматривая каскад столкновений и учитывая условие вылета частицы для плоскостного барьера, получаем $E_2 \cos^2 \theta = \gamma E_0 \cos^4 \beta \cos^2 \theta \geq U_s$. Угол вылета распыленной частицы θ отсчитывается от нормали к поверхности, и при этом $\theta = \pi - 2\beta$. Максимальное значение пороговой энергии достигается при $\beta = \theta = 60^\circ$. Для двукратного рассеяния $P = \gamma E_{th}/U_s \geq 64$. Для трехкратного рассеяния $\gamma E_0 \cos^8 \theta \geq U_s$, $\theta \geq 45^\circ$. При этом

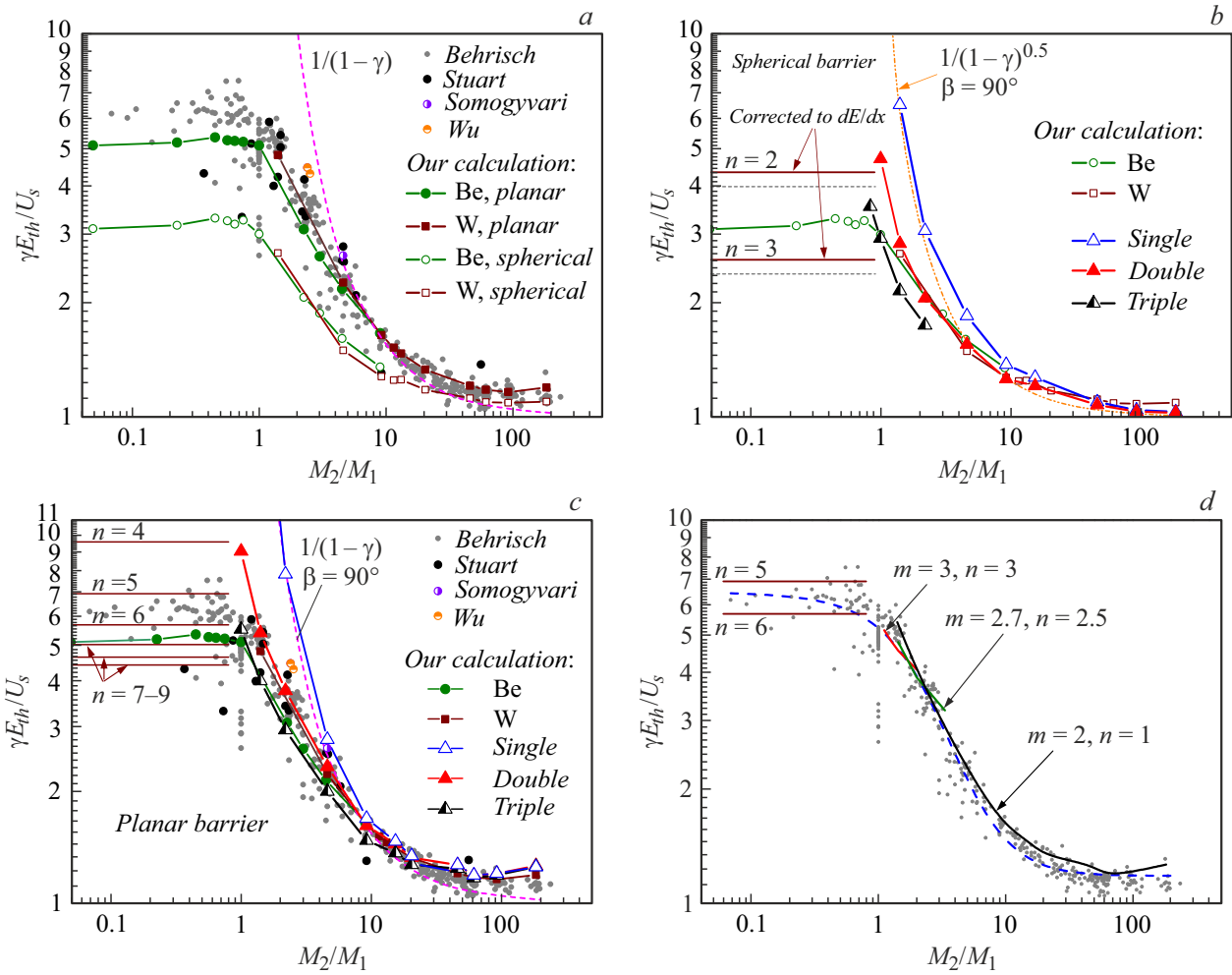


Рис. 3. Зависимость параметра $P = \gamma E_{th}/U_s$ от отношения масс M_2/M_1 . *a* — результаты компьютерного моделирования для плоскостного потенциального барьера из работы [11], результаты моделирования нашей программой для случаев плоскостного и сферического барьеров и экспериментальные данные из работ [12,14,15]. *b* — случай сферического потенциального барьера. Представлены результаты компьютерного моделирования нашей программой и оценки с помощью формул (3) и (4). *c* — случай плоскостного потенциального барьера. Приведены результаты компьютерного моделирования из работы [11], результаты моделирования нашей программой для плоскостного барьера, оценки с помощью формулы (5) и экспериментальные данные из работ [12,14,15]. *d* — эмпирическая кривая, описывающая всю совокупность обрабатываемых данных (6). Приведены отрезки кривых, соответствующие различной кратности соударения m налетающей частицы и числу соударений n атомов мишени.

$\gamma E_{th}/U_s \geq 16$. Для n -кратного рассеяния получаем формулу

$$P = \gamma \frac{E_{th}}{U_s} > \frac{1}{\cos^{2(n+1)} \theta}. \quad (5)$$

Значения P приведены в таблице. В модели, учитывающей только упругие соударения, P продолжает падать с увеличением кратности соударений. Если ввести поправку на потерю энергии частицами при торможении на электронах, получаем значение P_{cor} . Удельные электронные потери энергии dE/dx были взяты нами из таблиц SRIM [20]. Мы вводили поправочный коэффициент α , на который умножали значение потерь энергии dE/dx . Как видно из таблицы, учет неупругой потери замедляет падение P_{cor} с ростом n и приводит к насыщению этой зависимости от числа столкновений

при больших n и всех значениях α . Согласно с анализируемыми данными удается достичь при $n \approx 5-7$.

На рис. 3, *d* представлена эмпирическая кривая, полученная подгонкой параметров для наилучшего согласия с обрабатываемыми данными. Она описывается выражением

$$\gamma \frac{E_{th}}{U_s} = \frac{5.56}{1 + 0.164 \left(\frac{M_2}{M_1} + 0.509 \right)^2} + 1.177. \quad (6)$$

При варьировании кратности соударения налетающей частицы m и числа соударений n атомов мишени удастся описать совокупность данных отрезками кривых (рис. 3, *d*).

Таким образом, зависимость положения порога от соотношения масс сталкивающихся частиц объясняется разным характером распыления при $M_2/M_1 < 1$ и $M_2/M_1 > 1$. На участке $M_2/M_1 < 1$ роль налетающей частицы сводится к передаче энергии частицам мишени. Положения порогов определяются каскадом столкновений частиц мишени с числом столкновений $n \approx 5-7$. При $M_2/M_1 > 1$ столкновения налетающей частицы с атомами мишени приводят к образованию потока обратнорассеянных атомов, столкновение которых с атомами поверхностного слоя приводит к распылению. При $1 < M_2/M_1 < 2$ значительный вклад вносит трехкратное и двукратное рассеяние налетающей частицы. На участке $M_2/M_1 > 10$ модель однократного рассеяния при учете потерь энергии на торможение частиц на электронах мишени неплохо описывает анализируемые данные.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] A.P. Mika, P. Rousseau, A. Domaracka, B.A. Huber, Phys. Rev. B, **100** (7), 075439 (2019). DOI: 10.1103/PhysRevB.100.075439
- [2] A. Tolstogousov, P. Mazarov, A.E. Ieshkin, S.F. Belykh, N.G. Korobeishchikov, V.O. Pelenovich, D.J. Fu, Vacuum, **188**, 110188 (2021). DOI: 10.1016/j.vacuum.2021.110188
- [3] F. Duensing, F. Hechenberger, L. Ballauf, A.M. Reider, A. Menzel, F. Zappa, T. Dittmar, D.K. Bohme, P. Scheier, Nucl. Mater. Energy, **30**, 101110 (2022). DOI: 10.1016/j.nme.2021.101110
- [4] A. Lopez-Cazalilla, F. Granberg, K. Nordlund, C. Cupak, M. Fellinger, F. Aumayr, W. Hauptstra, P.S. Szabo, A. Mutzke, R. Gonzalez-Arrabal, Phys. Rev. Mater., **6** (7), 075402 (2022). DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.6.075402
- [5] P. Phadke, A.A. Zameshin, J.M. Sturm, R. van de Kruijs, F. Bijkerk, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, **520**, 29 (2022). DOI: 10.1016/j.nimb.2022.03.016
- [6] Н.Н. Андрианова, А.М. Борисов, Е.С. Машкова, В.И. Шульга, Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, № 4, 51 (2016). DOI: 10.7868/S0207352816040041 [N.N. Andrianova, A.M. Borisov, E.S. Mashkova, V.I. Shulga, J. Surf. Investig., **10** (2), 412 (2016). DOI: 10.1134/S1027451016020233].
- [7] В.И. Шульга, Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования, № 12, 83 (2020). DOI: 10.31857/S1028096020120262 [V.I. Shulga, J. Surf. Investig., **14** (6), 1346 (2020). DOI: 10.1134/S1027451020060440].
- [8] П.Ю. Бабенко, В.С. Михайлов, А.Н. Зиновьев, Письма в ЖТФ, **49** (8), 42 (2023). DOI: 10.21883/PJTf.2023.08.55138.19432 [P.Yu. Babenko, V.S. Mikhailov, A.N. Zinoviev, Tech. Phys. Lett., **49** (4), 80 (2023). DOI: 10.21883/TPL.2023.04.55887.19432].
- [9] П.Ю. Бабенко, В.С. Михайлов, А.П. Шергин, А.Н. Зиновьев, ЖТФ, **93** (5), 709 (2023). DOI: 10.21883/JTF.2023.05.55467.12-23 [P.Yu. Babenko, V.S. Mikhailov, A.P. Shergin, A.N. Zinoviev, Tech. Phys., **68** (5), 662 (2023). DOI: 10.21883/TP.2023.05.56074.12-23].
- [10] В.С. Михайлов, П.Ю. Бабенко, А.П. Шергин, А.Н. Зиновьев, ЖЭТФ, **164** (3), 478 (2023). DOI: 10.31857/S004445102309016X [V.S. Mikhailov, P.Yu. Babenko, A.P. Shergin, A.N. Zinoviev, JETP, **137** (3), 413 (2023). DOI: 10.1134/S106377612309011X].
- [11] R. Behrisch, W. Eckstein, *Sputtering by particle bombardment* (Springer, Berlin, 2007). DOI: 10.1007/978-3-540-44502-9
- [12] R.V. Stuart, G.K. Wehner, J. Appl. Phys., **33** (7), 2345 (1962). DOI: 10.1063/1.1728959
- [13] R.P. Doerner, D.G. Whyte, D.M. Goebel, J. Appl. Phys., **93** (9), 5816 (2003). DOI: 10.1063/1.1566474
- [14] Sh.-M. Wu, R. van de Kruijs, E. Zoethout, F. Bijkerk, J. Appl. Phys., **106** (5), 054902 (2009). DOI: 10.1063/1.3149777
- [15] Z. Somogyvari, G.A. Langer, G. Erdelyi, L. Balazs, Vacuum, **86** (12), 1979 (2012). DOI: 10.1016/j.vacuum.2012.03.055
- [16] C. Kittel, *Introduction to solid state physics*, 8th ed. (Wiley, N.Y., 2005).
- [17] P. Sigmund, Phys. Rev., **184** (2), 383 (1969). DOI: 10.1103/PhysRev.184.383
- [18] Д. Фальконе, УФН, **162** (1), 71 (1992). DOI: 10.3367/UFNr.0162.199201c.0071 [G. Falcone, Riv. Nuovo Cim., **13** (1), 1 (1990). DOI: 10.1007/BF02742981].
- [19] R. Behrisch, G. Maderlechner, B.M.U. Scherzer, M.T. Robinson, Appl. Phys., **18** (4), 391 (1979). DOI: 10.1007/BF00899693
- [20] SRIM — *The stopping and range of ions in matter*. <http://srim.org>