

初始溅射粒子密度对烧蚀粒子密度和速度分布的影响^{*}

丁学成 傅广生 梁伟华 褚立志 邓泽超 王英龙[†]

(河北大学物理科学与技术学院, 保定 071002)

(2009 年 6 月 29 日收到; 2009 年 7 月 25 日收到修改稿)

采用蒙特-卡罗 (Monte Carlo) 模拟方法, 研究了初始溅射粒子密度对其传输中的密度和速度分布以及环境气体密度分布的影响. 结果表明, 随着初始溅射粒子密度增大, 烧蚀粒子和环境气体高密度峰的交叠区离开靶的最大距离减小, 被衬底反弹后, 距靶的最小距离减小, 烧蚀粒子的速度分布随初始溅射粒子密度增大而变宽, 当初始溅射粒子密度大于 $8.33 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ 时, 出现速度劈裂现象. 所得结论为进一步定量研究纳米晶粒的成核机理提供了基础.

关键词: Monte Carlo 模拟, 烧蚀粒子, 密度分布, 速度分布

PACC: 5225L, 5265

1. 引言

脉冲激光烧蚀沉积纳米硅 (Si) 晶薄膜的质量由激光对靶材的烧蚀、纳米 Si 晶粒的气相成核、衬底表面的沉积过程决定. 烧蚀过程使得靶面升高到一定温度, 具有一定粒子数密度、粒子总数和初始速度分布的烧蚀粒子喷射而出, 气相成核过程导致纳米 Si 晶粒形成, 然后经沉积过程在衬底表面得到纳米 Si 晶薄膜. 无疑气相成核过程对所形成的纳米晶粒的尺寸分布具有关键作用. 等离子体在环境气体输运过程的密度和速度分布对气相成核过程有重要影响^[1]. 等离子体在真空中输运, 不受任何外界阻力, 处于自由膨胀状态. 和真空输运相比, 等离子体在环境气体中的输运是一个非常复杂的动力学过程, 烧蚀粒子和环境气体的相互作用, 使得烧蚀粒子密度和动能减小, 冲击波形成^[2]. 在输运区内, 部分烧蚀粒子渗透到环境气体中, 受到的阻力很小, 处于近似自由膨胀状态, 另一部分烧蚀粒子与环境气体发生相互作用, 受到较大的阻力, 运动速度减小, 因此, 出现等离子体劈裂现象^[3,4]. 人们分

别从实验和理论两方面对烧蚀粒子的产生及其在环境气体中的输运动力学过程进行了大量研究^[5-8].

Monte Carlo 模拟是研究烧蚀粒子输运过程重要手段之一^[9-11]. 我们曾利用 Monte Carlo 方法, 对不同靶衬间距下烧蚀产物的输运动力学过程进行了数值模拟^[12]. 初始溅射粒子参数对其输运动力学过程有着重要影响. 但是, 初始溅射粒子密度与烧蚀粒子密度和速度分布随时间演化的关联至今未见报道.

本文采用 Monte Carlo 方法, 对烧蚀粒子在环境气体中的输运动力学过程进行了模拟, 研究了初始溅射粒子密度对烧蚀粒子密度的空间分布和速度随时间演化过程进行了研究.

2. 模拟方法

以 He 为环境气体, 烧蚀 Si 粒子离开克努森 (Knudsen) 层后开始模拟. 初始时刻, 溅射的 Si 粒子均匀分布在以激光烧蚀点为直径的柱体内, 速度近似为 Maxwell-Boltzmann 分布. 由于密度梯度的存

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 10774036), 河北省自然科学基金 (批准号: E2008000631), 河北省教育厅 (批准号: Z2007222), 河北省光电材料重点实验室和河北大学自然科学基金资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: hdwangyl@hbu.cn.

在,等离子体羽迅速膨胀. 膨胀开始后,烧蚀粒子与环境气体分子发生完全弹性碰撞,碰撞截面 σ 不依赖于散射角, $\sigma_{ij} = \pi(r_i + r_j)^2$, r_i 和 r_j 分别为烧蚀 Si 粒子与环境气体原子半径,碰撞过程遵从动量守恒和能量守恒. 利用动量、动能守恒理论可以计算出碰撞后粒子的速度

$$\mathbf{c}'_r = c_r [(\sin\theta\cos\chi)\hat{x} + (\sin\theta\sin\chi)\hat{y} + \cos\theta\hat{z}], \quad (1)$$

$$\mathbf{V}'_i = \mathbf{c}_m + \frac{m_j}{m_i + m_j}\mathbf{c}'_r, \quad (2)$$

$$\mathbf{V}'_j = \mathbf{c}_m + \frac{m_i}{m_i + m_j}\mathbf{c}'_r, \quad (3)$$

其中, θ 是散射角(即散射后粒子运动方向与入射方向的夹角),取值范围为0到 π , χ 是方位角(即散射后粒子运动方向在垂直于入射方向的平面内的投影与此平面内基轴的夹角),取值范围为0到 2π , $\mathbf{c}_r$ 和 $\mathbf{c}'_r$ 分别是碰撞粒子对碰撞前、后的相对速度, $\mathbf{c}_m$ 是碰撞对碰撞后的质心速度.

在模拟过程中,靶与衬底之间被分为一系列的小区间,小区间的长度小于环境气体的平均自由程,由接受-拒绝方法来确定两个原子是否发生碰撞. 每次碰撞所用时间由下式给出:

$$\Delta t_c = \left(\frac{2}{N_m}\right)\frac{1}{\pi d^2 n c_r}, \quad (4)$$

其中, N_m 是此区间粒子个数, n 为此区间的密度个数. 然后判断计算时间是否超出了时间步长,如果小于时间步长,那么继续选择碰撞对进行碰撞,如果大于时间步长,那么进入下一个区间,重复上述过程. 当所有的区间都模拟过来后,再进入下一个时间步长,重复上述过程,直至得到最终结果.

3. 结果与讨论

模拟以氦(He)为环境气体,压强为1000 Pa. 烧蚀粒子刚离开 Knuden 层时,初始溅射烧蚀 Si 粒子的密度分别为 $8.33 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, $1.66 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$, $8.33 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$, $1.66 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 和 $8.33 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$,速度通量为1760 m/s,烧蚀粒子的温度为6280 K,单脉冲烧蚀单晶 Si 靶蒸发的烧蚀粒子总数为 1.01×10^{15} ,靶衬间距为2 cm.

图1给出了典型初始溅射粒子密度分别为 $8.33 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, $8.33 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ 和 $8.33 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 时,烧蚀粒子和环境气体分子的密度分布随时间演

化图. 从图中可以看出,当烧蚀粒子密度分布确定时,在烧蚀粒子膨胀的初始阶段,烧蚀粒子密度迅速降低;随着时间的推移,烧蚀粒子受到环境气体的阻力不断增大,高密度峰形成,同时也出现了环境气体高密度峰,并形成环境气体和烧蚀粒子的交叠区;然后,烧蚀粒子和环境气体高密度峰在靶衬之间振荡,并且展宽,最终趋于稳定. 在初始的极短的时间内,烧蚀粒子的密度随初始溅射粒子密度的增大而增加. 在 $3.50 \mu\text{s}$ 时,初始溅射粒子密度为 $8.33 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ 的情况下,没有形成明显的烧蚀粒子高密度峰,而密度为 $8.33 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ 和 $8.33 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 的情况下,均有明显的高密度峰形成,但密度为 $8.33 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 比密度为 $8.33 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ 明显. 在 $8.00 \mu\text{s}$ 时,三种不同的密度情况下,均形成明显的烧蚀粒子高密度峰.

图2给出了烧蚀粒子和环境气体高密度峰的交叠区位置随时间演化图. 由于初始溅射密度为 $1.66 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 和 $8.33 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 所得到的曲线几乎重合,故未给出初始溅射粒子密度为 $8.33 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 的曲线. 当烧蚀粒子密度确定时,交叠区在靶衬之间振荡. 随着烧蚀粒子密度增加,交叠区所能到达距靶的最大距离减小,反弹回来后,所能到达距靶的最小距离减小;当烧蚀粒子密度大于 $1.66 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 时,几乎不随密度变化.

烧蚀粒子和环境气体的高密度峰的交叠区是晶粒气相成核和长大的关键区域. 在初始的一段时间内,环境气体高密度峰还未形成,烧蚀粒子所受阻力很小,处于近似自由膨胀状态,此时,烧蚀粒子的密度决定于初始溅射粒子密度. 随后,随着初始溅射粒子密度增大,环境气体分子和烧蚀粒子的相互渗透减小,烧蚀粒子所受阻力增大,环境气体被压缩的程度增大,使得交叠区能够到达离靶的最大距离减小,被衬底反弹时,烧蚀粒子所受环境气体的推力增大,能够到达距靶的最小距离减小. 它们到达距靶最远处所用时间相同,所以传播速度减小. 但当初始溅射密度过大,它只影响初始极短时间内的等离子体密度分布,经极短的时间间隔后,密度迅速降低,而这时环境气体对烧蚀粒子的阻力才刚刚产生,故当初始溅射离子密度大于 $1.66 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 时,初始溅射粒子密度的增加不会对烧蚀粒子在环境气体中的传输过程产生影响.

图3给出了烧蚀粒子的速度分布随时间演化图. 从图中可以看出,对于确定的初始溅射粒子密

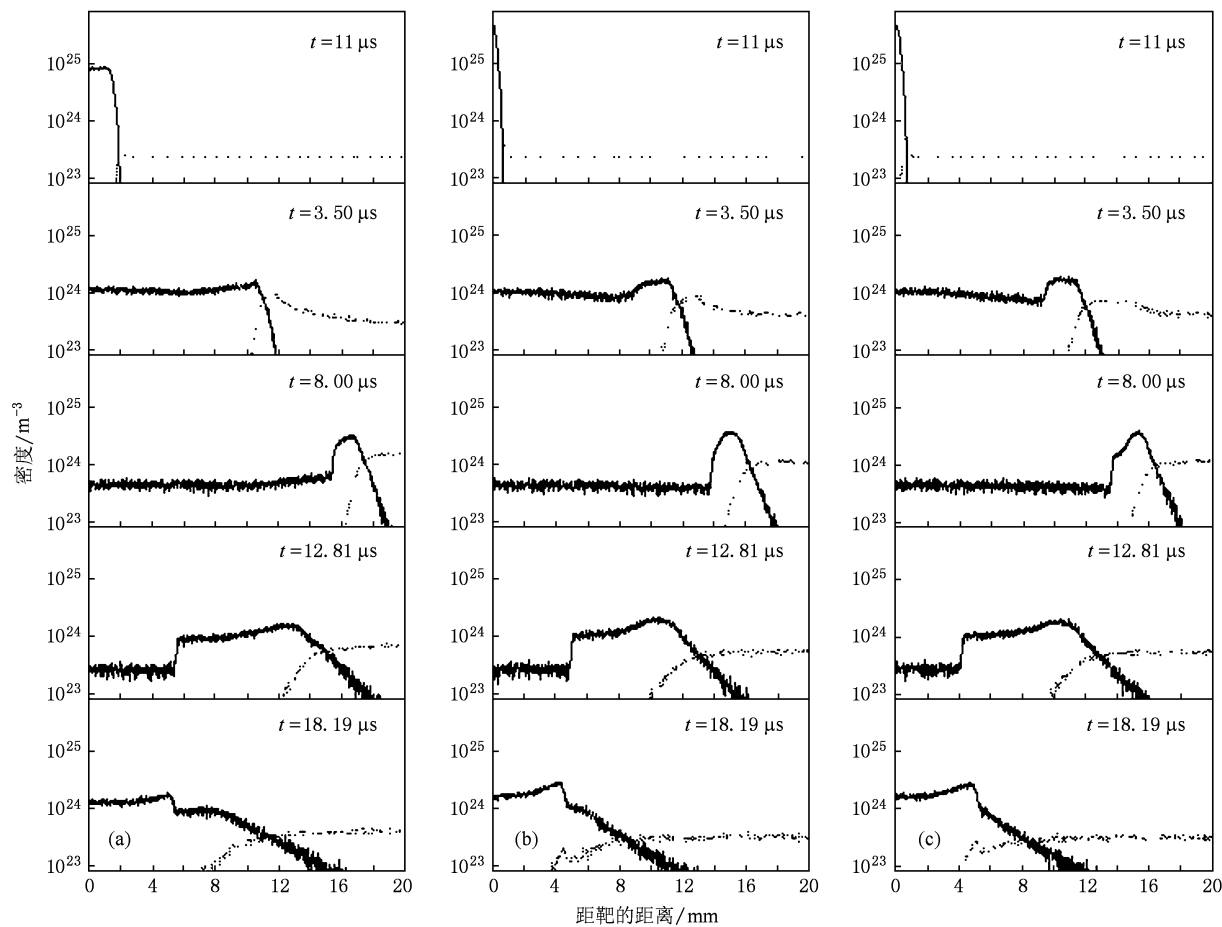


图1 烧蚀 Si 粒子(细线)和环境气体(圆点)密度分布随时间演化图,(a),(b)和(c)分别为初始溅射粒子密度为 $8.33 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, $8.33 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ 和 $8.33 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$

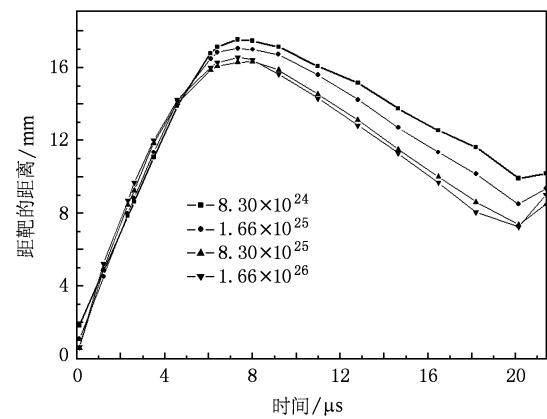


图2 交叠区的位置随时间演化图

度,速度分布峰位左移,峰值增大,分布变窄,到达距靶最远处时,速度分布最窄,峰值最高,然后在靶衬之间往复变化.随着初始溅射粒子密度增大,速度分布变宽,峰值减小,峰位左移.值得注意的是,

当初始溅射粒子密度大于 $8.33 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ 时速度劈裂成两部分.

人们曾多次报道等离子体羽辉劈裂现象^[3,4],并且劈裂只能出现在环境气体压强较窄的范围内^[13].Neogi 等人在研究脉冲激光烧蚀碳靶的等离子体在低压环境气体中传输时,发现了速度劈裂现象^[14].等离子体羽输运动力学过程决定于等离子体和环境气体的特性.随着环境气体压强的增大,等离子体与环境气体的渗透程度减弱,并形成明显的等离子体与环境气体的界面,当环境气体满足一定条件时,会出现等离子羽辉劈裂现象;当环境气体压强继续增大时,会出现瑞利-泰勒(Rayleigh-Taylor)不稳定性^[2].

在烧蚀粒子输运过程中,烧蚀粒子之间和烧蚀粒子与环境气体之间的碰撞,使得烧蚀粒子的速度分布发生变化,甚至得到完全不同于初始时刻的速度分布.当初始溅射粒子密度较小时,烧蚀粒子和

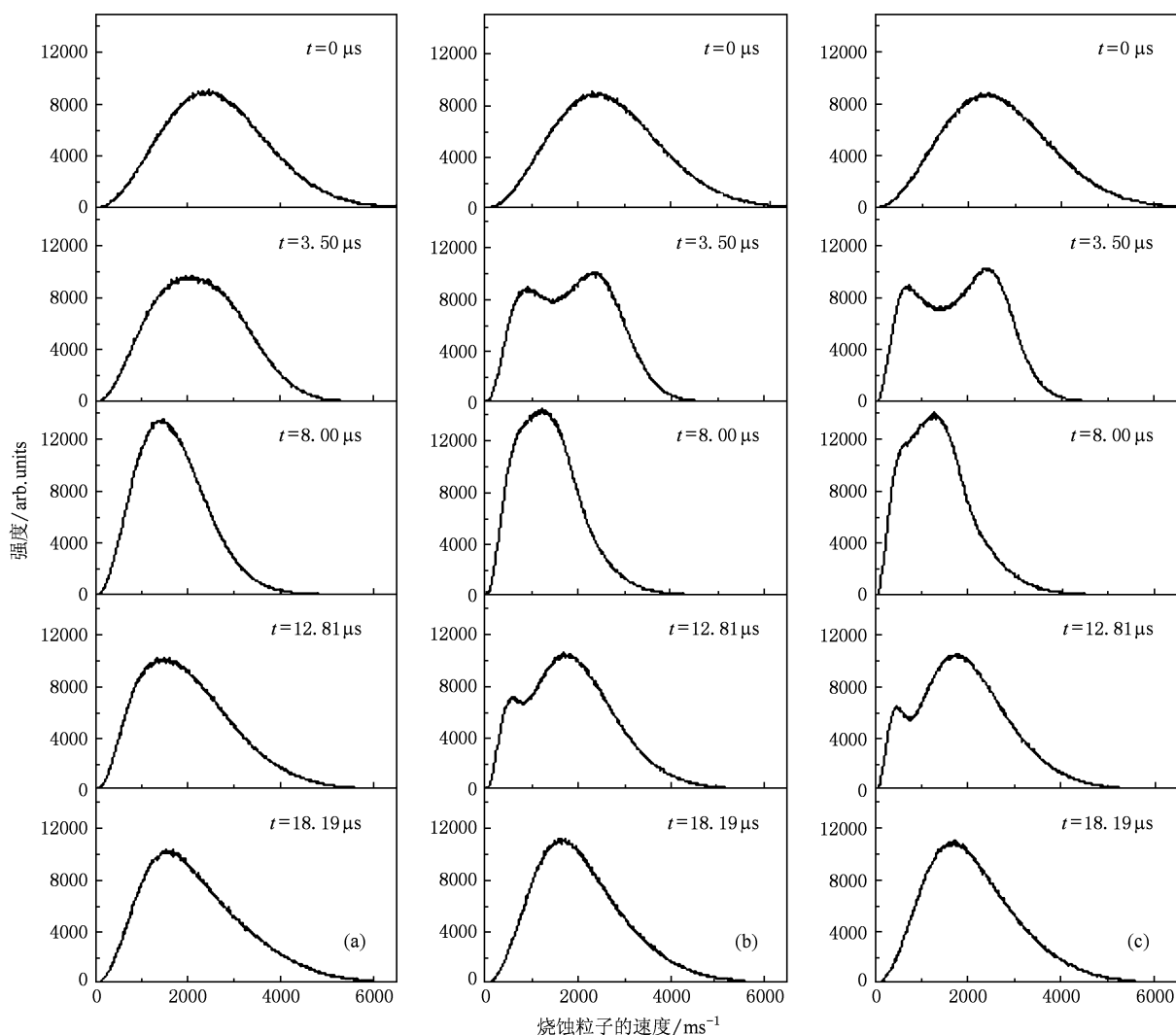


图3 烧蚀 Si 粒子的速度分布随时间演化图, (a), (b) 和 (c) 分别为初始溅射粒子密度为 $8.33 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, $8.33 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ 和 $8.33 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$

环境气体分子间的相互渗透程度较强,所有烧蚀粒子与环境气体分子的碰撞概率几乎相等;随着初始溅射粒子密度的增大,烧蚀粒子与环境气体之间的渗透减弱,渗透到环境气体中的烧蚀粒子与环境气体分子发生碰撞次数较少或不发生碰撞,形成了高速运动的烧蚀粒子群,另外没有渗透到环境气体中的烧蚀粒子,与环境气体发生了多次碰撞,形成了低速运动的烧蚀粒子群。

众所周知,纳米晶粒经成核和长大两个过程而形成.在输运过程中,烧蚀粒子的密度和速度是决定纳米晶粒的气相成核的两个关键因素,只有满足一定密度和速度的烧蚀粒子才能够成核,烧蚀粒子的密度和速度分布直接影响着成核区的位置和范围^[15],因而,我们的研究将对纳米晶粒成核机理的深

化有重要指导意义.例如,模拟结果表明,随着初始溅射粒子密度的增加,烧蚀粒子与环境气体的交叠区所能到达距靶的最大距离减小,如果只有交叠区符合成核的密度要求,则初始溅射粒子密度的增加将导致成核区变短.当然,定量确定纳米晶粒成核所需要的烧蚀粒子密度和速度的具体数值范围会是一个极具意义的问题,这将是我们的下一步工作。

4. 结 论

采用 Monte Carlo 模拟方法,对烧蚀 Si 粒子在 He 环境气体中输运过程进行了模拟,研究了初始溅射粒子密度对传输过程中烧蚀粒子的密度和速度分布的影响.随着初始溅射粒子的密度增加,烧蚀

粒子与环境气体分子的交叠区所能到达的距靶的最大距离减小,反弹回来后,所能到达距靶的最小距离减小,当烧蚀粒子密度大于 $1.66 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$ 时,再增大烧蚀粒子密度,对烧蚀粒子在环境气体中的传输过程几乎无影响. 随着初始溅射粒子的密度增

加,速度分布变宽,峰值减小,峰位左移,当初始溅射粒子密度大于 $8.33 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ 时速度劈裂成两部分. 烧蚀粒子在传输过程中的速度和密度是气相成核的两个重要参数,对它们的研究可为研究气相成核机理提供依据.

[1] Douglas H L, Geohegan D B, Puzos A A 1996 *Science* **273** 898

[2] Sharma A K, Thareja R K 2005 *Appl. Surf. Sci.* **243** 68

[3] Harilal S S 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 123306

[4] Wood R F, Chen K R, Leboeuf J N, Puzos A A, Geohegan D B 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 1571

[5] George S, Kumar A, Singh R K, Nampoori V P N 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 141501

[6] Zhang D M, Li Z H, Huang M T, Zhang M J, Guan L, Zou M Q, Zhong Z C 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 914 (in Chinese) [张端明、李智华、黄明涛、张美军、关丽、邹明清、钟志成 2001 物理学报 **50** 914]

[7] Tatiana E I, Hermann J, Delaporte, Sentis M 2002 *Phys. Rev. E* **66** 066406

[8] Zhang S D, Hang W J 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1512 (in Chinese) [张树东、张为俊 2001 物理学报 **50** 1512]

[9] Han M, Gong Y C, Zhou J F, Yin C R, Song F Q, Muto N, Takiya T, Iwata Y 2002 *Phys. Lett. A* **302** 182

[10] Franklin S R, Thareja R K 2001 *Appl. Surf. Sci.* **277** 15

[11] Garrelie F, Aubreton J, Catherinot A 1998 *Appl. Phys. Lett.* **83** 5075

[12] Wang Y L, Chu L Z, Li Y L, Fu G S 2009 *Micro & Nano Lett.* **4** 39

[13] Harilal S S, Bindhu C V, Tillack M S, Najmabadi F, Gaeris A C 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 2380

[14] Neogi A, Mishra A, Thareja 1998 *Appl. Phys.* **83** 2381

[15] Chu L Z, Lu L F, Wang Y L, Fu G S 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 3374 (in Chinese) [褚立志、卢丽芳、王英龙、傅广生 2007 物理学报 **56** 3374]

Influence of the initial ablated-particle density on distribution of density and velocity of ablated-particles^{*}

Ding Xue-Cheng Fu Guang-Sheng Liang Wei-Hua Chu Li-Zhi Deng Ze-Chao Wang Ying-Long[†]
(College of Physics Science and Technology, Hebei University, Baoding 071002, China)
(Received 29 June 2009; revised manuscript received 25 July 2009)

Abstract

The influence of the density of initial ablated-particle on the spatial density distribution of the particles (Si and He) and the velocity distribution of the Si – particles was investigated via Monte Carlo simulation. With the increase of the initial ablated – particle density, both the maximum distance and the minimum distance after rebound of the mixed region from the target are decreased, and the width of the velocity distribution is increased. The splitting of the velocity was observed when the initial ablated – particle density was greater than $8.3 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$. These results give a good reference for further study of the Si nanoparticle nucleation.

Keywords: Monte Carlo simulation, ablated-particles, density distribution, velocity distribution
PACC: 5225L, 5265

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10774036), the Natural Science Foundation of Hebei Province (Grant No. E2008000631), the Foundation from the Education Bureau of Hebei Province, China (Grant No. Z2007222), the Key Laboratory of Light and Electricity of Hebei Province and the National Science Foundation of Hebei University.
[†] Corresponding author. E-mail: hdwangyl@hbu.cn.