

环境气体种类对激光烧蚀粒子速度劈裂的影响*

丁学成 傅广生 褚立志 邓泽超 梁伟华 赵亚军 王英龙†

(河北大学物理科学与技术学院, 河北省光电材料重点实验室, 保定 071002)

(2011年12月21日收到; 2012年1月10日收到修改稿)

采用蒙特-卡罗 (Monte Carlo) 方法, 模拟了激光烧蚀粒子输运动力学过程. 在环境气体压强为 100 Pa 的情况下, 研究了环境气体种类 (He, Ne, Ar 和假想气体等) 对烧蚀粒子速度劈裂的影响. 研究表明, 在四种环境气体中传输的烧蚀粒子均出现了速度劈裂现象, 形成速度劈裂所需时间按 He, Ne, 假想气体和 Ar 的次序减小. 还研究了环境气体分子的质量和半径对烧蚀粒子速度劈裂的影响, 形成速度劈裂所需时间随环境气体分子半径 (或质量) 增大而减小. 在假想气体中, 两速度峰强度相等时的强度最小. 结合欠阻尼振荡模型和惯性流体模型, 对劈裂的形成时间进行了解释. 所得结论可为进一步定量研究纳米晶粒生长机理提供基础.

关键词: 蒙特-卡罗模拟, 烧蚀粒子, 速度劈裂, 气体种类

PACS: 52.65.-y, 52.25 Fi

1 引言

脉冲激光烧蚀技术是制备各种纳米材料的重要手段之一^[1-4]. 像其他制备方法一样, 人们渴望在脉冲激光烧蚀技术中实现纳米材料的可控生长, 然而, 要实现纳米材料的可控生长, 必须深入理解纳米晶粒生长动力学过程. 众所周知, 纳米晶粒生长包括成核与长大两个过程, 并且成核与长大只能在烧蚀粒子密度达到超饱和, 并且温度/速度在合适的范围的区域内生长. 烧蚀粒子的密度和温度/速度的时空扩散使得对生长动力学过程的研究变得十分复杂. 烧蚀粒子的速度劈裂 (烧蚀粒子变成快慢两个群体) 作为一种重要的扩散现象, 影响着其速度和密度分布. 人们对烧蚀粒子速度劈裂现象进行了大量研究, 并探讨了速度劈裂的形成机理^[5-7]. Wood 等人利用多次散射和流体动力学模型详细研究了硅 (Si) 烧蚀粒子在 He 和 Ar 环境气体中的速度劈裂现象^[8], 然而, 宏观模型不能揭示速度劈裂本质. 最近, 本课题组利用 Monte Carlo 方法从微观角度研究了 Si 烧蚀粒子在 1000 Pa 的 He

环境气体中的速度劈裂, 指出烧蚀粒子所受动力的释放机理决定能否出现劈裂现象^[9], 并且烧蚀粒子动力释放机理与环境气体阻力有关, 提出了欠阻尼振荡模型, 揭示了速度劈裂的本质. 然而, 未对同一压强下, 环境气体种类对烧蚀粒子速度劈裂现象的影响进行研究. 为了深入理解生长动力学过程, 对环境气体如何影响速度劈裂的研究是十分必要的.

本工作采用 Monte Carlo 模拟方法, 以 He, Ne, Ar 和假想气体为环境气体, 研究了脉冲激光烧蚀沉积纳米 Si 晶薄膜过程中, 环境气体种类对烧蚀粒子速度劈裂现象的影响.

2 模拟方法

烧蚀 Si 粒子包含 Si 原子、离子、电子和团簇等, 烧蚀粒子输运动力学是一个非常复杂的过程. 我们假设烧蚀粒子均为 Si 原子, 模拟从烧蚀 Si 粒子离开克努森 (Knudsen) 层后开始. 初始时刻, 烧蚀的 Si 粒子分布在以激光烧蚀斑为底部直径的圆柱体内, 速度近似为 Maxwell-Boltzmann 分布^[10]. 烧

* 973 计划前期研究专项 (批准号: 2011CB612305), 国家自然科学基金 (批准号: 10774036) 和河北省自然科学基金 (批准号: E2008000631, E2011201134, E20122010035) 资助的课题.

† E-mail: hdwangyl@hbu.edu.cn

蚀粒子与环境气体分子碰撞过程满足动量、动能守恒. 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 [11].

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. 理论上每次碰撞所用时间为

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

其中, N_m 此区间烧蚀粒子个数, n 为此区间的烧蚀粒子密度. 然后判断计算时间是否超出设定的时间步长, 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, 再进入下一个设定的时间步长, 重复上述过程, 直至得到最终结果.

3 结果与讨论

模拟以 100 Pa 的 He, Ne, Ar 和假想气体 (Dum) 为环境气体, Dum 的半径和质量均与烧蚀 Si 原子相同. 开始时, 环境气体分子的粒子数密度为 $2.42 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$. 刚离开 Knudsen 层时, 烧蚀硅原子的粒子数密度为 $1.66 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$, 速度 1760 m/s, 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 [11]. 环境气体分子或烧蚀粒子的质量和半径如表 1 所示.

图 1 给出了环境气体分别为 He, Ne, Ar 和 Dum 时, 烧蚀粒子径向速度分布随时间演化图, 图 1(a), (b), (c) 和 (d) 分别对应于 He, Ne, Dum 和 Ar 环境气体, 横坐标为烧蚀粒子径向速度, 纵坐标为烧蚀粒子强度. 在同种环境气体下, 速度分布曲线时间

间隔不等; 以及在不同气体种类下, 选取的速度分布曲线时间不同, 都是为了更好的观察速度劈裂现象形成过程. 从图 1 可以看出, 当环境气体种类确定时, 随着时间的推移, 速度分布由一个峰值变成两个, 高速峰的峰值明显增大, 峰位左移; 低速峰的峰值也随时间推移而增大, 但不明显, 峰位有较小的右移, 在特定时刻, 两峰强度相等. 随后, 高速峰继续增强, 低速峰强度几乎不变, 两峰继续靠拢, 最终变成一个峰, 速度劈裂消失. 当环境气体种类变化时, 速度劈裂从产生到消失所用时间基本相等, 大约为 7.0 μs . 速度劈裂出现及达到峰值相等的时间 (速度劈裂形成所需时间), 均按 He, Ne, Dum 和 Ar 的次序逐渐减小. 在两峰值相等时, 在 Dum 环境气体中强度最小, He 环境气体中强度最大. 径向速度分布曲线下的面积不变, 因为烧蚀粒子总数守恒. 两峰强度相等时, Dum 环境气体下速度分布最宽.

表 1 环境气体分子或烧蚀粒子的质量和半径

| 环境气体/烧蚀粒子 | He | Ne | Dum | Ar | Si |
|------------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 质量 / μ | 4.0026 | 20.197 | 28.086 | 39.948 | 28.086 |
| 半径 / nm | 0.032 | 0.069 | 0.111 | 0.097 | 0.111 |

在 Monte Carlo 模拟过程中, 环境气体种类影响着烧蚀粒子的速度分布, 两个关键因素是气体分子的质量和半径. 为了区分环境气体分子的半径和质量对烧蚀粒子速度分布的影响. 在环境气体质量与烧蚀粒子相等, 半径分别为 0.032, 0.062, 0.092, 0.111 和 0.2 nm 情况下, 对烧蚀粒子径向速度分布进行了模拟, 图 2 给出了两峰相等时的强度 (a) 和形成劈裂所需时间 (b) 随环境气体半径变化关系. 从图 2 可以看出, 形成速度劈裂所需时间随环境气体分子半径增大而减小. 当环境气体分子半径与烧蚀粒子半径相等时 (0.111 nm), 两峰相等时的强度最小. 同时还对环境气体分子半径与烧蚀粒子相等时, 质量分别为 0.665×10^{-26} , 1.665×10^{-26} , 2.665×10^{-26} , 3.665×10^{-26} , 4.665×10^{-26} , 5.665×10^{-26} , 6.665×10^{-26} , 6.665×10^{-26} 和 $10.665 \times 10^{-26} \text{ kg}$ 情况下, 烧蚀粒子径向速度分布进行了模拟. 当环境气体质量为 $10.665 \times 10^{-26} \text{ kg}$ 时, 未出现速度劈裂现象; 当环境气体质量为 $0.665 \times 10^{-26} \text{ kg}$ 时, 出现了劈裂现象, 但高速峰的强度始终小于低速峰的强度. 两峰相等时的强度和形成速度劈

裂所需时间随环境气体质量变化关系如图 3 所示. 形成速度劈裂所需时间随环境气体分子质量增加而减小, 两峰相等时的强度在环境气体质量与烧蚀粒子相等时最小. 综合图 2 和图 3 可以看

出, 形成速度劈裂所需时间随环境气体分子的半径 (或质量) 增大而减小. 当环境气体分子的质量和半径均与烧蚀粒子相等时, 两峰强度相等时的强度最小.

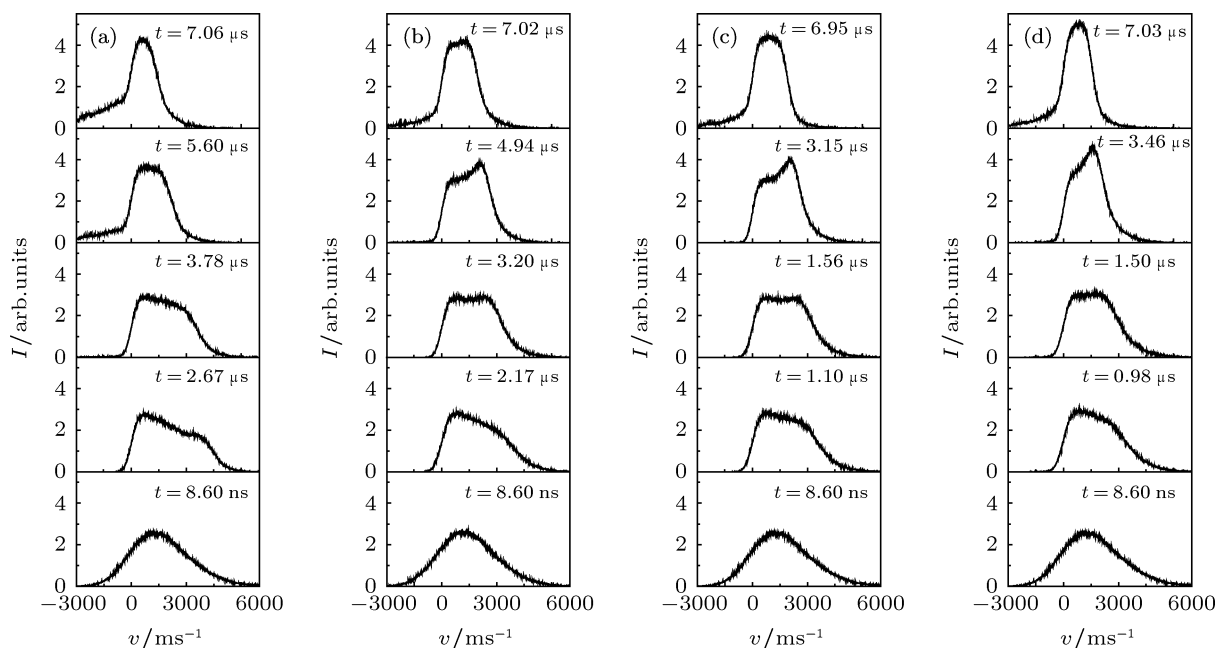


图 1 烧蚀粒子径向速度分布随时间演化图 (a), (b), (c), (d) 分别对应于 He, Ne, Dum, Ar 环境气体

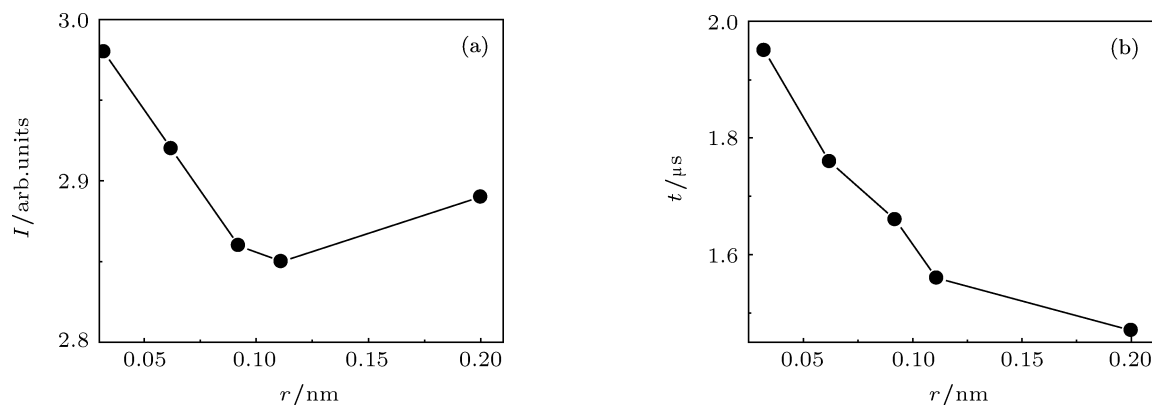


图 2 两峰相等时的强度 (a) 和形成速度劈裂所需时间 (b) 随环境气体分子半径变化关系

烧蚀粒子所受环境气体阻力决定着其动力释放机理, 当阻力较小时, 系统 (烧蚀粒子群) 处于欠阻尼状态, 动力振荡减小, 速度劈裂出现, 速度劈裂形成的时间与动力的振荡周期成正比; 当阻力较大时, 系统处于过阻尼状态, 动力单调减小, 不出现速度劈裂现象 [9]. 根据 Yoshida 等人提出的惯性

流体模型, 脉冲激光烧蚀单晶 Si 靶产生的烧蚀粒子, 在环境气体中所受阻力与其速率的平方成正比, 即 $f = -\alpha v^2$, 其中 $\alpha = CS\rho/2$, ρ 为环境气体密度, S 为碰撞截面, C 是比例系数 [12]. 环境气体分子质量增大, 使得其密度增大; 半径增大使得碰撞截面增大. 两者均使烧蚀粒子所受阻力增大. 随着烧蚀

粒子所受环境气体阻力增大, 动力振荡周期减小, 形成速度劈裂所需时间减小, 速度劈裂形成提前. 当阻力过大时 (烧蚀粒子质量为 10.665×10^{-26} kg), 烧蚀粒子所受动力处于单调减小, 不出现速度劈裂现象. 在 He, Ne, Dum 和 Ar 环境气体中, 烧蚀粒子的阻力依次增大, 故速度劈裂形成的时间依次减小. Dum 与 Ar 分子相比, Dum 半径较大, 质量较小, 但两者结合比较, 在 Ar 环境气体中阻力较大. Fu 等人

在环境气体种类 (He, Ne, Ar) 对纳米 Si 晶粒平均尺寸分布的影响时指出, 在 Ne 环境气体中制备的纳米 Si 晶粒平均尺寸最小、分布最均匀, 并将其归因于能量转移^[13]. 与 He 和 Ar 环境气体相比, Ne 环境气体分子的半径和质量与烧蚀粒子最接近, 每次碰撞烧蚀粒子与环境气体之间的能量转移最大. 在 Dum 环境气体中, 两峰强度相等时的强度最小也可归因于能量转移.

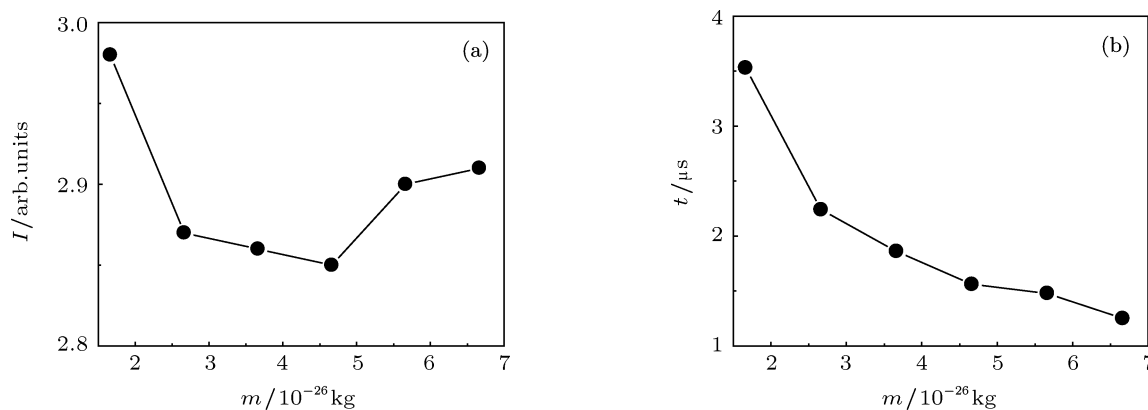


图3 两峰相等时的强度 (a) 和形成速度劈裂所需时间 (b) 随环境气体分子半径变化关系

4 结论

采用 Monte Carlo 模拟方法, 模拟了烧蚀 Si 粒子在 He, Ne, Dum 和 Ar 环境气体中的速度劈裂过程, 并对环境气体分子半径和质量对速度劈裂形成的时间和两峰相等时的强度的影响进行了研究. 研究表明, 速度劈裂形成时间按 He, Ne, Dum

和 Ar 的次序减小, 随环境气体分子质量和半径增大而减小. 当环境气体半径与质量与烧蚀粒子相等时, 两峰相等时的强度最小. 利用欠阻尼振荡模型对速度劈裂形成时间进行了解释, 随着烧蚀粒子受到的阻力增大而减小. 所得结论可为深入研究纳米晶粒生长动力学过程提供理论依据.

- [1] Lownds D H, Geohegan D B, Poretzky A A, Norton D P, Rouleau C M 1996 *Science* **273** 898
- [2] Phark S H, Chang Y J, Noh T W 2009 *Phys. Rev. B* **80** 035426
- [3] Wang Y L, Chen C, Ding X C, Chu L Z, Deng Z C, Liang W H, Fu G S 2011 *Laser Part. Beams* **29** 105
- [4] Zhao S Q, Yang L M, Liu W W, Zhao K, Zhou Y L, Zhou Q L 2010 *Chin. Phys. B* **19** 087204
- [5] Ding X C, Fu G S, Liang W H, Chu L Z, Deng Z C, Wang Y L 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 3331 (in Chinese) [丁学成, 傅广生, 梁伟华, 褚立志, 邓泽超, 王英龙 2010 物理学报 **59** 3331]
- [6] Gareth O W, Sebastian F, Gerard O 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 101503
- [7] Harilal S S, Shay B O, Tao Y, Tillack M S 2006 *J. Appl. Phys.* **99** 083303
- [8] Wood R F, Chen K R, Leboeuf J N, Poretzky A A, Geohegan D B 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 1571
- [9] Ding X C, Wang Y L, Chu L Z, Deng Z C, Liang W H, Galalaldeen I I A, Fu G S 2011 *Europhys. Lett.* **96** 55002
- [10] Leonid V Z, Barbara J G 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 551
- [11] 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
- [12] Yoshida T, Takeyama S, Yshida Y, Katsuhika M 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 1772
- [13] Fu G S, Wang Y L, Chu L Z, Zhou Y, Yu W, Han L, Peng Y C 2005 *Europhys. Lett.* **69** 758

Influence of gas type on velocity splitting of ablated particles*

Ding Xue-Cheng Fu Guang-Sheng Chu Li-Zhi Deng Ze-Chao
Liang Wei-Hua Zhao Ya-Jun Wang Ying-Long[†]

(College of Physics Science and Technology, Hebei Key Laboratory of Optic-electronic Information & Materials, Hebei University,
Baoding 071002, China)

(Received 21 December 2011; revised manuscript received 10 January 2012)

Abstract

The transport dynamics of the ablated particles is simulated via Monte Carlo simulation. The influences of ambient gases (He, Ne, and Ar dummy gas) on velocity splitting of the ablated particles under 100 Pa are investigated. The results show that the velocity splitting appears in four types of gases. The formation times of velocity splitting of the ablated particles decrease in sequence of He, Ne, dummy gas and Ar. The influences of the mass and radius of ambient gas molecule on the velocity splitting are also investigated. The formation time of the velocity splitting decreases with mass/radius of ambient gas molecule increasing. The intensity is the smallest when the two velocity peak intensities are equal. The formation time of velocity splitting is explained by the underdamping oscillation model and the inertia fluid model. These results give a good foundation for the further study of the Si nanoparticle growth.

Keywords: Monte Carlo simulation, ablated particles, velocity splitting, gas kinds

PACS: 52.65.-y, 52.25.Fi

* Project supported by the 973 program (Grant No. 2011CB612305), the National Natural Science Foundation of China (NSFC) (Grant No. 10774036), and the NSF of Hebei Province (Grant Nos. E2008000631, E2011201134, E20122010035).

[†] E-mail: hdwangyl@hbu.edu.cn