

替位杂质对低能 Pt 原子与 Pt(111)表面相互作用影响的分子动力学模拟*

张 超 王永亮 颜 超 张庆瑜†

(大连理工大学三束材料改性国家重点实验室, 大连 116024)

(2005 年 9 月 23 日收到, 2005 年 12 月 6 日收到修改稿)

采用嵌入原子方法的原子间相互作用势, 通过分子动力学方法模拟了低能 Pt 原子与 Cu, Ag, Au, Ni, Pd 替位掺杂 Pt(111)表面的相互作用过程. 系统研究了替位原子对表面吸附原子产额、溅射产额和空位缺陷产额的影响规律, 分析了低能沉积过程中沉积原子与基体表面的相互作用机理以及替位原子的作用及其影响规律. 研究结果显示, 替位原子的存在不仅影响着沉积能量较低时的表面吸附原子的产额与空间分布, 而且对沉积能量较高时的低能表面溅射过程和基体表面空位的形成产生重要影响. 替位原子导致的表面吸附原子产额、表面原子溅射以及空位形成的变化与替位原子的质量密切相关. 质量较小的替位原子导致择优溅射以及溅射阈值的降低. 此外, 根据二体碰撞模型和载能原子的反射机理探讨了低能沉积过程中沉积原子与基体表面的相互作用机理.

关键词: 分子动力学, 低能粒子, 替位掺杂, 表面原子产额, 溅射, 空位

PACC: 6855

1. 引 言

载能沉积是与蒸发沉积、分子束外延和化学气相沉积等薄膜制备方法有着重要区别的一类薄膜制备技术, 它包括了如: 离子束辅助沉积 (IBAD)、溅射沉积、脉冲激光蒸发沉积 (PLD)、过滤离子束沉积、加速分子束外延生长等许多薄膜制备方法. 由于沉积粒子能量的提高, 使得载能沉积方法所制备的薄膜具有光滑的表面形貌、接近于体材料的薄膜密度、高膜基结合强度、低薄膜缺陷和薄膜内应力等显著特点, 使其在薄膜合成中有着广泛应用. 例如: 溅射沉积技术已被广泛应用于集成电路的金属化、磁盘的薄膜制备, IBAD 技术在刀模具超硬涂层、类金刚石薄膜合成等方面发挥着越来越重要的作用. 此外, 载能沉积还可以实现一些化合物薄膜的低温合成, 在探索新型薄膜材料、合成高性能功能薄膜方面具有十分重要的地位. 例如: 人们利用 PLD, IBAD 技术制备出了高温超导薄膜、多层膜、 β - C_3N_4 薄膜等一些性能优异的功能薄膜. 正是载能沉积所具有的这

些优异的特点和广泛的应用前景, 使得载能沉积过程中的薄膜生长机理问题逐渐成为人们所关注的重点.

有关载能沉积过程的分子动力学模拟起始于 20 世纪 80 年代. 1987 年, Muller^[1]首先利用二维模型进行了 IBAD 薄膜生长的分子动力学模拟; 随后 Gilmore 和 Sprague^[2-6]利用三维分子动力学模拟了载能原子沉积的薄膜生长过程; 1995 年, Kellerman^[7]等人首次将运动学 Monte Carlo 方法应用于 IBAD 沉积模拟, 并提出了离子所产生的缺陷是导致薄膜表面光滑的重要因素, 随后他们又发现了生长岛的离子增强粗化现象^[8]; 1998 年, 张庆瑜^[9]利用分子动力学模拟和运动学 Monte Carlo 模拟系统研究了低能 Au 原子与 Au(100)表面的相互作用及薄膜生长行为, 并指出区分原子沉积过程和表面原子及缺陷的扩散过程对薄膜生长的影响, 这对于认识载能粒子在薄膜生长中的作用是十分必要的. 这些研究工作的出现, 不仅在原子水平上揭示了载能粒子在薄膜生长中的作用, 而且对改进和完善载能沉积技术和相关工艺具有一定的指导意义. 此外, 通过

* 国家自然科学基金委-中国工程物理研究院联合基金(批准号: 10476003)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: qy Zhang@dltu.edu.cn

低能粒子与固体相互作用的原子水平研究,可以加深人们对低能溅射行为的理解,这对基于低能溅射的等离子体加工工艺也是十分重要的。

目前,载能沉积过程研究的主要对象是理想的纯净表面,有关杂质原子的引入对于低能原子与表面相互作用机理的影响方面的工作尚不多见。然而,在实际的薄膜生长过程中,杂质的出现则是不可避免的。杂质的存在将在一定程度上影响着原子的沉积过程和表面吸附原子的扩散行为,甚至有可能导致薄膜生长模式的改变,例如,表面剂就是为了改善薄膜的质量而人为添加的一种外来杂质,人们可以通过表面剂的选择而控制薄膜的生长模式。

从原子的沉积过程上看,低能原子对表面的影响与沉积位置紧密相关,低能原子与表面相互作用的规律则是低能原子随机沉积过程的统计平均的结果。低能沉积与非载能沉积过程的一个重要区别是沉积原子能量的增加将导致表面溅射、表面吸附原子和表面缺陷的显著增加,而表面溅射行为以及表面吸附原子和表面缺陷多少是影响表面原子成核和表面岛生长的重要因素,甚至决定着薄膜的生长模式和薄膜的微观结构。本文通过对低能Pt原子在Pt(111)掺杂表面沉积过程的分子动力学模拟,系统研究了杂质原子(Cu,Ag,Au,Ni,Pd等5种原子)对溅射产额、表面吸附原子产额和表面缺陷产额的影响。通过溅射产额、表面吸附原子产额和表面缺陷产额随沉积原子的入射能量变化的规律,从表面稳定性、杂质原子质量以及低能原子与表面相互作用过程的角度,探讨了杂质原子在载能沉积中的作用及其对载能沉积过程的影响规律。

2. 物理模型与计算方法

实际的低能粒子与固体表面相互作用过程是一个极为复杂的动力学过程。用分子动力学模拟低能原子与表面相互作用时,物理模型的选取是至关重要的。在我们的模型中采用了等温近似、半无限大基体近似和准自由表面近似,这些近似方法有助于使分子动力学模拟结果接近真实的低能粒子与固体表面相互作用过程,具体的近似方法描述参见文献[10—12]。

分子动力学模拟研究中选用的基体是一个具有周期性边界、表面取向为(111)方向的平滑表面的计算单胞。单胞体积为 $3\sqrt{6}a_0 \times 5\sqrt{2}a_0 \times 4\sqrt{3}a_0$ ($a_0 =$

0.392nm 为Pt的晶格常数),其中包含有1440个原子,每层有120个原子,共分12层。如图1所示,基体表面中心位置存在一个替位掺杂原子,替位杂质原子种类包括Cu,Ag,Au,Ni,Pd等5种原子。模拟中我们选择了Pt做为 λ 的原子,沉积原子的能量范围选择从 0.1eV 变化到 200eV ,基体温度选择为 300K 。在进行模拟之前,理想表面经过了一个 3ps 的等温弛豫过程,以保证基体表面的微观状态更接近于真实的基体表面的初始状态。沉积原子从基体上方的可以忽略原子间相互作用的位置垂直向基体表面入射,入射点则是在以替位杂质为中心的 $0.5\sqrt{6}a_0 \times 0.5\sqrt{2}a_0$ 的范围内随机选取的。原子入射的整个过程为 3ps ,统计结果是500次原子入射结果的平均。原子间相互作用势采用EAM(Embedded atom method)多体势^[13,14],多原子体系的牛顿方程采用变步长速度Verlet算法求解^[15]。

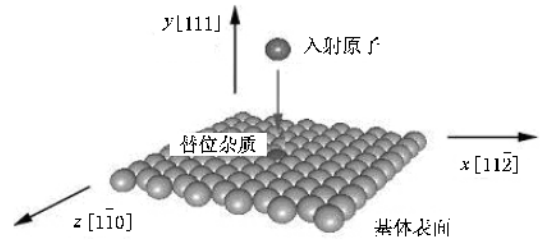


图1 模拟中所采用的晶体模型

3. 结果与讨论

3.1. 表面吸附原子产额

图2是Pt(111)掺杂表面的表面吸附原子产额(Y_{ad})随入射能量(E_{in})的变化,其中,图2(a)是总的表面吸附原子产额($Y_{\text{ad}}^{\text{Total}}$)随 E_{in} 的变化,图2(b)是基体原子的贡献($Y_{\text{ad}}^{\text{Sub}}$),图2(c)是沉积原子形成表面吸附原子的概率($Y_{\text{ad}}^{\text{Dep}}$),图2(d)是替位杂质形成表面吸附原子的概率($Y_{\text{ad}}^{\text{Dop}}$)。从图中可以看出:无论是总的表面吸附原子产额还是其形成因素的贡献随沉积能量的变化,均可以按沉积能量近似地划分成 $E_{\text{in}} < 5\text{eV}$ 、 $5\text{eV} < E_{\text{in}} < 40\text{eV}$ 和 $E_{\text{in}} > 40\text{eV}$ 三个区域(如图中虚线所示)。当 $E_{\text{in}} > 40\text{eV}$ 时, $Y_{\text{ad}}^{\text{Total}}$ 随 E_{in} 增加而线性增加,而且在数值和随 E_{in} 的变化趋势上与 $Y_{\text{ad}}^{\text{Sub}}$ 几乎完全相同,说明此时表面吸附原子主要是基体原子的贡献;当 $E_{\text{in}} < 5\text{eV}$ 时, $Y_{\text{ad}}^{\text{Total}}$ 维

持在 1.0 左右,并基本保持不变,而此时 Y_{ad}^{Total} 的数值与 Y_{ad}^{Dep} 比较接近,说明此时沉积原子是表面吸附原子的主要来源.对于 $5 \text{ eV} < E_{in} < 40 \text{ eV}$ 的非线性区域,实际反映的是表面吸附原子产额从以沉积原子贡献为主到以基体原子贡献为主的过渡区.在这一过渡区内,随着 E_{in} 的增加,沉积原子的贡献迅速下降,而基体原子的贡献逐渐增加,说明此时的表面吸附原子形成与沉积原子对表面晶格的注入有关.实际上, $E_{in} = 40 \text{ eV}$ 对应的是 $P(111)$ 表面的溅射阈

值 (E_{th}) 而 5 eV 与 Pt 原子的凝聚能 $E_c = 5.77 \text{ eV}$ 十分接近,这意味着溅射阈值和凝聚能是表面吸附原子形成机理的决定因素.

从杂质原子对表面吸附原子产额影响的角度上看,替位杂质对 Y_{ad}^{Total} 数值及随 E_{in} 的变化趋势的影响并不十分显著.然而,替位杂质的出现明显改变了基体原子和沉积原子对表面吸附原子产额的贡献,这一影响在 $E_{in} < 40 \text{ eV}$ 时表现得尤为突出,并呈现一定的规律性.从图 3 (b—d) 中可以看到.

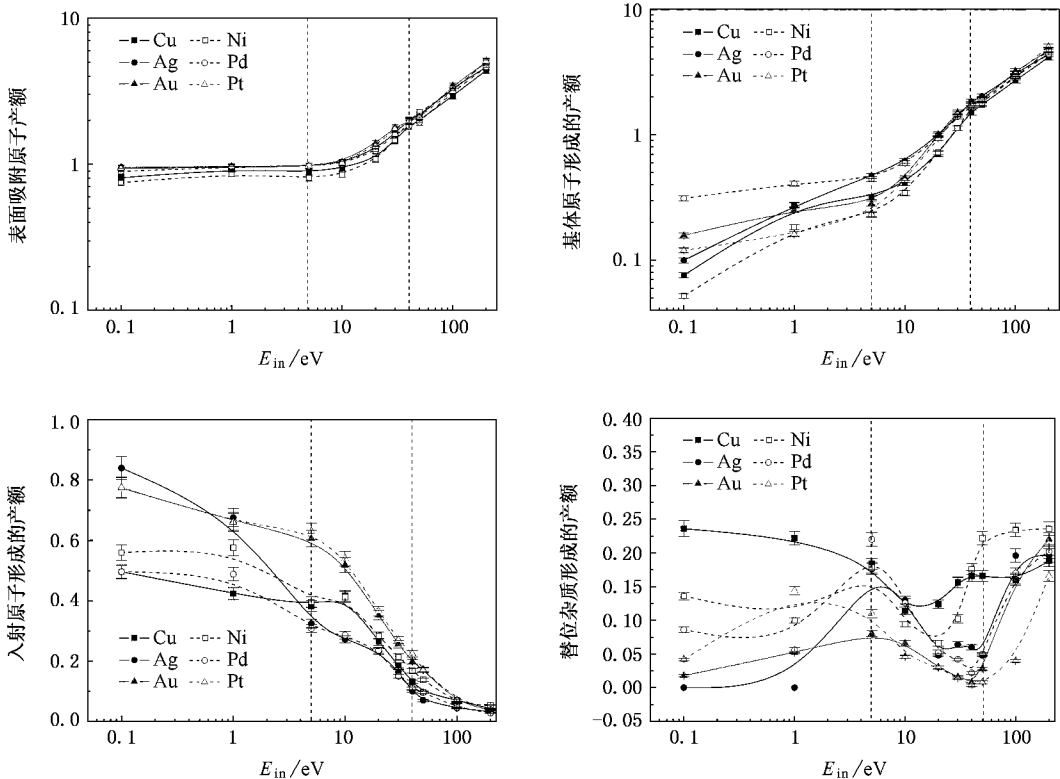


图2 掺杂 $P(111)$ 表面吸附原子产额随入射原子能量的变化 (基体温度为 300K) (a) 总的表面吸附原子产额的变化 (b) 基体原子的贡献 (c) 沉积原子形成表面吸附原子的概率 (d) 替位杂质形成表面吸附原子的概率

在 $5 \text{ eV} < E_{in} < 40 \text{ eV}$ 的沉积能量范围内, Au 掺杂的 $P(111)$ 表面与纯净的 $P(111)$ 表面的表面吸附原子产额变化趋势类似,而 Cu 和 Ni 掺杂以及 Ag 和 Pd 掺杂的变化趋势大体相同.这一结果说明替位杂质影响基体原子和沉积原子对表面吸附原子产额的贡献与替位杂质的质量有关,即存在着替位掺杂的质量效应.实际上,质量效应反映的是沉积原子与基体原子之间能量传递的差异.当 $E_{in} > 40 \text{ eV}$ 时,由于统计误差的绝对值比较大,杂质原子影响的规律性不再显著.

对于 $E_{in} < 5 \text{ eV}$ 的入射能量范围,基体原子、沉积原子以及替位杂质对表面吸附原子产额的贡献并不完全满足质量规律,说明除杂质质量因素外,表面吸附原子产额的大小还与具体的替位杂质有关.我们通过仔细分析发现:表面吸附原子产额的这种变化实际上是与替位掺杂后 $P(111)$ 表面稳定性的增加有关.在替位杂质对表面稳定性影响的研究中我们发现^[16]:对于 $P(111)$ 表面而言,杂质替位可以降低 $P(111)$ 表面的表面能,即替位杂质的存在可以导致 $P(111)$ 表面稳定性增加,而表面能降低的幅度则

取决于替位杂质的凝聚能和原子半径,其中 Ag, Au 降低 0.3 eV 以上, Ni, Pd 降低约 0.15 eV, 而 Cu 仅降低 0.09 eV. 在质量效应的基础上, 考虑替位杂质对表面稳定性的影响, 可以完全解释 $E_{in} < 5$ eV 时替位杂质导致的 Y_{ad}^{Sub} , Y_{ad}^{Dep} 和 Y_{ad}^{Dop} 的变化. 这一结果说明表面吸附原子主要由沉积原子形成时, 表面稳定

性是影响表面吸附原子产额的重要因素.

通过仔细比较图 2(c) 和图 2(d), 我们可以发现当 $E_{in} < 5$ eV 时, Y_{ad}^{Dep} 与 Y_{ad}^{Dop} 变化趋势大致是相反的, 即对于一定的入射能量, Y_{ad}^{Dep} 与 Y_{ad}^{Dop} 之和基本是定值, 这意味着此时替位杂质是通过与沉积原子相互置换的机理而形成表面吸附原子的, 也就

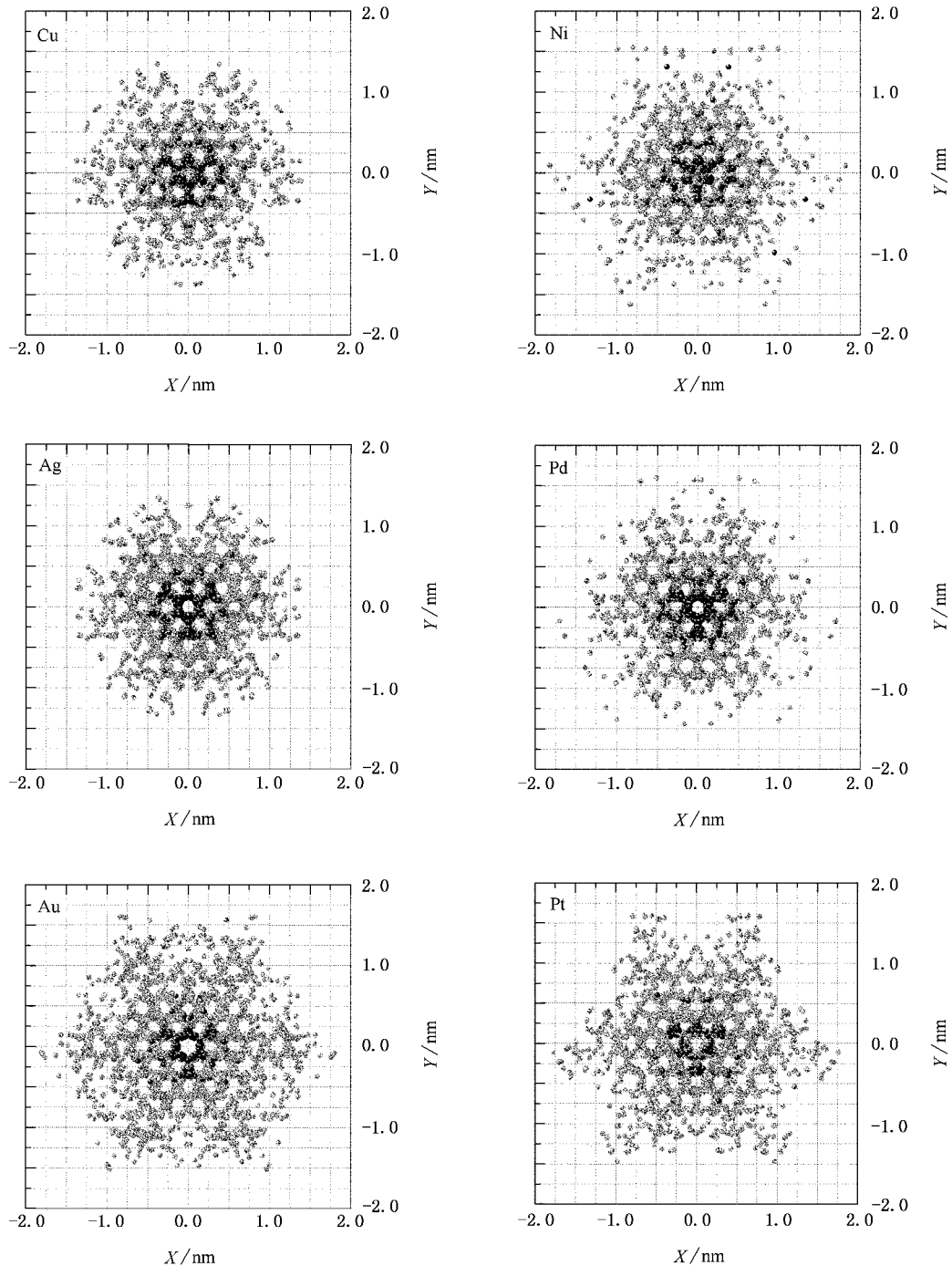


图 3 沉积能量为 10 eV 时, 不同掺杂 P(111) 表面的表面吸附原子分布. 其中深色为杂质原子, 浅色为 Pt 原子 (包括沉积原子和基体原子); 对于纯净 P(111) 表面, 深色代表入射中心原子形成表面吸附原子的分布

是说,当 $E_{in} < 5 \text{ eV}$ 时,沉积原子所拥有的动能不足以对表面层的晶格造成比较严重的损伤或使沉积原子注入到次表层,使得沉积原子与基体原子的相互作用以位置置换为主.而在 $5 \text{ eV} < E_{in} < 40 \text{ eV}$ 的区域内,尽管 Y_{ad}^{Dep} 与 Y_{ad}^{Dop} 均表现出明显的质量效应,但对于特定的入射能量, Y_{ad}^{Dep} 的大小并不像 Y_{ad}^{Dop} 那样大体上按替位杂质的质量次序变化,而且都随沉积能量的增加而逐渐降低.从沉积原子与基体原子碰撞的角度考虑,我们认为这实际上反映的是碰撞过程中的能量分配和沉积原子的能量损失形式对表面吸附原子形成的影响.在二体碰撞近似下,沉积原子传递给靶原子的能量为

$$T = \left[f \sin^2 \left(\frac{\theta}{2} \right) + \left(\frac{1-f}{4} \right) \right] T_m, \quad (1)$$

$$T_m = \frac{4M_1M_2}{(M_1+M_2)^2} E_{in}, \quad (2)$$

$$f = \left(1 - \frac{Q}{E_{in}} \frac{M_1+M_2}{M_2} \right)^{1/2}, \quad (3)$$

其中 θ 为实验室坐标系下的散射角, Q 是电子激发所导致的能量损失, M_1 和 M_2 分别是沉积原子和基体原子的质量.在低能沉积中,电子能量损失很小 $f \sim 1$, 因此有

$$T = T_m \sin^2 \left(\frac{\theta}{2} \right), \quad (4)$$

上述分析说明:当沉积原子与靶原子的质量接近时,沉积原子传递给靶原子的能量较大.对于我们研究的替位掺杂问题,由于质量较大的替位杂质所获得的向前运动的动能比较大,它形成表面吸附原子的可能性就比较小,同时沉积原子形成表面吸附原子的可能性就比较大;另一方面,当沉积原子损失的动能比较小时,沉积原子所拥有的动能将有可能注入到次表层,从而与次表层的基体原子发生相互作用,导致次表层晶格产生变形,而畸变晶格在恢复过程中的弹性能释放会产生沉积原子的反弹.因此,剩余动能较大的沉积原子所造成的晶格畸变较大,所获得的反向动能也就比较大,而沉积原子的反冲导致了表层基体原子的向外运动,从而形成表面吸附原子.也就是说,基体原子形成表面原子的机理主要是级联碰撞过程中沉积原子和基体原子的反射.这一机理也可以解释 $E_{in} > E_{th}$ 区域的表面吸附原子的形成.

图3是入射能量为 10 eV 时,不同替位杂质掺杂的 $\text{Pt}(111)$ 表面的表面吸附原子分布.从图中可以看到:对于一定的沉积能量,表面吸附原子的分布范

围大致相同,但不同的替位杂质之间略有差别,即不同替位杂质质量差异导致表面吸附原子分布范围上的不同.同时,我们注意到:替位杂质形成表面吸附原子分布主要集中在沉积点中心附近,而沉积原子和基体 Pt 原子主要分布沉积点中心以外的区域.此外,随着替位杂质质量的增加,替位杂质形成表面吸附原子分布的范围逐渐减小.这一方面反映了碰撞过程中沉积原子的能量分配和反射对替位原子形成表面吸附原子的影响,另一方面说明沉积原子的剩余能量在沉积原子和基体 Pt 原子形成表面吸附原子过程中的作用,即较小的剩余能量表现为沉积原子的表面迁移,而较大的剩余能量具有注入到次表层的能力.

此外,我们发现:由于替位杂质对其局域环境的影响表现为表面吸附原子分布对称性从3次对称转变为6次对称.我们认为,替位杂质导致表面吸附原子分布对称性的变化与面心立方(111)表面存在着呈3次对称分布的面心立方(fcc)和六角密堆(hcp)3重稳定位置的能量状态改变有关.对于纯净的 $\text{Pt}(111)$ 表面, fcc 位置比 hcp 位置稳定,二者的能量差异一般在 0.01 eV 左右.因此,对于纯净的 $\text{Pt}(111)$ 表面,表面吸附原子占据 fcc 位置的概率比较大,表面吸附原子呈3重对称性分布.当 $\text{Pt}(111)$ 表面存在替位杂质以后,替位杂质的存在导致杂质周围局域环境的变化,使得 fcc 位置和 hcp 位置之间的能量差异减小,从而缩小了表面吸附原子在 fcc 位置和 hcp 位置上的占据概率差异.这样,表面吸附原子分布对称性将从3次对称转变为6次对称特征.

3.2. 表面原子溅射及空位

图4是不同替位掺杂的 $\text{Pt}(111)$ 表面的溅射产额 (Y_s) 随沉积能量的变化,从图4(a)中可以看到:各种替位掺杂表面的溅射产额随沉积能量变化的趋势基本一致.当沉积能量大于溅射阈值时, Y_s^{Total} 与沉积能量的对数成正比关系.然而,各种掺杂表面的溅射产额同纯净表面的产额相比均有所降低.同时,还可发现: Cu , Ni 等替位杂质的存在导致溅射阈值的明显降低,如图4(a)的插图所示, Cu 和 Ni 掺杂的 $\text{Pt}(111)$ 表面,在沉积能量为 $20\text{--}30 \text{ eV}$ 时就可以观察到少量的溅射原子.这意味着替位原子的质量是导致溅射阈值降低的主要因素,说明沉积原子与基体原子相互作用过程中的传递能量分配是决定表面原子溅射的重要因素.

从替位杂质对溅射产额的影响上看, 表面替位杂质的溅射及其对基体原子溅射行为的影响均与替位杂质的质量有关. 从图 4(b) 可以看到, Y_s^{Pt} 随着入射能量的增加而增大, 但替位杂质的存在导致基体 Pt 原子溅射产额的下降, 并且 Y_s^{Pt} 有随替位质量减小而减小的趋势. 比较图 4(c) 中替位杂质的溅射产额与纯净 P(111) 表面沉积中心原子的溅射产额可以发现, 替位杂质有择优溅射的倾向, 而且这种择优溅射的趋势随替位原子质量的减小而增加. 从图 4(d) 中可以看到, 这种择优溅射的质量效应在低沉

积能量时表现得尤为明显. 特别是对于 Cu, Ni 掺杂的基体表面, 当沉积能量 $E_{\text{in}} < 40\text{eV}$ 而且对溅射产额的贡献几乎全部来自替位杂质. 这一结果说明, 替位杂质的择优溅射是导致溅射阈值降低主要原因, 而替位掺杂表面发生择优溅射与否与替位杂质的质量密切相关. 随着入射能量的增加, 替位杂质与基体 Pt 原子的溅射都逐渐增大, 但替位杂质的溅射在 Y_s^{Total} 中所占的比例相对较小, 且变化不大, 说明此时沉积原子所产生的级联混合是影响表面原子溅射行为的主要机理.

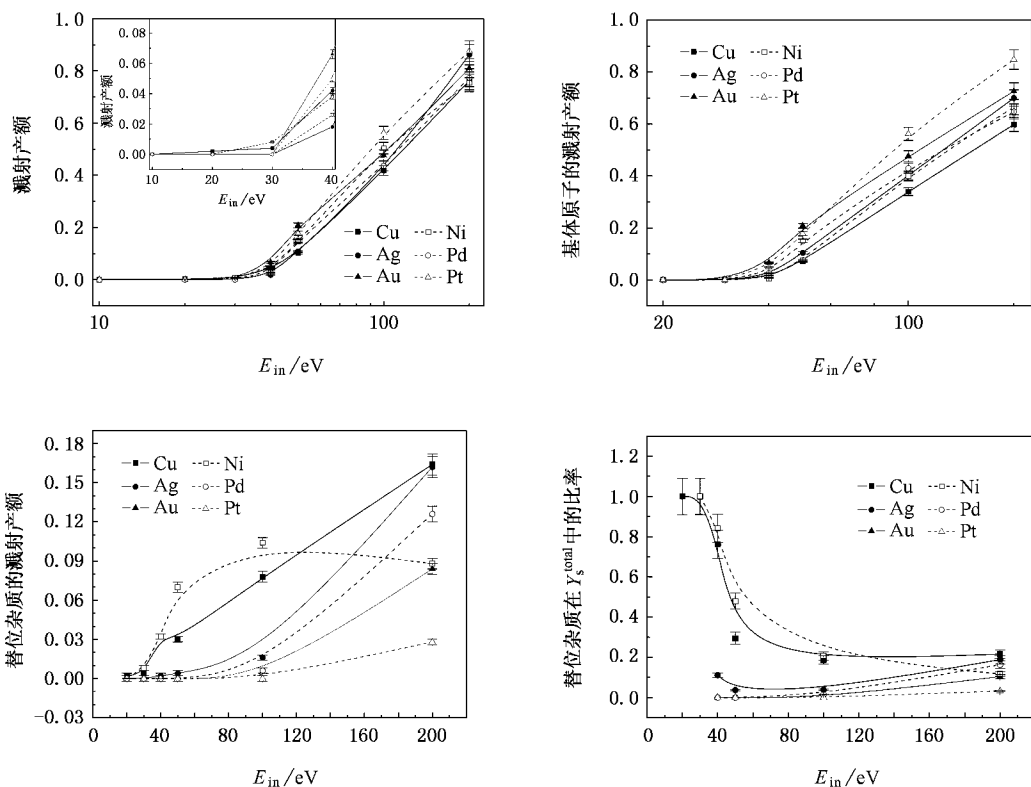


图 4 掺杂 P(111) 表面的溅射原子产额 Y_s 随入射 Pt 原子能量的变化 (基体温度为 300K) (a) 总溅射产额 (b) 基体 Pt 原子的溅射产额 (c) 替位原子的溅射产额 (d) 替位原子在总溅射产额中的比例

图 5 是沉积能量为 200 eV 时, 不同替位杂质掺杂的 P(111) 表面的溅射原子空间分布, 该溅射分布是在距离基体表面 0.55 nm 的平面上记录的. 从图中可以看到, 溅射原子的空间分布具有明显的 3 重对称性, 与表面吸附原子分布因替位杂质的存在而呈现的 6 次对称有显著的不同. 我们认为, 替位杂质之所以没有明显改变溅射原子分布对称性的主要原因是沉积原子的动能较大. 对于表面溅射现象而言, 沉积原子的动能在溅射阈值以上, 远远大于替位杂质所导致的杂质周围局域能量的变化, 因此, 决定

表面原子溅射分布的仍然是表面原子的分布对称性, 而杂质周围局域能量的变化对表面原子溅射分布对称性的影响相对较小.

但是, 从溅射原子的具体分布上看, 替位杂质确实改变了表面原子的溅射行为. 无论从基体 Pt 原子溅射分布还是替位杂质的溅射分布上看, 替位杂质对表面原子溅射行为的影响都是十分显著的. 比较不同替位掺杂表面的溅射原子分布, 可以看出替位杂质对表面原子溅射的影响与替位原子的质量有关. 这说明表面原子的溅射分布主要是由溅射过程

中沉积原子与基体原子之间的能量分配所决定.从替位杂质或中心原子的溅射分布上看,Cu,Ni和Ag,Pd原子的溅射分布范围相对集中在沉积中心附近,即溅射原子的发射角度比较小,但Cu,Ni存在部分一定比例的较大发射角度的溅射.而Au,Pt原子的溅射分布范围相对较大,且发射概率分布相对比较均匀.对于这一结果说明,当入射原子质量一定的

情况下,散射中心的原子质量越小,其对入射原子的散射角度就越小,反之则越大.而散射角度的大小又进而影响了沉积原子的反射角度,因此表现为质量较小的替位杂质的溅射发射角度比较小,而质量较大的替位杂质的溅射发射角度较大.以上结果进一步证明了我们提出的二体碰撞的散射机理和载能原子的反射机理是决定低能沉积过程中表面原子运动

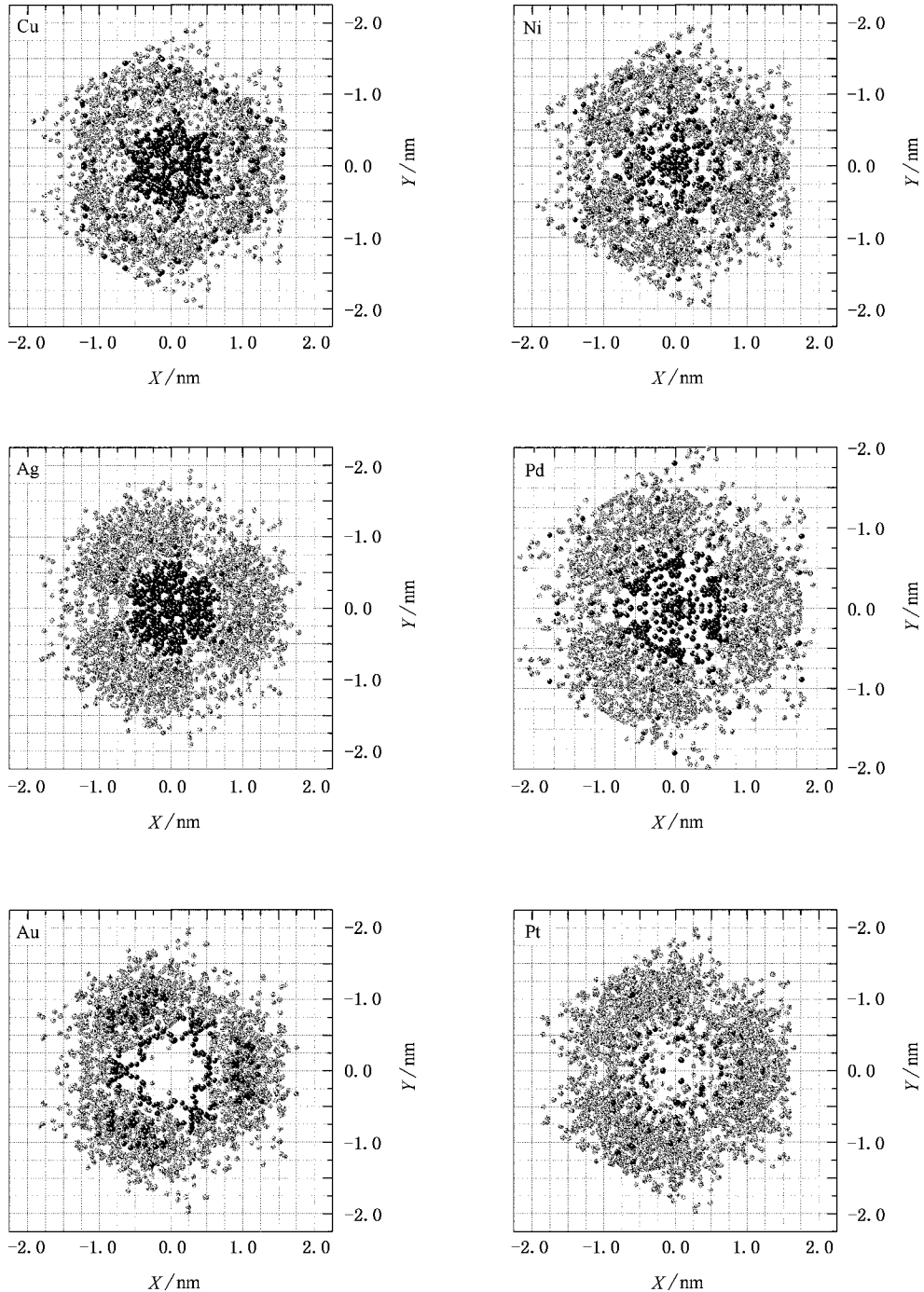


图5 沉积能量为200 eV时,不同掺杂Pt(111)表面的溅射原子分布,其中深色为杂质原子,浅色为Pt原子,对于纯净Pt(111)表面,深色代表入射中心原子形成溅射原子的分布

行为的观点.

图6是不同替位掺杂的 P(111) 表面的空位缺陷产额(Y_v)随沉积能量的变化, 从图中可以看到: 空位缺陷总产额随入射原子能量的增加而增大, 而且最表层空位缺陷产额的变化趋势和空位缺陷总产额的变化趋势是一致的, 数值上也十分接近. 这一结果说明: 当沉积能量在 200eV 以下时, 空位缺陷主要集中在基体的最表层. 进一步分析可以看到: 空位缺陷产额随沉积能量的变化与表面吸附原子相似, 也可以划分为 $E_{in} < 5 \text{ eV}$, $5 \text{ eV} < E_{in} < 40 \text{ eV}$ 和 $E_{in} > 40 \text{ eV}$ 三个区域. 当 $E_{in} < 5 \text{ eV}$ 时, 此时沉积原子的动能不足以破坏表层的晶体结构, 虽然有部分基体表层原子形成表面吸附原子, 但多数是与沉积原子发生置换过程而产生的, 因而此时在基体表层几乎不产生空位. 随着沉积能量的增加, 沉积原子的注入能力增强, 同时与其发生级联碰撞的表面原子所获得的动能也逐渐增加, 其脱离平衡位置的概率增大. 在 5 eV

$< E_{in} < 40 \text{ eV}$ 的区域, 碰撞后沉积原子的剩余能量以及表层原子的能量增加只是增加了形成表面吸附原子的概率, 最表层晶体结构被破坏, 但并不能对基体内部结构造成破坏, 此时基体表层以下无空位出现. 当 $E_{in} > 40 \text{ eV}$ 之后, 沉积原子和级联原子发生碰撞后均具有较大的动能, 从而导致晶体内部结构的破坏, 基体次表层开始出现空位, 且空位数量随沉积能量增大而迅速上升. 此外, 还可见到, 表面原子的溅射是与次表层晶格空位同时发生的, 这也反映了表面原子溅射是由沉积原子的反射机理所决定的. 从替位杂质对表面空位形成的影响上看, 仍然是替位原子的质量效应决定着掺杂表面的空位缺陷产额. 从图 6(b) 和图 6(c) 可以看到: 对于特定的沉积能量, 基体最表层的空位产额随替位原子质量增大而增加, 而基体次表层空位产额随替位原子质量增大而减小. 这一结果仍与沉积原子的能量损失形式和碰撞过程中的能量分配所分析的结论是一致的.

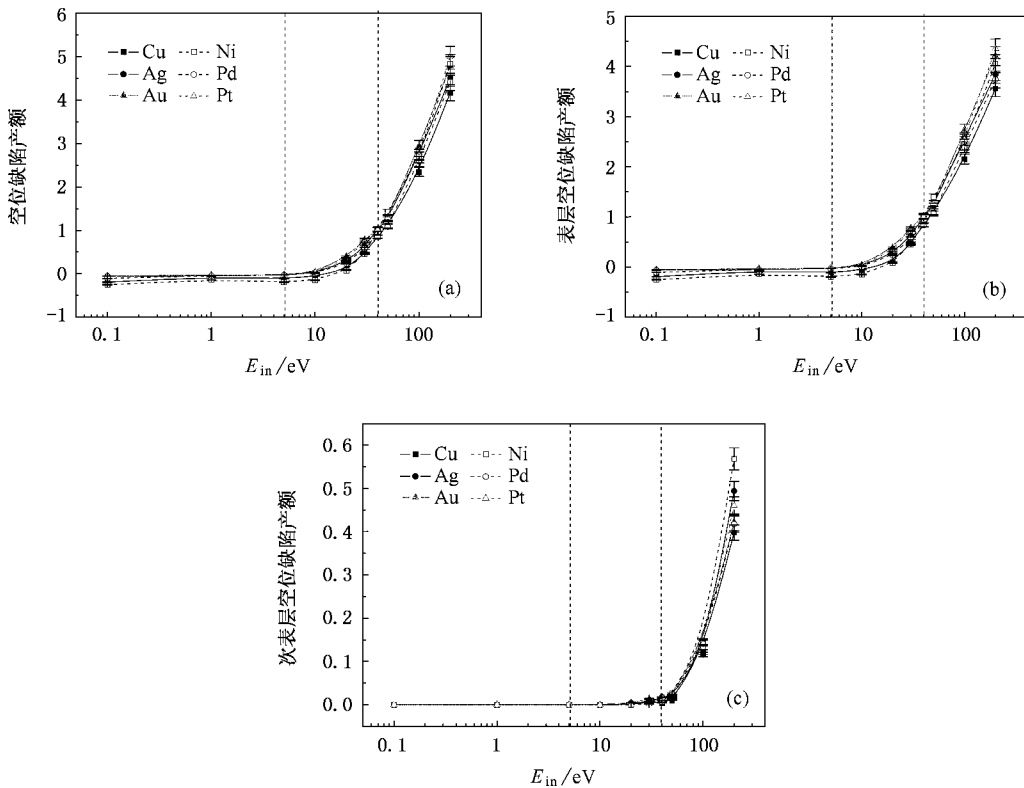


图6 掺杂 P(111) 表面空位缺陷产额 Y_v^{Total} 随 Pt 原子入射能量的变化 (a) 总的空位缺陷产额 (b) 基体最表层的空位缺陷产额 (c) 基体次表层的空位缺陷产额

4. 结 论

通过替位杂质对表面吸附原子产额、表面原子溅射和空位形成影响的分析,认为低能沉积原子与表面的相关作用机理与沉积原子的能量是密切相关的.当沉积原子的动能低于基体表面原子的凝聚能

时,沉积原子与基体原子的相互作用以位置置换机理为主;当沉积原子的动能高于溅射阈值时,二体碰撞的散射机理和载能原子的反射机理决定着沉积原子与基体原子相互作用的行为.替位杂质的存在,不仅影响着沉积能量较低时的表面吸附原子的产额与空间分布,而且对沉积能量较高时的低能表面溅射过程和基体表面空位的形成产生重要影响.

-
- [1] Muller K H 1987 *Phys. Rev. B* **35** 7906
- [2] Gilmore C M, Sprague J A 1991 *Phys. Rev. B* **44** 8950
- [3] Gilmore C M, Sprague J A 1992 *Surf. Coatings Technol.* **51** 324
- [4] Gilmore C M, Sprague J A 1992 *J. Vac. Sci. Technol. A* **10** 1597
- [5] Sprague J A, Gilmore C M 1994 *Surf. Coatings Technol.* **65** 71
- [6] Sprague J A, Gilmore C M 1996 *Thin Solid Films* **272** 244
- [7] Kellerman B K, Chason E, Floro J A *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 1703
- [8] Chason E, Kellerman B K 1996 *Nucl. Instr. Meth.* **127/128** 225
- [9] Zhang Q Y 1998 *Ph. D. Thesis* (Shanghai : Fudan University) in Chinese [张庆瑜 1998 博士学位论文, (上海 : 复旦大学)]
- [10] Zhang Q Y, Pan Z Y, Tang J Y 1999 *Acta Phys. Sin.* (Overseas Edition) **8** 296
- [11] Zhang C, Lu H F, Zhang Q Y 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2329 (in Chinese) [张 超、吕海峰、张庆瑜 物理学报 **51** 2329]
- [12] Ye Z Y, Zhang Q Y 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2798 (in Chinese) [叶子燕、张庆瑜 物理学报 **51** 2798]
- [13] Daw M S, Baskes M I 1984 *Phys. Rev. B* **29** 6443
- [14] Folies S M, Daw M S, Baskes M I 1986 *Phys. Rev. B* **33** 7983
- [15] Swope W C, Andersen H C, Berens P H *et al* 1982 *J. Chem. Phys.* **76** 637
- [16] Zhang C, Tang X, Wang Y L *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 5791 (in Chinese) [张 超、唐 鑫、王永亮等 物理学报 **54** 5791]

Numerical simulation of the influence of substitutional impurity on the interaction between low-energy Pt atoms and Pt(111) surface^{*}

Zhang Chao Wang Yong-Liang Yan Chao Zhang Qing-Yu[†]

(*State Key Laboratory of Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beams, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China*)

(Received 23 September 2005; revised manuscript received 6 December 2005)

Abstract

The deposition process of low-energy Pt atoms on Pt(111) surface doped with substitutional impurity Cu, Ag, Au, Ni, or Pd was studied by using molecular dynamics simulation. The atomic interaction potentials with the embedded atom method (EAM) were applied in the simulation. The effects of substitutional impurity on the adatom yield, sputtering yield, and vacancy yield have been observed and summarized. We found that substitutional impurity considerably affects the adatom yield, sputtering yield, and vacancy yield. The main reasons influencing the interaction between low-energy atoms and Pt(111) surfaces are the kinetic energy of incident atoms and the mass of substitutional impurity. The light substitutional atoms induced the preferred sputtering of substitutional impurity. A model based the binary collision theory and the atomic reflection mechanism by the substrate is suggested to describe the low-energy deposition process.

Keywords : molecular dynamics, low-energy deposition, substitutional impurity, adatom yields, sputtering, vacancy

PACC : 6855

^{*} Project supported by National Natural Science Foundation of China and the Natural Science Foundation of China Academy of Engineering Physics (Grant No. 10476003).

[†] Corresponding author. E-mail : qzhang@dlut.edu.cn