

# カスケードモデルによるスパッター原子のクラスタリング

竹内 智洋・後藤 正樹・山村 泰道\*

岡山理科大学大学院理学研究科修士課程応用物理学専攻

\*岡山理科大学総合情報学部シミュレーション物理学科

(2000年11月1日 受理)

## 要旨

イオン照射によって放出された2原子分子、3原子分子、4原子分子のクラスターエネルギー分布関数を衝突カスケードモデルを用いて解析した。モデルとして、放出後にクラスターを形成する再結合モデルと、放出前に表面付近でクラスターが形成され、それから放出される直接放出モデルがある。直接放出モデルによるスパッタークラスターのエネルギー分布公式は、Falcone-Sigmund の理論を応用して導いた。

また、クラスターを形成する原子の数が多くなると放出クラスター原子のエネルギー分布公式には高次の多重積分が含まれるが、本論文では多重積分をモンテカルロ法で数値計算した。実験は再結合モデルと直接放出モデルの線形結合により再現されることが分かった。

## 1. 序論

固体にイオンビームを照射すると、入射イオンが作るカスケードにより固体から標的原子が放出される。これをスパッタリングという。このスパッター原子を観測してみると、クラスターになって放出されているものがある。つまり、2原子分子 (dimer)、3原子分子 (trimer)、4原子分子 (tetramer) さらには、数10からなるクラスターまで観測されている。現在、このようなクラスター形成メカニズムの研究はスパッタリングの分野において最も関心が持たれている問題の一つである。そしてスパッタークラスターの実験は主として、入射イオンのエネルギーは数 keV で、標的は銀、銅、カルシウム、アルミニウムなどを用いて観測されている。また、スパッター原子またはクラスターは、イオン化されて放出されるものもあるが、しかしそのほとんどが中性である。最近になりこの中性クラスターをレーザーなどで post-ionization して観測する技術が向上し、実験結果の信頼度が高まった。主な実験結果としては Wahl, Wucher 等による5keV Ar<sup>+</sup>イオンを Ag 標的に表面垂直から45°で入射したもの<sup>1)</sup>、Coon, Calaway, Pellin, Curlee, White 等による3.9keV Ar<sup>+</sup>イオンを Al 標的に垂直入射したもの<sup>2)</sup>、Hansen, Calaway, King, Pellin 等による4keV Ar<sup>+</sup>イオンを Ca 標的に垂直入射したものが<sup>3)</sup>、標的原子の種類に関係なく似たような分布が見られる。クラスターを構成する原子の数が増えるとそのエネルギー分布において、高エネルギー部分の傾きが理論的予想に比べて小さくなることが報告されている。また種々のスパッタークラスターの相対存在収量の詳細な報告例がある。

スパッタークラスターのエネルギー分布を説明するモデルは過去20数年間に数多く提案されている。その中でも線形カスケード理論に基づく再結合モデルと直接放出モデルは、現在もっとも有力なモデルである。再結合モデルの場合、表面結合エネルギーを超えてからクラスターを形成するモデルで1973年 Konnen, Tip, de Vries (KTD)<sup>4,5)</sup>によって提案された。直接放出モデルの場合、クラスターを形成してから放出されるという仮定のもとに1987年に Haring, Roosendaal, Zalm (HRZ)<sup>6)</sup>によって理論公式が導かれた。しかしながら、再結合モデル及び直接放出モデルだけでは実験のクラスターのエネルギー分布を正確に記述できない。たとえば、クラスターのエネルギー分布の形はエネルギーが増加するにつれて、その収量は増加し最大値をとり、そして減少する。実験と理論の間で、その漸近領域のエネルギー依存性が異なっているとの指摘がある。しかしながら、実験で言われている漸近領域は理論的にいって十分な漸近領域となっていない、カスケード理論は実験を再現しないということは必ずしも当たらない。また、最近のコンピュータの発達により MD シミュレーションも、放出されたクラスタ

一の相対存在収量、エネルギー分布の研究に使われている。主なものとして、Gades, Urbassek 等の 1keV Cu を Cu 標的に入射した MD シミュレーション<sup>7)</sup>、また Betz, Husinsky 等は 5keV Ar<sup>+</sup> を Cu 標的に入射した場合について計算し<sup>8)</sup>、クラスターを形成する原子は隣り合う表面原子が形成しやすいと報告している。

本論文では、少数粒子からなるスパッタークラスターはカスケードモデルで記述できるとの観点から理論を構成する。ただし、観測されるスパッタークラスターはスパッター後、再結合されてクラスターになるものと固体内でクラスターが形成され、それが表面結合エネルギーを乗り越えて放出される(直接放出)クラスターの両者が入り交じっていると仮定する。また、HRZによる直接放出モデルはその式の導出過程に不明瞭があり、ここでは Falcone-Sigmund 理論を用いて厳密に導いた<sup>9)</sup>。また、dimer 以上のスパッタークラスターについては、直接放出過程でスパッターされたものが他のスパッタークラスターと再結合する場合に対する公式も導く。そして観測されるスパッタークラスターのエネルギー分布はこれら3つの過程から構成されているとして、それらの線形結合により実験値と比較検討をすすめることをする。

## 2. スパッタークラスターのエネルギー分布に対する理論

スパッター粒子のクラスタリングに対する衝突カスケードモデルでは、同じカスケード内に属する粒子が、クラスターを形成して放出される過程を表したもので、Sigmund-Thompson の公式を基に組み立てられており、前に述べたように再結合モデルと直接放出モデルがある。

### 2.1 単純再結合モデル

固体からスパッターされた単原子粒子が次から次へと結合して大きいクラスターに成長していくというモデルをここでは単純再結合モデルという。単純再結合モデルは 1973 年 Konnen, Tip, de Vries (KTD) によって提案されたモデルであり<sup>4)</sup>KTDモデルと略称する。まず基本となる dimer の形成理論を述べる。理論を組み立てる際用いられた5つの仮定を以下に示す。

1) 単一の collision cascade に属する粒子は同一時刻  $t_0$  で放出される。

2) dimer を形成する構成粒子は同じ cascade に属する。dimer の形成条件は、

$$V(r_0) + \varepsilon \leq 0 \quad (2.1.1)$$

であり、ここに  $\varepsilon$  は相対運動エネルギーであり、 $V(r_0)$  は  $r_0$  だけ離れた2原子間のポテンシャルエネルギーである。

3) すべての粒子は独立に monomer で放出される。

4) スパッター粒子の monomer の微分スパッタリング収量は、Sigmund-Thompson (ST) の公式から

$$\Phi(E, \Omega) dE d\Omega = NE(E + E_b)^{-3} \cos\theta dE d\Omega \quad (2.1.2)$$

と与えられる。ここに  $E_b$  は表面の結合エネルギー、 $\theta$  は方位角である。

5) (2.1.1) 式の形成条件を  $\varepsilon \leq E_d$  と近似する。 $E_d$  は dimer の分離エネルギーである。

スパッター粒子のクラスタリングを取り扱うには ST 公式を運動量表示に変換する必要がある。粒子保存則を用いると次の関係式を得る。

$$\Phi(E, \Omega) dE d\Omega = \Phi(\mathbf{p}, \Omega) p^2 dp d\Omega = \Phi(\mathbf{p}) dp$$

故に、スパッター単原子粒子の運動量分布表示は

$$\Phi(\mathbf{p}) = \Phi(E, \Omega) \frac{1}{p^2} \frac{dE}{dp} = \Phi(E, \Omega) \frac{1}{Mp} \quad (2.1.3)$$

と求められる。ここで、 $\Phi(\mathbf{p}) d\mathbf{p}$  は、運動量ベクトル  $(\mathbf{p}, d\mathbf{p})$  を持った粒子の存在確率である。スパッター原子の運動量分布  $\Phi(\mathbf{p})$  を用いて、今  $\mathbf{p}_1$  の運動量、質量  $m_1$  を持つ粒子と  $\mathbf{p}_2$  の運動量、質量  $m_2$  を持つ粒子が再結合したとすると、結合した2粒子の分布は粒子が相対運動エネルギー  $\varepsilon$  と重心の速度  $V$  を用いて表される。すなわち、

$$W_{KTD}(\varepsilon, \mathbf{P}) = \int d\mathbf{p}_1 \int d\mathbf{p}_2 \Phi(\mathbf{p}_1) \Phi(\mathbf{p}_2) \delta(\varepsilon - E_{rel}) \delta(\mathbf{V} - \mathbf{V}_{cm}) \quad (2.1.4)$$

ここで上式に含まれる変数の関係は以下の通りである。

$$E_{rel} = \frac{1}{2} \mu \left( \frac{\mathbf{p}_1}{m_1} - \frac{\mathbf{p}_2}{m_2} \right)^2, \quad \mu = \frac{m_1 m_2}{M}, \quad \mathbf{V}_{cm} = \frac{\mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2}{M}, \quad M = m_1 + m_2$$

ここで、 $E_{rel}$  は相対エネルギー、 $\mathbf{V}_{cm}$  は重心の速度である。ここで、 $\mathbf{p}_1$ 、 $\mathbf{p}_2$  を重心系の運動量  $\mathbf{P} = \mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2$  と、相対系の運動量  $\mathbf{p} = \mu (\mathbf{p}_1/m_1 - \mathbf{p}_2/m_2)$  を用いて表すと、

$$\mathbf{p}_1 = q_1 \mathbf{P} + \mathbf{p}, \quad \mathbf{p}_2 = q_2 \mathbf{P} - \mathbf{p} \quad \text{ここに} \quad q_1 = \frac{m_1}{M}, \quad q_2 = \frac{m_2}{M}$$

である。(2.1.4)式の積分において $(\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2)$ を上式を用いて $(\mathbf{P}, \mathbf{p})$ に変数変換し、 $\delta$ 関数を計算すると(2.1.4)式は次のように書ける。

$$W_{KTD}(\varepsilon, \mathbf{P}) = M \mu \zeta \int d\mathbf{u} \Phi(\mathbf{p}_1) \Phi(\mathbf{p}_2) \quad (2.1.5)$$

となる。ただし  $\mathbf{p}_1 = q_1 \mathbf{P} + \zeta \mathbf{u}$ 、 $\mathbf{p}_2 = q_2 \mathbf{P} - \zeta \mathbf{u}$  であり  $\mathbf{u}$  は  $\mathbf{p}$  の単位ベクトルである。また、 $\zeta = (2\mu\varepsilon)^{1/2}$  である。(2.1.6)式において dimer と判定されるためには仮定(5)を用いなければならない。すなわち、上式の  $\varepsilon$  を  $(0, E_d)$  まで積分するとスパッターされた dimer の運動量分布の表式を得る。

$$W_{KTD}(\mathbf{P}) = M \int_0^{\sqrt{2\mu E_d}} d\zeta \zeta^2 \int d\mathbf{u} \Phi(\mathbf{p}_1) \Phi(\mathbf{p}_2) \quad (2.1.6)$$

(2.1.6)式における  $\Phi$  の具体的な表式を(2.1.2)式を用いて求めると(2.1.3)式より

$$\Phi(\mathbf{p}_i) = N_e h(\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{e}) \frac{(\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{e})}{(p_i^2 + L)^3} \quad (2.1.7)$$

を得る。ここに  $N_e$  は規格化定数、 $L = 2mE_b$ 、 $\mathbf{e}$  は表面法線方向の単位ベクトルで、 $h(x)$  はヘビサイドの階段関数である。ここで、(2.1.6)の被積分関数の具体的な表式が得られたので(2.1.6)を数値計算に適した形に直す。図1を参照して球面三角形の余弦定理を用い、さらにスパッター monomer の運動量表示(2.1.7)式を用いると最終的に

$$W_{KTD}(\mathbf{P}) = MN_1 N_2 \int_0^{\sqrt{2\mu E_d}} d\zeta \zeta^2 \int d\varphi \int d\vartheta \sin\vartheta \times \frac{(q_1 P \cos\theta + \zeta \cos\vartheta) h(q_1 P \cos\theta + \zeta \cos\vartheta)}{[q_1^2 P^2 + \zeta^2 + 2q_1 P \zeta (\sin\vartheta \sin\theta \sin\varphi + \cos\theta \cos\vartheta) + L_1]^3} \times \frac{(q_2 P \cos\theta - \zeta \cos\vartheta) h(q_2 P \cos\theta - \zeta \cos\vartheta)}{[q_2^2 P^2 + \zeta^2 - 2q_2 P \zeta (\sin\vartheta \sin\theta \sin\varphi + \cos\theta \cos\vartheta) + L_2]^3} \quad (2.1.8)$$

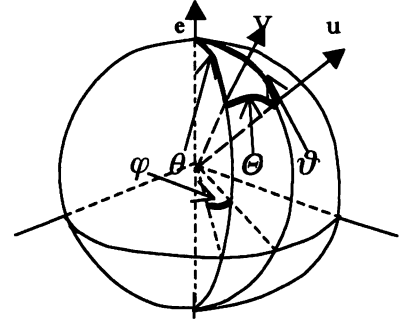


図1 各ベクトル  $\mathbf{e}$ 、 $\mathbf{V}$ 、 $\mathbf{u}$  の球座標表示

を得る。ここで  $z = \cos\vartheta$  としヘビサイド関数を考慮すると、

$$-\min(1, q_1 P \cos\theta / \zeta) \leq z \leq \min(1, q_2 P \cos\theta / \zeta)$$

となる。一般的に  $i$  個の原子から成るクラスターと  $j$  個の原子から成るクラスターが再結合して  $(i+j)$  個のクラスターになった場合のエネルギー表示を  $\Phi^{i+j}_{KTD}$  と表記すると、(2.1.3)式より

$$\Phi^{i+j}_{KTD}(E, \Omega) dE d\Omega = W(p, \Omega) p^2 dp d\Omega = W(p, \Omega) p dE d\Omega \quad \text{が言えるので最終的に計算する式は}$$

$$\Phi^{i+j}_{KTD}(E, \theta) = MN_1 N_2 P \int_0^{\sqrt{2\mu E_d}} d\zeta \zeta^2 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_{-\min(1, q_1 P \cos\theta / \zeta)}^{\min(1, q_2 P \cos\theta / \zeta)} dz \times \frac{(q_1 P \cos\theta + \zeta z)}{[q_1^2 P^2 + \zeta^2 + 2q_1 P \zeta [\sin\theta(1-z^2)^{1/2} \sin\varphi + z \cos\theta] + L_1]^3} \times \frac{(q_2 P \cos\theta - \zeta z)}{[q_2^2 P^2 + \zeta^2 - 2q_2 P \zeta [\sin\theta(1-z^2)^{1/2} \sin\varphi + z \cos\theta] + L_2]^3} \quad (2.1.9)$$

となる。これより KTD モデルによる大きいクラスターの分布関数を求めるにはそれより小さいクラスターの分布関数が必要となる。trimer の場合を例にとると、上述の導出過程をそのまま応用すると trimer に対するエネルギー分布関数は次のように求まる。

$$\Phi_{KTD}^{1+2}(E_3, \theta_3) = M_3 N_1 N_2 P_3 \int_0^{\sqrt{2\mu E_{d3}}} d\zeta \zeta^2 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_{-\min(1, q_1 P_3 \cos \theta_3 / \zeta)}^{\min(1, q_2 P_3 \cos \theta_3 / \zeta)} dz \Phi_{KTD}^1(q_1 P_3, \theta_3) \Phi_{KTD}^{1+1}(q_2 P_3, \theta_3) \quad (2.1.10)$$

$E_{d3}$  は trimer から monomer と dimer を分離するのに必要な分離エネルギーである。書き換えると上式は、

$$\Phi_{KTD}^{1+2}(E_3, \theta_3) = M_3 N_1 N_2 P_3 \int_0^{\sqrt{2\mu E_{d3}}} d\zeta \zeta^2 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_{-\min(1, q_1 P_3 \cos \theta_3 / \zeta)}^{\min(1, q_2 P_3 \cos \theta_3 / \zeta)} dz \frac{(q_1 P_3 \cos \theta_3 + \zeta z)}{\{q_1^2 P_3^2 + \zeta^2 + 2q_1 P_3 \zeta [\sin \theta_3 (1-z^2)^{1/2} \sin \varphi + z \cos \theta_3] + L_1\}^3} \times \Phi_{KTD}^{1+1}(q_2 P_3, \theta_3) \quad (2.1.11)$$

と表される。ここで  $M_3$ 、 $E_3$ 、 $P_3$ 、 $\theta_3$  はそれぞれ trimer の質量、運動エネルギー、運動量、方位角である。また、KTD モデルで得られたエネルギー・角度表示の分布関数は、エネルギーと角度について複雑な表示になっているが、実験などと比較する点で不便であるのでエネルギーと角度が変数分離した次の形で表されると近似する。

$$\Phi^{i+j}(E, \Omega) = NE^n (E + E_{b(i+j)})^{-s} \cos^k \theta \quad (2.1.12)$$

また上式をそれぞれの放出クラスターのエネルギー分布の数値計算に基き fitting して得られた  $n$ 、 $s$ 、 $E_{b(i+j)}$  を表 2 に記している。

## 2.2 直接放出モデル

直接放出モデルは 1987 年に Haring, Roosendaal, Zalm (HRZ) により提案されたモデルであり<sup>6)</sup>、ここでは HRZ に沿って理論を展開する。ただし、元の論文においてその導出過程に誤りがあるので、ここでは Falcone-Sigmund の理論を応用して式を求める<sup>9)</sup>。以下 m-HRZ モデルという。まず dimer の形成条件について述べる。ここで理論を組み立てる際用いられた 3 つの仮定を以下に示す。

- 1) dimer を形成する原子は初め独立に固体内部にあり、同じ時間  $t = t_0(x, x+dx)$  で運動量  $(\mathbf{p}, \mathbf{p}+d\mathbf{p})$  をもった反跳原子の確率密度  $\Phi(\mathbf{p}, x) dx d\mathbf{p}$  により表されるとする。
- 2) 反跳原子数は  $(x, x+dx)$  に付与されたエネルギー  $F_D(x)$  に比例するので

$$\Phi(E_0, x, \theta) dE_0 dx d\Omega = N_c \frac{F_D(x)}{E_0^2} dx dE_0 \frac{d\Omega}{4\pi} \quad (2.2.1)$$

と表される。 $E_0$  は反跳エネルギー、 $N_c$  は規格化定数である。ここで  $F_D(x)$  は入射エネルギーの関数であるが、表式が複雑になるので省略した。

- 3) 固体内での dimer の形成条件は KTD モデルの場合と同じとする。すなわち  $\varepsilon \leq E_d$ 。

運動量  $\mathbf{p}_1$ 、質量  $m_1$  を持つ粒子と運動量  $\mathbf{p}_2$ 、質量  $m_2$  を持つ粒子は KTD モデルと同じ考え方で導くことが出来る。すなわち、固体内の  $(x, x+dx)$  で形成された dimer の運動量分布は

$$W_{HRZ}(\mathbf{P}, x) = \int_0^{E_d} d\varepsilon W_{HRZ}(\mathbf{P}, \varepsilon, x) = \int_0^{\sqrt{2\mu E_d}} d\mathbf{p} p^2 \int d\mathbf{u} \Phi(\mathbf{p}_1, x) \Phi(\mathbf{p}_2, x) \quad (2.2.2)$$

となる。ここで、 $\mathbf{p}_1 = |q_1 \mathbf{P} + \mathbf{p}\mathbf{u}|$ 、 $\mathbf{p}_2 = |q_2 \mathbf{P} + \mathbf{p}\mathbf{u}|$  である。

この dimer がスパッターされる確率を Falcone-Sigmund の理論に基いて求める。すなわち dimer が分離せずかつ方向も変えず  $dE/dx = -AE^\alpha$  のエネルギー損失を受けながら表面に達すると仮定する。そのときのエネルギーを  $E_1$  とすると、

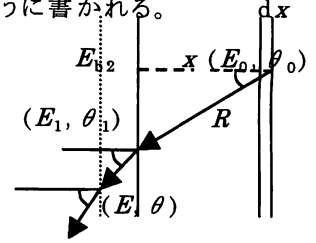
$$E_1 = E_0 \left\{ 1 - \frac{x}{R_0 \cos \theta_0} \right\}^{1-\alpha} = f(E_0, x, \theta_0) \quad \text{ここに} \quad R_0 = \frac{E_0^{1-\alpha}}{A(1-\alpha)}$$

であり、また  $\alpha = 1 - 2m$  である。 $E_0, \theta_0$  は固体内でのエネルギー、垂直方向からの角度である(図2参照)。 $A, m$  は定数である。ここに(2.2.2)式を Falcone-Sigmund の理論を応用するためエネルギー表示へ変換し、さらに固体内で生成されたあらゆる dimer の寄与を含めるため、すべてのエネルギーと場所について積分すると表面に到達した dimer の分布関数は以下のように書かれる。

$$W_{HRZ}(E_1, \Omega_1) dE_1 d\Omega_1 = dE_1 d\Omega_1 \int_{E_1}^{\infty} dE_0 \int dx W_{HRZ}(E_0, \Omega_0, x) \delta\{E_1 - f(E_0, x, \theta_0)\} \quad (2.2.3)$$

スパッターに寄与する dimer はほとんど表面近傍であるので、 $F_D(x)$  を表面の  $F_D(0)$  と置き換えると分布関数は以下のように計算される。

$$W_{HRZ}(E_1, \Omega_1) dE_1 d\Omega_1 = \frac{dE_1 d\Omega_1 \cos \theta_1}{|dE_1/dR|} \int_{E_1}^{\infty} dE_0 P_0 W_{HRZ}(P_0, \Omega_0) \quad (2.2.4)$$



と表される。ここで、 $\theta_1$  は表面での垂直からの角度、 $R \cos \theta_1 = x$  である。(図2参照)

図からもわかるように表面に達した反跳原子は表面ポテンシャルを越えなければならない、dimer の表面結合エネルギーを  $E_{b2}$  とすると、スパッター前のエネルギー・角度  $(E_1, \theta_1)$  とスパッター後のエネルギー・角度  $(E, \theta)$  との間には次の関係がある。

$$E_1 \cos^2 \theta_1 = E \cos^2 \theta + E_{b2}, \quad E_1 = E + E_{b2} \quad (2.2.5)$$

この関係を用いてスパッター後の分布関数  $\Phi^{i+j}_{HRZ}(E, \Omega)$  を式(2.2.4)より求めると

$$\Phi_{HRZ}^{1+1}(E, \Omega) dE d\Omega = dE d\Omega \frac{E \cos \theta}{A(E + E_{b2})^2} \int_{E_1}^{\infty} dP_0 P_0^2 \int_0^{\sqrt{2\mu E_d}} dp p^2 \int dz \Phi(p_1) \Phi(p_2) \quad (2.2.6)$$

となる。ここに

$$p_1^2 = q_1^2 P^2 + p^2 + 2q_1 P p z, \quad p_2^2 = q_2^2 P^2 + p^2 - 2q_2 P p z$$

但し  $z = \cos \theta$  であり、 $m=0$  と仮定した。線形カスケード理論により、式(2.2.1)のエネルギー分布は運動量分布では  $\Phi(p) \propto 1/p^5$  となる。このため被積分関数は2つの極を持ち数値積分において発散する。しかしながら、スパッタークラスタを問題にしている以上あるエネルギー以下の反跳原子は寄与しないため、低エネルギー領域で運動量分布を切り、その問題を迂回する。その cut-off エネルギーを  $\delta$  ( $n$  個の原子から成るクラスタであればおよそ  $n$  個の原子の表面結合エネルギーをクラスタサイズ  $n$  で割ったエネルギー程度) とすると、これより積分範囲は、

$$\max\left(-1, -\frac{(q_1 P)^2 + p^2 - 2\mu\delta}{2q_1 P p}\right) \leq z \leq \min\left(1, \frac{(q_2 P)^2 + p^2 - 2\mu\delta}{2q_2 P p}\right)$$

と表される。故に m-HRZ 過程により、スパッターされた dimer のエネルギー分布関数は

$$\Phi_{HRZ}^{1+1}(E, \Omega) = \frac{E \cos \theta}{A(E + E_{b2})^2} \int_{E_1}^{\infty} dP_0 P_0^2 \int_0^{\sqrt{2\mu E_d}} d\xi \xi^2 \int_{\max\left(-1, -\frac{(q_1 P)^2 + \xi^2 - 2\mu\delta}{2q_1 P \xi}\right)}^{\min\left(1, \frac{(q_2 P)^2 + \xi^2 - 2\mu\delta}{2q_2 P \xi}\right)} dz \Phi(p_1) \Phi(p_2) \quad (2.2.7)$$

と表される。さらに大きなクラスタについて、trimer を例にとると KTD モデルと同様に上述の導出過程をそのまま応用できる。上式の  $\Phi(p_j)$  に dimer の固体内での分布を挿入でき、また KTD モデルと同様にそれぞれのクラスタの内部エネルギーを0と仮定すると、スパッターされた trimer に対して次のエネルギー分布を得る。

$$\Phi_{HRZ}^{1+2}(E_3, \Omega_3) = \frac{E_3 \cos \theta}{A(E_3 + E_{b3})^2} \int_{E_3}^{\infty} dP_0 P_0^2 \int_0^{\sqrt{2\mu E_{d3}}} d\xi \xi^2 \int_{-t_1}^{t_2} dz \Phi(q_1 P_0) W_{HRZ}(q_2 P_0) \quad (2.2.8)$$

ここで  $t_j = \min\left(1, \frac{(q_j P_0)^2 + \xi^2 - 2\mu_j \delta}{2q_j P_0 \xi}\right)$ 、 $E_{b3}$  は trimer の表面結合エネルギー、 $1/\mu_3 = 1/M + 1/m_1$

### 2.3 混合再結合モデル

KTD モデルとここで言う混合再結合モデル(REC)の違いは、KTD モデルではスパッターmonomer が次から次から結合してクラスターの出来るモデルであり、KTD によって理論をうち立てられた。ここで言う混合再結合(REC)モデルは m-HRZ モデルで出来たスパッターされたクラスターや、KTD モデルで出来たクラスターが再結合してより大きいクラスターになるものも含んでいる。理論的なエネルギー分布関数の求め方というのは本質的には KTD モデルと同じである。

$$\Phi_{REC}^{i+j}(E_{i+j}, \theta) = P_{i+j} \int_0^{\sqrt{2\mu E_{d,i+j}}} d\zeta \zeta^2 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_{-\min(L, q_1 P_{i+j} \cos\theta/\zeta)}^{\min(L, q_2 P_{i+j} \cos\theta/\zeta)} dz \Phi^i(q_1 P_{i+j}, \theta) \Phi^j(q_1 P_{i+j}, \theta) \quad (2.3.1)$$

ここに  $1/\mu_{i+j} = 1/M_i + 1/M_j$ 、 $M_i$  は  $i$  個の原子から成るクラスターの質量、 $P_{i+j}$  と  $E_{i+j}$  は  $(i+j)$  個の原子から成るクラスターの運動量と運動エネルギー、 $E_{d,i+j}$  は  $(i+j)$  個の原子から成るクラスターが  $i$  個の原子から成るクラスターと  $j$  個の原子から成るクラスターに分離するのに必要な分離エネルギー。また  $\Phi^i$  は KTD モデルもしくは m-HRZ モデルでスパッターされた  $i$  個の原子から成るクラスターの運動量分布である。

### 3. 計算結果と議論

本論文で単純再結合過程、直接放出過程、混合再結合過程の理論公式を導いた。その中に含まれる種々の物理量について、未知な部分が多い。直接放出過程でスパッターされるクラスターのエネルギー分布の計算にとって必要な物理量として、 $n$  個の原子から成るクラスターの表面結合エネルギー  $E_{b,n}$  がある。また分離エネルギーは  $i$  個の原子から成るクラスターと  $j$  個の原子から成るクラスターがクラスター化する際の形成条件として必要であり、 $i$  個の原子から成るクラスターの結合エネルギー  $E_B^i$  と  $j$  個の原子から成るクラスターの結合エネルギー  $E_B^j$  を用いて  $E_{d,i+j} = E_B^{i+j} - (E_B^i + E_B^j)$  で与えられている。クラスターの結合エネルギー及び表面結合エネルギーについては表1に載せてある。また直接放出過程における cut-off エネルギーは  $n$  個の原子から成るクラスターに対しては  $\delta_n = E_{b,n}/n$  とおいた。導出された理論式はスパッターされたクラスターサイズが大きいほど多重度が多くなり、通常多重積分値計算法では膨大な計算時間を要するので本論文ではモンテカルロ法を用い多重積分を計算した。

図3は dimer の場合の通常の数値積分とモンテカルロを比較したものであり、乱数が 10000 回ほどではば一致している。このことによりモンテカルロ法による多重積分計算が有効であることが分かった。

種々のスパッター過程により放出されたクラスターのエネルギー分布の特徴を統一的に議論しやすくするため(2.1.12)のエネルギー・角度表示による分布関数を用いて計算値を fitting した。その結果は表2に示してある。まず dimer について単純再結合過程と直接放出過程との違いを  $5\text{keV Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$  に対して図4に示している。比較のため実験値もプロットしている<sup>1)</sup>。この図からわかるように高エネルギー側は単純再結合過程によるエネルギー分布が低エネルギー側は直接放出過程でよりよく実験値を記述できることを示している。すなわちこのことは観測されるスパッタークラスターは単純再結合過程、直接放出過程だけでは説明されるものではなく、いくつかの過程を含んでいると考えられる。エネルギーのピークの位置は dimer の場合、単純再結合過程では  $E_b$  に近い値を示し、直接放出過程では  $E_b/4$  に近い値を示している。また図4の trimer のエネルギー分布にみられるように、trimer 以上の分布になると混合再結合過程が実験値に対して単純再結合過程、直接放出過程と共に寄与してくるのが分かる。さらに図5にみられるように、それぞれの標的金属に対して種々の放出モデルの線形結合と実験値がよく一致している<sup>1,2,10,11)</sup>。従って、実験で得られたエネルギー分布は前に述べたように単純再結合過程、直接放出過程と混合再結合過程の線形結合で再現されることが可能である。

#### まとめ

イオン照射によって放出されたクラスターのエネルギー分布関数を衝突カスケードモデルにより解析した。モデルとして単純再結合モデル(KTD)と直接放出モデル(m-HRZ)、さらに混合再結合モデル(REC)を考え、理論公式を導いた。クラスターを形成する原子数が多くなると理論公式に高次の多重積分が含まれるが、本論文ではモンテカルロを用いて数値計算した。モンテカルロ法と通常多重

積分数値計算法はよい一致を示した。理論計算と実験を比較の結果、直接放出モデル、単純再結合モデルと混合再結合モデルの線形結合により少数の粒子からなるスパッタークラスターのエネルギー分布を再現できることがわかった。すなわち、線形カスケード理論によりエネルギー分布の実験値を再現できることがわかった。とくに、低エネルギー部分では直接放出モデルが、高エネルギーの部分では単純再結合モデルが、寄与していると推測される。

#### 参考文献

- 1) M. Wahl, A. Wucher, Nucl.Instr.Meth.B94(1994)36
- 2) S.R.Coon, W.F.Calaway, M.J.Pellin, G.A.Curlee, J.M.White Nucl.Instr.Meth.B82(1993)329
- 3) C.S.Hansen, W.F.Calaway, B.V.King, M.J.Pellin, Surf. Sci.398(1998)211
- 4) G.P.Konnen, A.Tip, A.E.de Vries, Rad.Effects21(1974)269
- 5) G.P.Konnen, A.Tip, A.E.de Vries, Rad.Effects26(1975)23
- 6) R.A.Haring, H.E.Roosendaal, P.C.Zalm, Nucl.Instr.Meth.B28(1992)205
- 7) Heinrich Gades, Herbert M.Urbassek, Nucl.Instr.Meth.B69(1992)232
- 8) G.Betz, W.Husinsky Nucl.Instr.Meth.B102(1995)281
- 9) G.Falcone, P.Sigmund, Appl.Phys.25(1981)307
- 10) S.R.Coon, W.F.Calaway, M.J.Pellin, J.M.White, Surf. Sci.298(1993)161
- 11) Z.Ma, W.F.Calaway, M.J.Pellin, E.I.von Nagy-Felsobuki, Nucl.Instr.Meth.B94(1994)197

## Clustering of sputtered atoms by collision cascade models

Tomohiro TAKEUCHI, Masaki GOTO and Yasunori YAMAMURA\*

*Graduate School of Science*

*\*Department of Simulation Physics*

*Okayama University of Science*

*Ridai-cho 1-1, Okayama 700-0005, Japan*

(Received November 1, 2000)

We have studied the energy distributions of sputtered dimers, trimers and tetramers, based on the collision cascade models, which are the recombination model and the direct ejection model. The former is that the cluster formation takes place after sputtering. The latter is that the cluster formation occurs near the surface before ejection. The energy distribution formulae of sputtered clusters based on direct ejection model are derived from Falcone-Sigmund theory.

In this paper, we performed the multiple integrals included in the energy distribution formulae of sputtered clusters, using Monte Carlo method. It is found that linear combination of recombination ejection and direct ejection reproduce the experimental energy distributions of sputtered clusters

表1  $n$ 個の原子から成るクラスターの全エネルギーと表面結合エネルギー

	クラスターサイズ			
	1	2	3	4
全エネルギー	0	$E_B$	$1.8 \times E_B$	$3.1 \times E_B$
表面結合エネルギー	$E_b$	$E_b$	$1.45 \times E_b$	$1.9 \times E_b$

$E_B$ は2原子分子の結合エネルギー、 $E_b$ は単原子粒子スパッタリングに対する表面結合エネルギーである。

表2 スパッタークラスターのエネルギー分布公式(2.1.12)への最適値。

クラスター	モデル		標的原子					
			Ag	Al	In	Ca	Cu	
2	KTD	$n$	2.01	2.00	1.98	1.87	2.00	
		$s$	6.52	6.51	6.47	6.35	6.52	
		$E_{b(1+1)}$	6.24	7.13	4.94	3.29	7.43	
	m-HRZ	$n$	1.07	1.05	0.98	1.00	1.07	
		$s$	5.55	5.54	5.48	5.50	5.56	
		$E_{b(1+1)}$	2.97	3.41	2.60	1.86	3.50	
3	KTD	$n$	2.62	2.63	2.52	2.45	2.64	
		$s$	9.63	9.56	9.51	9.40	9.65	
		$E_{b(1+2)}$	9.53	10.7	7.67	4.99	11.3	
	m-HRZ	$n$	1.17	1.14	0.99	1.00	1.16	
		$s$	8.17	8.14	7.98	8.00	8.17	
		$E_{b(1+2)}$	4.48	5.15	3.79	2.71	5.34	
	REC (dimer+monomer)	$n$	2.07	2.09	1.92	2.08	2.14	
		$s$	8.47	8.48	8.34	8.49	8.51	
		$E_{b(1+2)}$	4.70	5.32	4.05	2.63	5.37	
	4	KTD	$n$	3.35	3.32	3.15	2.89	3.35
			$s$	12.4	12.4	12.4	12.3	12.4
			$E_{b(1+3)}$	11.0	12.6	9.37	6.85	13.0
m-HRZ		$n$	1.28	1.25	1.07	1.00	1.26	
		$s$	10.8	10.8	10.6	10.5	10.8	
		$E_{b(1+3)}$	6.28	7.19	4.97	3.57	7.55	
REC1 (dimer+dimer)		$n$	3.12	3.09	2.88	2.88	3.13	
		$s$	11.6	11.5	11.4	11.4	11.6	
		$E_{b(1+3)}$	2.94	3.38	2.57	1.78	3.48	
REC2 (dimer+2monomer)		$n$	2.10	2.18	1.94	2.39	2.20	
		$s$	11.0	11.0	10.8	11.2	11.0	
		$E_{b(1+3)}$	7.81	8.62	6.56	3.84	8.94	
REC3 (trimer+monomer)	$n$	2.14	2.14	1.83	2.03	2.18		
	$s$	11.0	11.0	10.7	10.9	11.0		
	$E_{b(1+3)}$	6.15	6.97	5.37	3.48	7.19		



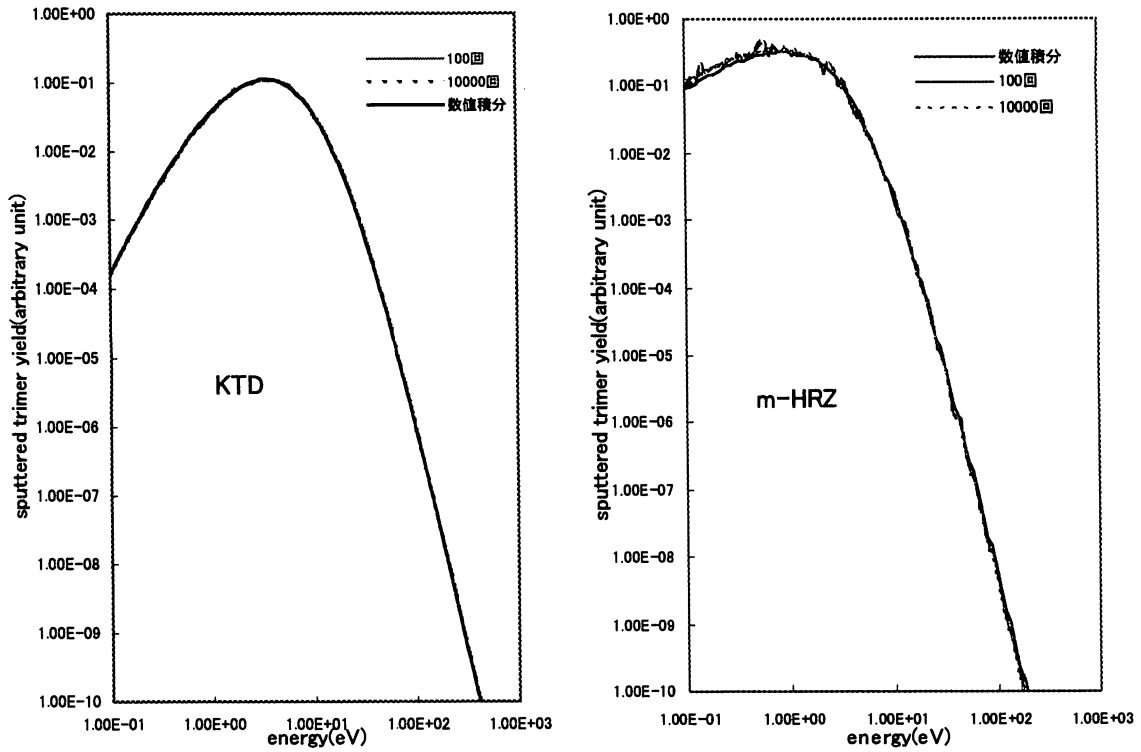


図3 trimer における KTD 及び m-HRZ についての数値計算とモンテカルロ法との比較

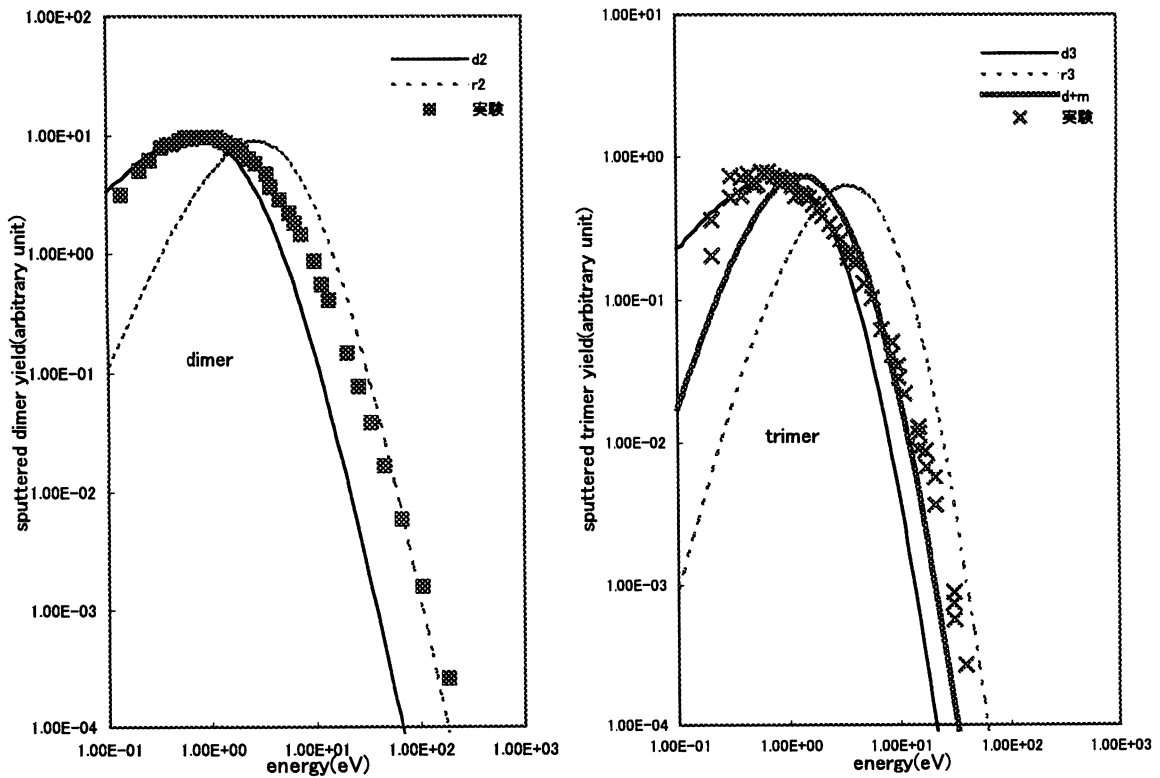


図4 5keVAr<sup>+</sup>→Ag について dimer と trimer の計算結果と実験との比較。

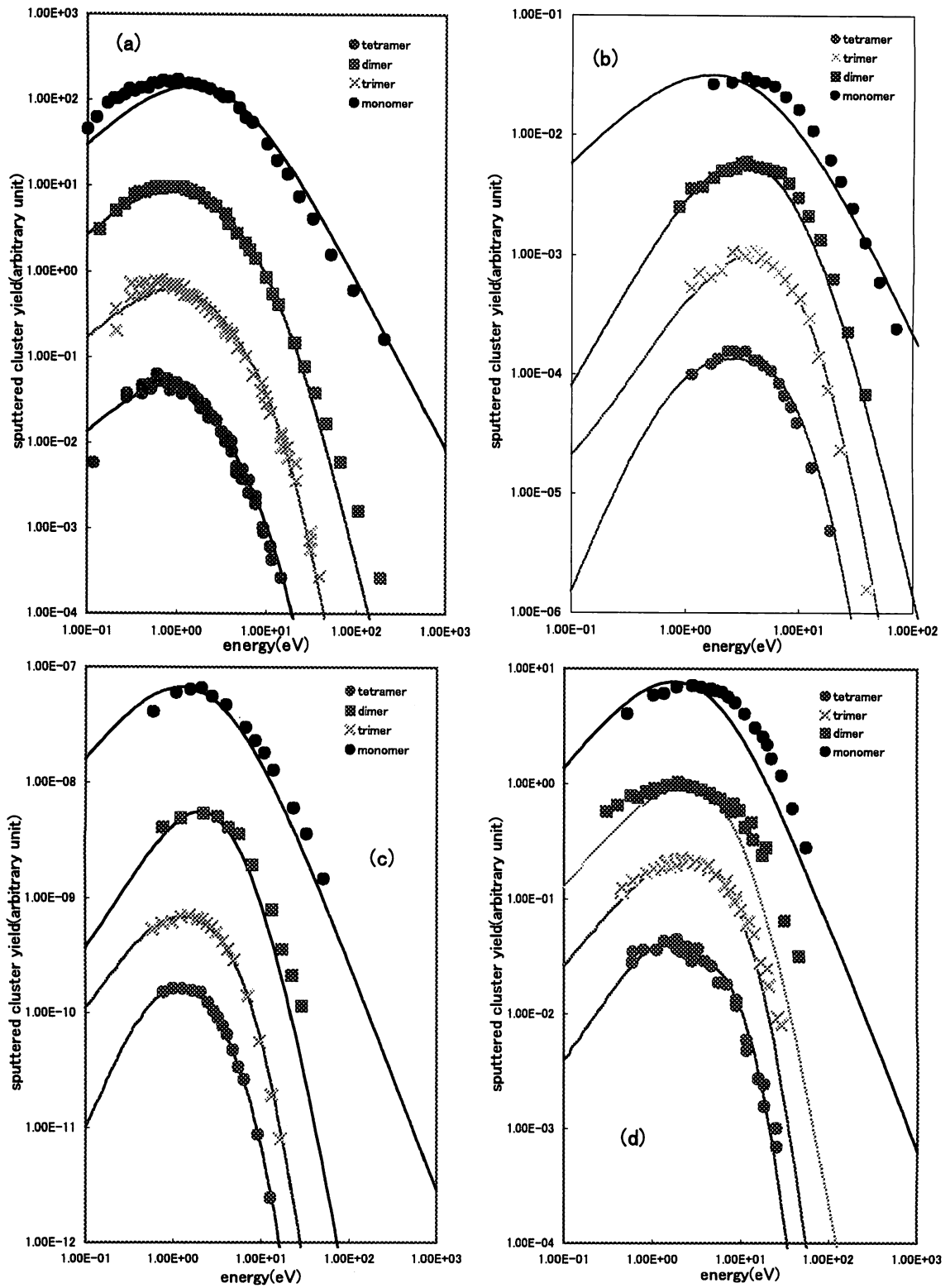


図5 スパッタークラスターのエネルギー分布の実験値と計算値との比較。

a) 5keV Ar<sup>+</sup>→Ag、b) 3.9keV Ar<sup>+</sup>→Al、c) 4keV Ar<sup>+</sup>→In、d) 3.75keV Ar<sup>+</sup>→Cu