

电推进羽流粒子束溅射的蒙特卡罗模拟*

商圣飞^{1,2}, 姜利祥^{1,2}, 李涛¹, 向树红¹

(1. 北京卫星环境工程研究所, 北京 100094;
2. 北京卫星环境工程研究所 可靠性与环境工程技术重点实验室, 北京 100094)

摘要: 为了研究电推进羽流对推力器及航天器造成的溅射腐蚀作用, 采用蒙特卡罗方法对羽流等离子体对材料的溅射进行模拟, 研究了溅射的级联碰撞机理, 并开展了Xe离子正入射、斜入射Cu材料的溅射率、溅射产物的能量分布以及空间角分布的研究。结果显示, 蒙特卡罗方法对溅射率和能量分布的计算结果与试验结果吻合较好, 误差<30%, 但是斜入射溅射率和方向分布吻合较差, 最大误差>50%。认为影响溅射的主要因素为晶体的结构、二体碰撞的基本假设以及入射粒子的注入累积效应。

关键词: 推力器; 电推进; 羽流; 溅射; 碰撞; 蒙特卡罗模拟; 粒子束

中图分类号: O484.1 文献标识码: A 文章编号: 1001-4055 (2022) 05-200482-09

DOI: 10.13675/j.cnki.tjjs.200482

Monte Carlo Simulation of Electric Propulsion Plume Particle Beam Sputtering

SHANG Sheng-fei^{1,2}, JIANG Li-xiang^{1,2}, LI Tao¹, XIANG Shu-hong¹

(1. Beijing Institute of Spacecraft Environment Engineering, Beijing 100094, China;
2. National key Laboratory of Science and Technology on Reliability and Environmental Engineering, Beijing Institute of Spacecraft Environment Engineering, Beijing 100094, China)

Abstract: To study the sputtering effects of the thrusters and spacecraft caused by electric propulsion plume, the Monte Carlo (MC) method is used to simulate the sputtering of materials by plume plasma. The cascade collision mechanism of sputtering was studied. The sputtering rates of Cu materials under normal and oblique incidence of Xe ions were investigated, and the sputtering rate, the energy distribution and the angle distribution of the sputtering products were studied. The results show that the calculation results of sputtering rate and energy distribution by MC method are in good agreement with the experimental results, but the oblique incidence sputtering rate and the angle distribution are in poor agreement. It is considered that the main factors affecting sputtering are crystal structure, the basic assumption of two body collision and the injection accumulation effect of incident particles.

Key words: Thruster; Electric propulsion; Plume; Sputtering; Impact; Monte Carlo simulation; Particle beam

1 引言

溅射是具有一定能量的粒子轰击固体靶材表

面,使靶材表面原子或分子获得入射粒子所携带的部分能量从表面射出现象^[1],是离子和靶材原子之间的相互作用。一个离子穿进靶材中,在靶材内的

* 收稿日期: 2020-07-01; 修订日期: 2020-10-21。

通讯作者: 商圣飞, 博士, 高级工程师, 研究领域为电推进羽流效应、等离子体溅射、高超声速气膜冷却。

引用格式: 商圣飞, 姜利祥, 李涛, 等. 电推进羽流粒子束溅射的蒙特卡罗模拟[J]. 推进技术, 2022, 43(5):200482. (SHANG Sheng-fei, JIANG Li-xiang, LI Tao, et al. Monte Carlo Simulation of Electric Propulsion Plume Particle Beam Sputtering[J]. *Journal of Propulsion Technology*, 2022, 43(5):200482.)

运动过程中与靶材原子相互作用,通过一定方式将能量转移给靶材原子,使靶材原子溅射。因此,溅射过程涉及离子在靶材中运动时入射离子的能量损失以及转移给靶材原子的能量^[2]。在溅射过程中,入射离子的能量损失主要包括电子能量损失和核能量损失。一般在高能入射离子与靶材原子的相互作用中,电子能量损失占主要部分,而低能入射离子与靶材原子相互作用主要考虑核能量损失。

因为实验研究的成本较高,所以采用模型分析和数值仿真方法对溅射效应进行研究。溅射的模拟计算主要有3种方法:(1)模型分析法,最早由 Sigmund^[3-4]提出,Yamamura等^[5],Eckstein^[6],Zhang等^[7]在其基础上发展了半经验的模型,Shang等^[8]完善了Zhang的模型。(2)蒙特卡罗模拟^[9-10](Monte Carlo,简称MC)法,崔福斋等^[11]应用MC方法研究了物理的溅射过程,徐廷伟^[12]、李阳平等^[13]用MC方法对粒子在靶内的散射做了模拟。(3)分子动力学(Molecular dynamics,简称MD)法^[14-15],Muramoto等^[16-17]用MD方法研究了不同平面粗糙度及低能时Xe对C的溅射,Kubota^[18]研究了25~200eV下Ar对Si的溅射,颜超等^[19-20]采用MD方法对贵金属的溅射做了研究。模型分析方法就是通过解线性化的 Boltzmann 传输方程,分析推导出计算溅射产额的半经验性质的理论公式。该方法最初由 Peter Sigmund 根据迁移理论给出了用分析法处理溅射现象的理论描述,并通过解线性化的 Boltzmann 传输方程分析得到了计算单质的溅射率公式。这个公式适用于不同入射离子在不同能量下轰击各种单质靶材的溅射率^[21]。Sigmund 提出的计算溅射的方法对于高能溅射结果较好,但是对于低能溅射误差较大。而后,在其基础上 Eckstein^[6],Yamamura等^[22]发展了半经验公式,使得溅射对单质的溅射符合较好。但是经验半经验方法不能适用复杂材料的计算,并且其参数依赖大量的实验及经验才能得到。

分子层面的MC,MD模拟方法似乎可以从溅射机理出发得到更为合理的结果,并且适用范围更广。分子动力学模拟方法考虑了全部粒子的运动以及粒子相互之间的影响,相对比较准确。然而,正是由于分子动力学模拟需要跟踪每一个粒子的运动过程,所以计算量很大,需要占用很大的内存,花费很多的时间。而蒙特卡罗方法用大量的模拟粒子来代替真实粒子,模拟粒子数目足够多,能充分代表真实粒子的分布。一个模拟粒子代表大量真实粒子,所以蒙特卡罗方法的计算速度很快,一般比分子动力学模

拟的计算速度快几个数量级^[23]。

目前的MC方法主要有两种,一种是基于二体碰撞的基本级联碰撞方法^[24-25],另一种是基于散射截面的方法^[26-27]。第一种方法物理机理过程比较清楚,模拟粒子的每步运动,但是计算精度较差,主要是二体碰撞假设不成立导致的(原子间距 d 与分子自由程 δ 不满足 $\delta \gg d$)^[8]。第二种是散射截面法,该方法可以通过碰撞截面的试验校验迭代,所以精度相对较高一点,但是对于重离子(入射粒子质量 M_2 大于靶材料质量 M_1)会有速度双值函数的问题,比较适合轻粒子的作用过程^[27]。前期对于MC方法的研究多见于一些参数的调节和优化^[28],例如文献[29]中就对表面原子采用“粗糙度”的处理方法实现粒子被动斜入射,增加计算结果的准确度。后期则常见于应用前期的软件具体计算材料的溅射效应^[21,30],多为应用研究,基础研究比较少。

本文主要针对电推进(主要是离子推力器)羽流Xe粒子对材料的溅射效应开展研究,属于重粒子束对材料作用的范畴。不同粒子对材料的溅射实验研究前人已经做了相当多的工作,文献[31]中给出了不同入射粒子对不同材料的溅射率结果。而对粒子溅射的蒙特卡罗研究较少,可查的多见于轻粒子(H, He)对材料的溅射研究。本文主要采用基本二体碰撞蒙特卡罗方法研究Xe离子对Cu的溅射,改进了单步粒子运动步长和束缚能的计算,结果为同行提供参考。

2 溅射的蒙特卡罗方法介绍

2.1 基本假设

一个离子穿进靶材中,在靶材内的运动过程中与靶材原子相互作用,通过级联碰撞过程将能量转移给靶材原子,使靶材原子溅射。问题的关键就是离子到达材料内部级联碰撞过程,为了方便处理,模拟过程采用如下基本假设^[27]:

(1)靶原子晶格无序;

(2)忽略相邻原子的影响,原子之间的碰撞为二体碰撞;

(3)原子之间的作用势在高能时为Tomas-Fermi势,低能为Born-Mayer势;

(4)电子阻滞与速度成正比;

(5)到达靶材表面的原子动能要足以克服表面势垒才能溢出。

2.2 溅射的蒙特卡罗方法

在溅射过程中,入射离子的能量损失主要包括

电子能量损失和核能量损失。其中电子能量损失主要是电子碰撞或与靶原子中的电子相互作用产生的能量损失,一般电子能量损失不影响原子的运动方向。而核能量损失则主要指原子碰撞,入射粒子发生偏转,而靶原子受到轰击而产生的晶格移位。计算机蒙特卡罗模拟的步骤可以参考图1进行。求出离子运动一段距离的电子阻滞能量损失并确定碰撞的角度参数,入射粒子和靶粒子经过碰撞后能量如果大于束缚能 E_c ,则继续运动参与级联碰撞,如果小于束缚能,则停止在靶材内。对于离开靶材的粒子做标记,如果是靶材粒子则统计成溅射粒子。

2.2.1 电子能量损失

离子在靶中前进一段距离 s ,在此过程受到电子的遏止的能量 E_e 为^[26]

$$E_e = \int_0^s \left(-\frac{dE}{dx}\right) dx \quad (1)$$

$$\frac{dE}{dx} = -KE^{1/2} \quad (2)$$

$$K = \frac{0.0793Z_1^{2/3}Z_2^{1/2}(M_1 + M_2)^{3/2}}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/4}M_1^{3/2}M_2^{1/2}} \quad (3)$$

式中 E 为入射粒子的能量, Z_1, Z_2 分别为入射粒子和靶原子的原子序数, M_1 和 M_2 分别为入射粒子和靶原子的原子量。对于单步距离 s ,本文采用分段处理方式,第一次碰撞发生在材料表面第一层原子厚

度内,如图2所示。当粒子进入材料内部后则采用随机数和平均自由程 L ^[26]确定,即

$$s = -L \ln R \quad (4)$$

$$L = N^{-1/3}$$

式中 R 为碰撞步长调节参数,其计算方法为

$$R = \begin{cases} 0.36 + (1 - 0.36)R_1 & \text{The first collision} \\ R_1 & \text{Non first collision} \end{cases} \quad (5)$$

式中,随机数 $R_i \in [0, 1]$, N 为单位体积的靶原子数,其值为 $N = \rho N_A / M_2$,这里 ρ 为靶材密度, N_A 为阿伏伽德罗常数。由于在非一次碰撞时 $-\ln R_1$ 在 $R_1 \rightarrow 0$ 时会出现无穷的情况,因此,本文在计算时人为的设置 $-\ln R_1$ 的取值截断区间为 $[0, 3]$,即单次步长应小于3个平均自由程。

2.2.2 核能量损失

核能量损失是由于入射粒子与靶原子的二体碰撞产生的能量迁移效应产生的。二体碰撞的粒子散射示意图如图3所示,入射粒子经过与靶粒子相互作用发生散射,散射角为 θ ,靶粒子受到入射粒子的轰击反冲角为 φ ,二粒子在质心系统的散射角为 θ_c 。则经过碰撞,靶粒子得到的能量 E_T 为

$$E_T = \frac{4A}{(1 + A)^2} E_0 \sin^2 \frac{\theta_c}{2} \quad (6)$$

式中 $A = M_2 / M_1$ 为靶粒子和入射粒子的质量比, E_0 为入射粒子的能量, θ_c 为图3中的二粒子在质心系

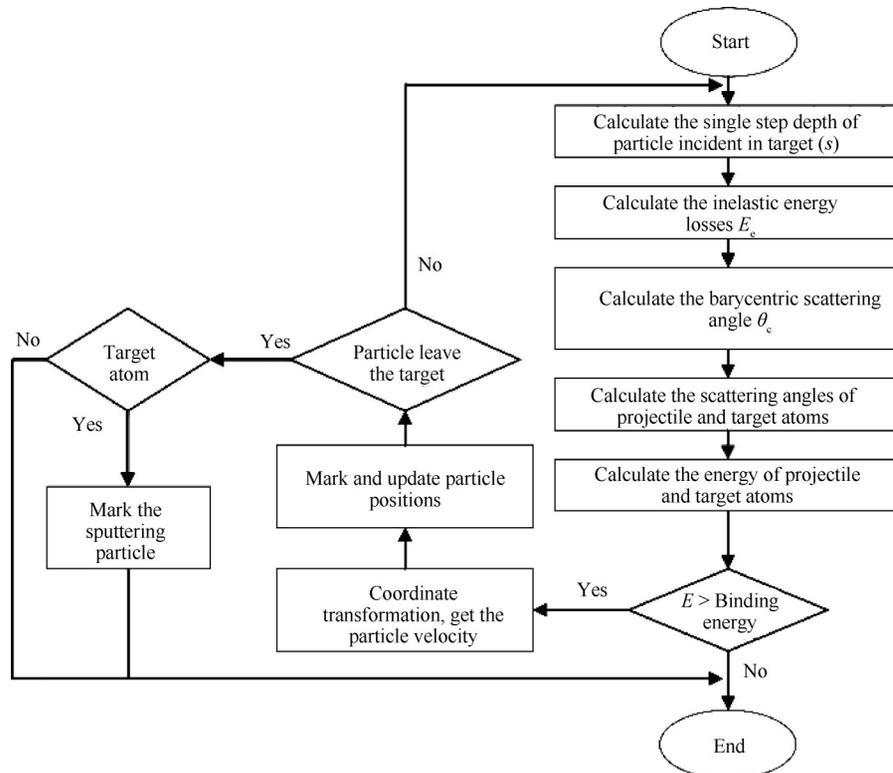


Fig. 1 Flow diagram of the Monte Carlo simulation

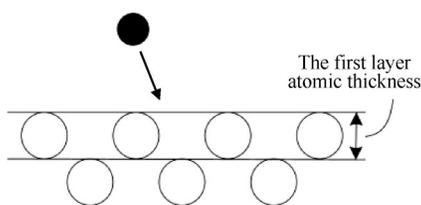


Fig. 2 The first collision occurred in the first atomic thickness layer

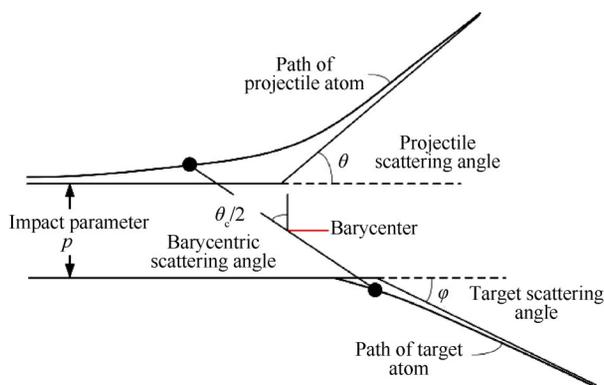


Fig. 3 Scattering diagram of two body collision

统的散射角。

二体碰撞系统的关键问题就是求得质心的散射角,质心散射角 θ_c 可用下式计算^[24]

$$\theta_c = \pi - 2p \int_{r_0}^{\infty} \frac{dr}{r^2 \sqrt{1 - U(r)/E_c - p^2/r^2}} \quad (7)$$

式中 p 为图 3 所示的瞄准距离,其可以用平均自由程和随机数确定,可取 $p = \frac{\sqrt{2}}{2} R_2 L$, R_2 为随机数, r 为积分变量, $U(r)$ 为粒子之间的作用势。积分下限 r_0 为如下方程的根,即

$$1 - \frac{U(r_0)}{E_c} - \frac{p^2}{r_0^2} = 0 \quad (8)$$

$$E_c = AE_0/(1 + A) \quad (9)$$

式中 E_c 为相对动能,粒子之间的作用势 $U(r)$ 在 高能区为 Tomas-Fermi 势,低能区为 Born-Mayer 势。

(1) Tomas-Fermi 势

两个相互作用的原子之间的 Tomas-Fermi 势可用如下方程表示^[24]

$$U(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \phi(x) \quad (10)$$

$$x = r/a_L$$

式中 $Z_1 e$, $Z_2 e$ 分别为入射粒子和靶粒子的核外电子电量, r 为原子之间距离, $\phi(x)$ 为屏蔽函数,可以用 Moliere 近似给出

$$\phi(x) = 0.35e^{-0.3x} + 0.55e^{-1.2x} + 0.1e^{-6x} \quad (11)$$

此时 a_L 为 Lindhard 屏蔽长度,有

$$a_L = 0.8853a_0 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{-1/2}, a_0 = 0.529 \quad (12)$$

式中 a_0 为波尔半径,单位为 \AA 。

(2) Born-Mayer 势

原子之间的作用势 $U(r)$ 的 Born-Mayer 势可用

Anderson 等^[32]建议的表达式

$$U(r) = A \exp(-r/B) \quad (13)$$

$$A = 52(Z_1 Z_2)^{1/2}$$

$$B = 0.219$$

式中 A 的单位为 eV, B 单位为 \AA 。Born-Mayer 势在 $r \rightarrow 0$ 时相互作用势仍然是有限的。

根据以上公式(7)至公式(13)可以求得质心散射角 θ_c ,则入射粒子的散射角 θ 及靶粒子的反冲角 φ 可以求得

$$\tan \theta = \sin \theta_c / (A^{-1} + \cos \theta_c) \quad (14)$$

$$\tan \varphi = \sin \theta_c / (1 - \cos \theta_c)$$

根据公式计算得到靶粒子的能量,则入射粒子的能量为

$$E_1 = E_0 - E_T \quad (15)$$

2.2.3 粒子运动速度矢量的确定

(1) 实验室坐标系速度

得到入射粒子和靶粒子的能量,则实验室坐标系下入射粒子在 x, y, z 三个方向的分量为

$$\begin{cases} v_{1x} = \sqrt{\frac{2E_1}{m_1}} \sin \theta \cos \phi \\ v_{1y} = \sqrt{\frac{2E_1}{m_1}} \sin \theta \sin \phi \\ v_{1z} = \sqrt{\frac{2E_1}{m_1}} \cos \theta \end{cases} \quad (16)$$

其中 m_1 为入射粒子的实际质量; ϕ 为方位角,其在 $[0, 2\pi]$ 上均匀分布,可以用随机数得到: $\phi = 2\pi R_3$,这里 R_3 为随机数。相应的靶原子的实验室坐标系下 x, y, z 三个方向的分量为

$$\begin{cases} v_{2x} = \sqrt{\frac{2T}{m_1}} \sin \varphi \cos(\pi + \phi) \\ v_{2y} = \sqrt{\frac{2T}{m_1}} \sin \varphi \sin(\pi + \phi) \\ v_{2z} = \sqrt{\frac{2T}{m_1}} \cos \varphi \end{cases} \quad (17)$$

(2) 实际物理坐标系速度

得到实验室坐标系的速度后,需要坐标转换为实际的物理坐标系,本文参考坐标为 z 轴方向,则有实验室坐标系(参考方向为入射粒子的速度方向)转

化为实际坐标的步骤需要两次坐标轴旋转。此时实际物理速度和实验室速度的关系为

$$\begin{bmatrix} v_x \\ v_y \\ v_z \end{bmatrix} = \mathbf{C}^{-1} \begin{bmatrix} v_{1x} \\ v_{1y} \\ v_{1z} \end{bmatrix} \quad (18)$$

式中 \mathbf{C} 为旋转矩阵,其表达式为

$$\mathbf{C} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \alpha & \sin \alpha \\ 0 & -\sin \alpha & \cos \alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \beta & 0 & -\sin \beta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \beta & 0 & \cos \beta \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \beta & 0 & -\sin \beta \\ \sin \alpha \sin \beta & \cos \alpha & \sin \alpha \cos \beta \\ \cos \alpha \sin \beta & -\sin \alpha & \cos \alpha \cos \beta \end{bmatrix} \quad (19)$$

式中 α 为入射粒子方向向量绕 x 轴旋转角, β 为入射粒子方向向量绕 x 轴旋转后得到的新的向量再绕 y 轴旋转的角度,其值分别为

$$\begin{cases} \alpha = \arccos \frac{v_{0z}}{\sqrt{v_{0y}^2 + v_{0z}^2}} \\ \beta = \arcsin \frac{v_{0x}}{\sqrt{v_{0x}^2 + v_{0y}^2 + v_{0z}^2}} \end{cases} \quad (20)$$

式中 v_{0x}, v_{0y}, v_{0z} 为入射粒子在 x, y, z 三个方向上的速度分量,至此,根据上述公式可以得到碰撞后的粒子运动的速度信息,进而迭代计算入射粒子在靶材料中的级联碰撞过程,直至粒子能量小于原子束缚能。

2.2.4 材料束缚能

粒子在材料内部级联碰撞时,靶原子受到周围原子的束缚不会轻易的运动,只有该原子得到的能量大于周围原子的束缚能 E_c 时,其才会离开原来的位置运动。一般该束缚能采用结合能 E_d 代替。本文认为材料内部的束缚能用结合能代替,而表面的原子应该用表面升华能 U_s 代替^[8]。根据前期的研究结果,溅射的产生主要是表面的几层原子的溅射,一般表面的原子溅射应满足^[8]

$$T = \gamma E \xi \left(\frac{M_2}{M_1} \right) \varphi \geq U_s \quad (21)$$

也就是说表面原子溅射的条件为表面原子得到的能量大于表面升华能才能溅射。由此本文的束缚能为

$$E_c = \begin{cases} U_s & \text{Surface atom} \\ E_d & \text{Non surface atom} \end{cases} \quad (22)$$

对于典型材料如 Cu 的结合能 $E_d \approx 25\text{eV}$, 表面升华能 $U_s \approx 3.49\text{eV}$ 。

3 电推进羽流溅射的蒙特卡罗模拟

电推进一般用 Xe 为工作工质,其羽流主要成分为 Xe 离子,因此选取 Xe 粒子为入射粒子,对目标 Cu 元素的溅射开展研究。

3.1 Xe 离子在靶内的级联碰撞过程

选取 1000eV 的 Xe 离子分别以 0° 和 60° 入射角轰击 Cu 表面,计算得到的单个 Xe 离子和 100 个 Xe 粒子在 Cu 靶内的级联碰撞过程分别如图 4 和图 5 所示。其中图 4 和图 5(a) 为单个 Xe 粒子的级联碰撞过程,其中黑色粗线为入射的 Xe 粒子,彩色虚线为级联碰撞产生的反冲粒子。图 5(b) 为 100 个入射粒子的轨迹,图 5(c) 为考虑级联碰撞的 100 个入射粒子的轨迹,其中黑色粗线为入射粒子,蓝色线为反冲的靶原子。由图可见, Xe 粒子在 Cu 靶会级联碰撞,导致数十个反冲粒子的运动,反冲的 Cu 粒子会接连地级联碰撞,直至能量小于束缚能才停止。

3.2 Xe 离子对 Cu 的溅射率

3.2.1 Xe 离子对 Cu 正入射溅射率

选取 100, 200, 500, 1000, 2000eV 5 个能量,计算 Xe 离子对 Cu 靶材正溅射的溅射率,计算结果如图 6 所示,图中的实验数据取自参考文献[33-40]。由图可见,计算的溅射结果和试验结果吻合的还是比较好的,但是总体稍微偏低一些。认为误差主要是两

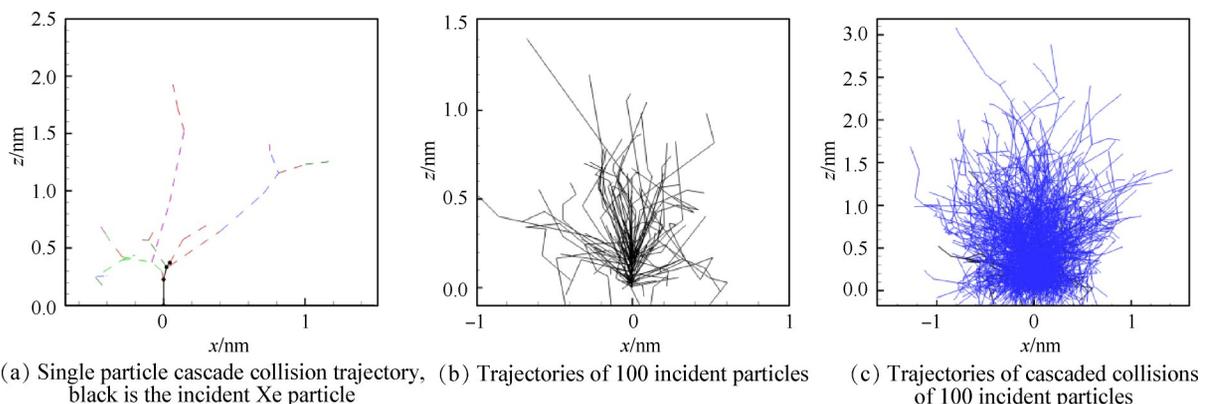


Fig. 4 Cascade collision process of 10^3eV Xe ion incident at 0° in Cu target

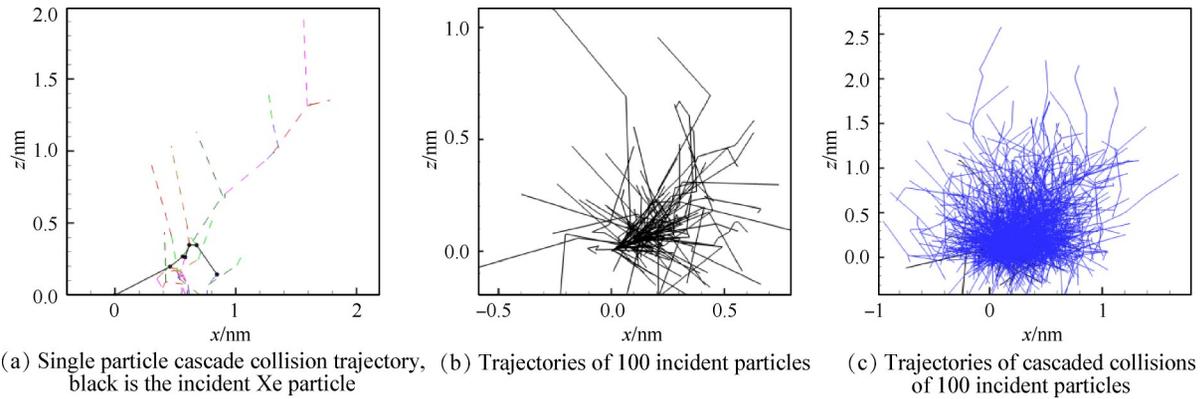


Fig. 5 Cascade collision process of 10^3eV Xe ion incident at 60° in Cu target

点,第一,计算的正入射是理想的平面,靶材表面原子都是水平的,入射角是单一的 0° ,而实际的实验材料具有一定的粗糙度。因此,表面的原子与轰击的Xe原子之间具有一定的不确定夹角,当斜入射时,溅射率要大于正入射的溅射率,所以实际的实验结果比计算的结果偏大。(2)实际溅射过程中Xe粒子会注入Cu靶材内部,导致Cu靶材的结合能发生变化,而计算时并没有考虑Xe粒子的注入累积效应。

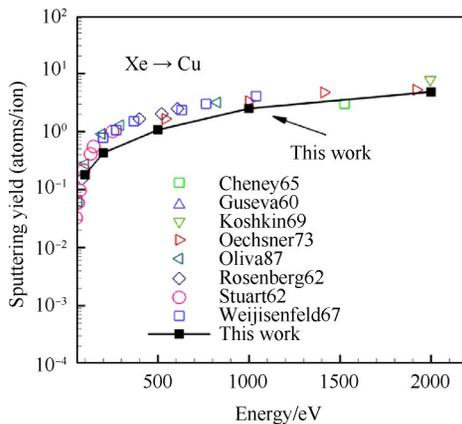


Fig. 6 Sputtering yield of Xe ion incident on Cu target

3.2.2 Xe离子对Cu的斜入射溅射率

鉴于文献[41]中给出了 $1.05 \times 10^3\text{eV}$ 的Xe对Cu的斜溅射的数据,本文选取 $1.05 \times 10^3\text{eV}$ 能量的Xe离子以 $0^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 80^\circ$ 角度入射Cu靶材,计算其溅射率。计算结果以正入射的结果为基础,经过归一化后的结果与试验结果对比如图7所示。由图可见,在一定角度范围内随着入射角度的增加溅射率逐渐增大而后降低,本文的计算结果相对试验结果偏低。原因可能是Xe粒子注入的累积效应导致的表面原子更容易溅射,当斜入射时Xe原子传递给表面原子的能量更容易使得表面的Cu原子发生溅射。

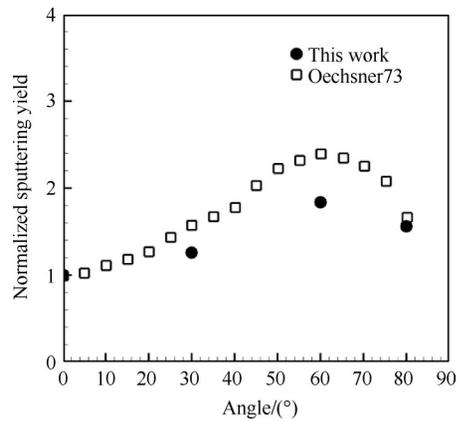


Fig. 7 Sputtering yield of Xe ion incident on Cu target at oblique incidence

3.2.3 溅射原子的能量分布

对于电推进羽流而言,其等离子体的能量范围处于低能溅射领域,然而Xe对Cu的溅射产物的能量分布试验较少,本文用可查的Ar对Cu的溅射的原子能量分布的实验结果^[8,41]校验程序。计算得到的400eV的Ar正入射Cu靶溅射出的Cu原子的能量分布计算结果与试验结果的对比如图8所示。由图可知计算结果与试验结果吻合比较好,由于受计算资源的限制,计算结果“不光滑”。图中统计的结果为1000个入射粒子溅射的结果,如果提高统计粒子的个数,结果会更光滑。

3.2.4 溅射原子的角分布

为了校验溅射产物的空间角分布的结果,选取文献[42]中的500eV的Xe对Ta的轰击实验数据作为对比。计算的溅射原子的角分布和实验数据的对比如图9所示。由图可知,计算得到的规律和试验结果基本符合,都是Under-cos分布,但是计算结果相对于实验结果峰值更突出,在 $0^\circ \sim 30^\circ$ 的粒子数明显比实验结果偏低。主要有两个原因:(1)实验的结果是采用溅射-沉积法测量的,其结果受到离子束束斑及

二次溅射再沉积的影响,其结果具有积分平均特性,表现为结果的对比度峰-谷值被削弱,因此计算结果相对实验结果的峰值不突出。(2)计算本身更倾向于理想的情况,MC方法的基本假设是靶原子无序排列,而真实情况靶材以金属晶体形式存在,计算过程存在原理上的简化近似,没有考虑更深一步的机理问题,计算存在一定的误差,而且这种误差增大样本也不能消除。

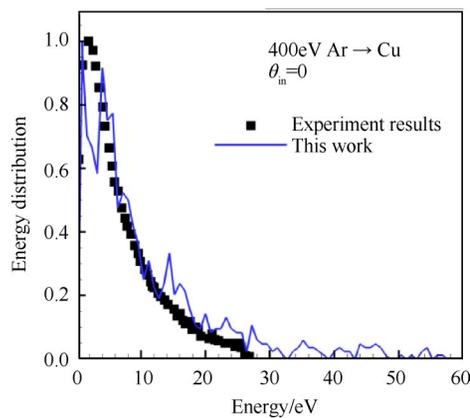


Fig. 8 Energy distribution of sputtering products from low energy Ar ion bombardment on Cu target

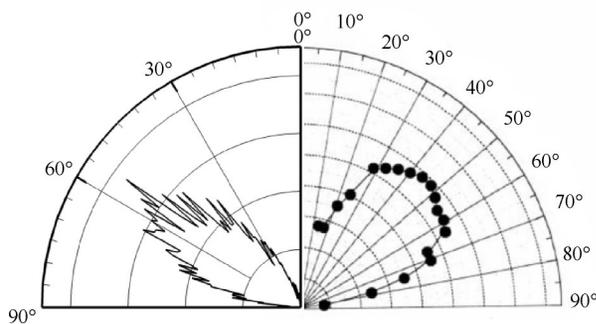


Fig. 9 Angular distribution of 500eV Xe ion bombarding on Ta target

4 讨论

本文对MC方法计算离子对材料溅射的溅射率、溅射产物的能量分布、溅射产物的角分布开展了研究。MC方法是目前计算计算溅射的最主要的方法,其从分子层面模拟原子的级联碰撞过程,相对于经验、半经验模型方法适用性比加强,同时相对于MD方法计算资源要求低、计算速度快。但MC方法计算中也有一定的问题。

4.1 靶原子无序假设问题

MC方法的基本假设为靶材料的原子是无序排列的,也就是说计算时粒子入射靶材的单步长度是随机

的,目前采用上文的公式计算,但是该公式在计算时采用随机数与平均自由程的乘积方式给出,而 $-\ln R$, $R \in [0, 1]$ 的方式会出现无穷大的问题。在 $-\ln R$ 截断时存在主观因素,例如本文认为 $-\ln R$ 应 < 3 ,即假设粒子在前进3个原子占空长度后必定碰撞,该方法在处理重离子的注入碰撞时是合理的,但是在处理轻粒子(主要是质子)注入材料内的时候可能会出现透穿效应,此时,其单步长度可能会几个甚至十几个原子长度而不发生碰撞。原子的排列实际上是有规律的,一般金属都是以金属晶体存在方式,在较高能量(一般大于 10^3eV)轰击作用下,靶晶体会受到离子注入的影响改变其晶体结构,原子更趋于无序,MC方法更为准确,而对于较低能量的碰撞,晶体的有序影响就会显现,MC方法误差就会比较大。

4.2 二体碰撞问题

目前处理粒子之间的碰撞还是采用二体碰撞处理的。二体碰撞成立的前提是平均分子间隙要远大于分子直径时才成立。然而在固体材料中,以金属为例,金属的原子间距等于金属直径,其并不满足二体碰撞的基本条件。然而多体碰撞问题处理非常复杂,目前还没有正式应用的先例。因此二体碰撞一直被作为基本假设应用在MC方法的计算中。

与靶无序的假设类似,在高速区,由于来流粒子的轰击,在碰撞时靶材更趋近于无序和混乱的状态,因此对于较大统计数量的样本MC方法还能使用,但是对于低能(特别是接近阈值)的溅射MC方法计算误差比较大,这主要是因为低能溅射时溅射率本身比较低,溅射一般发生于单次或二次碰撞以内,此时晶体结构和碰撞能量损失过程对计算结果的影响就非常突出。这也是研究者将低能的溅射和试验结果相差比较大的原因归结到二体碰撞假设不成立上面的原因。

4.3 离子注入的累积效应

真实情况下,在离子轰击靶材时,会有大量的高能离子注入到材料内部^[43],导致材料的晶体结构发生变化,出现空缺,同时离子会停留在材料内。这对溅射有重要的影响,一方面入射粒子会和原来嵌入在材料内部的积累粒子碰撞,此时的碰撞为同素碰撞,能量传递效率更高,另一方面,累积的入射粒子影响靶原子的束缚能,这对级联碰撞过程的能量损失有直接的影响,因而对溅射有非常大的影响。本文不讨论粒子注入的累积效应对溅射的具体影响,在另一项研究中将对其做专门的分析。

5 结 论

通过本文研究,得到如下结论:

(1)MC方法对溅射的计算整体可行,溅射率、溅射产物的能量分布与实验结果吻合较好,误差在30%以内。

(2)斜入射的溅射率和产物的方向分布计算误差较大,最大误差超过50%。

(3)MC方法的计算误差主要受靶材的晶体无序假设和二体碰撞假设的影响。在MC方法计算溅射时,研究者应考虑离子注入的累计效应的影响。

参考文献

- [1] 陈 明. 磁控溅射过程中溅射产额及靶材刻蚀的模拟计算研究[D]. 合肥: 合肥工业大学, 2007.
- [2] 王广厚. 粒子同固体相互作用物理学(上册)[M]. 北京: 科学出版社, 1988.
- [3] Sigmund P. Mechanisms and Theory of Physical Sputtering by Particle Impact[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 1987, 27(1): 1-20.
- [4] Sigmund P. Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets[J]. *Physical Review*, 1969, 184(2): 383-416.
- [5] Yamamura Y, Tawara H. Energy Dependence of Ion-Induced Sputtering Yields from Monatomic Solids at Normal Incidence [J]. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 1996, 62(2): 149-253.
- [6] Eckstein W. Sputtering Yields[J]. *Vacuum*, 2008, 82: 930-934.
- [7] Zhang Lai, Zhang Zhu Lin. Anisotropic Energy Distribution of Sputtered Atoms Induced by Low Energy Heavy Ion Bombardment[J]. *Radiation Effects & Defects in Solids*, 2005, 160(8): 337-347.
- [8] Shang Shengfei, Cai Guobiao, Zhu Dingqiang, et al. An Empirical Formula of Ez in Modified Sigmund's Formula under the Low Energy Heavy Ions Bombardment[J]. *Vacuum*, 2016, 125: 192-204.
- [9] 沈 青. 稀薄气体动力学[M]. 北京: 国防工业出版社, 2003.
- [10] Biersack J P, Haggmark L G. A Monte Carlo Computer Program for the Transport of Energetic Ions in Amorphous Targets [J]. *Nuclear Instruments and Methods*, 1980, 174(1): 257-269.
- [11] 崔福斋, 李文治, 李恒德, 等. 物理溅射的 Monte Carlo 模拟[J]. 计算物理, 1988, 5(2): 235-240.
- [12] 徐廷伟. 轻离子轰击下溅射和反向散射的蒙特卡罗模拟[J]. 真空科学与技术, 1988, 8(6): 369-374.
- [13] 李阳平, 刘正堂, 耿东生. 靶材溅射及溅射原子输运的计算机模拟[J]. 功能材料, 2003, 34(5): 603-606.
- [14] Urbassek M H. Molecular-Dynamics Simulation of Sputtering [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 1997, 122(3): 427-441.
- [15] Salonen E, Nordlund K, Keinonen J, et al. Molecular Dynamics Studies of the Sputtering of Divertor Materials [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2003, 313: 404-407.
- [16] Muramoto T, Kenmotsu T. MD Simulation of Sputtering on Surface Index and Surface Roughness Dependence[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2007, 255(1): 214-218.
- [17] Muramoto T, Hyakutake T. Molecular Dynamics Study on Low-Energy Sputtering of Carbon Material by Xe Ion Bombardment [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2013, 303: 152-155.
- [18] Kubota N A, Economou D J, Plimpton S J. Molecular Dynamics Simulations of Low-Energy (25-200eV) Argon Ion Interactions with Silicon Surfaces: Sputter Yields and Product Formation Pathways[J]. *Journal of Applied Physics*, 1998, 83(8): 4055-4063.
- [19] 颜 超. 贵金属表面低能沉积的分子动力学模拟[D]. 大连: 大连理工大学, 2008.
- [20] 颜 超, 吕海峰, 张 超, 等. Pt(111)表面低能溅射现象的分子动力学模拟[J]. 物理学报, 2006, 55(3): 1351-1357.
- [21] 张 莹. 靶材溅射的蒙特卡罗模拟[D]. 太原: 太原理工大学, 2009.
- [22] Yamamura Y, Tawara H. Energy Dependence of Ion-Induced Sputtering Yields from Monatomic Solids at Normal Incidence [J]. *Atomic Data and Nuclear Tables*, 1996, 62: 149-253.
- [23] 金石声. 离子束轰击 Si 及 SiC 的计算机模拟[D]. 贵阳: 贵州大学, 2007.
- [24] Robinson Mark T, Torrens Ian M. Computer Simulation of Atomic-Displacement Cascades in Solids in the Binary-Collision Approximation [J]. *Physical Review, B, Condensed Matter*, 1974, 9: 5008-5024.
- [25] Möller W, Eckstein W, Biersack J P. Tridyn-Binary Collision Simulation of Atomic Collisions and Dynamic Composition Changes in Solids[J]. *Computer Physics Communications*, 1988, 51(3): 355-368.
- [26] 清 水. 溅射的计算机模拟[J]. 真空, 1981(6): 68-74.
- [27] 陈长琦, 朱 武, 方应翠, 等. 离子注入和溅射率的

- 蒙特卡罗模拟计算[J]. 合肥工业大学学报: 自然科学版, 2001, 24(6): 1105-1110.
- [28] Haggmark L G, Wilson W D. Monte Carlo Studies of Sputtering[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 1978, 76: 149-155.
- [29] Biersack J P, Eckstein W. Sputtering Studies with the Monte Carlo Program TRIM.SP [J]. *Applied Physics A*, 1984, 34(2): 73-94.
- [30] Yasserli Taha, Kree Reiner. A Monte Carlo Study of Surface Sputtering by Dual and Rotated Ion Beams [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 2010, 268: 2496-2503.
- [31] Behrisch Rainer, Eckstein Wolfgang. Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies [M]. Berlin: Springer, 2007.
- [32] Andersen H H, Sigmund P. Defect Distributions in Channeling Experiments [J]. *Nuclear Instruments & Methods*, 1965, 38: 238-240.
- [33] Cheney Kenneth B, Pitkin Edward T. Sputtering at Acute Incidence [J]. *Journal of Applied Physics*, 1965, 36(11): 3542-3544.
- [34] Guseva M I. The Sputtering Effect of Positive Ions with Energies up to 25keV in a Small Electromagnetic Separator [J]. *Soviet Phys.-Solid State*, 1960, 1(4).
- [35] Koshkin V K, Rysov J A, Shkarban II, et al. On the Cathode Sputtering of Polycrystals [C]. Bucharest: Phenomena in Ionized Gases, Ninth International Conference, 1969.
- [36] Oechsner H. Untersuchungen zur Festkörperzerstäubung bei Schiefwinkligem Ionenbeschuß polykristalliner Metalloberflächen im Energiebereich um 1 keV [J]. *Zeitschrift für Physik*, 1973, 261(1): 37-58.
- [37] Oliva-Florio A, Baragiola R A, Jakas M M, et al. Noble-Gas Ion Sputtering Yield of Gold and Copper: Dependence on the Energy and Angle of Incidence of the Projectiles [J]. *Physical Review B*, 1987, 35(5): 2198-2204.
- [38] Rosenberg D, Wehner G K. Sputtering Yields for Low Energy He⁺, Kr⁺, and Xe⁺ Ion Bombardment [J]. *Journal of Applied Physics*, 1962, 33(5): 1842-1845.
- [39] Stuart R V, Wehner G K. Sputtering Yields at Very Low Bombarding Ion Energies [J]. *Journal of Applied Physics*, 1962, 33(7): 2345-2352.
- [40] Weijnsfeld Cornelis Hubertus. Yield, Energy, and Angular Distributions of Sputtered Atoms [D]. The Netherlands: University of Utrecht, 1967.
- [41] Behrisch Rainer, Eckstein Wolfgang. Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Theshold to MeV Energies [M]. Berlin: Springer, 2007.
- [42] Mantiņieks Maris A, Foster John E, Ray Pradosh K, et al. Low Energy Xenon Ion Sputtering Yield Measurements [C]. Pasadena: The 27th International Electric Propulsion Conference, 2001.
- [43] 庞盼, 欧伊翔, 罗军, 等. 离子注入对聚四氟乙烯覆铜板黏结性能的影响 [J]. 航天器环境工程, 2020, 37(2): 197-202.

(编辑: 史亚红)