

文章编号: 0258-7025(2010)04-1127-05

初始溅射烧蚀粒子总数对其传输中的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, 河北 保定 071002)

摘要 采用蒙特卡罗(Monte Carlo)模拟方法,研究了初始烧蚀粒子总数对其传输中的密度和速度及环境气体密度分布的影响。结果表明,随着烧蚀粒子总数增加,烧蚀粒子高密度峰离开靶的最大距离增大,到距靶最大距离处所用时间,出现先增大后减小的变化,烧蚀 Si 粒子的速度分布随粒子总数增多而变宽,当粒子总数为 1.01×10^{15} 和 1.01×10^{16} 时,出现速度劈裂现象。

关键词 激光技术;密度分布;蒙特卡罗模拟;速度分布;高密度峰

中图分类号 TG156.99;0484 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20103704.1127

Influence of the Total Number of the Ablated Particles on Their Distribution of Density and Velocity

Ding Xuecheng Fu Guangsheng Liang Weihua Chu lizhi Deng Zechao Wang Yinglong

(College of Physics Science and Technology, Hebei University, Baoding, Hebei 071002, China)

Abstract The influence of the total number of Si particles on the spatial density distribution of the particles (Si and He) and the velocity distribution of the Si-particles is investigated with Monte Carlo simulation. The results indicate that the maximum distance of high density peak from the target and the width of velocity distribution increase, and the time of reaching the maximum distance from the target firstly increases and then decreases with the increase of number of Si-particles. The splitting of the velocity is observed at the vicinity of 1.01×10^{15} and 1.01×10^{16} Si-particles.

Key words laser technique; density distribution; Monte Carlo simulation; velocity distribution; high-density peak

1 引 言

脉冲激光烧蚀技术是制备含有纳米硅(Si)晶粒的纳米 Si 薄膜的重要手段之一^[1~5]。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共同决定了所制备的薄膜质量。烧蚀过程将靶面升高到一定温度,使得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。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。烧蚀粒子在一定条件下才能成核,这与该处烧蚀粒子的密度

和动能^[6]有关。烧蚀粒子与环境气体之间的相互作用使得烧蚀粒子能量降低和密度减小^[7],达到气相成核条件。人们采用蒙特卡罗(Monte Carlo)模拟方法^[8,9]、流体力学模型^[10,11]和 ICCD 图像技术^[12~14]等手段,分别从理论和实验两方面对烧蚀粒子在环境气体中的传输过程进行了研究。我们^[15]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。研究结果表明,在激光烧蚀粒子喷出后的极短时间内,等离子体处于近似自由膨胀状态^[16],随后,烧蚀粒子与环境气体发生碰撞并将能量传递给环境气体,当烧蚀

收稿日期: 2009-06-03; **收到修改稿日期**: 2009-06-30

基金项目: 国家自然科学基金(10774036),河北省自然科学基金(E2008000631),河北省教育厅科研计划项目(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课题。

作者简介: 丁学成(1973—),男,博士研究生,主要从事激光与物质相互作用等方面的研究。E-mail: x. c. ding@163. com

导师简介: 王英龙(1965—),男,博士,教授,主要从事激光与物质相互作用等方面的研究。E-mail: hdwangyl@hbu. cn (通信联系人)

粒子能量降低到一定程度时,纳米晶粒开始形成并长大^[4]。尤其是 R. F. Wood 等^[10]从实验上发现了脉冲激光烧蚀等离子体羽辉劈裂现象。

前人采用 Monte Carlo 模拟方法,分别对烧蚀、传输和沉积三个过程进行了理论研究。烧蚀阶段建立了激光参数与初始溅射粒子特性之间的关联,但对初始溅射粒子的特性、初始溅射粒子总数随时间演化的关联很少研究,而它可为定量研究成核机理提供基础。

本文采用 Monte Carlo 模拟方法,He 气为环境气体,研究了脉冲激光烧蚀 Si 靶沉积纳米 Si 薄膜过程中,初始溅射 Si 粒子总数对烧蚀 Si 粒子密度和速度分布的影响。

2 模拟方法

以 He 为环境气体,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 粒子在强脉冲激光峰值电磁场的作用下,已具有大于表面脱出功的动能,以相似于激光电场发散的形式分布在以激光烧蚀斑为底部直径的锥体内,速度近似为麦克斯韦-玻尔兹曼(Maxwell-Boltzmann)分布。由于粒子束发散度的存在,等离子体羽迅速膨胀。膨胀过程中,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 粒子与环境气体分子半径,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

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

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

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

式中 θ 为散射角(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 为方位角(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 分别为碰撞粒子对碰撞前、后的相对速度, \mathbf{c}_m 为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。理论上每次碰撞所用时间为

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

式中 N_m 为此区间内烧蚀粒子的个数, 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

模拟以第一激发电势非常高的 He 为环境气体,环境气压为 1000 Pa,此时,He 粒子密度为 $2.42 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ 。刚离开 Knudsen 层时,烧蚀 Si 粒子的密度为 $1.66 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$,速度为 1760 m/s,单脉冲烧蚀单晶 Si 蒸发的烧蚀粒子总数分别为 1.01×10^{13} , 1.01×10^{14} , 1.01×10^{15} , 1.01×10^{16} 和 1.01×10^{17} ,靶衬间距为 2 cm。

烧蚀 Si 粒子与环境气体分子的碰撞,导致了烧蚀 Si 粒子与环境气体 He 的高密度峰交叠区形成。这一局域烧蚀粒子的特性(如密度和速度)决定了气相成核过程和纳米晶粒的尺寸^[17]。图 1 给出了典型烧蚀粒子总数分别为 1.01×10^{13} , 1.01×10^{15} 和 1.01×10^{17} 时,烧蚀 Si 粒子和环境气体的密度随时间的演化图。当烧蚀粒子总数不变时,在初始极短的一段时间内,烧蚀粒子处于近似自由膨胀状态,随着时间的推移,不断加强的碰撞所形成的烧蚀粒子与环境气体高密度峰,同时向衬底方向移动。随后,烧蚀粒子到达衬底附近,由于在衬底上淀积,其附近粒子大量减少,好像高密度峰被反弹回来。该过程的重复进行,形成高密度峰在硅靶和衬底之间振荡。当时间足够长时,趋于稳定。随着烧蚀 Si 粒子总数的增加,烧蚀粒子的高密度峰离开靶的最大距离增大,到达离靶最大距离处所用时间呈现先增大后减小的趋势,烧蚀 Si 粒子总数为 1.01×10^{15} 时,所用时间最长,大约为 $8.0 \mu\text{s}$ 。当烧蚀粒子总数为 1.01×10^{13} 时,环境气体的密度始终远大于烧蚀粒子的密度;当烧蚀粒子总数为 1.01×10^{15} ,并且烧蚀粒子高密度峰到达距靶最大距离处时,环境气体的密度和烧蚀粒子的密度接近;当烧蚀粒子总数为 1.01×10^{17} 时,环境气体的密度始终远小于烧蚀粒子的密度。图 2 给出了烧蚀 Si 粒子的高密度峰的位置随时间的演化图。从图中可以看出,随着烧蚀粒子总数的增加,烧蚀粒子高密度峰离开靶的最大

距离增大,所用时间呈现先增大后减小的趋势。

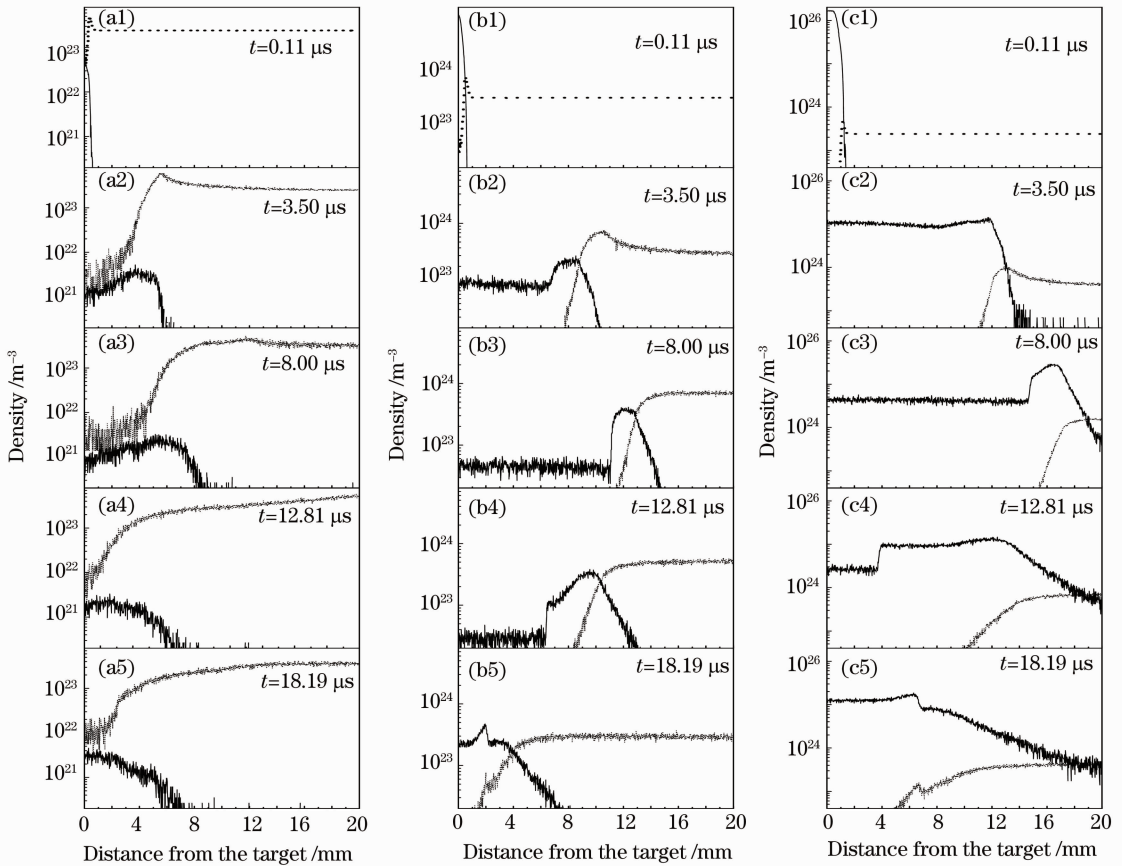


图 1 烧蚀粒子总数分别为 1.01×10^{13} (a), 1.01×10^{15} (b) 和 1.01×10^{17} (c) 时, 烧蚀粒子(实线)和环境气体(虚线)随时间的演化图

Fig. 1 A time sequence of the density distribution of the pulsed laser ablated Si-particles (solid lines) and ambient gas atom (dashed lines) when the total number of the Si-particles is 1.01×10^{13} (a), 1.01×10^{15} (b) and 1.01×10^{17} (c) respectively

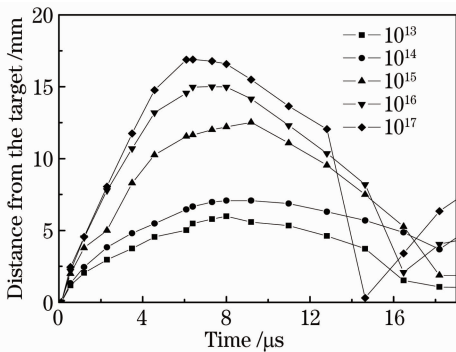


图 2 烧蚀 Si 粒子的高密度峰位置随时间的演化图
Fig. 2 A time sequence of the positions of high-density silicon peak

在开始的一段时间内,烧蚀粒子密度非常高,环境气体高密度峰还未形成,烧蚀粒子处于近似自由膨胀状态,向衬底方向移动。随着时间的推移,环境气体的高密度峰形成,烧蚀粒子高密度峰所受环境气体阻力逐渐增大。随后,环境气体被不断“压缩”,

其高密度峰值不断增大,在烧蚀粒子高密度峰到达距靶最远处,环境气体高密度峰值达到最大值,烧蚀粒子高密度峰向衬底方向的运动速度变为 0,然后在环境气体的反弹下,烧蚀粒子高密度峰向靶方向移动。显然,有两种因素决定着烧蚀粒子高密度峰到达衬底附近所用时间的长短:烧蚀粒子的“惯性”即烧蚀粒子总数和环境气体引起的阻力,前者延长烧蚀粒子高密度峰的速度减小为 0 所用时间,后者缩短烧蚀粒子高密度峰的速度减小为 0 所用时间。当烧蚀粒子高密度峰值小于环境气体高密度峰值时,环境气体阻力导致的时间变化不明显,惯性因素对时间影响是主要的。随着烧蚀粒子总数的增加,“惯性”增大,单位时间内速度变化减小,烧蚀粒子高密度峰到达衬底附近所需要的时间增大;当烧蚀粒子高密度峰值等于环境气体高密度峰值时,烧蚀粒子高密度峰到达距靶最远处所需时间最长;当烧蚀粒子高密度峰值大于环境气体高密度峰值时,环境

气体阻力导致的时间变化占主要因素,增加烧蚀粒子总数,环境气体被压缩在衬底附近很小的区域内,烧蚀粒子的阻力急剧增大,使得烧蚀粒子的高密度峰到达距靶最远处所用时间减小。

图 3 给出了烧蚀 Si 粒子的速度分布随时间的演化图。对于确定的烧蚀粒子总数,速度分布峰位

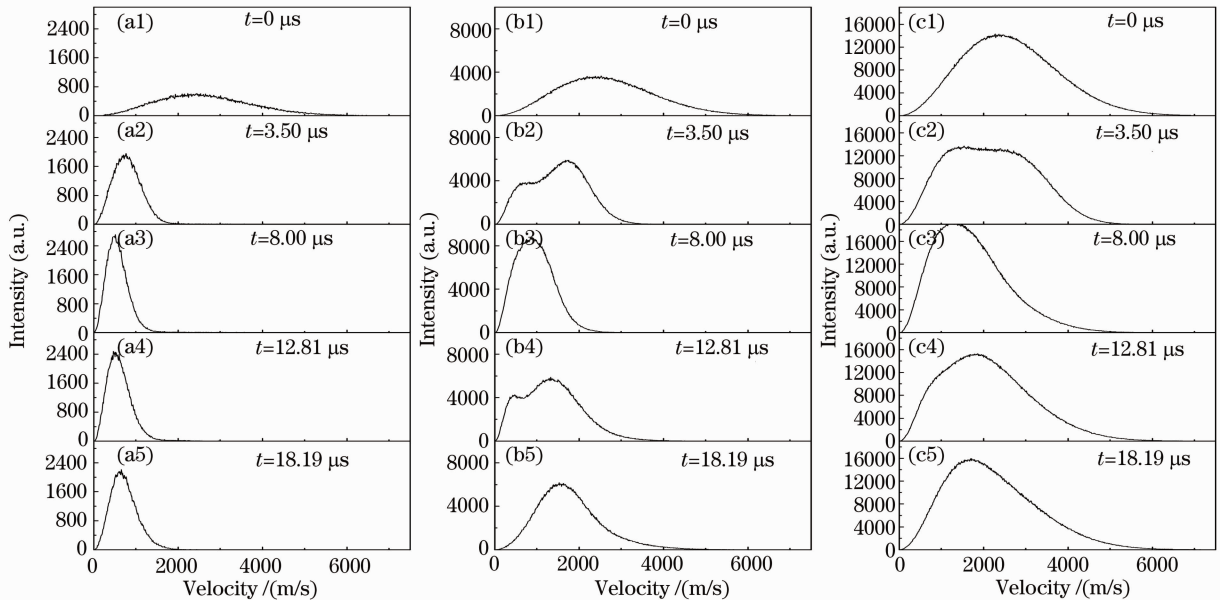


图 3 粒子总数分别为 1.01×10^{13} (a), 1.01×10^{15} (b) 和 1.01×10^{17} (c) 时烧蚀 Si 粒子的速度分布随时间的演化图

Fig. 3 A time sequence of velocity distribution of Si-particles when the total number is 1.01×10^{13} (a),

1.01×10^{15} (b) and 1.01×10^{17} (c) respectively

4 结 论

采用 Monte Carlo 模拟方法,对烧蚀 Si 粒子在 He 环境气体中传输过程进行了模拟。烧蚀 Si 粒子的高密度峰离开靶的最大距离随着烧蚀 Si 粒子总数增加而增大。随着烧蚀 Si 粒子总数增加,烧蚀 Si 粒子的高密度峰振荡周期呈现先增大、后减小的趋势,速度分布变宽。发现了烧蚀粒子在传输过程中速度劈裂现象。所得结论为进一步定量研究纳米晶粒的成核机理得到尺寸分布均匀的纳米 Si 薄膜提供了基础。

参 考 文 献

- Makoto Hirasawa, Takaaki Orii, Takafumi Seto. Size-dependent crystallization of Si nanoparticles[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(9): 093119
- Chu Lizhi, Lu Lifang, Wang Yinglong *et al.*. Size-dispersal of Si nanoparticles prepared by pulsed laser ablation[J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(4): 555~558
- 褚立志, 卢丽芳, 王英龙等. 激光烧蚀制备按尺寸自然分离的纳米 Si 晶粒[J]. *中国激光*, 2007, **34**(4): 555~558
- Y. L. Wang, Z. C. Deng, G. S. Fu *et al.*. The average size of Si nanoparticles prepared by pulsed laser ablation in the gas

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。随着烧蚀粒子总数增加,速度分布变宽,峰值增大,峰位右移。值得注意的是,当粒子总数为 1.01×10^{15} 时速度劈裂成两部分,所得结果与实验^[9]一致,定量的研究正在进行中。

mixture of He/Ar, Ne/Ar or He/Ne[J]. *Thin Solid Films*, 2006, **515**(4): 1897~1900

- G. S. Fu, Y. L. Wang, L. Z. Chu *et al.*. The size distribution of Si nanoparticles prepared by pulsed-laser ablation in pure He, Ar or Ne gas [J]. *Europhys. Lett.*, 2005, **69**(5): 758~762
- Wang Yinglong, Lu Lifang, Yan Changyu *et al.*. The laser ablated deposition of Si nanocrystalline film with narrow photoluminescence peak[J]. *Acta Physica Sinica*, 2005, **54**(12): 5738~5742
- 王英龙, 卢丽芳, 阎常瑜等. 具有窄光致发光谱的纳米 Si 晶薄膜的激光烧蚀制备[J]. *物理学报*, 2005, **54**(12): 5738~5742
- Douglas H. Lowndes, D. B. Geohegan, A. A. Puretzky *et al.*. Synthesis of novel thin-film materials by pulsed laser deposition [J]. *Science*, 1996, **273**(5277): 898~903
- H. C. Le, D. E. Zeitoun, J. D. Parisse *et al.*. Modeling of gas dynamics for laser-generated plasma; Propagation into low-pressure gases[J]. *Phys. Rev. E*, 2000, **62**(3): 4152~4161
- J. C. S. Kools. Monte Carlo simulations of transport of laser ablation atoms in a diluted gas [J]. *J. Appl. Phys.*, 1993, **74**(10): 6401~6405
- Y. L. Wang, L. Z. Chu, Y. L. Li *et al.*. Dynamical transportation of Si particles produced by pulsed laser ablation in the mixture of two inert gases[J]. *Micro & Nano Lett.*, 2009, **4**(1): 39~43
- R. F. Wood, K. R. Chen, J. N. Leboeuf *et al.*. Dynamics of plume propagation and splitting pulsed-laser ablation[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **79**(8): 1571~1574
- Wu Dongjiang, Xu Yuan, Yin Bo *et al.*. Dynamic property

- influence of Ge plume with laser power density[J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(3): 462~465
吴东江, 许媛, 尹波等. 激光功率密度对 Ge 烧蚀蒸气动力学特性的影响[J]. *中国激光*, 2008, **35**(3): 462~465
- 12 A. K. Sharma, R. K. Thareja. Plume dynamics of laser-produced aluminum plasma in ambient nitrogen[J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2005, **243**(1-4): 68~75
- 13 S. S. Harilal, C. V. Bindhu, M. S. Tillack *et al.*. Internal structure and expansion dynamics of laser ablation plumes into ambient gases[J]. *J. Appl. Phys.*, 2003, **93**(5): 2380~2388
- 14 C. Sánchez Aké, R. Sanginés de Castro, H. Sobral *et al.*. Plume dynamics of cross-beam plumed-laser ablation of graphite [J]. *J. Appl. Phys.*, 2006, **100**(5): 053305
- 15 Wang Yinglong, Chu Lizhi, Deng Zechao *et al.*. Size-uniform and controllable Si nanoparticles obtained by regulating target-to-substrate distance [J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(4): 989~992
王英龙, 褚立志, 邓泽超等. 调整靶衬间距实现纳米 Si 晶粒尺寸的均匀可控 [J]. *中国激光*, 2009, **36**(4): 989~992
- 16 Min Han, Yanchun Gong, Jianfeng Zhou *et al.*. Plume dynamics during film and nanoparticles deposition by pulsed laser ablation [J]. *Phys. Lett. A*, 2002, **302**(14): 182~189
- 17 P. Baeri, E. Rimini. Laser annealing of silicon[J]. *Materials Chemistry and Physics*, 1996, **46**(2-3): 169~177