

靶衬间距对传输中溅射粒子密度和速度分布的影响

丁学成 傅广生 翟小林 梁伟华 褚立志 邓泽超 赵亚军 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)方法,研究了脉冲激光烧蚀沉积纳米硅(Si)晶薄膜过程中,靶衬间距对传输中溅射粒子密度和速度分布的影响。研究表明,在相同时刻,烧蚀粒子和环境气体的交叠区离开靶面的距离随靶衬间距的增加而增大,并且到达离开表面最大距离的时间随靶衬间距的增大而明显增长。速度分布曲线的峰值和峰值强度均出现了周期性变化的趋势,并且均随着靶衬间距的增大而增长。

关键词 激光技术;蒙特卡罗模拟;靶衬间距;溅射粒子;密度分布;速度分布

中图分类号 TG156. 99 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201239.0103005

Influence of Target-to-Substrate Distance on Velocity and Density Distributions of Ablated Particles during Their Propagations

Ding Xuecheng Fu Guangsheng Zhai Xiaolin Liang Weihua Chu Lizhi

Deng Zechao Zhao Yajun Wang Yinglong

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

Abstract The influence of the target-to-substrate distance on the spatial density distribution of the particles (Si and He) and the velocity distribution of the Si particles is investigated via Monte Carlo simulation. The results indicate that the distance of the mixed regions from the target increases with the target-to-substrate distance increasing at the same time, and the time of reaching the maximum distance from the target increases with the target-to-substrate distance increasing. The peak positions and intensities of the curves of velocity distributions periodically oscillate and increase with the target-to-substrate distance increasing.

Key words laser technique; Monte Carlo simulation; target-to-substrate distance; ablated particles; density distribution; velocity distribution

OCIS codes 310.1860; 310.6870; 140.3390

1 引言

纳米材料具有良好的力学、电学和光学性能,在新型工业材料、高密度信息存储、光电集成和光电转换等领域有着诱人的应用前景^[1~4]。要实现上述应用,必须制备出高质量纳米材料,解决可控生长问题。深入研究生长动力学过程有助于实现可控生长。众所周知,纳米材料生长过程可分为成核与长大两个过程,而这两个过程只有在一定的密度和温

度/速度范围内才能够完成,当密度和温度/速度条件不满足时,成核与长大过程就停止^[5]。研究实验参数对蒸气密度和速度分布的影响有利于确定纳米材料成核与长大的密度和速度范围。在众多制备方法中,脉冲激光沉积技术以其沉积速率高、污染小、实验参数易于改变等优点备受青睐^[6,7]。人们对脉冲激光烧蚀沉积纳米材料的输运动力学过程进行了大量研究^[8~10]。最近, Martin 等^[11]利用电解质钝

收稿日期: 2011-07-28; 收到修改稿日期: 2011-09-15

基金项目: 973 计划前期研究专项(2011CB612305)、国家自然科学基金(10774036)和河北省自然科学基金(E2008000631)资助课题。

作者简介: 丁学成(1973—),男,博士研究生,讲师,主要从事激光与物质相互作用方面的研究。

E-mail: hddingxc@163.com

导师简介: 王英龙(1965—),男,教授,博士生导师,主要从事激光与物质相互作用方面的研究。

E-mail: hdwangyl@hbu.cn

化和激光辐射接触技术制备了异质结硅太阳能电池。高勋等^[12]对纳秒激光烧蚀玻璃等离子体发射光谱特性进行了研究,研究表明,脉冲能量大于35 mJ后,光谱线强度开始减弱。本课题组曾研究了初始溅射粒子总数和密度对传输中的溅射粒子密度和速度分布的影响^[13,14],给出了溅射粒子的密度和速度随时间演化曲线。还研究了靶衬间距对纳米晶粒尺寸分布的影响,研究表明,晶粒的平均尺寸随靶衬间距变化。用蒙特卡罗(Monte Carlo)方法模拟交叠振荡稳定时间,并得出,交叠区稳定时间的长短决定着晶粒的平均尺寸^[15]。然而在这些研究中没有给出密度和速度分布随靶衬间距的变化。

本文采用 Monte Carlo 方法,对脉冲激光烧蚀单晶 Si 靶产生的烧蚀粒子在 He 气中的输运动力学过程进行了模拟,并讨论了靶衬间距(1、2、3、4、5、10 cm)对传输中的溅射粒子密度和速度分布的影响。

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。假设烧蚀粒子均为 Si 原子,模拟从烧蚀 Si 粒子离开 Knuden 层后开始。初始时刻,烧蚀 Si 粒子分布在以激光烧蚀点为底面的小圆柱体内,速度近似为麦克斯韦-波尔兹曼分布^[16]。由于溅射粒子扩散作用的存在,溅射粒子迅速膨胀。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,表示为

$$\sigma = \pi(r_i + r_j)^2, \quad (1)$$

式中 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为

$$\vec{c} = c[(\sin \theta \cos \chi)\hat{x} + (\sin \theta \sin \chi)\hat{y} + \cos \theta \hat{z}], \quad (2)$$

$$\vec{V}'_i = \vec{c}_m + \frac{m_j}{m_i + m_j}\vec{c}', \quad (3)$$

$$\vec{V}'_j = \vec{c}_m + \frac{m_i}{m_i + m_j}\vec{c}', \quad (4)$$

式中 θ 是散射角, χ 是方位角, \vec{c} 和 \vec{c}' 分别是碰撞粒子对碰撞前、后的相对速度, \vec{c}_m 是碰撞对碰撞后的质心速度^[17]。图 1 给出了烧蚀 Si 粒子在距靶面任意位置处直角坐标系下速度 \vec{c} 和 \vec{c}' 的相对取向图,径向为垂直于靶面指向衬底的方向,即 x 方向。详细情况见文献^[18]。

在模拟过程中,将靶衬之间分为一系列的小区

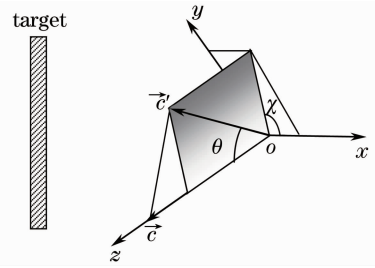


图 1 速度 \vec{c} 和 \vec{c}' 的相对取向图

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。每次碰撞所用时间表示为

$$\Delta t_c = \left(\frac{2}{N_m}\right) \frac{1}{\pi d^2 n c}, \quad (5)$$

式中 N_m 是此区间粒子个数, n 为此区间的密度个数。然后判断计算时间是否超出了时间步长,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后,再进入下一个时间步长,重复上述过程,直至得到最终结果。

3 模拟分析

模拟以氦(He)为环境气体,压强为 1000 Pa。烧蚀 Si 粒子刚离开 Knuden 层时,初始溅射 Si 粒子的密度为 $1.66 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$,速度为 1760 m/s,温度为 6280 K,单脉冲烧蚀单晶 Si 蒸发的烧蚀粒子总数为 1.01×10^{15} ^[17],靶衬间距分别为 1、2、3、4、5、10 cm。图 2 给出了靶衬间距为 1、3、5、10 cm 时,烧蚀粒子(Si)和环境气体(He)的密度随时间演化图,图中横坐标范围为靶衬间距,所以图 2 中的四幅图的横坐标范围不同。从图中可以看出,在 $20 \mu\text{s}$ 内,靶衬间距为 1 cm 和 3 cm 的情况下,烧蚀粒子的高密度峰已经到达距靶面最远处,并被衬底反弹回来;而靶衬间距为 5 cm 和 10 cm 的情况下,高密度峰还未到达距靶面最远的位置。在 $0.11 \mu\text{s}$ 后的各个相同时刻,烧蚀粒子密度峰值随靶衬间距的增大而减小。为了清楚地看出交叠区的位置随时间演化的过程,图 3 给出了靶衬间距为 1、2、3、4、5、10 cm 情况下,烧蚀粒子与环境气体交叠区的位置随时间演化图。在 $0.11 \mu\text{s}$ 后各个时刻,交叠区距靶面的距离随靶衬间距的增加而增大,到达衬底表面的时间随靶衬间距的增大而明显增长。

环境气体和衬底都对烧蚀粒子产生阻力,但是随着靶衬间距的增大,衬底对烧蚀粒子的作用减弱,环

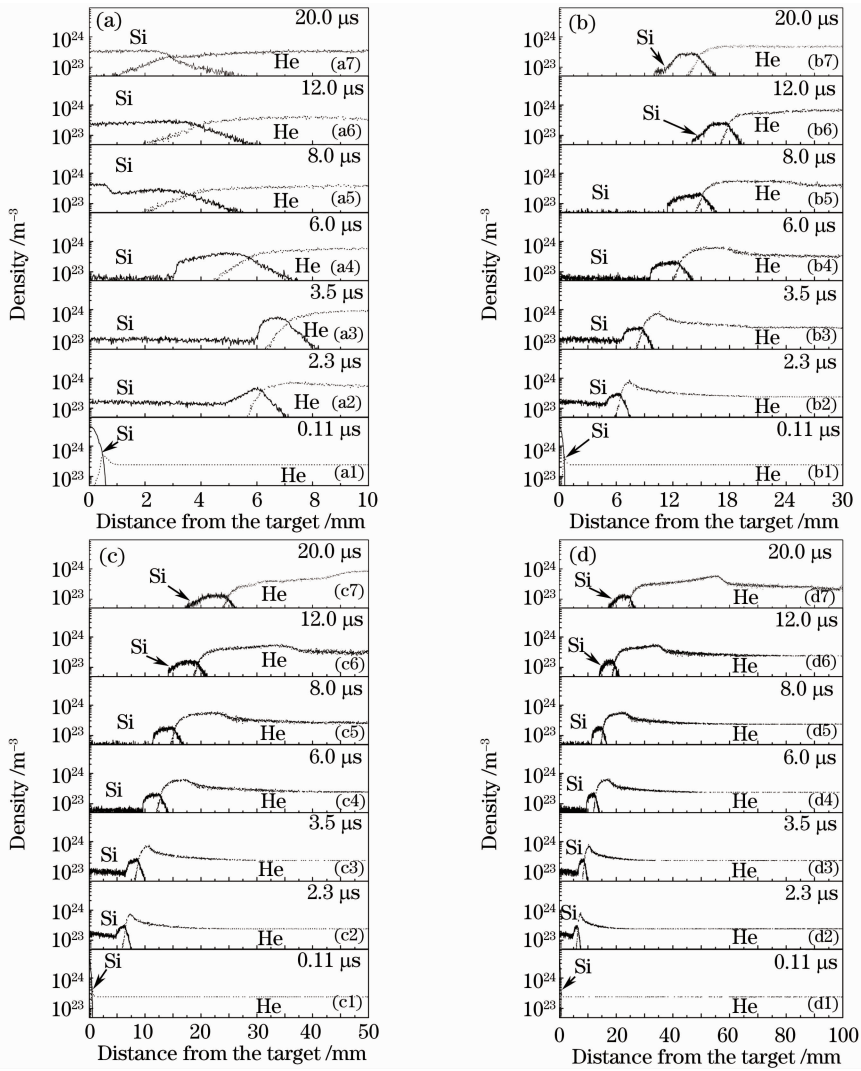


图 2 烧蚀粒子(Si)和环境气体(He)密度随时间演化图。(a)、(b)、(c)和(d)分别对应于靶衬间距为 1、3、5、10 cm
 Fig. 2 Time sequence of the density distribution of the pulsed laser ablated Si particles (Si) and ambient gas atom (He) when (a)、(b)、(c)、(d) correspond to the target-to-substrate distances of 1, 3, 5 and 10 cm, respectively

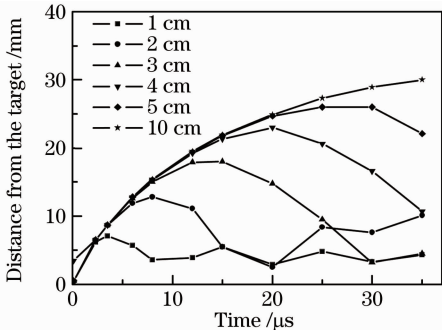


图 3 交叠区的位置随时间演化图

Fig. 3 Time sequence of the positions of the mixed regions

环境气体对烧蚀粒子的阻力起主要作用。在 $0.11 \mu\text{s}$ 内,烧蚀粒子近似处于自由膨胀状态,环境气体和衬底的阻力作用可以忽略,故在不同的靶衬间距下没有变化。随着靶衬间距的增大,衬底对烧蚀粒子产生很

强阻力作用的时间推迟,烧蚀粒子只有在很强的衬底作用下才会被反弹回来,故交叠区到达距靶面最大距离的时间随靶衬间距增大而增加。由于靶衬间距增大,烧蚀粒子分布在一个较宽的范围内,烧蚀粒子高密度峰的峰值随靶衬间距增大而减小。

图 4 给出了靶衬间距为 1、3、5、10 cm 时,烧蚀粒子速度分布随时间演化图。并对靶衬间距分别为 1、2、3、4、5、10 cm 在 $0.11、1.5、2.3、3.5、6、8、12、13、14、15、20、25、30、35 \mu\text{s}$ 时的速度分布进行了模拟,发现只有靶衬间距为 10 cm 的情况下,在 $35 \mu\text{s}$ 内未出现二次劈裂,其他靶衬间距情况下均发生二次速度劈裂,分别出现在 $6、12、20、25、35 \mu\text{s}$ 左右,二次劈裂出现的时间随靶衬间距的增大而推迟,出现二次劈裂的时间均在溅射粒子密度分布峰值被衬底反弹回来后,所以可以说二次劈裂是由衬底的作用

用产生。对6种靶衬间距情况下径向速度峰值的位置及强度进行了统计,统计结果如图5所示,其中(a)为峰位速度随时间演化曲线,(b)为峰位强度随时间演化曲线。速度分布曲线的峰位出现了周期性变化的趋势,并且随着靶衬间距的增大周期变长。

峰值强度也有周期性变化趋势,并且随着靶衬间距增大周期变长,峰值强度变化较大。同一时刻峰值强度基本上随着靶衬间距增大而增加。由于烧蚀粒子总数不变,速度曲线下面的面积不变,峰值增大,速度分布变窄。

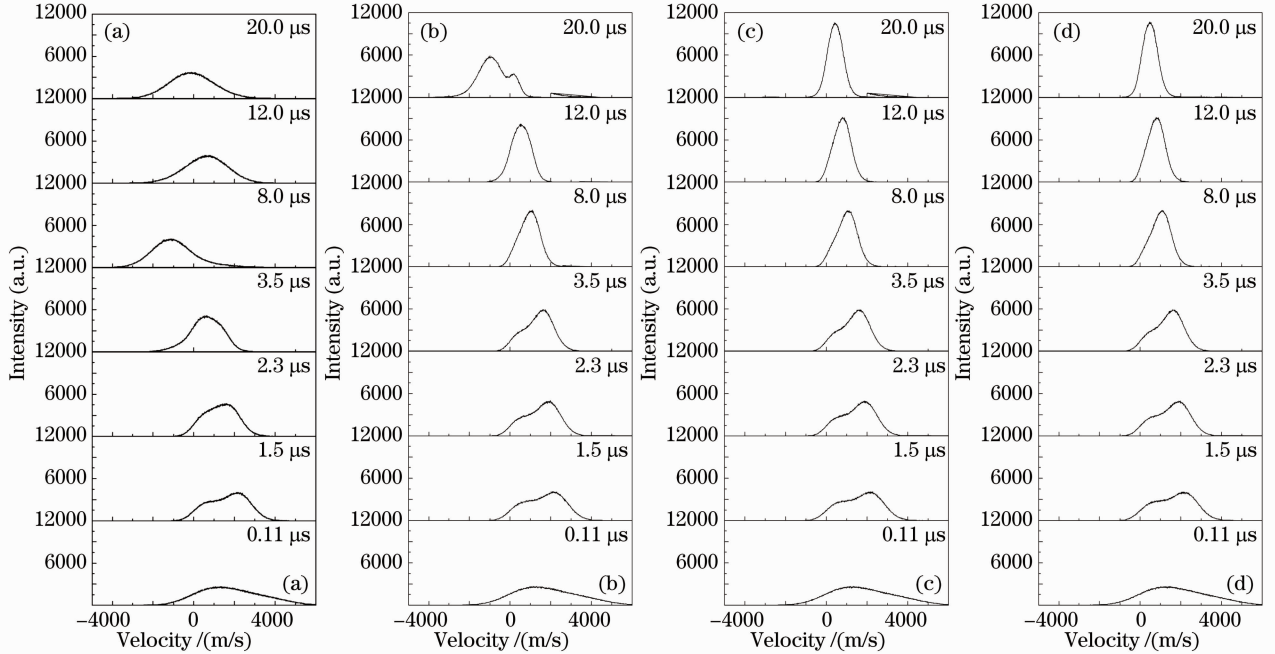


图4 靶衬间距为(a) 1 cm、(b) 3 cm、(c) 5 cm和(d) 10 cm时烧蚀粒子径向速度分布随时间演化图

Fig. 4 Time sequence of radial velocity distribution of Si particles when the target-to-substrate distances are (a) 1 cm, (b) 3 cm, (c) 5 cm and (d) 10 cm, respectively

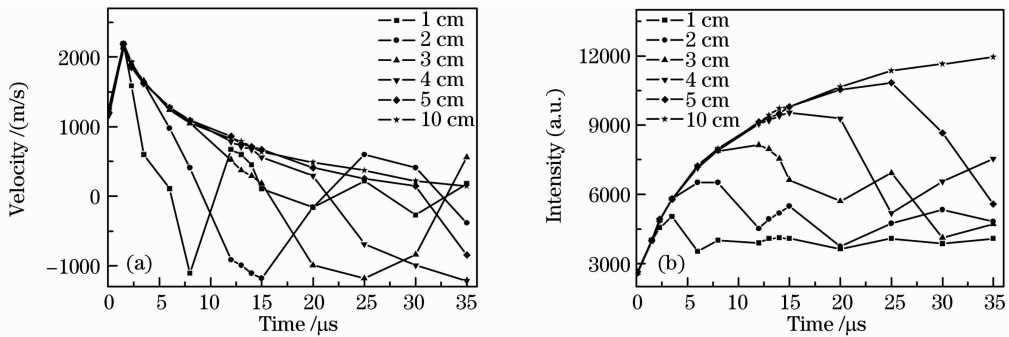


图5 径向速度曲线(a)峰值与(b)强度随时间演化图

Fig. 5 Time sequence of (a) the peak values and (b) the intensities of radial velocity curves

在溅射粒子刚刚离开靶面时,向各个方向运动,向衬底方向运动的高速溅射粒子受到靶面的强相互作用被反弹回来,并且具有较高速度,由于此时还没有形成高密度交叠区,所以初始时刻向衬底方向运动的烧蚀粒子受到的环境气体阻力较小,大部分处于自由膨胀状态,使得在初始的1.5 μs内速度峰值增大。随后形成明显的高密度交叠区,环境气体阻力增大,使得烧蚀粒子速度峰值减小。烧蚀粒子运动到衬底表面附近受到衬底的强作用力,被衬底反

弹回来,烧蚀粒子群两边的环境气体密度差较大,烧蚀粒子产生一个向靶面的加速度,速度增大。衬底和靶面的作用使得烧蚀粒子在靶衬之间振荡,就形成了峰位速度的周期性变化。随着靶衬间距的增大,烧蚀粒子每次到达衬底或靶面时间增长,故周期增大。根据 Yoshida 等^[19]提出的惯性流体模型,烧蚀粒子所受阻力与其速度平方成正比(时间平均),在没有衬底或靶面的强相互作用的前提下,烧蚀粒子单向运动(即从靶面到衬底方向或由衬底运动到

靶面方向)所用时间越长,烧蚀粒子的速度分布越窄,峰值强度越大。

4 结 论

本文采用 Monte Carlo 模拟方法,对脉冲激光烧蚀沉积纳米 Si 晶粒的输运动力学过程进行了模拟,研究了靶衬间距为 1、2、3、4、5、10 cm 情况下,烧蚀粒子速度和密度分布随时间变化关系。在 0.11 μs 后的各个相同时刻,烧蚀粒子密度峰值随靶衬间距的增大而减小;交叠区距靶面的距离随靶衬间距的增大而增大,到达离开靶面最大距离的时间随靶衬间距的增大而明显增加。在烧蚀粒子离开靶面 35 μs 的时间间隔内,靶衬间距为 1、2、3、4、5 cm 情况下,出现两次速度劈裂现象,第二次速度劈裂是由衬底的作用引起的。速度分布曲线的峰位和峰值强度均出现了周期性变化的趋势,并且均随着靶衬间距的增大而增大。所得结论可为进一步研究成核与长大的热力学条件提供依据。

参 考 文 献

- 1 Candace K. Chan, Hailin Peng, Gao Liu *et al.*. High-performance lithium battery anodes using silicon nanowires[J]. *Nature Nanotechnology*, 2008, **3**(1): 31~35
- 2 Mi-Hee Park, Min Gyu Kim, Jaebum Joo *et al.*. Silicon nanotube battery anodes[J]. *Nano Lett.*, 2009, **9**(11): 3844~3847
- 3 Erik Garnett, Peidong Yang. Light trapping in silicon nanowire solar cells[J]. *Nano Lett.*, 2010, **10**(3): 1082~1087
- 4 L. I. Murin, E. A. Tolkacheva, V. P. Markevich *et al.*. The oxygen dimer in Si: its relationship to the light-induced degradation of Si solar cells? [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2011, **98**(18): 182101
- 5 P. R. Willmot, J. R. Huber. Pulsed laser vaporization and deposition[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2000, **72**(1): 315~328
- 6 Y. L. Wang, C. Chen, X. C. Ding *et al.*. Nucleation and growth of nanoparticles during pulsed laser deposition in an ambient gas [J]. *Laser and Particle Beams*, 2011, **29**(1): 105~111
- 7 Makoto Hirasawa, Takaaki Orii, Takafumi Seto. Size-dependent crystallization of Si nanoparticles[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(9): 093119
- 8 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
- 9 S. S. Harilal. Influence of spot size on propagation dynamics of laser-produced tin plasma[J]. *J. Appl. Phys.*, 2007, **102**(12): 123306
- 10 Liu Yunyan, Cheng Chuanfu, Song Hongsheng *et al.*. Morphology analysis of ZnO:Ga thin films deposited by pulsed laser deposition[J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(1): 0131003
- 刘云燕, 程传福, 宋洪胜等. 激光溅射沉积制备的 ZnO:Ga 薄膜表面形貌分析[J]. *光学学报*, 2011, **31**(1): 0131003
- 11 I. Martin, M. Labrune, A. Salomon *et al.*. Laser fired contacts applied to the rear surface of heterojunction silicon solar cells[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2011, **95**(11): 3119~3123
- 12 Gao Xun, Song Xiaowei, Guo Kaimin *et al.*. Optical emission spectral characteristics of glass plasma induced by nanosecond laser pulse[J]. *Chinese J. Lasers*, 2011, **38**(3): 0315002
- 高 勋, 宋晓伟, 郭凯敏等. 纳秒激光烧蚀光学玻璃的等离子体发射光谱特性[J]. *中国激光*, 2011, **38**(3): 0315002
- 13 Ding Xuecheng, Fu Guangsheng, Liang Weihua *et al.*. Influence of the initial ablated-particle density on distribution of density and velocity of ablated-particles [J]. *Acta Physica Sinica*, 2005, **59**(5): 3331~3335
- 丁学成, 傅广生, 梁伟华等. 初始溅射粒子密度对烧蚀粒子密度和速度分布的影响[J]. *物理学报*, 2010, **59**(5): 3331~3335
- 14 Ding Xuecheng, Fu Guangsheng, Liang Weihua *et al.*. Influence of the total number of the ablated particles on their distribution of density and velocity [J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(4): 1127~1131
- 丁学成, 傅广生, 梁伟华等. 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 [J]. *中国激光*, 2010, **37**(4): 1127~1131
- 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 Leonid V. Zhigilei, Barbara J. Garrison. Velocity distributions of molecules ejected in laser ablation[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **71**(4): 551~553
- 17 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**(4): 182~189
- 18 J. A. Bittencurt. *Fundamentals of Plasma Physics*[M]. New York: Springer-Verlag New York Press, 2004. 560~566
- 19 Takehito Yoshida, Shigeru Takeyama, Yuka Yamada *et al.*. Nanometer-sized silicon crystallites prepared by excimer laser ablation in constant pressure inert gas[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**(13): 1772~1774