

低エネルギーXe 原子による炭素スパッタリングの分子動力学シミュレーション 村本哲也^a, 剣持貴弘^b, 百武徹^c, 西田迪雄^d

MD Simulation of Carbon Sputtering under Low-energy Xe Ion Bombardment

By

Tetsuya MURAMOTO^a, Takahiro KENMOTSU^b, Toru HYAKUTAKE^c, and Michio NISHIDA^d

Abstract : In order to develop the sputtering database to estimate the erosion of accelerator grids of an ion engine, the low-energy sputtering of carbon material with Xe ion is studied through molecular dynamics (MD) simulations. For the normal incidence, the MD result of sputtering yield almost agrees with the experimental result by Williams et al. (AIAA-2004-3788). However, the experimental result shows less incident angle dependence than the MD result. Because it seems that Xe ions in the experiment feel randomized surface normal vectors when the low-energy Xe ion caused many-body collisions to local surface atoms in rough surface. Thus, it is proper that the MD simulation in a smooth surface overestimates the incident angle dependence of sputtering yield. Hence, it is necessary to include the effect of surface roughness using Monte-Carlo simulation with the sputtering database for plane surface.

Key words : Molecular Dynamics Simulation, Low-Energy Sputtering, Sputtering Database

1. はじめに

現在、開発が進められているイオンエンジンのグリッド耐久認定用数値解析ツールにおいて、グリッド損耗をもたらす低エネルギー範囲でのスパッタリング現象に関する情報が必要とされている。スパッタリングを理論的に取り扱う方法は Sigmund の線形カスケード理論、モンテカルロ(MC)・シミュレーション、分子動力学(MD)シミュレーションなどが存在するが、その中でも MD 法は低エネルギー範囲で重要となる多体衝突の取り扱いに適している。

本研究は、低エネルギーの Xe 原子による炭素標的スパッタリングに関するデータベース整備を目的とする。本報告ではその一環として行われた MD シミュレーションについて、利用可能な実験報告[1]と比較し、適用限界を評価した内容をまとめたものである。

2. MD シミュレーションモデル

M 値計算で解き、多粒子系の運動を追跡する方法で、減速過程・多体衝突・熱的過程など広いエネルギー範囲の相互作用を扱うことが出来るため、原子の運動に関する諸現象(スパッタリングや吸着・拡散など)の理論的研究を行う上で有力なシミュレーション手法である。MD 法で最も重要な要素は原子間相互作用力の計算で、少

^a Okayama University of Science

^b Doshisha University

^c Okayama University (Presently, Yokohama National University)

^d Sojo University

数原子系に対しては量子力学的手法により計算可能であるが、大規模な原子系に対しては計算速度の観点から半経験的多体ポテンシャルが用いられる。今回の MD 計算では平衡距離で C-C 相互作用に解析的ボンドオーダー型多体ポテンシャル[2]、Xe-C 相互作用に Lennard-Jones (LJ) ポテンシャル[3]、近接距離で Moliere ポテンシャル[4]を用いた。多体ポテンシャルの対斥力項や LJ ポテンシャルは 3 次補間関数で Moliere ポテンシャルと滑らかに接続された。

炭素標的は照射進行に伴う構造変化を考慮して、非晶質を想定するのが最適であるが、取り扱いの容易さからダイヤモンド構造の微結晶を採用した。これにより非晶質の初期標的の準備、表面の密度や粗さ等の未知要素や照射履歴依存性に対する考慮を省略する。なお結晶性の効果を除外するため、結晶格子にランダムな回転・並進操作を行い平坦な表面を持つ微結晶を形成した。これは微視的にはダイヤモンド構造の多結晶と同等である。微結晶の直径はスパッタリングに直接影響する表面近傍の原子衝突カスケードを含ませることができる最小限の大きさ (25~36 Å) とした。さらに微結晶の表面以外の外縁部には Langevin MD 法[5]を適用し、温度 300 K の熱浴と結合させた。またその部分には Dumped Boundary [6]を適用し、微結晶外縁部の変形に対する応力を考慮した。これらにより微結晶がもっと大きな結晶の一部である様子を再現する。標的は入射毎に形成し、1 ps 緩和させ、入射後 2 ps 追跡した。スパッタ収量は 10^4 回以上の Xe 入射から得たサンプルについて統計を取った。

3. 結果と議論

3.1. 垂直入射におけるスパッタ収量の入射エネルギー依存性

従来、スパッタリング現象の解析には 2 体衝突近似法に基づき原子衝突を追跡する MC シミュレーション・コード (例: ACAT [7], TRIM.SP [8]) が利用されてきた。イオンの入射エネルギーが数 keV 以上の高エネルギー範囲においてこれらの MC コードはスパッタ収量やスパッタ粒子の放出角度・エネルギー分布をよく再現するが、多体衝突が重要となる低エネルギー範囲には 2 体衝突近似が適さないため、MC コードの信頼性も低下する。図 1 に Xe 垂直入射の場合における炭素スパッタ収量の計算結果を入射エネルギーの関数として示す。垂直入射については TRIM.SP による計算[9]や、多くの実験報告 [1,10-14] がなされており、比較のためプロットした。

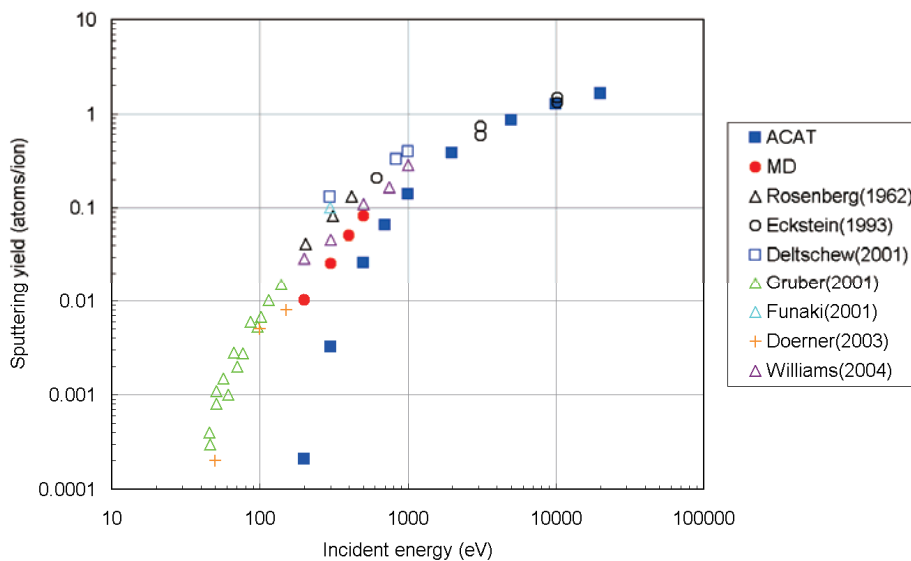


図 1 : 垂直入射 Xe による炭素スパッタ収量

ACAT 計算は 200 eV で実験結果を 2 桁近く過小評価する。この原因として多体衝突によりエネルギー付与密度が増加し、スパッタ収量を増加させることが考えられる [15]。また、実験において炭素標的中に Xe 原子が残留する可能性があり、これもスパッタ収量の増加をもたらす [16]。これに対して、MD 計算は Xe 残留を考慮せずに大体実験結果を再現する。これより、低エネルギー範囲では多体衝突の取り扱いがスパッタ収量に大きく影響し、その評価に MD 法が有効であると言える。

3.2. スパッタ収量の入射角依存性

スパッタリング解析において表面の情報是最も重要な要素の 1 つである。斜め入射ではイオンが表面と相互作用する時間が長くなるため、表面形状・表面密度の効果が現れやすい事が予想される。図 2 に 200eV Xe 入射の場合における炭素スパッタ収量の計算結果を入射角度の関数として示す。ACAT 計算に比べ MD 計算は多体衝突の効果により大きなスパッタ収量を与える。それらと比べて実験結果 [1] は弱い入射角依存性を持つ。低エネルギー範囲では入射原子が表面の局所的な原子集団と多体衝突することで、その局所表面の法線方向を感じる。図 3 に示すように、これは粗い表面に対しては入射角度のランダム化と等価で、結果としてスパッタ収量の入射角依存性を減少させる。即ち、実験の弱い入射角依存性は表面粗さによってもたらされた可能性がある。

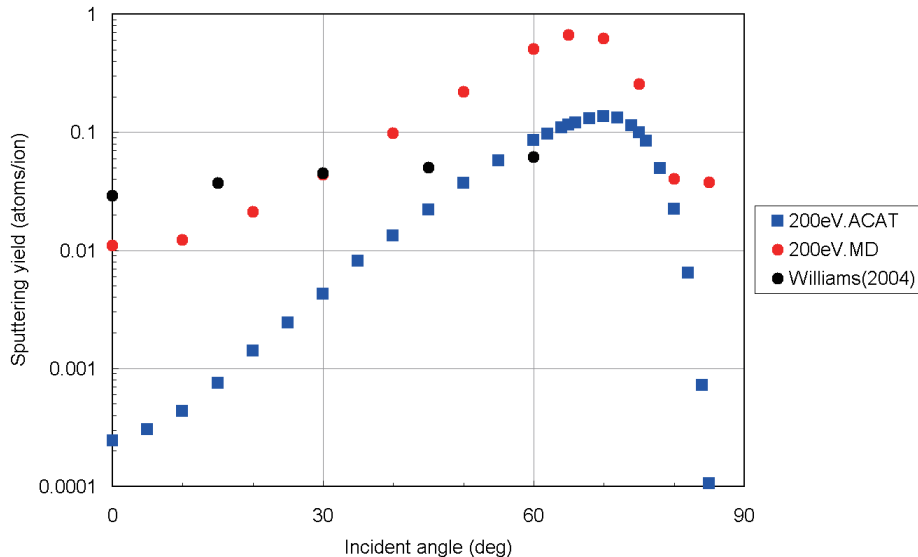


図 2 : 200eV Xe 入射による炭素スパッタ収量

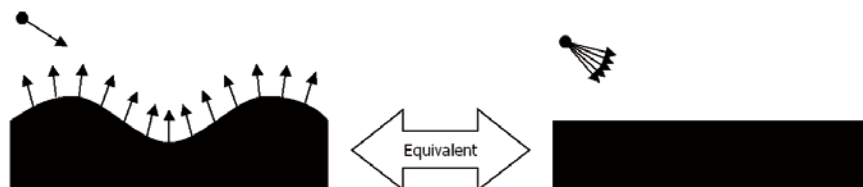


図 3 : 粗い表面との衝突の模式図

一方、このような表面粗さは μm スケール以上であると考えられるため、この表面形状を MD 計算で直接扱うことは計算機性能上の限界から困難である。しかし、そのような表面を \AA スケールで平坦とみなし、局所表面でのスパッタリングを損耗の素過程としたモンテカルロ計算で表面形状の変化を追跡することは可能である。その素過程のデータベースを構築するために MD 計算を活用できる。

3.3. 微分スパッタ収量 — 放出角分布

スパッタ粒子の表面再付着を解析するためには、粒子の運動方向とエネルギーの情報が必要で、そのためには微分スパッタ収量（放出角・放出エネルギー分布）のデータベースを構築することが望ましい。図4で200eV Xe入射の場合における放出角分布の計算結果を、入射角 $\alpha = 0^\circ, 60^\circ$ 、放出の方位角 $\varphi = 0^\circ$ について示す。 $\alpha = 60^\circ$ のMD計算結果において、放出角 $\theta < 0^\circ$ で見られる振動は、微分スパッタ収量が小さいことによる統計誤差と考えられる。各放出角における放出エネルギー分布を評価するためにはこれ以上の統計サンプルが必要で、MD計算では計算速度の観点から放出角分布のピーク以外で十分な統計サンプルを確保するのは難しい。

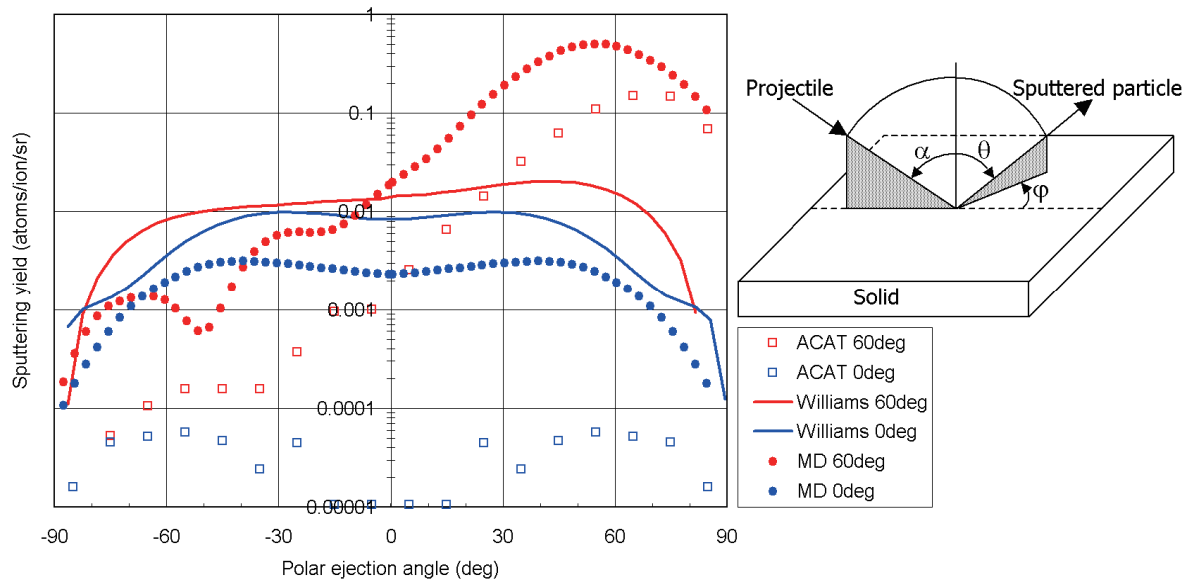


図4：200eV Xe 入射によりスパッタされた炭素の放出角分布 ($\varphi = 0^\circ$)

実験結果 [1] と比較すると、計算結果は $\alpha = 0^\circ$ ではハート型の放出角分布となる傾向が強く、 $\alpha = 60^\circ$ では入射方向に沿った放出角に強いピークが現れる。いずれも低エネルギーで衝突カスケードが十分発達しないことにより、入射方向の記憶を保持したスパッタ粒子が放出されていることを示す。実験結果において入射方向の記憶が薄れている原因の一つとして、前節で挙げた表面粗さの効果が考えられる。

放出角分布の方位角依存性について言及している実験や半経験公式は少ない。今回のMD計算では (θ, φ) の全範囲に対する完全な放出角分布を評価していて、多数回衝突・少数回衝突による放出など複数のスパッタリング過程に由来する複雑な放出方位角依存性が見られた。理論的な裏付けのある関数形で放出方位角依存性もフィッティングするのが望ましいが、当面は球面調和解析を利用した数値データベース構築を試みる予定である。

4. まとめ

低エネルギーのXe原子が炭素表面に打ち込まれた場合に起こる原子衝突過程をMD計算により追跡し、スパッタ収量を評価した。MD法とはNewtonの運動方程式を数値計算で解き、多粒子系の運動を追跡する方法で、原子間相互作用ポテンシャルが適切であれば種々の現象（スパッタリングや吸着・拡散など）を原子過程として扱うことが可能である。

500eV～200eV Xe→Cの場合についてWilliams達の実験 [1] と比較したところ、スパッタ収量のMD計算結果は垂直入射の場合に実験値と大体一致したが、斜め入射の場合に実験結果のほうが入射角依存性が弱くなる傾

向が見られた。低エネルギースパッタリングでは、入射イオンが局所的な表面原子の集団を1つの塊として感じ取り、その局所表面法線がスパッタリングに影響するため、粗い表面においてランダムな局所法線方向の影響で入射角依存性が減少する可能性がある。

イオンエンジンのグリッド損耗シミュレーションで想定される μm スケール以上の表面形状をMD計算で直接扱うことは困難だが、 \AA スケールで平坦な局所表面でのスパッタリングを損耗の素過程としたモンテカルロ計算により表面形状の変化を追跡することは可能である。MD計算はこの素過程のデータベース構築に利用できる。

参考文献

- [1] J.D. Williams, M.L. Johnson and D.D. Williams, "Differential Sputtering Behavior of Pyrolytic Graphite and Carbon-Carbon Composite Under Xenon Bombardment", AIAA-2004-3788, 2004.
- [2] N. Juslin, P. Erhart, P. Traskelin, J. Nord, K.O.E. Henriksson, K. Nordlund, E. Salonen and K. Albe, "Analytical Interatomic Potential for Modeling Nonequilibrium Processes in the W-C-H System", J. Appl. Phys. 98, 123520.1-123520.12, 2005.
- [3] J.E. Lennard and I. Jones, "On the Determination of Molecular Fields", Proc. R. Soc. London, Vol. A106, 441-477, 1924.
- [4] G. Moliere, "Theorie der Streuung Schneller Geladener Teilchen. I. Einzelstreuung am Abgeschirmten Coulomb-Feld", Z. Naturforsch A2, p.133-145, 1947.
- [5] H.J.C. Berendsen, J.P.M. Postma, W.F. van Gunsteren, A. DiNola and J.R. Haak, "Molecular Dynamics with Coupling to an External Bath", J. Chem. Phys. 81, 3684-3690, 1984.
- [6] J.R. Beeler Jr., "Radiation Effects Computer Experiments", Defects in Solids 13, North-Holland, Amsterdam, 1983.
- [7] W. Takeuchi and Y. Yamamura, "Computer Studies of the Energy Spectra and Reflection Coefficients of Light Ions", Radiat. Eff. 71, 53-64, 1983.
- [8] J.P. Biersack and W. Eckstein, "Sputtering Studies with the Monte Carlo Program TRIM.SP", Appl. Phys. A34, 73-94, 1984.
- [9] W. Eckstein, C. Garcia-Rosales, J. Roth and W. Ottenberger, "Sputtering Data", Max-Planck-Institut fuer Plasmaphysik Report IPP9/82, p.52, 1993.
- [10] R. Deltschew, M. Tartz, V. Plicht, E. Hartmann, H. Neumann, H.J. Leiter and J. Esch, "Sputter Characteristics of Carbon-Carbon Compound Material", IEPC-01-118, 2001.
- [11] R.P. Doerner, D.G. Whyte and D.M. Goebel, "Sputtering Yield Measurements during Low Energy Xenon Plasma Bombardment", J. Appl. Phys. 93, No. 9, 5816-5823, 2003.
- [12] I. Funaki, K. Nishiyama, H. Kuninaka, K. Toki, Y. Shimizu and H. Toki, "20mN-class Microwave Discharge Ion Thruster", IEPC-01-103, 2001.
- [13] J.R. Gruber, "Low-Energy Sputter Erosion of Various Materials in a T5 Ion Thruster", IEPC-01-307, 2001.
- [14] D. Rosenberg and G.K. Wehner, "Sputtering Yields for Low Energy He⁺, Kr⁺, and Xe⁺-Ion Bombardment", J. Appl. Phys. 33, 1842-1845, 1962.
- [15] T. Muramoto and T. Kenmotsu, "MD Simulation of Sputtering on Surface Index and Surface Roughness Dependence", Nucl. Instrm. Meth. B255, 214-218, 2007.
- [16] 剣持貴弘, 和田元, 百武徹, 村本哲也, 西田迪雄, 「低エネルギーカーボンスパッタリングに関するXe蓄積効果」, JAXA-RR「JIEDI ツールの研究開発ワークショップ 2007 年度報告書」, to be published, 2008.