

ガスクラスターイオンの表面衝突

松尾 二郎、山田 公

〒606-01 京都市左京区吉田本町
京都大学工学部附属イオン工学実験施設

1. はじめに

常温ガス物質から数百～数千の原子集団であるクラスターを形成し、イオンビームとして加速し固体表面に衝突させたときの様子について、分子動力学による計算結果を中心に述べる。筆者らは従来の単原子・分子イオンビーム技術のブレークスルーになるものとして、常温で気体状の物質からなるクラスター（ガスクラスター）に着目し、新たにガスクラスターイオンビーム装置を開発して、その基礎特性について研究を行ってきた^[1-5]。

クラスターはガスをノズルの小孔から真空中に噴出させ、断熱膨張によって作る。断熱膨張時の条件を整えると、アルゴン、酸素、窒素、その他のガスでも、500～3000ぐらいの原子の集団（クラスター）が容易に発生することができる。クラスターイオンビームは、これをイオン化したものである。クラスターに与えた全エネルギーは、クラスターを構成する原子に、それぞれ分配されるので、あたかも低エネルギーのイオンのように作用する。また、クラスターイオンビームは低エネルギー大電流特性だけでなく、次に述べるように単原子や分子では得られない多体衝突効果による非線形照射効果があられる。

クラスターイオンビーム照射では、一度に何千個の巨大原子集団が、数百個の固体原子上に衝突するので、従来法では得られない超高密度照射が可能になる。また、クラスター構成原子と基板原子の間の多体衝突効果が顕著であり、きわめて特長ある損傷、飛程、スパッターなどの作用があらわれ、このような多体衝突効果を有効に活用した様々な応用を検討している。

このようなガスクラスターイオンビームを用る技術は、永い間、単原子や分子を用いていたイオンビーム技術の中に登場した新しい技術である。^[1-4] これらの現象を理解するために、分子動力学法を用いた計算機シミュレーションし、衝突のダイナミクスの解明を試みている。

2. 分子動力学法によるクラスターイオンの衝突シミュレーション

分子動力学法 (MD 法) を用いて Ar クラスターイオンビームを Si(100) 基板に照射した際の衝突過程について検討した。分子動力学法は実験するのが困難な高い時間・空間分解能を持っているため、クラスター衝突のダイナミクスを調べるのに適している。ダイヤモンド構造を持った 32768 原子からなる Si(100) 基板と 688 個の原子から構成された Ar クラスターをモデルに用いている。Si(100) 基板は三領域に分かれており、最表面は Ar クラスターと直接相互作用する MD 領域、その下には 4 原子層から成る緩衝領域、最下部の固定領域から成る。緩衝領域では、原子間ポテンシャルの他に摩擦力とランダム力が作用し、クラスターの衝突によって発生した熱の周辺部への拡散を計算することが出来る。

Ar クラスターが基板に衝突した際、多体衝突効果により極めて高い温度と圧力が局所的に発生する。シミュレーションの結果、衝突後 150 [fs] の間、10 Å 径の領域に 10^4 J/cm³ ものエネルギーが集中する。このような状況では、Ar 原子は励起状態となるものやイオン化するものがあると考えられる。今回の計算では、基底状態のポテンシャル関数と励起状態のポテンシャル関数との切り替えをモンテカルロ的に与え、それを分子動力学的な情報に切り替えながら行い、より実際的な計算を行った。⁵⁾

基底状態の Ar 原子同士の衝突には Buckingham ポテンシャルを用いた。また、励起状態の Ar 原子に対しては、Buckingham ポテンシャル中のパラメータを実験データに基づいて代えて計算を行った。

二つのポテンシャルの切り替えは励起確率 Pei に基づく。

$$Pei = 1 - \exp\left[-\left(\frac{k_B T_{cl}}{E_e}\right)^2\right] \exp\left[-\beta(r_i - r_{c.m.})^2\right] \quad (1)$$

ここで、 E_e は Ar 原子の励起エネルギー、 β は補正係数、 T_{cl} はクラスターの質量中心に対する個々の原子の相対速度 γ_{ir} の接線成分から導かれる瞬間の温度であり、

$$T_{cl} = \frac{\sum_{i=1}^{N_{cl}} m_i \gamma_{ir}^2}{k_B (3N_{cl} - 6)} \quad (2)$$

ここで、 m_i と N_{cl} はクラスターを構成する原子の質量と数であり、 k_B はボルツマン定数である。

クラスターは fcc 構造から切り出した球形を有するとし、クラスターの温度の初期値は 0、速度の初期値は加速電圧によって与えられた運動エネルギーを一個当たりの原子に分配した場合に対応する値とした。Si(100) 基板は室温に設定した。Si(100) 表面原子間の相互作用の計算には Stillinger-Wever の三体ポテンシャル

を用いた⁶⁾。

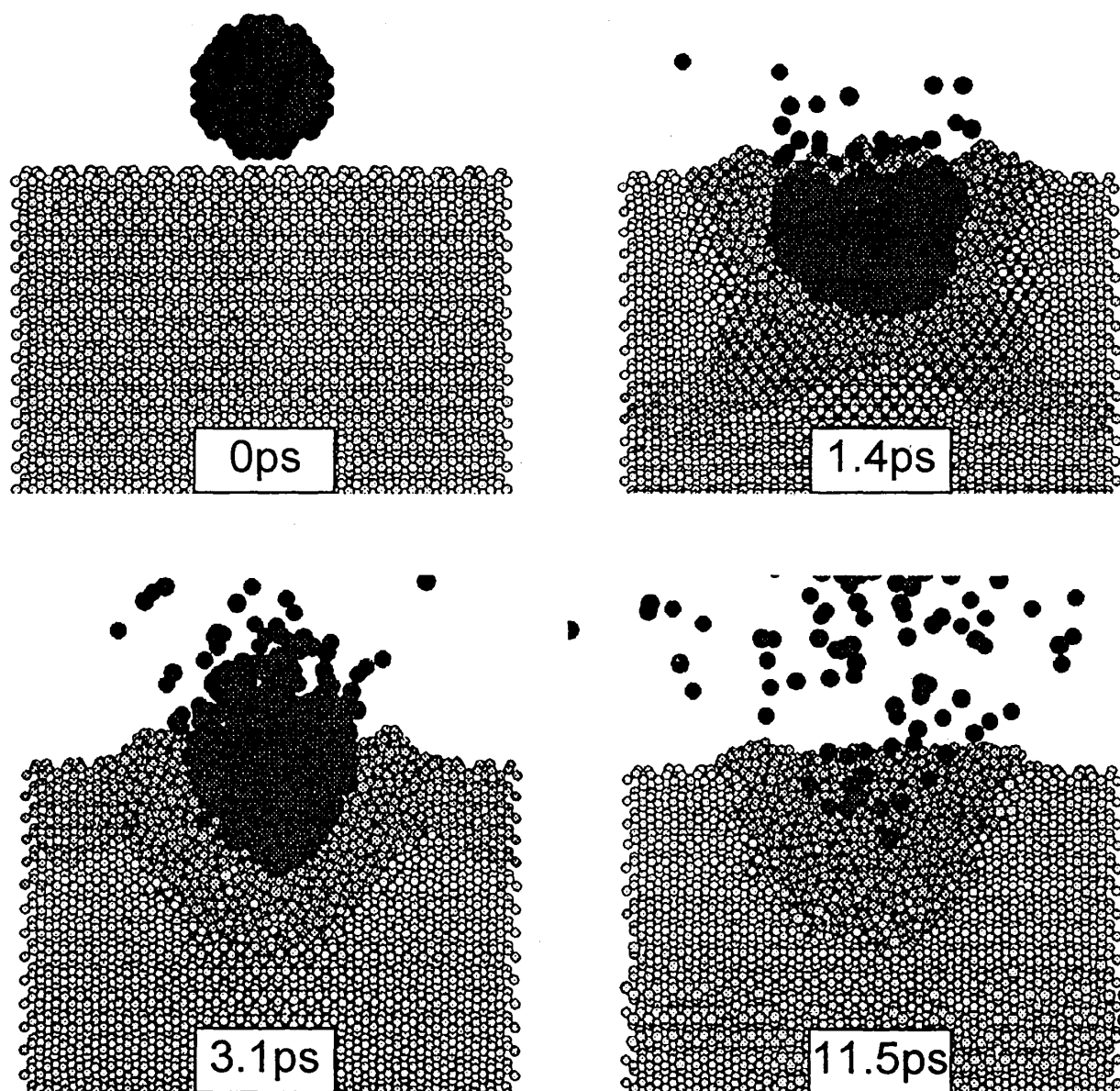
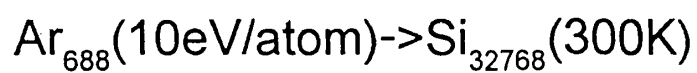


図1：分子動力学法によるシミュレーション
[Ar₆₈₆ 10eV/atom → Si(100)]

1 原子当たり 10eV の Ar₆₈₈ クラスターを 32768 個の Si(100) 基板に衝突させた場合のスナップショットを図1に示す。基板原子の衝突によりクラスターイオンの進行方向に大きな非晶質領域が出来る。クラスターは固体表面に衝突し散乱されるが、

クラスターが完全に分解し固体中に散乱していくのではなく、衝突後も形は変形しているがほぼクラスターとしての形を保ちながら固体中に進入していく。衝突後 1.4ps (b) 後に一番深く固体中に進入しており、その後 3.1ps (c) の時点で表面から Ar 原子が脱離しはじめているときもまだクラスターとして集团的に振る舞っている。Ar クラスター中の結合はファンデアワールス力のため衝突エネルギーに比べて非常に小さいにも関わらず、衝突中もクラスターとして固体中に存在していることが分かった。

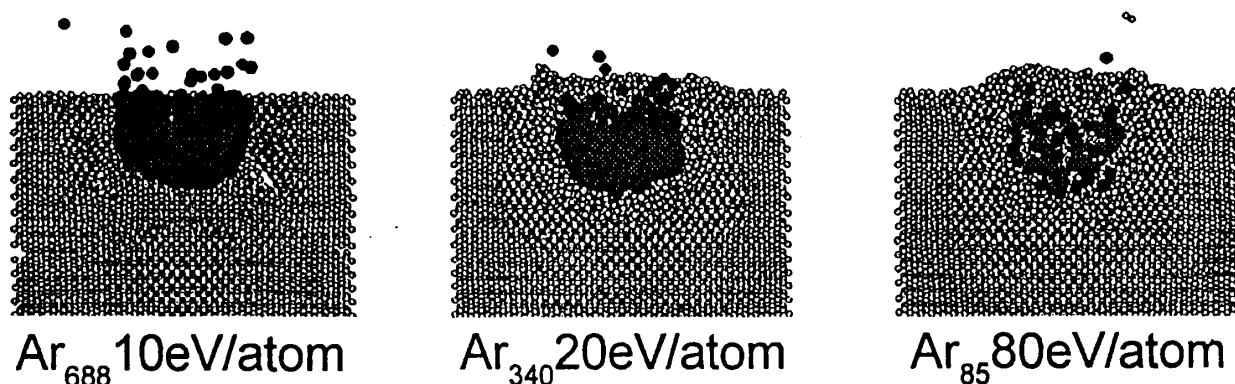


図 2 : クラスターの衝突エネルギーが同じでサイズを変えたときの様子

異なったサイズのクラスターを様々な入射エネルギーで固体に衝突させた時にどのようにクラスターが崩壊するかについて同様の計算を行った。図 2 に衝突エネルギーを同じにしてクラスターの大きさを変えて計算した結果について示す。図 2 の (a) は、Ar₆₈₈ を 10eV/atom のエネルギー、(b) に Ar₃₄₀ を 20eV/atom のエネルギー、(c) に Ar₈₅ を 80eV/atom のエネルギーで衝突させたときに固体中に一番深く進入したときのクラスターの様子を示してある。クラスターの持つトータルの運動エネルギーが同じになるようにしてあるので、クラスターサイズが大きくなるに従って固体表面に衝突するときの速度は遅くなる。しかし、この図を見て分かるように三つの異なったクラスターサイズの進入する深さは、ほぼ同じである。これは、構成原子一個の持っているエネルギーに関係なく固体に進入する深さは同じであるということの意味している。しかし、クラスターサイズが小さくなるに従ってクラスターの構成原子が固体内で散乱されバラバラになり、クラスターが崩壊してしまう。また、クラスター構成原子一個の持っているエネルギー

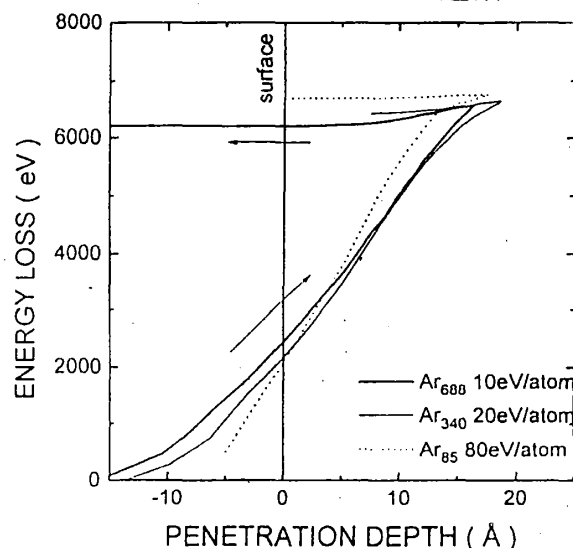


図 3 クラスター固体への進入深さとエネルギーロスの関係

を 10eV/atom と固定してサイズを変えた計算結果からは、サイズが大きくなるに従って深く進入していく様子が見られ、クラスターの速度よりもクラスター全体の持つ運動エネルギーが進入深さを決定していることが明らかになった。

クラスターの固体への進入に従ってクラスターがどのようにエネルギーを失ったかを調べた。図2の計算で用いた条件、すなわちクラスター全体の運動エネルギーを同じにしてクラスターサイズを変えたときのエネルギーロスを図3に示す。クラスターサイズが変化しても固体中でのエネルギーロスの様子はほぼ同じであり、クラスターがあたかも一つの粒子のように振る舞っていることが分かる。これは、固体表面に衝突したときに、クラスター原子はターゲット原子だけでなくクラスター原子同士の衝突も起こることにより、クラスター全体では大きくエネルギーを失うことなくの固体に進入していくためと考えられる。

このように、クラスターの衝突によるクラスターの固体中への進入や崩壊は、クラスターの持つ運動エネルギーによって大きく支配されており、クラスター衝突の持つ多体効果が顕著に現れてくる。

3. まとめ

クラスターの固体表面での衝突においては、衝突によってクラスターが崩壊することなくクラスターとしての形を維持しながら固体中に進入していく。また、そのときの進入深さはクラスターのサイズあまり依存しておらずクラスター全体の持つ運動エネルギーによって決まるということが明らかになり、あたかもクラスターが一つの粒子のように固体に進入していく。

参考文献

- [1] I.Yamada and G.H.Takaoka, Jpn.J.Appl.Phys., 32 (1993) 2121.
- [2] I.Yamada, W.L.Brown, J.A.Northby and M.Sosnowski, Nucl. Instr. and Meth., B79 (1993) 223.
- [3] I.Yamada, G.H.Takaoka, M.I.Current, Y.Yamashita and M.Ishii, Nucl. Instr. and Meth., B74 (1993)341.
- [4] G.H.Takaoka, G.Sugahara, R.E.Hummel, J.A.Northby, M.Sosnowski and I.Yamada, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 316 (1994) 1005.
- [5] Z.Insepov, M.Sosnowski and I.Yamada, Advanced Materials '93 IV/Laser and Ion Beam Modification of Materials, ed. I.Yamada et al., Trans. Mat. Res. Soc. Jpn. Vol.17 (Elsevier 1994) 1110.
- [6] F.H.Stillinger and T.A.Weber, Phy.Rev.,B31(1985) 5262