

フラクタル幾何学のスパッタリング現象への応用

剣持 貴弘

Application of the fractal topography to sputtering

Takahiro KENMOTSU

1. ACAT コード

モンテカルロ・シミュレーションコード ACAT [1] は岡山理科大学の山村によって荷電粒子と固体との相互作用を解析するために開発され、現在までにスパッタリング収量、入射粒子の反射率などのデータ構築、イオン注入法による固体中の分布など広い分野で活用されてきた。

これまでの ACAT コードは固体表面をほぼ完全な平面として設定し解析を行ってきた。しかしながら、実際のターゲット表面は原子スケールで見ると凹凸があり、スパッタリング収量に関しては、斜めから粒子が入射される場合に、その影響が大きいことが実験的に知られている [2]。

本研究では、シミュレーション・コードをより現実的な条件で解析が行えるようにフラクタル曲面を用いて原子スケールの凹凸を生成し、スパッタリング収量の入射角依存性を解析した。

固体表面の微視的な凹凸を考慮したシミュレーションを行うにあたって、従来の ACAT コードから改良した点は、3つあり、1つはフーリエ・フィルタリング法 [3] を採用したことである。2つ目は従来の ACAT コードが固体表面の標的原子から

の引力を平板ポテンシャルで評価していたのに対して、多体ポテンシャル (many-body tight-binding potential) [4] を用いて評価したことである。最後に、ターゲットと粒子の入射角に関して、ターゲットは周期境界条件を設け、本研究では横方向に100 ユニット・セルの幅を周期とした。また、入射角は偏角を初期条件で与え、方位角は擬似乱数を用いて入射粒子ごとにランダムに決定した。完全平面を想定している場合は、方位角をランダムにとる必要はないが、表面の凹凸を考慮した場合は、解析結果に入射粒子の方位角依存性を反映しないように、入射粒子を方位角に関してランダムに入射させる必要がある。以下に、ACAT コードのモデルと3つの改良点の簡単な説明をする。

1-1. ACAT モデル

ACAT コードは原子の衝突過程を運動粒子と標的原子の2つの粒子のみを考慮するという2体間衝突近似モデルを採用し、ターゲットはターゲットの密度 N (g/cm^3) から決められる格子定数 $R_0 = N^{-1/3}$ を1辺とするユニット・セルに分割し、そのセルの中にランダムにターゲット原子を発生させることで

アモルファス・ターゲットを生成している。図 1-1-1 に ACAT コードの概念図を示す。

固体表面の取り扱いについては、ユニットセル・モデルを採用していることにより、標準的な ACAT コードによる解析には格子定数の半分程度の凹凸が考慮されていることになる。図 1-1-1 を表面近傍に関して詳しく示したのが図 1-1-2 である。

また、図 1-1-3 に 2 体間衝突近似モデルを示す。図 1-1-3 より、 p は衝突係数、 E は入射エネルギー、入射粒子の質量 M_1 、ターゲット原子の質量 M_2 、 Θ は重心系の散乱角、 Φ は実験室系の反跳角、 T はターゲット原子の反跳エネルギーである。

ここで、原子衝突を弾性散乱と仮定し、入射粒子とターゲット原子の間に働くポテンシャルを $V(r)$ とすると重心系の散乱角 Θ は次式で与えられる。

$$\Theta = \pi - 2p \int_0^{\infty} dr [r^2 g(r)]^{-1}.$$

ここに、

$$g(r) = \left[1 - \frac{p^2}{r^2} - \frac{v(r)}{E_r} \right]^{\frac{1}{2}},$$

r は原子間距離で、特に r_0 は $g(r_0) = 0$ を満たす近日点である。また、 $E_r = \frac{A}{(A+1)}E$ は相対エネルギーであり、 $A = M_2/M_1$ である。

重心系の散乱角 Θ から、反跳エネルギー T と実験室系の散乱角 $\hat{\theta}$ が次式で与えられる。

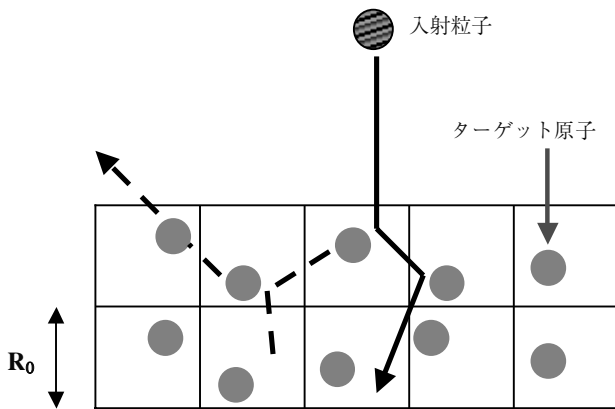


図 1-1-1 ユニットセル・モデル

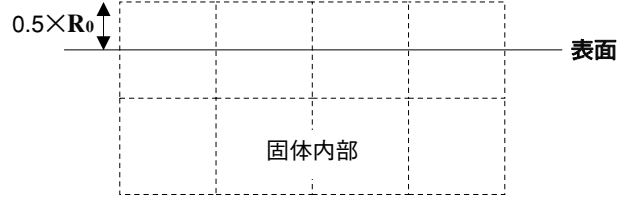


図 1-1-2 通常の表面モデル

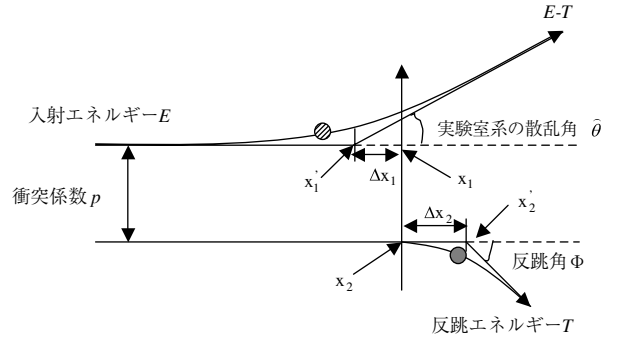


図 1-1-3 2 体間衝突近似モデル

$$T = \frac{4A}{(A+1)^2} E \sin^2 \left(\frac{\Theta}{2} \right),$$

$$\hat{\theta} = \tan^{-1} \frac{A \sin \Theta}{1 + A \cos \Theta}.$$

また、散乱後の入射粒子とターゲット原子の位置 X'_1 、 X'_2 は衝突前のそれぞれの位置 X_1 、 X_2 と ΔX_1 、 ΔX_2 を用いて、

$$X'_1 = X_1 - \Delta X_1,$$

$$X'_2 = X_2 + \Delta X_2,$$

で決められる。ここで、 ΔX_1 、 ΔX_2 は以下の式で与えられる。

$$\Delta X_1 = \frac{2\tau + (A-1)P \tan \frac{\Theta}{2}}{(1+A)},$$

$$\Delta X_2 = p \tan \frac{\Theta}{2} - \Delta X_1.$$

τ は time integral であり、次式で定義される。

$$\tau = (r_0 - p^2)^{\frac{1}{2}} - \int dr \left\{ \frac{1}{\sqrt{1 - V(r)/E_r - p^2/r^2}} - \frac{1}{\sqrt{1 - p^2/r^2}} \right\}.$$

表面の凹凸によるスパッタリング収量への影響を評価するために、格子定数の半分程度の粗さを考慮することができる標準的な ACAT コードと表面の標的原子の位置を深さ 0 の完全平面にした場合のシミュレーション結果を図 1-1-4 に示す。図より、入射角が 50 度くらいでは、どちらのモデルの解析結果も、ほぼ同じであるか、それ以上の角度になると、完全水平面モデルの方がスパッタリング収量が大きくなる。また、スパッタリング収量の入射角依存性に関しては表面の凹凸が考慮されているモデルの方が依存性が少ないことが分かる。また、2 つのモデルにおける入射粒子の反射率を解析した結果が図 1-1-5 である。図より、表面の凹凸によって入射粒子の反射率が完全平面に比べて大きくなることが分かる。この傾向は入射角が大きくなるにつれて顕著になり、そのため表面の凹凸がある方がスパッタリング収量の入射角依存性が完全平面の場合に比べて少なくなることが考えられる。

1-2. 表面凹凸の生成モデル

前節においは、表面の凹凸のスパッタリング収量への影響を評価するために通常の ACAT コードと完全平面の場合との違いの解析を行ったが、本研究では、より詳細に表面の凹凸による影響を調べるために、フラクタル幾何学（フーリエ・フィルタリング法）を採用した。フーリエ・フィルタリング法では、以下のようにして原子スケールの固体表面の粗さ（凸凹）を生成する。

まず、水平位置 $r = xi + yj$ に対する高さ z は 2 次元離散フーリエ逆変換から与えられる。

$$z(r) = \sum_{k_x=0} \sum_{k_y=0} \{A(k)\cos(k \cdot r) + B(k)\sin(k \cdot r)\},$$

ここで、 $k = k_x i + k_y j$ は波数ベクトル、 $A(k)$ 、 $B(k)$ はフーリエ係数の実部と虚部である。 $A(k)$ 及び $B(k)$ はスペクトル密度 $S(k)$ が次式を満たす実乱数として抽出される。

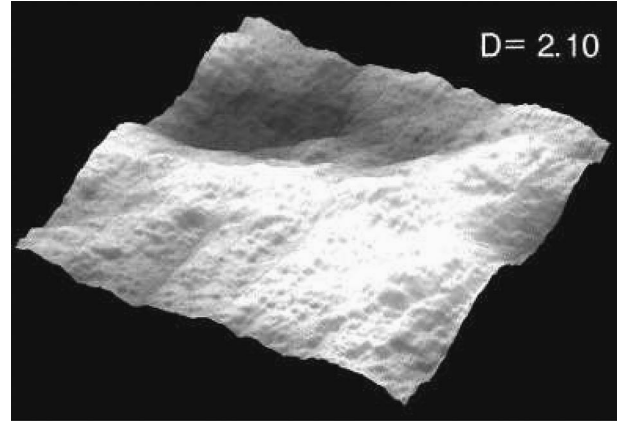


図 1-2-1 フラクタル曲面 (2.1次元)

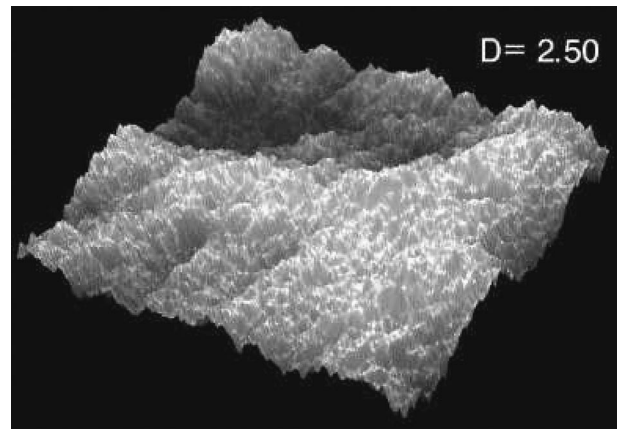


図 1-2-2 フラクタル曲面 (2.5次元)

$$A^2(k) + B^2(k) = S(k) \propto (|k|^2)^{-\beta} = (k_x^2 + k_y^2)^{-\beta},$$

ここで、 $\beta = 4 - D$ で $D (2 \leq D \leq 3)$ はフラクタル次元である。図 1-2-1、1-2-2 にフーリエ・フィルタリング法によって生成したフラクタル曲面を示す。

図 1-2-1、1-2-2 より、フラクタル次元が大きいほど表面の複雑さが増す。特に、凹凸のない完全な平面はフラクタル次元が 2 になり、空間を覆いつくすほど表面形状が複雑な表面はフラクタル次元が 3 に近い値をとる。

1-3. 多体ポテンシャル

本研究において、表面近傍の原子に作用するエネルギー E_s を評価するために以下に示す多体ポテンシャルを採用した。

$$E_s = \sum (E_i^R + E_i^B),$$

ここで、 E_i^R と E_i^B は i 番目の原子の斥力項と引力項である。 E_i^R と E_i^B は次式で与えられる。

$$E_i^R = \sum U_{ij}(r_{ij}),$$

$$U_{ij}(r_{ij}) = A \exp(-p(r_{ij}/r_0 - 1)),$$

$$E_i^B = - \left(\left(\sum_{j \neq i} \phi(r_{ij}) \right) \right)^{\frac{1}{2}},$$

$$\phi(r_{ij}) = \xi^2 \exp(-2q(r_{ij}/r_0 - 1)),$$

ここで、 r_{ij} は i 番目の原子と j 番目の原子の間の距離。 A 、 ξ 、 p 、 q 、 r_0 はターゲットの種類によって決められるパラメータで、本研究で扱うモリブデン (Mo) に対しては、それぞれ、0.2043、2.5097、10.0154、2.0511、2.7253 [4] が与えられている。

1-4. 境界条件と方位角

最後の3つ目は、粒子の入射に関して、ターゲットに周期境界条件を設け、本研究では横方向に関して100ユニット・セルの幅を周期とした。周期境界条件の概念図を図1-4-1に示す。また、入射角度に関しては、生成されたフラクタル表面の構造がシミュレーション結果に影響しないように偏角は初期条件で与えるが、方位角は擬似乱数を使って入射粒子ごとにランダムに決める方法をとった。

2. スパッタリング収量の解析結果

図2-1に2 keVの重水素イオンをモリブデンに照射した場合の規格化されたスパッタリング収量に関する入射角依存性を示す。規格化は垂直入射のスパッタリング収量を用いて行った。実験データ[5]に比べて、標準的なACATコードの計算結

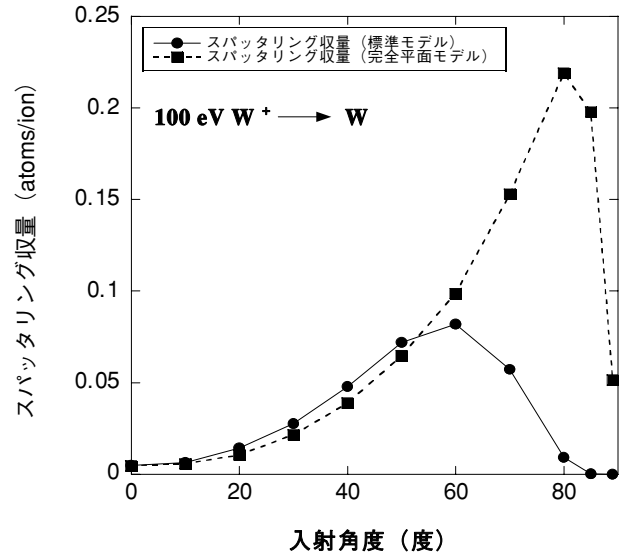


図1-1-4 100eVのタングステニオンをタングステン (W) ターゲットに照射した場合のスパッタリング収量の入射角依存性

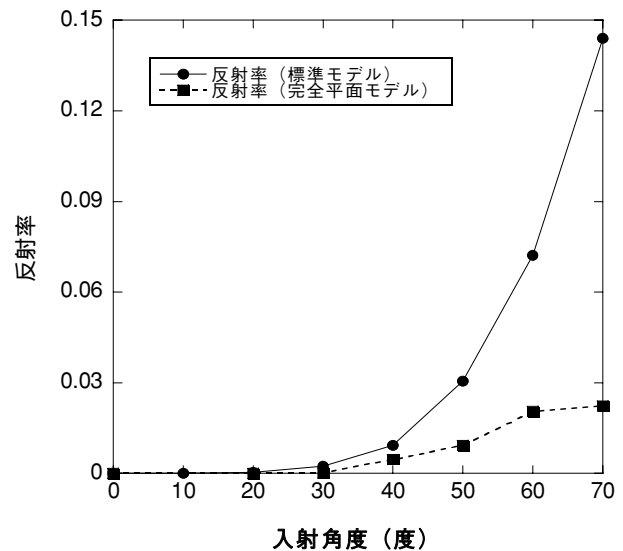


図1-1-5 100eVのタングステニオンをタングステン (W) ターゲットに照射した場合の反射率の入射角依存性

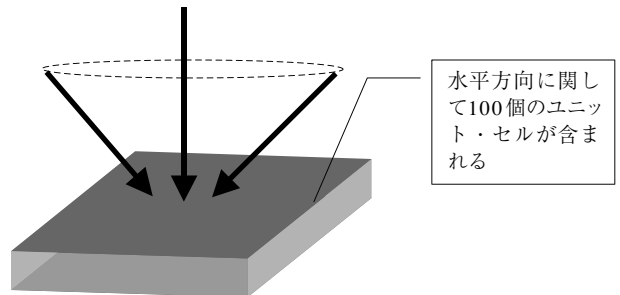


図1-4-1 周期境界条件の概念図

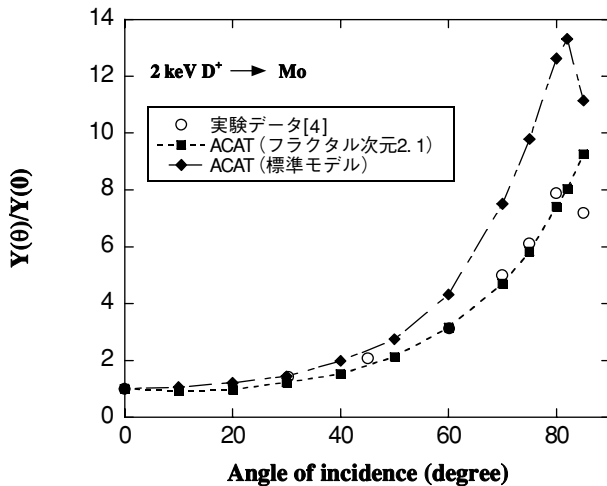


図2-1 2 keV の D イオンをモリブデン (Mo) ターゲットに照射した場合のスパッタリング収量の入射角依存性に関する実験データ [5] と ACAT コードの解析結果

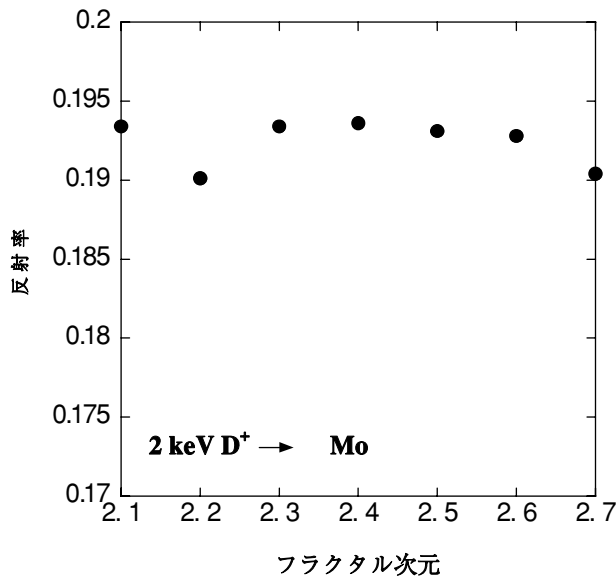


図2-2 2 keV の D イオンをモリブデン (Mo) ターゲットに照射した場合(垂直入射)の反射率とフラクタル次元の関係

果がどの入射角度においても大きいのがわかる。特に、入射角が50度を超えるとこの違いは大きくなる。これは、図1-1-4で示した反射率に関係して表面の凹凸がある場合の方がより多くの入射粒子が反射しスパッタリングに寄与しないためと考えられる。これに対してフラクタル次元を2.1にした場合、実験結果とよい一致がみられる。図2-1の2種類の ACAT コードの解析条件の違いは固体表面の粗さの違いのみであるが(標準的な ACAT コー

ドは格子定数の半分程度の凹凸を考慮することができる)、表面の粗さがスパッタリング収量に影響し、またこの実験に用いられたターゲットの表面がフラクタル次元は2.1に近い形状をしていたと考えられる。

実験データとフラクタル ACAT コードの計算結果の比較において、入射角度が80° をこえるような斜入射の場合、実験データが減少するのに対して、シミュレーション結果が増加している。この傾向の違いは、現在のところ今回採用したフラクタル曲面生成モデルが影響していると考えている。今後は、中点変位法などの別のフラクタル曲面生成モデルを用いて、モデル依存性を調べる必要があると思われる。

また、2つの ACAT コードシミュレーションに関して、参考文献[6]で規格化していないスパッタリング収量自体を比較したものを示しているが、表面の凹凸を考慮した方が入射角全般にわたってスパッタリング収量が小さい。これは、スパッタリング収量がターゲットの密度に比例しているためであると考えられる。つまり、固体表面の凹凸があると、スパッタリングへの寄与が大きい表面近傍のターゲットの密度が、固体内部より小さくなりスパッタリング粒子となりうるターゲット原子数が減少するためである。

最後に図2-2に入射粒子の反射率とフラクタル次元の関係を示すが、反射率にフラクタル次元依存性はあまりみられない。このことに関しても、前述のスパッタリング収量同様、フラクタル曲面生成モデル依存性を検証する必要があるように思われる。

3. まとめ

本研究において、固体表面の凹凸がスパッタリング現象にどのように寄与するかを評価するために、フーリエ・フィルタリング法によってフラクタル曲面を生成しモンテカルロ・シミュレーションコード

ACATに取り入れた。このフラクタルモデルにおいて、表面の凹凸の度合いはフラクタル次元で決められ、今回の解析では実験データに合うように2.1に決められた。

また、固体表面近傍の原子からの相互作用エネルギーとして、多体効果を考慮できる many-body tight-binding potential を採用し、従来の ACAT コードが引力項のみを考慮していたのに対し、引力、斥力のどちらも評価できるように改良した。

本研究では、 $2\text{ keV D}^+ \rightarrow \text{Mo}$ の2つのスパッタリング収量に関する実験データを基に解析を行った。従来の ACAT コードの解析結果は実験データより大きい値を示す。このことから、実験に用いたターゲット表面の凹凸が格子定数の半分以上であった可能性が考えられる。スパッタリング実験に関して、実験を行う前に希ガスイオンや電子を照射し表面をクリーニングするのであるが、クリーニングの状況によって、それぞれの実験において使われるターゲットの表面の状態がかなり異なるのではないかと

考えられる。今回の解析ではフラクタル次元を2.1にした場合に実験データをよく再現できることから、表面の凹凸がフラクタル次元2.1に近い形状をしていたのではないかと考えられる。本研究によって、表面の凹凸がスパッタリングに寄与していることがわかる。固体表面の凹凸は表面近傍の密度を小さくする働きをするために、それに伴ってスパッタリング収量が減少することが明らかにされた。

参考文献

- 1) Y. Yamamura and Y. Mizuno, IPPJ-AM-40, Inst. Plasma Physics Nagoya Univ. (1985).
- 2) M. A. Shaheen and D. N. Ruzic, J. Vac. Sci. Technol. A 11, 3085 (1993)
- 3) M.F. Barnsley, R.L. Devaney, B.B. Mandelbrot, H.O. Peitgen, D. Saupe and R.F. Voss, in: The Science of Fractal Images, Springer-Verlag, New York, 1988.
- 4) M. A. Karolewski, Radiat. Eff. 153, 239 (2001).
- 5) H. L. Bay and J. Bohdansky, Appl. Phys. 19, 421 (1979).
- 6) T. Kenmotsu et al., Nucl. Instr. and Meth. B228, 369 (2005)