

小特集 周辺プラズマからプラズマ対向壁材料までのシミュレーションコード・モデルの最前線

4. 二体衝突近似・モンテカルロ法による イオン・固体相互作用シミュレーション

斎藤 誠紀, 河村 学思¹⁾, 井内 健介²⁾

名古屋大学大学院工学研究科, ¹⁾核融合科学研究所ヘリカル研究部, ²⁾徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部

(原稿受付: 2010年8月26日)

イオンやプラズマ照射下における, 物理スパッタリングによる固体表面の損耗過程を評価するため, 古典的な弾性衝突理論を用いた二体衝突近似モデルにて, 固体中での原子衝突過程を取り扱うシミュレーションコードが, 広く利用されている. このようなコードでは, 固体内の電子との非弾性衝突によるエネルギー損失と, 最も強い相互作用をする2原子間の弾性衝突の連続として固体内での粒子軌道を計算する. 本章では二体衝突近似を用いたイオン・固体相互作用コードの理論モデルについて解説する.

Keywords:

binary collision approximation, plasma wall interaction, material, scattering, sputtering, Monte Carlo method

4.1 はじめに

イオンと固体原子の衝突過程の詳細な取り扱いは大変複雑(第5章参照)であるが, イオンの運動エネルギーが十分に高い領域(>100 eV)においては, 本来は多体衝突である原子衝突を, 最も強い相互作用をする2原子間の衝突として近似することができる(二体衝突近似). この考え方を基にして, イオンを非結晶(アモルファス)の固体に衝撃させた場合の, 入射粒子の反射や固体原子のスパッタリングなどをシミュレーションするコードに ACAT[1], EDDY[2], TRIM.SP[3]などがある.

これらのシミュレーションコードでは, 材料中の入射イオンの衝突過程と, 衝突によってエネルギーを付与された固体原子の衝突カスケード過程を, モンテカルロ法を用いて追跡しており, 衝突により表面に達した原子は, その運動エネルギーの法線方向成分が表面結合エネルギー(通常, 昇華エネルギー)より大きい場合に表面から放出される. 個々の衝突過程は, 選ばれる乱数によって変化するため, イオンの入射を繰り返し行い, 放出された粒子のエネルギーや角度分布, 反射率・スパッタリング率を計算する.

本章では, 二体衝突近似を用いたイオン・固体相互作用コードの理論モデルについて解説する.

4.2 二体衝突理論

図1(a)に示すように, 無限遠方から飛来した入射粒子が初速度 v_i , 衝突パラメータ b で, 静止したターゲット粒子と相互作用する場合を考える. 粒子間には2粒子の相対距離によって決まる2体ポテンシャル $V(r)$ による中心力

のみが働くとする. このときの入射粒子とターゲット粒子の散乱角と散乱後の運動エネルギーを求める.

4.2.1 散乱角の導出

弾性衝突を仮定して散乱角を求める. 2体の衝突問題は2粒子の相対位置ベクトルを r , 換算質量を μ として, 独立した1体問題へと帰着させることができる. 角運動量保存則より, 運動は角運動量ベクトルに垂直な面内に制限される. このため, 系の自由度は3から2へと減る. この平面内で, r の角速度を $\dot{\theta}$ とすると, $\dot{\theta}$ は衝突の間, 時々刻々変化するが, 角運動量 $\mu r^2 \dot{\theta}$ は保存される. 衝突前の角運動量は $\mu v_i b$ に等しいから角速度は,

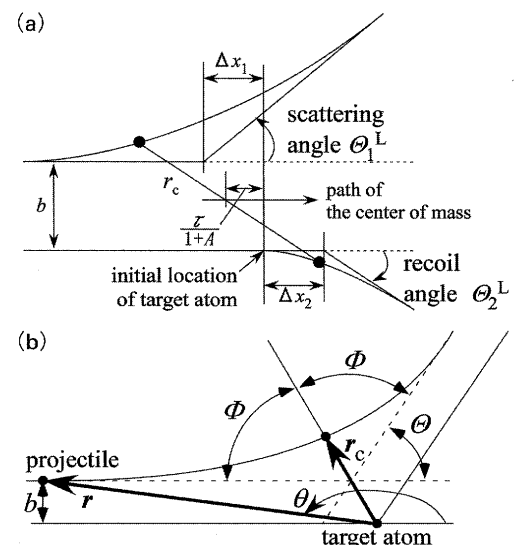


図1 (a)実験系と(b)相対座標系における二体衝突[1].

4. Simulation for Ion-Material Interaction by Binary Collision Approximation and Monte-Carlo Method

SAITO Seiki, KAWAMURA Gakushi and INAI Kensuke

corresponding author's e-mail: saito.seiki@nifs.ac.jp

$$\dot{\theta} = v_i b / r^2 \quad (1)$$

と書け、相対距離の関数として表すことができる。重心速度は一定であるため、エネルギー保存則より、

$$\epsilon = \frac{1}{2} \mu (\dot{r}^2 + r^2 \dot{\theta}^2) + V(r) \quad (2)$$

は保存量である。初期状態では2つの粒子は無限遠方に位置していて、2つの粒子は相互作用していないと考え、 $V(\infty) = 0$ であり、 ϵ は初期の相対運動エネルギー $K_i = \mu v_i^2 / 2$ に等しい。このことを用いて、式(2)の第2項に式(1)を代入し、 $\dot{r}$ について解けば、

$$\dot{r} = \pm v_i g(r), \quad g(r) \equiv \sqrt{1 - \frac{V(r)}{K_i} - \left(\frac{b}{r}\right)^2} \quad (3)$$

を得る。2粒子が最も近づくと、 $\dot{r} = 0$ であるから、最近接距離 r_c は、 $g(r_c) = 0$ の解として求まる。

式(1)と式(3)より、

$$\frac{dr}{d\theta} = \frac{\dot{r}}{\dot{\theta}} = \pm \frac{r^2 g(r)}{b} \quad (4)$$

となる。図1(b)に示すとおり、 $r = r_c$ のときの角度を $\theta = \Phi$ とすると、 Φ は初期状態から入射粒子とターゲット粒子の最近接点まで θ を積分すればよい。これは、式(4)を用いて、

$$-\Phi = \int_{\pi}^{\Phi} d\theta = \int_{r_c}^{\infty} \frac{dr}{r^2 g(r)} \quad (5)$$

と計算できる。散乱角を Θ とすると、粒子軌道の対称性から $2\Phi + \Theta = \pi$ なる関係があるから、結局散乱角 Θ は、

$$\Theta = \pi - 2b \int_{r_c}^{\infty} \frac{dr}{r^2 g(r)} \quad (6)$$

として求まる。

衝突前にターゲット粒子が静止しているような実験系を考える。実験系での入射粒子の散乱角 Θ_1^L は相対座標系での散乱角 Θ を用いて、

$$\tan \Theta_1^L = \frac{A \sin \Theta}{1 + A \cos \Theta} \quad (7)$$

として求めることができる。ただし、 $A = m_1/m_2$ はターゲット粒子と入射粒子の質量比である。また、ターゲット粒子の散乱角 Θ_2^L は、

$$\tan \Theta_2^L = \tan \left(\frac{\pi}{2} - \frac{\Theta}{2} \right) \quad (8)$$

となり、 $\Theta_2^L = \Phi$ なる関係がある。

二体衝突近似では、粒子軌道をその漸近線で近似する。図1(a)に示すように、入射粒子の漸近線はターゲット粒子の初期位置から Δx_1 だけ左方へ、ターゲット粒子では Δx_2 だけ右方へとずれる。 Δx_1 と Δx_2 は次のように計算される。

$$\Delta x_1 = \frac{1}{1+A} \left[2\tau + (A-1)b \tan \frac{\Theta}{2} \right] \quad (9)$$

$$\Delta x_2 = b \tan \frac{\Theta}{2} - \Delta x_1 \quad (10)$$

ここで、 τ は time integral と呼ばれる量で、次式で与えられる。

$$\tau = \sqrt{r_c^2 - b^2} - \int_{r_c}^{\infty} \left(\frac{1}{g(r)} - \frac{r}{\sqrt{r^2 - b^2}} \right) dr \quad (11)$$

4.2.2 衝突後の運動エネルギーの見積もり

弾性衝突の場合、エネルギー保存則と運動量保存則から衝突後の運動エネルギーを求めることができる。衝突前にターゲット粒子は静止しているとする。衝突前の入射粒子の運動エネルギーを E_i 、相対座標系での散乱角を Θ とすると、衝突によってターゲット粒子が得た運動エネルギー ΔE は、

$$\Delta E = \frac{4m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} \sin^2 \frac{\Theta}{2} \cdot E_i \quad (15)$$

となる。ここで、 m_1, m_2 は入射粒子とターゲット粒子の質量である。

衝突時の入射粒子の速度が、ターゲット原子の電子軌道速度と同程度かそれより速い場合には、ターゲット原子の電子励起に伴うエネルギー損失が生じる。多くの二体衝突近似コードでは、弾性衝突を仮定して衝突後の散乱角と運動エネルギーを見積もった後、エネルギー損失分を運動エネルギーから差し引いている。

荷電粒子が材料中を移動するとき、単位長さ進む間に失うエネルギーを阻止能と呼ぶ。いま、入射粒子が非弾性衝突によって T と $T+dT$ との間のエネルギーを失う微分断面積を $d\sigma$ とすると、粒子の運動エネルギー E が単位長さ進行する間に失うエネルギー $-dE/dx$ は、

$$-\frac{dE}{dx} = N \int T d\sigma \quad (16)$$

で与えられる。ここで N は粒子密度である。原子1個あたりの阻止能 $S = \int T d\sigma$ は面積×エネルギーの次元を持ち、阻止断面積と呼ばれる。Born 近似が成り立つ条件での高速荷電粒子に対する阻止断面積は Bethe[4]によって求められ、

$$S = \frac{4\pi e^4 Z_1^2 Z_2}{m v_i^2} \times \left[\ln \frac{2m v_i^2}{I} + \ln \frac{1}{1-\beta} - \beta^2 - \frac{C}{Z_2} \right] \quad (17)$$

で与えられる。ここで、 m_e, e は電子の質量、電荷、 Z_1, Z_2 はそれぞれ、入射粒子、ターゲット粒子の原子番号である。式(17)の第2項、第3項は相対性理論を考慮することによって現れる項で β は入射粒子の速度と光速の比である。第3項の C は内殻補正と呼ばれる量であり、Born 近似が適用できない低エネルギー領域まで式の適用範囲を広げるための補正項である。 I は平均の励起エネルギーと呼ばれる量で、ターゲット原子のすべての励起状態について、

その励起エネルギーの対数を振動子強度を重率として平均したものである。

低速荷電粒子に対する阻止断面積に対しては、Born近似を用いることができないから、量子力学的な取り扱いは非常に複雑となる。この領域の速度をもつ荷電粒子については、いくつかの半古典的理論が提案されている。Lindhard [5]の理論によれば、この領域での阻止断面積は

$$S = Z_1^{1/6} \times 8\pi e^2 a_0 \frac{Z_1 Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \times \left[\frac{v_i}{v_0} \right] \quad (18)$$

で与えられる。ここで、 a_0 , v_0 はそれぞれ、ボーア半径、ボーア速度である。

非弾性散乱を扱う方法は様々あるが、以下では二体衝突近似コードのひとつである ACAT コードの例を紹介する。ACAT では、水素とヘリウム原子に関して、高エネルギー領域での阻止断面積の表式(17)と、低エネルギー領域での表式(18)をつなぐために以下のような $A_1^{(k)} \sim A_4^{(k)}$ の4つのパラメータを持つ関数でフィッティングを行っている[6]。ただし、添え字 k は粒子種を表し、H もしくは He である。

$$S_{\text{HIGH}}^{(k)} = \frac{A_1^{(k)}}{E} \ln \left(1 + \frac{A_2^{(k)}}{E} + EA_3^{(k)} \right) \quad (19)$$

$$S_{\text{LOW}}^{(k)} = A_4^{(k)} E^{1/2} \quad (20)$$

$S_{\text{HIGH}}^{(k)}$ は式(17)に、 $S_{\text{LOW}}^{(k)}$ は式(18)に対応する。このとき阻止断面積 $S^{(k)}$ は $S_{\text{HIGH}}^{(k)}$ と $S_{\text{LOW}}^{(k)}$ の調和平均として、

$$S^{(k)} = \frac{S_{\text{LOW}}^{(k)} S_{\text{HIGH}}^{(k)}}{S_{\text{LOW}}^{(k)} + S_{\text{HIGH}}^{(k)}} \quad (21)$$

として求める。ヘリウムより重い元素に対しては(18)式を直接用いて、阻止断面積を求めている。エネルギー損失を求めるためには、(18)式または(21)式から求めた阻止断面積を用いて、

$$\Delta E^{(k)} = L_m N S^{(k)} \quad (22)$$

として求めることができる。ここで、 L_m は、衝突間の距離、 N は粒子密度である。ACAT には式(22)以外に、エネルギー損失を求める方法として、Oen-Robinson のモデル [7] が組み込まれている。ユーザーは2つの方法を適宜選択して利用できる。

4.3 モンテカルロ法によるアモルファス材料の取り扱い

二体衝突近似モデルを扱うシミュレーションコードには ACAT, EDDY, TRIM などがある。3つのコードはスパッタリング率など、多数の粒子入射による統計量を採用するためによく利用される。統計量を効果的に得るために、ターゲット材料にアモルファス材料を想定し、二体衝突のパラメータを乱数により決めるモンテカルロ法が利用されている。二体衝突のどのパラメータをランダムとするかは各コードによって異なる。以下に各コードの相違点につい

て述べる。

EDDY, TRIM コードでは、図2(a)に示すように、衝突パラメータと方位角 φ をランダムに決める。材料中を移動する粒子が衝突パラメータ b でターゲット粒子と衝突するとする。粒子の平均自由行程は $\lambda = N^{-1/3}$ であるから、 b の範囲を $0 \leq b \leq b_{\text{max}} = \pi^{-1/2} N^{-1/3}$ とすれば、 $\lambda \cdot \pi b_{\text{max}}^2 = N^{-1}$ となり、粒子密度が N であることが保証される。

次に ACAT コードでの乱数のとり方について説明する。図2(b)に示すように ACAT コードでは材料をセルに分割する。材料に粒子が入射した場合、入射粒子が所属するセルを計算し、そのセル内にターゲット粒子を1つランダムな位置に配置する。このターゲット粒子と入射粒子との二体衝突を計算することで入射粒子は次のセルへと移動する。セルの間隔を $l = N^{-1/3}$ とすることで、粒子密度が N のアモルファス材料を作り出す。

最近では、各セル内にランダムに配置していたターゲット粒子を任意の座標に設定でき、結晶構造を含む任意構造を取り扱えるよう改良された ACVT [8] コードが開発されている。材料構成粒子の結晶構造の違いが有意な差を生む。図3に炭素アモルファス材料とグラファイト結晶に水素イオンを照射した場合の水素イオン反射率のグラフを示す[9]。アモルファス材料は ACAT, グラファイト結晶は ACVT コードで計算を行った。グラファイト結晶では入射角が30~40度で反射率は小さくなる。これはチャネリングの効果が表れているためだと考えられる。ACVT では、散乱による原子配置の変化を記録するため、イオン照射に伴う結晶構造からアモルファス構造への転移の様子を調べることができる。このような物理過程を経て生じたアモルファス構造は、ACAT, EDDY, TRIM のように原子をランダムに配置した場合と比べ、現実のアモルファス構造に近い構造を作り出せると期待できる。

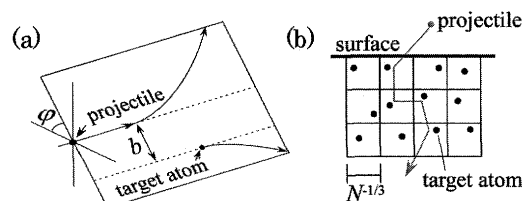


図2 (a) TRIM, EDDY と (b) ACAT でのアモルファス構造の取り扱い。

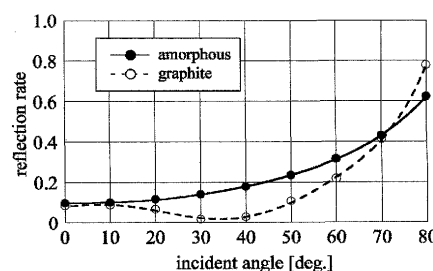


図3 アモルファス、グラファイト結晶における水素イオン反射率の角度依存性。入射エネルギーは1 keV [9]。

4.4 おわりに

本章では二体衝突近似の理論モデルについて、ACAT, EDDY, TRIM コードにおける材料の取り扱い方の相違点を交えて概説した。二体衝突近似モデルはプラズマ・壁相互作用の研究に広く利用されているシミュレーションモデルであるが、実機における非接触プラズマからダイバータ板に流入するイオンのエネルギーは低く (<数十 eV), この領域では、二体衝突近似モデルの信頼性が低下する。さらに、炭素材がプラズマ対向壁として使用された場合、二体衝突近似モデルでは模擬できない化学スパッタリングの効果が重要となる。このような背景から、最近では分子動力学法を用いたシミュレーション研究も盛んに行われている (第5章参照)。さらに、二体衝突近似モデルと分子動力学法を結合したハイブリッドシミュレーションも開発されている。(第6章3節参照)

最後になりましたが、二体散乱近似研究に関してご指導くださった中村浩章先生、高山有道先生、伊藤篤史先生 (核融合研)、大宅薫先生 (徳島大)、剣持貴弘先生 (同志社大) に感謝いたします。この他にも、本章で紹介した理論

モデルはプラズマ・材料研究に携わってこられた多くの先生方の研究成果です。僭越ながら実際にシミュレーションコードを運用する立場から紹介しました。

参考文献

- [1] Y. Yamamura and Y. Mizuno, IPPJ-AM-40, Inst. Plasma Phys., Nagoya Univ.
- [2] K. Ohya, Phys. Scr. T124, 70 (2006).
- [3] J.P. Biersack and W. Exkstein, Appl. Phys. A34, 73 (1984).
- [4] H.A. Bethe, Ann. der Physik, 5, 325 (1930).
- [5] J. Lindhard, M. Scharff, and H.E. Schiott, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 33, 1 (1963).
- [6] H.H. Andersen and J.F. Ziegler, *The Stopping and Ranges of Ions in Matter* (1977).
- [7] O.S. Oen and M.T. Robinson, Nucl. Instr. 132, 647 (1976).
- [8] A. Takayama, S. Saito, A.M. Ito, T. Kenmotsu and H. Nakamura, to be published in Jpn. J. Appl. Phys. (2011).
- [9] A. Takayama, S. Saito, A.M. Ito, T. Kenmotsu and H. Nakamura, *9th International Conference on Tritium Science and Technology*. October 24-29, 2011, Nara, Japan, 3P07-50.