

02.3;13.2

Энергетические распределения вторичных заряженных частиц при распылении газовыми кластерными ионами

© А.Е. Иешкин^{1,2}, А.А. Татаринцев¹, Д.С. Киреев¹, В.И. Бачурин², А.С. Рудый²¹ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия² Ярославский государственный университет им. П.Г. Демидова, Ярославль, Россия

E-mail: ieshkin@physics.msu.ru

Поступило в Редакцию 16 декабря 2020 г.

В окончательной редакции 8 января 2021 г.

Принято к публикации 11 января 2021 г.

Проведено экспериментальное исследование энергетических спектров заряженных частиц, эмитированных из поликристаллической меди при облучении кластерными ионами аргона и ксенона. Положительные частицы, выбитые кластерными ионами, имеют существенно меньшие энергии, чем при распылении атомарным аргоном. Спектры заряженных частиц, эмитированных при бомбардировке кластерами ксенона, систематически уже, чем аналогичные спектры, полученные при бомбардировке кластерами аргона. Обнаруженные закономерности могут быть объяснены с точки зрения особенностей передачи энергии от кластера к мишени.

Ключевые слова: кластерные ионы, распыление, ионно-электронная эмиссия, энергетические распределения.

DOI: 10.21883/PJTF.2021.08.50849.18657

Физические процессы, происходящие при взаимодействии ускоренных газовых кластерных ионов с твердыми телами, являются предметом активных исследований на протяжении трех последних десятилетий. Взаимодействие атомарных ионов с веществом в достаточно широком диапазоне энергий хорошо описывается линейной теорией Зигмунда [1]. Однако при столкновении большого кластерного иона (например, $10 \text{ keV Ar}_{1000}^+$) с поверхностью практически вся его энергия выделяется локально в области столкновения (с учетом того, что часть исходной кинетической энергии кластера уносится затем отраженными атомами кластера и распыленными атомами мишени). Это приводит к созданию плотного нелинейного каскада столкновений, к описанию которого теория Зигмунда неприменима [2]. Так, хорошо известно, что угловые распределения атомарных частиц, распыленных кластерными ионами, имеют так называемую латеральную форму, т.е. существенная часть материала эмитируется под большими углами от нормали [3,4].

При решении технологических и исследовательских задач кластерные ионы широко используются для сглаживания рельефа поверхности [5,6], имплантации материала на сверхмалые глубины [7], осаждения тонких пленок [8], в качестве зонда или вспомогательного пучка в аналитических методиках [9]. Для управления структурой тонких пленок органических и неорганических веществ необходимо знать и контролировать энергию распыленных частиц, из которых идет формирование пленки. Однако если для распыления, происходящего в нелинейном режиме под действием малых металлических кластеров, известны модели (см., например,

работу [10] и ссылки в ней), то удовлетворительной теорией, описывающей интегральные или дифференциальные характеристики распыления большими газовыми кластерами, сегодня не существует.

В настоящей работе впервые экспериментально исследованы энергетические распределения вторичных положительно и отрицательно заряженных частиц, эмитированных из металла под действием газовых кластерных ионов различных энергий. Эксперименты осуществлялись на ускорителе кластерных ионов МГУ им. М.В. Ломоносова [11] в импульсном режиме подачи рабочего газа. В качестве бомбардирующих частиц использовались кластерные ионы аргона и ксенона. После ионизации кластеры ускорялись электростатической системой с разностью потенциалов 5–12.5 kV и фокусировались на образец. Атомарные ионы и легкие кластеры удалялись из пучка с помощью постоянного магнита. Размеры кластеров определялись при помощи времяпролетной системы измерений. Максимумы распределения кластеров по массам для аргона (при давлении рабочего газа на входе в сопло 5 bar) и ксенона (при давлении 3 bar) указаны в таблице. Плотность тока на образец контролировалась с помощью осциллографа и составляла несколько $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ в импульсе при нормальном падении ионного пучка.

Поверхность поликристаллической бескислородной меди шлифовалась механически и очищалась в ультразвуковой ванне в органических растворителях. Перед началом эксперимента образец облучался пучком кластерных ионов в течение получаса для удаления остаточных загрязнений. Давление в камере образца равнялось $3 \cdot 10^{-4}$ Pa перед экспериментом и $8 \cdot 10^{-4}$ Pa во время

Характеристики использованных в эксперименте кластерных ионов и измеренных энергетических распределений заряженных частиц

Газ	Атомная масса, a.m.u.	Максимум масс-спектра, atoms/charge	Энергия кластера, keV	Энергия на атом кластера, eV	Скорость кластера, 10^3 m/s	Ширина энергетического распределения положительных частиц, eV	Ширина энергетического распределения отрицательных частиц, eV
Ar	40	900	5 12.5	5.5 13.8	4.9 7.8	3 3.16	3.97
Xe	131	1000	5.8 10	5.8 10	2.4 3.4	2.4 2.66	3.14

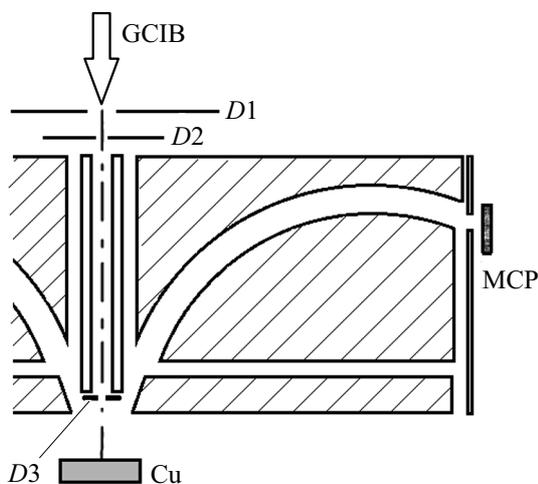


Рис. 1. Схема эксперимента. Показаны тороидальный электростатический энергоанализатор, направление падения пучка газовых кластерных ионов (GCIB), набор диафрагм (D_1 – D_3), микроканальные пластины (MCP), образец поликристаллической меди (Cu).

работы ионного источника; с учетом плотности ионного тока динамическое равновесие, реализуемое на поверхности в ходе эксперимента, соответствует окисленному состоянию. Для увеличения эффективности регистрации вторичных заряженных частиц на образец подавалось напряжение 15 V соответствующей полярности.

Энергетические распределения заряженных частиц исследовались с помощью тороидального электростатического анализатора с радиусом центральной траектории 17 mm (рис. 1). Разрешение анализатора составляет около 7% по полувысоте, направление на входную щель 25° от нормали. В результате использования отталкивающего потенциала, подаваемого на образец, частицы, захватываемые анализатором, соответствовали углам эмиссии 30 – 45° . Для восстановления формы распределения сигнал делился на текущую энергию. При полученных значениях разрешения и ширины измеренного спектра этот метод приводит к завышению ширины спектра приблизительно на 20% [12].

Предварительно было измерено распределение вторичных положительных частиц, эмитированных из меди при распылении атомарными ионами аргона. Полученный график приведен на рис. 2 вместе с данными [13] для аналогичных условий облучения при угле эмиссии вторичных ионов 19° , наблюдается довольно хорошее согласие. Энергетические распределения положительных и отрицательных частиц, измеренные при бомбардировке меди кластерными ионами аргона и ксенона, показаны на рис. 2. Видно, что они расположены при существенно меньших энергиях, чем при распылении атомарными ионами. Кроме того, можно отметить следующее.

1. Энергетические распределения как отрицательных, так и положительных частиц, выбитых кластерами аргона, шире, чем соответствующие распределения для ксенона. Максимумы распределений для аргона близки

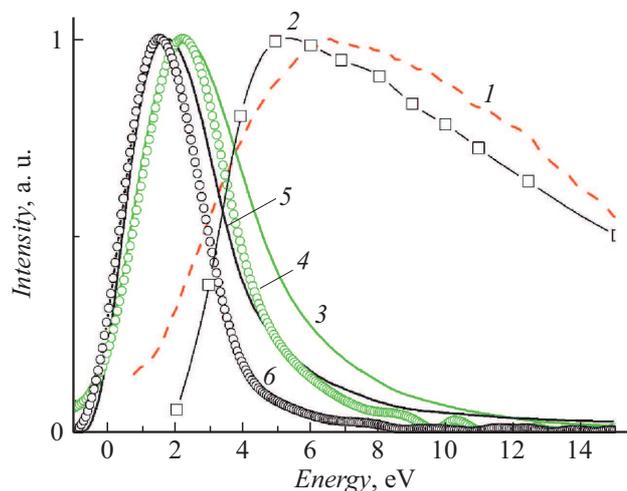


Рис. 2. Экспериментально измеренные спектры вторичных положительных и отрицательных частиц при распылении меди. 1 — регистрация положительных частиц, бомбардировка атомарными ионами аргона с энергией 10 keV; 2 — аналогичный спектр из работы [13]; 3 — регистрация отрицательных частиц, бомбардировка кластерами Ar_{900}^+ , 12.5 keV; 4 — регистрация отрицательных частиц, бомбардировка кластерами Xe_{1000}^+ , 10 keV; 5 — регистрация положительных частиц, бомбардировка кластерами Ar_{900}^+ , 12.5 keV; 6 — регистрация положительных частиц, бомбардировка кластерами Xe_{1000}^+ , 10 keV.

к максимумам соответствующих распределений для ксенона.

2. Максимумы распределений отрицательных частиц правее, чем максимумы распределений положительных частиц, и распределения отрицательных частиц шире, чем распределения положительных.

3. Распределения отрицательных частиц, выбитых аргонном и ксеноном, имеют одинаковый характер спада, то же относится и к распределениям положительных частиц.

В таблице приведены некоторые параметры ионных пучков и измеренных энергетических распределений, полезные для понимания полученных результатов. Обсуждая механизмы формирования энергетических распределений вторичных ионов, подчеркнем, что энергия, переносимая кластерным ионом, выделяется локально в области, температура которой может достигать нескольких десятков тысяч градусов [14]. В таких условиях наиболее вероятными являются механизмы распыления из тепловых пиков [15] или ударных волн [16]. Более того, вероятно, что оба механизма реализуются одновременно. Оценим температуру T_0 в момент столкновения кластера с энергией E_0 с веществом. Считая, что вся энергия кластера передается полусферической области V_c с радиусом, равным радиусу кластера, получим

$$\frac{3}{2} kT_0 = \frac{2E_0}{N_s V_c}, \quad (1)$$

где N_s — концентрации атомов в кластере. Для кластеров аргона с энергией 5 keV эта оценка дает значение $kT_0 = 3.2$ eV. Значение ширины спектра нейтральных распыленных частиц, полученное в теории тепловых пиков [15] при такой температуре ядра пика, равно 3.0 eV и увеличивается на несколько десятых eV при увеличении температуры ядра в 2 раза.

Энергетические распределения вторичных ионов, выбитых кластерами ксенона, систематически уже, чем распределения, полученные при бомбардировке ксеноном. Это можно объяснить тем, что скорость кластеров ксенона при той же энергии существенно меньше; следовательно, передача энергии происходит за более длительный промежуток времени, что приводит к меньшей начальной температуре теплового пика. Кроме того, из-за разницы масс аргона и ксенона эффективность передачи энергии атомам мишени также может значительно различаться.

Среди механизмов ионно-электронной эмиссии общепринятыми являются кинетическая и потенциальная эмиссия. При достаточно низких скоростях бомбардирующих ионов последняя обычно более выражена. Однако наиболее вероятные величины энергии электронов, вылетающих в результате потенциальной эмиссии из материала с работой выхода ϕ (для меди $\phi = 4.7$ eV), расположены вблизи $E_i - 2\phi$ [17]. Измеренные в эксперименте энергии отрицательных частиц заметно ниже этого значения даже с учетом уменьшения энергии иони-

зации атомов в составе кластерного иона. Вероятно, основным механизмом в данном случае является кинетическая эмиссия из горячей области. Подчеркнем, что, хотя кинетическая эмиссия под действием атомарных ионов активируется при энергии вблизи 1 keV/ion, напрямую сравнивать эту величину с энергией порядка 10 eV/atom в составе кластера не представляется правильным.

Таким образом, впервые проведено экспериментальное исследование энергетических распределений положительно и отрицательно заряженных частиц, эмитированных из поликристалла меди при бомбардировке пучками кластерных ионов аргона и ксенона. Вторичные положительные частицы, создаваемые при распылении кластерами, имеют существенно более низкие энергии, чем полученные при распылении в режиме линейных каскадов атомных столкновений. Спектры заряженных частиц, выбитых кластерами аргона, систематически шире, чем аналогичные спектры для кластеров ксенона. Кроме того, спектры вторичных ионов уширяются с увеличением энергии кластерных ионов при практически неизменном положении максимума. Эти особенности можно объяснить на основе рассмотрения кинетики передачи энергии от кластера к мишени. Спектры вторичных электронов лежат при больших энергиях, чем ионные спектры. Наиболее вероятным механизмом их формирования является кинетическая эмиссия электронов из горячей области.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках государственного задания Ярославского государственного университета им. П.Г. Демидова № 0856-2020-0006.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] P. Sigmund, Phys. Rev., **184**, 383 (1969). DOI: 10.1103/PhysRev.184.383
- [2] I. Yamada, J. Matsuo, N. Toyoda, A. Kirkpatrick, Mater. Sci. Eng. R, **34**, 231 (2001). DOI: 10.1016/s0927-796x(01)00034-1
- [3] Z. Insepov, I. Yamada, Nucl. Instrum. Meth. B, **99**, 248 (1995). DOI: 10.1016/0168-583X(95)00322-3
- [4] V.S. Chernysh, A.E. Ieshkin, D.S. Kireev, A.V. Nazarov, A.D. Zavilgelsky, Surf. Coat. Technol., **388**, 125608 (2020). DOI: 10.1016/j.surfcoat.2020.125608
- [5] Н.Г. Коробейщиков, И.В. Николаев, М.А. Роечко, Письма в ЖТФ, **45** (6), 30 (2019). DOI: 10.21883/PJTF.2019.06.47496.17646
- [6] А.Е. Иешкин, К.Д. Кушкина, Д.С. Киреев, Ю.А. Ермаков, В.С. Черныш, Письма в ЖТФ, **43** (2), 18 (2017). DOI: 10.21883/PJTF.2017.02.44182.16459

- [7] X. Zeng, V. Pelenovich, A. Ieshkin, A. Danilov, A. Tolstogouzov, W. Zuo, J. Ranjana, D. Hu, N. Devi, D. Fu, X. Xiao, *Rapid Commun. Mass Spectrom.*, **33**, 1449 (2019). DOI: 10.1002/rcm.8489
- [8] A.S. Ozcan, C. Lavoie, E. Alptekin, J. Jordan-Sweet, F. Zhu, A. Leith, B.D. Pfeifer, J.D. LaRose, N.M. Russell, *J. Appl. Phys.*, **119**, 155301 (2016). DOI: 10.1063/1.4947054
- [9] A. Delcorte, C. Poleunis, *J. Phys. Chem. C*, **123**, 19704 (2019). DOI: 10.1021/acs.jpcc.9b05363
- [10] С.Ф. Белых, А.Б. Толстогузов, А.А. Лозован, *Письма в ЖЭТФ*, **101** (9), 712 (2015). DOI: 10.7868/S0370274X15090118
- [11] Д.С. Киреев, А.В. Данилов, А.Е. Иешкин, В.С. Черныш, *Вестн. РГРТУ*, В. 66-2, 40 (2018). DOI: 10.21667/1995-4565-2018-66-4-2-40-48
- [12] В.А. Курнаев, В.А. Урусов, *ЖТФ*, **67** (6), 86 (1997).
- [13] В.М. Буханов, К.Ф. Миннебаев, И.Ф. Уразгильдин, В.С. Черныш, *ЖЭТФ*, **96** (4), 1505 (1989).
- [14] Z. Insepov, I. Yamada, *Nucl. Instrum. Meth. B*, **112**, 16 (1996). DOI: 10.1016/0168-583X(95)01127-7
- [15] P. Sigmund, C. Claussen, *J. Appl. Phys.*, **52**, 990 (1981). DOI: 10.1063/1.328790
- [16] Y. Kitazoe, N. Hiraoka, Y. Yamamura, *Surf. Sci.*, **111**, 381 (1981). DOI: 10.1016/0039-6028(81)90396-4
- [17] H.D. Hagstrum, *Phys. Rev.*, **96**, 336 (1954). DOI: 10.1103/PhysRev.96.336