

## РАДИОФИЗИКА, ЭЛЕКТРОНИКА, АКУСТИКА

**Влияние скважности поверхностных наноструктур на их эволюцию под наклонным пучком кластерных ионов**Д. С. Киреев,<sup>a</sup> А. Е. Иешкин, В. С. Черныш*Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет, кафедра физической электроники. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.*

Поступила в редакцию 18.05.2018, после доработки 28.10.2018, принята к публикации 30.10.2018.

Предложено использование поверхностей с предварительно сформированным упорядоченным нанорельефом для исследования механизмов эволюции топографии поверхности под действием ионного облучения. Предлагаемый подход реализован для случая бомбардировки поверхности кремния наклонным пучком ускоренных кластерных ионов. Образцы с упорядоченным рельефом формировались с помощью электронной литографии, поверхность исследовалась методами РЭМ и АСМ. Показано, что результирующий рельеф образуется в результате конкуренции процессов распыления и перераспределения атомов, эффективность которых определяется локальными углами падения ионов и кривизной поверхности. Продемонстрирована возможность получения асимметричного профиля поверхности с заданными параметрами за счет выбора угла падения ионного пучка, дозы облучения и исходного рельефа поверхности.

*Ключевые слова:* кластерные ионы, нанорельеф, атомно-силовая микроскопия.

УДК: 539.198, 539.211. PACS: 81.07.-b, 36.40.-c.

**ВВЕДЕНИЕ**

Ионно-пучковые методики модификации поверхностей твердых тел активно используются в современных технологических приложениях и научных исследованиях для придания кристаллическим и аморфным поверхностям заданных свойств [1]. Так, хорошо известно, что облучение ионами приводит к изменению поверхностного рельефа [2]. При этом в случае атомарных ионов с энергиями более 1 кэВ чаще всего происходит формирование упорядоченного [3, 4] или хаотического [5, 6] рельефа. В то же время возможно и сглаживание исходно существовавшей шероховатости при уменьшении энергии падающих ионов до сотен электронвольт [7] или при использовании скользящих углов падения (более 70° от нормали) [8].

Газовый кластерный ион представляет собой ансамбль, содержащий от нескольких единиц до десятков тысяч атомов или молекул, связанных силами Ван-дер-Ваальса [9]. Такой ион имеет заряд в несколько единиц элементарного заряда. При ускорении его разностью потенциалов порядка 10 кВ кинетическая энергия, приходящаяся на каждый составляющий атом, не превышает нескольких десятков электронвольт. Ударяясь о поверхность мишени, кластер легко разрушается, не проникая вглубь и не внося дефектов в объем мишени [10]. В отличие от облучения атомарными ионами облучение кластерными ионами благородных газов при нормальном падении приводит к сглаживанию шероховатости поверхности вплоть до уровня не более нескольких ангстрем [11, 12]. Считается, что эффект сглаживания достигается за счет таких особенностей взаимодействия кластеров с поверхностью, как спадающая зависимость коэффициента распыления от локального угла падения и латеральное угловое распределение распыленного вещества, приводящее к активному распылению холмов и блокировке

выхода распыленных атомов из впадин [13]. Кроме того, было высказано предположение, что для исходно достаточно гладких поверхностей значительную роль в дальнейшем сглаживании играют такие процессы, как ионно-стимулированные поверхностная диффузия и пластические потоки [14]. При отклонении угла падения пучка кластерных ионов от перпендикуляра на исходно гладкой поверхности происходит формирование волнообразных структур, причем характеристики «волн» зависят от угла падения [15, 16].

Исследование эволюции предварительно сформированного упорядоченного рельефа со специально выбранными параметрами позволило бы лучше понять механизмы модификации топографии поверхности. Однако процесс изменения наноструктурированных поверхностей под действием кластерных ионов изучен достаточно слабо. В работе [17] продемонстрировано эффективное сглаживание поверхности алмазоподобного углерода (DLC), имеющей рельеф в виде параллельных канавок прямоугольного сечения глубиной 40 нм. С практической точки зрения такой результат позволяет добиваться увеличения плотности записи информации на магнитных дисках. В работе [18] облучение скола пористого кремния кластерными ионами привело к сглаживанию образовавшихся при скалывании неоднородностей и, как следствие, к уменьшению хаотического рассеяния света такой поверхностью. Вместе с тем в зависимости от степени пористости обнаружено уплотнение пористой структуры или формирование нанопроволок более крупного, по сравнению с размерами стенок пор, диаметра. Наклонному падению кластерного пучка на упорядоченную структуру посвящено исследование [19], в котором оно рассматривается с точки зрения сглаживания нанорельефа. Показано, что при скользящих углах падения выступы «срезаются» пучком, что согласуется с результатами компьютерного моделирования методами молекулярной динамики [20].

<sup>a</sup> E-mail: [dmitr.kireeff6497@yandex.ru](mailto:dmitr.kireeff6497@yandex.ru)

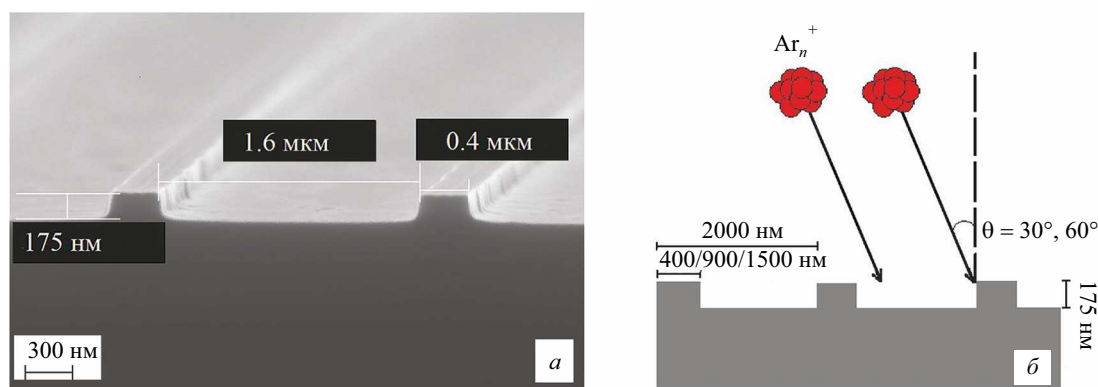


Рис. 1. Изображение поперечного скола экспериментального образца в СЭМ (а) и схема облучения образцов (б)

В данной работе исследован процесс эволюции периодических наноструктур в виде канавок прямоугольного сечения на поверхности кремния при облучении пучком кластерных ионов аргона при различных углах падения. Обсуждается роль процессов распыления и смещения материала мишени вдоль поверхности при таком воздействии. Рассмотрена возможность последовательного сглаживания исходного рельефа или формирования асимметричных наноструктур. Полученные результаты позволяют использовать пучки кластерных ионов, в частности для повышения дифракционной эффективности решеток-эшеллетов за счет полировки их поверхности [21] и формирования дифракционных решеток с асимметричным профилем штриха, т. е. с заданным углом блеска.

### 1. МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЙ

Для облучения мишеней использовался ускоритель газовых кластерных ионов МГУ имени М.В. Ломоносова [22]. В рамках описанных экспериментов в качестве рабочего газа использовался аргон. Рабочий газ под давлением 5 атм поступает в рабочую камеру через сверхзвуковое сопло. В результате адиабатического расширения газ охлаждается и происходит его конденсация, что приводит к формированию нейтральных кластеров  $Ar_n$ , атомы в которых связаны силами Ван-дер-Ваальса. Затем образовавшиеся нейтральные кластеры поступают в камеру ионизации, где происходит их ионизация электронным ударом. Проходя систему ускоряющих электродов, кластерные ионы приобретают необходимую энергию. Образовавшиеся кластерные ионы имеют непрерывное распределение в диапазоне от отдельных атомарных ионов до нескольких тысяч атомов в составе кластера. Максимум этого распределения приходится на значение около 800 атомов/кластер. Процессы, происходящие при столкновении атомарных ионов с мишенью, существенно отличаются от процессов, происходящих в результате действия на мишень крупных кластеров. Поэтому для удаления из состава пучка атомарных ионов и кластеров малого размера используется система магнитной сепарации. Таким образом, на мишень попадают только массивные кластеры  $Ar_n^+$ , где  $n > 70$ . Ускоряющая разность потенциалов равнялась 10 кВ, дозы облучения измерялись с помощью интегратора тока и в каждом случае составляли  $8 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ .

В качестве мишени выступали кремниевые пластины площадью  $5 \times 5 \text{ мм}$  и толщиной 1 мм. В центре пластин

в области  $1 \times 1 \text{ мм}$  с помощью электронно-лучевой литографии был создан периодический прямоугольный рельеф с глубиной 180 нм. Область периодической структуры мишени разбита на три зоны, период рельефа каждой из которых составляет 2 мкм, а коэффициенты заполнения задавались равными соответственно  $D_1 = 0.25$ ,  $D_2 = 0.5$ ,  $D_3 = 0.75$ . На рис. 1, а приведено изображение скола первой зоны в сканирующем электронном микроскопе. В рамках эксперимента проводилось облучение образцов при различных углах падения пучка:  $\theta = 30^\circ$  и  $\theta = 36^\circ$  от нормали к поверхности (рис. 1, б). Пучок лежал в плоскости, проходящей через волновой вектор периодических структур.

Характеристики рельефа образцов определялись с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ) ZEISS и атомно-силового микроскопа (АСМ) AIST-NT в полуконтактном режиме.

### 2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Типичные профили рельефа поверхности образцов, облученных под углом  $\theta = 30^\circ$  от нормали, приведены на рис. 2 для всех трех зон, отличающихся значением коэффициента заполнения. Профили рельефа определялись по изображениям АСМ в направлениях, параллельных направлениям волнового вектора периодической структуры. Подчеркнем, что расположение профилей облученного и необлученного образца друг относительно друга на рис. 2 произвольно. Интересно, что для зон с коэффициентами заполнения  $D_1 = 0.25$  и  $D_2 = 0.5$  результирующие профили близки друг к другу, а для зоны с наиболее широкими выступами ( $D_3 = 0.75$ ) перепад высот уменьшился сильнее. Это можно объяснить следующим образом. При взаимодействии ускоренных кластеров с дном впадины происходит его распыление, локальный угол падения кластеров составляет  $30^\circ$  от нормали к поверхности. Выбиваемое вещество мигрирует в направлении пучка, причем происходит его блокировка стенкой выступа. Для кластеров, попадающих на боковую стенку выступа, локальный угол падения составляет  $60^\circ$ . За счет убывающей зависимости коэффициента распыления кластерами от локального угла падения [9] распыление боковой поверхности происходит менее эффективно, чем распыление дна впадины. При этом распыленные атомы преимущественно осаждаются внутрь впадины. Для зоны образца, имеющей наиболее узкие впадины, процесс их заполнения распыленным веществом наиболее эффективен.

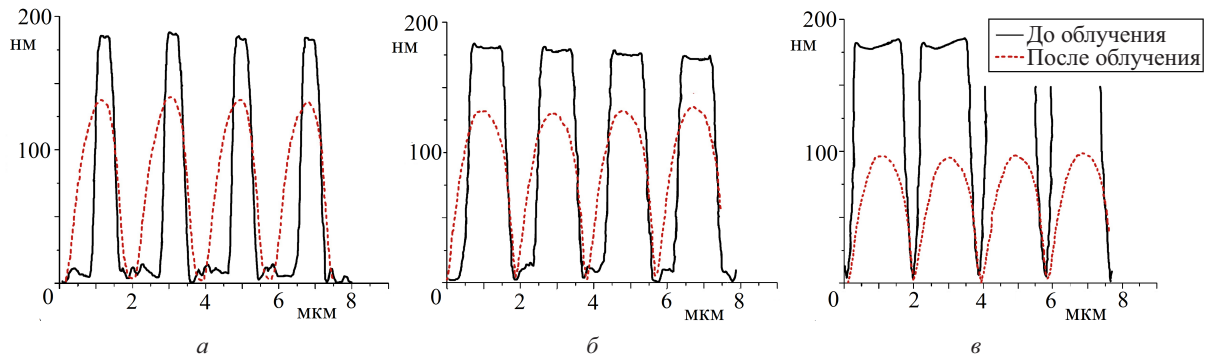


Рис. 2. Профили поверхности образцов до и после облучения под углом  $\theta = 30^\circ$  к нормали. Взаимное расположение профилей произвольное

Для зоны образца, имеющей наиболее широкие впадины, процесс их заполнения наименее эффективен и уменьшение амплитуды рельефа происходит прежде всего за счет распыления узких выступов. Благодаря тому, что коэффициент распыления выпуклой поверхности возрастает по сравнению с плоской поверхностью, такие выступы стравливаются быстрее.

Сравнение профилей рельефа поверхности образца, облученного под углом  $\theta = 30^\circ$ , до и после облучения показывает, что происходит уширение основания выступов по сравнению с изначальной формой. Это также связано с латеральным эффектом распыления, который в данном случае приводит к осаждению значительной части атомов распыленного вещества в основании выступов со стороны падения пучка

Для количественного описания асимметрии рельефа, возникшей после бомбардировки ускоренными кластерами и хорошо заметной на рис. 2, вычислено распределение тангенсов локальных углов наклона поверхности  $P(\operatorname{tg} \alpha)$  в плоскости, в которой определялись профили поверхности. На рис. 3 приведено такое распределение для зоны с наиболее узкими выступами. Центральный максимум распределения соответствует горизонтальным участкам поверхности в вершинах и впадинах, асимметричные боковые максимумы описывают склоны выступов.

Следующая серия образцов была облучена под углом  $\theta = 60^\circ$  от нормали. При этом часть области с периодическим рельефом закрывалась маской так, чтобы линия края маски была параллельна волновому вектору периодических структур. Таким образом, на часть области периодической структуры, которая была закрыта маской, кластерные ионы Ag не попадали. Это позволило исследовать на одном и том же изображении АСМ облученную и необлученную области с заметной границей раздела.

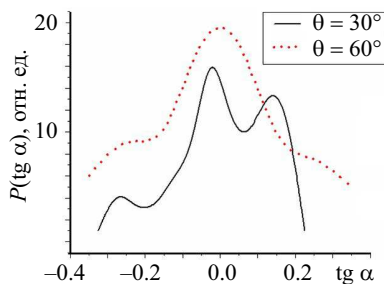


Рис. 3. Распределение локальных углов наклона поверхности в плоскости падения пучка при различных углах его падения

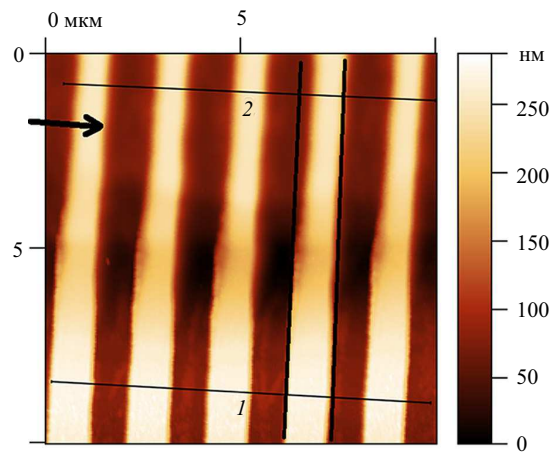


Рис. 4. Изображение поверхности образца в АСМ. Нижняя часть образца была закрыта маской, на верхнюю часть попал пучок под углом  $\theta = 60^\circ$  к нормали. Направление пучка указано стрелкой. Профили поверхности измерялись вдоль прямых 1 и 2. Отмечены исходные границы выступа

На рис. 4 приведены АСМ-изображения поверхности образца после облучения под углом  $\theta = 60^\circ$ . Граница раздела облученной и необлученной областей расположена приблизительно посередине изображения, облученная область находится в верхней части изображения, необлученная (закрытая маской) — в нижней части. Стрелкой обозначено направление падения пучка ионов, также приведены исходные границы прямоугольного выступа. Хорошо видно, что правые границы периодических структур в облученной и необлученной областях практически совпадают, в то время как левая граница после облучения заметно сместилась в направлении падения пучка. Профили, определенные вдоль отмеченных на рис. 4 линий, а также аналогичные профили для других зон образца, приведены на рис. 5. При этом за счет того, что облученная и необлученная части образца находятся в пределах одного изображения, положение профиля поверхности после облучения на рис. 5 соответствует положению профиля до облучения.

Анализируя изображения, приведенные на рис. 4 и 5, можно сделать вывод, что при облучении исходных мишеней ускоренными газовыми кластерами под углом  $\theta = 60^\circ$  от нормали к поверхности наибольший вклад в изменение рельефа поверхности вносит распыление атомов вещества с боковых стенок выступов. Распыление горизонтальных поверхностей впадин и выступов

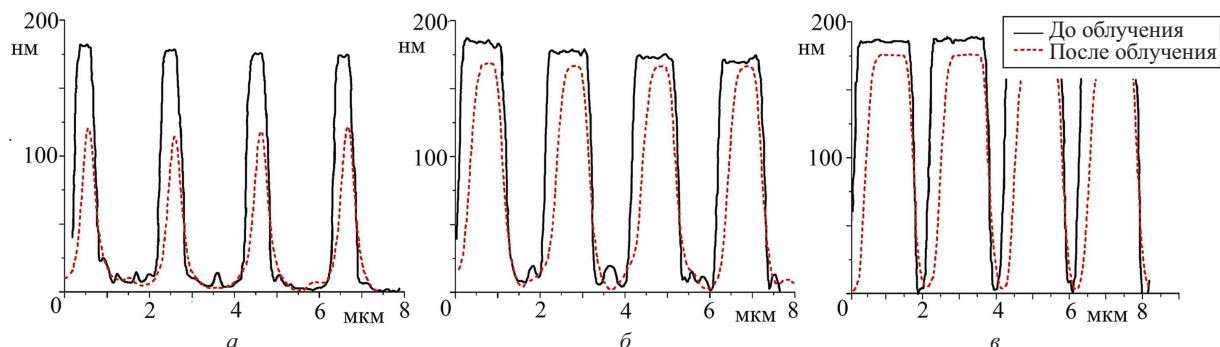


Рис. 5. Профили поверхности образцов до и после облучения под углом  $\theta = 60^\circ$  к нормали

неэффективно по сравнению с облучением под углом  $\theta = 30^\circ$  за счет уменьшения коэффициента распыления при увеличении локального угла падения. Миграция вещества, выбитого из впадин, также неэффективна, поскольку заметно уширения оснований выступов не наблюдается. В то же время заметно распыляются боковые стенки выступов, причем толщина слоя удаленного вещества (200–400 нм) превосходит оценки скорости травления, полученные из величины коэффициента распыления кремния используемыми кластерами. Это может быть связано с увеличением коэффициента распыления в области искривленной поверхности на ребре выступа и на неровностях боковых стенок, образованных при плазмохимическом травлении образца и заметных на рис. 1. Стравливанием боковой стенки объясняется наиболее существенное уменьшение высоты рельефа в зоне с наиболее узкими выступами ( $D_1 = 0.25$ ). Кроме того, возможно «сбивание» узких вершин выступов аналогично продемонстрированному в работе [20] с помощью компьютерного моделирования. В то же время уменьшение высоты выступов в зонах с широкими выступами ( $D_2 = 0.5$ ,  $D_3 = 0.75$ ) приблизительно соответствует оценкам скорости травления и составляет 15–25 нм.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе предложено использование поверхностей с предварительно сформированным упорядоченным нанорельефом для исследования механизмов эволюции топографии поверхности под действием ионного облучения. Предлагаемый подход реализован для случая бомбардировки поверхности кремния наклонным пучком ускоренных кластерных ионов. Показано, что результирующий рельеф образуется в результате конкуренции процессов распыления и перераспределения атомов, эффективность которых определяется локальными углами падения ионов и кривизной поверхности. Продемонстрирована возможность получения асимметричного профиля поверхности с заданными параметрами за счет выбора угла падения ионного пучка, дозы облучения и исходного рельефа поверхности. Наряду с известными методиками сглаживания шероховатостей облучением кластерными ионами полученные результаты могут быть использованы для формирования дифракционных решеток-эшелеттов с заданным углом блеска и для улучшения качества поверхности готовых дифракционных решеток.

Авторы выражают благодарность А. А. Татаринцеву и А. С. Трифонову за помощь в работе с образцами.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 17-72-10224).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nenadović T.M. // *Materials and Technology*. 2005. **39**, N 1/2. P. 9.
2. Chan W.-L., Chason E. // *J. Appl. Phys.* 2007. **101**. 121301.
3. Ou X., Facsko S. // *Nucl. Instr. Meth. B*. 2014. **341**. P. 13.
4. Brown A.-D., Erlebacher J. // *Phys. Rev. B*. 2005. **72**. 075350.
5. Черныш В. С., Патракеев А. С., Солдатов Е. С. и др. // *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*. 2007. **12**. С. 25. (Chernysh V.S., Patrakeev A.S., Soldatov E.S. et al. // *J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech.* 2007. **1**, N 6. P. 717.)
6. Keller A., Facsko S., Möller W. // *J. Phys. Condens. Matter*. 2009. **21**. 495305.
7. Liao W., Dai Y., Xie X., Zhou L. // *Opt. Express*. 2014. **22**, N 1. P. 377.
8. Frost F., Fehner R., Ziberi B. et al. // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2009. **21**. 224026.
9. Yamada I., Matsuo J., Toyoda N., Kirkpatrick A. // *Mater. Sci. Eng. R*. 2001. **34**. P. 231.
10. Иешкин А. Е., Шемухин А. А., Ермаков Ю. А., Черныш В. С. // *Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон.* 2016. № 1, С. 72. (Ieshkin A. E., Shemukhin A. A., Ermakov Yu. A., Chernysh V. S. // *Moscow Univ. Phys. Bull.* 2016. **71**, N 1. P. 87.)
11. Yamada I., Matsuo J., Toyoda N. et al. // *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.* 2015. **19**. P. 12.
12. Ieshkin A. E., Kireev D. S., Ermakov Yu. A. et al. // *Nucl. Instr. Meth. B*. 2018. **421**, Pp. 27–31.
13. Popok V.N., Barke I., Campbell E. E. B., Meiwes-Broer K.-H. // *Surf. Sci. Rep.* 2011. **66**. P. 347.
14. Ieshkin A. E., Kireev D. S., Chernysh V.S. et al. // *Analysis technique for AFM images of ultrasmooth optical surface polished with gas cluster ion beam*. Beilstein J. Nanotechnol. To be published.
15. Sumie K., Toyoda N., Yamada I. // *Nucl. Instr. Meth. B*. 2013. **307**. P. 290.
16. Saleem I., Chu W.-K. // *Sens. Biosensing Res.* 2016. **11**. P. 14.
17. Nagato K., Toyoda N., Naito H. et al. // *J. Appl. Phys.* 2011. **109**. 07B733.
18. Ieshkin A. E., Svyakhovskiy S. E., Chernysh V. S. // *Vacuum*. 2018. **148**. P. 272.
19. Toyoda N., Yamada I. // *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* 2011. **1298**. P. 173.
20. Aoki T., Matsuo J. // *Nucl. Instr. Meth. B*. 2007. **257**. P. 645.
21. Зорина М. В., Зуев С. Ю., Михайленко М. С. и др. // *Письма в ЖТФ*. 2016. **42**, № 16. С. 34. (Zorina M. V., Zuev S. Yu., Mikhailenko M. S. et al. // *Tech. Phys. Lett.* 2016. **42**, N 8. P. 844.)
22. Andreev A. A., Chernysh V. S., Ermakov Yu. A., Ieshkin A. E. // *Vacuum*. 2013. **91**. P. 47.



**The Effect of Surface Nanostructures Duty Ratio on Their Evolution under Oblique Cluster Ion Beam****D. S. Kireev<sup>a</sup>, A. E. Ieshkin, V. S. Chernysh***Department of Physical Electronics, Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University. Moscow 119991, Russia.**E-mail: <sup>a</sup>[dmr.kireeff6497@yandex.ru](mailto:dmr.kireeff6497@yandex.ru).*

This paper proposes the use of surfaces with a preformed ordered nanotopography to study the mechanisms of the evolution of surface topography under ion beam irradiation. The proposed approach is used for silicon surface bombardment with an oblique beam of accelerated cluster ions. Samples with an ordered topography were formed using electron lithography. The surface was studied using the SEM and AFM techniques. It is shown that the resulting topography is formed as a result of the competition between processes of sputtering and redistribution of atoms. The effectiveness of these processes is determined by the local incidence angles of the ions and the surface curvature. The possibility of obtaining an asymmetric surface profile with the specified parameters is shown by selecting the incidence angle of the ion beam, the irradiation dose, and the initial surface topography.

*Keywords:* cluster ions, nanotopography, atomic force microscopy.

PACS: 81.07.-b, 36.40.-c.

*Received 18 May 2018.*

English version: *Moscow University Physics Bulletin*. 2019. **74**, No. 1. Pp. 33–37.

**Сведения об авторах**

1. Киреев Дмитрий Сергеевич — мл. науч. сотрудник; e-mail: [dmr.kireeff6497@yandex.ru](mailto:dmr.kireeff6497@yandex.ru).
2. Иешкин Алексей Евгеньевич — канд. физ.-мат. наук, науч. сотрудник; e-mail: [ieshkin@physics.msu.ru](mailto:ieshkin@physics.msu.ru).
3. Черныш Владимир Савельевич — доктор физ.-мат. наук, профессор, зав. кафедрой; тел.: (495) 939-29-89, e-mail: [chernysh@phys.msu.ru](mailto:chernysh@phys.msu.ru).