

Модель формирования нанорельефа поверхности при облучении газовыми кластерными ионами

Д.Р. Бессмертный,¹ А.Е. Иешкин^{1,*}

¹Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова,
физический факультет, кафедра физической электроники
Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2

(Поступила в редакцию 07.12.2023; подписана в печать 08.12.2023)

Предложена модель эволюции нанорельефа поверхности под действием облучения газовыми кластерными ионами. Модель основана на рассмотрении индивидуальных столкновений кластеров с поверхностью. Определяется количество вещества, распыляемого из области столкновения, и эффективность его переосаждения на другие элементы поверхности. Показана работоспособность модели при сравнении с экспериментальными данными. Исследованы этапы сглаживания модельного гармонического рельефа. Предложена новая мера эффективности сглаживания поверхности.

PACS: 79.20.Rf, 81.16.Rf. УДК: 538.971, 539.211.

Ключевые слова: газовые кластерные ионы, нанорельеф, ионное распыление, коэффициент распыления, компьютерное моделирование.

DOI: [10.55959/MSU0579-9392.79.2410302](https://doi.org/10.55959/MSU0579-9392.79.2410302)

ВВЕДЕНИЕ

Одно из направлений использования потоков ускоренных ионов в современных исследовательских и технологических процессах — модификация рельефа поверхности на микро- и наномасштабах. Можно выделить различные методы формирования структур с заданными характеристиками с помощью ускоренных ионов. Одним из направлений является ионно-лучевая литография, в которой планарные или объемные структуры формируются после поточечного экспонирования фоторезиста или в результате непосредственного распыления материала остросфокусированным ионным пучком [1, 2]. Чаще всего такое поточечное экспонирование занимает продолжительное время и не подходит для серийного создания структур больших размеров. От этого недостатка свободны методы, основанные на обработке поверхности широким ионным пучком. Примерами их использования может служить ионная полировка [3, 4] или образование наноструктур в результате самоорганизации [5, 6]. Так, в [7] были продемонстрированы формирование упорядоченного рельефа с периодом, в том числе, менее 50 нм на всей поверхности полупроводниковой пластины и использование такой структуры для создания дифракционной решетки рентгеновского диапазона.

Пучки газовых кластерных ионов являются относительно новым инструментом инженерии поверхности [8, 9]. Газовый кластерный ион представляет собой ансамбль атомов, удерживаемых вместе

за счет слабого ван-дер-ваальсовского взаимодействия, и несущий заряд в один или несколько элементарных зарядов. При столкновении с поверхностью такой ион, в отличие от атомарного иона с такой же энергией, не проникает вглубь материала, а вся его энергия выделяется локально в области столкновения. В результате физические процессы, происходящие при бомбардировке кластерными ионами, значительно отличаются от случая бомбардировки атомарными ионами. Так, угловые распределения распыленного кластерами вещества имеют не косинусную, а латеральную форму, то есть существенная часть распыленного материала эмитируется вдоль поверхности [10, 11]. Отличается характер зависимости коэффициента распыления от угла падения [12, 13]. Все это приводит к возможности эффективного сглаживания поверхности, которое осуществляется при нормальном облучении кластерными ионами [14, 15]. Кроме того, при наклонном падении кластерных ионов возможно формирование волнообразного рельефа [13, 16, 17].

Таким образом, в результате облучения поверхности кластерными ионами возможна модификация рельефа, изначально существовавшего на поверхности, или развитие новых структур. В работах [18, 19] было экспериментально показано, что, в зависимости от условий облучения (угол падения и ионный флюенс), возможно формирование дифракционных решеток с заданной амплитудой и формой штриха на основе периодических структур прямоугольного сечения, сформированных с помощью литографии. Полировка дифракционных решеток с помощью атомарных ионов исследована в [20]. В этом случае происходило уменьшение мелкомасштабных шероховатостей, при этом амплитуда штрихов также уменьшалась, но в меньшей сте-

* E-mail: ieshkin@physics.msu.ru

пени. В настоящее время развитие методов создания дифракционных решеток ультрафиолетового и рентгеновского диапазонов актуально, в том числе для решения задач УФ-фотолитографии, для исследований с использованием синхротронного излучения и т.д. [21, 22].

В настоящей работе предложена математическая модель эволюции рельефа поверхности под действием газовых кластерных ионов. Проведено сравнение результатов моделирования с имеющимися экспериментальными данными, и рассмотрены режимы облучения для направленной модификации рельефа поверхности.

1. МЕТОДИКА МОДЕЛИРОВАНИЯ

Среди процессов, ответственных за формирование рельефа поверхности под действием атомарных ионов, обычно выделяют развитие неустойчивости Бредли–Харпера [23] и диффузию атомов вдоль поверхности. В первом случае зависимость коэффициента распыления от локальной кривизны поверхности приводит к увеличению амплитуды рельефа, в то время как диффузия стремится её уменьшить. Позже к дифференциальному уравнению, описывающему эволюцию топографии поверхности, были добавлены нелинейные члены различной природы [6].

В отличие от распыления атомарными ионами, в случае кластерных ионов за счет латеральных угловых распределений распыленного вещества существенная его часть эмитируется вдоль поверхности, что рассматривают как одну из причин сглаживания рельефа кластерными ионами. Действительно, кластерные ионы более эффективно распыляют выступы, чем впадины (то есть зависимость от локальной кривизны поверхности прямо противоположна той, которая лежит в основе неустойчивости Бредли–Харпера), в том числе из-за блокировки распыленного вещества склонами впадины. Эта особенность углового распределения распыленного вещества была взята нами за основу модели.

Угловое распределение эмитированных атомов выбиралось в соответствии с [11], где оно было измерено экспериментально при распылении меди кластерами $\text{Ar}3000+$ с энергией 20 кэВ для нескольких углов падения кластеров на поверхность. Распределения при промежуточных углах мы получали в результате интерполяции экспериментальных данных. Все распределения нормировались таким образом, чтобы интеграл каждого из них соответствовал зависимости полного коэффициента распыления от угла падения.

Таким образом, в процессе моделирования поверхность с наперед заданным одномерным рельефом облучалась кластерами. В месте падения кластера из функции, задающей рельеф, вычиталась величина, определяемая коэффициентом распыления. Форма оставшегося кратера соответствовала полученным при моделировании в работе [24].

Удаленное вещество перераспределялось в соответствии с угловыми зависимостями, то есть частично оседало на поверхности, а частично удалялось. Количество моделируемых столкновений и толщина удаленного слоя соответствовали экспериментальной дозе облучения (при угле падения $\theta = 60^\circ$ в [19]).

2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В качестве исходного рельефа рассматривались структуры, экспериментально исследованные в [19], то есть канавки прямоугольного сечения с глубиной 200 нм и периодом 2000 нм. Коэффициент заполнения структур составлял 0.25, 0.5 и 0.75.

Отметим, что данные о зависимости коэффициента распыления от угла падения $Y(\theta)$ различаются. В ранних исследованиях распыления металлов обнаружена косинусообразная зависимость, то есть коэффициент распыления имеет максимум при нормальном падении ионов на поверхность [12]. Позднее при распылении оксида кремния и ниобата лития наблюдалась зависимость, имеющая максимум при угле падения около 60° от нормали [17]. Вероятно, на характер этой зависимости оказывает влияние как материал мишени, так и соотношение размера и энергии атомов (или удельная кинетическая энергия, приходящаяся на атом кластера) [25]. Кроме того, влияние может оказывать локальный нанорельеф, образующийся в результате перекрытия кратеров от отдельных столкновений кластеров с поверхностью [26]. Поэтому были проведены две серии расчетов, в каждой из которых использовался один из видов угловой зависимости коэффициента распыления.

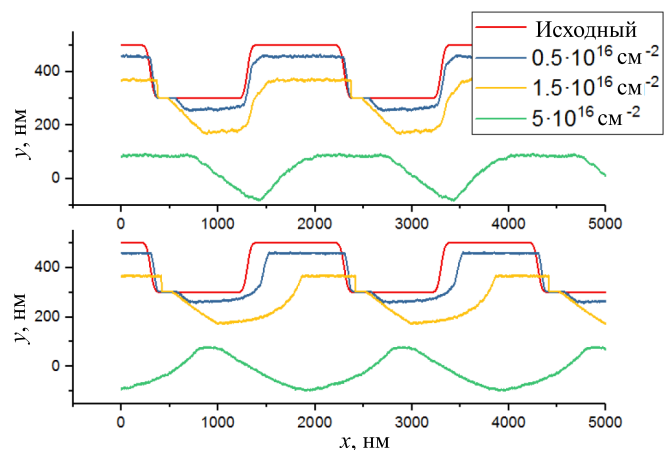


Рис. 1. Эволюция исходного нанорельефа в виде прямоугольных канавок с увеличением дозы облучения при угле падения кластерных ионов $Y(\theta) = 60^\circ$ (пучок направлен слева). Зависимость $Y(\theta)$ имеет максимум при 60° (вверху) и при 0° (внизу)

Результаты моделирования изменения профиля поверхности с увеличением дозы показаны на рис. 1. Коэффициент заполнения исходной структуры со-

Таблица. Значения среднеквадратичной шероховатости поверхности σ , средней толщины удаленного слоя Δz и эффективности сглаживания $\Delta\sigma/\Delta z$

Доза облучения, 10^{16} см^{-2}	σ , нм		Δz , нм		$\Delta\sigma/\Delta z$	
	Максимум $Y(\theta)$ при 60°	Максимум $Y(\theta)$ при 0°	Максимум $Y(\theta)$ при 60°	Максимум $Y(\theta)$ при 0°	Максимум $Y(\theta)$ при 60°	Максимум $Y(\theta)$ при 0°
0	71		—		—	
1.5	61	51	62	162	0.16	0.12
5	43	19	195	562	1.86	0.09

ставлял 0.5, угол падения 60° от нормали. Значение коэффициента распыления выбиралось так, чтобы скорость травления горизонтальных участков совпадала с экспериментальными данными, полученными при угле падения 60° , поэтому скорости травления, полученные при использовании разных зависимостей $Y(\theta)$, совпадают.

Из рис. 1 видно, что с увеличением дозы облучения положение горизонтальных участков изменяется пропорционально дозе, что говорит о корректности модели. Дно канавки испытывает влияние затенения, создаваемого левой её стенкой, при этом по мере распыления соответствующим образом изменяется форма левой стенки. Часть стенки, остающаяся почти вертикальной, перемещается вправо из-за осаждения на неё распыленного вещества. При максимальной использованной дозе левая стенка ориентируется почти вдоль падающего пучка, испытывая минимальное распыление.

Форма правой стенки определяется видом зависимости $Y(\theta)$. В том случае когда $Y(\theta)$ имеет максимум при нормальном падении пучка, стенка распыляется быстрее, чем горизонтальная поверхность, если же максимум этой зависимости расположен при больших углах, то стенка распыляется медленнее. В первом случае профиль стенки имеет выпуклость, направленную вниз, а во втором — вверх.

Исследование влияния коэффициента заполнения на формируемый рельеф показано на рис. 2. Видно, что если зависимость $Y(\theta)$ имеет максимум при 60° , то происходит сужение канавок за счет эффекта затенения, особенно заметное в случае исходно узких канавок. Напротив, если $Y(\theta)$ имеет максимум при 0° , то эффективно сужаются выступы за счет высокой скорости распыления боковых стенок. Пересаживание вещества на дно канавки и левую стенку при этом более заметно, однако коэффициент заполнения не оказывает заметного влияния на эффективность этого пересаживания.

Поскольку одним из наиболее распространенных практических приложений ускоренных кластерных ионов является полировка поверхности при нормальном падении пучка, было проведено моделирование эволюции исходно гармонического рельефа. Его амплитуда составляла 100 нм, период — 1000 нм. Его результаты приведены на рис. 3. Значения коэффициента выбиралось теми же, что

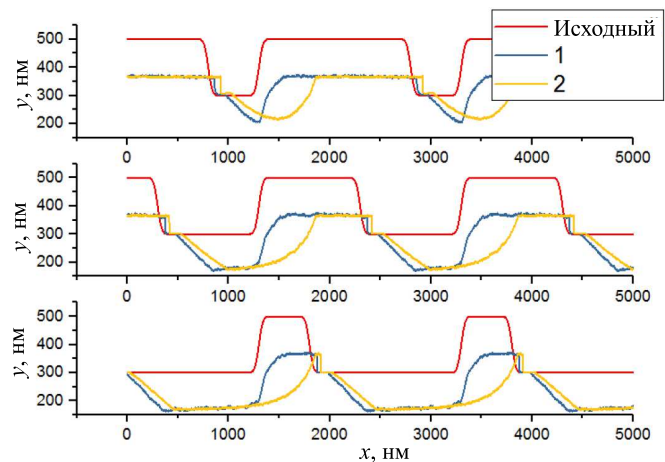


Рис. 2. Изменение исходного нанорельефа в виде прямоугольных канавок с различным коэффициентом заполнения в результате облучения кластерными ионами с дозой $1.5 \times 10^{16} \text{ см}^{-2}$ при угле падения $\theta = 60^\circ$ (пучок направлен слева). Зависимость $Y(\theta)$ имеет максимум при 60° (кривые 1) и при 0° (кривые 2)

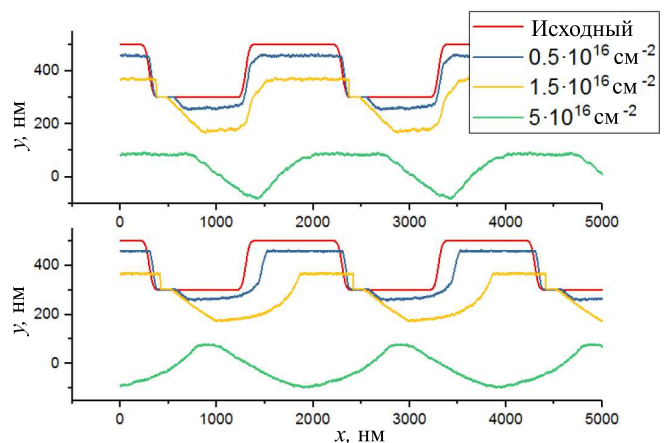


Рис. 3. Изменение гармонического нанорельефа при нормальном облучении газовыми кластерными ионами. Зависимость $Y(\theta)$ имеет максимум при 60° (вверху) и при 0° (внизу)

в описанных ранее исследованиях. Поэтому скорость травления при $Y(\theta) \sim \cos(\theta)$ в данном случае выше. Эволюция наклонных стенок также происходит по описанному выше сценарию. Среднеквад-

ратичная шероховатость поверхности σ уменьшалась так, как показано в таблице. Поскольку значения коэффициента распыления при нормальном падении различны для двух рассмотренных случаев, имеет смысл в качестве меры эффективности сглаживания использовать изменение шероховатости поверхности в результате удаления слоя средней толщины Δz . Из таблицы видно, что хотя итоговое значение шероховатости ниже в случае, если $Y(\theta)$ имеет максимум при 0° , определенная таким образом эффективность сглаживания в этом случае ниже.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложена модель эволюции нанорельефа поверхности твердого тела под действием облучения газовыми кластерными ионами. Модель основана на рассмотрении индивидуальных столкновений кластеров с поверхностью, причем рассматри-

ваются распыление вещества из точки столкновения и его переосаждение в другие точки мишени. Таким образом, в основе модели лежат зависимости коэффициента распыления от локального угла падения и угловые распределения распыленного вещества.

Работоспособность модели проверена сравнением с экспериментальными данными. Исследована эволюция рельефа в виде периодических канавок прямоугольного сечения; показано влияние выбора вида зависимости коэффициента распыления от локального угла падения на форму стенок канавки. Кроме того, описаны этапы сглаживания модельного гармонического рельефа. Предложена мера эффективности сглаживания рельефа в виде отношения изменения шероховатости к средней толщине удаленного слоя.

Исследование выполнено при поддержке Российского научного фонда, грант № 21-19-00310, <https://rscf.ru/project/21-19-00310>

- [1] Мажаров П.А., Дудников В.Г., Толстогозузов А.Б. // УФН. **190**. 1293. (2020). (Mazarov P.A., Dudnikov V.G., Tolstoguzov A.B. // Phys. Usp. **63**. 1219. (2020)).
- [2] Li P., Chen S., Da, H. et al. // Nanoscale. **13**. 1529. (2021).
- [3] Li L., Li X., Cheng Q. et al. // Results Phys. **19**. 103356. (2020).
- [4] Xu M., Dai Y., Zhou L. et al. // Appl. Opt. **57**. 5566. (2018).
- [5] Cuerno R., Kim J.-S. // J. Appl. Phys. **128**. 180902. (2020).
- [6] Norris S.A., Aziz M.J. // Appl. Phys. Rev. **6**. 011311. (2019).
- [7] Huang Q., Jia Q., Feng J. et al. // Nat. Commun. (2019). **10**. 2437.
- [8] Иешкин А.Е., Толстогозузов А.Б., Коробейщиков Н.Г. и др. // УФН. **192**. 722. (2022). (Ieshkin A.E., Tolstoguzov A.B., Korobeishchikov N.G. et al. // Phys. Usp. **65**. 677. (2022)).
- [9] Yamada I., Matsuo J., Toyoda N., Kirkpatrick A. // Mater. Sci. Eng. R. **34**. 231. (2001).
- [10] Nazarov A.V., Zavlilgelskiy A.D., Ieshkin A.E. et al. // Vacuum. **212**. 112061. (2023).
- [11] Toyoda N., Kitani H., Hagiwara N. et al. // Mater. Chem. Phys. **54**. 262. (1998).
- [12] Kitani H., Toyoda N., Matsuo J., Yamada I. // Nucl. Instrum. Methods B. **121**. 489 (1997).
- [13] Sumie K., Toyoda N., Yamada I. // Nucl. Instrum. Methods B. **307**. 290. (2013).
- [14] Иешкин А.Е., Кушккина К.Д., Киреев Д.С. // Письма в ЖТФ. **43**, № 2. 18. (2017). (Ieshkin A.E., Kushkina K.D., Kireev D.S. et al. // Tech. Phys. Lett. **43**. 95. (2017)).
- [15] Korobeishchikov N.G., Nikolaev I.V., Atuchin V.V. et al. // Surfaces and Interfaces. **27**. 101520. (2021).
- [16] Nikolaev I.V., Korobeishchikov N.G. // Appl. Nano. **2**. 25. (2021).
- [17] Иешкин А.Е., Ильина Т.С., Киселев Д.А. и др. // ФТТ. **64**, № 10. 1489. (2022). (Ieshkin A.E., Ilina T.S., Kiselev D.A. et al. // Phys. Solid State. **64**. 1465. (2022)).
- [18] Киреев Д.С., Иешкин А.Е., Черныш В.С. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. № 1. 31 (2019). (Kireev D.S., Ieshkin A.E., Chernysh V.S. // Moscow Univ. Phys. Bull. **74**, № 1. 33. (2019)).
- [19] Ieshkin A.E., Kireev D.S., Tatarintsev A.A., Chernysh V.S. // Nucl. Instrum. Methods B. **460**. 165 (2019).
- [20] Зорина М.В., Зуев С.Ю., Михайленко М.С. и др. // Письма в ЖТФ. **42**, № 16. 34. (2016). (Zorina M.V., Zuev S.Yu., Mikhailenko M.S. et al. // Tech. Phys. Lett. **42**. 844. (2016)).
- [21] Мозов Д.В., Березовская Т.Н., Шубина К.Ю. и др. // ЖТФ. **92**. 1192. (2022). (Mokhov D.V., Berезovskaya T.N., Shubina K.Yu. et al. // Technical Physics. **8**. 1009. (2022)).
- [22] Рагозин Е.Н., Вишняков Е.А., Колесников А.О. и др. // УФН. (2021). **191**. 522. (Ragozin E.N., Vishnyakov E.A., Kolesnikov A.O. et al. // Phys. Usp. **64**. 495. (2021)).
- [23] Bradley R.M., Harper J.M.E. // J. Vac. Sci. Technol. A. **6**. 2390. (1988).
- [24] Aoki T., Seki T., Matsuo J. // Vacuum. **84**. 994. (2010).
- [25] Korobeishchikov N.G., Nikolaev I.V., Roenko M.A., Atuchin V.V. // Appl. Phys. A. **124**. 833. (2018).
- [26] Rzeznik L., Paruch R., Garrison B.J., Postawa Z. // Nucl. Instrum. Methods B. **269**. 1586. (2011).

A model for surface nanorelief formation under gas cluster ion irradiation

D.R. Bessmertniy, A.E. Ieshkin^a

*Department of Physical Electronics, Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University
Moscow 119991, Russia*

E-mail: ^aieshkin@physics.msu.ru

A model for the evolution of surface nanorelief under irradiation with gas cluster ions is proposed. The model is based on consideration of individual collisions of clusters with a surface. The amount of substance sputtered from the collision area and the efficiency of its redeposition onto other surface elements are determined. The performance of the model is shown when compared with experimental data. The stages of smoothing of a harmonic relief are studied. A new measure of the effectiveness of surface smoothing is proposed.

PACS: 79.20.Rf, 81.16.Rf.

Keywords: gas cluster ions, nanotopography, sputtering, sputter yield, computer simulation.

Received 07 December 2023.

English version: *Moscow University Physics Bulletin*. 2024. **79**, No. 1. Pp. 20–24.

Сведения об авторах

1. Бессмертный Данила Романович — студент.
2. Иешкин Алексей Евгеньевич — канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотрудник; e-mail: ieshkin@physics.msu.ru.