

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М.В. ЛОМОНОСОВА

На правах рукописи



Назаров Антон Викторович

**Угловые распределения материала, распыленного с
поверхности металлов газовыми кластерными ионами**
1.3.5. Физическая электроника

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Москва – 2023

Диссертация подготовлена в отделе физики атомного ядра научно-исследовательского института ядерной физики имени Д.В. Скобельцына МГУ имени М.В. Ломоносова

Научный руководитель – *Черныш Владимир Савельевич,
доктор физ.-мат. наук, профессор*

Официальные оппоненты – *Карасев Платон Александрович,
Доктор физико-математических наук,
доцент,
Федеральное государственное автономное
образовательное учреждение высшего
образования «Санкт-Петербургский
политехнический университет Петра
Великого», высшая инженерно-физической
школы, профессор.*

*Коробейщиков Николай Геннадьевич,
кандидат физико-математических наук,
ФГАОУ ВО «Новосибирский национальный
исследовательский государственный
университет», физический факультет,
отдел прикладной физики, ведущий научный
сотрудник*

*Лигачев Александр Егорович,
Доктор физико-математических наук,
профессор,
Институт общей физики им.
А.М.Прохорова РАН, Центр естественно-
научных исследований, отдел лазерной
физики, ведущий научный сотрудник*

Защита диссертации состоится «14» сентября 2023 г. в 15-30 на заседании диссертационного совета МГУ.013.7 Московского государственного университета имени М.В.Ломоносова по адресу: 119991, Москва, Ленинские горы, д.1, стр.2, Физический факультет МГУ, ауд. ____.

E-mail: igorkartashov@mail.ru

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М.В.Ломоносова (Ломоносовский просп., д.27) и на портале: <https://dissovet.msu.ru/dissertation/013.7/2579>

Автореферат разослан «__» _____ 20__ г.

Ученый секретарь
диссертационного совета,
к.ф.-м.н.



И.Н.Карташов

Общая характеристика работы

Актуальность и степень разработанности темы

В начале XXI века в современной физике и технологиях стали активно использоваться пучки газовых кластерных ионов [1,2]. Газовым кластером называют структуру, состоящую из некоторого количества атомов инертного газа. Атомы в таком кластере связаны между собой Ван-дер-Ваальсовским взаимодействием, энергия связи составляет порядка нескольких мэВ/атом. Количество атомов в кластере может составлять от нескольких единиц до десятков тысяч. Формирование нейтральных газовых кластеров происходит при адиабатическом расширении газа, истекающего в разреженную среду через звуковое или сверхзвуковое сопло [3]. После ионизации потока фотонами или электронным ударом [4] кластерные ионы могут быть ускорены до необходимой энергии.

Пучки ускоренных газовых кластеров нашли широкое применение в различных областях науки и техники. Обработка поверхности материалов кластерными ионами позволяет как полировать поверхность до субнанометровых значений среднеквадратичной шероховатости, так и формировать нанорельеф на поверхности [5–8]. Кластерное облучение используется для обработки биомедицинских изделий [2,9]. С другой стороны, пучки кластерных ионов нашли применение в различных аналитических методиках, в частности в рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) [10] и вторичной ионной масс-спектрометрии (ВИМС) для анализа органических материалов [11,12].

Механизм взаимодействия газовых кластерных ионов с поверхностью твёрдых тел значительно отличается от случая атомарных ионов. Несмотря на активное практическое применение пучков газовых кластерных ионов, эти механизмы остаются недостаточно изучены. Одним из основных явлений, наблюдаемых при облучении твёрдого тела газовыми кластерными ионами, является распыление, то есть эмиссия атомов мишени под действием облучения. Исследования дифференциальных характеристик распыления,

таких как угловых и энергетических распределений распылённого материала, важны для совершенствования прикладных методов, использующих кластерные ионы. Помимо этого, они вносят значительный вклад в понимание механизмов распыления. Рядом научных групп были проведены экспериментальные исследования и компьютерное моделирование угловых распределений материала, распыленного под действием облучения кластерными ионами [13–15]. Было установлено, что в этом случае наблюдаются так называемые «латеральные» угловые распределения: в отличие от распыления атомными ионами значительная эмиссия при кластерном облучении наблюдалась для больших углов эмиссии ($\theta > 50^\circ$) по сравнению с распылением вдоль нормали к поверхности. Однако, в работе [16] был обнаружен другой тип угловых распределений. Было экспериментально установлено, что при облучении поликристалла молибдена кластерными ионами аргона выход распыленного вещества вдоль нормали к поверхности может превосходить «латеральное» распыление.

В настоящей работе было проведено исследование механизмов формирования угловых распределений вещества, распыленного под действием бомбардировки кластерными ионами. Актуальность работы обусловлена тем, что эти исследования помогут развить представления о механизмах распыления материалов и будут полезны для разработки теории взаимодействия кластерных ионов с веществом.

Объект и предмет исследования.

Объектом исследования в представленной работе является процесс распыления поверхности однокомпонентных металлов пучком кластерных ионов инертных газов.

Предметом исследования является влияние параметров облучения, а также сорта атомов кластера и мишени, на дифференциальные характеристики распыления и механизмы взаимодействия кластера с поверхностью.

Цель и задачи исследования.

Целью исследования является изучение механизма распыления поверхности однокомпонентных металлов пучком газовых кластерных ионов.

В работе были поставлены следующие задачи:

- Экспериментально измерить угловые распределения атомов меди и вольфрама, распылённых пучком газовых кластерных ионов аргона, криптона и ксенона.
- С помощью компьютерного моделирования изучить влияние энергии и размера кластера, а также сорта атомов кластера и мишени на угловые распределения распылённого материала.
- Исследовать влияние энергии и размера кластера, а также сорта атомов кластера и мишени на процесс передачи энергии кластера атомам мишени.
- Изучить энергетические распределения распыленных атомов.

Методология исследования.

При проведении исследования использовались как экспериментальные методики, так и компьютерное моделирование. Экспериментально были проведены измерения угловых распределений распыленного материала с помощью коллекторной методики. Исследуемая мишень облучалась пучком кластерных ионов, распылённый материал осаждался на полуцилиндрический коллектор, размещенный перед мишенью. Далее проводилось измерение толщины напылённого слоя вдоль коллектора с помощью метода спектрометрии резерфордовского обратного рассеяния (РОР).

Для изучения влияния параметров облучения на механизмы распыления, а также для расчёта энергетических распределений распыленных атомов использовалось компьютерное моделирование методом молекулярной динамики (МД).

Научная новизна

Научная новизна работы обусловлена тем, что в ней впервые:

- Экспериментально измерены угловые распределения атомов, распылённых пучком газовых кластерных ионов для кластеров Xe_n и Kr_n .
- Экспериментально обнаружено увеличение выхода распылённого материала при малых углах эмиссии ($\theta < 20^\circ$) для атомов меди при распылении кластерами Xe_n и Kr_n .
- Выявлены механизмы формирования угловых распределений распылённых атомов, отличных от «латеральных».
- Показано влияние параметра E/n (средняя энергия на атом кластера) на механизм формирования угловых распределений распылённых атомов.
- Выявлены механизмы влияния нанорельефа поверхности мишени на угловые распределения распылённых атомов.
- Изучено и объяснено влияние сорта атомов кластера и мишени на проникновение атомов кластера в мишень, передачу энергии атомам мишени, а также термализацию атомов кластера после столкновения.
- Исследована применимость модели тепловых пиков для описания энергетических распределений атомов, распылённых газовыми кластерными ионами.

Научная и практическая значимость работы

- Полученные зависимости угловых распределений, передачи энергии от кластера атомам мишени и других характеристик распыления от значения E/n и сорта атомов кластера могут быть использованы для оптимизации режимов облучения и разработки новых методов для различных задач модификации поверхности мишени.
- Полученные зависимости необходимы для развития методик анализа таких как ВИМС и РФЭС.
- Полученная информация об угловых и энергетических распределениях распылённых атомов, а также зависимости от параметра E/n и сорта атомов кластера и мишени могут быть использованы для разработки

теоретических моделей взаимодействия ускоренных газовых кластеров с поверхностью твёрдого тела.

Положения, выносимые на защиту

- При облучении поверхности W пучком газовых кластерных ионов Ar_n , Kr_n и Xe_n , а также поверхности Cu пучком газовых кластерных ионов Kr_n и Xe_n значения угловых распределений расплётённых атомов при малых углах эмиссии ($\theta < 20^\circ$) находятся в диапазоне от 0,5 до 1, что отличается от «латеральных» угловых распределений, наблюдаемых в случае распыления поверхности Cu пучком газовых кластерных ионов Ar_n .
- Максимум угловых распределений атомов Cu, Mo и W, расплётённых пучком газовых кластерных ионов Ar_n , Kr_n и Xe_n при нормальном падении, смещается к направлению нормали к поверхности (в диапазоне θ от 70° до 0°) с ростом E/n в диапазоне от 10 эВ/атом до 1 кэВ/атом, где E/n – средняя энергия, приходящаяся на один атом кластера.
- Нанорельеф поверхности, формирующийся в процессе облучения кластерными ионами при нормальном падении, приводит к увеличению числа атомов, распыляемых при углах эмиссии $\theta < 20^\circ$.
- Дифференциальное сечение рассеяния атома кластера на атоме мишени определяет глубину проникновения атомов кластера в мишень, долю энергии, переданной атомам мишени, а также степень термализации атомов кластера в диапазоне E/n
- Модель тепловых пиков Зигмунда-Клауссена, используемая при распылении атомарными ионами, применима для описания энергетических распределений атомов, расплётённых газовыми кластерными ионами в диапазоне E/n от 10 до 100 эВ/атом.

Достоверность результатов

Достоверность полученных экспериментальных результатов обусловлена выбором экспериментальных методов, контролем параметров

эксперимента при его проведении, а также их многократной проверкой. Коллекторная методика измерения угловых распределений распылённых атомов по литературным данным широко использовалась как для кластерных, так и для атомарных ионов. Достоверность результатов компьютерного моделирования обусловлена выбором методики моделирования, наиболее подходящей к случаю кластерных ионов по литературным данным. Также достоверность результатов обусловлена совпадением с литературными данными там, где такое совпадение возможно.

Личный вклад автора.

Постановка задач, обзор и выбор методик исследования проводились при определяющем участии автора. Облучение мишеней пучком кластерных ионов, а также измерение методом POP проводились при непосредственном участии автора. Компьютерное моделирование проводилось автором лично. Автором были разработаны вспомогательные программы для обработки и анализа результатов моделирования. Автор внес определяющий вклад в анализ и интерпретацию полученных результатов. Подготовка публикаций и докладов по материалам исследования проведены автором лично, либо при его непосредственном участии.

Апробация работы

Результаты работы докладывались и обсуждались на российских и международных конференциях, в частности:

- XLIX, L, LI, Международная Тулиновская конференция по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами. (Москва, Россия, 2019, 2021, 2022 г.)
- 25-я Международная конференция "Взаимодействие ионов с поверхностью (ВИП-2021)" (Ярославль, Россия, 23-27 августа 2021)
- Ломоносовские чтения - 2021. Секция физики. (МГУ имени М.В.Ломоносова, Россия, 21-28 апреля 2021)

- 21st international conference on surface modification of materials by ion beam. (Томск, Россия, 25-30 августа 2019)
- 28th International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS-28). (Кан, Франция, 2-6 июля 2018)
- 23-я Международная конференция "Взаимодействие ионов с поверхностью (ВИП-2017)". (Москва, Россия, 21-25 августа 2017)
- Nanopatterning2017: 9th International Workshop on Nanoscale Pattern Formation at Surfaces. (Хельсики, Финляндия, 26-30 июня 2017)

Публикации

По результатам работы опубликовано 6 статей общим объёмом 4,8 п.л. в рецензируемых журналах, входящих в индексы Scopus, Web of Science и РИНЦ, в том числе 4 статьи в высокорейтинговых журналах Q1. Список публикаций приведен в конце автореферата.

Структура и объём

Диссертация состоит из введения, 5 глав и заключения. Работа содержит 120 страниц печатного текста, 64 рисунка, 7 таблиц, 27 формул. Список литературы включает 156 библиографических ссылок.

Содержание диссертации

Во введении приводится обоснование актуальности темы диссертационной работы и степень её разработанности, определяются объект и предмет исследования, формулируются цели и задачи исследования. Также описывается методология исследования, показана новизна и значимость работы. Помимо этого, излагаются положения, выносимые на защиту, приводится обоснование достоверности полученных результатов, описывается личный вклад автора. Также приведены сведения об апробации работы и количестве публикаций автора по теме диссертации.

В главе 1 представлен литературный обзор по теме диссертации. Дано определение газовых кластерных ионов, рассмотрены принципы их

формирования и устройство ускорителей газовых кластерных ионов. Далее рассматриваются механизмы взаимодействия кластерных ионов с поверхностью твёрдого тела. Рассматриваются эффекты «расчистки пути», множественных столкновений, а также каскада атомных столкновений в кластере. Также рассматривается образование кратеров на поверхности мишени при облучении кластерными ионами.

Одним из явлений, наблюдаемых при облучении поверхности твёрдого тела газовыми кластерными ионами, является распыление. В обзоре литературы рассматриваются отличия распыления от случая облучения атомарными ионами, приведён обзор работ, в которых изучаются зависимости коэффициента распыления от энергии и размера кластера. Рассматриваются угловые зависимости коэффициента распыления, а также угловые распределения атомов, распылённых газовыми кластерными ионами, и их зависимость от угла падения кластерного пучка.

В главе 2 приведен обзор используемых в работе экспериментальных и расчётных методов. Экспериментальное измерение угловых распределений распылённых атомов проводилось с помощью коллекторной методики. Пучок ускоренных кластерных ионов падает на мишень по нормали. Атомарные ионы, а также кластеры малых размеров (до 60 атомов для аргона при энергии 10 кэВ) удалялись из пучка с помощью постоянного магнитного поля. Перед мишенью располагался алюминиевый полуцилиндрический коллектор. Распылённый материал осаждался на коллектор, после чего производились измерения толщины осаждённого на коллектор слоя. Использование полуцилиндрического коллектора позволяет исключить геометрические искажения углового распределения распылённых атомов по азимуту $\phi = 0$ (по центру коллектора). Эксперименты по напылению коллекторов проводились на ускорителе газовых кластерных ионов лаборатории Ионно-пучковых нанотехнологий Московского Государственного Университета имени М.В. Ломоносова. Анализ толщин плёнок, осажденных на коллекторы, производился с помощью метода спектрометрии резерфордского обратного

рассеяния (POP). В данной работе измерения проводились с помощью ионов He^+ с энергией 400 кэВ. Пучок падал по нормали к поверхности, а угол рассеяния составлял 170 градусов. Такой выбор параметров обеспечивал оптимальное разрешение по массам, а также оптимальную скорость набора спектра. Измерения POP спектров проводились на ускорительном комплексе HVEE-500 ускорительного комплекса МГУ.

Стоит отметить, что пучок газовых кластерных ионов может содержать кластеры с размерами в широком диапазоне – от десятков до тысяч атомов. Для контроля распределений кластеров в пучке по размерам использовалась времяпролётная методика. [4,17]. Плоский дефлектор, представляющий два параллельных прямоугольных электрода длиной 70 мм и шириной 50 мм устанавливался после ускоряющего электрода в камере ионизации и ускорения. Расстояние между электродами составляет 6 мм. Длина дрейфового промежутка составляет 640 см. В качестве детектора ионов в конце дрейфового промежутка использовался цилиндр Фарадея. При постоянном напряжении 300 В на дефлекторе кластерный пучок полностью отклоняется и не попадает в цилиндр Фарадея. При подаче прямоугольного импульса длительностью в диапазоне от 10 мкс до 1 мс на дефлекторе устанавливалось нулевое напряжения и пучок мог достигать цилиндра Фарадея. Открывающий импульс синхронизирован с открытием импульсного клапана на входе в сопло системы формирования кластеров, таким образом прохождение пучка в дрейфовый промежуток открывалось одновременно с подачей порции рабочего газа в систему. Сигнал с цилиндра фарадея регистрировался при помощи цифрового осциллографа, открывающий импульс также служил триггером для начала измерения. Время прохождения дрейфового промежутка измерялось с помощью осциллографа, после чего была рассчитана масса кластеров исходя из предположения, что все кластеры ускорены до одной энергии.

Компьютерное моделирование взаимодействия ускоренного газового кластера с поверхностью твёрдого тела проводилось с помощью метода

молекулярной динамики (МД). Данный метод, основанный на атомистическом подходе, позволяет как отслеживать траектории отдельных атомов системы, так и рассчитывать макроскопические параметры системы [18]. Метод МД имеет большое количество программных реализаций. В данной работе проводились с использованием программного пакета PARCAS [19,20], оптимизированного для задач радиационной физики.

Метод МД основан на интегрировании уравнений движения каждой из частиц системы в поле сил остальных частиц системы и внешних сил при их наличии. Описание взаимодействия между атомами системы производится с помощью потенциалов межатомного взаимодействия. Для описания взаимодействия между атомами инертного газа используется потенциал Леннарда-Джонса [21]. Для описания взаимодействия атомов кластера с атомами мишени использовался универсальный потенциал Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL). Для описания взаимодействия атомов металлов между собой использовались потенциалы из работ [23–25]. Эти потенциалы являются многочастичными квантовомеханическими потенциалами, построенными на основе модели погруженного атома (embedded atom method, EAM).

Глава 3 посвящена изучению угловых распределений атомов меди, вольфрама и молибдена, распылённых газовыми кластерными ионами аргона, криптона и ксенона [A1,A3,A5,A6]. Экспериментально измеренные угловые распределения меди и вольфрама, распылённых газовыми кластерными ионами аргона, криптона и ксенона, представлены на рисунке 1. Угловое распределение меди, распыленной кластерами аргона, имеет максимум при углах эмиссии около 70° . Такой вид углового распределения в литературе называется «латеральным», и он характерен для распыления газовыми кластерными ионами. Однако, с увеличением атомного номера атомов, составляющих кластер, эмиссия распылённых атомов в направлении нормали к поверхности увеличивается. Для случая кластеров ксенона значение углового распределения при малых углах эмиссии сравнимо со значением в латеральном максимуме. В случае распыления вольфрама кластерами аргона

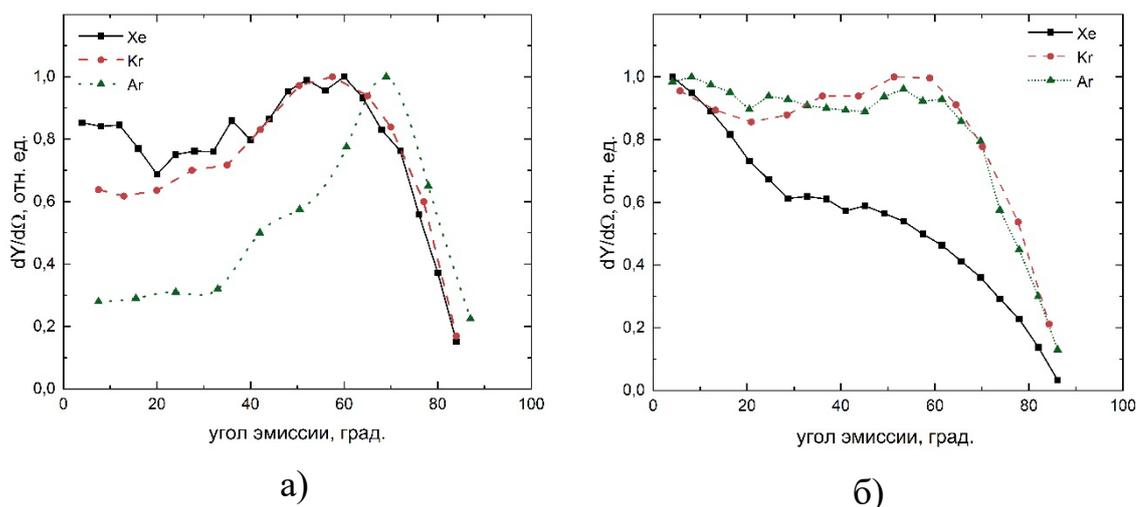


Рисунок 1. Экспериментально измеренные угловые распределения а) меди и б) вольфрама, распылённых газовыми кластерными пучками аргона, ксенона и криптона

и криптона значения угловых распределений при малых углах эмиссии также сравнимы со значением в латеральном максимуме, а при распылении вольфрама кластерами криптона максимум углового распределения наблюдается в направлении нормали к поверхности мишени. Такой вид углового распределения хорошо согласуется со случаем распыления молибдена в работе [16].

Для объяснения полученных экспериментальных зависимостей было проведено компьютерное МД моделирование распыления поверхности меди и вольфрама ускоренными кластерами аргона, криптона и ксенона. На рисунке 2 представлены рассчитанные угловые распределения меди, распылённой кластерами аргона при различных значениях E/n . Наблюдается сильная зависимость угловых распределений распылённых атомов от энергии на атом кластера в диапазоне между десятками эВ и 1 кэВ. Максимум углового распределения смещается в сторону малых углов эмиссии с ростом значения E/n . Полученная зависимость объясняется различием в механизме распыления при различных значениях E/n . В случае высокого значения E/n взаимодействие кластера с поверхностью может быть разделено на три стадии. На первой стадии взаимодействия кластер распадается на отдельные атомы. На второй

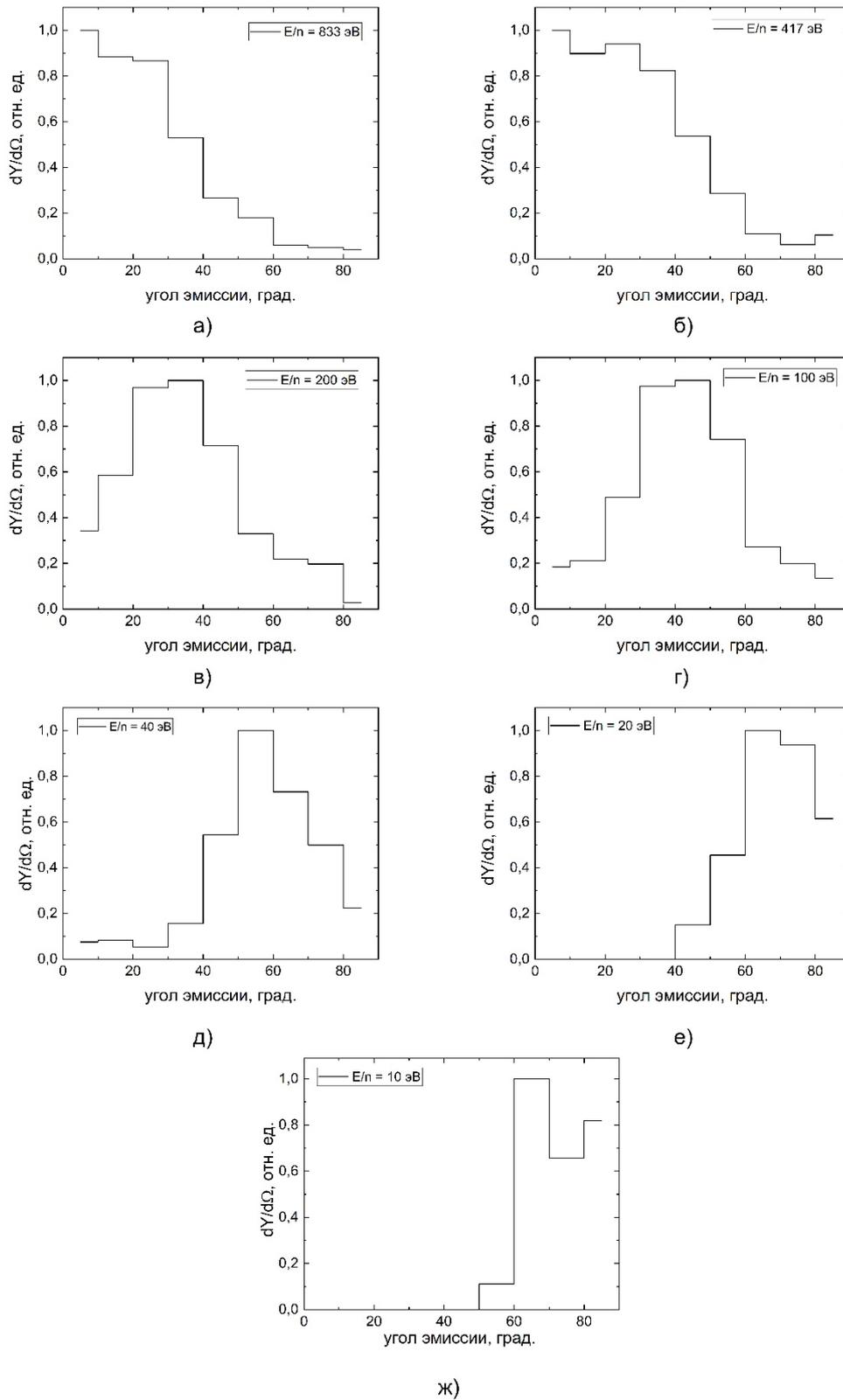


Рисунок 2. Угловые распределения атомов меди и молибдена, расплывлённых кластерами аргона, криптона и ксенона. а), б): $E/n = 200$ эВ; в), г): $E/n = 100$ эВ; д), е): $E/n = 40$ эВ

стадии атомы кластера продолжают двигаться в мишени независимо друг от друга, передавая энергию атомам мишени. На третьей стадии происходит диссипация переданной от кластера кинетической энергии посредством атомных столкновений между атомами мишени в тепловом пике. Эта стадия может длиться в течение нескольких пикосекунд. Более 90% расплывших атомов покидают поверхность мишени именно на этой третьей стадии.

При уменьшении величины E/n пробеги атомов кластера на стадии независимого движения уменьшаются до тех пор, пока энергия на атом не становится настолько малой, что атомы кластера не могут независимо двигаться в мишени. В этом случае происходит компрессия кластера в приповерхностной области, в результате которой кластер создаёт давление в области взаимодействия. При этом атомы на кромке кратера приобретают импульс по направлению от центра кластера вдоль поверхности мишени. В результате угловые распределения расплывших атомов смещаются в сторону больших углов эмиссии и приобретают т.н. «латеральный» вид .

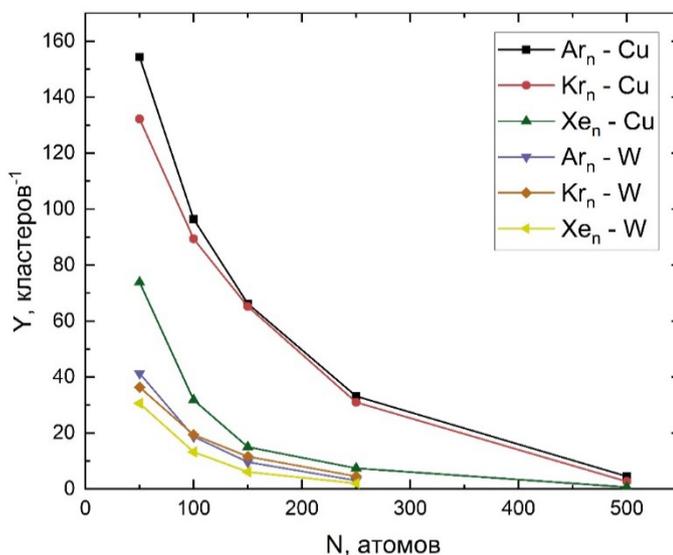


Рисунок 3. Зависимости коэффициента распыления от размера кластера при распылении меди и вольфрама кластерами аргона, криптона и ксенона с энергией 10 кэВ.

Чтобы оценить вклад распыления кластерами с различным значением E/n в итоговые угловые распределения, с помощью МД моделирования были

также рассчитаны зависимости коэффициентов распыления от E/n (рисунок 3).

Показано, что при распылении меди и вольфрама кластерами инертных газов с энергией 10 кэВ основной вклад в распыление вносят малые кластеры, размером менее 1000 атомов, при чём для криптона и ксенона коэффициент распыления становится пренебрежимо малым при ещё меньших размерах кластера.

Для более точного учёта влияния распределения кластеров в пучке по размерам, а также для изучения влияния рельефа поверхности мишени, формирующегося в процессе облучения, было проведено моделирование серии последовательных соударений кластеров с поверхностью меди и молибдена. Размер кластера в каждом для каждого соударения выбирался случайным образом с вероятностью, соответствующей экспериментальному распределению кластеров в пучке по размерам.

Рассчитанное на основе такой серии расчётов угловое распределение для меди имеет «латеральный» вид и хорошо согласуется с экспериментально измеренным. Распределение для молибдена отличается от экспериментально измеренного распределения, представленного в работе [1], однако выход молибдена при малых углах эмиссии значительно превосходит выход меди. В результате анализа атомов, распылённых при различных значениях E/n в работе показано, что основной вклад в эмиссию молибдена при малых углах вносит распыление при значениях E/n более 100 эВ/атом.

При этом для атомов молибдена, распылённых кластерами с E/n менее 100 эВ/атом, также наблюдается повышенный выход при малых углах эмиссии по сравнению с распылением меди, чего не наблюдалось при моделирования независимых соударений. Выход при малых углах повышается в результате влияния нанорельефа поверхности мишени, формирующегося в результате облучения. Были проанализированы индивидуальные траектории атомов, распылённых кластерами с $E/n < 100$ эВ/атом при углах эмиссии $\theta < 20^\circ$ и показано, что можно выделить две группы таких траекторий. Примеры таких траекторий представлены на рисунке 4. К первому типу относятся траектории

атомов, изначально располагающихся на расстоянии, большем радиуса кластера, от проекции центра кластера на поверхность мишени. Если такой атом располагается на стенке или во впадине элемента рельефа поверхности,

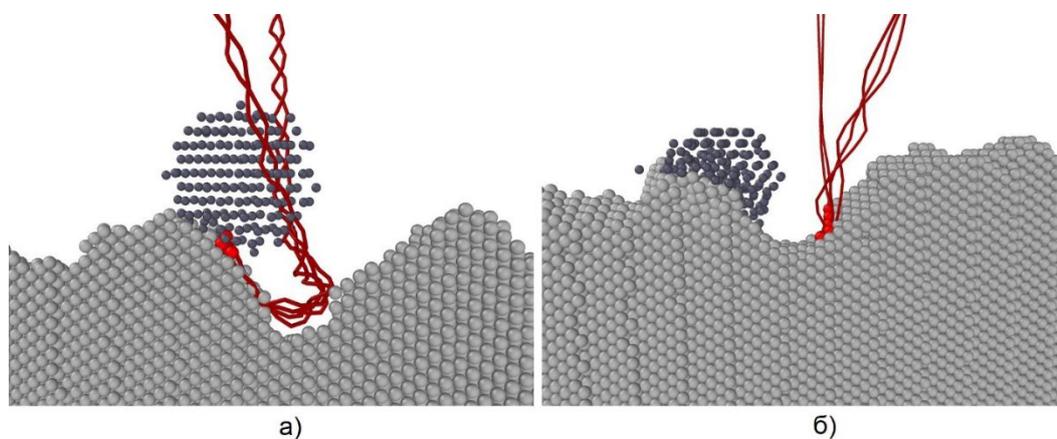


Рисунок 4. Два вида траекторий атомов, расплётённых с поверхности под малыми углами

то он не может быть расплётён под большими углами, так как они блокируются рельефом (рисунок 4 б)). Ко второму типу относятся траектории атомов, находящихся на стенке элемента рельефа поверхности на пути движения кластера. Такие атомы могут быть выбиты кластером в направлении поверхности, после чего они отражаются и оказываются расплётёнными под малыми углами (рисунок 4 б)).

Глава 4 посвящена изучению влияния сорта атомов кластера и материала мишени на процесс их взаимодействия. Приведены результаты МД моделирования взаимодействия кластеров аргона, криптона и ксенона с поверхностью меди и молибдена. Энергия кластеров составляла 20 кэВ, размер варьировался в пределах от 50 до 5000 атомов в кластере. Показано, что рассеяние атомов кластера, первыми достигающих поверхности мишени, на атомах мишени оказывает значительное влияние на процесс передачи энергии от кластера атомам мишени [A2].

В случае, если масса атомов кластера меньше массы атомов мишени, атомы кластера, которые первыми долетают до мишени, могут рассеиваться на атомах мишени на большие углы, после чего они начинают сталкиваться со

следующими подлетающими атомами кластера. В результате в кластере развивается каскад атомных столкновений. В результате этих столкновений часть атомов покидает кластер, унося значительную энергию. В случае, если отношение масс атомов кластера и мишени больше единицы, атомы кластера, которые первыми долетают до мишени, рассеиваются на меньшие углы, дольше сохраняя первоначальное направление движения. Более того, в случае более тяжёлых атомов кластера значительную роль начинает играть эффект «расчистки пути». Он заключается в том, что первые атомы кластера, достигнув поверхности, передают импульс части атомов мишени. В результате следующие атомы кластера, достигнув этой области, испытывают меньшее торможение, и могут глубже проникать в мишень.

На рисунке 5 представлены зависимости энергии кластера, переданной атомам мишени при различных значениях E/n . В среднем диапазоне энергий (от 20 до 400 эВ/атом) доля переданной энергии выше для кластеров, состоящих из атомов большей массы. В случае высоких значений E/n (более 400 эВ/атом) атомы кластера после его разрушения продолжают движение внутри мишени и теряют большую часть своей энергии в столкновениях с атомами мишени. Общая доля переданной энергии в этом случае

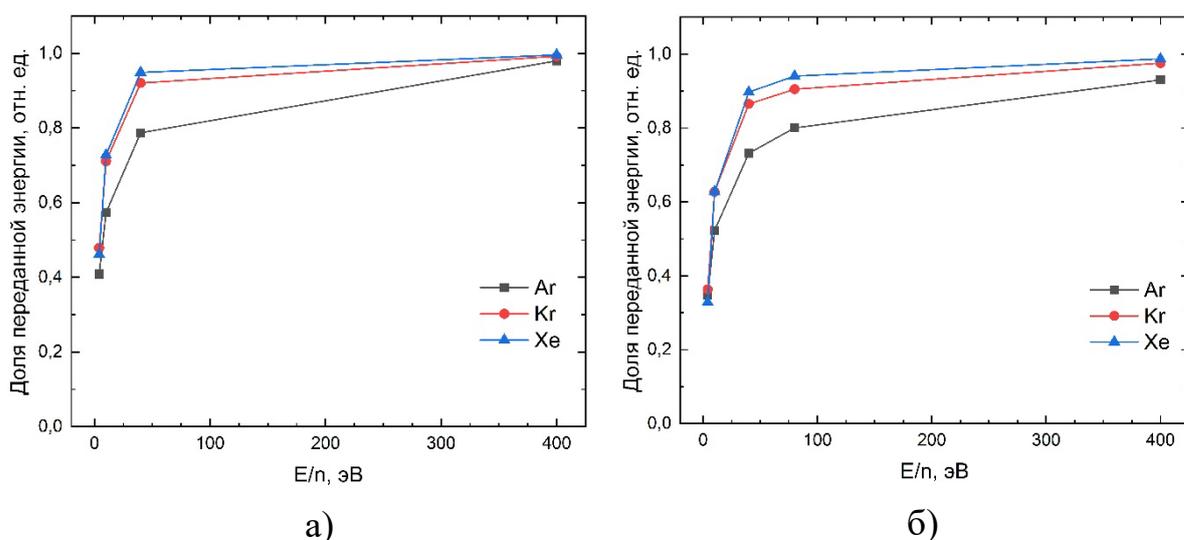


Рисунок 5. Зависимость доли энергии кластеров Ar_n , Kr_n и Xe_n , переданной мишени а) Cu, б) Mo от величины E/n .

приближается к единице, и разница между кластерами различных газов пропадает. В случае малых значений E/n (менее 20 эВ/атом) атомы кластера не могут проникнуть вглубь мишени. В результате, кластер разрушается, и покидающие его атомы уносят большую часть энергии. В этом случае даже атомы кластера, достигнувшие поверхность первыми, не проникают вглубь мишени.

Также было показано, что степень термализации атомов кластера после соударения с поверхностью зависит от сортов атомов кластера и мишени. Этот эффект также объясняется большим числом столкновений между атомами кластера в случае рассеяния первых атомов кластера, достигших поверхности, на большие углы.

Глава 5 посвящена изучению энергетических распределений расплывённых атомов [А3]. С помощью МД моделирования были рассчитаны энергетические распределения атомов меди и молибдена, расплывённых ускоренными кластерами аргона с энергией 10 кэВ. Показано, что энергетические распределения расплывённых атомов могут быть описаны уравнением теории тепловых пиков Зигмунда-Клауссена:

$$Y(E)dE \propto \frac{EdE}{(E+U)^4} f\left(\frac{E+U}{kT_0}\right), \quad (1)$$

$$f(\xi) = \left(1 + \xi + \frac{\xi^2}{2}\right) e^{-\xi}$$

где U – поверхностная энергия связи атомов мишени,

T_0 – температура ядра теплового пика.

На рисунке 6 представлено энергетическое распределение атомов меди, расплывённых газовыми кластерами аргона размером 800 атомов и с энергией 10 кэВ и его аппроксимация формулой (3). Для сравнения приведены аппроксимации распределением Максвелла, а также аппроксимация на основе теории линейного каскада, которая используется для случая распыления атомарными ионами.

Показано, что в случае распыления кластерами с высоким значением E/n

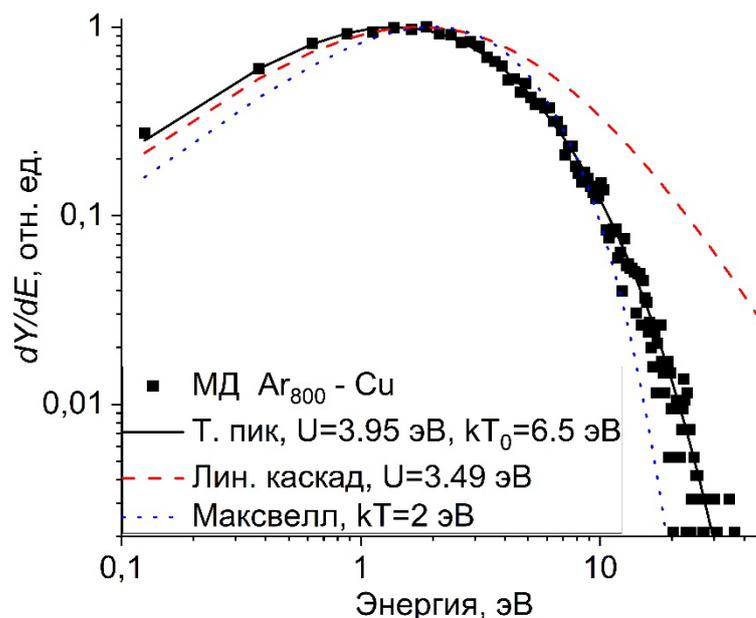


Рисунок 6. Энергетическое распределение атомов меди, расплывённых газовыми кластерами аргона с энергией 10 кэВ и размером 800 атомов.

(более 10 эВ/атом) эмиссия расплывённых атомов начинается после окончания процесса передачи энергии кластера атомам мишени, что согласуется с моделью теплового пика. В случае кластеров с меньшим значением E/n передача энергии продолжается в процессе расплывения. Также показано, что средняя энергия расплывённых атомов монотонно убывает в зависимости от времени эмиссии.

Для оценки рассчитанных энергетических распределений было проведено экспериментальное измерение энергетических распределений вторичных ионов меди, расплывённых пучком кластерных ионов аргона и ксенона. Также было проведено МД моделирование последовательности соударений кластеров аргона с поверхностью меди, которое учитывало распределение кластеров в пучке по размерам, а также формирование нанорельефа поверхности в процессе облучения. Показано, что полученные экспериментальные и рассчитанные на основе моделирования энергетические распределения находятся в удовлетворительном согласии.

В заключении сформулированы основные результаты и выводы, полученные в диссертационной работе.

Угловые распределения материала, расплывённого с поверхности меди и

вольфрама, могут отличаться от «латеральных» распределений и иметь максимум в направлении нормали к поверхности мишени. При распылении меди и вольфрама пучком газовых кластерных ионов аргона, криптона и ксенона с энергией 10 кэВ, основной вклад в распыление вносят кластеры с размером меньшим, чем средний размера кластера в пучке. Угловые распределения меди и вольфрама, распылённых кластерами аргона, криптона и ксенона, зависят от величины E/n в диапазоне от 10 эВ до 1 кэВ. При высоких значениях E/n наблюдается угловое распределение с максимумом в направлении нормали к поверхности мишени, при малых значениях E/n – латеральное угловое распределение. При облучении поверхности меди и молибдена пучком газовых кластерных ионов на поверхности формируется нанорельеф, который оказывает влияние на угловые распределения распылённых атомов.

Более тяжёлые кластеры криптона и ксенона передают атомам меди и молибдена больше энергии, чем более лёгкие кластеры аргона. Проективные пробеги атомов кластера криптона и ксенона в медной и молибденовой мишенях выше, чем для атомов кластера аргона. Дифференциальное сечение рассеяния атомов кластера на атомах мишени определяет интенсивность столкновений атомов кластера друг с другом. Различия в переданной энергии исчезают при больших значениях E/n , когда большинство атомов кластера может независимо двигаться в мишени после разрушения кластера, а также при малых значениях E/n , когда атомы кластера не проникают в мишень. В результате столкновения с поверхностью мишени кластер термализуется. Степень термализации определяется интенсивностью столкновений атомов кластера друг с другом.

Энергетические распределения атомов, распылённых газовыми кластерными ионами в диапазоне E/n от 10 до 100 эВ/атом могут быть описаны уравнением теории тепловых пиков Зигмунда-Клауссена. Рассчитанные с помощью МД моделирования энергетические распределения находятся в удовлетворительном согласии с экспериментально измеренными.

Публикации автора по теме диссертации, индексируемые Web of Science, Scopus, РИНЦ.

A1. **Nazarov A.V.**, Zavilgelskiy A.D., Ieshkin A.E., Kireev D.S., Shemukhin A.A., Chernysh V.S., Nordlund K., Djurabekova F. On the angular distributions of atoms sputtered by gas cluster ion beam // *Vacuum*. 2023. Vol. 212. P. 112061. (IF WoS: 4,11). DOI:10.1016/j.vacuum.2023.112061. Объём – 1,3 п.л., вклад автора – 1 п.л.

A2. **Nazarov A.V.**, Chernysh V.S., Zavilgelsky A.D., Shemukhin A.A., Lopez-Cazalilla A., Djurabekova F., Nordlund K. The cluster species effect on the noble gas cluster interaction with solid surfaces // *Surfaces and Interfaces*. Elsevier, 2021. Vol. 26. P. 101397. (IF WoS: 6,137). DOI:10.1016/j.surfin.2021.101397. Объём – 0,8 п.л., вклад автора – 0,5 п.л.

A3. Chernysh V.S., Ieshkin A.E., Kireev D.S., **Nazarov A.V.**, Zavilgelsky A.D. Interaction of gas cluster ions with solids: Experiment and computer simulations // *Surf Coat Technol*. 2020. Vol. 388. P. 125608. (IF WoS: 4,865). DOI:10.1016/j.surfcoat.2020.125608. Объём – 0,6 п.л., вклад автора – 0,3 п.л.

A4. Ieshkin A.E., **Nazarov A.V.**, Tatarintsev A.A., Kireev D.S., Zavilgelsky A.D., Shemukhin A.A., Chernysh V.S. Energy distributions of the particles sputtered by gas cluster ions. Experiment and computer simulation // *Surf Coat Technol*. 2020. Vol. 404. P. 126505. (IF WoS: 4,865). DOI:10.1016/j.surfcoat.2020.126505. Объём – 1,2 п.л., вклад автора – 0,7 п.л.

A5. **Назаров А.В.**, Завильгельский А.Д. Молекулярно-динамическое моделирование распыления молибдена пучком газовых кластерных ионов аргона // *Прикладная физика*. 2019. Vol. 5. P. 60. (Scopus SJR: 0,216). Объём – 0,6 п.л., вклад автора – 0,4 п.л.

A6. **Назаров А.В.**, Черныш В.С., Ермаков Ю.А., Шемухин А.А. Угловые распределения атомов молибдена, распылённых с помощью пучка газовых кластерных ионов аргона // *Прикладная физика*. 2016. Vol. 6. P. 5–8. (Scopus SJR: 0,216). Объём – 0,5 п.л., вклад автора – 0,4 п.л.

Список цитируемой литературы:

1. Иешкин А.Е. et al. Газодинамические источники кластерных ионов для решения фундаментальных и прикладных задач // Успехи физических наук. 2022. Vol. 192, № 7. P. 722–753.
2. Yamada I. Historical milestones and future prospects of cluster ion beam technology // Appl Surf Sci. Elsevier B.V., 2014. Vol. 310. P. 77–88.
3. Hagena O.F., Obert W. Cluster Formation in Expanding Supersonic Jets: Effect of Pressure, Temperature, Nozzle Size, and Test Gas // J Chem Phys. American Institute of Physics AIP, 1972. Vol. 56, № 5. P. 1793–1802.
4. Andreev A.A. et al. Design and investigation of gas cluster ion accelerator // Vacuum. Pergamon, 2013. Vol. 91. P. 47–53.
5. Korobeishchikov N.G. et al. Borate nonlinear optical single crystal surface finishing by argon cluster ion sputtering // Surfaces and Interfaces. Elsevier, 2021. Vol. 27. P. 101520.
6. Ieshkin A. et al. Decomposition of AFM images of ultrasmooth optical surface polished with gas cluster ion beam // Surf Topogr. IOP Publishing Ltd, 2019. Vol. 7, № 2.
7. Pelenovich V. et al. Decoration of ZnO needles with nanoripples using gas cluster ion bombardment // Mater Lett. Elsevier B.V., 2020. Vol. 264.
8. Toyoda N. et al. Cluster beams, nano-ripples, and bio applications // Appl Phys Rev. American Institute of Physics Inc., 2019. Vol. 6, № 2.
9. Delcorte A. et al. Large cluster ions: Soft local probes and tools for organic and bio surfaces // Physical Chemistry Chemical Physics. Royal Society of Chemistry, 2020. Vol. 22, № 31. P. 17427–17447.
10. Skryleva E.A. et al. Ar gas cluster ion beam assisted XPS study of LiNbO₃ Z cut surface // Surfaces and Interfaces. Elsevier, 2021. Vol. 26. P. 101428.
11. Cristaudo V. et al. Ion yield enhancement at the organic/inorganic interface in SIMS analysis using Ar-GCIB // Appl Surf Sci. Elsevier B.V., 2021. Vol. 536.

12. Shon H.K. et al. Improved mass resolution and mass accuracy in TOF-SIMS spectra and images using argon gas cluster ion beams // *Biointerphases*. American Vacuum Society, 2016. Vol. 11, № 2. P. 02A321.
13. Insepov Z., Yamada I. Molecular dynamics simulation of cluster ion bombardment of solid surfaces // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 1995. Vol. 99, № 1–4. P. 248–252.
14. Toyoda N. et al. Angular distributions of the particles sputtered with Ar cluster ions // *Mater Chem Phys*. 1998. Vol. 54, № 1–3. P. 262–265.
15. Lorenz M. et al. Angular distribution of molecules sputtered by gas cluster ion beams and implications for secondary neutral mass spectrometry // *Journal of Physical Chemistry C*. American Chemical Society, 2016. Vol. 120, № 44. P. 25317–25327.
16. Chernysh V.S., Ieshkin A.E., Ermakov Y.A. The new mechanism of sputtering with cluster ion beams // *Appl Surf Sci*. North-Holland, 2015. Vol. 326. P. 285–288.
17. Kireev D.S. et al. Cluster ion accelerator and its application for high-precision surface polishing // *Vestn. RGRU*. 2018. Vol. 66, № 2. P. 40–48.
18. Rapaport D.C. *The Art of Molecular Dynamics Simulation*. 2nd ed. Cambridge University Press, 2004.
19. Nordlund K. Molecular dynamics simulation of ion ranges in the 1–100 keV energy range // *Comput Mater Sci*. Elsevier, 1995. Vol. 3, № 4. P. 448–456.
20. Nordlund K. et al. Defect production in collision cascades in elemental semiconductors and fcc metals // *Phys Rev B*. American Physical Society, 1998. Vol. 57, № 13. P. 7556.
21. Kittel C. *Introduction to Solid State Physics*. Third. New York: John Wiley & Sons, 1968.
22. Ziegler J.F., Biersack J.P. *The Stopping and Range of Ions in Matter* BT - *Treatise on Heavy-Ion Science: Volume 6: Astrophysics, Chemistry, and Condensed Matter* / ed. Bromley D.A. Boston, MA: Springer US, 1985. P. 93–129.

23. Sabochick M.J., Lam N.Q. Radiation-induced amorphization of ordered intermetallic compounds CuTi, CuTi₂, Cu₄Ti₃: A molecular-dynamics study // Phys Rev B. 1991. Vol. 43, № 7. P. 5243–5252.
24. Salonen E. et al. Effects of the surface structure and cluster bombardment on the self-sputtering of molybdenum // Journal of Physics: Condensed Matter. 2003. Vol. 15, № 34. P. 5845–5855.
25. Marinica M.C. et al. Interatomic potentials for modelling radiation defects and dislocations in tungsten // Journal of Physics: Condensed Matter. IOP Publishing, 2013. Vol. 25, № 39. P. 395502.