

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М.В. ЛОМОНОСОВА
НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ
имени Д.В. СКОБЕЛЬЦЫНА

На правах рукописи



Назаров Антон Викторович

**Угловые распределения материала, распыленного с
поверхности металлов газовыми кластерными ионами**

1.3.5. Физическая электроника

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
Доктор физ. – мат. наук, профессор
Черныш В.С.

Москва – 2023

Оглавление

Введение.....	4
Актуальность и степень разработанности темы	4
Объект и предмет исследования.....	5
Цель и задачи исследования	6
Методология исследования.....	6
Научная новизна.....	6
Научная и практическая значимость работы	7
Положения, выносимые на защиту	8
Достоверность результатов.....	8
Личный вклад автора.....	9
Апробация работы	9
Публикации по теме диссертации.....	10
Глава 1. Обзор литературы.....	11
Формирование газовых кластерных ионов	11
Взаимодействие газовых кластерных ионов с поверхностью твёрдого тела	18
Глава 2. Методы исследования	37
Коллекторная методика измерения угловых распределений распылённых атомов	37
Измерение распределения кластеров в пучке по размерам.....	39
Анализ коллекторов.....	41
Компьютерное моделирование.....	46

Глава 3. Угловые распределения материала, распылённого с поверхности меди, молибдена и вольфрама пучком газовых кластерных ионов аргона, криптона и ксенона	53
Экспериментальные измерения.....	53
Компьютерное моделирование.....	57
Выводы по главе 3.	75
Глава 4. Влияние сорта атомов кластера и материала мишени на процесс их взаимодействия.....	76
Выводы по главе 4.	86
Глава 5. Энергетические распределения атомов, распылённых с поверхности молибдена и вольфрама газовыми кластерными ионами	87
Компьютерное моделирование.....	87
Экспериментальное измерение энергетических спектров вторичных ионов, распылённых газовыми кластерными ионами	97
Выводы по главе 5.	100
Заключение	102
Список используемых сокращений и обозначений.....	105
Публикации автора по теме диссертации, индексируемые Web of Science, Scopus, РИНЦ	106
Список цитируемой литературы.....	107

Введение

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 уже 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] 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 проводится 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 распылённых 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, распылённых 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.
- Модель тепловых пиков Зигмунда-Клауссена, используемая при распылении атомарными ионами, применима для описания энергетических распределений атомов, распылённых 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 РОР 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, Международные Тулиновские конференции 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 теме диссертации

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 диссертации.

Глава 1. Обзор литературы

Формирование газовых кластерных ионов

Кластером называют структуру, состоящую из некоторого числа атомов или молекул, связанных некоторым взаимодействием. Число частиц в кластере может варьироваться от нескольких единиц до десятков тысяч и даже более, однако должно быть не недостаточным, чтобы эта структура проявляла свойства массивного твёрдого тела. Кластеры могут составлять частицы одного сорта (моноатомные кластеры), или различных сортов (гетероатомные кластеры). Кластеры могут классифицироваться по типу составляющих их частиц и по виду сил, которые их связывают. Таким образом выделяют следующие виды кластеров. Металлические, которые образованы атомами различных металлов, связанными металлической связью. Полупроводниковые – кластеры, образованные атомами элементов, которые в виде массивного твёрдого тела являются полупроводниками. Например, к таким кластерам относятся кластеры кремния, углерода, германия. Такие атомы в кластере связаны ковалентными связями. Кластеры, состоящие из атомов с большой разницей электроотрицательности, например кластеры Na_xCl_y , или Mg_xO_y , называют ионными. Атомы инертного газа также могут образовывать кластеры при низких температурах, при этом они связаны Ван-дер-Ваальсовым взаимодействием. Другим видом являются молекулярные кластеры. Молекулы в них также могут быть связаны силами Ван-дер-Ваальса или мультипольным взаимодействием [17]. Далее в этой работе речь пойдёт исключительно о кластерах, состоящих из атомов инертных газов. При этом газовым кластерным ионом называется ионизованный кластер инертного газа, который может быть ускорен до необходимой энергии.

Основным принципом формирования кластеров инертного газа является конденсация при расширении рабочего газа через сопло в область вакуума. Впервые кластеризация газа таким образом была продемонстрирована в работах [18–20]. При расширении газа через сопло происходит

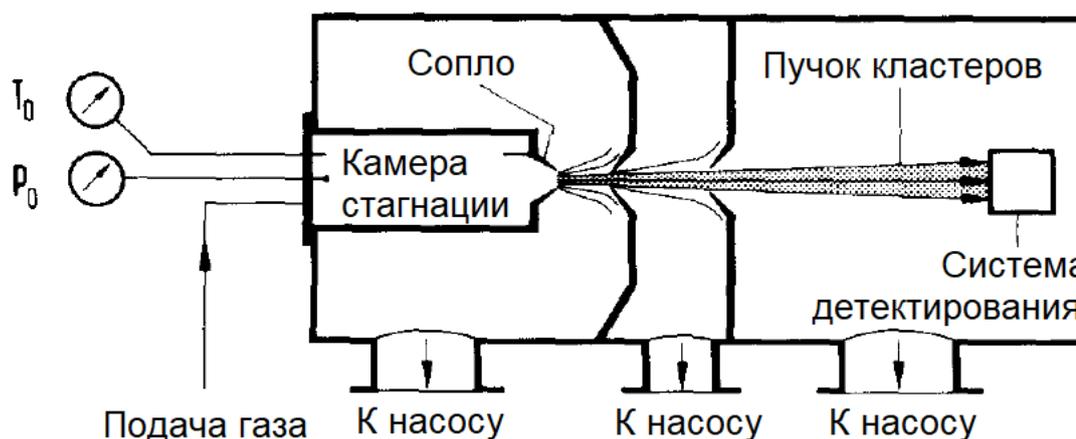


Рисунок 1.1. Общая схема установки по получению газовых кластеров [21].

газодинамическое охлаждение газа, т.е. преобразование его тепловой энергии в энергию направленного движения атомов газа [1]. На рисунке 1.1 представлена общая схема установки по получению газовых кластерных ионов [21]. Газ подаётся в камеру стагнации, расширяется в вакуумную камеру через сопло. При истечении газа из сопла формируется сверхзвуковой поток. Если давление на выходе сопла превышает давление окружающей среды, то такой поток называется недорасширенным. Характерная структура такого потока, называемая бочкой Маха, представлена на рисунке 1.2 [22]. Поток ограничен скачками уплотнения, формируемыми волнами сжатия. Центральный скачок уплотнения, ограничивающий поток по оси, называется диском Маха, который формируется ударной волной. На ограничивающих бочку Маха скачках уплотнения происходит переход от сверхзвукового истечения газа к звуковому. Формируемые в сверхзвуковой области кластеры при пересечении скачков уплотнения могут разрушаться вследствие столкновения с частицами меньшей скорости, поэтому для экстракции кластеров из сверхзвуковой области используется коническая диафрагма, называемая скиммером.

Для формирования кластерных ионов могут использоваться сопла различных форм, которые можно разделить на звуковые и сверхзвуковые. Простейшие звуковые сопла представляют собой отверстия малого диаметра

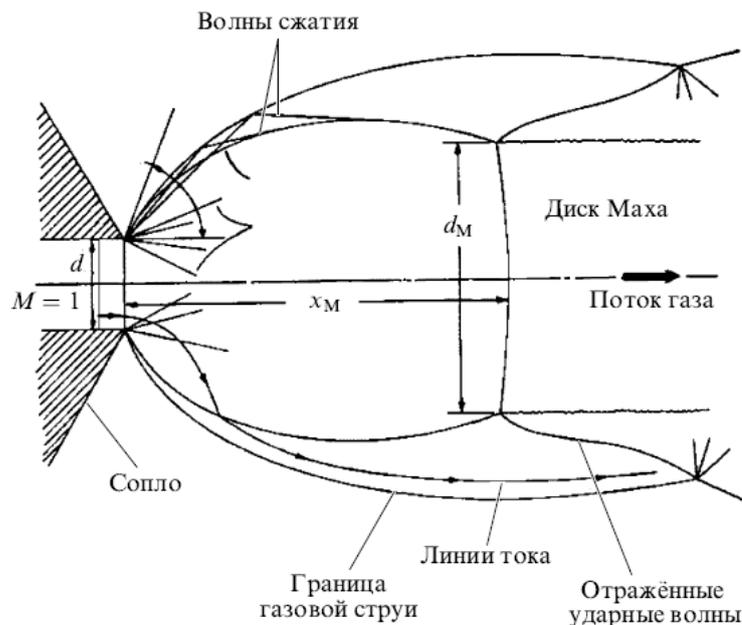


Рисунок 1.2. Структура сверхзвукового потока газа на выходе из сопла [22].

в стенке. Сверхзвуковые сопла в свою очередь имеют расширяющуюся часть, в которой происходит ускорение газа до сверхзвуковых скоростей. Диаметр отверстия в случае звукового сопла и перешейка в случае сверхзвукового сопла обычно составляет менее 1 мм.

В работах [1,23] представлены результаты визуализации потока газа на выходе из звукового и сверхзвукового сопла с помощью тлеющего разряда, а также при возбуждении электронным пучком (рисунок 1.3).

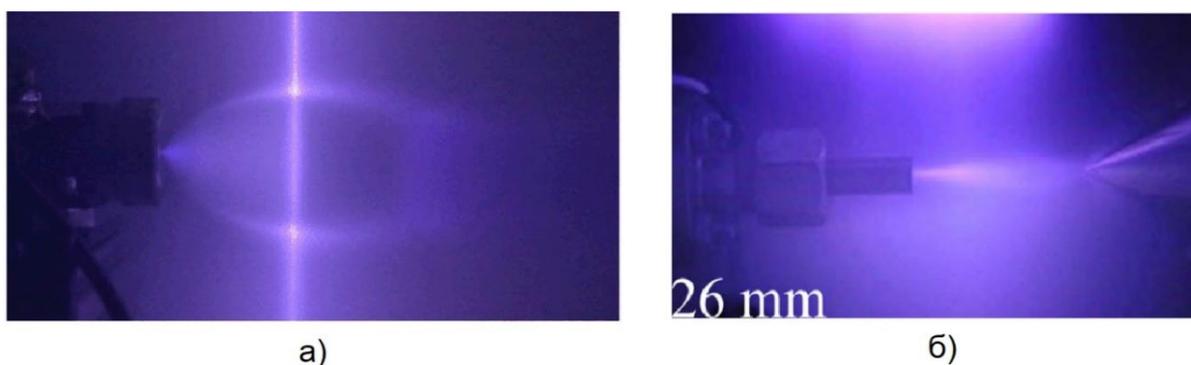


Рисунок 1.3. а) Поток азота, истекающего из звукового сопла. Визуализация с помощью возбуждения электронным пучком [1]. б) Поток аргона, истекающего из сверхзвукового сопла. Визуализация с помощью тлеющего разряда [23].

Основными параметрами, определяющими кластеризацию газа, являются давление стагнации P_0 , температура стагнации T_0 , геометрические параметры сопла, а также показатель адиабаты газа $\gamma = \frac{c_p}{c_v}$. Для сравнения кластеризации различных газов при различной геометрии сопла предложен параметр подобия Γ^* , называемый параметром Хагены [24,25]. Для осесимметричного сопла и одноатомного газа:

$$\Gamma^* = \frac{kP_0 d_{eq}^{0,85}}{T_0^{2,29}}, \quad (1.1)$$

где P_0 и T_0 – давление и температура стагнации, выраженные в миллибарах и Кельвинах соответственно;

k – коэффициент, зависящий от типа газа (таблица 1.1);

d_{eq} – эквивалентный диаметр сопла в микрометрах.

Эквивалентный диаметр сопла для звукового сопла равен выходному, а для сверхзвукового сопла определяется формулой:

$$d_{eq} = \frac{c(\gamma)d}{\operatorname{tg}\alpha}, \quad (1.2)$$

где d – диаметр перетяжки сопла;

α – угол полураствора диффузора сопла;

$c(\gamma)$ – коэффициент, равный 0,74 для одноатомных, 0,87 для двухатомных, и 0,99 для трёхатомных газов.

Таблица 1.1. Коэффициент k для различных сортов газа.

Газ	He	Ne	Ar	Kr	Xe	H ₂	D ₂	N ₂	O ₂	CO ₂	CH ₄
k	3,85	185	1650	2890	5500	184	181	528	1400	3660	2360

Важно отметить, что в процессе конденсации в сверхзвуковом потоке формируются кластеры различных размеров, и экстрагированный пучок на выходе скиммера содержит в себе целый спектр частиц от мономеров до кластеров больших размеров. В работе [26] представлен средний размер кластера в зависимости от параметра Хагены (рисунок 1.4).

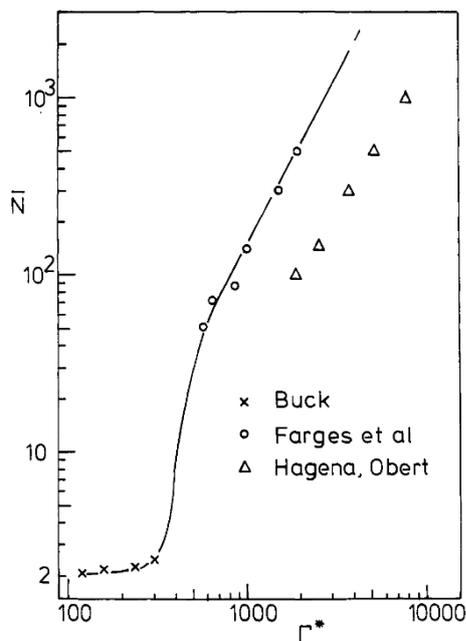


Рисунок 1.4. Зависимость среднего размера кластера в пучке от параметра Хагены по данным [26].

Распределение кластеров в пучке по размерам может быть измерено с помощью времяпролётной масс-спектрометрии [2,4,27,28]. На рисунке 1.5 а) представлены измеренные распределения кластеров аргона в пучке по размерам при различных давлениях стагнации [2]. Видно, что кластерный пучок содержит кластеры в широком диапазоне размеров от единиц до тысяч атомов в кластере. В работах [1,28–31] показано, что распределение кластеров по размерам описывается логнормальной функцией:

$$f_n = \frac{1}{\sqrt{2\pi n\sigma}} \exp\left(-\frac{(\ln n - \mu)^2}{2\sigma^2}\right), \quad (1.3)$$

где n – размер кластера;

σ и μ – эмпирические параметры.

Средний размер кластера при этом равен:

$$\bar{N} = \exp\left(\mu + \frac{\sigma^2}{2}\right). \quad (1.4)$$

Аппроксимация измеренного распределения кластеров в пучке по размерам с помощью функции (1.3) представлена на рисунке 1.5 б).

Типичная схема ускорителя газовых кластерных ионов приведена на

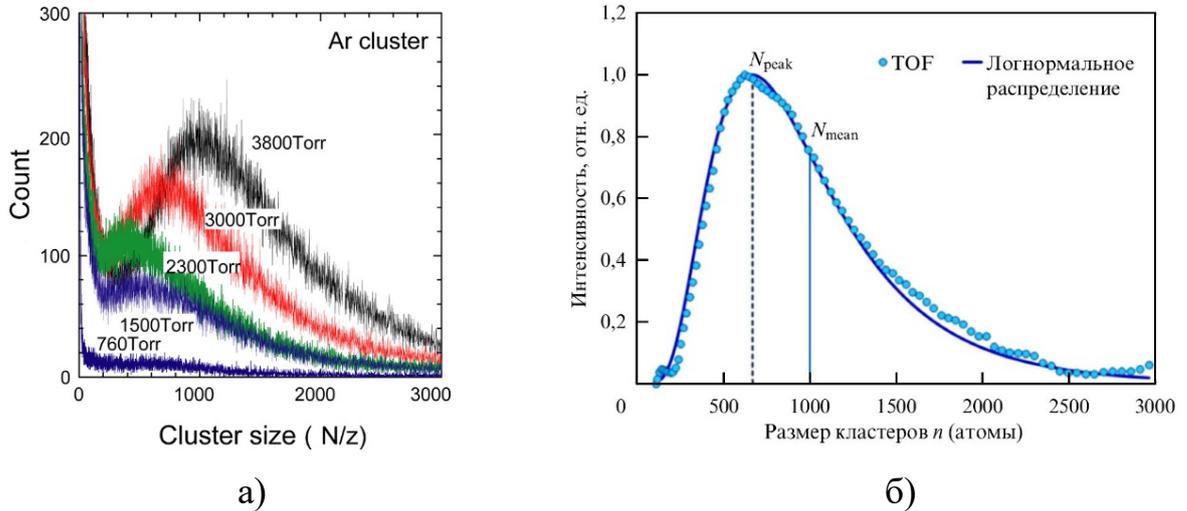


Рисунок 1.5. а) распределения кластеров аргона в пучке по размерам при различных давлениях стагнации, измеренные при помощи времяпролётной масс-спектрометрии [2]. б) Аппроксимация измеренного распределения кластеров в пучке по размерам с помощью логнормальной функции [1].

рисунке 1.6 [32]. Пучок нейтральных кластеров на выходе из скиммера ионизируется. Для ионизации могут использоваться различные методы, однако одним из наиболее часто используемых является ионизация электронным ударом [4,32,33]. Ионизованный пучок ускоряется электрическим полем до

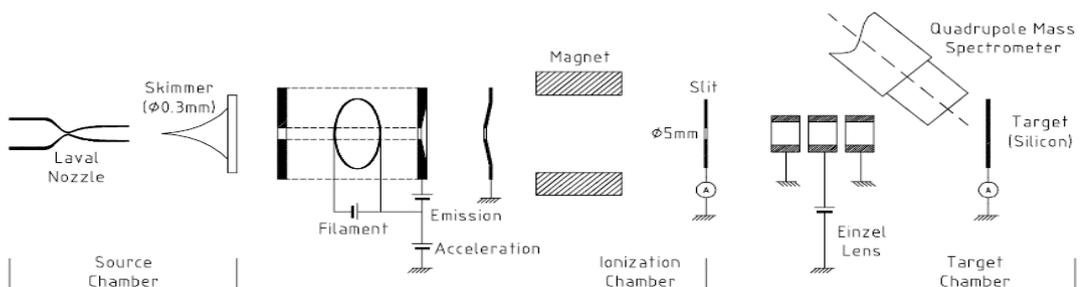


Рисунок 1.6. Схема ускорителя газовых кластерных ионов [32]

необходимой энергии и направляется на мишень. Важно отметить, что процесс ионизации оказывает влияние на распределение кластеров по размерам. Распределения кластеров в пучке по размерам при различных значениях тока ионизации и энергии ионизирующих электронов приведены на рисунке 1.7 [34]. В результате соударения с электронами кластеры могут разделяться на более мелкие фрагменты, либо терять часть атомов, поэтому с ростом тока и энергии ионизирующих электронов средний размер кластеров уменьшается. Эффективность ионизации также зависит от тока электронов, эта зависимость представлена на рисунке 1.8. При этом может происходить многократная ионизация кластеров. Например, в работе [35] показано, что в пучке кластерных ионов аргона при ускоряющем напряжении 30 кВ и среднем размере кластера, равном 3000 атомов, могут присутствовать кластеры с зарядом до +6 при энергии ионизирующих электронов выше 100 эВ. В работах [36,37] показано, что средний заряд кластеров в пучке со средним размера кластера, равным 10400 атомов, составляет +3,2. При этом, в работе [38] показано, что появление двухзарядных кластеров аргона в пучке возможно для

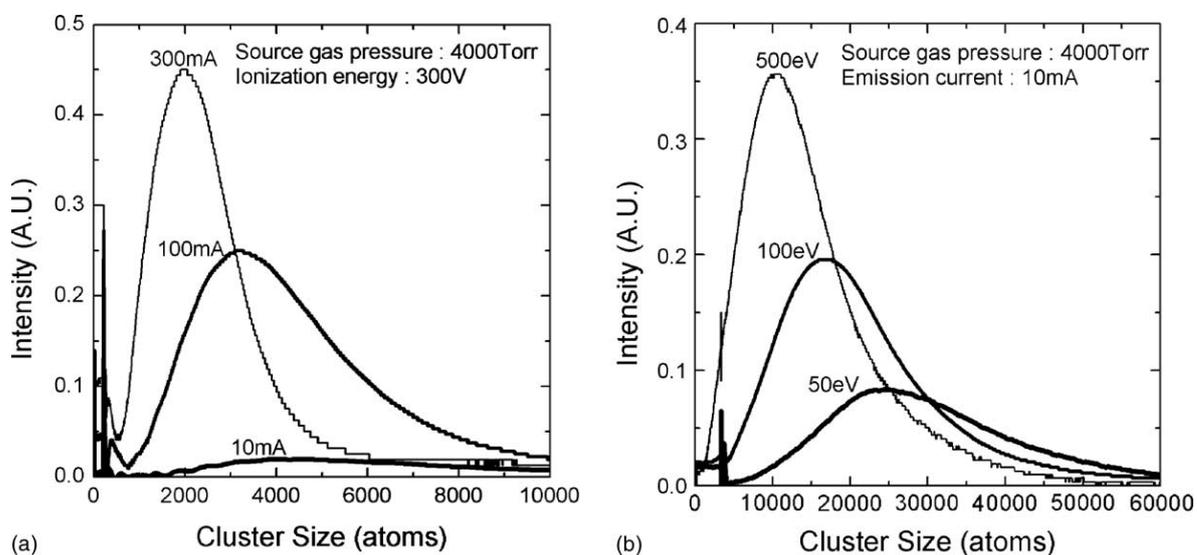


Рисунок 1.7. Распределения кластеров в пучке по размерам в зависимости от а) тока ионизирующих электронов и б) энергии ионизирующих электронов [34].

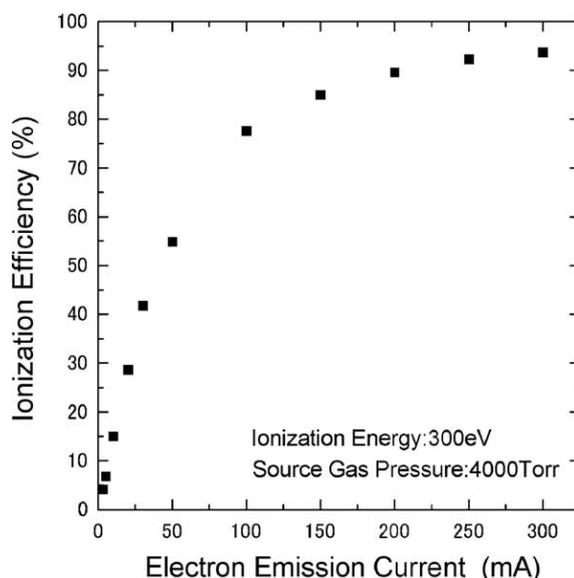


Рисунок 1.8. Зависимость эффективности ионизации от тока эмиссии ионизатора [34].

кластеров с размером более 100 атомов, для кластеров ксенона – более 50 атомов.

В ускорителях газовых кластерных ионов могут применяться различные методы сепарации кластеров по размерам. Для этой цели может использоваться магнитный масс-сепаратор [39], времяпролётный метод [40], радиочастотный [41] и квадрупольный [42] фильтры, а также фильтр Вина [43]. В ряде задач, если стоит цель удалить из пучка мономеры и кластеры наименьших размеров. В таком случае используются небольшие постоянные магнитные поля с диафрагмой на выходе из магнита [4,32]. При этом предполагается, что кластеры с размерами выше порогового отклоняются слабо, и распределением по размерам в сечении пучка можно пренебречь.

Взаимодействие газовых кластерных ионов с поверхностью твёрдого тела

Взаимодействие ускоренных кластерных ионов с твёрдым телом значительно отличается от случая атомарных ионов. При соударении кластера с поверхностью происходят множественные столкновения большого числа атомов кластера с атомами мишени, причём типичные временные масштабы

этого взаимодействия составляют менее 1 пс [44]. При этом общая энергия кластера делится между составляющими его атомами, и в результате в небольшой приповерхностной области мишени происходит взаимодействие с высокой плотностью энергии.

В серии работ [45–49] было показано, что взаимодействие кластера с твёрдым телом нельзя рассматривать как суммарный результат соударения атомов, составляющих кластер. В данных работах было проведено компьютерное моделирование взаимодействия кластеров небольшого размера (до 17 атомов в кластере) с энергией на один атом кластера (E/n) в диапазоне от 100 эВ до 1 кэВ при различных соотношениях масс атомов кластера и мишени. В частности, было показано, что прошедшие через мишень и обратнорассеянные атомы кластера, а также расплывённые атомы мишени могут иметь энергию большую, чем изначальная энергия атомов кластера (рисунок 1.9). На основе моделирования были сформулированы основные эффекты, определяющие отличие взаимодействия кластера с поверхностью от случая атомарных ионов:

- эффект «расчистки пути», который заключается в том, что атомы кластера, первыми достигающие поверхности, приводят в движение атомы мишени, в результате чего атомы кластера, которые достигают поверхности позже, двигаются в мишени с меньшими потерями энергии;
 - каскад атомных столкновений в кластере, в результате которого энергетический спектр атомов кластера уширяется, появляются атомы с энергией выше, чем изначальная;
 - эффект множественных столкновений атомов мишени с атомами кластера.
- Аналогичные результаты были получены в работе [50] при компьютерном моделировании взаимодействия кластеров аргона с размером до 200 атомов и $E/n = 100$ эВ/атом с углеродной мишенью, где было продемонстрировано значительное уширение энергетического спектра как атомов аргона, так и

атомов углерода, по сравнению со случаем облучения атомарными ионами с такой же энергией.

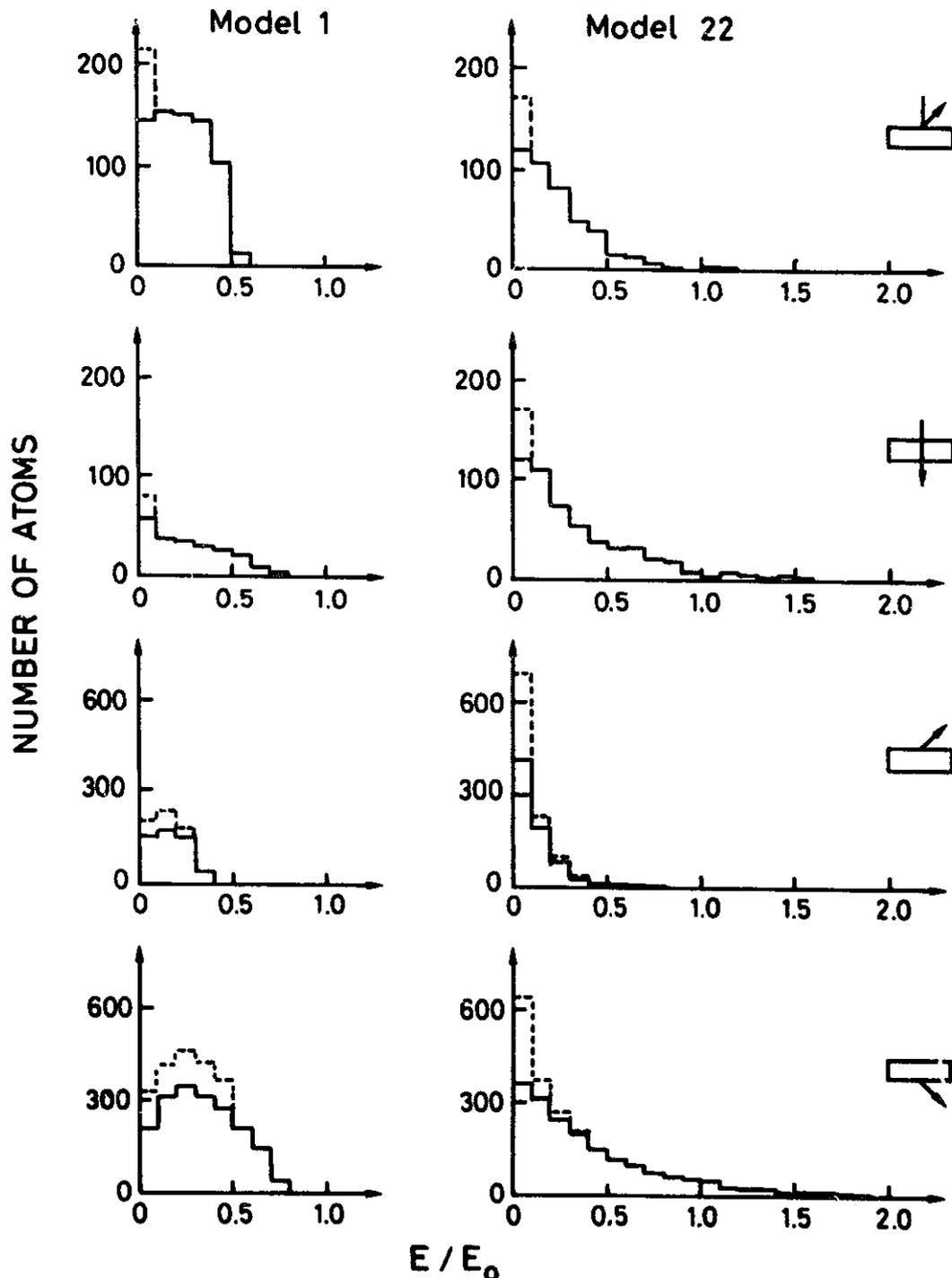


Рисунок 1.9 Энергетические спектры прошедших и обратнорассеянных атомов меди и распылённых в прямом и обратном направлениях атомов золота в случае атомарного (model 1) и кластерного (model 22) облучения золота медью с энергией 100 эв/атом [49]

Влияние столкновений атомов кластера друг с другом на процесс взаимодействия кластера с поверхностью обсуждается также в работе [51]. В работе было проведено компьютерное моделирование взаимодействия кластера Ag_{500} с $E/n = 6$ эВ/ атом с поверхностью углерода. На рисунке 1.10 изображены стадии формирования каскада атомных столкновений внутри кластера. Первые атомы кластера, достигающие поверхности, рассеиваются на

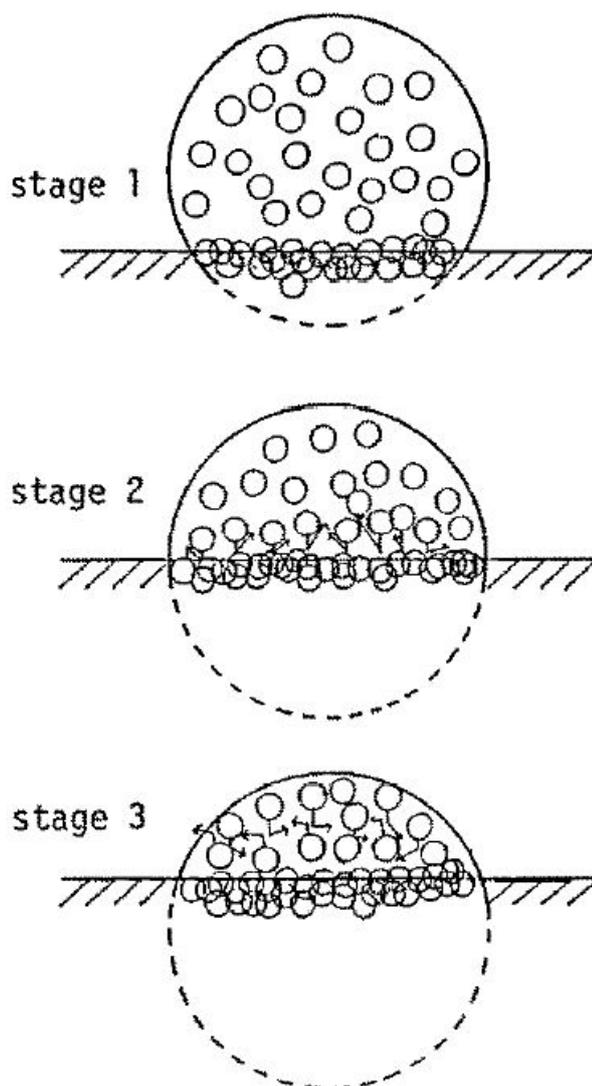


Рисунок 1.10. Стадии формирования каскада атомных столкновений в кластере [51].

атомах поверхности. Атомы следующего слоя кластера по достижении поверхности сталкиваются с атомами первого слоя, и в итоге развивается каскад столкновений внутри кластера.

Взаимодействие ускоренного газового кластерного иона с поверхностью твёрдого тела сопровождается формированием кратера на поверхности мишени. Формирование кратеров на поверхности наблюдалось в ряде работ как экспериментально [35,52–55], так и с помощью компьютерного моделирования [52,56–60]. Примеры кратеров, получаемых на разных поверхностях представлены на рисунке 1.11.

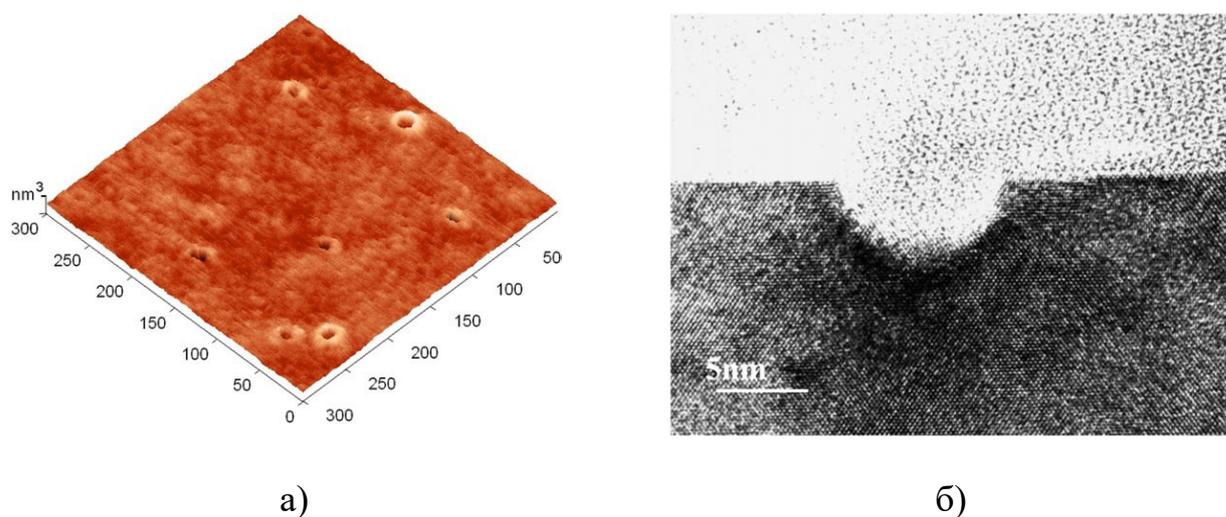


Рисунок 1.11. а) АСМ изображение кратеров на поверхности рутила, облученного кластерными ионами Ar_{23}^+ с энергией 17,25 кэВ [55]; б) ПЭМ изображение кратера на поверхности кремния, образованного при облучении кластерными ионами кислорода с энергией 24 кэВ [52].

В работе [61] показано, что при облучении поверхности кремния кластерами аргона с размером 2000 атомов глубина и диаметр кратера пропорциональны кубическому корню из полной энергии кластера в области выше 10 кэВ. При энергии кластера ниже 10 кэВ энергия на атом кластера становится слишком низкой, атомы кластера не могут образовывать смещения в мишени, и в результате кластер не может проникнуть вглубь мишени. При этом глубина кратера быстро убывает с уменьшением энергии кластера.

Механизмы кратерообразования различаются в различных диапазонах значений E/n . В работе [62] показано (рисунок 1.12), что атомы кластера с большим значением E/n после разрушения кластера при столкновении с

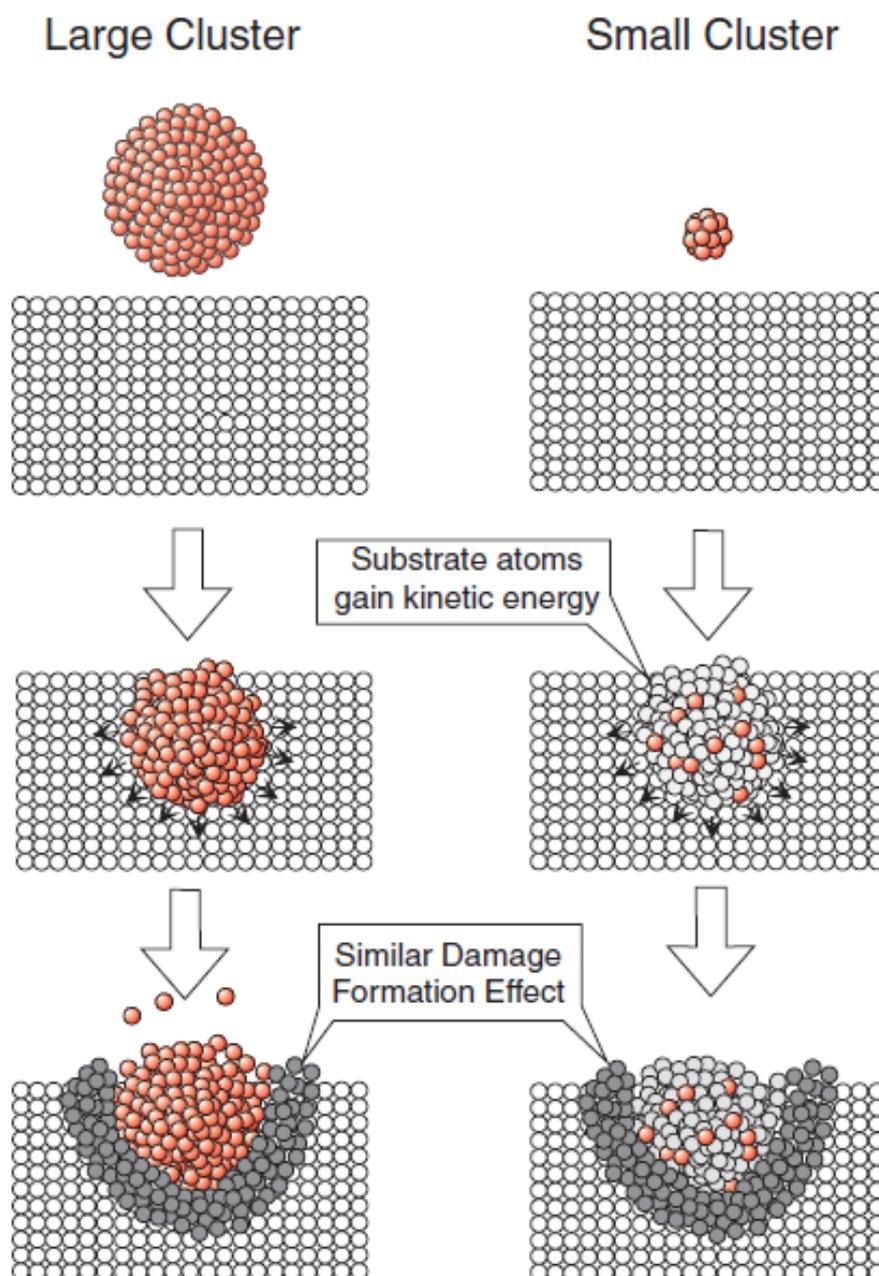


Рисунок 1.12. Механизмы кратерообразования при облучении кластерами с большим и малым значениями E/n [62].

мишенью могут продолжать движение в мишени независимо друг от друга. В процессе этого движения они передают энергию атомам мишени. В результате образуется область с высокой средней кинетической энергией атомов мишени, в результате расширения которой образуется кратер. В случае небольших значений E/n атомы кластера не могут независимо двигаться в мишени, и кластер проникает в мишень как целое. Атомы мишени в области взаимодействия получают высокий импульс в латеральном направлении и,

либо распыляются, либо выдавливаются на поверхность, формируя стенки и обод кратера.

В работах [56,63] проведено МД моделирование взаимодействия поверхности золота с кластерами золота в большом диапазоне размеров кластера от 1000 до 300000 атомов в кластере. Из анализа зависимости объёма кратера от размера кластера при постоянном значении E/n (рис. 1.13) показано, что при больших размерах кластера (более 50000 атомов) происходит переход к макроскопическому режиму кратерообразования, когда параметры кратера определяются давлением, создаваемым кластером в приповерхностной области мишени.

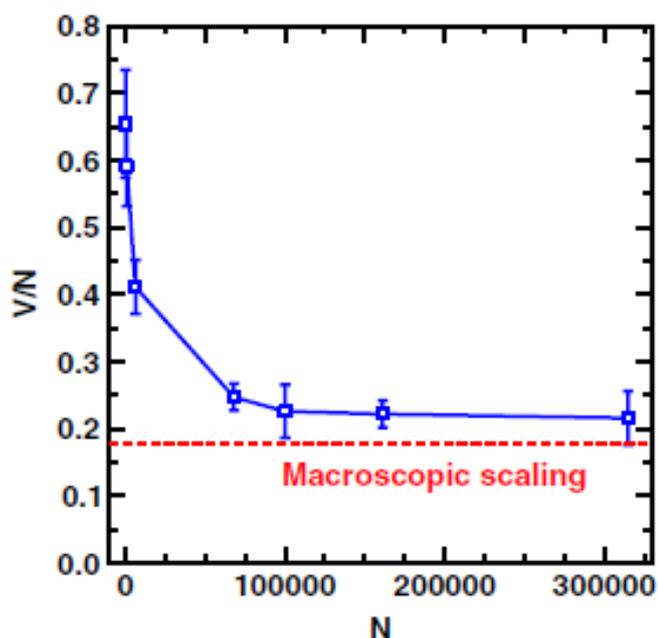


Рисунок 1.13. Зависимость объёма кратера от размера кластера [56].

Одним из наиболее значимых явлений, наблюдаемых при облучении поверхности твёрдого тела газовыми кластерными ионами, является распыление, то есть эмиссия материала мишени под действием облучения. В случае облучения атомарными ионами явление распыления довольно хорошо изучено и описывается моделью линейных каскадов атомных столкновений Зигмунда [64,65]. Одной из основных характеристик распыления является коэффициент распыления Y , определяемый как отношение числа

распылённых атомов к числу бомбардирующих ионов. В модели линейных каскадов коэффициент распыления определяется [65,66] по формуле:

$$Y = \frac{0,042\alpha S_n(E)}{U_s}, \quad (1.5)$$

где $S_n(E)$ – упругая тормозная способность иона в мишени;

U_s – поверхностная энергия связи атомов мишени;

α – безразмерный коэффициент;

0,042 – коэффициент, имеющий размерность \AA^{-2} .

Также важными являются дифференциальные характеристики распыления, такие как угловые и энергетические распределения распылённых атомов [66,67]:

$$\frac{dY}{d\Omega} \propto \cos^\nu \theta, \quad (1.6)$$

$$1 \leq \nu \leq 2$$

θ – полярный угол эмиссии.

(1.7)

$$Y(E)dE \propto \frac{E}{(E + U_s)^{3-2m}} dE, \quad (1.8)$$

где U_s – энергия связи атомов мишени на поверхности,

m – параметр, меняющийся в диапазоне от 0 до $1/4$.

В случае облучения тяжёлыми ионами в распыление также вносит вклад механизм тепловых пиков, когда распыление происходит при диссипации энергии в мишени, переданной первичным ионом. При таком механизме двойное распределение распылённых атомов по углу и энергии [68]:

$$Y(E, \theta) dE d^2\Omega = 0,0688\lambda_0 a^2 F_D'^2 \frac{EdE}{(E + U_s)^4} f\left(\frac{E + U_s}{kT_0}\right) \cos\theta d^2\Omega, \quad (1.9)$$

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

где λ_0 и a – постоянные Борна-Майера,

$F_D'^2$ – энергия, передаваемая первичной частицей на единицу длины пути,

U_s – энергия связи атомов мишени на поверхности

T_0 – температура ядра теплового пика

В случае распыления поверхности твёрдых тел кластерными ионами механизмы распыления значительно отличаются от случая распыления атомарными ионами. В работах [69,70] показаны нелинейные эффекты при распылении золота и кремния кластерами золота малого размера с размером до 5 атомов. При одинаковом значении E/n наблюдается рост коэффициента распыления на один упавший на мишень атом кластера Y/n с ростом размера кластера (рисунок 1.14).

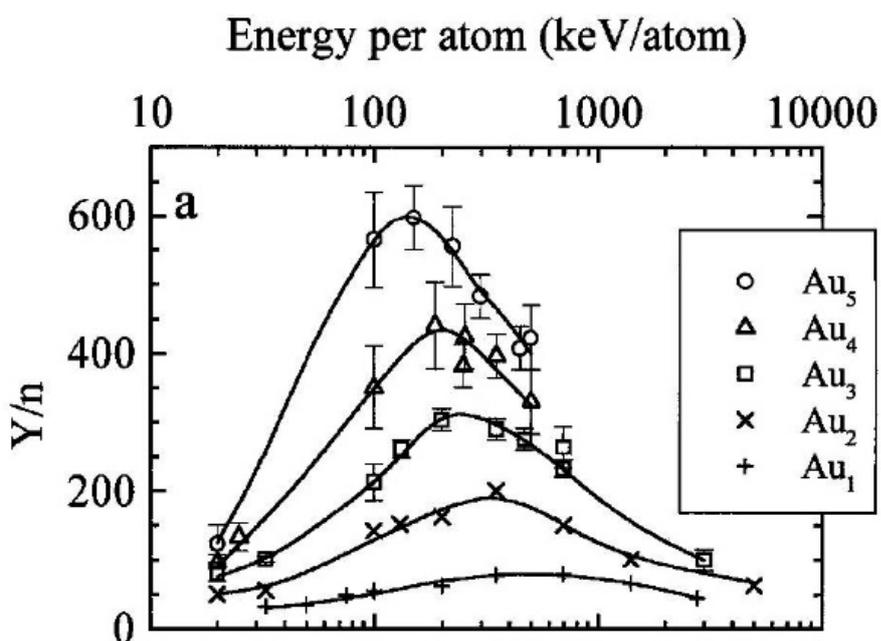


Рисунок 1.14. Зависимость коэффициента распыления на один атом кластера от E/n при распылении золота ионами и кластерами золота размером до 5 атомов [70].

В работе [50] на основе компьютерного моделирования показано 80-ти кратное увеличение коэффициента распыления углеродной мишени кластерами Ar_{200} с $E/n = 100$ эВ/атом по сравнению с распылением атомарным аргоном. В работе [71] экспериментально продемонстрировано увеличение коэффициента распыления при облучении ряда металлов (Ti, Cu, Zr, Ag, W, Au) пучком кластерными ионами аргона с энергией 20 кэВ и средним размером кластера, равным 3000 атомов, по сравнению с облучением мономерами такой же энергии на 1-2 порядка. Такие высокие коэффициенты распыления при облучении кластерными ионами связывают [44] с описанным выше эффектом

множественных столкновений и высокой плотности энергии в малой приповерхностной области.

Важным для понимания механизмов распыления, а также для планирования режимов облучения в различных практических приложениях является изучение зависимостей коэффициентов распыления от энергии и размера кластера. В работе [72] на основе МД моделирования показано, что при распылении меди кластерами аргона с размером в диапазоне от 200 до 100 атомов и $E/n = 27$ эВ коэффициент распыления зависит от полной энергии кластера $Y \propto E^{1.4}$. Показано, что эта зависимость согласуется с экспериментальными результатами из работы [71].

В работах [73,74] проводилось распыление кремния и золота пучками кластерных ионов аргона с различным средним размером кластера. Варьирование среднего размера кластера производилось с помощью регулировки давления стагнации газа в источнике кластеров, а также тока и энергии электронов в ионизаторе. В результате были измерены зависимости коэффициента распыления от размера кластера (рисунок 1.15). Аналогичная зависимость была получена в работе [40] при распылении кремния масс-сепарированным пучком кластерными ионами аргона. В работах [73,74] была

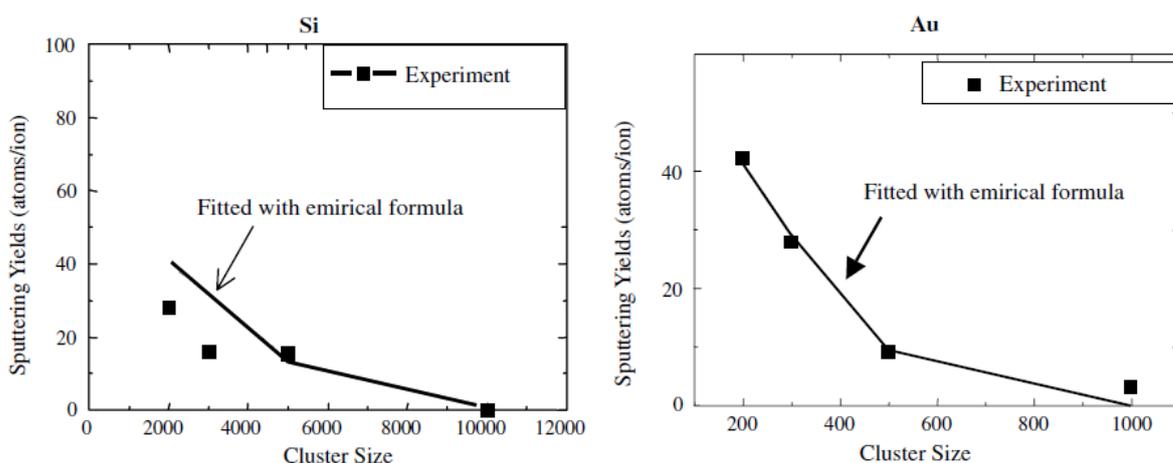


Рисунок 1.15. Зависимость коэффициента распыления кремния и золота пучком кластерных ионов аргона от размера кластера [73].

предложена эмпирическая формула для аппроксимации полученных зависимостей:

$$Y(E, N) = kN^p \left(\frac{E}{N} - E_{th} \right), \quad (1.10)$$

где E_{th} – пороговая энергия распыления,

k, p – эмпирические параметры.

В работах [75,76] также проводились экспериментальные измерения коэффициента распыления золота масс-сепарированным пучком кластерных ионов аргона с энергией 10 и 20 кэВ. Показана линейная зависимость коэффициента распыления в расчёте на один атом кластера Y/n от энергии на атом кластера E/n (рисунок 1.16).

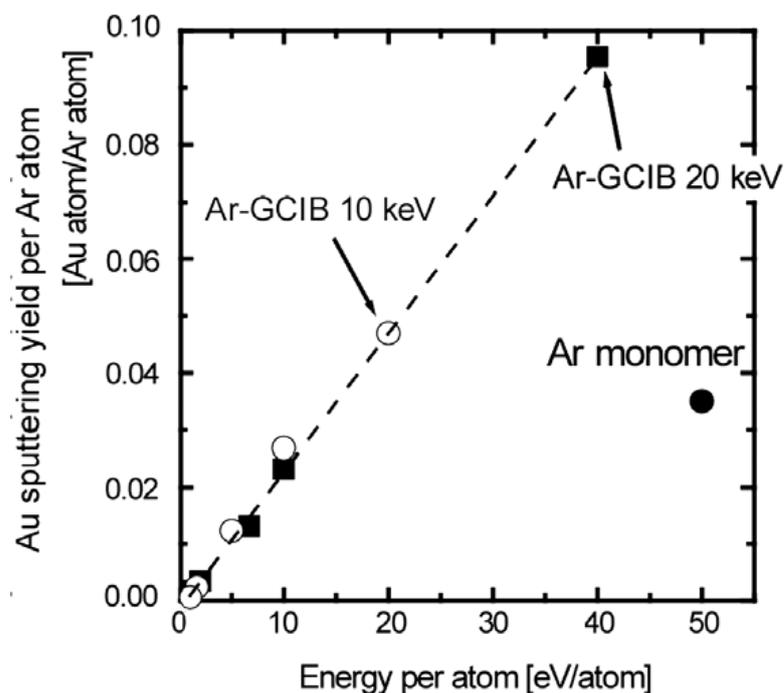


Рисунок 1.16. Зависимость коэффициента распыления на атом кластера Y/n от энергии на атом кластера E/n при распылении золота кластерными ионами аргона [75].

Во всех работах [40,73–76] отмечено, что пороговая энергия распыления E_{th} вследствие эффекта множественных столкновений при распылении газовыми кластерными ионами значительно ниже, чем в случае распыления атомарными ионами. Например, при распылении золота кластерными ионами

аргона пороговое значение E/n составляет 0,6 эВ/атом, когда при распылении золота атомарными ионами аргона пороговая энергия составляет 20 эВ.

В работе [77] было проведено МД моделирование распыления твёрдого аргона кластерами аргона в широком диапазоне размеров от 1 до 10000 атомов. Для описания полученных коэффициентов распыления (рисунок 1.17) предложено уравнение

$$Y = \alpha \frac{\varepsilon^{1+b}}{(\varepsilon_c + \varepsilon)^b}, \quad (1.11)$$

$$\varepsilon = \frac{E}{U}$$

где ε – приведённая энергия, равная отношению энергии кластера к энергии связи мишени;

α , b – эмпирические параметры;

ε_c – параметр, имеющий смысл энергии, определяющей переход между линейным и нелинейным режимами.

Полученная зависимость может быть разделена на две области – линейную при значениях $\varepsilon \gg \varepsilon_c$ и нелинейную при $\varepsilon \ll \varepsilon_c$.

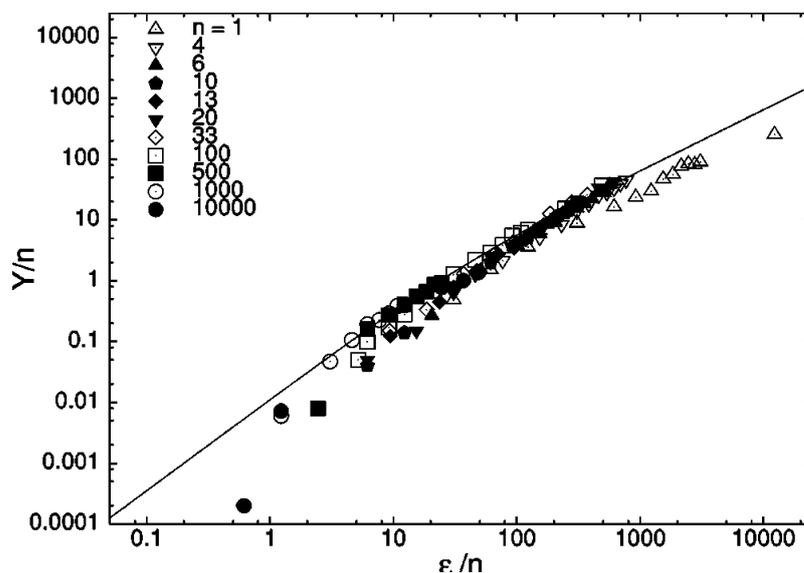


Рисунок 1.17. Зависимость коэффициента распыления на атом кластера Y/n от приведённой энергии на атом кластера ε/n при распылении твёрдого аргона кластерными ионами аргона различного размера, а также аппроксимация уравнением (1.11) [77].

В серии работ [78–80] авторы на основе анализа большого числа результатов по распылению различных материалов кластерными ионами аргона было предложено другое уравнение, описывающее зависимость коэффициента распыления от размера и энергии кластера:

$$\frac{Y}{n} = \frac{\left(\frac{E}{An}\right)^q}{1 + \left(\frac{E}{An}\right)^{q-1}}, \quad (1.12)$$

где A и q – эмпирические параметры.

Данное уравнение было названо универсальным уравнение для коэффициента распыления кластерными ионами. В случае низких значений E/n уравнение

(1.12) приобретает приближённый вид степенной зависимости $Y = n \left(\frac{E}{An}\right)^q$; при

больших значениях E/n оно может быть упрощено до $Y = \frac{E}{A}$, то есть пропадает зависимость от размера кластера.

На рисунке 1.18 представлена зависимость коэффициента распыления золота, распылённого кластерными ионами аргона от E/n и аппроксимация уравнением (1.12).

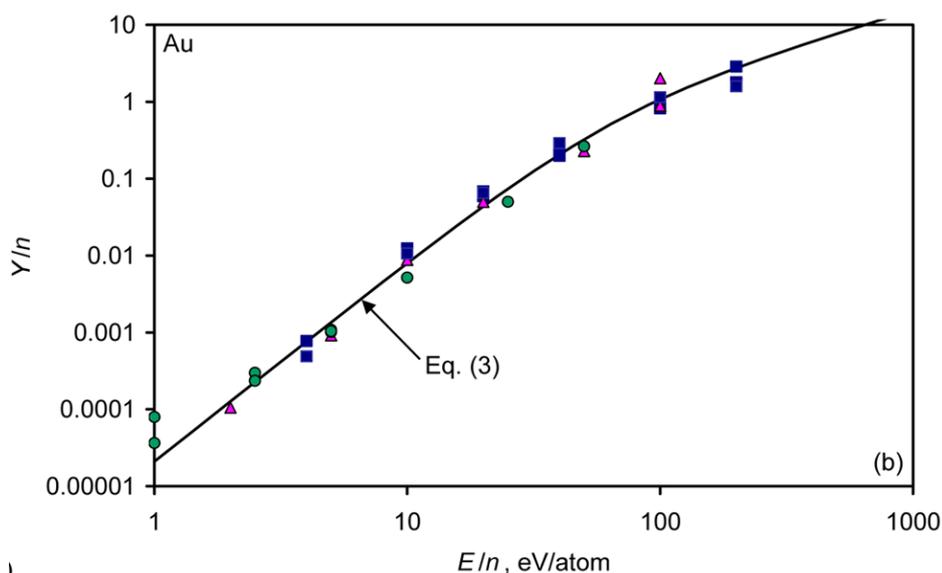


Рисунок 1.18. Зависимость коэффициента распыления на атом кластера Y/n от энергии на атом кластера E/n при распылении золота кластерными ионами аргона, а также аппроксимация уравнением (1.12) [79].

В работах [81,82] авторы предлагают рассматривать зависимости коэффициента распыления от энергии и размера кластера не как функцию

$\frac{Y}{n} \left(\frac{E}{n} \right)$, а как функцию $\frac{Y}{E/U_0} \left(\frac{E/U_0}{n} \right)$. Таким образом, во-первых, учитывается

энергия связи мишени, что делает зависимость более универсальной, а, во-вторых, таким образом учитывается как энергия на атом кластера, так и общая энергия кластера, которая также определяет выход распылённого материала.

Из представленных выше работ видно, что одним из основных параметров, определяющих коэффициент распыления в случае облучения кластерными ионами, помимо общей энергии кластера является средняя энергия на один атом кластера – величина E/n . В работе [83] на основе МД моделирования был проведён анализ влияния величины E/n на процесс взаимодействия ускоренного кластера с поверхностью твёрдого тела. Показано, что энергия на атом кластера определяет возможность атомов кластера проникать вглубь твёрдого тела, и в результате определяет долю энергии кластера, переданную атомам мишени. Таким образом, энергия кластера E и средняя энергия на один атом кластера E/n определяют количество энергии, передаваемое кластером атомам мишени.

Относительно зависимости коэффициента распыления от угла падения кластерного пучка в литературе встречаются противоречивые данные. В работе [84] показано, что коэффициент распыления серебра и меди пучком кластерных ионов аргона с энергией 20 кэВ и средним размером 3000 атомов пропорционален косинусу угла падения пучка (рисунок 1.19). Эту зависимость авторы объясняют тем, что площадь проекции кластера на поверхность мишени при наклонном падении обратно пропорциональна косинусу угла падения, а плотность энергии, выделяемой кластером на поверхности пропорциональна этой площади проекции. Однако, в работе [85] показано, что при распылении SiO_2 кластерными ионами аргона с энергией 20 кэВ максимальный коэффициент распыления наблюдается при угле падения 60° , а минимальный при нормальном падении пучка (рисунок 1.20 а)). При этом, в

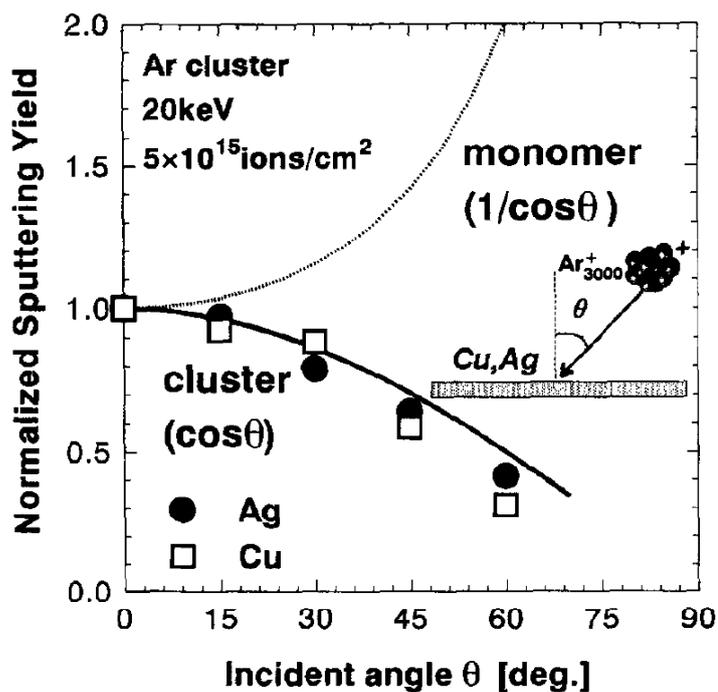


Рисунок 1.19. Зависимость коэффициента распыления от угла падения пучка кластерных ионов [84].

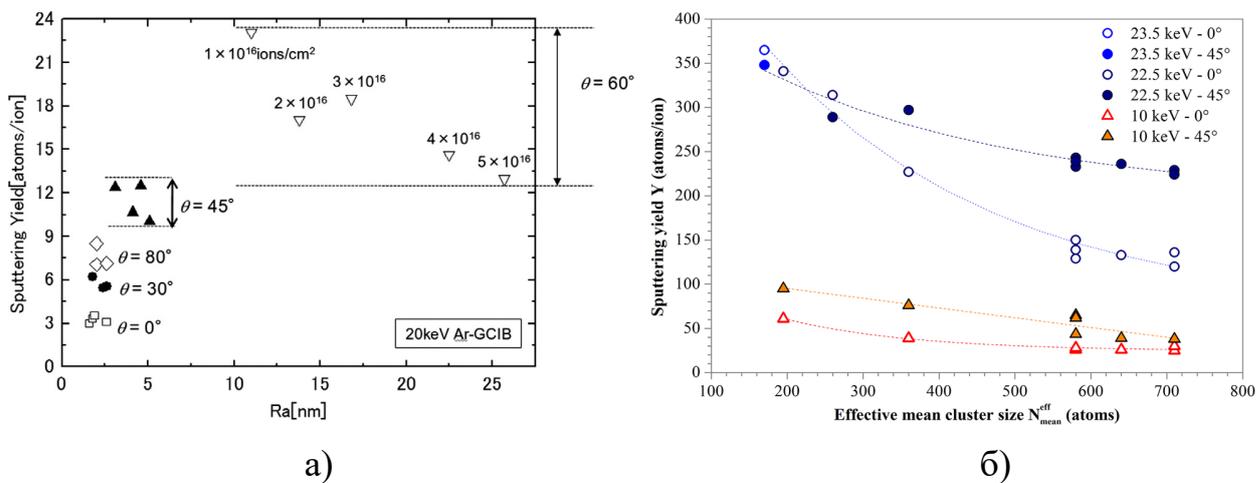


Рисунок 1.20. а) зависимость коэффициента распыления SiO₂ от средней шероховатости поверхности при различных углах падения кластерных ионов аргона [85]; б) зависимость коэффициента распыления SiO₂ от размера кластера аргона при различных энергиях и углах падения [86].

работе показано, что коэффициент распыления сильно зависит от рельефа поверхности, который в свою очередь формируется при наклонном падении пучка. В работе [86] также были проведены измерения коэффициента

распыления SiO_2 пучком кластерных ионов аргона при различных углах падения и различных значениях E/n (рисунок 1.20 б)). Показано, что при малых E/n ($E/n < 10$ эВ) коэффициент распыления при угле падения 45° значительно превышает коэффициент распыления при нормальном падении. При этом, с ростом E/n разница в коэффициентах распыления при разных углах сокращается. В работе [87] также на основе компьютерного моделирования также был сделан вывод о влиянии рельефа поверхности на угловые зависимости коэффициента распыления (рисунок 1.21). При этом в качестве мишени служило серебро, а параметры рельефа отличались от работы [85] – рассматривался нанорельеф, формирующийся в процессе облучения кластерными ионами.

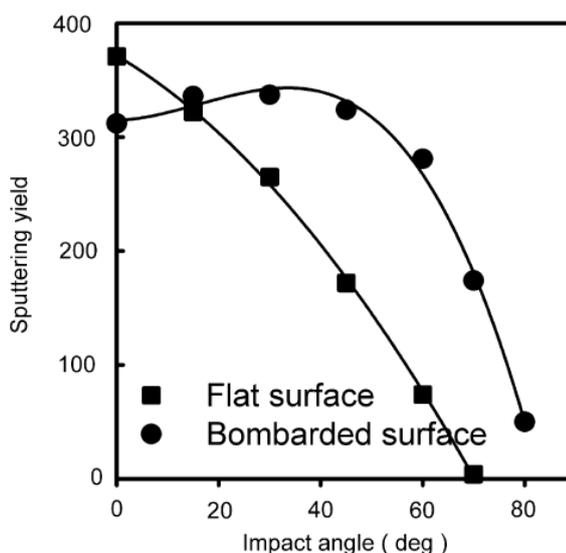


Рисунок 1.21. Зависимость коэффициента распыления серебра от угла падения кластеров Ar_{872} в случае плоской поверхности и в присутствии нанорельефа [87].

Угловые распределения распылённых атомов при распылении кластерными ионами значительно отличаются от распыления атомарными ионами. Угловые распределения имеют максимум при больших углах эмиссии, что не соответствует уравнениям (1.6) и (1.9). Такой эффект, названный «латеральным распылением», является характерной особенностью

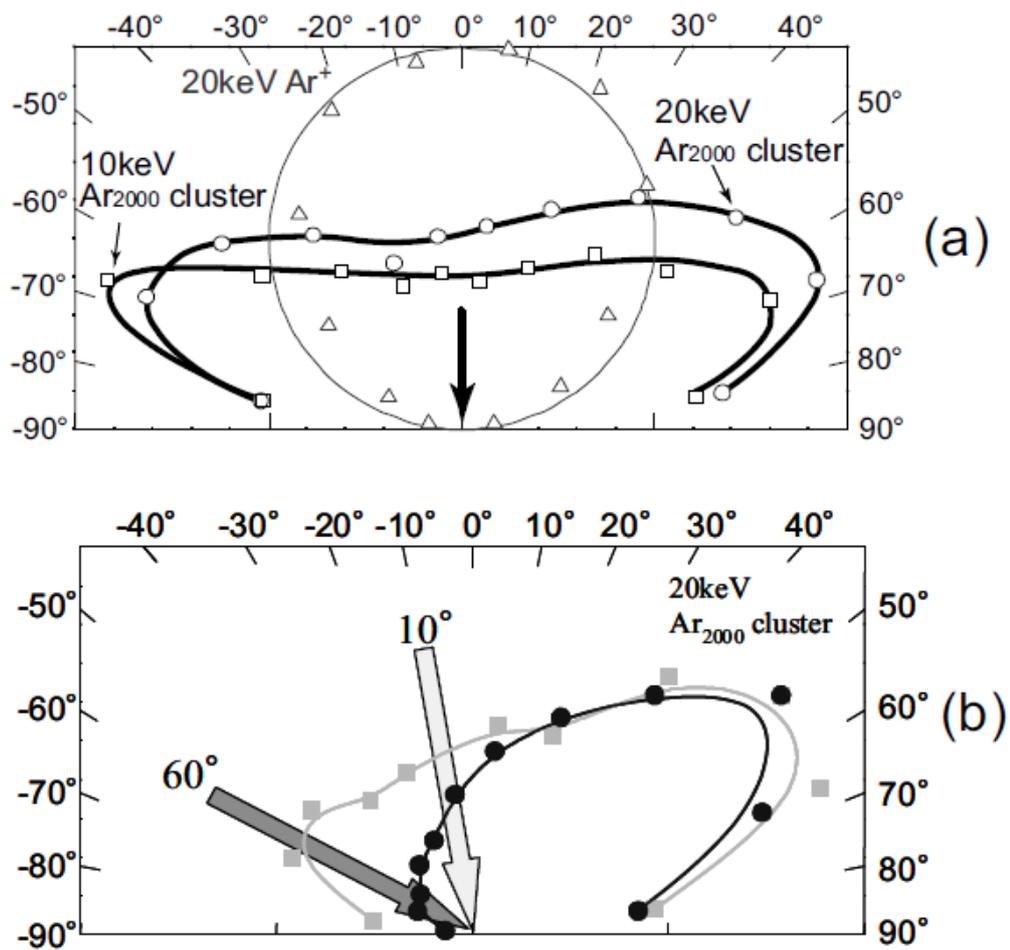


Рисунок 1.22. а) Угловые распределения атомов меди, расплывённых пучком кластерных ионов аргона со средним размером 2000 атомов и энергией 10 и 20 кэВ при нормальном падении кластерного пучка. Для сравнения представлены угловое распределение атомов меди, расплывённой пучком атомарных ионов аргона с энергией 20 кэВ. б) Угловые распределения атомов меди, расплывённых пучком кластерных ионов аргона со средним размером 2000 атомов и энергией 20 кэВ при углах падения кластерного пучка, равных 10° и 60°. Угол падения и угол эмиссии отсчитываются от направления нормали к поверхности мишени. [88]

облучения кластерными ионами. Латеральные угловые распределения наблюдались как экспериментально, так и с помощью компьютерного моделирования для ряда материалов мишени, как элементарных, так и

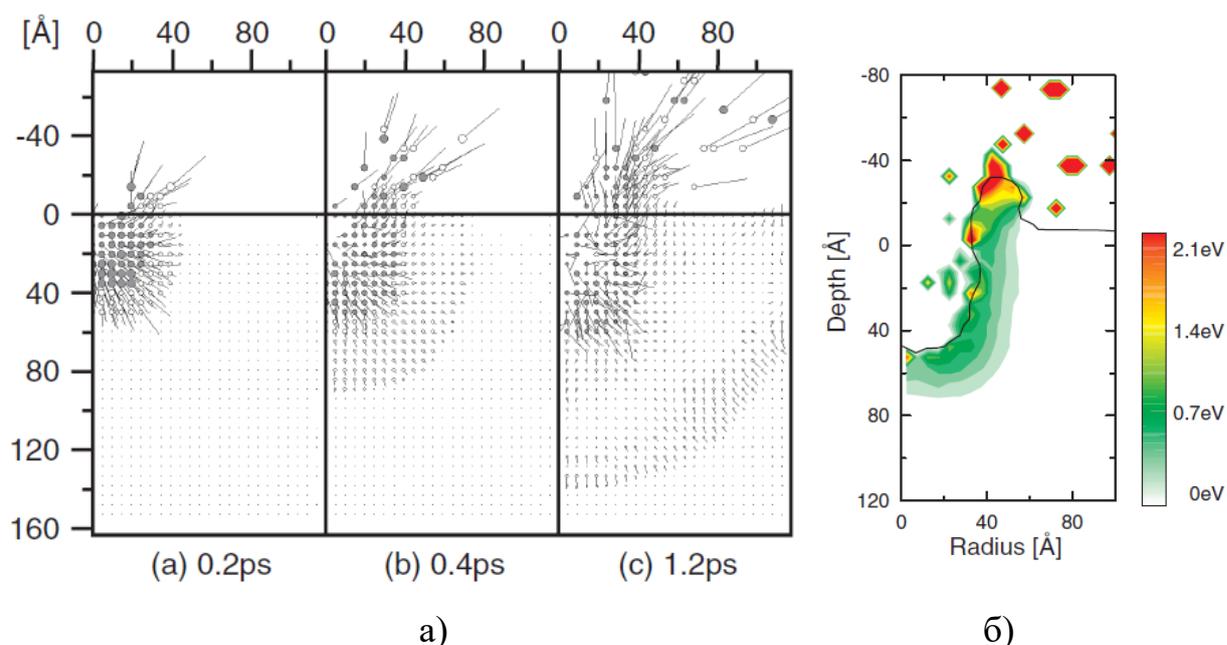


Рисунок 1.23. Распределение а) импульса и б) кинетической энергии атомов мишени на границе кратера при соударении кластера Ar_{688} с $E/n = 80$ эВ/атом [62].

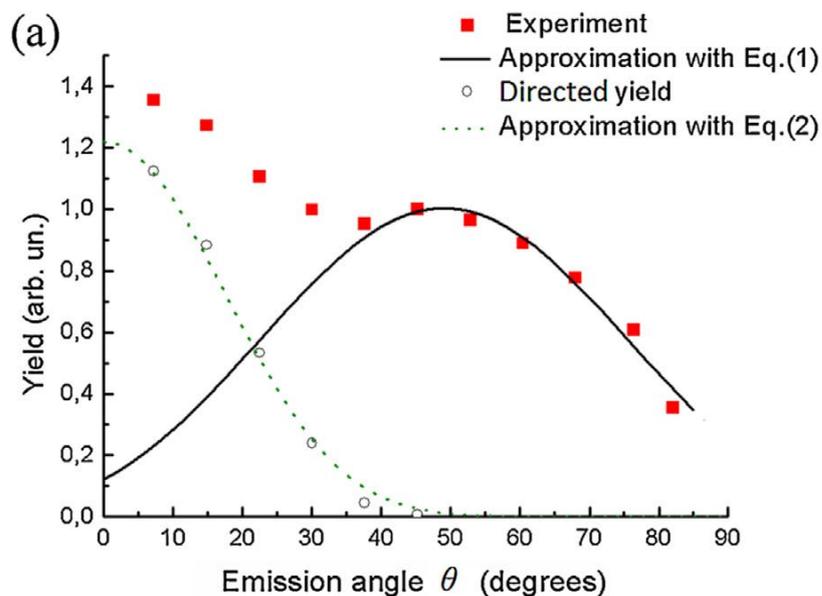


Рисунок 1.24. Угловое распределение атомов молибдена, расплывённых пучком кластерных ионов кластерных аргона с энергией 10 кэВ и средним размером 1000 атомов [16].

органических [13–15,88] (рисунок 1.22 а)). Механизм формирования таких угловых распределений заключается в следующем. При соударении кластера с поверхностью мишени, на ней формируется кратер. Распыление происходит

преимущественно с краёв кратера, при этом атомы мишени на краю кратера в результате множественных столкновений с атомами кластера получают импульс вдоль поверхности мишени в направлении от кластера (рисунок 1.23).

При изменении угла падения кластеров угловое распределение становится заметно ассиметричными, эмиссия расплывённых атомов со стороны падения пучка заметно уменьшается, а с противоположной стороны максимум наблюдается также при больших углах эмиссии (рисунок 1.22 (б)).

Однако, в работе [16] было экспериментально обнаружено, что при распылении молибдена пучком кластерных ионов аргона с энергией 10 кэВ и средним размером 1000 атомов наблюдается угловое распределение с выраженным максимумом вдоль нормали к поверхности мишени (рисунок 1.24). Такое распределение не соответствует текущим представлениям о механизме формирования угловых распределений расплывённых атомов, поэтому одной из целей данной диссертационной работы является более подробное изучение этого эффекта.

Глава 2. Методы исследования

Коллекторная методика измерения угловых распределений распылённых атомов.

Измерение угловых распределений $dY/d\Omega$ материала, распылённого газовыми кластерными ионами, проводилось с помощью коллекторного метода. В данном методе распылённый материал осаждается на расположенной перед распыляемым образцом фольге, после чего производится измерения толщины осажденной на коллекторе плёнки.

Такая методика широко использовалась для измерения угловых распределений как при распылении атомарными [89–96], так и кластерными [14,97] ионами. К особенностям данной методики, которые нужно учитывать при планировании эксперимента, относится возможное неадекватное преобразование распределения распылённых частиц в профиль толщины на коллекторе. Эта особенность может быть связана с двумя факторами: геометрическим искажением на несферическом коллекторе, связанным с появлением зависимости проекции элемента телесного угла на коллектор от угла выхода, а также с неполнотой сбора распылённых частиц на коллекторе [67].

Отсутствие геометрических искажений распределения распылённого материала на коллекторе может быть достигнуто использованием полусферического коллектора [98,99], однако, как изготовление, так и анализ такой геометрии коллектора представляет практические трудности. При использовании плоских коллекторов возможно преобразование:

$$\frac{dY}{d\Omega}(\theta, \phi) = \frac{dN}{dF} R \cos^{-3} \theta, \quad (2.1)$$

где $\frac{dN}{dF}$ – плотность атомов на коллекторе, R – расстояние от мишени до коллектора, θ и ϕ – полярный и азимутальный углы выхода распылённых атомов соответственно. Отметим, что при использовании

полуцилиндрических коллекторов геометрические искажения исключены по азимуту $\phi = 0$ (по центру коллектора).

Другим фактором, приводящим к искажениям измеряемых угловых распределений распылённого материала, является неполнота сбора достигшего коллектора материала. Для адекватного отображения углового распределения на коллекторе необходимо, чтобы скорость роста плёнки была пропорциональна потоку поступающих частиц. Это условие выполняется не всегда. Например, в работах [99,100] показаны отклонения распределений осаждённого материала на коллекторе от распределений эмитированных частиц при различных температурах коллектора. Использование металлических коллекторов позволяет уменьшить этого отклонение благодаря относительно высокой энергии десорбции атома металла из металла. Для большинства металлов, конденсируемых на металлических подложках при комнатной температуре, условие пропорциональности выполняется, однако может резко нарушаться с ростом температуры. Более того для ряда металлов, например, Mg, Cd, Zn, Hg, In необходимо значительно охлаждение коллектора [67].

Также является важным выбор метода определения профиля толщин материала, собранного на коллекторе. Для этого может использоваться гамма-спектрометрия, электронное рассеяние, автордиография, характеристическое рентгеновское излучение [67]. Одним из наиболее применяемых методов является спектрометрия резерфордовского обратного рассеяния (ROR) [14,16,91,95,97,101]. Стоит отметить, что ранее также использовался метод фотометрирования, однако он оказался не подходящим из-за сильной зависимости коэффициента оптического поглощения от содержания примесей [67].

В данной работе использовалась следующая схема измерения угловых распределений распылённых атомов (рисунок 2.1) [16,102,103]. Кластерный пучок попадает в область магнитного поля, после чего пучок проходит через диафрагму. Размер диафрагмы и величина магнитного поля подобраны таким

образом, чтобы удалить из пучка атомарные ионы и малые кластеры размером менее 60 атомов в кластере в расчёте для однозарядных кластеров аргона. Перед мишенью располагался полуцилиндрический коллектор из алюминиевой фольги чистотой 99,99% и толщиной 0,1 мм. Радиус коллектора составляет 15 мм. В центре коллектора находится отверстие диаметром 3 мм, через которое проходит пучок. Пучок падал по нормали к поверхности мишени. Облучение проводилось с флюенсом в диапазоне $10^{17} - 10^{18}$ кластеров на см^2 .

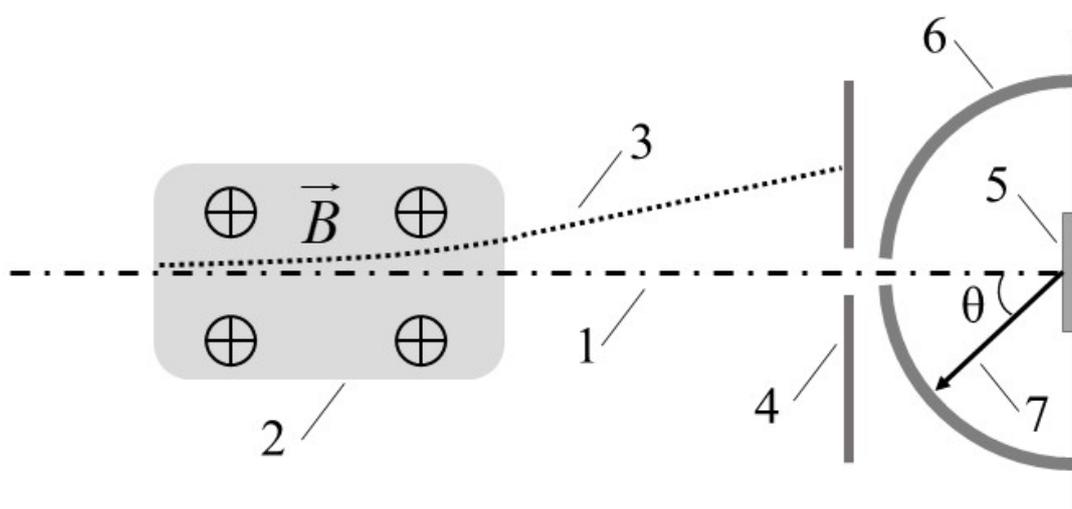


Рисунок 2.1. Схема эксперимента по облучению кластерными ионами для измерения угловых распределений распылённых атомов. 1 – пучок кластерных ионов; 2 – область магнитного поля; 3 – отклонённые магнитным полем мономеры и кластеры малого размера; 4 – диафрагма; 5 – мишень; 6 – полуцилиндрический коллектор; 7 – распылённые атомы

Измерение распределения кластеров в пучке по размерам.

Как было отмечено в обзоре литературы, пучок, попадающий на образец, содержит кластеры различных размеров, причем состав пучка зависит как от сорта газа и давления на входе сопла, так и от параметров ионизатора [4,34,104–106]. В связи с этим при проведении экспериментов по измерению угловых распределений распылённых атомов перед каждым облучением

проводился контроль распределения кластеров в пучке по размерам. Для измерения состава пучка использовалась времяпролётная методика, описанная в работах [4,107]. Схема измерений представлена на рисунке 2.2. Плоский дефлектор, представляющий два параллельных прямоугольных электрода длиной 70 мм и шириной 50 мм устанавливается 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 установлен цилиндр Фарадея.

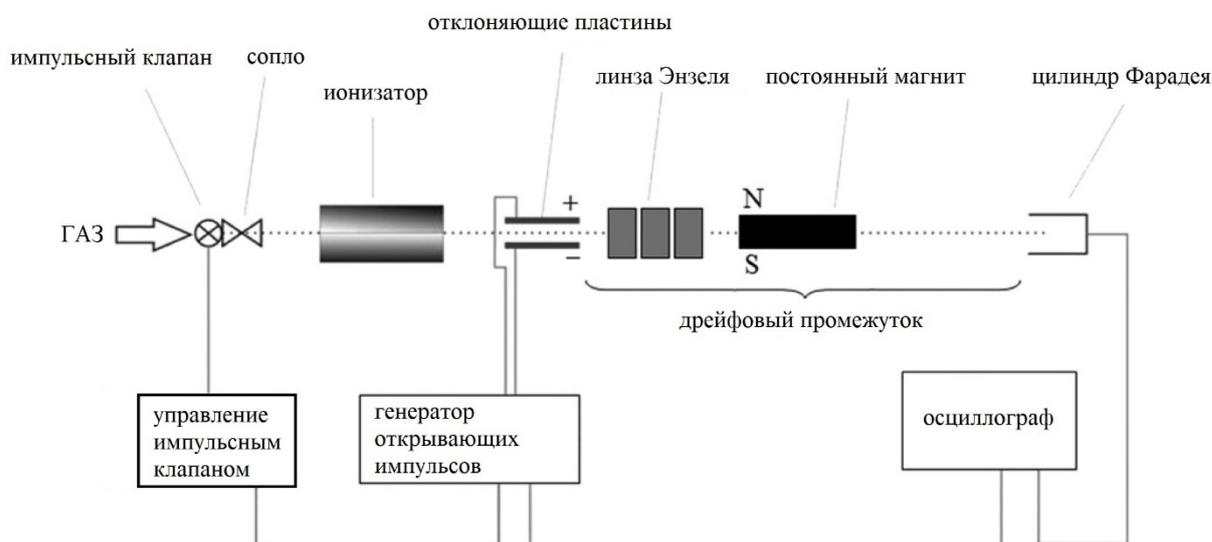


Рисунок 2.2. Схема измерения масс распределения кластеров в пучке по размерам при помощи времяпролётной методики [4].

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 устанавливается нулевое напряжения и пучок может достигать цилиндра Фарадея. Открывающий импульс синхронизирован с открытием импульсного клапана на входе в сопло системы формирования кластеров, таким образом прохождение пучка в дрейфовый промежуток открывается одновременно с подачей порции рабочего газа в систему. Сигнал с цилиндра Фарадея регистрируется при помощи цифрового осциллографа, открывающий импульс также служит триггером для начала измерения. Так как все кластеры

ускорены до одной энергии, измерив время прохождения дрейфового промежутка с помощью осциллографа, можно рассчитать массу кластеров. Однако стоит отметить, что в описанных экспериментах не контролируется заряд кластера. В работах [35,108] показано, что в пучке могут формироваться кластера с зарядом более +1. Времяпролётная методика в описанной реализации разделяет кластеры по отношению заряда к массе, таким образом истинное распределение кластеров в пучке по размерам может отличаться от измеренного за счёт наличия в пучке многократно заряженных кластеров. Этой погрешностью в данной работе мы пренебрегаем.

Анализ коллекторов

Для измерения толщины осаждённого на коллектор слоя материала мишени использовался метод спектрометрии резерфордовского обратного рассеяния (РОР). Для этого проводилась последовательная запись спектров РОР вдоль центра коллектора.

Данный метод заключается в регистрации энергетического спектра ионов, рассеянных от исследуемой мишени на углы более 90° . Схема эксперимента по измерению РОР спектров представлена на рисунке 2.3. Анализирующий пучок ионов (1) направляется на исследуемый образец (2), под некоторым углом к образцу устанавливается детектор (4), регистрирующий обратнорассеянные ионы (3). Угол падения пучка на

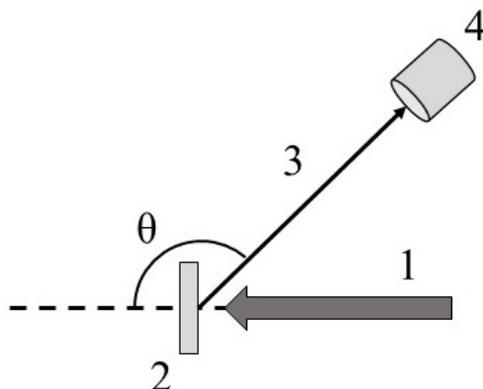


Рисунок 2.3. Схема эксперимента по измерению спектров РОР.

образец, угол рассеяния, а также сорт и энергия анализирующих ионов выбирается исходя из конкретной задачи. В данной работе измерения проводились с помощью ионов He^+ с энергией 400 кэВ. Пучок падал по нормали к поверхности, угол рассеяния составлял 170 градусов. Такой выбор параметров обеспечивал оптимальное разрешение по массам для анализа пиков, соответствующих рассеянию от слоя материала, напыленного на алюминиевый коллектор, а также оптимальную скорость набора спектра. Пример измеренного спектра ROP от плёнки вольфрама на коллекторе представлен на рисунке 2.4. Для расчёта угловых распределений вычислялся интеграл под пиком, соответствующим рассеянию от вольфрама, который пропорционален толщине напылённого слоя.

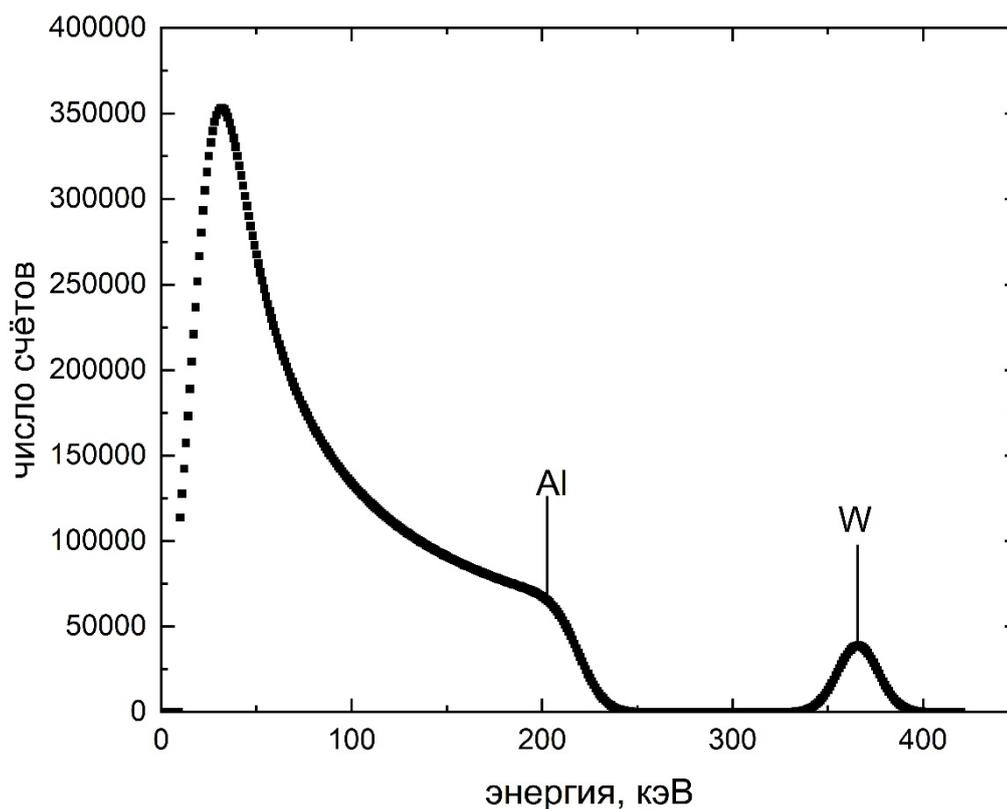


Рисунок 2.4. Пример ROP спектра от плёнки вольфрама на алюминиевом коллекторе. Анализ проводился с помощью ионов He^+ с энергией 400 кэВ, угол рассеяния – 170°.

Измерения РОР спектров проводились на ускорителе тяжёлых ионов, созданном при участии автора, на базе ускорителя HVEE-500 в лаборатории ионно-пучковых нанотехнологий Московского Государственного Университета имени М.В. Ломоносова [109,110]. Фото высоковольтного терминала ускорителя представлено на рисунке 2.5.

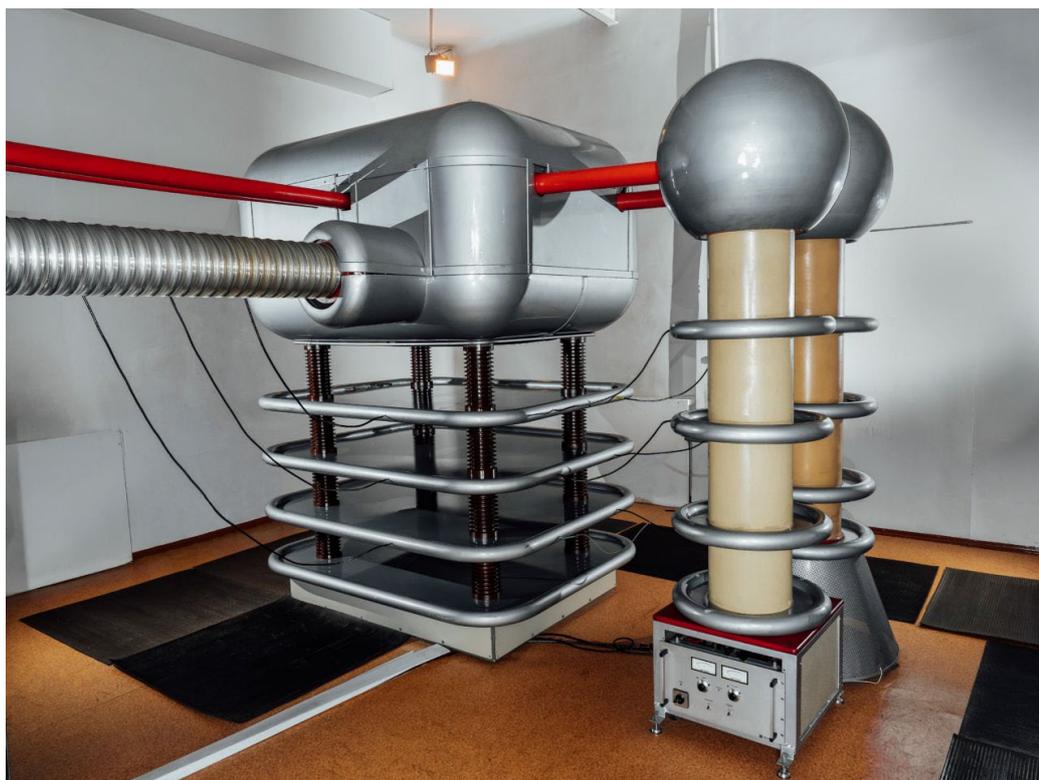


Рисунок 2.5. Фото высоковольтного терминала ускорителя ионов HVEE-500 лаборатории ионно-пучковых нанотехнологий Московского Государственного Университета имени М.В. Ломоносова.

Схема тракта спектрометрии РОР, использовавшегося для анализа коллекторов, представлена на рисунке 2.6. Тракт состоит из системы фокусировки и коллимации пучка, системы контроля числа падающих ионов, экспериментальной камеры и спектрометрического тракта. Фокусировка пучка производится триплетной квадрупольной линзой (3). В качестве коллиматора служат две квадратных диафрагмы (4) со стороной 1мм, расположенные на расстоянии 1м. Угол расходимости пучка при этом равен

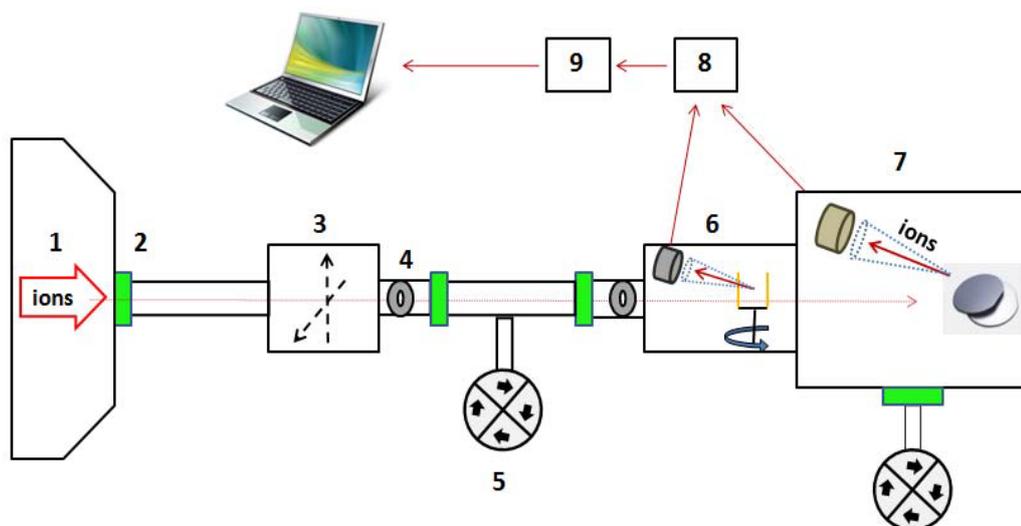


Рисунок 2.6. Схема экспериментального тракта спектрометрии резерфордовского обратного рассеяния ускорителя ионов HVEE-500 лаборатории ионно-пучковых нанотехнологий Московского Государственного Университета имени М.В. Ломоносова.

0,12°. Между выходной диафрагмой коллиматора и рабочей камерой расположена система контроля числа падающих частиц (6). В задачах РОР спектрометрии зачастую необходимо проводить серии измерений, регистрируя число ионов, попавших на образец в каждом измерении. Заряд, попадающий на образец, может быть зарегистрирован с помощью интегратора тока с образца, однако такой метод содержит ряд недостатков. Во-первых, в случае исследования диэлектрических образцов, регистрация тока с них представляет трудности, а во-вторых, процессы эмиссии вторичных заряженных частиц могут вносить значительные поправки в ток с мишени.

Для решения данной проблемы используется следующая система. На пути пучка располагается алюминиевая рамка с нанесённым слоем золота толщиной 50 нм. Рамка вращается, периодически перекрывая пучок. Ионы, рассеянные рамкой во время того, когда она перекрывает пучок, регистрируются детектором. Пример спектра от рамки представлен на рисунке 2.7. Спектр представляет собой «ступеньку», соответствующую рассеянию от алюминиевой рамки и пик в области более высоких энергий,

соответствующий рассеянию от золота. На протяжении всего измерения производится интегрирование пика золота в спектре. Таким образом рассчитывается величина, пропорциональная числу ионов, попадающих на мишень, которая используется при нормировке и анализе спектров в сериях измерений.

Образец в рабочей камере (7) устанавливается на гониометрической системе, которая может вращаться по трём углам с помощью шаговых двигателей. Так же возможно перемещения образца вдоль одной продольной оси с помощью микрометрического винта.

Для регистрации обратнорассеянных ионов как от мишени, так и от рамки системы контроля числа налетающих частиц, используются кремниевые поверхностно-барьерные детекторы. Сигнал с детектора поступает на предусилитель-формирователь (8), далее усиливается с помощью усилителя и регистрируется многоканальным амплитудным анализатором. В качестве генератора смещения, предусилителя, усилителя и анализатора выступает

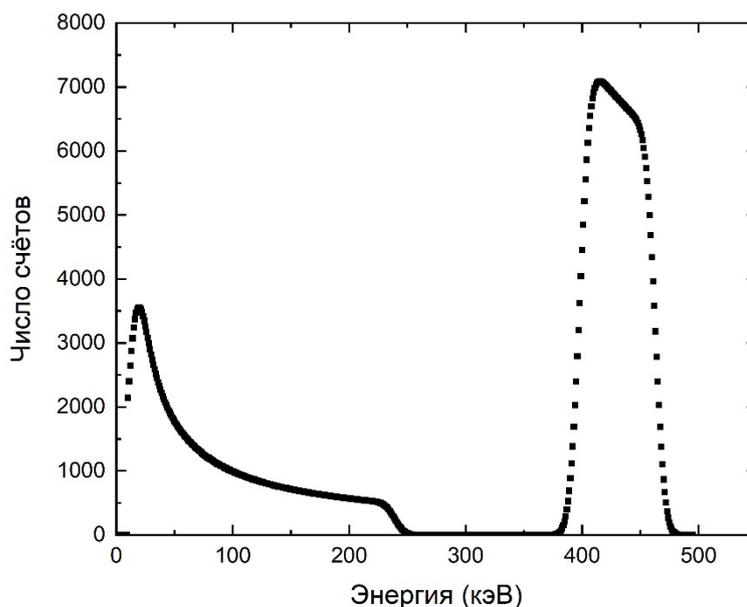


Рисунок 2.7. ROR спектр от 50 нм слоя золота, напылённого на алюминиевую подложку, полученный с помощью ионов He^+ с энергией 500 кэВ

устройство Amptek MCA8000D. Данные с анализатора поступают на ПК, где производится запись спектра с помощью специализированного ПО.

Для вакуумной откачки ионопровода и рабочей камеры используется два откачных поста (5), состоящих из форвакуумных спиральных насосов и турбомолекулярных насосов. Для контроля давления остаточных газов используются широкодиапазонные датчики вакуума. Рабочий вакуум при проведении измерений находится в диапазоне от 8×10^{-7} до $1,5 \times 10^{-6}$ мбар.

Компьютерное моделирование

В области компьютерного моделирования взаимодействия ионных пучков с твёрдым телом широкое распространение получило приближение бинарных столкновений. На этой модели основаны такие широко используемые программные пакеты как SRIM[111,112], MARLOWE [113] и другие. Моделирование с использованием данного метода начинается с одной начальной движущейся частицы с определёнными координатами и скоростью. Эта частица испытывает ряд парных столкновений с атомами мишени. Между столкновениями частицы движутся по прямолинейным траекториям. Если энергия, которую покоящаяся частица получает в столкновении больше некоторой заданной величина, она включается в каскад и её движение также начинает отслеживаться. Если энергия частицы становится ниже некоторой заданной величины, она исключается из каскада и далее её движение не отслеживается. В столкновениях происходит упругая передача энергии между сталкивающимися атомами, определяемая заданным парным потенциалом взаимодействия. Также частица теряет энергию из-за неупругих взаимодействий. В некоторых реализациях метода это происходит дискретно в процессе столкновения, в других – непрерывно, в зависимости от пройденного пути. Таким образом моделируется линейный каскад атомных столкновений, который является основным механизмом взаимодействия ускоренных ионов с твёрдым телом.

Однако, для случая кластерных ионов этот метод не подходит, так как в случае кластеров происходит одновременное взаимодействие большого числа движущихся частиц – атомов кластера и мишени друг с другом и между собой. Поэтому в данной работе в качестве метода компьютерного моделирования был выбран метод молекулярной динамики (МД). Метод МД основан на интегрировании уравнений движения каждой из частиц системы в поле сил остальных частиц системы и внешних сил при их наличии. Этот метод находит широкое применение в различных областях науки [114], например, изучение свойств жидкостей, изучение структуры и свойств полимеров, белков и других органических молекул. В области физики твёрдого тела метод МД применяется для изучения кристаллической структуры, зёрен в металлах, формирования и миграции дефектов, роста плёнок, радиационных эффектов и т.д. Данный метод, основанный на атомистическом подходе, позволяет как отслеживать траектории отдельных атомов системы, так и рассчитывать макроскопические параметры. Данный метод имеет большое количество программных реализаций, например, широко используется программный пакет LAMMPS [115], который поддерживается и обновляется большим сообществом разработчиков. Расчёты в данной работе проводились с использованием программного пакета PARCAS [116,117], оптимизированного для задач радиационной физики.

Алгоритм данного метода представлен на рисунке 2.8. В начале моделирования необходимо задать начальные координаты и скорости всех атомов системы. В большинстве случаев ячейка моделирования представляет собой параллелограмм, однако в некоторых случаях [13] может иметь другую форму. В случае кристаллического материала ячейка моделирования содержит некоторое число элементарных ячеек кристалла по каждой из осей. В случае моделирования массивного материала по одной или нескольким осям используются периодические граничные условия. Таким образом, если длина ячейки моделирования по одной из осей составляет L_x , и координаты атомов системы лежат в диапазоне $[-L_x/2, L_x/2]$, то для координат, лежащих вне этого

диапазона производится замена $r_{ix} \rightarrow r_{ix} - Lx$, если $r_{ix} \geq Lx/2$ и $r_{ix} \rightarrow r_{ix} + Lx$, если $r_{ix} \leq -Lx/2$. Таким образом получается, что ячейка моделирования окружена своими копиями по тем направлениям, по которым используются периодические граничные условия. Если атом покидает ячейку, двигаясь в некотором направлении, то он появится с противоположной стороны ячейки, двигаясь в том же направлении. Размер ячейки моделирования выбирается в соответствии с пространственными масштабами рассматриваемых явлений. Распределение начальных скоростей атомов должно соответствовать выбранной температуре.

Расчёт сил, действующих на атомы системы производится на основе заданных потенциалов межатомного взаимодействия. Потенциал для многочастичной системы $U = U(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)$ можно записать в виде:

$$\begin{aligned} U &= \sum_i U_1(\vec{r}_i) + \sum_i \sum_j U_2(\vec{r}_i, \vec{r}_j) + \sum_i \sum_j \sum_k U_3(\vec{r}_i, \vec{r}_j, \vec{r}_k) + \dots = \\ &= \sum_i U_1(\vec{r}_i) + \sum_i \sum_j U_2(\vec{r}_i, \vec{r}_j) + U_{many-body}, \end{aligned} \quad (2.2)$$

где $U_1(\vec{r}_i)$ - потенциал в поле внешних сил, $U_2(\vec{r}_i, \vec{r}_j)$ - парный потенциал, $U_3(\vec{r}_i, \vec{r}_j, \vec{r}_k)$ - трёхчастичный потенциал и т.д. Под $U_{many-body}$ обозначена многочастичная часть потенциала.

Потенциальная энергия атома i в таком случае:

$$U_i = U_1(\vec{r}_i) + \sum_{j \neq i} U_2(\vec{r}_i, \vec{r}_j) + \sum_{j \neq i} \sum_{k \neq i} U_3(\vec{r}_i, \vec{r}_j, \vec{r}_k) + \dots \quad (2.3)$$

В ряде случаев для описания межатомного взаимодействия достаточно парных потенциалов. Например, в данной работе для описания взаимодействия между атомами инертного газа используется потенциал Леннарда-Джонса [118]:

$$U_{L-J}(r) = 4\varepsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^A - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^B \right] \quad (2.4)$$

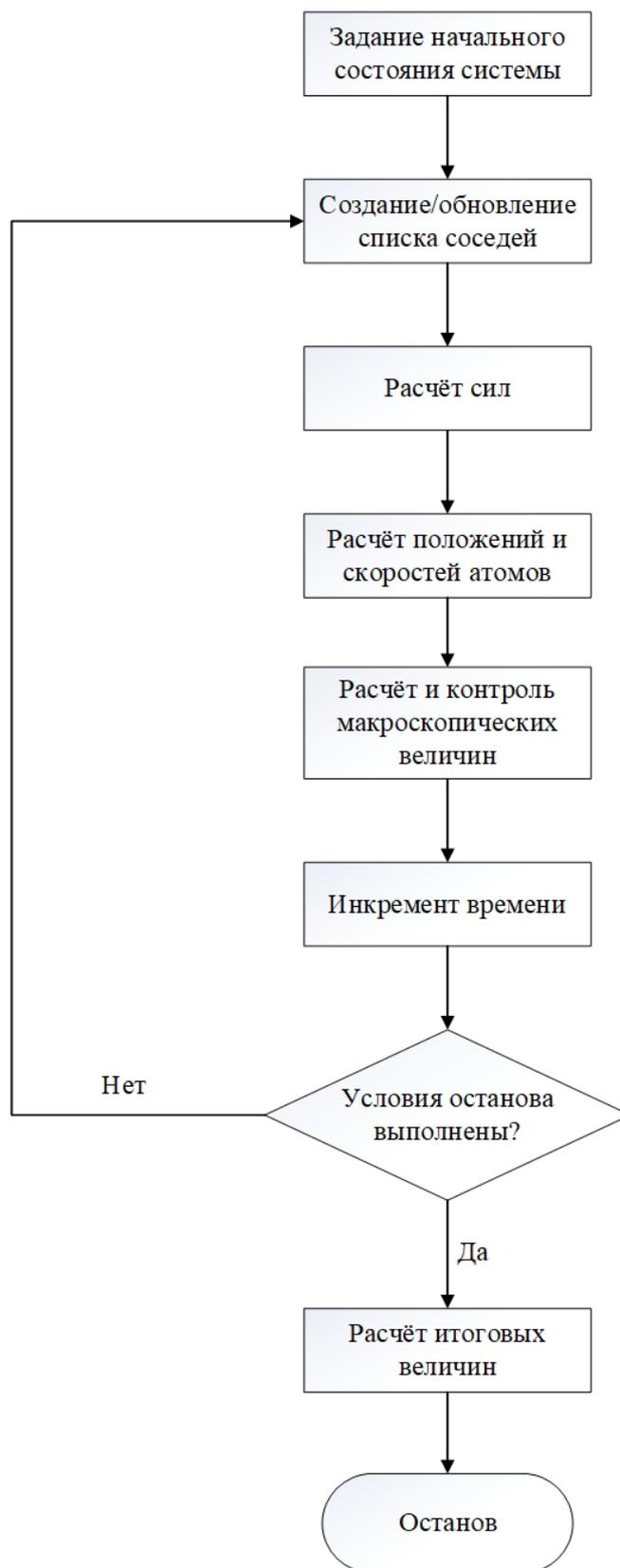


Рисунок 2.8. Блок-схема алгоритма моделирования методом молекулярной динамики.

Для описания взаимодействия атомов кластера с атомами мишени используется универсальный потенциал Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL) [119]:

$$\begin{aligned}
 U(r) &= \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \Phi(x), \\
 x &= \frac{r}{a_u}, \\
 a_u &= \frac{0,4685}{Z_1^{0,23} + Z_2^{0,23}}, \\
 \Phi(x) &= 0,1818e^{-3,2x} + 0,5099e^{-0,9423x} + 0,2802e^{-0,4029x} + 0,02817e^{-0,2016x}
 \end{aligned} \tag{2.5}$$

Этот потенциал является экранированным кулоновским потенциалом с эмпирической функцией экранирования $\Phi(x)$. Он широко используется в задачах атомных столкновений [60,120–122], однако стоит отметить, что у данного потенциала отсутствует притягивающая часть, поэтому область его использования ограничена.

Для моделирования свойств металлов парных потенциалов оказывается недостаточно. Для построения квантовомеханического многочастичного потенциала, хорошо описывающего свойства металлов, используется модель погруженного атома [123–126]. Данный подход основан на теории функционала плотности (DFT) [127,128], и рассматривает взаимодействие каждого атома системы с электронной плотностью, создаваемой остальными атомами системы. Энергия атома i в этом подходе определяется как:

$$U_i = F_i(\rho_h(\vec{r}_i)) + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \phi_{ij}(r_{ij}) \tag{2.6}$$

Здесь $\phi_{ij}(r_{ij})$ - парный потенциал взаимодействия, $\rho_h(\vec{r}_i)$ - электронная плотность без учёта погружаемого атома i , $F_i(\rho_h(\vec{r}_i))$ - функция погружения, равная энергии взаимодействия погружаемого атома с электронной плотностью, создаваемой остальными атомами в данной точке, $r_{ij} \equiv |\vec{r}_i - \vec{r}_j|$ - расстояние между атомами i и j .

Для упрощения производится следующая аппроксимация:

$$\rho_h(\vec{r}_i) = \sum_{j \neq i} \rho_j^A(r_{ij}), \tag{2.7}$$

где ρ_j^A - вклад атома j в электронную плотность в точке, где располагается атом i . Расчёт электронной плотности может осуществляться с помощью метода Хартри-Фока [129,130]. Функция погружения может рассчитываться аналитически, либо эмпирически.

В данной работе для описания взаимодействия атомов мишеней Cu, Mo и W использовались ЕАМ потенциалы из работ [131–133].

Стоит отметить, что расчёт сил, действующих на каждый атом со стороны всех остальных атомов системы, требует значительных вычислительных ресурсов, поэтому в целях ускорения для каждого потенциала межатомного взаимодействия определяется расстояние обрезки, при превышении которого взаимодействием можно пренебречь. На этапе составления / обновления списка соседей для каждого атома определяется набор атомов, взаимодействие с которыми будет рассматриваться при расчёте сил.

После расчёта сил производится численное интегрирование уравнений движения атомов, т.е. рассчитываются координаты и скорости всех атомов. На основе рассчитанных величин могут быть вычислены макроскопические параметры системы. Температура, например, может быть вычислена из соотношения:

$$K = \frac{3}{2} N k_B T = \sum_i \frac{p_i^2}{2m_i} \quad (2.8)$$

Здесь K – кинетическая энергия системы в данный момент, а T – кинетическая температура. Давление может быть рассчитано как:

$$P = \rho k_B T + \frac{1}{3V} \sum_i \vec{r}_i \cdot \vec{F}_i \quad (2.9)$$

Зачастую для сохранения термодинамических свойств ансамбля частиц требуется поддерживать макроскопические параметры, такие как температура или давление, постоянными. Также контроль температуры и давления может потребоваться для нагрева системы и т.д. Для данных целей в используемом программном пакете PARCAS используются термостат и баростат Берендсена

[134]. Для поддержания температуры скорости умножаются на коэффициент λ :

$$\lambda = \sqrt{1 + \frac{\Delta t}{\tau_T} \frac{T_0 - T}{T}}, \quad (2.10)$$

где T – кинетическая температура в данный момент, T_0 – целевая температура Δt – временной шаг, τ_T – временная константа.

Для поддержания давления объём системы умножается на коэффициент μ^3 , где

$$\mu = \left(1 - \frac{\Delta t}{\tau_p} \frac{P_0 - P}{B} \right)^{1/3} \quad (2.11)$$

Здесь P – давление в данный момент, P_0 – целевое давление, Δt – временной шаг, τ_p – временная константа, B – объёмный модуль упругости.

В данной работе термостат и баростат используются при подготовке мишени в процессе её релаксации до температуры, при которой моделируется облучение. Также при моделировании столкновения кластера с поверхностью мишени используется термостат на периодических границах мишени, чтобы смоделировать диссипацию энергии, полученной от кластера, в объём массивной мишени.

Так как в методе МД расчёт сил и интегрирование уравнения движения выполняется для каждого атома системы, такие расчёты требуют большой вычислительной мощности при работе с большим числом атомов в системе. В данной работе расчёты выполнялись использованием оборудования Центра коллективного пользования сверхвысокопроизводительными вычислительными ресурсами МГУ имени М.В. Ломоносова [135,136]

Глава 3. Угловые распределения материала, распылённого с поверхности меди, молибдена и вольфрама пучком газовых кластерных ионов аргона, криптона и ксенона

Экспериментальные измерения.

В обзоре литературы было показано, что изучение дифференциальных характеристик распыления, таких как угловые распределения распылённого материала, является важным средством для понимания механизмов этого процесса. Далее по тексту, когда речь идёт об угловых распределениях распылённых атомов, подразумевается, что распыление происходит при падении пучка по нормали к поверхности. Для случая газовых кластерных ионов было показано как экспериментально, так и с помощью компьютерного моделирования, что угловые распределения распылённых атомов имеют т.н. «латеральный» характер, то есть максимум при больших углах (50-70 градусов) от нормали к поверхности мишени [13,14]. Аналогичный результат был показан и для органических соединений [15]. Однако, в работе [16] было продемонстрировано, что при распылении молибдена пучком кластерных ионов аргона с энергией 10 кэВ угловое распределение распылённых атомов имеет отчётливый максимум в направлении нормали к поверхности мишени. В связи с этим в данной работе была поставлена задача экспериментально изучить угловые распределения материала, распылённого с поверхности различных металлов (медь, вольфрам) пучками кластерных ионов различных инертных газов (аргона, криптона, ксенона) [А1,А3].

Измерения угловых распределений проводились с помощью коллекторной методики, подробно описанной в главе 2. В качестве мишеней были использованы поликристаллы меди, и вольфрама 99,99% чистоты. Образцы представляли из себя пластинки размером 10x10 мм и толщиной 0,5 мм. При подготовке образцов проводилась механическая полировка поверхности до значения среднеквадратичной шероховатости не более 3нм, после чего производилась очистка с помощью органического растворителя.

Измерение угловых распределений распыленных атомов проводилось на ускорителе газовых кластерных ионов лаборатории Ионно-пучковых нанотехнологий Московского Государственного Университета имени М.В. Ломоносова. Ускоритель детально описаны в Главе 2. Энергия кластерных ионов составляла 10 кэВ. В связи с тем, что помимо отклонения мономеров и наиболее мелких кластеров с помощью магнитного поля никакой дополнительной системы масс-селекции не использовалось, пучок содержал кластеры в широком диапазоне размеров. Поэтому перед каждым облучением образцов проводилось измерение распределения кластеров в пучке по размерам с помощью времяпролётной методики. Данная методика также подробно описана в Главе 2. Измеренные распределения представлены на рисунке 3.1.

В таблице 3.1 представлены рассчитанные из распределений средние размеры кластера и средние значения энергии на один атом кластера (E/n).

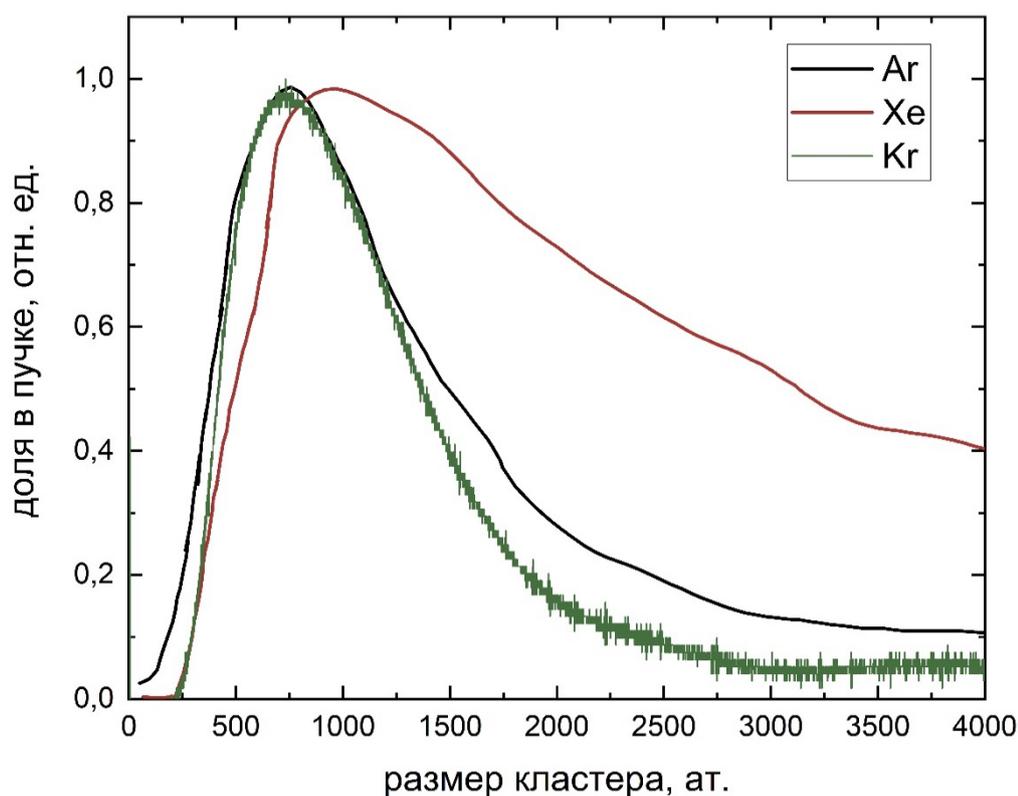


Рисунок 3.1. Измеренные распределения по размерам кластеров аргона, криптона и ксенона.

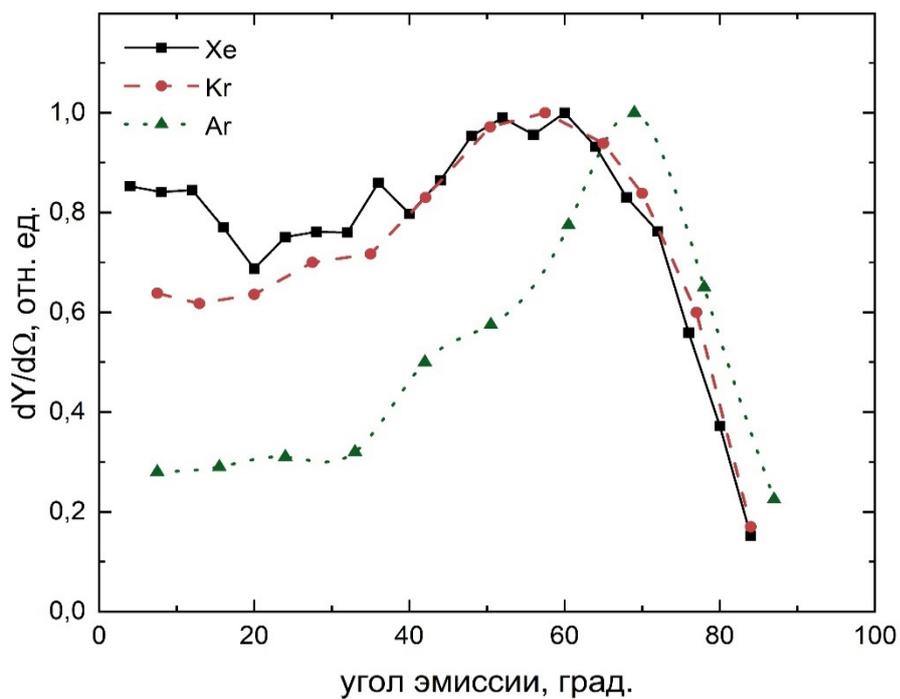
Таблица 3.1. Средние значения размера кластера и E/n.

Сорт атомов кластера	Средний размер кластера, ат.	Среднее значение E/n, эВ
Ar	1400	7,1
Kr	1250	8,0
Xe	1950	5,1

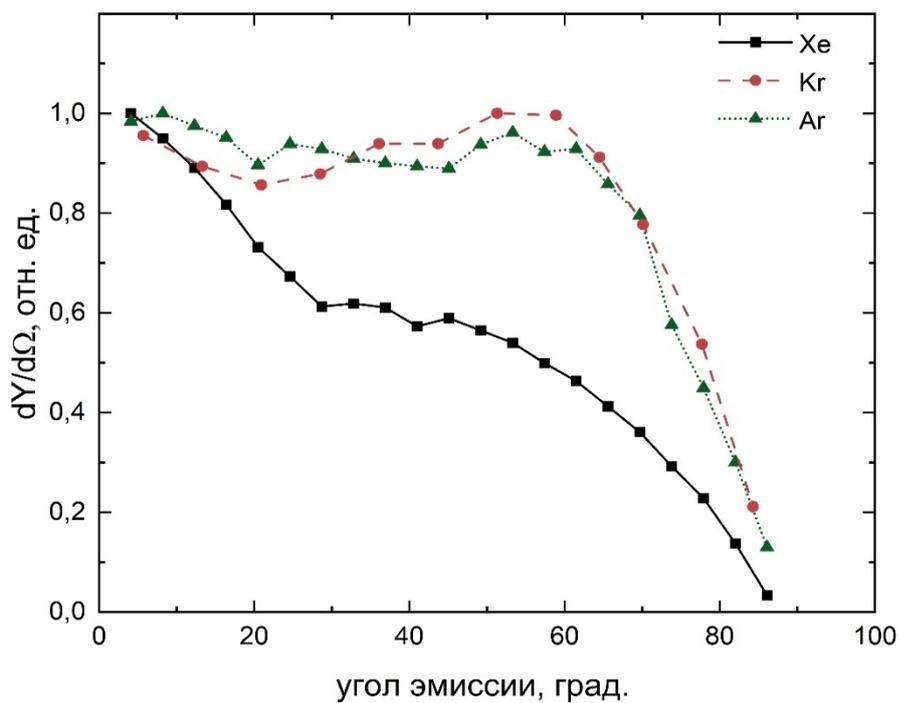
Стоит отметить, что по литературным данным кластерный пучок может содержать кластеры с зарядом 2 и более [35,137] Времяпролётная методика разделяет кластеры в пучке по отношению массы к заряду и не позволяет отдельно анализировать фракции с различным зарядом. При проведении эксперимента ток ионизации поддерживался на низких значениях для того, чтобы минимизировать вероятность многократной ионизации кластеров. Представленные на рисунке 3.1 и в таблице 3.1 данные рассчитаны в предположении, что все кластеры являются однозарядными.

Облучение мишеней для напыления коллекторов проводилось с флюенсом в диапазоне $10^{17} - 10^{18}$ кластеров на см^2 . После этого был проведен анализ коллекторов методом РОР. Подробности методики анализа коллекторов приведены в Главе 2.

Измеренные угловые распределения распылённого материала представлены на рисунке 3.2. Все распределения нормированы на максимальное значение. Угловое распределение меди при распылении кластерами аргона имеет «латеральную» форму и хорошо согласуется с результатами работ [13,14,16]. Однако, с увеличением атомного номера атомов, составляющих кластер, выход в направлении нормали к поверхности увеличивается. Для случая кластеров ксенона значение при малых углах сравнимо со значением в латеральном максимуме.



а)



б)

Рисунок 3.2. Экспериментально измеренные угловые распределения а) меди и б) вольфрама, распылённых газовыми кластерными пучками аргона, ксенона и криптона

В случае распыления вольфрама кластерами аргона и криптона значения угловых распределений при малых углах выхода также сравнимы с латеральным максимумом, а при распылении вольфрама криптоном наблюдается выраженный максимум по нормали к поверхности мишени и форма углового распределения хорошо соотносится со случаем распыления молибдена в работе [16].

Компьютерное моделирование

Для объяснения наблюдаемых зависимостей угловых распределений от сорта атомов кластера и мишени было проведено компьютерное моделирование взаимодействия ускоренных газовых кластеров аргона, ксенона и криптона с поверхностью меди, вольфрама и молибдена методом молекулярной динамики [A3,A5,A6]. Детали данного метода подробно представлены в Главе 2.

Подготовка мишеней для расчётов проводилась следующим образом. Кристаллы мишени генерировались при температуре 0К и на первом этапе нагревались до температуры 300К с помощью термостата Берендсена. При этом использовались периодические граничные условия по всем направлениям. Также при нагреве использовался баростат Берендсена для того, чтобы обеспечить тепловое расширение ячейки моделирования в процессе нагрева. На следующем этапе баростат отключался и снимались периодические граничные условия по оси Z для релаксации поверхности мишени при температуре 300К. Таким образом проводилась подготовка всех мишеней, которые были использованы в дальнейших расчётах. Размер ячейки моделирования выбирался таким образом, чтобы обеспечить диссипацию энергии из области взаимодействия кластера с поверхностью, а также чтобы исключить влияние границ на область взаимодействия. Параметры ячейки моделирования приведены в таблице 3.2.

Таблица 3.2. Параметры ячеек моделирования в МД расчётах.

Материал мишени	Размеры ячейки моделирования, Å	Число атомов мишени в ячейке моделирования
Cu	334 × 334 × 113	1053100
W	253 × 253 × 127	512000
Mo	321 × 321 × 107	707522

При проведении моделирования распыления периодические граничные условия использовались по осям X и Y с целью имитации массивного твёрдого тела. На периодических границах, а также на нижней границе был использован термостат Берендсена для того, чтобы позволить теплу покидать ячейку моделирования. Нижние 3 атомных слоя мишени были фиксированы, чтобы предотвратить движение ячейки моделирования как целого.

Подготовка кластеров для расчётов проводилась следующим образом. Сначала генерировалась кубическая гранецентрированная кристаллическая решётка с параметрами соответствующего инертного газа при 0К. Далее из этой решётки вырезался кластер необходимого размера. Такой метод не позволяет в полной мере воспроизвести структуру кластера [138–140], однако, так как в самом начале процесса взаимодействия ускоренного кластера с поверхностью его структура разрушается, мы считаем это упрощение незначительным.

В первой серии расчётов проводилось моделирование распыления поверхности меди и вольфрама кластерами аргона, криптона и ксенона различного размера. Энергия кластеров была равна 10 кэВ, размер варьировался в диапазоне от 24 до 1000 атомов. Также проведена серия расчётов для кластеров с энергией 20 кэВ, чтобы учесть возможное влияние многократно заряженных кластеров, которые могут содержаться в пучке при проведении эксперимента. Для каждой рассматриваемой комбинации материала мишени, сорта атомов, размера и энергии кластера была проведена серия независимых расчётов, в каждом из которых начальное положение

кластера варьировалось по осям X и Y случайным образом в пределах размера элементарной ячейки мишени. При этом в каждом расчёте кластер бомбардировал идеальную поверхность мишени. Количество расчётов в каждой серии представлено в таблице 3.3.

Таблица 3.3. Количество независимых расчётов в каждой серии.

	Cu	W
Ar₂₄ 20 кэВ	20	-
Ar₂₄ 10 кэВ	20	-
Ar₅₀ 10 кэВ	20	50
Ar₁₀₀ 10 кэВ	30	50
Ar₁₅₀ 10 кэВ	50	70
Ar₂₅₀ 10 кэВ	50	100
Ar₅₀₀ 10 кэВ	100	-
Ar₁₀₀₀ 10 кэВ	1000	1000
Ar₅₀₀ 20 кэВ	50	-
Kr₅₀ 10 кэВ	20	50
Kr₁₀₀ 10 кэВ	30	50
Kr₁₅₀ 10 кэВ	50	90
Kr₂₅₀ 10 кэВ	100	100
Kr₅₀₀ 10 кэВ	100	-
Xe₅₀ 10 кэВ	30	50
Xe₁₀₀ 10 кэВ	50	50
Xe₁₅₀ 10 кэВ	70	100
Xe₂₅₀ 10 кэВ	100	100
Xe₅₀₀ 10 кэВ	200	-

Смоделированное время для каждого взаимодействия составляло от 5 до 20 пс, и выбиралось таким образом, чтобы все расплывшиеся атомы удалились на достаточное расстояние от поверхности мишени. Для построения угловых

распределений определялись направления векторов скорости расплётённых атомов. Некоторые атомы расплётались в виде димеров, тримеров или кластеров большего размера, которые могли вращаться вокруг центра масс. Для таких структур определялись направления векторов скорости центра масс.

По результатам моделирования были рассчитаны зависимости коэффициентов расплётения от размера кластера $Y(N)$. Эти зависимости представлены на рисунке 3.3. Стоит отметить, что для случаев кластеров Ar_{1000} с энергией 10 кэВ при расплётении меди из 1000 расчётов было обнаружено лишь 28 расплётённых атомов, а при расплётении вольфрама – ни одного расплётённого атома. Коэффициент расплётения меди кластерами Ar_{100} при энергии 10 кэВ практически более чем в 10^3 раз выше, чем кластерами Ar_{1000} . Для вольфрама это отношение ещё выше. Из рисунка 3.3 видно, что для криптона и ксенона коэффициент расплётения становится пренебрежимо малым при ещё меньших размерах кластера. Таким образом показано, что при

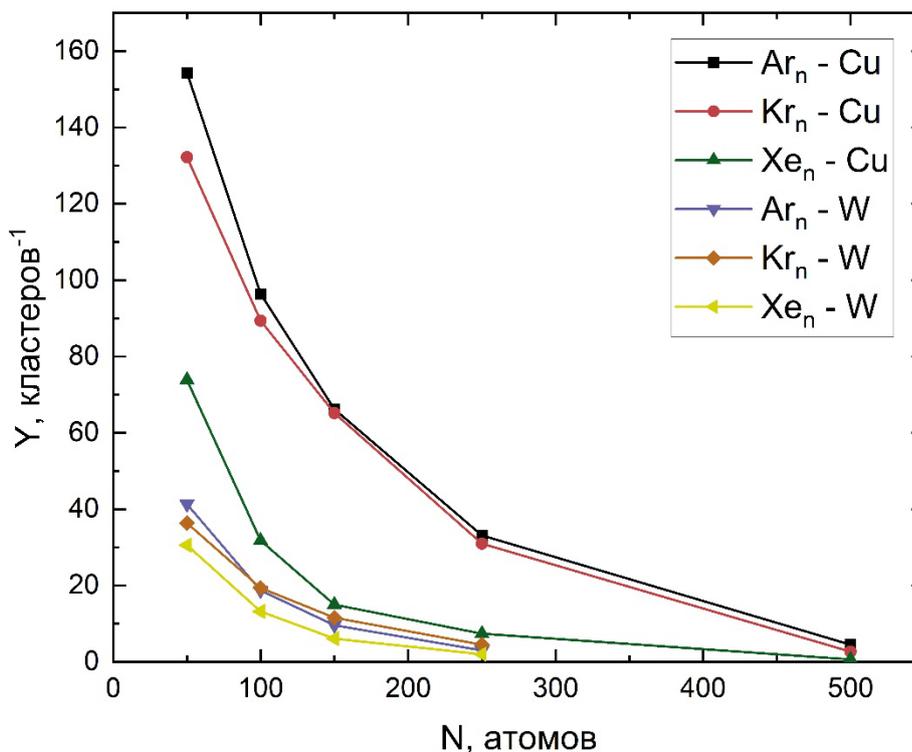


Рисунок 3.3. Зависимости коэффициента расплётения от размера кластера при расплётении меди и вольфрама кластерами аргона, криптона и ксенона с энергией 10 кэВ.

распылении меди и вольфрама кластерами инертных газов с энергией 10 кэВ основной вклад в распыление вносят малые кластеры, размер которых меньше, чем средний размер кластера в экспериментальном пучке.

В работах [82,83] было показано, что для кластеров различной энергии и размера параметр E/n (средняя энергия, приходящаяся на один атом в кластере) определяет долю энергии кластера, передаваемую атомам мишени в процессе взаимодействия, и, вследствие этого, определяет коэффициенты распыления. Чтобы проверить, применим ли этот подход к угловым распределениям распылённых атомов были рассчитаны угловые распределения меди при распылении кластерами Ar_{500} с энергией 20 кэВ и Ar_{250} с энергией 10 кэВ. Значение E/n в обоих случаях составляет 40 эВ/атом. Рассчитанные угловые распределения представлены на рисунке 3.4. Полученные распределения совпадают в пределах погрешности, из чего

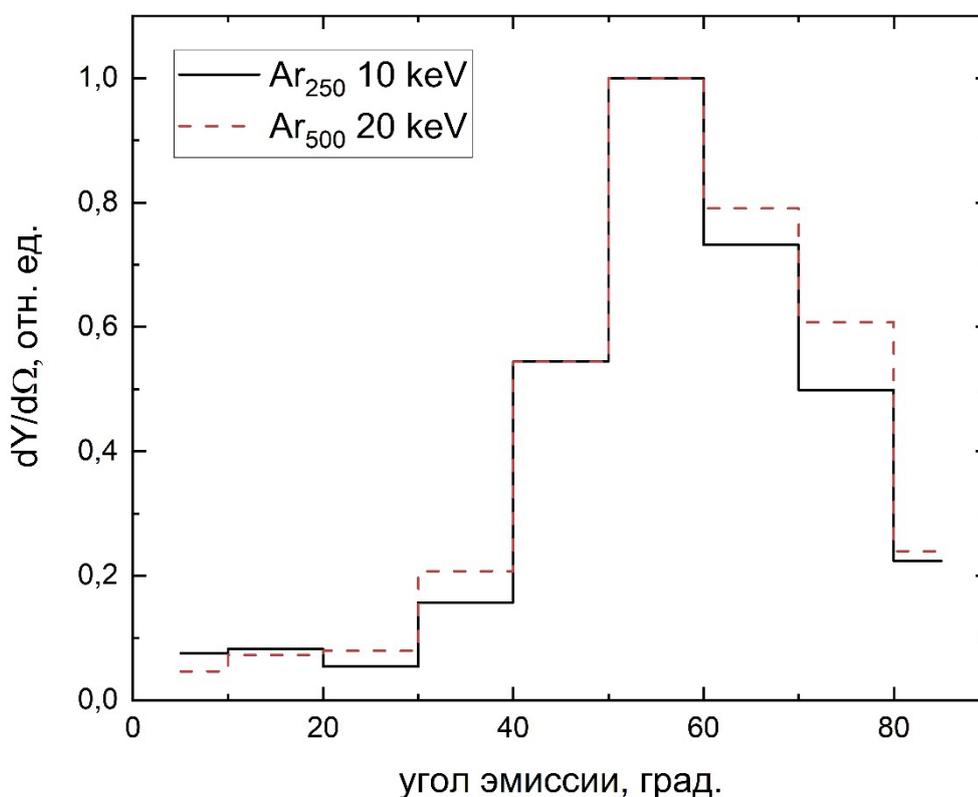


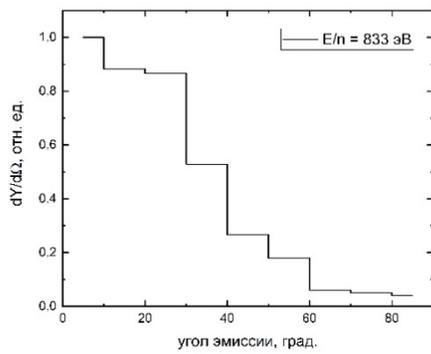
Рисунок 3.4. Угловые распределения атомов меди, распылённых кластерами Ar_{500} с энергией 20 кэВ и Ar_{250} с энергией 10 кэВ.

можно сделать вывод, что параметр E/n определяет также и угловые распределения распыленных атомов.

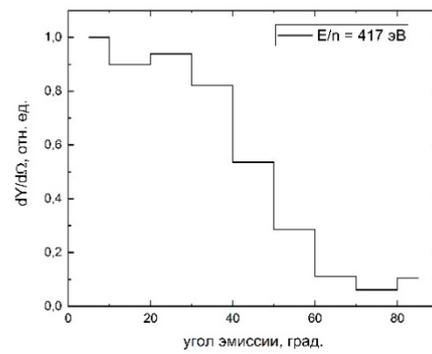
На рисунке 3.5 представлены угловые распределения меди, распылённой кластерами аргона при различных значениях E/n . Наблюдается сильная зависимость угловых распределений распылённых атомов от энергии на атом кластера в диапазоне между десятками эВ и 1 кэВ. Максимум углового распределения смещается в сторону малых углов эмиссии с ростом значения E/n .

Для объяснения полученной зависимости в первую очередь рассмотрим случай больших E/n . На рисунке 3.6 представлена серия кадров из моделирования взаимодействия кластера Ar_{24} с энергией 20 кэВ с поверхностью меди. Величина E/n в данном случае составляет 833 эВ на атом. На рисунке 3.7 представлена динамика передачи энергии кластера атомам мишени и зависимость числа распылённых атомов меди от времени. Данные на рисунке 3.7 усреднены по результатам 20 расчётов. Взаимодействие кластера с поверхности в данном случае может быть разделено на три стадии. На первой стадии взаимодействия кластер распадается на отдельные атомы. Данный процесс происходит в первые десятки фемтосекунд взаимодействия. На следующей стадии атомы кластера продолжают движение в мишени независимо друг от друга, передавая энергию в столкновениях с атомами мишени. Первые две стадии проиллюстрированы на рисунке 3.6 (а-г). Передача энергии заканчивается в первые 200 фс взаимодействия, в результате образуется небольшая приповерхностная область с высокой плотностью энергии. Аналогичные стадии разрушения кластера и независимого движения его атомов в мишени показаны в работе [141] для небольших кластеров золота с E/n в диапазоне от 1 до 10 кэВ на атом.

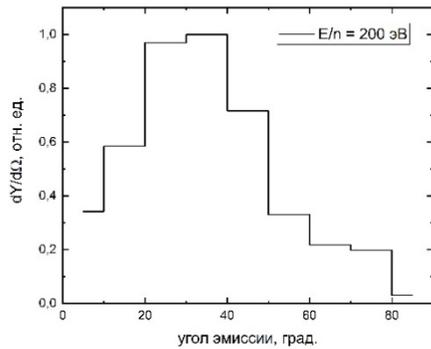
На третьей стадии происходит диссипация переданной от кластера кинетической энергии посредством атомных столкновений между атомами мишени в тепловом пике. Эта стадия может длиться в течение нескольких



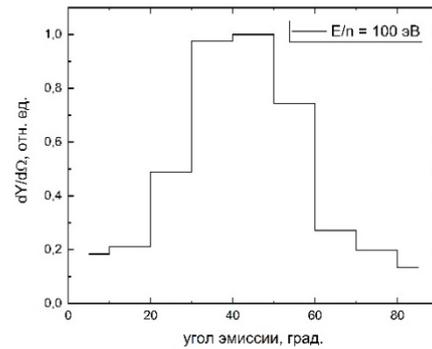
а)



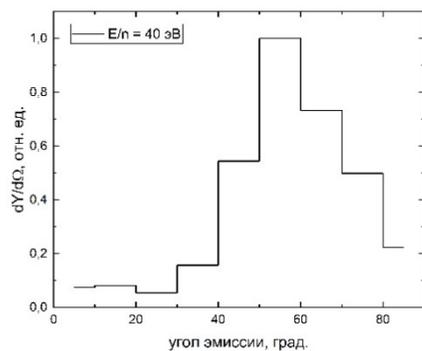
б)



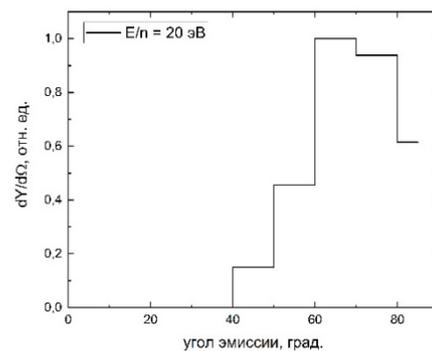
в)



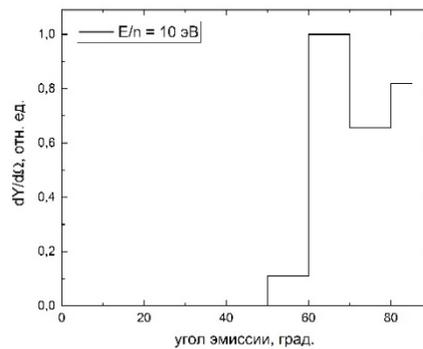
г)



д)



е)



ж)

Рисунок 3.5. Угловые распределения меди, распылённой кластерами аргона с величиной E/n равной а) 833 эВ, б) 417 эВ, в) 200 эВ, г) 100 эВ, д) 40 эВ, е) 20 эВ, ж) 40 эВ.

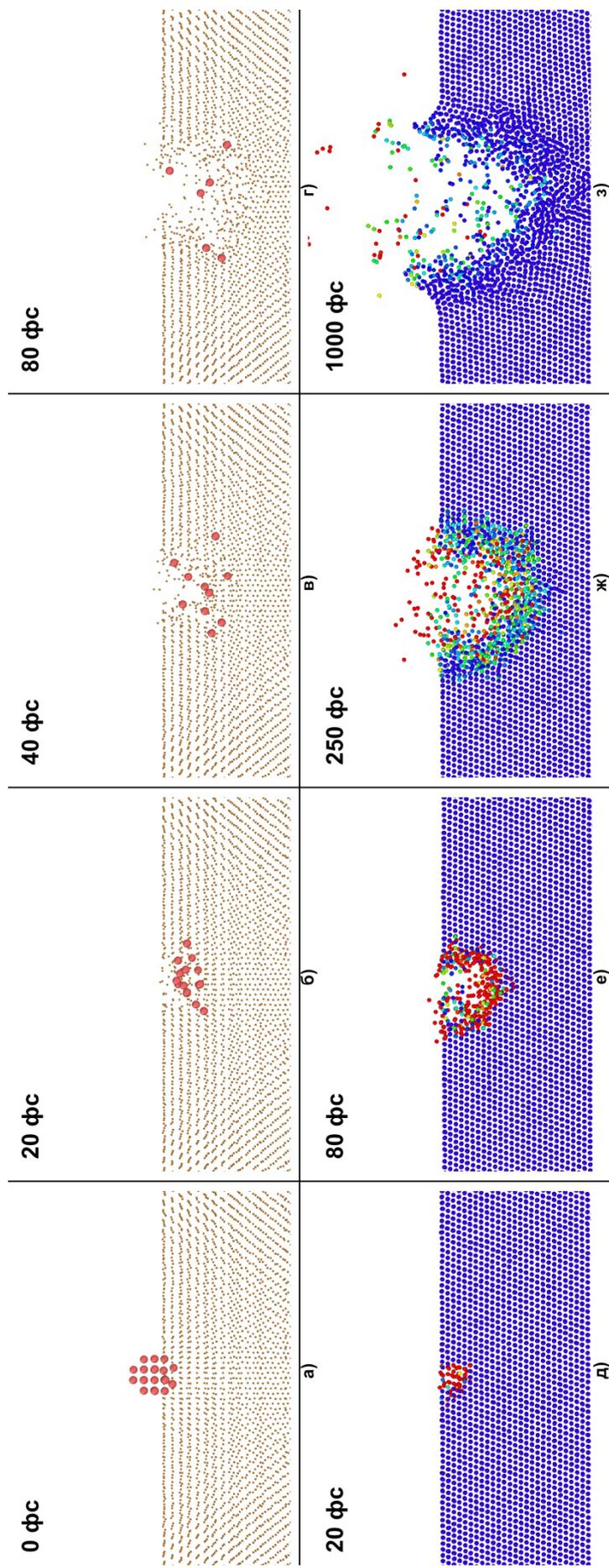


Рисунок 3.6. Визуализация кадров МД моделирования взаимодействия кластера Ar_{24} с энергией 20 кэВ ($E/n = 833$ эВ) с поверхностью меди. а) – г): большие круги представляют атомы аргона, точки представляют атомы меди. д) – з): круги представляют атомы меди. Атомы аргона удалены с изображений. Красный цвет соответствует более высокой кинетической энергии, синий – более низкой.

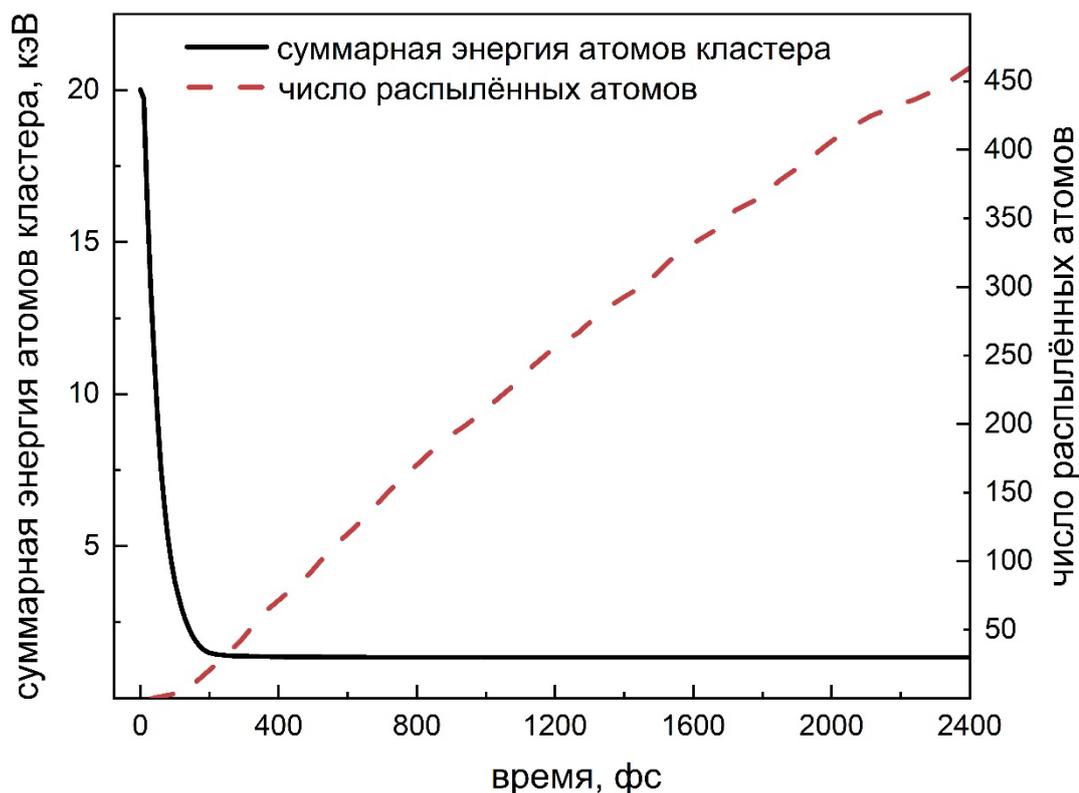


Рисунок 3.7. Временная зависимость числа расплывших атомов и передачи энергии от кластера атомам мишени при расплывании меди кластером Ar_{24} с энергией 20 кэВ

пикосекунд. Более 90% расплывших атомов покидают поверхность мишени именно на этой третьей стадии.

Формирование кратера на поверхности мишени в данном случае происходит в результате расширения горячей области мишени, получившей энергию от атомов кластера. Этот эффект проиллюстрирован на рисунке 3.6 (е-з).

Описанный механизм расплывания может рассматриваться как расплывание из теплового пика. Угловое распределение расплывших атомов в данной модели описывается косинусной функцией в соответствии с уравнением (1.9). Однако, угловое распределение атомов меди, расплывших кластерами аргона с $E/n = 833$ эВ оказывает уже косинусного распределения (рисунок 3.8). Это объясняется тем, что расплывание в данном случае происходит в том числе с внутренней поверхности кратера (рисунок 3.6 ж – з).

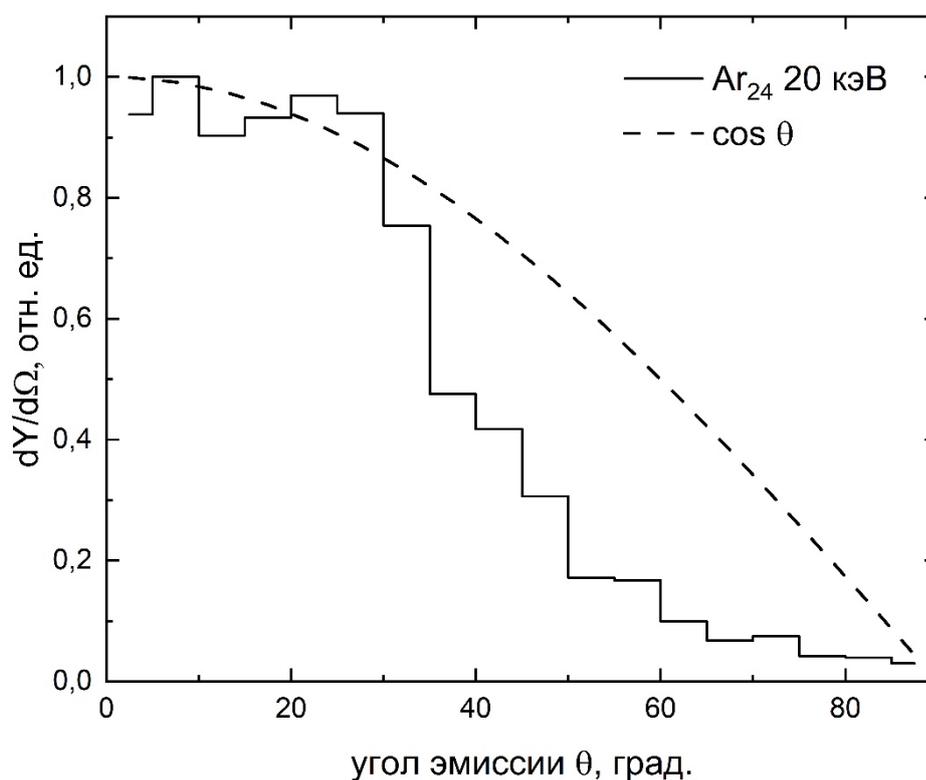


Рисунок 3.8. Угловое распределение атомов меди, распылённой кластерами Ar_{24} с энергией 20 кэВ в сравнении с косинусным угловым распределением.

При этом стенки кратера блокируют большие углы эмиссии, что приводит к наблюдаемому угловому распределению.

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. Этот случай проиллюстрирован на рисунке 3.9. В процессе компрессии, кластер создаёт давление в приповерхностной области взаимодействия. Этот эффект сообщался в литературе как для газовых, так и для металлических кластеров [56,63]. При этом атомы на кромке кратера приобретают импульс по направлению от центра кластера. В результате угловые распределения распылённых атомов смещаются в сторону больших углов эмиссии и формируют т.н. «латеральные» распределения. Описанная разница между случаями высоких и низких значений E/n хорошо согласуется

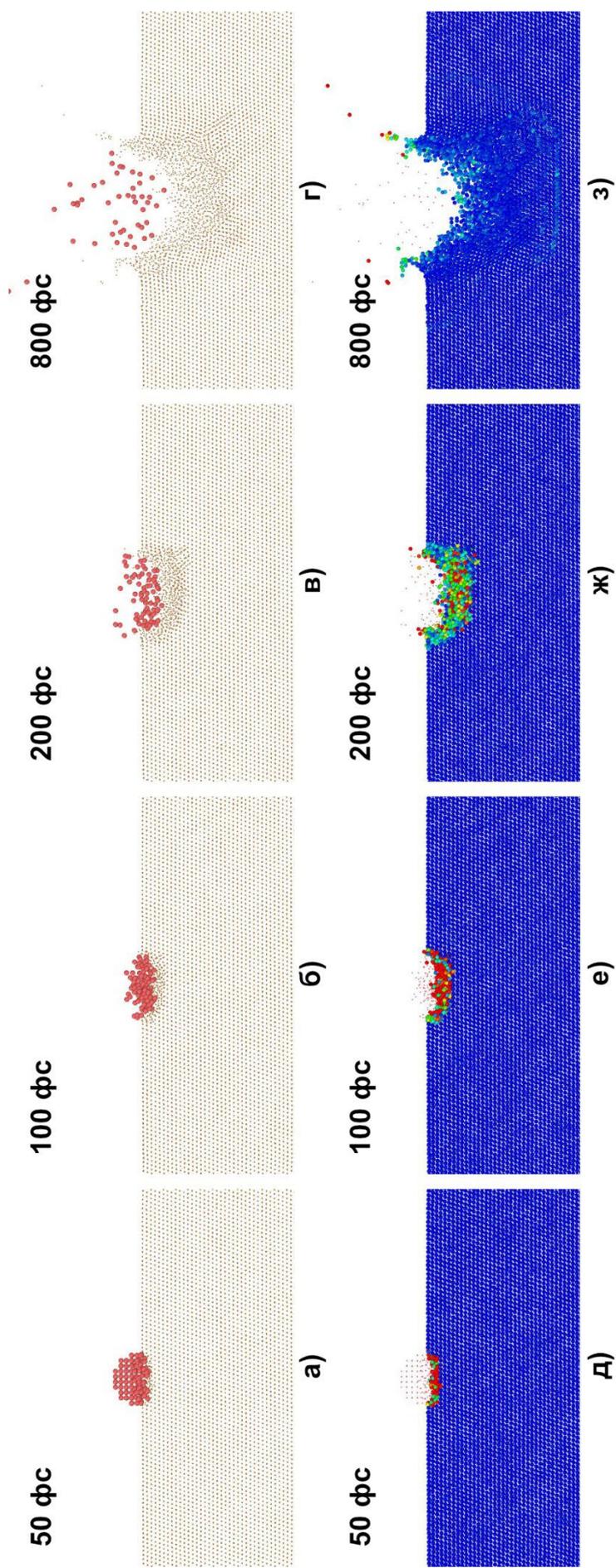


Рисунок 3.9. Визуализация кадров МД моделирования взаимодействия кластера Ar_{500} с энергией 10 кэВ ($E/p = 20 \text{ эВ}$) с поверхностью меди. а) – г): большие круги представляют атомы аргона, точки представляют атомы меди. д) – з): точки представляют атомы аргона, круги представляют атомы меди. Красный цвет соответствует более высокой кинетической энергии, синий – более низкой.

с опубликованными в литературе данными по формированию кратера при кластерном облучении [44,56,62,63].

На рисунке 3.10 представлены угловые распределения меди и вольфрама, распылённых кластерами аргона, криптона и ксенона с различными значениями E/n . Стоит отметить, что для распыления вольфрама кластерами Xe_{250} с энергией 10 кэВ коэффициент распыления оказался слишком низким, чтобы построить угловое распределение. Для каждой величины E/n угловые распределения для кластеров криптона и ксенона смещены к большим углам эмиссии по сравнению с кластерами аргона. Однако, этот эффект достаточно мал по сравнению с наблюдающимся экспериментально (рисунок 3.2). Стоит отметить, что угловые распределения вольфрама смещены к большим углам эмиссии по сравнению с медью для всех сортов атомов кластера. Обсуждение влияния атомного номера атомов мишени на процесс взаимодействия кластера с поверхностью будет приведено в следующей главе.

Как было показано выше, коэффициент распыления и угловые распределения распылённых атомов сильно зависят от величины E/n , а экспериментальный пучок содержит кластеры в широком диапазоне этого параметра. Другим фактором, не учтённым в компьютерном моделировании, описанном выше, является то, что в результате соударения ускоренного кластера с поверхностью, на ней формируется кратер. С увеличением флюенса облучения, вместо единичных кратеров, на поверхности формируется нанорельеф под действием облучения. Для учёта этих двух факторов была проведена серия последовательных МД расчётов распыления меди и молибдена кластерами аргона с энергией 10 кэВ. Медь и молибден в качестве материалов мишени в данном случае были выбраны для сравнения результатов с результатами работы [16].

На рисунке 3.11 представлена схема последовательных расчётов. На первом этапе случайным образом выбирается размер кластера для расчёта в диапазоне от 50 до 2500 атомов с шагом 50 атомов. Вероятность соответствует

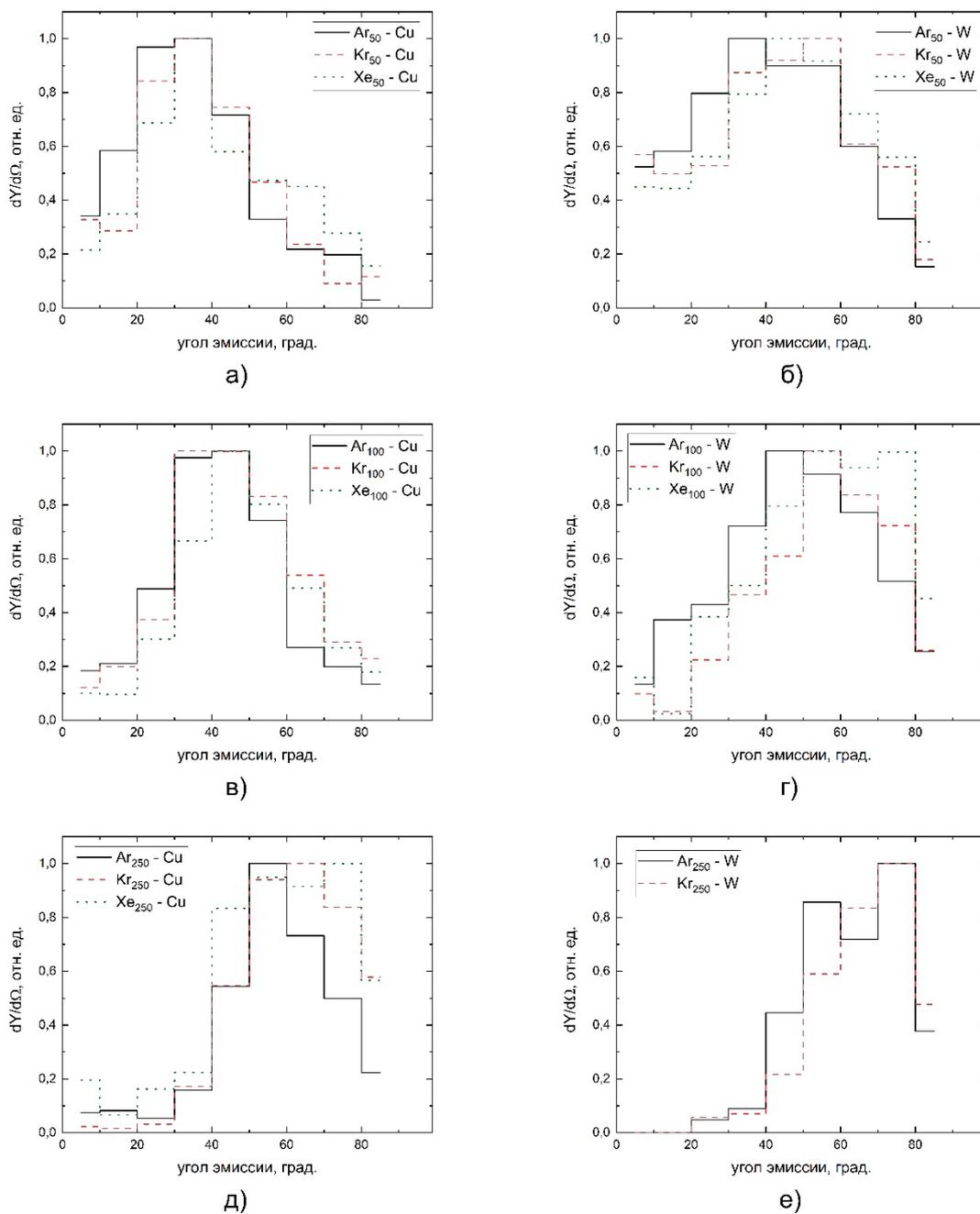


Рисунок 3.10. Угловые распределения атомов меди и молибдена, распылённых кластерами аргона, криптона и ксенона. а), б): $E/n = 200$ эВ; в), г): $E/n = 100$ эВ; д), е): $E/n = 40$ эВ

экспериментально измеренному распределению кластеров по размерам (рисунок 3.1). Кластеры большего размера не учитывались, хоть и присутствуют в экспериментальном пучке, так как предварительные расчёты показали, что за счёт малого значения E/n они не вносят вклад в распыление,



Рисунок 3.11. Схема последовательных МД расчётов.

а также не оказывают влияния на рельеф поверхности мишени. Кластер выбранного размера помещался над центром мишени, и производился сдвиг мишени по осям X и Y на случайную величину в пределах размеров ячейки моделирования с учётом периодических граничных условий. Далее проводилось моделирование взаимодействия кластера с поверхностью в течение 20 пс. После этого из системы удалялись распылённые атомы, а также атомы кластера и проводилось моделирование релаксации мишени в течение ещё 20 пс. Полученная в итоге моделирования поверхность используется в качестве мишени для следующего расчёта. Для молибдена было проведено моделирование 1500 соударений, для меди – 1618 соударений, что в обоих случаях соответствует флюенсу $1.45 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}$.

Угловые распределения, полученные в результате моделирования последовательности соударений приведены на рисунке 3.12. Полученное

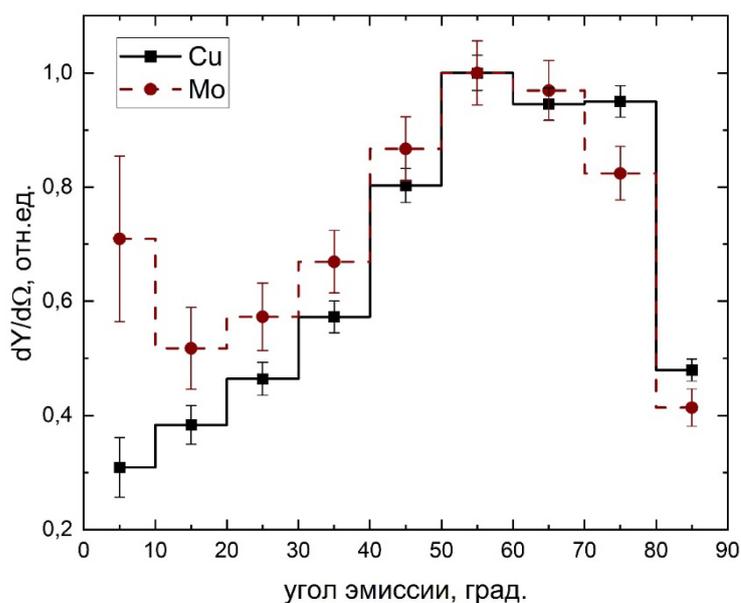


Рисунок 3.12. Угловые распределения атомов меди и молибдена, полученные в результате моделирования последовательности соударений.

угловое распределение для меди имеет «латеральный» характер и хорошо согласуется с экспериментально измеренным (рисунок 3.2). Распределение для молибдена отличается от экспериментально измеренного распределения, представленного в работе [16], где значение при малых углах значительно

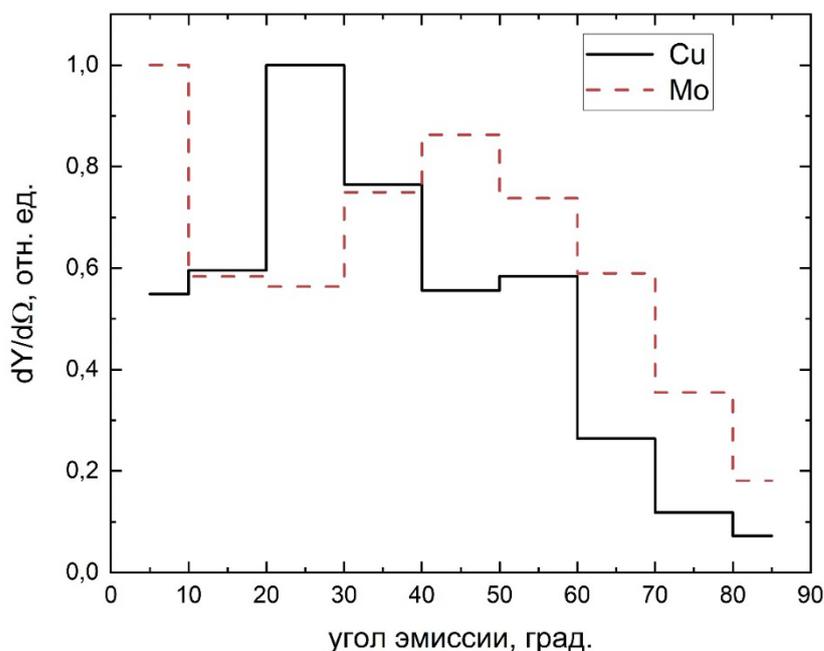


Рисунок 3.13. Угловые распределения молибдена и меди, распылённых кластерами с $E/n \geq 100$ эВ, рассчитанные из моделирования последовательных соударений.

превосходит значение в латеральном максимуме. Несмотря на это, в результате моделирования выход молибдена при малых углах эмиссии значительно превосходит выход меди. В первой серии расчётов было показано, что угловое распределение распылённых атомов сильно зависит от величины E/n . На рисунке 3.12 представлены рассчитанные из моделирования последовательных соударений угловые распределения атомов молибдена и меди, распылённые кластерами аргона с $E/n \geq 100$ эВ. Оба угловых распределения имеют отчётливый максимум при малых углах эмиссии. При этом для молибдена атомы, распылённые кластерами с $E/n \geq 100$ эВ составляют более 30% от общего числа распылённых атомов. Для меди атомы, распылённые такими кластерами, составляют менее 15% от общего числа распылённых атомов.

Угловые распределения атомов, расплётённых кластера с $E/n < 100$ эВ, представлены на рисунке 3.14. Угловые распределения в данном случае имеют максимум при больших углах эмиссии, однако для молибдена наблюдается повышенный выход при малых углах по сравнению с медью. Этот результат отличается от результатов первой серии моделирования независимых соударений кластера с поверхностью, где при $E/n < 100$ эВ не наблюдалось увеличения выхода по нормали для вольфрама по сравнению с медью. В связи с этим было сделано предположение о возможном влиянии рельефа поверхности мишени на угловые распределения расплётённых атомов.

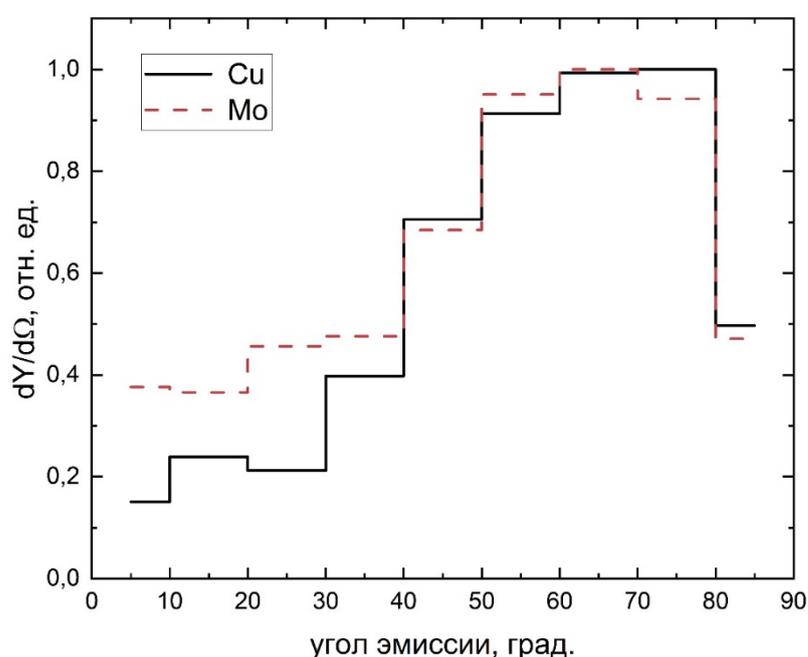


Рисунок 3.14. Угловые распределения молибдена и меди, расплётённых кластерами с $E/n < 100$ эВ, рассчитанные из моделирования последовательных соударений.

На рисунке 3.15 представлены зависимости среднеквадратичной шероховатости поверхности меди и молибдена, формирующейся в результате облучения кластерными ионами аргона, от флюенса облучения, рассчитанные из моделирования последовательных соударений. На рисунке 3.16 представлено изменение рельефа поверхности мишени в результате моделирования серии соударений. Нанорельеф поверхности формируется при флюенсе облучения до 5×10^{13} см⁻² и при дальнейшем среднеквадратичная

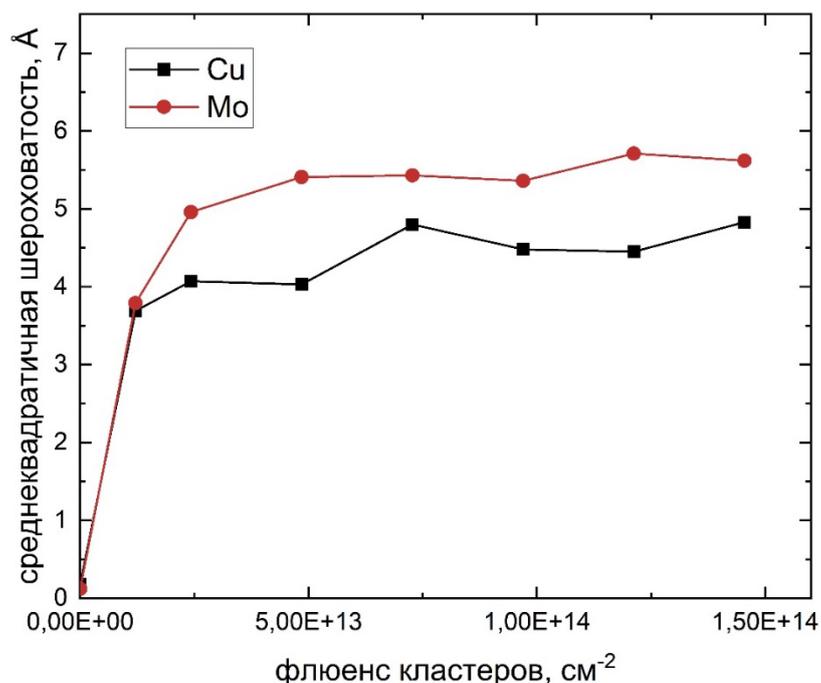


Рисунок 3.15. Зависимости среднеквадратичной шероховатости поверхности меди и молибдена, формирующейся в результате облучения кластерными ионами аргона, от флюенса облучения, рассчитанные из моделирования последовательных соударений.

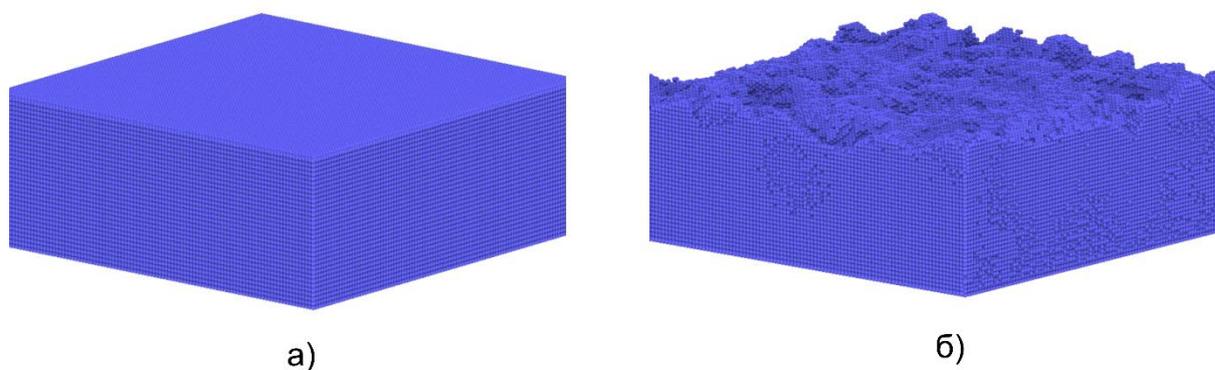


Рисунок 3.16. Поверхность молибдена а) до моделирования серии соударений кластеров, б) в конце серии расчётов.

шероховатость значительно не изменяется. Этот результат находится в хорошем согласии с результатом работы [87], где показано формирование нанорельефа на поверхности серебра при облучении кластерами аргона. Важно отметить, что для пучков газовых кластерных ионов широко известен эффект сглаживания поверхности. В ряде работ продемонстрировано уменьшение шероховатости поверхности различных материалов при облучении

кластерным пучком по нормали к поверхности [142–145]. Однако, в работе [146] проведен анализ функции спектральной плотности и показан эффект сглаживания поверхности на пространственных частотах до 10^2 мкм⁻¹. Измерение шероховатости поверхности в указанных работах производится методом атомно-силовой микроскопии и на более высоких пространственных частотах представляет трудность. Моделирование последовательных соударений начиналось с идеальной поверхности мишени, а рельеф, сформированный в результате моделирования, имеет пространственную частоту порядка 10^3 мкм⁻¹.

Для того, чтобы определить механизм влияния рельефа поверхности на угловые распределения распылённых атомов, были проанализированы траектории атомов, распылённых под малыми углами. Все траектории могут быть разделены на два типа. Примеры таких траекторий представлены на рисунке 3.17. На рисунке представлены положения атомов в начале взаимодействия. Светло-серыми шарами представлены атомы мишени, красным цветом выделены атомы, которые будут распылены под малыми углами, красные линии представляют их траектории. Тёмно-серыми шарами представлены атомы кластера.

К первому типу относятся траектории атомов, располагающихся от проекции центра кластера на расстоянии, большем радиуса кластера. Если

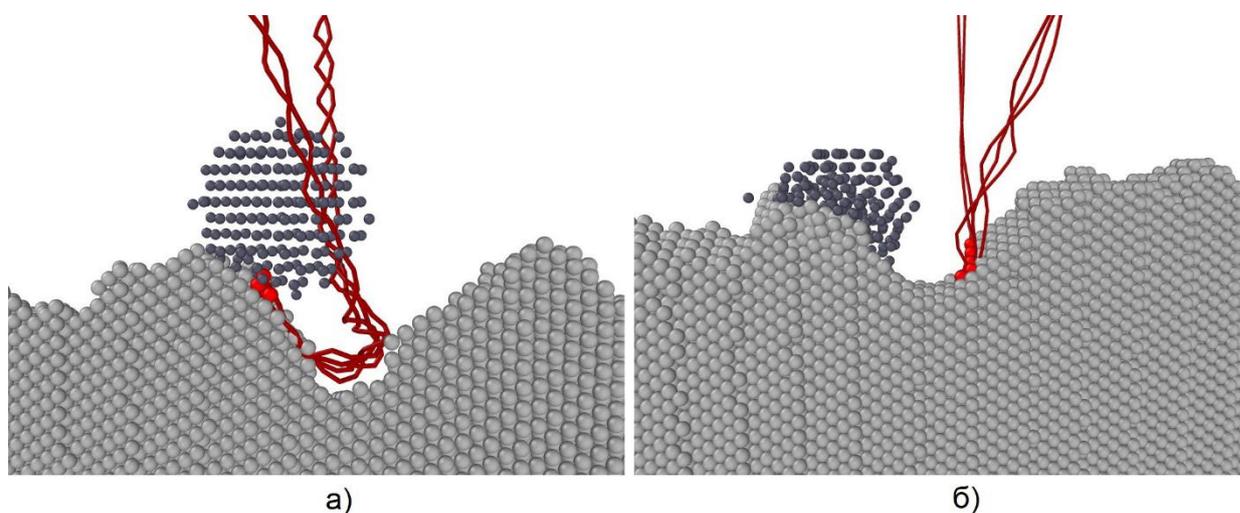


Рисунок 3.17. Два вида траекторий атомов, распылённых с поверхности под малыми углами.

такой атом располагается на склоне или во впадине рельефа поверхности, то распылиться под большими углами он не может, так как они блокируются рельефом. Ко второму типу относятся траектории атомов, находящихся на склоне рельефа на пути движения кластера. Такие атомы могут быть выбиты в направлении поверхности, после чего они отражаются и оказываются распылёнными под малыми углами.

Выводы по главе 3.

- Угловые распределения материала, распылённого с поверхности меди и вольфрама могут отличаться от «латеральных» распределений и иметь максимум выхода 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 по нормали к поверхности мишени, при малых – латеральное угловое распределение.
- Угловые распределения меди, распылённой кластерами Ar_{250} с энергией 10 кэВ и кластерами Ar_{500} с энергией 20 кэВ совпадают, из чего можно сделать вывод, что параметр E/n определяет форму углового распределения распылённых атомов.
- При облучении поверхности меди и молибдена пучком газовых кластерным ионов на поверхности формируется нанорельеф, который оказывает влияние на угловые распределения распылённых атомов.

Глава 4. Влияние сорта атомов кластера и материала мишени на процесс их взаимодействия

В Главе 3 было показано, что сорт атомов кластера и материал мишени оказывают влияние на угловые распределения расплывённых атомов. В связи с этим была поставлена задача изучить влияние сорта атомов кластера и материала мишени на процесс взаимодействия кластера с поверхностью твёрдого тела. Для этого было проведено компьютерное МД моделирование взаимодействие кластеров аргона, криптона и ксенона с поверхностью меди и молибдена [A2]. Энергия кластеров составляла 20 кэВ, размер варьировался в пределах от 50 до 5000 атомов в кластере. Особенности метода и подготовки мишени представлены в Главах 2 и 3.

Передача энергии кластера атомам мишени является важным процессом, оказывающим воздействие на распыление. На рисунке 4.1 представлена динамика передачи энергии кластера атомам мишени. Скорость передачи энергии в обоих случаях уменьшается с ростом массы кластера, что связано с уменьшением скорости атомов кластера. При этом, кластеры аргона в обоих случаях передают атомам мишени меньше энергии, чем атомы криптона и ксенона. Разница между долей энергии, переданной различным

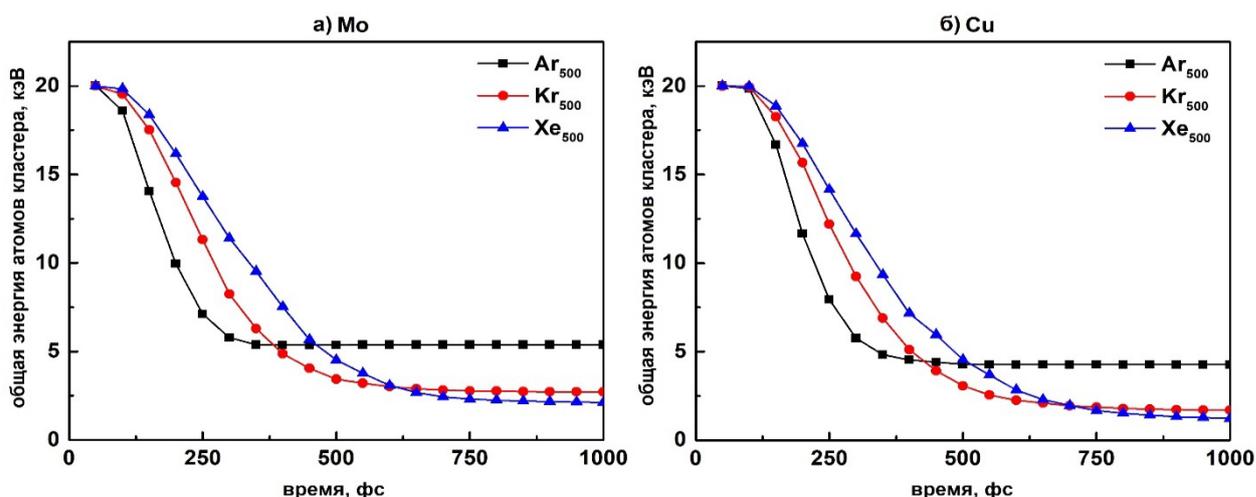


Рисунок 4.1. Зависимость общей кинетической энергии атомов кластеров Ar₅₀₀, Kr₅₀₀ и Xe₅₀₀ с энергией 20 кэВ от времени при взаимодействии с поверхностью а) молибдена, б) меди.

мишеням менее значительна, количество энергии, переданной меди немного больше, чем молибдену для всех сортов кластера.

Для того, чтобы объяснить разницу в передаче энергии различными кластерами, рассмотрим детально начало столкновения кластера с поверхностью. На рисунке 4.2. представлены кадры из моделирования взаимодействия кластеров Ar_{500} , Kr_{500} и Xe_{500} с энергией 20 кэВ с поверхностью молибдена. Серыми точками представлены атомы молибдена, цветными – атомы кластеров. Стрелками представлено направление скорости атомов кластера, для которых $V_z < 0$, то есть те атомы, для которых скорость направлена в обратную сторону от поверхности мишени. Момент времени от начала взаимодействия, который представлен на каждом кадре, выбран обратно пропорциональным скорости соответствующего кластера.

Из рисунка видно, что большая часть атомов аргона имеют импульс, направленный в обратную сторону от поверхности мишени, в то время как импульс практически всех кластеров ксенона направлен вглубь мишени. Этот эффект объясняется из кинематики рассеяния атомов кластера на атомах мишени. В случае, если масса налетающего атома меньше массы атомов мишени, предельный угол рассеяния зависит от соотношения масс и определяется выражением:

$$\cos^2 \theta_{\max} = 1 - \frac{M_2^2}{M_1^2}, \quad (5.1)$$
$$0 \leq \theta_{\max} \leq \frac{\pi}{2}$$

В случае кластера аргона, масса его атомов меньше массы атомов мишени. Атомы кластера, которые первыми долетают до мишени, могут рассеиваться на большие углы, после чего они начинают сталкиваться со следующими подлетающими атомами, в результате чего в самом кластере развивается каскад атомных столкновений. В результате этих столкновений часть атомов покидает кластер, унося значительную энергию.

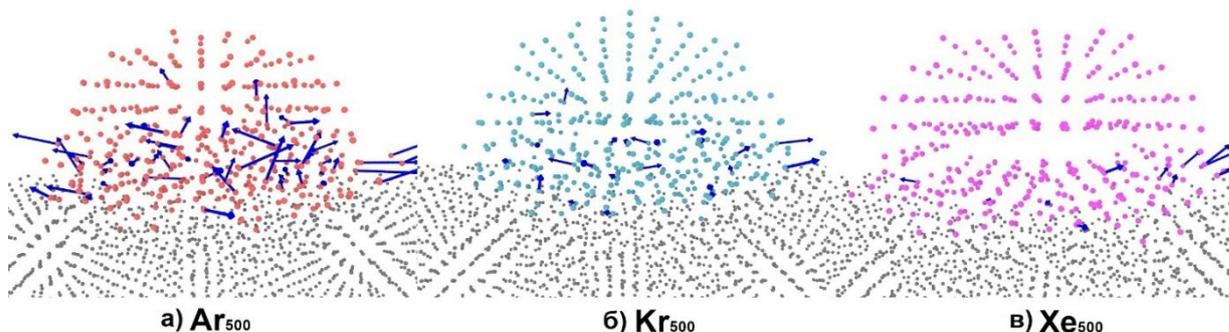


Рисунок 4.2. Кадры МД моделирования взаимодействия кластеров а) Ar_{500} , б) Kr_{500} и в) Xe_{500} с энергией 20 кэВ с поверхностью молибдена. Время от начала взаимодействия составляет а) 110 фс, б) 160 фс, в) 200 фс. Стрелками представлено направление скорости атомов кластера, для которых $V_z < 0$ (положительное направление оси Z выбрано вглубь мишени).

В случае более тяжёлых атомов ксенона, 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 атома кластера, достигнувшие поверхность, в столкновениях передают импульс части атомов мишени. В результате следующие атомы кластера, достигнувшие этой области, испытывают меньшее торможение, и могут глубже проникать в мишень. Описанные эффекты каскада атомных столкновений в кластере, а также эффект расчистки пути были продемонстрированы в работах [45–49,51,62]. В частности, в серии работ [47–49] было проведено МД моделирование прохождения кластеров размером до 17 атомов с E/n от 100 эВ до 1 кэВ через тонкие плёнки при различном отношении масс атомов и мишени, и было показано ослабление торможения в результате эффекта расчистки пути, а также было показано, что некоторые прошедшие и обратнорассеянные атомы кластера могут иметь энергию, большую, чем начальная в результате столкновений между атомами кластера. В работах [51,62] было проведено МД моделирование взаимодействия кластера с

массивной мишенью и показана роль столкновений между атомами кластера и эффекта «расчистки пути».

На рисунке 4.3 представлено распределение проективных пробегов кластеров Ar_{500} , Kr_{500} и Xe_{500} с энергией 20 кэВ в молибдене. Чёрной линией с координатой 0 представлено положение поверхности мишени. Положительное направление оси абсцисс соответствует направлению вглубь мишени. Из рисунка видно, что для аргона значительное число атомов кластера не достигает поверхности мишени в процессе соударения. Это обусловлено большим числом столкновений подлетающих атомов кластера с атомами кластера, рассеянными на атомах мишени на большие углы. Более тяжёлые атомы криптона и ксенона имеют больший средний проективный пробег, и большая доля атомов кластера достигает поверхности мишени. Это связано, во-первых, с рассеянием атомов кластера на атомах мишени на меньшие углы, в результате чего интенсивность столкновений между атомами кластера на начальном этапе столкновения ниже, а, во-вторых, с более выраженным эффектом «расчистки пути».

Стоит отметить, что описанные выше эффекты наблюдаются в определенном диапазоне E/n . На рисунке 4.4 представлены зависимости энергии, переданной от кластера атомам мишени от величины E/n . 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 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. На рисунке 4.5 представлена визуализация МД моделирования начала соударения кластера аргона с $E/n = 4$ эВ с поверхностью молибдена. Из рисунка видно, что даже атомы кластера, достигнувшие поверхность первыми, не проникают вглубь, а

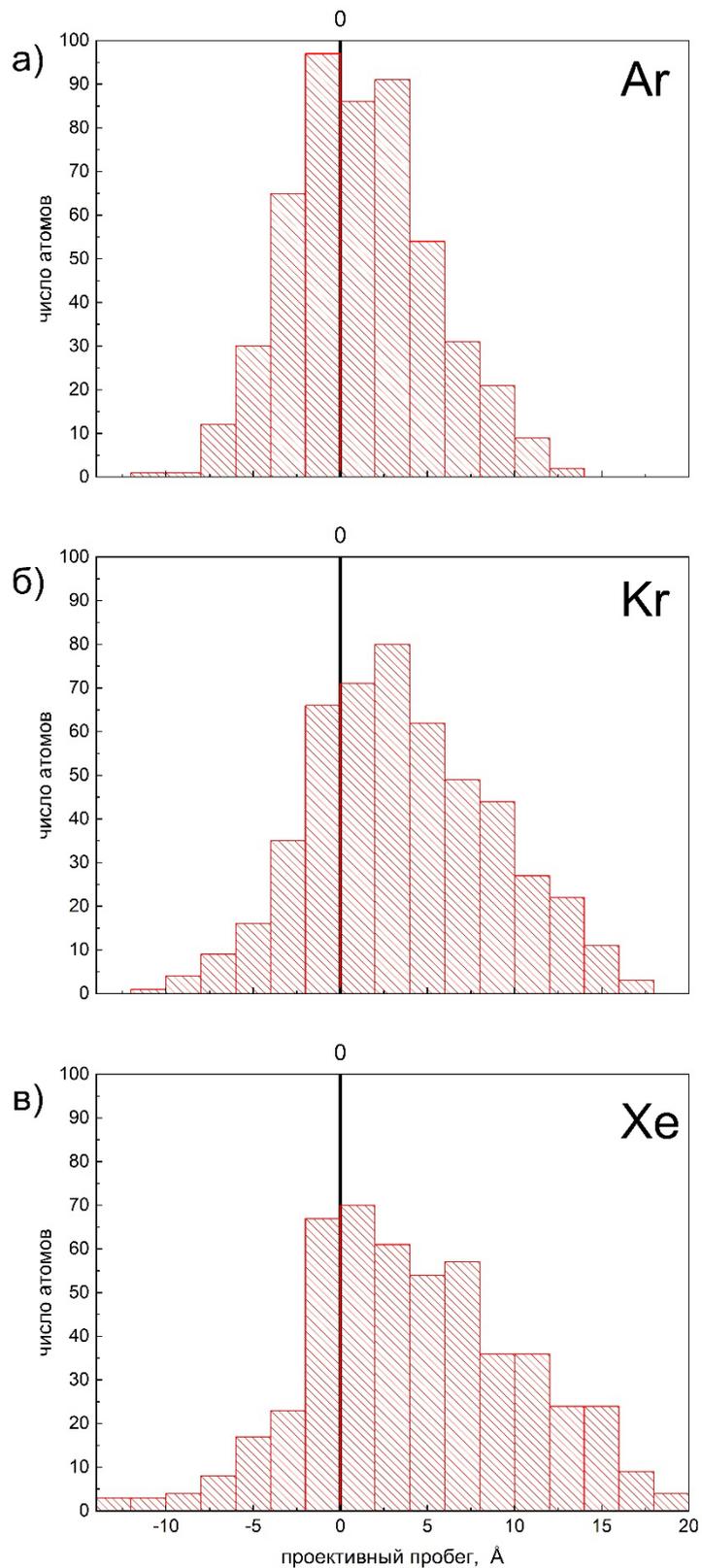


Рисунок 4.3. Распределение проективных пробегов кластеров а) Ar_{500} , б) Kr_{500} и в) Xe_{500} с энергией 20 кэВ в Мо мишени.

также уже на начальном этапе взаимодействия импульсы большого числа атомов кластера направлены вдоль поверхности мишени.

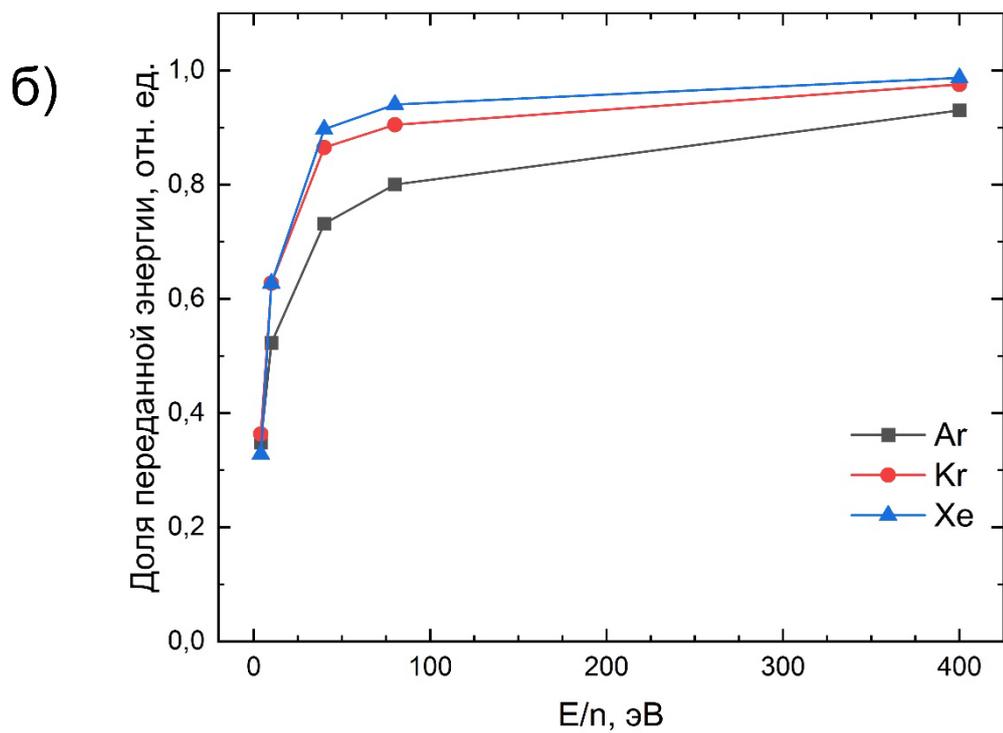
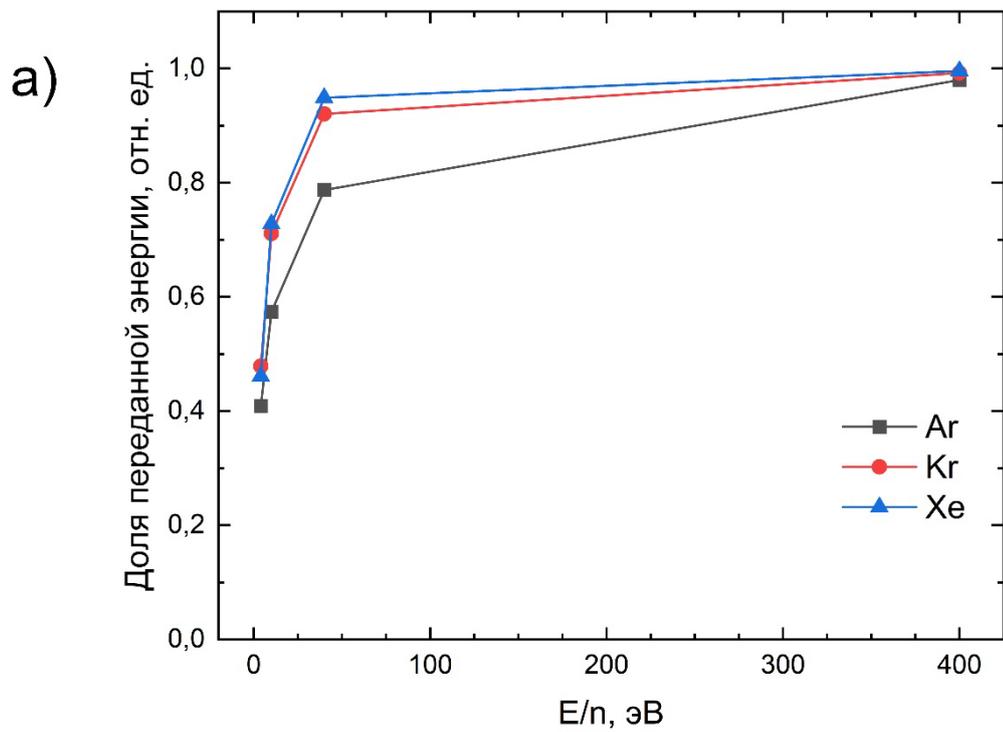


Рисунок 4.4. Зависимость доли энергии кластеров Ar_n , Kr_n и Xe_n , переданной мишени а) Cu, б) Mo от величины E/n .

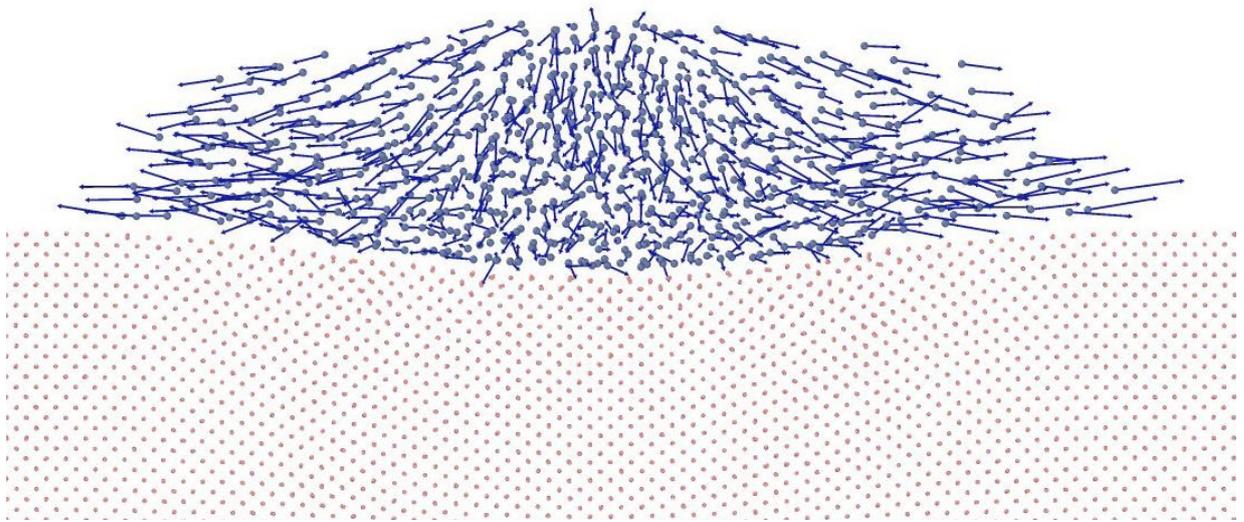


Рисунок 4.5. Начало столкновения кластера Ar_{5000} с энергией 20 кэВ с поверхностью молибдена. $E/n = 4$ эВ. Стрелками представлены направления импульсов атомов кластера.

В таблице 4.1 приведены соотношения масс для различных комбинаций атомов кластера и мишени. Отношение массы атома кластера к массе атома мишени в случае кластера аргона меньше единицы для обеих мишеней, для ксенона больше единицы для обеих мишеней. В случае кластера криптона отношение масс больше единицы для мишени из меди и меньше единицы для мишени из молибдена.

Таблица 4.1. Отношение $M1/M2$ массы атома кластера к массе атома мишени для различных сортов газа кластера и материалов мишени.

	Ar	Kr	Xe
Cu	0,63	1,31	2,07
Mo	0,42	0,87	1,37

В связи с этим ожидалось, что в случае кластера криптона доля переданной энергии, а также пробеги атомов кластера в мишени будут близки к результатам для кластера аргона в случае молибденовой мишени и к результатам для кластера ксенона для случая медной мишени. Однако, из

рисунков 4.1, 4.3, 4.4 видно, что результаты для кластера криптона близки к результатам для кластера ксенона в случае обеих мишеней.

Для объяснения этого эффекта были рассчитаны дифференциальные сечения рассеяния атомов аргона, криптона и ксенона с энергией 40 эВ на атомах молибдена. Энергия 40 эВ на атом соответствует кластеру размером 500 атомов с энергией 20 кэВ. Так как в МД моделировании для описания взаимодействия между атомами кластера и атомами мишени использовался ZBL потенциал, то дифференциальные сечения рассеяния были рассчитаны для этого потенциала. Рассчитанные дифференциальные сечения представлены на рисунке 4.6. Из полученных дифференциальных сечений было рассчитано отношение вероятностей рассеяния на углы более 90

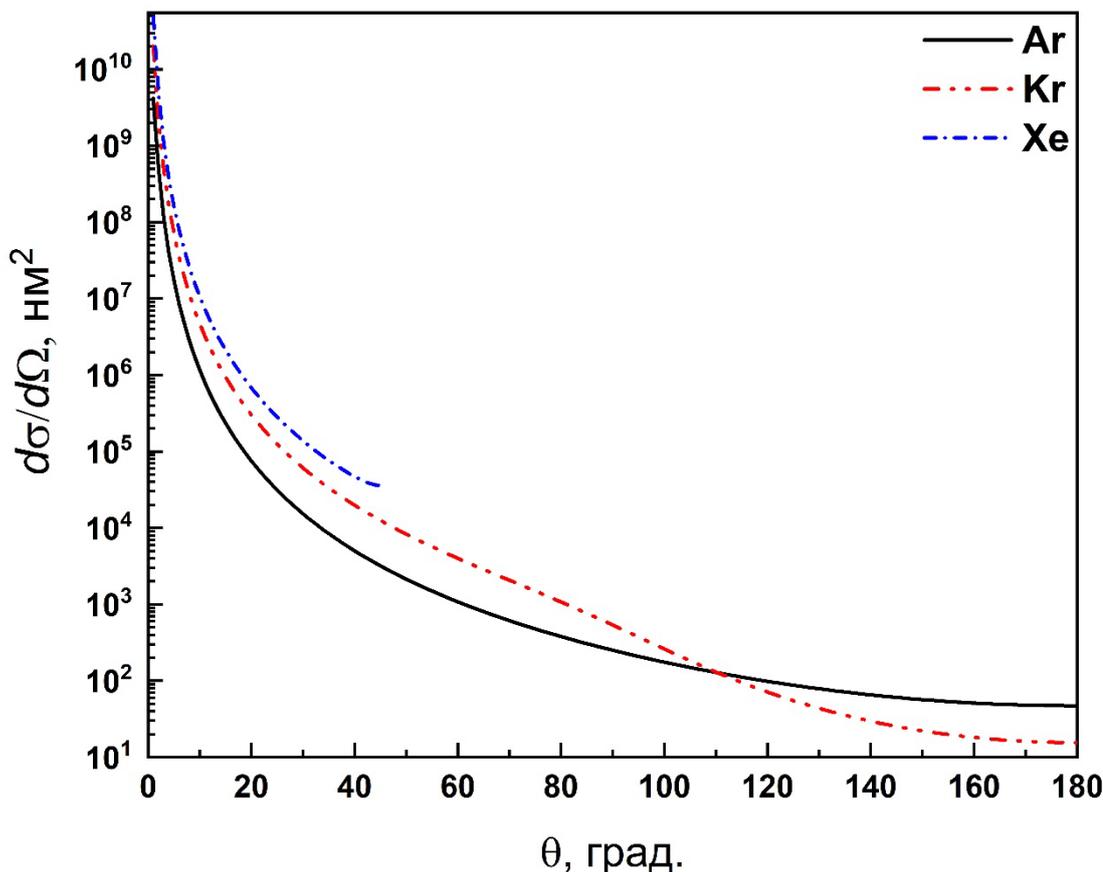


Рисунок 4.6. Дифференциальные сечения рассеяния атомов аргона, криптона и ксенона с энергией 40 эВ на атомах молибдена с использованием ZBL потенциала.

градусов атомов криптона и аргона $\frac{P_{Kr}}{P_{Ar}} = 1,35 \times 10^{-1}$. Таким образом получается.

Таким образом, доля атомов кластера криптона, рассеивающихся на большие углы от атомов молибдена в начале взаимодействия значительно ниже, чем для кластера аргона. В результате доля переданной энергии и пробеги атомов кластера криптона выше, чем атомов кластера аргона.

Как было отмечено выше, в работах [47–49] было проведено МД моделирование прохождения кластеров с величиной E/n , равной 100 эВ/атом и 1 кэВ/атом через тонкие плёнки при различном соотношении масс атомов кластера и мишени. Показано, что в результате столкновений между атомами кластера как у прошедших, так и обратнорассенных атомов кластера может наблюдаться кинетическая энергия большая, чем изначальная величина E/n . В работе [62] показано, что при столкновении кластера аргона размером 688 атомов с энергией в диапазоне от 1 до 7 кэВ с поверхностью кремния (E/n в диапазоне от 1,5 до 10 эВ/атом) суммарная кинетическая энергия атомов кластера после столкновения составляет порядка 700 эВ. При этом наблюдается термализация кластера в результате множественных столкновений атомов кластера друг с другом и с атомами мишени. Степень термализации падает с уменьшением E/n , что авторы связывают с уменьшением частоты столкновений между атомами кластера.

В данной работе для изучения термализации кластера в результате столкновения с поверхностью из результатов МД моделирования были рассчитаны распределения по скоростям атомов кластеров аргона и ксенона с энергией 20 кэВ и размерами в диапазоне от 500 до 5000 атомов после столкновения с поверхностью молибдена. Рассчитанные распределения по модулю скорости представлены на рисунке 4.7. Сплошной линией представлено распределение Максвелла, при такой температуре, что средняя энергия в распределении равна средней энергии атомов кластера.

Из рисунка видно, что во всём диапазоне E/n атомы кластера аргона термализованы в большей степени, чем атомы кластера ксенона. Это объясняется большим числом столкновений между атомами кластера в результате обратного рассеяния первых атомов кластера, достигших

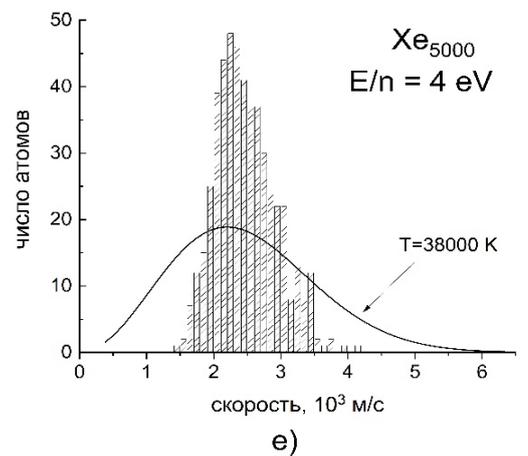
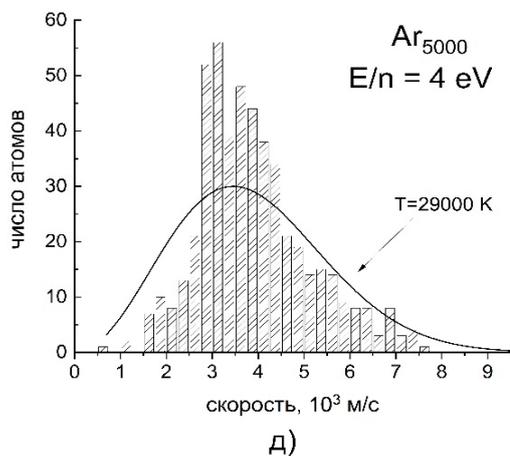
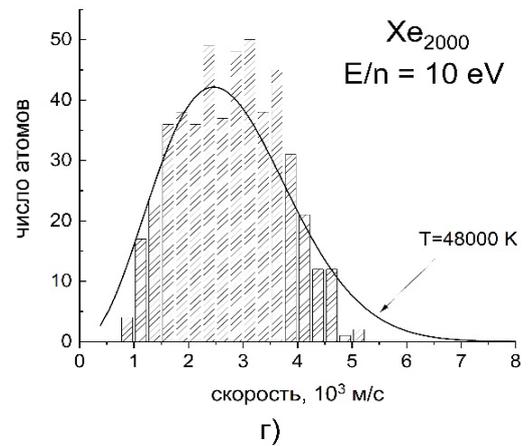
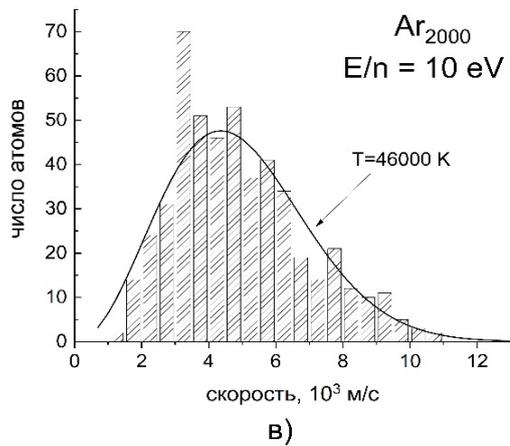
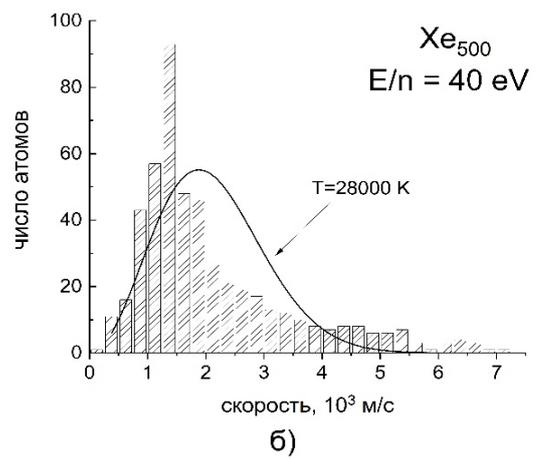
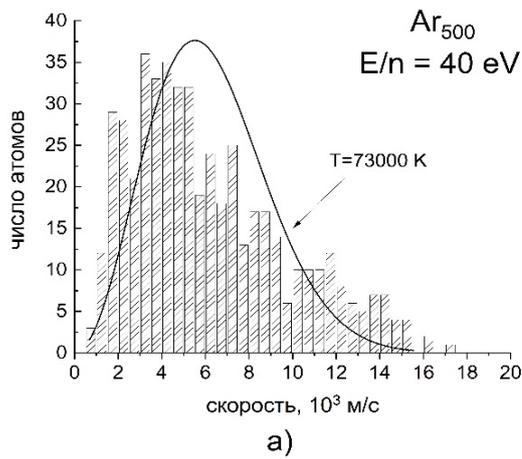


Рисунок 4.7. Распределения по модулю скорости атомов кластера а) Ar_{500} , б) Xe_{500} , в) Ar_{2000} , г) Xe_{2000} , д) Ar_{5000} , е) Xe_{5000} с энергией 20 кэВ после столкновения с поверхностью молибдена.

поверхности мишени, на атомах мишени. Атомы кластеров с $E/n = 10$ эВ в обоих случаях термализованы в большей степени, чем при $E/n = 4$ эВ. Этот результат хорошо согласуется с выводами в работе [62]. Однако, при

дальнейшем увеличении E/n до 40 эВ степень термализации атомов кластера после столкновения снова уменьшается. Это связано с тем, что часть атомов кластера после его разрушения может продолжать движение в мишени независимо от других атомов кластера. Этот эффект более выражен для кластера, состоящего из более тяжелого ксенона в результате невозможности рассеяния первых атомов кластера на большие углы, а также эффекта «расчистки пути».

Выводы по главе 4.

- 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 атомы кластера могут 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.

Глава 5. Энергетические распределения атомов, распылённых с поверхности молибдена и вольфрама газовыми кластерными ионами

Компьютерное моделирование

Другой дифференциальной характеристикой распыления, которая несет в себе информацию о механизмах взаимодействия газовых кластерных ионов с поверхностью твёрдых тел, является энергетическое распределение распылённых атомов dY/dE . В частности, по энергетическим распределениям распылённых атомов можно судить об энергетическом распределении атомов мишени в области взаимодействия [67]. В случае атомарных ионов средних энергий применяется модель линейных каскадов атомных столкновений, и энергетический спектр распылённых атомов записывается в виде:

$$Y(E)dE \sim \frac{E}{(E + U_s)^{3-2m}} dE, \quad (6.1)$$

где U_s – энергия связи атомов мишени на поверхности,

m – параметр, меняющийся в диапазоне от 0 до $1/4$.

Выражение (5.1) часто называют формулой Томпсона. Максимум спектра соответствует энергии:

$$E_p = \frac{U_s}{2-2m}. \quad (6.2)$$

Другим механизмом распыления является распыление из теплового пика. Под тепловым пиком понимается область в мишени, в которой большинство атомов находятся в движении в результате диссипации энергии, переданной первичной частицей посредством упругих столкновений атомов мишени [45,68,147]. При этом эффекты, связанные с тепловым пиком, играют роль, когда время жизни пика превышает продолжительность процесса первичной передачи энергии. Распыление в данном случае рассматривается как испарение из области теплового пика.

Для случая распыления тяжёлыми атомарными или молекулярными ионами из модели теплового пика было получено следующее двойное распределение распылённых атомов по углу и энергии:

$$Y(E, \theta) dE d^2\Omega = 0,0688 \lambda_0 a^2 F_D'^2 \frac{EdE}{(E+U_s)^4} f\left(\frac{E+U_s}{kT_0}\right) \cos\theta d^2\Omega, \quad (6.3)$$

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

где λ_0 и a – постоянные Борна-Майера,

$F_D'^2$ – энергия, передаваемая первичной частицей на единицу длины пути,

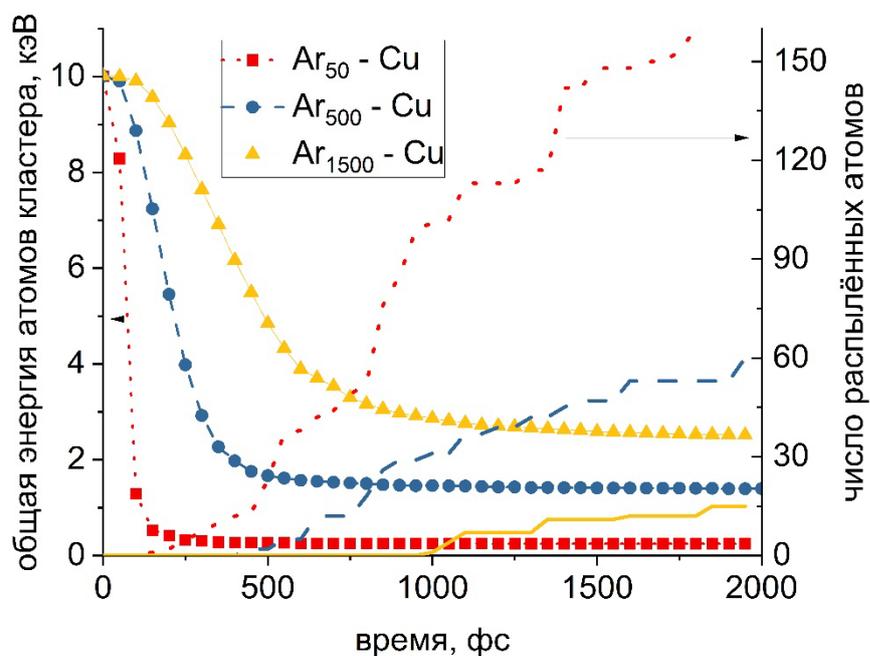
U_s – энергия связи атомов мишени на поверхности

T_0 – температура ядра теплового пика.

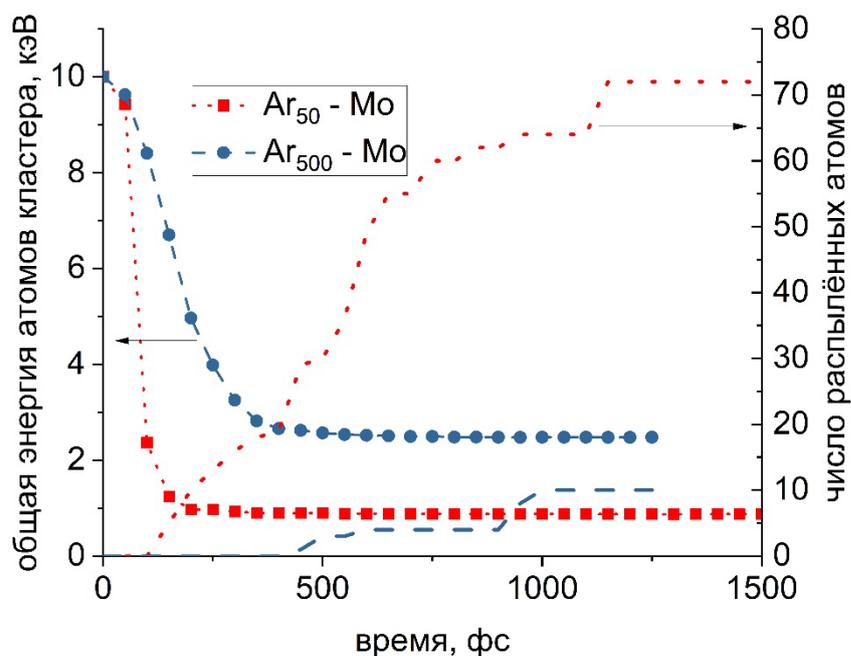
Стоит отметить, что данное распределение отличается от случая обычного испарения, так как в данном случае оно происходит из области, обладающей определённым распределением температур во времени и пространстве.

В случае облучения газовыми кластерными ионами энергосвязывание происходит в малой области пространства, в результате чего образуется область с высокой плотностью энергии атомов мишени. В данном случае ожидается определяющее влияние эффектов, связанных с тепловым пиком. В данной работе было проведено компьютерное моделирование распыления поверхности меди и молибдена газовыми кластерами аргона [А3]. Энергия кластеров составляла 10 кэВ, размер кластера варьировался от 50 до 2000 атомов. Особенности метода и подготовки мишени представлены в Главах 2 и 3. В качестве потенциала межатомного взаимодействия атомов кластера с атомами мишени использовались потенциалы из работы [148], которые являются парными потенциалами, рассчитанными на основе метода DFT. В результате, некоторые рассчитанные величины, например коэффициенты распыления, могут отличаться от значений, представленных в главах 3 и 4.

В первую очередь была произведена оценка временных характеристик процессов, протекающих при взаимодействии ускоренного газового кластера с поверхностью мишени. На рисунке 5.1 представлены временные зависимости числа расплывённых атомов и передачи энергии кластера атомам мишени. С увеличением размера кластера время передачи энергии атомам мишени растёт в результате уменьшения значения E/n и, следовательно,



а)



б)

Рисунок 5.1. Временные зависимости общей энергии атомов кластера и числа расплывённых атомов при распылении а) меди и б) молибдена газовыми кластерами аргона с энергией 10 кэВ.

скорости атомов кластера. При этом распыление в случае кластеров размера 50 и 500 начинается после окончания передачи энергии, и длится значительное время, превышающее время самой передачи энергии. В случае более

медленного кластера размером 1000 атомов для мишени из меди процесс передачи энергии ещё не окончен к моменту, когда начинается распыление. Для молибдена рассчитать временную зависимость при размере кластера 1000 атомов оказалось невозможно из-за слишком низкого коэффициента распыления. Таким образом, распыление из теплового пика для случая кластерных ионов должно играть значительную роль, так как время жизни пика значительно больше времени передачи энергии от кластера атомам мишени. Однако, с уменьшением E/n длительность передачи энергии от кластера атомам мишени значительно возрастает, поэтому необходимо учитывать не только диссипацию энергии в тепловом пике, но и её поступление.

На рисунке 5.2 представлено энергетическое распределение атомов меди, распылённых кластерами Ar800 с энергией 10 кэВ. Распределение представлено в логарифмическом масштабе по обоим осям.

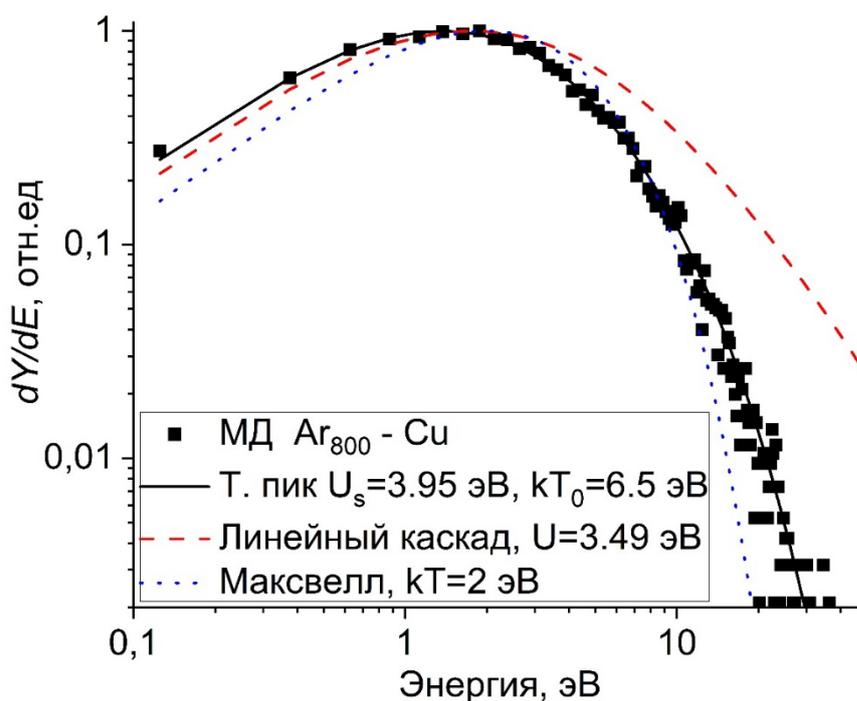


Рисунок 5.2. Энергетические распределения атомов меди, распылённой кластерами Ar800 с энергией 10 кэВ, рассчитанные из МД моделирования, в сравнении с аппроксимацией на основе модели тепловых пиков, модели линейных каскадов и распределением Максвелла.

Полученное из МД моделирования распределение хорошо аппроксимируется уравнением (5.3) для модели теплового пика. Параметр U_s при аппроксимации равен 3,95 эВ, что довольно близко к энергии когезии для меди, равной 3,49 эВ/атом. Для сравнения на рисунке 5.2 также представлена аппроксимация уравнением (5.1) для модели линейных каскадов. Видно, что в случае каскадного механизма распыления выход распылённых атомов в области высоких энергий значительно выше, чем в случае распыления кластерами. Также для сравнения представлена аппроксимация распределением Максвелла, которое соответствует системе в термодинамическом равновесии. Это неприменимо к процессу распыления, однако может позволить делать оценки средней температуры в области взаимодействия.

На рисунке 5.3 представлены энергетические распределения атомов меди и молибдена, распылённых кластерами Ar_{500} с энергией 10 кэВ. При аппроксимации для параметра U_s использовались значения энергии когезии.

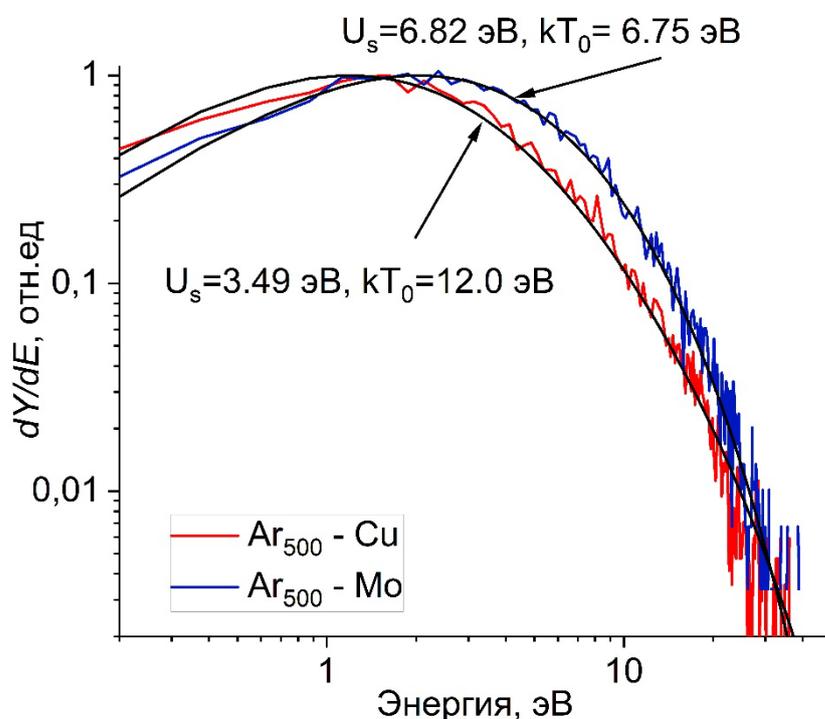


Рисунок 5.3. Энергетические распределения атомов меди и молибдена, распылённых кластерами Ar_{500} с энергией 10 кэВ и аппроксимация уравнением (5.3)

Для меди $U_s = 3,49$ эВ, для молибдена $U_s = 6,82$ эВ. Максимум распределения смещается в область большей энергии при увеличении энергии связи мишени.

Температура ядра пика T_0 также различается для различных мишеней. На рисунке 5.4 представлены зависимости kT_0 от значения E/n для распыления меди и молибдена кластерами аргона различного размера с энергией 10 кэВ.

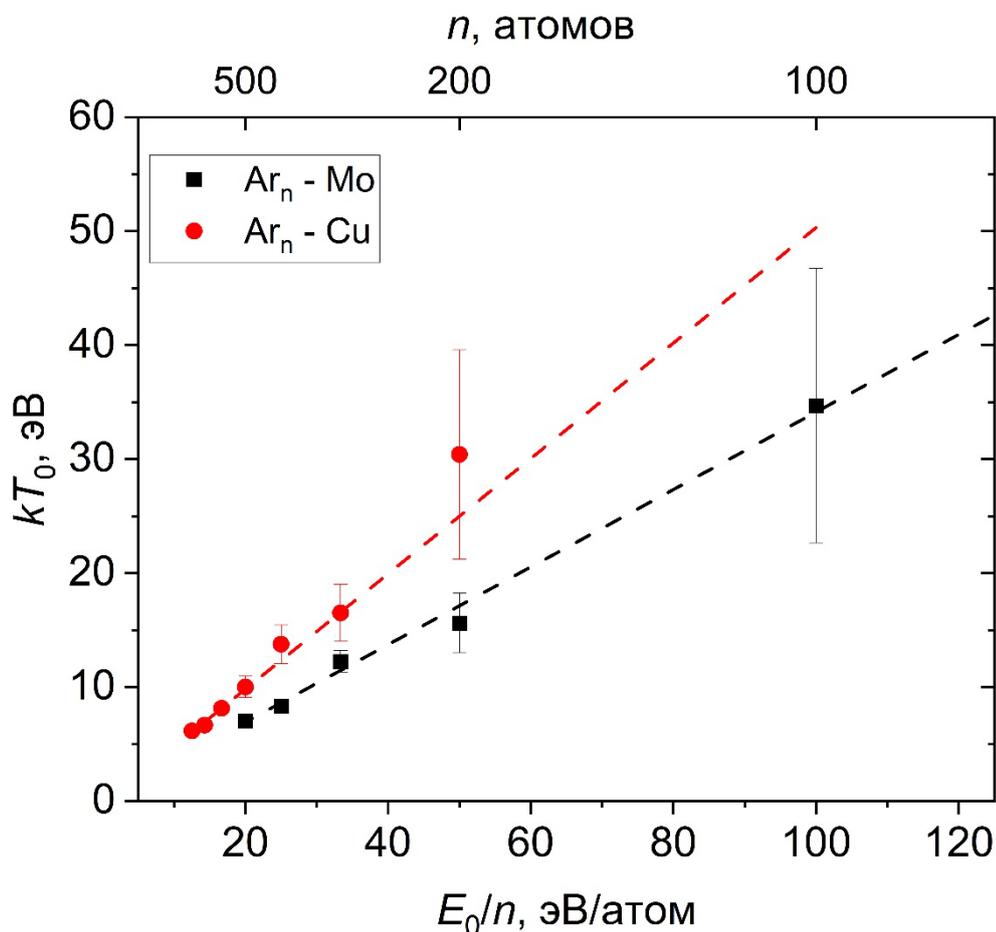


Рисунок 5.4 Зависимость температуры ядра теплового пика kT_0 от размера кластера n и энергии на атом кластера E_0/n для аппроксимации уравнением (5.3) энергетических распределений меди и молибдена, распылённых кластерами аргона

Рассчитанная величина kT_0 линейно зависит от энергии на один атом кластера. Нужно отметить, что в модели теплового пика для атомарных и молекулярных ионов [68] T_0 является эффективной величиной температуры ядра пика. Более того, уравнение (5.3) получено для цилиндрической геометрии теплового пика, что не соответствует случаю кластерных ионов.

Поэтому, величина kT_0 не применима для оценки средней кинетической энергии атомов в области пика в начале его развития. Для сравнения была проведена оценка средней кинетической энергии атомов мишени в области теплового пика из МД моделирования. Для оценки выбирались атомы мишени, кинетическая энергия которых превышала температуру плавления, и рассчитывалась их средняя кинетическая энергия. В таблице 5.1 представлена наибольшая рассчитанная таким образом энергия в процессе взаимодействия кластера с мишенью. Полученные значения значительно ниже величины kT_0 .

Таблица 5.1. Максимальная средняя кинетическая энергия атомов мишени в области теплового пика.

	Ar₅₀	Ar₅₀₀
Cu	23 эВ	6,8 эВ
Mo	28 эВ	4,3 эВ

Полученная величина максимальной средней энергии для кластеров Ar₅₀ достигается спустя 30-40 фс с начала соударения кластера с поверхностью, причём к этому моменту кластер передал около половины всей энергии атомам мишени. В случае кластеров Ar₅₀₀ полученное значение достигается в первые 10 фс с начала соударения, причём доля переданной энергии составляет порядка 10% на этот момент времени. Таким образом, в случае распыления газовыми кластерными ионами необходимо учитывать баланс скорости диссипации энергии в мишени и передачи энергии кластера атомам мишени для оценки температуры пика в начале его развития. Более того, как было показано выше, с уменьшением E/n время передачи энергии кластера атома мишени растёт, и этот эффект начинает играть большую роль.

Также стоит отметить, что, как было показано в Главе 3, с уменьшением E/n , когда атомы кластера не могут независимо двигаться в мишени, кластер испытывает компрессию на поверхности мишени и оказывает давление на приповерхностную область взаимодействия, в результате чего распылённые

атомы приобретают латеральный импульс. Этот эффект также может оказывать влияние на энергетические распределения распылённых атомов, и необходимы дополнительные исследования применимости модели тепловых пиков в области малых значений E/n .

Модель теплового пика [68] рассматривает диссипацию энергии, переданной мишени первичной частицей. Тепловой пик характеризуется распределением температуры в пространстве, которое изменяется с течением времени в результате диссипации. Распыление рассматривается как испарение атомов из области пика. Таким образом можно предположить, что средняя энергия распыляемых атомов будет убывать с течением времени. Для проверки этого предположения с помощью МД моделирования была рассчитана зависимость средней энергии распыляемых атомов от времени их эмиссии для распыления поверхности меди кластерами Ar_{50} и Ar_{1500} . Атом считался распылённым, если расстояние до ближайшего атома поверхности

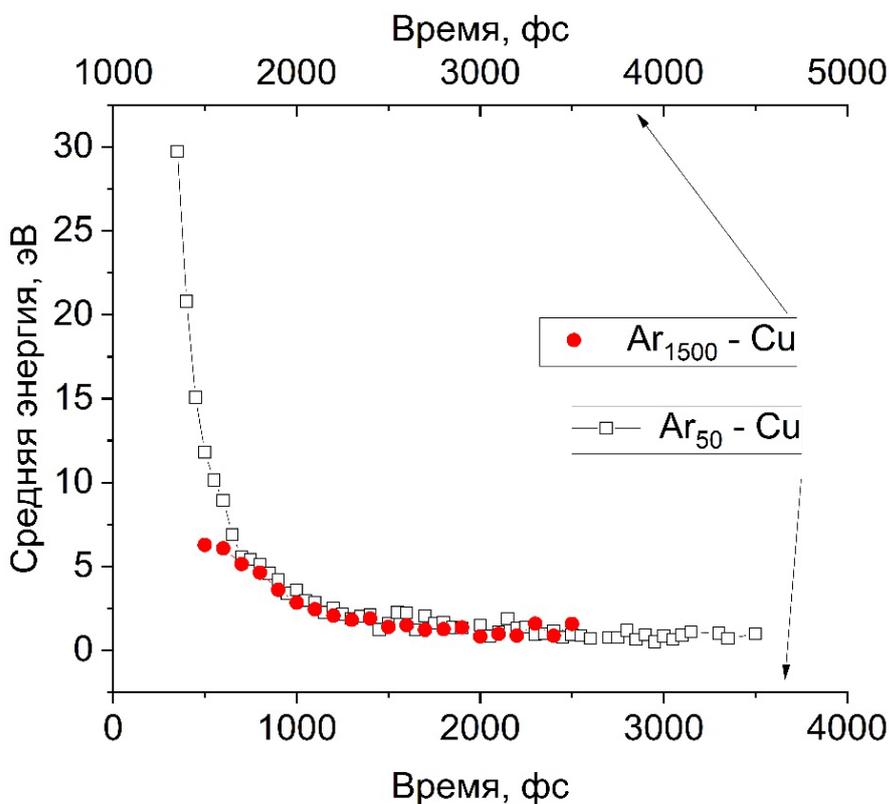


Рисунок 5.5. зависимость средней энергии распыляемых атомов от времени их эмиссии

мишени превосходило радиус отсечки потенциала, который составлял для меди $4,94\text{\AA}$. Полученные временные зависимости представлены на рисунке 5.5.

Средняя энергия распыляемых атомов меди убывает с течением времени как в случае большого, так и в случае малого E/n . При этом, кривая для кластера Ar_{1500} при сдвиге по времени повторяет кривую для кластера Ar_{50} за исключением первых двух точек. Объяснить такое совпадение можно тем, что при уменьшении средней температуры в тепловом пике, возбужденным кластером с высоким E/n , в результате диссипации первоначальной энергии до значений средней температуры пика, возбужденного кластером с малым E/n , дальнейшее развитие теплового пика происходит схожим образом.

В главе 3 было показано, что нанорельеф поверхности, формирующийся в процессе облучения газовыми кластерными ионами, оказывает влияние на угловые распределения распылённых атомов. Для того, чтобы оценить влияние нанорельефа на энергетические распределения, было проведено МД моделирование серий последовательных соударений кластеров аргона с энергией 10 кэВ с медью и молибденом. Схема моделирования приведена в главе 3. Число соударений для каждой мишени соответствовало флюенсу $1 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}$. Для сравнения были рассчитаны распределения по результатам моделирования независимых соударений кластеров с энергией 10 кэВ и размером в диапазоне от 50 до 2000 атомов с поверхностью. Общее распределение рассчитывалось как сумма распределений при каждом размере кластера, взятых с весом, соответствующим доле кластеров данного размера в пучке (рисунок 3.1). Таким образом, в обоих режимах учтено одинаковое распределение кластеров по размерам, и различия между ними в том, что в случае серии последовательных соударений учитывается нанорельеф поверхности, формирующийся при кластерном облучении. Для более детального анализа были рассчитаны зависимости числа распылённых атомов от энергии и полярного угла эмиссии. Полученные зависимости представлены на рисунке 5.6.

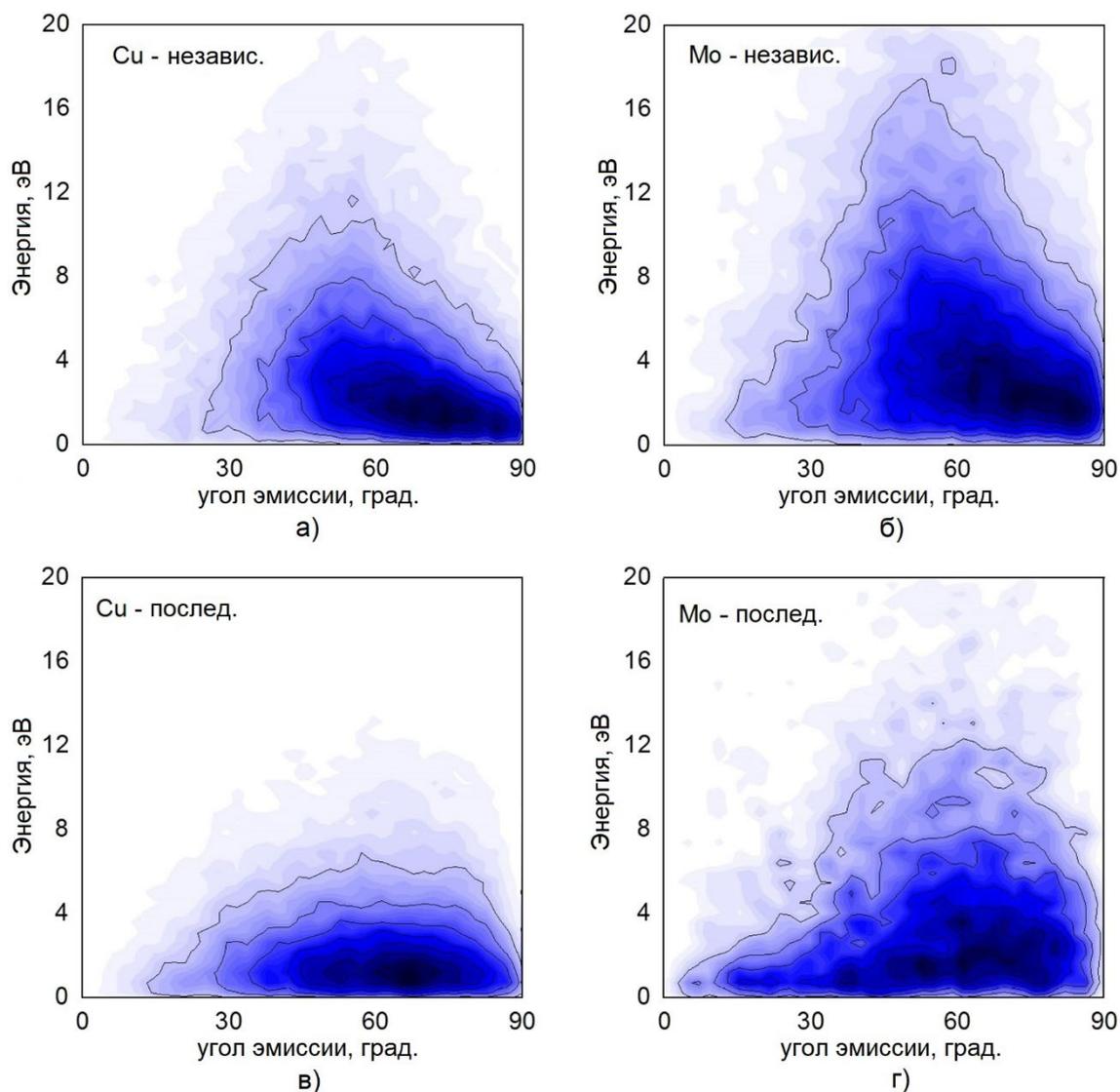


Рисунок 5.6 Зависимость числа расплывённых атомов а), в) меди и б), г) от энергии и угла эмиссии. Зависимости а), б) рассчитаны из МД моделирования независимых соударений; в), г) – серии последовательных соударений. Каждая зависимость нормирована на максимальное значение.

В первую очередь стоит отметить, что полученные зависимости не являются двойными распределениями $d^2Y/d\Omega dE$, так как они являются интегральными по азимутальному углу. Как для меди, так и для молибдена в случае моделирования последовательных соударений средняя энергия расплывённых атомов ниже, чем в случае независимых соударений. К тому же наблюдается увеличение выхода атомов с низкой энергией при малых углах эмиссии. Можно предположить, что уменьшение средней энергии обусловлено эмиссией низкоэнергетичных атомов с элементов рельефа

поверхности. Это предположение хорошо согласуется с результатами главы 3, где были проанализировано траектории атомов, распылённых под малыми углами, и показано, что их распыление происходит со склонов рельефа поверхности.

Экспериментальное измерение энергетических распределений распылённых атомов представляет некоторые трудности, связанные с тем, что энергетический спектр вторичных ионов, которые можно зарегистрировать с помощью, например, электростатического энергоанализатора, может отличаться от спектра нейтральных вторичных атомов. В частности, для распыления атомарными ионами, наиболее вероятная энергия вторичных ионов смещена в область более высоких энергий, в результате зависимости вероятности нейтрализации иона от энергии в процессе покидания поверхности [67]. При этом измерение энергетического спектра нейтральных распылённых атомов требует использования более сложных методик, таких как времяпролётные методы, измерение доплеровского смещения, либо ионизации нейтральных атомов с последующим измерением энергии заряженных частиц. Для случая распыления газовыми кластерными ионами этот аспект остаётся неисследованным.

Экспериментальное измерение энергетических спектров вторичных ионов, распылённых газовыми кластерными ионами

В работе было проведено измерение энергетических спектров вторичных ионов меди пучком кластерных ионов аргона и ксенона с энергией 10 кэВ [A3]. Схема эксперимента представлена на рисунке 5.7. Измерения энергии распылённых частиц производились с помощью тороидального электростатического анализатора с радиусом центральной траектории, равным 17 мм. Угол эмиссии регистрируемых атомов составлял 25° . Регистрация частиц, прошедших через анализатор, осуществлялась с помощью микроканальной пластины (МКП). Энергетическое разрешение системы оценивалось с помощью программы SIMION [149], а также

экспериментально с помощью монохроматического электронного пучка в сканирующем электронном микроскопе. Оценка разрешения показала, что оно составляет не более 7% от измеряемой энергии. В качестве образца служила медная поликристаллическая пластина. Перед проведением эксперимента была проведена механическая полировка образца, а также облучение пучком газовых кластеров аргона в течение 30 минут для того, чтобы стравить оксидный слой. Все этапы подготовки образца проводились на оборудовании Центра коллективного пользования «Ускорительный комплекс МГУ». На пути пучка был установлен ряд диафрагм (рисунок 5.6) для исключения попадания

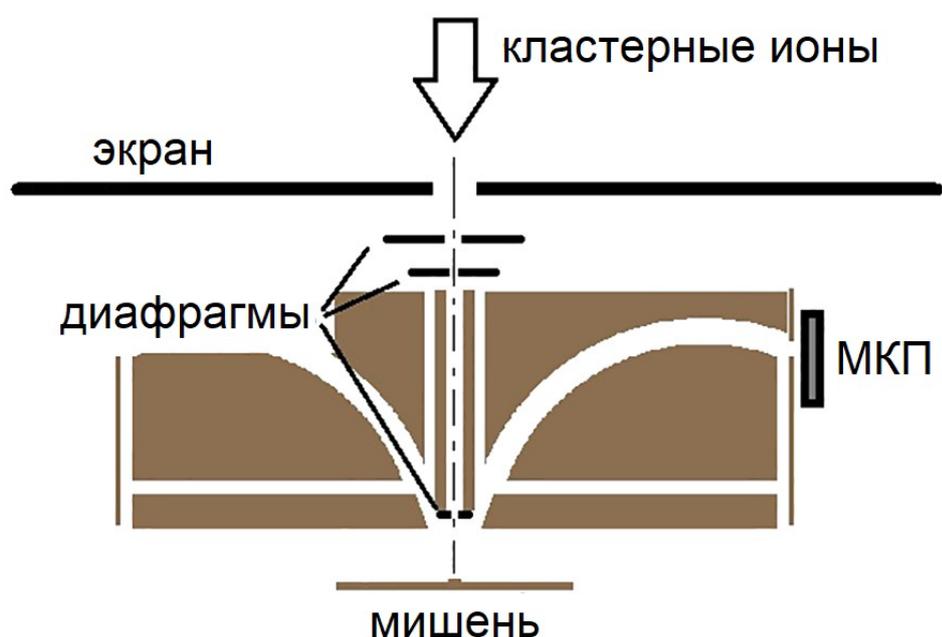


Рисунок 5.7. Схема эксперимента по измерению энергетических распределений вторичных ионов при облучении меди пучком газовых кластерных ионов ксенона и аргона.

кластеров и вторичных частиц на МКП, а также для коллимации пучка. Диаметр диафрагмы, определяющей размер облучаемой области составлял 0,8 мм.

Полученные энергетические распределения представлены на рисунке 5.8. Для сравнения и проверки измерительной схемы было проведено измерение энергетического распределения вторичных ионов меди, расплывённых атомарными ионами Ar^+ с энергией 10 кэВ. Полученное

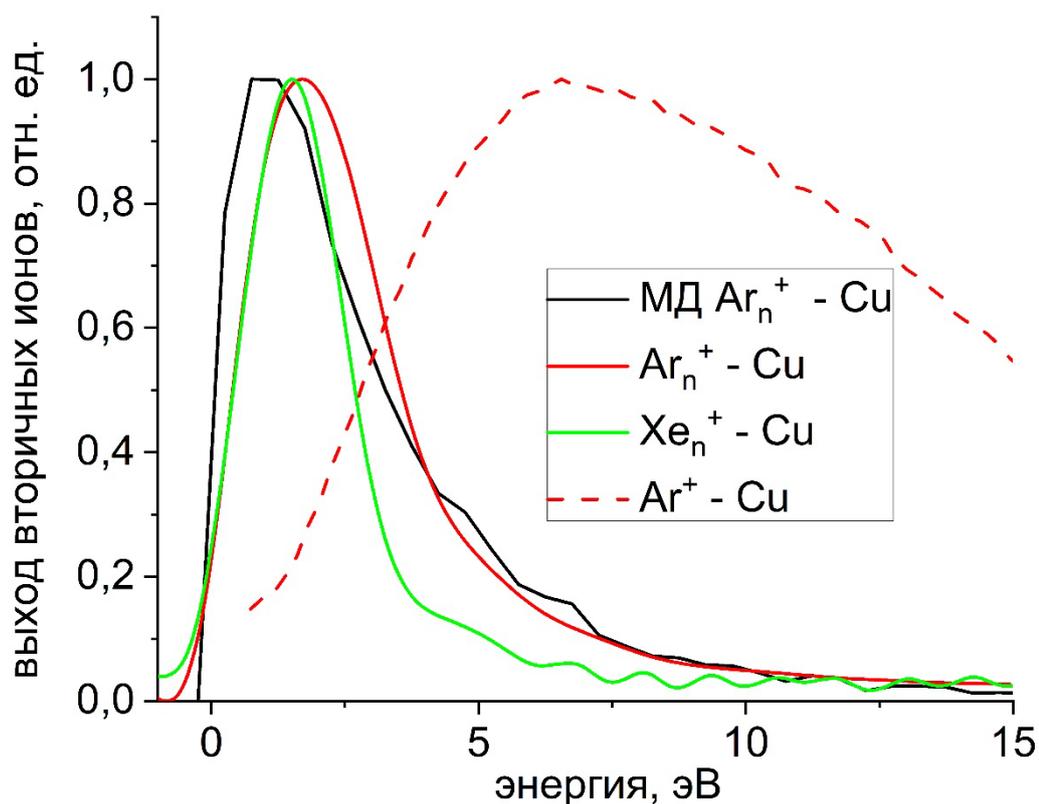


Рисунок 5.8. Энергетические распределения положительных вторичных ионов меди, распылённой Ar^+ , Ar_n^+ , Xe_n^+ с энергией 10 кэВ и рассчитанное из МД моделирования распределение атомов меди, распылённых кластерами Ar_n .

распределение хорошо согласуется с результатами работы [150]. Параметры полученных распределений для вторичных ионов меди, распылённых пучками кластерных ионов аргона и ксенона представлены в таблице 5.2. Энергетические распределения при кластерном облучении смещено в область более низких энергий по сравнению с облучением атомарными ионами, что подтверждает различие механизмов распыления в эти двух случаях.

Таблица 5.2. Параметры энергетических распределений вторичных ионов меди, распылённых пучков кластерных ионов Ar_n и Xe_n

	$E_{\text{макс}}$	Полуширина
Ar_n	1,7	3,15
Xe_n	1,5	2,29

Для сравнения с экспериментальными результатами из МД моделирования последовательности соударений кластеров аргона с поверхностью меди были рассчитаны энергетические распределения атомов, расплывённых в диапазоне полярных углов от 15° до 45° . Полученное распределение находится в хорошем согласии с экспериментальным. Максимум распределения, полученного из МД моделирования сдвинут в область меньших энергий. Это может быть связано с тем, что метод МД не учитывает процессы зарядового обмена и не может определить зарядовое состояние расплывённого атома. При этом в эксперименте вторичные ионы, обладающие большей энергией, эмитированы из области с более высокой температурой, и, согласно уравнению Саха, имеют более высокую вероятность ионизации, в результате чего спектр вторичных ионов может смещаться относительно спектра нейтральных расплывённых атомов в область больших энергий.

Стоит отметить, что, так как не производилась масс-сепарация частиц, попадающих в электростатический энергоанализатор, отражённые ионизованные атомы кластера также могли вносить вклад в измеренное распределение. Тем не менее, потенциал ионизации аргона более, чем на порядок, превышает потенциал ионизации меди, вследствие чего вероятность ионизации атома аргона в процессе взаимодействия гораздо ниже. На этом основании можно предположить, что вкладом ионов аргона в измеренное распределение можно пренебречь.

Выводы по главе 5.

- Энергетические распределения атомов, расплывённых газовыми кластерными ионами в диапазоне E/n от 10 до 100 эВ/атом могут быть описаны уравнением теории тепловых пиков Зигмунда-Клауссена.
- Температура ядра теплового пика линейно растёт с увеличением энергии на один атом кластера в диапазоне от 10 до 100 эВ/атом.

- Средняя энергия распылённых атомов монотонно убывает в зависимости от времени от начала соударения кластера с поверхностью, когда атом покидает твёрдое тело.
- Нанорельеф поверхности, формирующийся в процессе облучения пучком газовых кластерных ионов, приводит к увеличению эмиссии атомов низких энергий при малых углах по сравнению с распылением с идеальной поверхности.
- Рассчитанные с помощью МД моделирования энергетические распределения находятся в удовлетворительном согласии с экспериментально измеренными.

Заключение

В работе были измерены угловые распределения материала, распылённого с поверхности меди, молибдена и вольфрама пучком газовых кластерных ионов аргона, криптона и ксенона с энергией 10 кэВ. Угловое распределение меди, распылённой кластерными ионами аргона, хорошо согласуется с литературными данными и имеет «латеральный» вид. Угловое распределение вольфрама, распылённого кластерными ионами ксенона, имеет максимум в направлении нормали к поверхности мишени, и убывает с увеличением угла эмиссии. В остальных случаях вид угловых распределений также отличается от «латерального», значение углового распределения в направлении нормали к поверхности мишени сравнимо со значением в латеральном максимуме ($\theta = 50^\circ \div 70^\circ$).

По результатам МД моделирования распыления поверхности меди, молибдена и вольфрама кластерами аргона, криптона и ксенона была выявлена сильная зависимость угловых распределений распылённого материала от средней энергии на один атом кластера E/n в диапазоне от 10 эВ до 1 кэВ. При высоких значениях E/n максимум углового распределения наблюдается в направлении нормали к поверхности мишени. При малых значениях E/n наблюдается латеральное угловое распределение. При этом показано, что в диапазоне больших и малых E/n различается механизм распыления.

МД моделирование показало, что 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. Вклад кластеров малого размера в итоговые угловые распределения является одним из определяющих факторов, объясняющих различия в экспериментально измеренных угловых распределениях.

Ещё одним фактором, оказывающим влияние на угловые распределения распылённого материала, является нанорельеф, формирующийся в процессе

облучения кластерными ионами. С помощью МД моделирования показано, что при распылении молибдена ускоренными кластерами аргона, наличие нанорельефа поверхности приводит к увеличению эмиссии в направлении нормали к поверхности мишени. В случае распыления меди кластерами аргона влияние нанорельефа на итоговые угловые распределения оказывается ниже.

С помощью МД моделирования показано, что 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.

На основе МД моделирования также были рассчитаны энергетические распределения атомов меди и молибдена, распылённых кластерами аргона. С энергией 10 кэВ. Показано, что 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. Температура ядра теплового пика линейно растёт с увеличением энергии на один атом кластера в диапазоне от 10 до 100 эВ/атом. Также было показано, что нанорельеф поверхности, формирующийся в процессе облучения пучком газовых кластерных ионов, приводит к увеличению эмиссии атомов низких энергий при малых углах по сравнению с распылением с идеальной поверхности.

Также в работе было проведено экспериментальное измерение энергетических распределений вторичных ионов меди, распылённых пучком

кластерных ионов аргона и ксенона. Рассчитанные с помощью МД моделирования энергетические распределения находятся в удовлетворительном согласии с экспериментально измеренными. Для более детального сравнения рассчитанных и экспериментальных энергетических распределений необходимо проведения эксперимента с регистрацией расплывённых атомов вне зависимости от зарядового состояния. Важным направлением дальнейших исследований также является изучение зарядового состояния материала, расплывённого газовыми кластерными ионами

С помощью МД моделирования показано, что средняя энергия расплывённых атомов монотонно убывает в зависимости от времени от начала соударения кластера с поверхностью, когда атом покидает твёрдое тело, что также хорошо согласуется с моделью тепловых пиков. Однако для корректного описания взаимодействия газовых кластерных ионов с поверхностью твёрдого тела необходимо учитывать конечность скорости передачи энергии кластера атомам мишени, особенно в случае малых значений E/n . Более того, нужно учитывать нецилиндрическую геометрию теплового пика в случае облучения кластерными ионами, а также давление кластера на стенки формирующегося кратера. Разработка аналитической модели взаимодействия кластерных ионов с поверхностью твёрдого тела является важным направлением для дальнейших работ.

Список используемых сокращений и обозначений

ВИМС	–	вторичная ионная масс-спектрометрия
МКП	–	микроканальная пластина
МД	–	молекулярная динамика
РОР	–	резерфордское обратное рассеяние
РФЭС	–	рентгеновская фотоэлектронная спектроскопия
DFT	–	теория функционала плотности
EAM	–	модель погруженного атома
ZBL	–	Ziegler-Biersack-Littmark

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. Hagen O.F., Obert W. Cluster Formation in Expanding Supersonic Jets: Effect of Pressure, Temperature, Nozzle Size, and Test Gas // J Chem Phys. 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. Johnston R.L. *Atomic and Molecular Clusters*. CRC Press, 2002.
18. Becker E.W., Bier K., Henkes W. Strahlen aus kondensierten Atomen und Molekeln im Hochvakuum // *Zeitschrift für Physik*. Springer-Verlag, 1956. Vol. 146, № 3. P. 333–338.
19. Henkes W. Ionisierung und Beschleunigung kondensierter Molekularstrahlen // *Zeitschrift für Naturforschung A*. 1961. Vol. 16. P. 842.
20. Henkes W. Massenspektrometrische Untersuchung von Strahlen aus kondensiertem Wasserstoff // *Zeitschrift für Naturforschung A*. 1962. Vol. 17. P. 786–789.
21. Hagena O.F. Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows // *Surf Sci*. 1981. Vol. 106, № 1–3. P. 101–116.
22. Crist S., Glass D.R., Sherman P.M. Study of the highly underexpanded sonic jet. // *AIAA Journal*. 1966. Vol. 4, № 1. P. 68–71.

23. Ieshkin A.E. et al. Visualization of supersonic flows with bow shock using transversal discharges // *J Vis (Tokyo)*. Springer Verlag, 2019. Vol. 22, № 4. P. 741–750.
24. Hagena O.F., Chem Phys J. Cluster ion sources (invited) // *Review of Scientific Instruments*. AIP Publishing, 1992. Vol. 63, № 4. P. 2374–2379.
25. Korobeishchikov N.G., Roenko M.A., Tarantsev G.I. Mean Gas Cluster Size Determination from Cluster Beam Cross-Section // *J Clust Sci*. Springer New York LLC, 2017. Vol. 28, № 5. P. 2529–2547.
26. Wörmer J. et al. Optical properties of argon clusters in the VUV // *Phys Scr*. IOP Publishing, 1990. Vol. 41, № 4. P. 490.
27. Echt O. et al. Mass spectrometric size analysis of N₂O-clusters // *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*. Springer-Verlag, 1983. Vol. 53, № 1. P. 71–74.
28. Korobeishchikov N.G., Nikolaev I. V, Roenko M.A. Diagnostics of argon cluster ion beam for materials treatment // *J Phys Conf Ser*. 2018. Vol. 1115. P. 032016.
29. Söderlund J. et al. Lognormal Size Distributions in Particle Growth Processes without Coagulation // *Phys Rev Lett*. 1998. Vol. 80, № 11. P. 2386–2388.
30. Bobbert C. et al. Fragmentation and reliable size distributions of large ammonia and water clusters // *The European Physical Journal D*. 2002. Vol. 19, № 2. P. 183–192.
31. Rupp D. et al. Generation and structure of extremely large clusters in pulsed jets // *J Chem Phys*. 2014. Vol. 141, № 4. P. 044306.
32. Yamada I. Gas Cluster Ion Beam Equipment // *Materials Processing by Cluster Ion Beams*. CRC Press, 2015. P. 102–131.
33. Toyoda N., Yamada I. Gas Cluster Ion Beam Technology for Nano-Fabrication // *Smart & Adaptive Optics*. 2012. Vol. 82. P. 1–8.
34. Seki T. et al. Generation of the large current cluster ion beam // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 2003. Vol. 206. P. 902–906.

35. Toyoda N., Yamada I. Evaluation of charge state of gas cluster ions by means of individual crater observations // Nucl Instrum Methods Phys Res B. Elsevier B.V., 2013. Vol. 307. P. 269–272.
36. Swenson D.R. Measurement of averages of charge, energy and mass of large, multiply charged cluster ions colliding with atoms // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2004. Vol. 222, № 1–2. P. 61–67.
37. Swenson D.R. Analysis of charge, mass and energy of large gas cluster ions and applications for surface processing // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2005. Vol. 241, № 1–4. P. 599–603.
38. Rauth T., Grill V., Märk T.D. Production and identification of saturated hydrocarbon cluster dications // Int J Mass Spectrom Ion Process. 1994. Vol. 139. P. 147–154.
39. Toyoda N., Houzumi S., Yamada I. Development of size-selected cluster ion irradiation system // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2006. Vol. 242, № 1–2. P. 466–468.
40. Ichiki K. et al. Sputtering Properties of Si by Size-Selected Ar Gas Cluster Ion Beam // Transactions of the Materials Research Society of Japan. 2010. Vol. 35, № 4. P. 789–792.
41. Ohwaki K. et al. Development of a new cluster size selector // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2005. Vol. 241, № 1–4. P. 614–617.
42. Labastie P., Doy M. A high mass range quadrupole spectrometer for cluster studies // Int J Mass Spectrom Ion Process. 1989. Vol. 91, № 2. P. 105–112.
43. Соловьев А.В., Толстогузов А.Б. Определение ионно-оптических характеристик фильтра Вина с однородными ортогональными полями // ЖТФ. 1987. Vol. 57, № 5. P. 953–959.
44. Popok V.N. et al. Clustersurface interaction: From soft landing to implantation // Surf Sci Rep. Elsevier B.V., 2011. Vol. 66, № 10. P. 347–377.
45. Sigmund P. COLLISION CASCADES AND SPUTTERING INDUCED BY LARGER CLUSTER IONS // Journal de Physique Colloques. 1989. Vol. 50, № C2. P. 175–182.

46. Sigmund P. Interplay between computer simulation and transport theory in the analysis of ion-beam-induced collision processes in solids // *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*. American Vacuum Society AVS, 1998. Vol. 7, № 3. P. 585.
47. Pan Z., Sigmund P. Interaction of slow (100 eV/atom) carbon clusters with gold: Penetration properties and collision cascades // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 1990. Vol. 51, № 4. P. 344–353.
48. Shulga V.I., Sigmund P. Penetration of slow gold clusters through silicon // *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B*. 1990. Vol. 47, № 3. P. 236–242.
49. Shulga V.I., Sigmund P. Interaction of slow (100 eV/atom) copper clusters with thin gold films: reflection, transmission, and sputtering at normal and oblique incidence // *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B*. 1991. Vol. 62, № 1. P. 23–34.
50. Yamamura Y. Sputtering by cluster ions // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 1988. Vol. 33, № 1–4. P. 493–496.
51. Yamamura Y. Computer simulation of ionized cluster beam bombardment on a carbon substrate // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 1990. Vol. 45, № 1–4. P. 707–713.
52. Allen L.P. et al. Craters on silicon surfaces created by gas cluster ion impacts // *J Appl Phys*. 2002. Vol. 92, № 7. P. 3671–3678.
53. Birtcher R.C., Matsuo J., Yamada I. Craters produced on Al, Cu and Au by Ar cluster impacts // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. 2001. Vol. 175–177. P. 36–39.
54. Prasalovich S. et al. Experimental studies of complex crater formation under cluster implantation of solids // *European Physical Journal D*. 2005. Vol. 36, № 1. P. 79–88.
55. Popok V.N. et al. Formation of surface nanostructures on rutile (TiO₂): Comparative study of low-energy cluster ion and high-energy monoatomic ion impact // *J Phys D Appl Phys*. 2009. Vol. 42, № 20.

56. Samela J., Nordlund K. Atomistic simulation of the transition from atomistic to macroscopic cratering // *Phys Rev Lett*. American Physical Society, 2008. Vol. 101, № 2. P. 027601.
57. Anders C. et al. Cluster-induced crater formation // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. Elsevier B.V., 2009. Vol. 267, № 18. P. 3122–3125.
58. Anders C. et al. Crater formation caused by nanoparticle impact: A molecular dynamics study of crater volume and shape // *Phys Rev B Condens Matter Mater Phys*. 2012. Vol. 85, № 23. P. 1–14.
59. Djurabekova F. et al. Crater formation by single ions, cluster ions and ion “showers” // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. 2012. Vol. 272. P. 374–376.
60. Aoki T. et al. Study of crater formation and sputtering process with large gas cluster impact by molecular dynamics simulations // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 2009. Vol. 267, № 8–9. P. 1424–1427.
61. Aoki T., Seki T., Matsuo J. Molecular dynamics simulations for gas cluster ion beam processes // *Vacuum*. 2010. Vol. 84, № 8. P. 994–998.
62. Aoki T. Molecular Dynamics Simulation of Cluster Ion Impact on Solid Surface. 2000. № January.
63. Nordlund K. et al. Cluster ion-solid interactions from meV to MeV energies // *Appl Phys A Mater Sci Process*. Springer, 2008. Vol. 91, № 4. P. 561–566.
64. Sigmund P. Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets // *Physical Review*. 1969. Vol. 184, № 2. P. 383–416.
65. Sigmund P. Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets // *Physical Review*. 1969. Vol. 187, № 2. P. 768–768.
66. Распыление твёрдых тел ионной бомбардировкой. Выпуск 1: Физическое распыление одноэлементных твердых тел. / ed. Бериш Р. Москва: Мир, 1984.
67. *Sputtering by Particle Bombardment III* / ed. Behrisch R., Wittmaack K. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1991. Vol. 64.
68. Sigmund P., Claussen C. Sputtering from elastic-collision spikes in heavy-ion-bombarded metals // *J Appl Phys*. 1981. Vol. 52, № 2. P. 990–993.

69. Döbeli M. et al. Sputtering and defect production by focused gold cluster ion beam irradiation of silicon // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 1997. Vol. 132, № 4. P. 571–577.
70. Andersen H.H. et al. Giant Metal Sputtering Yields Induced by 20–5000 keV/atom Gold Clusters // Phys Rev Lett. 1998. Vol. 80, № 24. P. 5433–5436.
71. Matsuo J. et al. Sputtering of elemental metals by Ar cluster ions // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 1997. Vol. 121, № 1–4. P. 459–463.
72. Insepov Z., Yamada I. Surface processing with ionized cluster beams: computer simulation // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 1999. Vol. 153, № 1–4. P. 199–208.
73. Matsuo J. et al. Size effect in cluster collision on solid surfaces // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2007. Vol. 257, № 1-2 SPEC. ISS. P. 627–631.
74. Seki T., Murase T., Matsuo J. Cluster size dependence of sputtering yield by cluster ion beam irradiation // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2006. Vol. 242, № 1–2. P. 179–181.
75. Nakamura K. et al. Cluster size dependences of bombardment effects using mass-selected gas cluster ion beams // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2007. Vol. 261, № 1-2 SPEC. ISS. P. 660–663.
76. Toyoda N., Yamada I. Size effects of gas cluster ions on beam transport, amorphous layer formation and sputtering // Nucl Instrum Methods Phys Res B. Elsevier B.V., 2009. Vol. 267, № 8–9. P. 1415–1419.
77. Anders C., Urbassek H.M., Johnson R.E. Linearity and additivity in cluster-induced sputtering: A molecular-dynamics study of van der Waals bonded systems // Phys Rev B. 2004. Vol. 70, № 15. P. 155404.
78. Yang L., Seah M.P., Gilmore I.S. Sputtering yields for gold using argon gas cluster ion beams // Journal of Physical Chemistry C. 2012. Vol. 116, № 44. P. 23735–23741.
79. Seah M.P. Universal equation for argon gas cluster sputtering yields // Journal of Physical Chemistry C. 2013. Vol. 117, № 24. P. 12622–12632.

80. Seah M.P. Argon cluster size-dependence of sputtering yields of polymers: molecular weights and the universal equation // *Surface and Interface Analysis*. 2015. Vol. 47, № 1. P. 169–172.
81. Paruch R.J. et al. On Universality in Sputtering Yields Due to Cluster Bombardment // *J Phys Chem Lett*. 2014. Vol. 5, № 18. P. 3227–3230.
82. Paruch R.J., Postawa Z., Garrison B.J. Seduction of Finding Universality in Sputtering Yields Due to Cluster Bombardment of Solids // *Acc Chem Res*. 2015. Vol. 48, № 9. P. 2529–2536.
83. Paruch R.J., Postawa Z., Garrison B.J. Physical basis of energy per cluster atom in the universal concept of sputtering // *Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena*. 2016. Vol. 34, № 3. P. 03H105.
84. Kitani H. et al. Incident angle dependence of the sputtering effect of Ar-cluster-ion bombardment // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. 1997. Vol. 121, № 1–4. P. 489–492.
85. Sumie K., Toyoda N., Yamada I. Surface morphology and sputtering yield of SiO₂ with oblique-incidence gas cluster ion beam // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. Elsevier B.V., 2013. Vol. 307. P. 290–293.
86. Korobeishchikov N.G. et al. Precise sputtering of silicon dioxide by argon cluster ion beams // *Applied Physics A*. 2018. Vol. 124, № 12. P. 833.
87. Rzeznik L. et al. Erosion of Ag surface by continuous irradiation with slow, large Ar clusters // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. Elsevier B.V., 2011. Vol. 269, № 14. P. 1586–1590.
88. Yamada I. 20 Years History of Fundamental Research on Gas Cluster Ion Beams, and Current Status of the Applications To Industry // *AIP Conf Proc*. 2006. Vol. 866, № 2006. P. 147–154.
89. Hofer W.O., Bay H.L., Martin P.J. Sputter-erosion and impurity emission from titanium and vanadium at low-energy ion bombardment // *Journal of Nuclear Materials*. North-Holland, 1978. Vol. 76–77, № C. P. 156–162.

90. Emmoth B., Fried T., Braun M. Angular distributions of sputtered Mo and Ag during He⁺ and Ar⁺ ion bombardment // *Journal of Nuclear Materials*. North-Holland, 1978. Vol. 76–77, № C. P. 129–135.
91. Andersen H.H. et al. Angular distribution of particles sputtered from Cu, Pt and Ge targets by keV Ar⁺ ion bombardment // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 1985. Vol. 6, № 3. P. 459–465.
92. Andersen H.H. et al. Transients in the composition of material sputtered from alloy targets // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 1984. Vol. 2, № 1–3. P. 601–605.
93. Sekowski M., Burenkov A., Ryssel H. 2D Angular distributions of ion sputtered germanium atoms under grazing incidence // *Microelectron Eng*. Elsevier, 2010. Vol. 87, № 5–8. P. 1497–1499.
94. Burenkov A. et al. Angular distributions of sputtered silicon at grazing gallium ion beam incidence // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 2012. Vol. 272. P. 23–27.
95. Chernysh V.S., Patrakeev A.S. Angular distribution of atoms sputtered from alloys // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 2012. Vol. 270, № 1. P. 50–54.
96. Marenkov E. et al. Angular and velocity distributions of tungsten sputtered by low energy argon ions // *Journal of Nuclear Materials*. North-Holland, 2017. Vol. 496. P. 18–23.
97. Ieshkin A.E., Ermakov Y.A., Chernysh V.S. Angular distributions of particles sputtered from multicomponent targets with gas cluster ions // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. Elsevier B.V., 2015. Vol. 354. P. 226–229.
98. Becerra-Acevedo R. et al. Spherical angular distribution of atoms sputtered with energetic deuterium at grazing incidence // *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. North-Holland, 1984. Vol. 2, № 1–3. P. 631–634.
99. Linders J., Niedrig H., Sternberg M. Undistorted measurements of differential sputtering yields using the collector method by means of electron

- backscattering // Nucl Instrum Methods Phys Res B. North-Holland, 1984. Vol. 2, № 1–3. P. 649–654.
100. Hofer W.O. Distortion of sputtering spot patterns of single crystals due to incomplete condensation // <http://dx.doi.org/10.1080/00337577408241453>. Taylor & Francis Group, 2006. Vol. 21, № 3. P. 141–144.
 101. Orlinov V. et al. Angular distribution and sputtering yield of Al and Al₂O₃ during 40 keV argon ion bombardment // Vacuum. Pergamon, 1982. Vol. 32, № 12. P. 747–752.
 102. Ieshkin A.E., Ermakov Y.A., Chernysh V.S. Angular distributions of particles sputtered from multicomponent targets with gas cluster ions // Nucl Instrum Methods Phys Res B. North-Holland, 2015. Vol. 354. P. 226–229.
 103. Chernysh V.S. et al. Interaction of gas cluster ions with solids: Experiment and computer simulations // Surf Coat Technol. Elsevier, 2020. Vol. 388. P. 125608.
 104. Ieshkin A.E. et al. Gas-dynamic sources of cluster ions for basic and applied research // Uspekhi Fizicheskikh Nauk. 2022. Vol. 192, № 07. P. 722–753.
 105. Hagena O.F. Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows // Surf Sci. North-Holland, 1981. Vol. 106, № 1–3. P. 101–116.
 106. Korobeishchikov N.G. et al. Features of formation of gas cluster ion beams // Vacuum. Elsevier Ltd, 2015. Vol. 119. P. 256–263.
 107. 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.
 108. Märk T.D., Scheier P. Stability of multiply-charged cluster and fullerene ions // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 1995. Vol. 98, № 1–4. P. 469–478.
 109. Балакшин Ю.В. et al. In situ модификация и анализ состава и кристаллической структуры кремниевой мишени с помощью ионно-пучковых методик // Журнал технической физики. Ioffe Institute Russian Academy of Sciences, 2018. Vol. 88, № 12. P. 1900.

110. Шемухин А.А. et al. Ионно-пучковые методики ускорительного комплекса HVЕЕ-500 НИИЯФ МГУ // Прикладная физика. 2013. Vol. 5. P. 59–62.
111. Ziegler J.F., Ziegler M.D., Biersack J.P. SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010) // Nucl Instrum Methods Phys Res B. North-Holland, 2010. Vol. 268, № 11–12. P. 1818–1823.
112. <http://srim.org/> [Electronic resource].
113. Robinson M.T., Torrens I.M. Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation // Phys Rev B. American Physical Society, 1974. Vol. 9, № 12. P. 5008.
114. Rapaport D.C. The Art of Molecular Dynamics Simulation. 2nd ed. Cambridge University Press, 2004.
115. <https://www.lammps.org/> [Electronic resource].
116. 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.
117. 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.
118. Kittel C. Introduction to Solid State Physics. Third. New York: John Wiley & Sons, 1968.
119. 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.
120. Nordlund K., Djurabekova F., Hobler G. Large fraction of crystal directions leads to ion channeling // Phys Rev B. American Physical Society, 2016. Vol. 94, № 21. P. 214109.
121. Mayer M. SIMNRA, a simulation program for the analysis of NRA, RBS and ERDA // AIP Conf Proc. American Institute of Physics AIP, 2008. Vol. 475, № 1. P. 541.

122. Sirotkin V. v. Molecular-Dynamics Simulation of the Interaction of Argon Cluster Ions with Titanium Surface // Journal of Surface Investigation. Pleiades Publishing, 2020. Vol. 14, № 2. P. 292–297.
123. Daw M.S., Foiles S.M., Baskes M.I. The embedded-atom method: a review of theory and applications // Materials Science Reports. Elsevier, 1993. Vol. 9, № 7–8. P. 251–310.
124. Finnis M.W., Sinclair J.E. A simple empirical N-body potential for transition metals // Taylor & Francis Group, 2006. Vol. 50, № 1. P. 45–55.
125. Daw M.S., Baskes M.I. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals // Phys Rev B. American Physical Society, 1984. Vol. 29, № 12. P. 6443.
126. Daw M.S., Baskes M.I. Semiempirical, Quantum Mechanical Calculation of Hydrogen Embrittlement in Metals // Phys Rev Lett. American Physical Society, 1983. Vol. 50, № 17. P. 1285.
127. Hohenberg P., Kohn W. Inhomogeneous electron gas // Physical Review. American Physical Society, 1964. Vol. 136, № 3B. P. B864.
128. Kohn W., Sham L.J. Self-consistent equations including exchange and correlation effects // Physical Review. American Physical Society, 1965. Vol. 140, № 4A. P. A1133.
129. Clementi E., Roetti C. Roothaan-Hartree-Fock atomic wavefunctions: Basis functions and their coefficients for ground and certain excited states of neutral and ionized atoms, $Z \leq 54$ // At Data Nucl Data Tables. Academic Press, 1974. Vol. 14, № 3–4. P. 177–478.
130. McLean A.D., McLean R.S. Roothaan-Hartree-Fock atomic wave functions Slater basis-set expansions for $Z = 55–92$ // At Data Nucl Data Tables. Academic Press, 1981. Vol. 26, № 3–4. P. 197–381.
131. 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.

132. 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.
133. 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.
134. Berendsen H.J.C. et al. Molecular dynamics with coupling to an external bath // *J Chem Phys*. American Institute of Physics AIP, 1998. Vol. 81, № 8. P. 3684.
135. Sadovnichy V.A., Tikhonravov A.V., Voevodin V.I. “ Lomonosov”: Supercomputing at Moscow State University // *Contemporary high performance computing: From petascale toward exascale*. 2013. P. 283–307.
136. Voevodin V. V. et al. Supercomputer Lomonosov-2: Large Scale, Deep Monitoring and Fine Analytics for the User Community // *Supercomput Front Innov*. FSAEIH South Ural State University (National Research University), 2019. Vol. 6, № 2. P. 4–11.
137. Zeng X. et al. Sputtering of silicon nanopowders by an argon cluster ion beam // *Beilstein Journal of Nanotechnology* 10:13. Beilstein-Institut, 2019. Vol. 10, № 1. P. 135–143.
138. Harris I.A. et al. Icosahedral structure of large charged argon clusters // *Chem Phys Lett*. North-Holland, 1986. Vol. 130, № 4. P. 316–320.
139. Miehle W. et al. Mass spectrometric evidence for icosahedral structure in large rare gas clusters: Ar, Kr, Xe // *J Chem Phys*. American Institute of Physics AIP, 1998. Vol. 91, № 10. P. 5940.
140. Van De Waal B.W., Torchet G., De Feraudy M.F. Structure of large argon clusters $\text{Ar}_N, 103 < N < 105$: experiments and simulations // *Chem Phys Lett*. North-Holland, 2000. Vol. 331, № 1. P. 57–63.
141. Peltola J., Nordlund K. Heat spike effect on the straggling of cluster implants // *Phys Rev B*. American Physical Society, 2003. Vol. 68, № 3. P. 035419.

142. Heck C. et al. ITO surface smoothing with argon cluster ion beam // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2006. Vol. 242, № 1–2. P. 140–142.
143. Chen H. et al. Smoothing of ZnO films by gas cluster ion beam // Nucl Instrum Methods Phys Res B. 2005. Vol. 241, № 1–4. P. 630–635.
144. Ieshkin A.E. et al. The quantitative analysis of silicon carbide surface smoothing by Ar and Xe cluster ions // Nucl Instrum Methods Phys Res B. Elsevier, 2018. Vol. 421, № February. P. 27–31.
145. Иешкин А.Е. et al. Полировка поверхности сверхтвердых материалов пучками газовых кластерных ионов // Письма в журнал технической физики. 2017. Vol. 43, № 2. P. 18.
146. Korobeishchikov N.G., Nikolaev I. V., Roenko M.A. Effect of argon cluster ion beam on fused silica surface morphology // Nucl Instrum Methods Phys Res B. North-Holland, 2019. Vol. 438. P. 1–5.
147. Sigmund P. Erratum: Energy density and time constant of heavy-ion-induced elastic-collision spikes in solids // Appl Phys Lett. 1975. Vol. 27, № 1. P. 52–52.
148. Nordlund K., Runeberg N., Sundholm D. Repulsive interatomic potentials calculated using Hartree-Fock and density-functional theory methods // Nucl Instrum Methods Phys Res B. North-Holland, 1997. Vol. 132, № 1. P. 45–54.
149. <https://simion.com/>
150. Bukhanov V.M. et al. Secondary ion emission during sputtering of polycrystalline copper // Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics. 1989. Vol. 69, № 4. P. 853–857.