

02.2;04.1;13.3

Упругое рассеяние атома рутения на атомах Si и O в диапазоне относительных кинетических энергий 2–200 eV

© А.П. Палов

Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д.В. Скобельцына
Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия
E-mail: a.palov@mail.ru

Поступило в Редакцию 13 февраля 2023 г.

В окончательной редакции 4 марта 2023 г.

Принято к публикации 6 марта 2023 г.

Технологии производства межслойных соединений нового поколения предполагают использование рутения. Высокая стоимость экспериментального изучения распыления и травления тренчей в Ru приводит к необходимости его оптимизации путем моделирования, требующего знания сечений элементарных процессов взаимодействия плазменных частиц с Ru. Бинарные межатомные потенциалы Ru–Ru и Ru–Si, апробированные методом молекулярной динамики, и Ru–O, рассчитанный с помощью метода многоконfigurационного взаимодействия MRCI/AV5Z использованы нами для расчета сечений упругого рассеяния атомов в диапазоне энергий, типичных для плазменного травления.

Ключевые слова: рутений, упругое сечение рассеяния, распыление, бинарный потенциал.

DOI: 10.21883/PJTF.2023.09.55321.19530

Рутений — один из главных кандидатов на замену меди в технологии создания межслойных соединений следующего поколения [1]. Преимуществом рутения перед медью являются, во-первых, более низкое электрическое сопротивление на нанометровых масштабах и, во-вторых, отсутствие необходимости использовать барьерный слой в диэлектриках, что позволяет (хотя бы частично) применять более экономичные технологии, разработанные для алюминия, т.е. до появления межслойных соединений на основе меди [2].

Прямое травление рутения проводят в плазме аргона, кислорода и хлора, в результате чего рутений удаляется, главным образом в виде летучего соединения RuO₄ [3]. В качестве маски используются соединения кремния, например SiO₂ [4]. И хотя моделирование плазмы Ar/O₂/Cl₂ уже проводилось [5], модели травления, учитывающие как распыление рутения в данной плазме, так и само химическое травление, в литературе отсутствуют.

Для описания распыления методом Монте-Карло [6] необходимы дифференциальные и интегральные сечения упругого рассеяния атомов (ДСУР и ИСУР соответственно), первые используются для описания изменения направления движения частицы после столкновения, а вторые — для определения длины свободного пробега

Параметры бинарных потенциалов в уравнении (1) для пар Ru–Ru и Ru–Si [7]

Атомная пара	D_0	S	R	D	β	R_0
Ru–Ru	3.5739	1.3923	4.7770	0.2617	1.4795	2.1189
Ru–Si	4.0886	1.8837	1.8818	0.7751	1.7812	2.1769

частицы до столкновения. Цель настоящей работы — расчет квантово-механических ДСУР и ИСУР для пар атомов, состоящих из Ru, Si и O.

Для ее реализации мы используем бинарную часть эмпирических трехчастичных потенциалов, подтвердивших свою надежность при описании методом молекулярной динамики физических свойств пленок карбида кремния с внедренными атомами рутения [7]. В этой работе для описания траектории движения рутения использовались

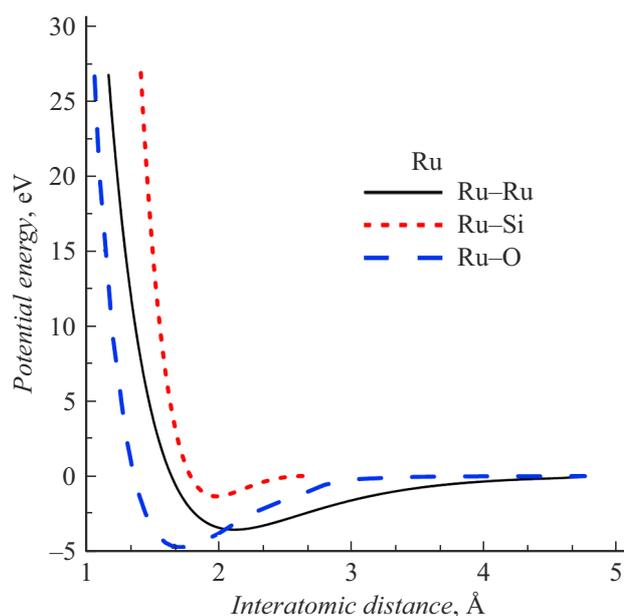


Рис. 1. Кривые потенциальной энергии атомных пар Ru–Ru, Ru–Si и Ru–O как функции межатомного расстояния.

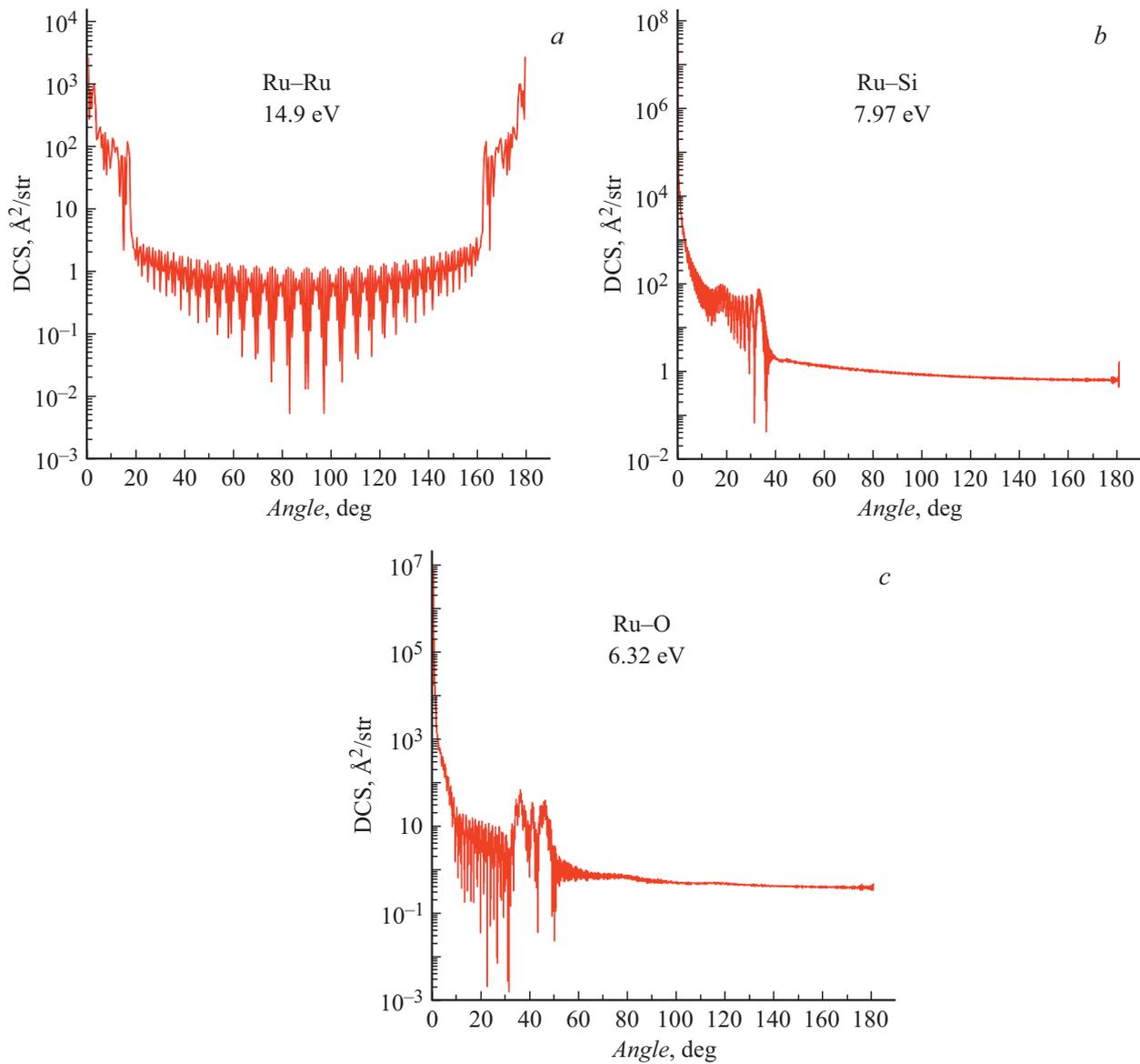


Рис. 2. Зависимости от θ ДСУР атомных пар Ru–Ru (a), Ru–Si (b) и Ru–O (c) для $E = 14.9, 7.97$ и 6.32 eV соответственно.

бинарные потенциалы атомных пар Ru–Ru и Ru–Si

$$V(r) = \frac{D_0 f}{S-1} \left\{ \exp(-\beta\sqrt{2S}(r-R_0)) - S \exp(-\beta\sqrt{2/S}(r-R_0)) \right\},$$

$$f = \begin{cases} 1, & r \leq R-D, \\ 0.5 \left(1 - \sin\left(\frac{\pi}{2} \frac{r-R}{D}\right) \right), & |R-r| \leq D, \\ 0, & R+D < r, \end{cases} \quad (1)$$

где параметры D_0 , S , R , D , β и R_0 приведены в таблице. Потенциал дается в eV, расстояние — в Å.

Для пары же Ru–O использовалось основное состояние $X^5\Delta$ молекулы RuO, рассчитанное на основе метода многоконfigurационного взаимодействия

(MRCI) с базисным набором aug-cc-pV5Z-PP (Ru) и aug-cc-pV5Z (O) [8]. На рис. 1 приведены потенциалы, использованные в настоящей работе для пар Ru–Ru, Ru–Si и Ru–O. Все три потенциала притягивающие, с ямами разной глубины и различным равновесным расстоянием R_e : 3.574 eV и $R_e = 2.123$ Å для пар Ru–Ru, 1.352 eV и $R_e = 1.984$ Å для пар Ru–Si, 4.734 eV и $R_e = 1.703$ Å для пар Ru–O.

Значения фазовых сдвигов $\delta_l(E)$ рассчитывались точно с помощью метода фазовых функций [9,10] для энергий относительного движения атомов $E = 2-20$ eV и с помощью WKB-приближения для энергий $20-200$ eV. Расчеты прекращались при достижении значения $\delta_l(E) = 0.001$ rad, что соответствовало максимальным орбитальным квантовым числам $l_{\max} = 10787$ для пар Ru–Ru, $l_{\max} = 3721$ для пар Ru–Si и $l_{\max} = 4539$ для

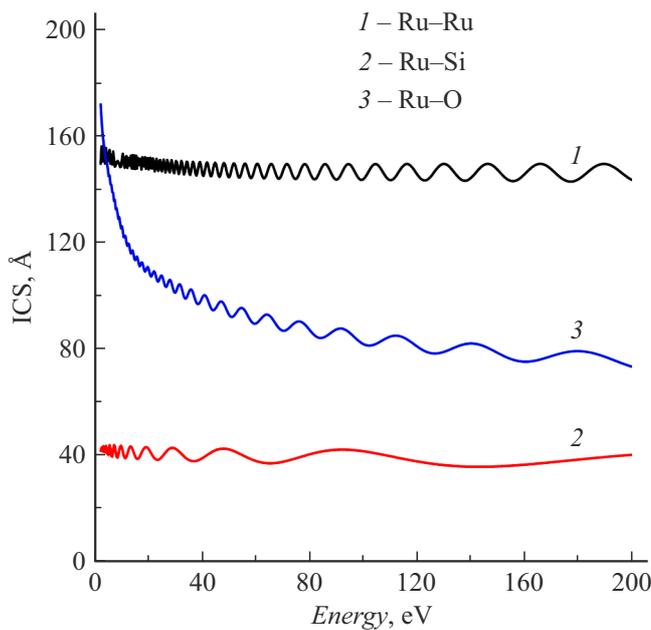


Рис. 3. ИСУР атомных пар Ru–Ru, Ru–Si и Ru–O в зависимости от E .

пар Ru–O для верхней энергетической границы 200 eV. Затем ДСУР и ИСУР рассчитывались на основе полученных сдвигов фаз $\delta_l(E)$.

В системе центра масс (ЦМ) ДСУР атомных пар Ru–O и Ru–Si рассчитывались по формуле [11]:

$$\frac{d\sigma_{CM}}{d\Omega}(E, \theta) = \left| \sum_{l=0}^{\infty} \frac{2l+1}{k} e^{i\delta_l(E)} \sin \delta_l(E) P_l(\cos \theta) \right|^2. \quad (2)$$

Здесь $P_l(\cos \theta)$ — l -й полином Лежандра, θ — угол рассеяния в системе ЦМ молекулы Ru–O, E — кинетическая энергия относительного движения атомов Ru и O, а соответствующий волновой вектор $k = \{2\mu_{RuO}E/\hbar^2\}^{1/2}$ (μ_{RuO} — приведенная масса молекулы Ru–O). Аналогичные расчеты проводились для молекулы Ru–Si.

Для описания рассеяния пар тождественных атомов Ru–Ru в системе ЦМ использовалось выражение [11]:

$$\frac{d\sigma_{CM}}{d\Omega}(E, \theta) = 2 \left| \sum_{l=0,2,4,\dots}^{\infty} \frac{2l+1}{k} e^{i\delta_l(E)} \sin \delta_l(E) P_l(\cos \theta) \right|^2, \quad (3)$$

где обозначения для E , k , θ и μ имеют тот же смысл, что и в уравнении (2). ИСУР — интеграл (2), (3) по полярным ($0, \pi$) и азимутальным ($0, 2\pi$) углам.

Рис. 2 представляет ДСУР атомных пар Ru–Ru (a), Ru–Si (b) и Ru–O (c) для $E = 14.9, 7.97$ и 6.32 eV соответственно в зависимости от θ . Характерными особенностями рассчитанных ДСУР являются зеркальная симметрия относительно прямого угла для тождественных атомов (Ru–Ru на рис. 2, a) и локальные максимумы на рис. 2, $a-c$ при радужных углах $10-50^\circ$,

соответствующие положению сингулярности ДСУР в классической механике.

Рис. 3 представляет ИСУР атомных пар Ru–Ru, Ru–Si и Ru–O в зависимости от E . В целом рассчитанные ИСУР имеют лишь одну примечательную особенность — глори-осцилляции, число которых отвечает числу связанных состояний потенциалов атомных пар Ru–Ru, Ru–Si и Ru–O, а именно 185, 91 и 75 соответственно. Другие характерные черты ИСУР, например резонансы формы, на рисунке отсутствуют, поскольку характерны для энергий, заметно меньших нижнего предела рассматриваемого диапазона.

Резюмируя, заметим, что полученные значения ДСУР и ИСУР могут оказаться крайне полезными при моделировании распыления пленок рутения с типичными энергиями ионов плазмы $\sim 2-200$ eV.

Для расчетов фазовых сдвигов и сечений упругого рассеяния использовались программы, разработанные автором в НИИЯФ МГУ.

Благодарности

Автор благодарен Е. Miliordos (факультет химии и биологии Обернского университета, США) за *ab initio* расчеты потенциала RuO для межатомных расстояний, дополняющих результаты работы [8].

Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] S. Decoster, E. Camerotto, G. Murdoch, S. Kundu, Q.T. Le, Z. Tökei, G. Jurczak, F. Lazzarino, J. Vac. Sci. Technol. B, **40**, 032802 (2022). DOI: 10.1116/6.0001791
- [2] D. Gall, J. Appl. Phys., **127**, 050901 (2020). DOI: 10.1063/1.5133671
- [3] C.C. Hsu, J.W. Coburn, D.B. Graves, J. Vac. Sci. Technol. A, **24**, 1 (2006). DOI: 10.1116/1.212175
- [4] S. Paolillo, D. Wan, F. Lazzarino, N. Rassoul, D. Piumi, Z. Tökei, J. Vac. Sci. Technol. B, **36**, 03E103 (2018). DOI: 10.1116/1.5022283
- [5] C.C. Hsu, M.A. Nierode, J.W. Coburn, D.B. Graves, J. Phys. D: Appl. Phys., **39**, 3272 (2006). DOI: 10.1088/0022-3727/39/15/009
- [6] A.P. Palov, G.G. Balint-Kurti, E.N. Voronina, T.V. Rakhimova, J. Vac. Sci. Technol. A, **36**, 041303 (2018). DOI: 10.1116/1.5027387
- [7] N. Chen, Q. Peng, Z. Jiao, I. van Rooyen, W.F. Skerjanc, F. Gao, J. Phys.: Condens. Matter, **32**, 085702 (2020). DOI: 10.1088/1361-648X/ab5465
- [8] I.R. Ariyaratna, N.M.S. Almeida, E. Miliordos, Phys. Chem. Chem. Phys., **22**, 16072 (2020). DOI: 10.1039/D0CP02468F
- [9] Г.Ф. Друкарев, ЖЭТФ, **19**, 247 (1949).
- [10] A.P. Palov, G.G. Balint-Kurti, Comput. Phys. Commun., **263**, 107895 (2021). DOI: 10.1016/j.cpc.2021.107895
- [11] G.G. Balint-Kurti, A.P. Palov, *Theory of molecular collisions* (Royal Society of Chemistry, Cambridge, 2015).