

13.2;15.2

Нелинейные эффекты при распылении арсенида галлия и кремния кластерными ионами висмута

© А.Б. Толстогозов^{1–3}, П.А. Мажаров⁴, А.Е. Иешкин⁵, F. Meyer⁴, D.J. Fu³¹ Рязанский государственный радиотехнический университет им. В.Ф. Уткина, Рязань, Россия² Centre for Physics and Technological Research, Universidade Nova de Lisboa, Caparica, Portugal³ Key Laboratory of Artificial Micro- and Nanostructures of Ministry of Education and Hubei Key Laboratory of Nuclear Solid Physics, School of Physics and Technology, Wuhan University, Wuhan, China⁴ Raith GmbH, Dortmund, Germany⁵ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

E-mail: a.tolstoguzov@fct.unl.pt

Поступило в Редакцию 8 ноября 2021 г.

В окончательной редакции 1 декабря 2021 г.

Принято к публикации 2 декабря 2021 г.

Проведено экспериментальное исследование влияния энергии и количества атомов в бомбардирующих ионах Bi_n^+ ($n = 1-4$) на коэффициент распыления GaAs. Показано, что удельный коэффициент распыления Y_{sp} неаддитивно увеличивается с ростом n и кинетической энергии E_{sp} , приходящейся на один атом в бомбардирующем ионе, и эффективность передачи энергии от бомбардирующих ионов к атомам мишени также возрастает с ростом n . Проведено сравнение с полученными ранее результатами для Si-мишеней.

Ключевые слова: ионное распыление, коэффициент неаддитивности, кластерные ионы, висмут.

DOI: 10.21883/PJTF.2022.05.52150.19071

В настоящее время сфокусированные пучки атомных и кластерных ионов тяжелых металлов, в первую очередь Sn, Au, Pb и Bi, получаемые с помощью электрогидродинамических (жидкометаллических) ионных источников [1], используются для решения широкого круга фундаментальных и прикладных задач в микро- и нанотехнологиях, аэрокосмической технике и микрозондовом анализе. Применение кластерных ионов в ионно-лучевой литографии и наноструктурировании позволяет увеличить коэффициент распыления. Большое число работ (см., например, [2–8]) посвящено компьютерному моделированию процессов распыления и расчетам коэффициентов распыления. Вместе с тем публикаций об экспериментальных измерениях коэффициентов распыления кластерными ионами, а тем более данных о сравнительной эффективности распыления атомными и кластерными ионами в одинаковых экспериментальных условиях значительно меньше [9,10]. В нашей предыдущей работе [11] проведено исследование влияния энергии и количества атомов n в бомбардирующих ионах Bi_n^+ ($n = 1-4$) на коэффициент распыления Si. Было установлено, что удельный коэффициент распыления Y_{sp} , который показывает, сколько атомов мишени распыляется на один атом, входящий в состав кластерного иона, неаддитивно увеличивается с ростом n и кинетической энергии E_{sp} , приходящейся на один атом в бомбардирующем ионе. В качестве фактора неаддитивности k было предложено использовать тангенс угла наклона прямой линии, аппроксимирующей зависимость $Y_{sp}(n)$ при одинаковом значении E_{sp} . Для Si при облучении 10 keV ионами Bi_n^+ ($n = 1-4$) этот фактор оказался равным 0.4 ± 0.1 . В настоящей работе мы расширили круг

исследованных материалов за счет двухкомпонентного соединения GaAs — важного полупроводникового материала, третьего после кремния и германия по масштабам промышленного использования.

Эксперименты проводились на коммерческом ионно-лучевом литографе VELION (Raith Nanofabrication, Germany [12]), технические характеристики можно найти в [1]. Масс-сепарированные пучки атомных Bi^+ ($n = 1$) и кластерных ионов Bi_n^+ ($n = 2-4$) [13] направлялись по нормали к поверхности мишени. Ускоряющее напряжение изменялось в диапазоне 10–40 kV с шагом в 10 kV, при этом диаметр пучка на мишени для всех типов ионов не превышал 100 nm (FWHM), а ионный ток был в пределах 0.02–1 nA в зависимости от энергии и числа атомов в кластерном ионе. Долговременная стабильность ионного тока была лучше 1% за 7 h непрерывной работы, и величина ионного тока на мишени автоматически контролировалась каждые 10 s.

Полный коэффициент распыления Y определялся исходя из объема распыленного вещества V , равного произведению площади на глубину кратера, и полной дозы бомбардирующих ионов F_{ion} :

$$Y = \frac{VN}{F_{ion}}. \quad (1)$$

Здесь N — атомная плотность распыляемого вещества (мишени),

$$F_{ion} = \frac{It}{e}, \quad (2)$$

где I — ионный ток на мишени, t — время распыления, e — элементарный заряд.

Помимо полного коэффициента распыления Y мы определяли удельный коэффициент Y_{sp} (specific sputter yield), равный Y/n , т.е. в формуле (1) вместо полной ионной дозы использовалась полная доза бомбардирующих атомов $F_{at} = nF_{ion}$. Необходимо отметить, что в этом методе, получившем название Volume Loss Method (VLM) [14], серьезные требования предъявляются к колонне первичного ионного пучка (ионной пушке), которая должна генерировать остросфокусированные и масс-сепарированные пучки атомных и кластерных ионов с одинаковой энергией E_{sp} . Выполнение этого требования необходимо для надежного разделения вкладов в коэффициент распыления от энергии и от числа атомов в бомбардирующем ионе. Кроме того, плотность ионного тока и доза бомбардирующих частиц должны быть достаточными для формирования кратера, линейные размеры и глубину которого можно точно измерить с помощью профилометра. В наших экспериментах использовался контактный профилометр Veeco DEKTAK 150 с вертикальным разрешением 0.1 nm. Измерения проводились в трех точках, произвольно выбранных на дне каждого кратера, погрешность измерений не превышала ± 0.5 nm.

Всего было приготовлено 16 кратеров при облучении GaAs ионами Bi_n^+ ($n = 1-4$) с энергиями 10, 20, 30 и 40 keV для каждого типа ионов. Глубина и площадь кратеров составляли 65–1425 nm и 400–700 μm^2 соответственно. Для всех типов ионов и их энергий линейные размеры кратеров значительно превышали 100 диаметров ионного пучка, что вместе с быстрым сканированием этого пучка, направленного по нормали к поверхности мишени, обеспечивало формирование кратеров с вертикальными стенками и однородным дном. Кроме того, коэффициенты распыления атомарными ионами висмута оценивались с помощью программы TRIM [15], при этом состав образца выбирался равным номинальному, т.е. действовало приближение мишени, не возмущенной ионным облучением.

На рис. 1 представлены удельные коэффициенты распыления $Y_{sp}(n)$ арсенида галлия ионами Bi_n^+ ($n = 1-4$) в зависимости от энергии E_{sp} . По тангенсам углов наклона линейных аппроксимаций этих зависимостей можно судить об эффективности ионного распыления. Для GaAs значения тангенсов составили 0.19 (Bi^+) и 3.2 (Bi_4^+). Для сравнения в случае кремния эти величины равнялись 0.09 (Bi^+), 0.17 (Bi_2^+) и 0.25 (Bi_3^+) [11]. Полный коэффициент распыления Y в наших экспериментах для 40 keV ионов Bi_4^+ был равен 125 (GaAs) и 15 (Si) [11].

На рис. 2 представлены зависимости $Y_{sp}(n)$ для GaAs и Si при облучении ионами Bi_n^+ с энергией 10 keV/atom. Тангенсы углов наклона прямых линий, аппроксимирующих эти зависимости, равны 2.8 ± 0.2 и 20 (GaAs) и 0.4 ± 0.1 (Si) [11]. Мы использовали значения этих тангенсов в качестве факторов неаддитивности k , т.е. как количественную характеристику вклада нелинейных процессов в механизм(ы) распыления. Отметим, что в этом случае для вычисления k -

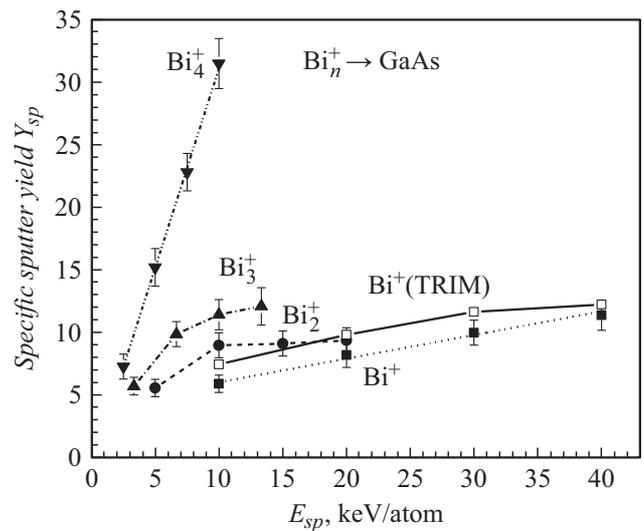


Рис. 1. Зависимости удельных коэффициентов распыления GaAs ионами Bi_n^+ ($n = 1-4$) от энергии, приходящейся на один атом в бомбардирующем ионе, и линейные аппроксимации этих зависимостей для Bi^+ и Bi_4^+ . Для сравнения приведена расчетная зависимость коэффициента распыления, полученная с помощью TRIM для ионов Bi^+ (сплошная линия со светлыми квадратами).

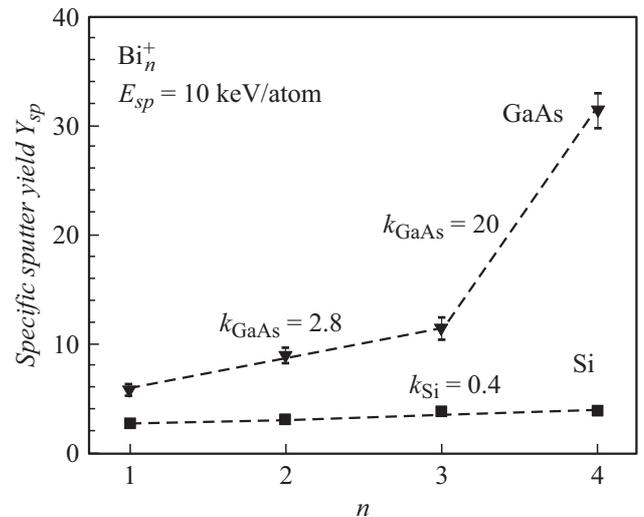


Рис. 2. Зависимости удельных коэффициентов распыления GaAs и Si [11] ионами Bi_n^+ с энергией 10 keV/atom от числа атомов n , входящих в состав кластерного иона. Значения факторов неаддитивности k , равные тангенсам углов наклона прямых, аппроксимирующих экспериментальные зависимости $Y_{sp}(n)$, приведены на поле рисунка.

фактора нет необходимости привлекать дополнительные компьютерные расчеты, как, например, это было сделано в [9].

В рамках краткого сообщения нет возможности детально обсудить все механизмы, ответственные за увеличение Y_{sp} с ростом числа атомов n в бомбардирующем ионе Bi_n^+ ($n = 1-4$) и удельной энергии E_{sp} . Вероятнее

всего, наибольший вклад вносят тепловые пики (thermal spikes) (см. работы [16,17] и ссылки в них), в объеме которых реализуется нелинейный режим распыления, сопровождаемый локальным плавлением и испарением вещества, причем эффективность этих процессов возрастает с ростом n и E_{sp} (рис. 1). Также было установлено (рис. 2), что при одинаковом значении E_{sp} увеличение числа атомов в бомбардирующем ионе ведет к неаддитивному росту Y_{sp} . Факторы неаддитивности k оказались существенно разными для материалов, исследованных в настоящей работе и [11]. Это может быть связано с ограничением размеров тепловых пиков в GaAs по сравнению с Si из-за меньших пробегов первичных ионов и атомов отдачи в этом материале. Также нельзя исключить влияние температурной проводимости, которая у GaAs более чем в 3 раза меньше, чем у Si [18], что может способствовать локализации тепловых пиков в меньших объемах, приводить к более высокой температуре и, как следствие, существенно влиять на распыление атомов мишени в нелинейном режиме.

Известно, что GaAs плавится, а затем испаряется инконгруэнтно (с разложением), а именно с образованием жидкого галлия и молекул газообразного мышьяка [19]. Вероятнее всего, изменение состава GaAs в объеме теплового пика оказывает влияние на зависимости $Y_{sp}(E_{sp})$, и для бомбардирующих ионов Bi_2^+ и Bi_3^+ по сравнению с Bi^+ и Bi_4^+ наблюдается переходный режим (рис. 1), который сопровождается изменением линейного характера зависимости $Y_{sp}(E_{sp})$. Резкое возрастание фактора неаддитивности при переходе к ионам Bi_4^+ (рис. 2) также может быть следствием возрастания влияния эффекта инконгруэнтности на эффективность распыления.

На рис. 3 приведены зависимости полных коэффициентов распыления Si (по данным [11]) (a) и GaAs (b) от ядерных потерь энергии ионов висмута для кластеров с разным значением n . При расчете потерь энергии кластера вклады отдельных атомов считались независимыми [20,21], т.е.

$$\left(\frac{dE}{dx}(n, E)\right)_{nucl} = n \left(\frac{dE}{dx}\left(1, \frac{E}{n}\right)\right)_{nucl}. \quad (3)$$

На этом же рисунке штриховой линией показана зависимость, полученная моделированием в TRIM при энергиях, меньших максимума упругих потерь, и экстраполяцией этой зависимости в область больших энергий. Эта линия приближенно соответствует вкладу линейной составляющей распыления. Разница между экспериментальными точками и этой линией для GaAs значительно больше, чем при распылении Si.

Таким образом, в работе было установлено, что фактор неаддитивности распыления больше для GaAs, чем для Si. Также показано, что если для кремния зависимость коэффициентов распыления от упругих потерь энергии практически совпадает для кластеров с разными n , то для арсенида галлия наблюдаются заметные различия между кластерами. Эта особенность может быть

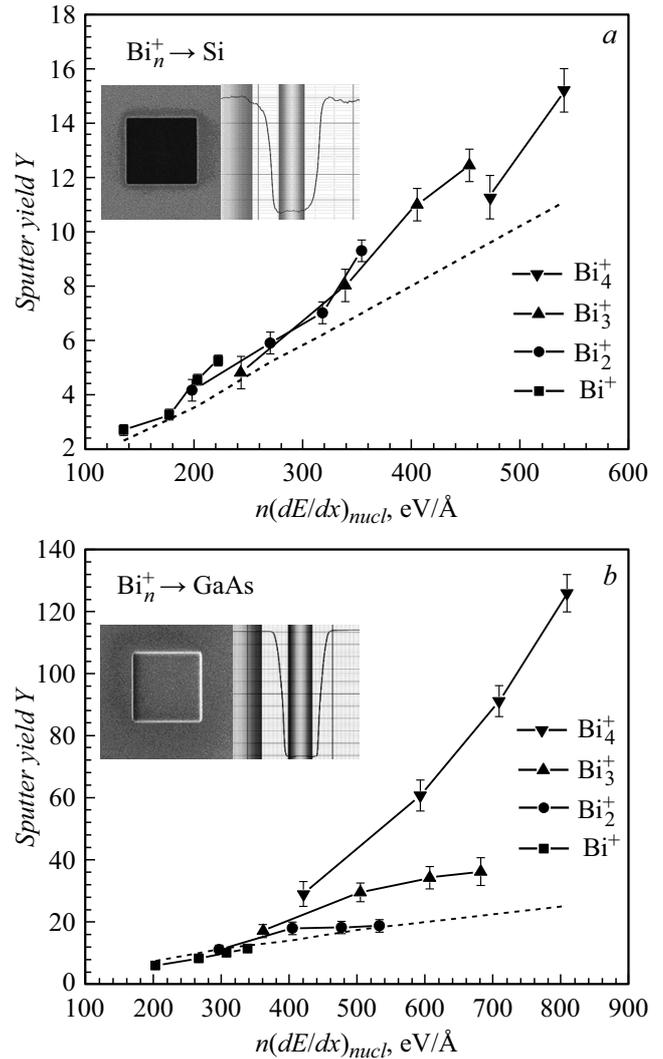


Рис. 3. Полные коэффициенты распыления Si (по данным [11]) (a) и GaAs (b) ионами Bi_n^+ в зависимости от ядерных потерь энергии кластера висмута. Штриховой линией показана аппроксимация расчетных данных, полученных с помощью TRIM. На вставках приведены изображения кратеров распыления, полученные с помощью литиевого ионного микроскопа, и профили этих кратеров, измеренные с помощью профилометра Veeco DEKTAК 150.

связана с эффектом инконгруэнтности при плавлении и испарении арсенида галлия.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ (FSSN-2020-0003).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] П.А. Мажаров, В.Г. Дудников, А.Б. Толстогозов, УФН, **190** (12), 1293 (2020). DOI: 10.3367/UFNr.2020.09.038845 [P.A. Mazarov, V.G. Dudnikov, A.B. Tolstoguzov, Phys. Usp., **63** (12), 1219 (2020). DOI: 10.3367/UFNe.2020.09.038845].
- [2] A.E. Ieshkin, A.V. Nazarov, A.A. Tatarintsev, D.S. Kireev, A.D. Zavilgelsky, A.A. Shemukhin, V.S. Chernysh, Surf. Coat. Technol., **404**, 126505 (2020). DOI: 10.1016/j.surfcoat.2020.126505
- [3] Д.С. Мелузова, П.Ю. Бабенко, А.Н. Зиновьев, А.П. Шергин, Письма в ЖТФ, **46** (24), 19 (2020). DOI: 10.21883/PJTF.2020.24.50422.18487 [D.S. Meluzova, P.Yu. Babenko, A.N. Zinoviev, A.P. Shergin, Tech. Phys. Lett., **46** (12), 1227 (2020). DOI: 10.1134/S1063785020120226].
- [4] V.N. Popok, J. Samela, K. Nordlund, V.P. Popov, Phys. Rev. B, **85** (3), 033405 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevB.85.033405
- [5] M. Lindenblatt, R. Heinrich, A. Wucher, B.J. Garrison, J. Chem. Phys., **115** (18), 8643 (2001). DOI: 10.1063/1.1404982
- [6] C. Anders, K.-H. Heinig, H.M. Urbassek, Phys. Rev. B, **87** (24), 245434 (2013). DOI: 10.1103/PhysRevB.87.245434
- [7] R.J. Paruch, Z. Postawa, B.J. Garrison, J. Vac. Sci. Technol. B, **34** (3), 03H105 (2016). DOI: 10.1116/1.4940153
- [8] P.A. Karaseov, K.V. Karabeshkin, A.I. Titov, M.W. Ullah, A. Kuronen, F. Djurabekova, K. Nordlund, G.M. Ermolaeva, V.B. Shilov, J. Phys. D: Appl. Phys., **50** (50), 505110 (2017). DOI: 10.1088/1361-6463/aa97ab
- [9] A.V. Samartsev, A. Duvenbeck, A. Wucher, Phys. Rev. B, **72** (11), 115417 (2005). DOI: 10.1103/PhysRevB.72.115417
- [10] L. Bischoff, W. Pilz, P. Mazarov, A.D. Wieck, Appl. Phys. A, **99** (1), 145 (2010). DOI: 10.1007/s00339-010-5597-0
- [11] A. Tolstogouzov, P. Mazarov, A.E. Ieshkin, S.F. Belykh, N.G. Korobeishchikov, V.O. Pelenovich, D.J. Fu, Vacuum, **188**, 110188 (2021). DOI: 10.1016/j.vacuum.2021.110188
- [12] <https://www.raith.com/> (12/2021)
- [13] W. Pilz, N. Klingner, L. Bischoff, P. Mazarov, S. Bauerdick, J. Vac. Sci. Technol. B, **37** (2), 021802 (2019). DOI: 10.1116/1.5086271
- [14] P. Schneider, L. Bischoff, J. Teichert, E. Hesse, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, **117** (1-2), 77 (1996). DOI: 10.1016/0168-583X(96)00273-X
- [15] <http://www.srim.org/> (12/2021).
- [16] P. Sigmund, C. Claussen, J. Appl. Phys., **52** (2), 990 (1981). DOI: 10.1063/1.328790
- [17] Yu. Kudriavtsev, R. Asomoza, A. Hernandez, D.Yu. Kazantsev, B.Ya. Ber, A.N. Gorokhodv, J. Vac. Sci. Technol., **38** (5), 053203 (2020). DOI: 10.1116/6.0000262
- [18] *Physics of semiconductor devices*, 3rd ed., ed by S.M. Sze, K.K. Ng (Wiley, Hoboken, 2007).
- [19] C.Y. Lou, G.A. Somorjai, J. Chem. Phys., **55** (9), 4554 (1971). DOI: 10.1063/1.167678
- [20] V.I. Shulga, P. Sigmund, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, **47** (3), 236 (1990). DOI: 10.1016/0168-583X(90)90751-F
- [21] S. Bouneau, A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, Y. Le Beyec, M. Pautrat, M. Fallavier, J.C. Poizat, H.H. Andersen, Phys. Rev. B, **65** (14), 144106 (2002). DOI: 10.1103/PhysRevB.65.144106