

PACS numbers: 41.75.Ak; 07.75. + h; 68.55.Ln

МАСС-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ИОННОГО РАСПЫЛЕНИЯ ПРИ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЯХ ПЕРВИЧНЫХ ИОНОВ

В.А. Батурин, С.А. Еремин

Институт прикладной физики НАН Украины,
ул. Петропавловская, 58, 40030, Сумы, Украина

Статья посвящена масс-спектрометрическому исследованию процессов ионного распыления в широком интервале энергий первичных ионов. С этой целью разработана конструкция масс-спектрометра вторичных нейтралей, которая в отличие от традиционных установок данного типа построена на базе ионного имплантера, генерирующего пучки ионов с энергией до 170 кэВ и плотностью тока на мишени до 1 мА/см². Проведено компьютерное моделирование траекторий электронов и положительных ионов в системе регистрации распыленных частиц и определены оптимальные параметры системы для трех режимов работы установки. Проведены исследования эмиссии распыленных нейтральных кластеров меди, а также процессов преимущественного распыления изотопов молибдена при различных параметрах пучка первичных ионов аргона.

Ключевые слова: ПУЧОК ИОНОВ, РАСПЫЛЕНИЕ, ВТОРИЧНЫЕ НЕЙТРАЛЫ, КЛАСТЕР, ИЗОТОП, МАСС-СПЕКТРОМЕТР.

(Получено 27.04.2009, в отредактированной форме –26.06.2009)

1. ВВЕДЕНИЕ

Проблемы эмиссии атомов и молекул из мишеней под действием ионной бомбардировки привлекают внимание большого числа исследователей. Это связано как с физическим интересом к самому процессу, так и с огромным количеством известных прикладных задач [1-7]. Некоторые из задач по физике ионного распыления требуют сепарации по массам продуктов ионного распыления. К числу таких задач можно отнести, например, исследования эмиссии кластеров и молекулярных соединений, преимущественного распыления элементов многоэлементного образца или изотопов одного элемента.

Так, в источниках кластерных ионов распылительного типа желательно использовать такие параметры пучка первичных ионов, при которых доля кластеров в потоке распыленных частиц максимальна. Согласно теоретической концепции эмиссии нейтральных кластеров при распылении интенсивность эмиссии кластеров тем выше, чем выше коэффициент ионного распыления материала, который, в свою очередь, зависит от энергии пучка первичных ионов. Например, для широко используемых для бомбардировки ионов инертных газов (Ar^+ , Kr^+ , Xe^+) максимум коэффициента распыления находится в диапазоне от нескольких десятков до нескольких сотен кэВ в зависимости от материала мишени [1, 4, 6].

В связи с интенсивным развитием технологии ионной литографии в микроэлектронике, использующей пучки легких ионов с энергией порядка

200 кэВ, возникает необходимость детального исследования продуктов ионного распыления технологических и конструкционных материалов при данных энергиях пучка первичных ионов. В современных исследованиях по управляемому термоядерному синтезу также возникают задачи по исследованию продуктов эрозии конструкционных материалов высокоинтенсивными потоками заряженных частиц. Так, в разрабатываемом международном проекте ITER энергия ионов, взаимодействующих с конструкционными материалами, может достигать сотен кэВ.

Еще одной важной областью исследований в физике ионного распыления, требующей массового анализа частиц, является преимущественное распыление компонентов исследуемого образца при ионной бомбардировке. Данный эффект необходимо учитывать при количественном анализе образцов и изотопном анализе ионно-лучевыми методами. Исследования преимущественного распыления изотопов одного элемента позволяют получить физическую информацию об особенностях перемещения атомов различных масс в приповерхностных слоях твердых тел при бомбардировке ионными пучками. В представленных в научной литературе работах по исследованию данного явления энергия бомбардирующих ионов находится, как правило, в интервале от нескольких сотен эВ до 10-15 кэВ.

Таким образом, в целом представляет физический и прикладной интерес масс-спектрометрическое исследование процессов ионного распыления в широком диапазоне энергий первичных ионов (до 150-200 кэВ). Поскольку подавляющее большинство частиц распыляются в нейтральном состоянии (более 99 %) [8], а поток нейтральных частиц в состоянии равновесия отражает реальный стехиометрический состав распыляемого образца [2, 4], при исследовании процессов ионного распыления необходимо регистрировать именно нейтральную компоненту потока распыленных частиц.

На сегодняшний день в отечественной и зарубежной литературе наблюдается дефицит экспериментальных работ по масс-спектрометрическому исследованию процессов ионного распыления в диапазоне энергий от 20 до 150-200 кэВ. Это связано с дефицитом соответствующего экспериментального оборудования для проведения исследований. В необходимых для этих целей установках для масс-спектрометрического анализа потоков вторичных нейтральных частиц (как коммерческих, так и лабораторных образцах) из соображений компактности конструкции энергию первичного пучка в источниках ионов обычно ограничивают значением 20-30 кэВ. В связи с этим подавляющее количество работ по масс-спектрометрическому исследованию продуктов ионного распыления относится именно к этому диапазону энергий первичных ионов. В данной работе будут представлены результаты экспериментов по исследованию физических аспектов процессов ионного распыления в широком интервале энергий первичных ионов (до 170 кэВ), которые проведены с помощью специально разработанной нами экспериментальной установки для масс-спектрометрии вторичных нейтралей.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОБОРУДОВАНИЕ

Экспериментальная установка построена на базе высокодозного ионного имплантера, генерирующего пучки ионов с энергиями до 170 кэВ и

плотностью тока на поверхности образца до 1 мА/см^2 . Общая схема установки показана на рис. 1.

Использование ионного имплантера позволяет получать сепарированные по массам пучки газовых ионов с массовым числом не более 40 с отфильтрованной нейтральной компонентой первичного пучка, что необходимо для получения корректных данных при проведении экспериментов по ионному распылению материалов. Источником ионов является дуоплазматрон. Энергия ионов на выходе из источника составляет 20 кэВ, что в сумме с потенциалом высоковольтной части имплантера (от 0 до 150 кВ) определяет конечную энергию пучка ионов (приемные камеры заземлены). Остаточный вакуум в области размещения распыляемого образца достигает $7 \cdot 10^{-6} \text{ Па}$. Для улучшения вакуумных условий в приемной камере при работающем источнике ионов в ней была установлена перегородка (поз. 15 на рис. 1), разделив, таким образом, вакуумную камеру установки на две секции, каждая из которых откачивается на высокий вакуум отдельно от другой при открытом высоковакуумном клапане 11. Перегородка имеет ряд отверстий диаметром 5 мм для прохождения пучка ионов.

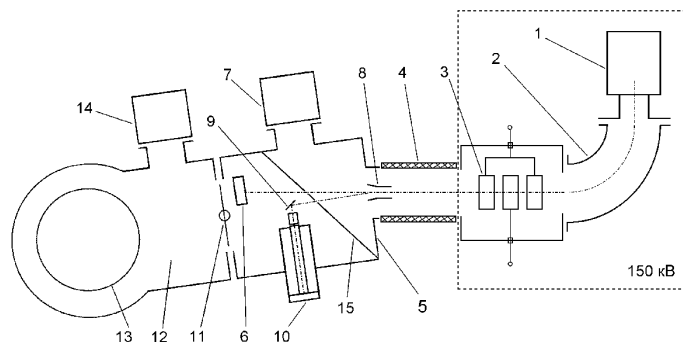


Рис. 1 – Общая схема установки для анализа вторичных нейтральных частиц (вид сверху: 1 – источник ионов; 2 – электромагнит; 3 – одиночная линза; 4 – ускорительная трубка; 5 – приемная камера №1; 6 – цилиндр Фарадея; 7, 14 – высоковакуумные насосы; 8 – пластины доворота пучка; 9 – исследуемый образец; 10 – система анализа распыленных частиц; 11 – высоковакуумный клапан; 12 – приемная камера №2; 13 – карусель для крепления образцов при имплантации; 15 – перегородка для дифференциальной откачки; штрихпунктирной линией изображены траектории первичных и вторичных ионов)

Система анализа распыленных частиц вмонтирована в боковой фланец приемной камеры имплантера. Конструктивно она может быть закреплена на фланце под разными углами, которые соответствуют углам между осями первичного пучка и ионно-оптической осью системы, равным 45° , 70° или 90° . Юстировка положения пучка первичных ионов в горизонтальной плоскости осуществляется с помощью пластин доворота пучка. Подробная схема системы анализа распыленных частиц показана на рис. 2.

Диаметр падающего на образец пучка ионов задается диаметром отверстия в вырезающей диафрагме (как правило, 1-2 мм). Измерение тока первичных ионов, падающих на исследуемый образец, осуществляется с помощью подвижного цилиндра Фарадея, который одновременно

выполняет функцию заслонки пучка ионов. Распыленные нейтральные частицы ионизируются (так называемая постиионизация нейтралей) в источнике ионов нировского типа пучком электронов регулируемой энергии (в интервале 50-100 эВ), который сфокусирован продольным магнитным полем. Ток электронной эмиссии катодов стабилизируется блоком питания цепи накала катодов на уровне 0,5 или 1 мА.

Одним из основных факторов, определяющих качество полученных спектров постиионизированных вторичных нейтралей, является эффективность подавления фона вторичных ионов и ионов остаточной вакуумной среды. Интенсивность данного рода сигналов может на несколько порядков превышать сигнал постиионизированных вторичных нейтралей. Для подавления фона вторичных ионов в данной конструкции установки используется дефлектор вторичных ионов, расположенный между исследуемым образцом и ионизатором. Чтобы отфильтровать составляющую масс-спектрометрического сигнала, связанную с ионами остаточных газов в вакуумном объеме установки, обладающими тепловыми энергиями порядка 10^{-2} - 10^{-1} эВ, на диафрагму, расположенную за анодом, подается положительный потенциал, который на 1-2 В больше анодного. Степень подавления токов вторичных и газовых ионов при анализе вторичных нейтралей составляет соответственно 10^5 и 10^6 .

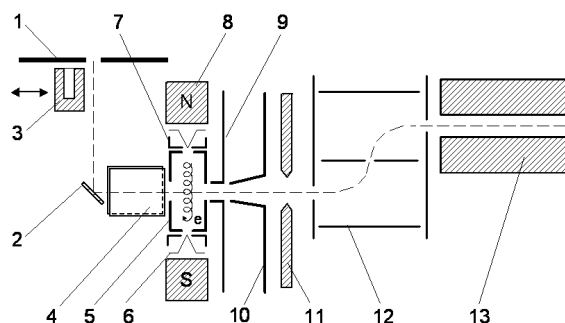


Рис. 2 – Схема системы анализа распыленных частиц (1 – диафрагма на пути первичного пучка ионов; 2 – исследуемый образец; 3 – подвижный цилиндр Фарадея; 4 – дефлектор вторичных ионов; 5 – анод; 6 – катод; 7 – отражающий электрод; 8 – постоянный магнит; 9 – регулятор тока газовых ионов; 10 – экстрагирующий электрод; 11 – фокусирующий электрод; 12 – электростатический энергофильтр; 13 – монополярный масс-анализатор; штриховой линией показаны траектории первичных и вторичных ионов)

Положительный потенциал анода определяет энергию, приобретаемую постиионизированными вторичными нейтралами, образовавшимися в нировском источнике ионов (без учета начальных энергий нейтралей). Поскольку ионизация частиц происходит в малом объеме (диаметром около 2,5 мм) и с малым падением потенциала в нем, энергетический разброс ионизированных частиц, создаваемый данным источником ионов, может быть сведен к минимуму (порядка 1 эВ). Экстрагированный из источника и сфокусированный пучок ионов попадает в электростатический энергофильтр. Основные функции энергофильтра – уменьшение уровня фона и шумов в сигнале детектора за счет

блокирования попадания на детектор фотонов, высокоэнергетичных ионов и нейтралей, а также улучшение разрешающей способности монопольного масс-анализатора за счет блокирования высокоэнергетичной компоненты энергоспектра анализируемых ионов. Пройдя энергофильтр, ионы сепарируются по массам в масс-анализаторе, взятом из серийного монопольного масс-спектрометра МХ7304А, анализирующего ионы в пределах диапазона от 1 до 400 а.е.м. Детектором ионов служит вторично-электронный умножитель ВЭУ-6, работающий в аналоговом или счетном режиме. Детекторная часть масс-спектрометра экранирована от попадания пучковой плазмы и рентгеновского излучения, так как это резко увеличивает уровень фона и шумов в сигнале детектора. Управление масс-спектрометром и регистрация спектральной информации осуществляются через ЭВМ с помощью разработанной нами компьютерной программы.

3. ОПТИМАЛЬНЫЕ ПАРАМЕТРЫ РАБОТЫ УСТАНОВКИ

Преимуществом данного варианта конструкции установки является то, что она может работать в одном из трех режимов: масс-спектрометрии вторичных нейтралей (МСВН), вторичных ионов (ВИМС) и газовой среды. Это значительно расширяет экспериментальные возможности установки. Переключение режимов работы осуществляется путем включения/выключения пучка первичных ионов и электронного пучка, а также изменения потенциалов некоторых элементов ионной оптики системы анализа распыленных частиц. Для каждого из режимов существует свой набор оптимальных параметров настройки, при которых чувствительность установки максимальна. К числу этих параметров относятся потенциалы ионизационной камеры (анода), диафрагмы для регулировки тока газовых ионов, пластин дефлектора вторичных ионов, фокусирующего электрода.

Некоторые из параметров работы системы регистрации распыленных частиц могут быть одинаковы во всех трех режимах работы. Одним из таких параметров является энергия пропускания энергофильтра. Фактически данная величина определяет диапазон энергий ионов, летящих в масс-анализаторе, который, в свою очередь, определяет разрешающую способность и трансмиссию монопольного масс-анализатора. На рис. 3

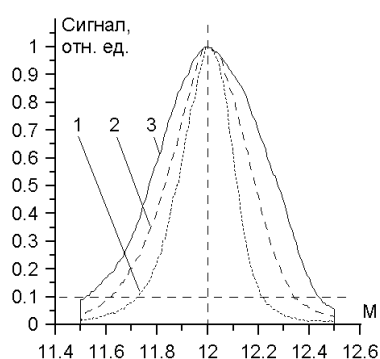


Рис. 3 – Форма пиков монопольного масс-анализатора, соответствующая ионам одинакового массового числа, при различных энергиях пропускания энергофильтра (1 – 20 эВ, 2 – 30 эВ, 3 – 40 эВ)

представлены несколько пиков, соответствующих ионам определенного массового числа, отснятых при различных значениях энергии пропускания энергофильтра (высота пиков нормирована на максимум).

Согласно приведенному рисунку с ростом энергии пропускания энергофильтра ширина пиков увеличивается, и соответственно ухудшается разрешение пиков. С другой стороны, в работе [9] было установлено, что с ростом энергии ионов коэффициент пропускания монополюсного масс-спектрометра увеличивается, причем нелинейно, переходя в насыщение при энергиях более 60 эВ. Для исследований процессов ионного распыления мы будем считать приоритетным сохранение разрешающей способности масс-анализатора (на уровне 10 % высоты пиков) в диапазоне от $1,5 \cdot M$ до $2 \cdot M$, где M – массовое число ионов. Энергия ионов, удовлетворяющая данному условию, лежит в диапазоне 20-30 эВ.

Для фокусировки электронного пучка в ионизаторе нировского типа используется продольное (относительно оси электронного пучка) магнитное поле, создаваемое двумя постоянными (в нашем случае самарий-кобальтовыми) магнитами. Расстояние между магнитами составляет 30 мм. Поскольку при использовании постоянных магнитов нет возможности оперативного изменения величины магнитной индукции в процессе масс-спектрометрических измерений, для определения оптимальной величины магнитного поля использовалось компьютерное моделирование траекторий электронов в ионизаторе. При этом для исследуемой пары магнитов, размещенных в ионизаторе, вначале экспериментально измерялось распределение магнитного поля (вдоль осей ионного и электронного пучков). Измерения производились с помощью тесламетра FH54 фирмы Magnet-Physik. Затем в программе расчета траекторий заряженных частиц задавалось распределение магнитного поля так, чтобы оно соответствовало измеренному. После этого производилось компьютерное моделирование траекторий электронов при заданных значениях ионизирующего напряжения и потенциала экранирующих электродов. Программное обеспечение для расчета траекторий частиц было реализовано в среде Delphi. Расчетные формулы аналогичны использованным в широко известной программе SIMION. Поскольку магнитное поле направлено перпендикулярно потоку ионов, оно отклоняет в сторону их траектории, что негативно сказывается на трансмиссии оптики ионов и соответственно чувствительности прибора. Таким образом, необходимо минимизировать величину магнитной индукции поля. С другой стороны, величина этой индукции должна быть достаточной для прохождения электронного пучка без больших потерь через входное боковое отверстие ионизационной камеры (анода). Кроме того, диаметр электронного пучка в центре камеры не должен превышать диаметра входного для потока нейтралей отверстия. В ходе эксперимента была определена оптимальная величина индукции магнитного поля в ионизаторе, которая составила 34 мТл в области вершин катодов и 22 мТл в центре ионизационной камеры. На рис. 4а и 4б представлены соответствующие графики распределения магнитного поля, а на рис. 4в показаны траектории электронов в области их экстракции при данном распределении магнитного поля (в плоскости, проходящей через центр ионизатора и перпендикулярной оси пучка анализируемых ионов).

Как показано на рис. 4в, при оптимальных значениях потенциалов электродов и индукции магнитного поля электронный пучок полностью

проходит через боковое отверстие анода, а его диаметр (благодаря фокусировке продольным магнитным полем) находится в пределах диаметра входного отверстия для потока нейтралей и составляет 1,5-2 мм.

Далее было проведено компьютерное моделирование траекторий ионов в системе регистрации частиц и определены оптимальные потенциалы элементов ионно-оптического тракта для каждого из трех режимов работы установки. Моделирование проводилось с учетом поперечного магнитного поля в области ионизатора в соответствии с рис. 4.

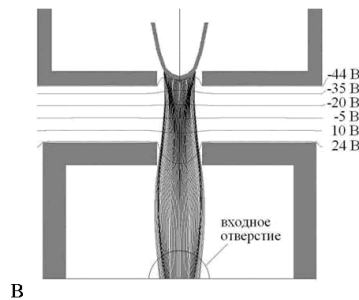
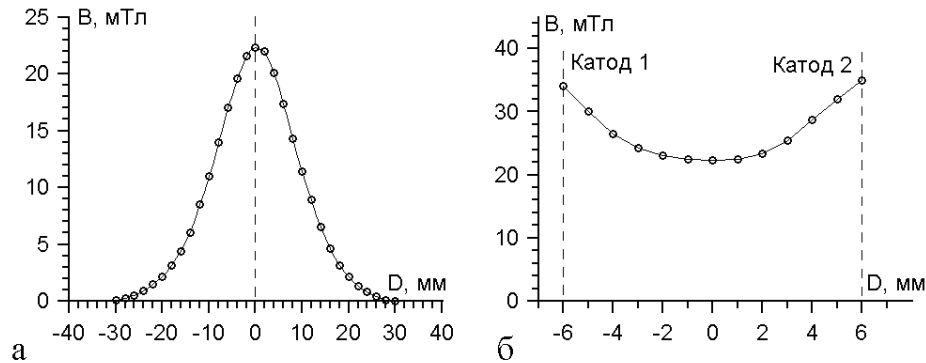


Рис. 4 – Распределение магнитного поля в ионизаторе вдоль осей ионного (а) и электронного (б) пучков; результат компьютерного моделирования траекторий электронов в ионизаторе при оптимальной величине магнитного поля (в) (потенциалы: анода - 25 В, катода - 45 В, экранирующего электрода - 45,5 В)

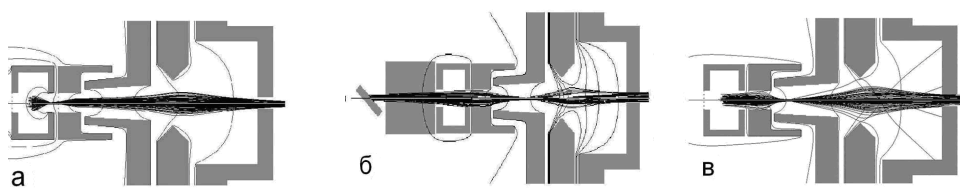


Рис. 5 – Результаты компьютерного моделирования траекторий ионов в ионно-оптической системе: в режиме газового анализа (а) (потенциалы: анод 30 В, диафрагма за анодом 5 В, фокусирующий электрод 20 В; начальные энергии ионов $2,5 \cdot 10^{-2}$ эВ); в режиме анализа вторичных ионов (б) (потенциалы: исследуемый образец 20 В, пластины дефлектора 20 В, анод 15 В, диафрагма за анодом 10 В, фокусирующий электрод 40 В; начальные энергии ионов 10 эВ); в режиме анализа вторичных нейтралей (в) (потенциалы: анод 25 В, диафрагма за анодом 26 В, фокусирующий электрод 30 В; начальные энергии ионов 5 эВ). Во всех трех режимах потенциал экранирующего электрода - 90 В

Результаты компьютерного моделирования траекторий ионов, соответствующих оптимальным потенциалам элементов ионно-оптической системы, представлены на рис. 5.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

4.1 Исследование эмиссии распыленных нейтральных кластеров меди при различных параметрах пучка первичных ионов аргона

При бомбардировке поверхности твердого тела пучком ускоренных ионов помимо нейтральных и заряженных моноатомных частиц распыляются также нейтральные и заряженные кластеры. В последнее время им уделяется значительное внимание в связи с ростом популярности методов количественного анализа образцов, основанных на ионном распылении частиц с его поверхности, поскольку эмиссию кластеров данного элемента необходимо учитывать при определении атомного содержания элемента в образце. Также следует отметить использование процесса ионного распыления в источниках кластерных ионов [10-14]. В кластерных источниках распылительного типа целесообразно использовать такие параметры пучка первичных ионов, при которых относительное содержание кластеров в потоке распыленных частиц максимально. Поэтому представляют физический и прикладной интерес исследования процессов эмиссии кластеров при различных параметрах облучения. Практически все полученные разными авторами результаты относятся к случаю распыления поверхности ионами с энергиями менее 1 кэВ [15, 16] или несколько кэВ [17-19]. Использование предложенной в данной работе установки позволяет провести исследования эмиссии кластеров при более высоких энергиях ионов (до 170 кэВ).

В данной работе будут представлены результаты исследований эмиссии постиионизированных нейтральных кластеров меди при разных параметрах пучка первичных ионов Ar^+ (плотности тока и энергии) и углах эмиссии распыленных частиц. Исследования процессов эмиссии кластеров в нашем случае осуществляются путем анализа отношения ионного тока детектора, соответствующего постиионизированным нейтральным кластерам меди с числом атомов n , к ионному току, соответствующему постиионизированным атомам меди, $I(Cu_n^+) / I(Cu^+)$. К сожалению, это отношение не равно реальному отношению количества распыленных нейтральных частиц данных сортов в общем потоке. Это связано с особенностями процесса постиионизации нейтралей и их транспортировки к детектору масс-спектрометра:

20. эффективность ионизации электронным ударом зависит не от потока F , а от концентрации ρ распыленных нейтралей в ионизаторе, при этом выполняется соотношение $\rho = F/v$, где v – скорость частиц (при данной энергии кластеры с большей массой имеют меньшие скорости и соответственно более высокие концентрации в ионизаторе);
21. величина сечения ионизации электронным ударом индивидуальна для данного сорта частицы (кластеры с разным количеством атомов имеют разные сечения ионизации);
22. дискриминация по массам, связанная с наличием поперечного магнитного поля в ионизаторе;
23. дискриминация по массам монополярного масс-анализатора.

Тем не менее, мы можем исследовать процессы эмиссии кластеров, если проводить эксперимент при фиксированных настройках системы регистрации распыленных частиц. В таком случае для потоков частиц будет выполняться соотношение

$$\frac{F(\text{Cu}_n)}{F(\text{Cu})} = \frac{I(\text{Cu}_n^+)}{I(\text{Cu}^+)} C_n, \quad (1)$$

где C_n – постоянная для данного числа n , соответствующая определенным настройкам системы регистрации распыленных частиц.

Важным вопросом, заслуживающим отдельного рассмотрения, является влияние диссоциации кластеров при их постиионизации на относительное содержание кластеров в потоке анализируемых частиц. В данной работе энергия электронов в ионизаторе была установлена на минимально возможном уровне, составляющем 50 эВ. Дальнейшее снижение этой величины приводит к значительному сокращению срока службы катодов. В зарубежных публикациях, посвященных исследованиям эмиссии нейтральных кластеров при распылении, [17, 19] также используется данное значение энергии электронов. Авторы этих работ доказывают, что диссоциативная ионизация хотя и имеет место при ионизации распыленных нейтральных кластеров металлов, не играет существенной роли. Так как при столкновении электрона ядрам атомов в кластере передается очень малая часть энергии электрона, весомую роль при диссоциации кластеров могут играть только косвенные процессы. Это может быть, например, нарушение стабильности кластера из-за изменения количества электронов на внешней оболочке атомов. Соотношение обычной и диссоциативной ионизации тяжело оценить в связи с недостатком соответствующих экспериментальных данных для металлических кластеров. Известно, что для кластера Cu_2 отношение энергии ионизации к энергии диссоциации I_p/D примерно равно 3. Также известно, что, например, для молекулы H_2 , имеющей примерно то же отношение I_p/D , при энергии ионизирующих электронов 50 эВ сечение диссоциативной ионизации в 20 раз меньше, чем обычной [17]. Существуют и другие соображения в пользу малости влияния диссоциативной ионизации.

При определении интенсивностей сигналов регистрируемых типов ионов сканировались только те участки диапазона масс, которые содержат пики постиионизированных атомов и кластеров меди. Затем суммировались интенсивности пиков, соответствующих изотопам (или изотопным комбинациям) данного типа ионов. Ток первичных ионов, текущий на образец, варьировался фокусировкой пучка с помощью одиночной линзы, расположенной перед ускорительной трубкой. Диаметр вырезающей диафрагмы перед исследуемым образцом составлял 2 мм. Измерение тока первичных ионов производилось подвижным цилиндром Фарадея, расположенным между диафрагмой и образцом. На рис. 6 представлен масс-спектр постиионизированных вторичных нейтралей медного образца.

Согласно полученным данным в режиме МСВН наблюдается монотонное и довольно резкое падение интенсивностей сигналов кластеров $I(\text{Cu}_n)$ с ростом n . При этом $I(\text{Cu}_{n+1})/I(\text{Cu}_n) \sim 0,1$. Совсем иная картина наблюдается в спектрах ВИМС. Здесь имеет место периодическая вариация интенсивностей сигналов кластеров с четными и нечетными n . При этом

$I(\text{Cu}_{2k+1}) > I(\text{Cu}_{2k})$ для $k > 0$. Подобные вариации интенсивности в спектрах ВИМС могут быть объяснены соответствующими вариациями вероятности ионизации кластеров при распылении $\alpha(\text{Cu}_n^+)$ согласно следующей зависимости [20]:

$$\ln[\alpha(\text{Cu}_n^+) / \alpha(\text{Cu}_n^+)] \sim E_i(\text{Cu}^+) - E_i(\text{Cu}_n^+), \quad (2)$$

где под E_i подразумевается эффективная энергия ионизации соответствующего кластера. Вследствие того, что некоторые кластеры распыляются в возбужденном состоянии, данная величина может существенно отличаться в меньшую сторону от энергии ионизации «холодного» кластера.

На рис. 7 представлены зависимости относительной интенсивности сигналов, соответствующих постиионизированным нейтральным кластерам меди Cu_2^+ и Cu_3^+ , от энергии первичных ионов при фиксированном токе (и плотности тока) первичных ионов.

Согласно полученным графикам с ростом энергии бомбардирующих ионов в диапазоне 30-170 кэВ относительная интенсивность кластеров уменьшается. При этом скорость спадающей относительной интенсивности выше у Cu_3^+ . Такое поведение кривых может быть объяснено с позиций

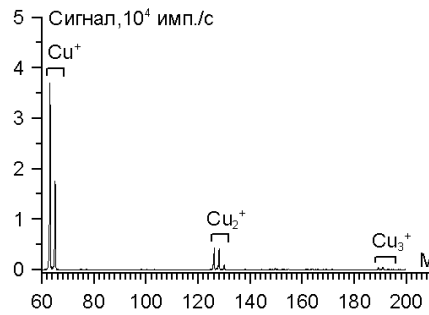


Рис. 6 – Масс-спектр постиионизированных вторичных нейтралей, распыленных с медного образца (первичные ионы – Ar^+ , энергия 75 кэВ, ток 7 мкА; ток эмиссии электронов 1 мА)

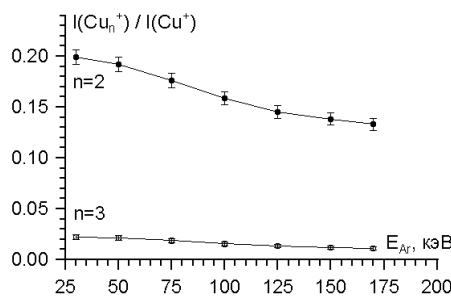


Рис. 7 – Зависимости относительной интенсивности сигналов, соответствующих постиионизированным нейтральным кластерам меди Cu_2^+ и Cu_3^+ , от энергии первичных ионов (первичные ионы – Ar^+ , ток 7 мкА, угол падения 45° , угол сбора частиц 0° ; время накопления импульсов при регистрации Cu^+ и Cu_2^+ 200 мс, при регистрации Cu_3^+ 2000 мс)

так называемого механизма атомного комбинирования (англ. atomic combination mechanism, АСМ). Это статистическая модель, которая оказалась очень полезной при исследовании распыления металлических поверхностей ионами инертных газов. Данная модель была впервые предложена в работе [21] и разработана независимо Кененом [22] и Герхардом [23]. Образование распыленных молекул (в т. ч. кластеров) согласно данной модели происходит следующим образом. Два или более ближайших поверхностных атома, индивидуально выбитых при двойных столкновениях в пределах одного каскада соударений, могут объединиться между собой в процессе выхода с поверхности, если их импульсы взаимно согласованы так, что образовавшаяся молекула является энергетически более предпочтительной по сравнению с одиночными атомами. Вероятность такого рода объединения и соответственно коэффициент распыления кластера из n атомов $Y(X_n)$ определяется соотношением

$$Y(X_n) \sim (Y_{\text{полн}})^n. \quad (3)$$

Полный коэффициент распыления $Y_{\text{полн}}$ определяется выражением

$$Y_{\text{полн}} = \sum_{n=1}^{\infty} nY(X_n) \approx Y(X_1) + 2Y(X_2). \quad (4)$$

В общем случае коэффициенты распыления, входящие в уравнения (3) и (4), зависят от энергии и угла падения первичных ионов.

Для определения полного коэффициента распыления меди как функции энергии бомбардирующих ионов аргона использовалось компьютерное моделирование с помощью программы SRIM. Полученная зависимость представлена на рис. 8.

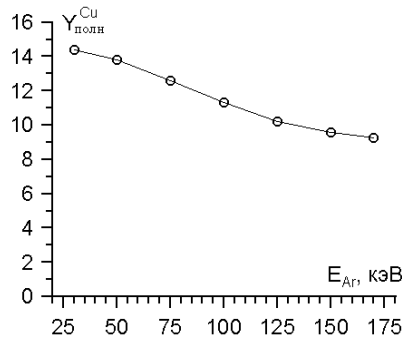


Рис. 8 – Зависимость полного коэффициента распыления меди от энергии бомбардирующих ионов аргона при угле падения 45° (компьютерное моделирование с помощью программы SRIM)

Коэффициент распыления в каждой точке зависимости определялся путем запуска 10^4 ионов, что соответствует статистической погрешности определения порядка 1 %. Согласно данному графику коэффициент распыления в диапазоне энергий 30-170 кэВ монотонно снижается с ростом энергии первичных ионов.

Воспользовавшись формулами (3), (4) и приняв во внимание формулу (1), где поток частиц F можно заменить на их парциальный коэффициент распыления Y , в общем случае для кластера Cu_n ($n > 2$) получаем следующее соотношение:

$$n-1 \sqrt{\frac{I(Cu_n^+)}{I(Cu^+)}} \sim Y_{полн}^{n-1} \sqrt{1 + \frac{2I(Cu_2^+)}{I(Cu^+)}} C_2 . \quad (5)$$

Для оценки величины калибровочного коэффициента C_2 , зависящего от настроек системы регистрации нейтральных частиц, мы воспользовались экспериментальными результатами в работе [19], где приведены данные по относительному содержанию распыленных нейтральных кластеров серебра и меди при энергии пучка ионов Ar^+ 5 кэВ и угле падения 45° . Поскольку минимальная энергия пучка ионов, генерируемого ионным имплантером, находится в пределах 20-30 кэВ, для воспроизведения необходимых параметров пучка ионов система регистрации распыленных частиц была установлена на другой установке, представляющей собой стенд для испытания ионных источников. Установленный в нем источник ионов мог генерировать пучки ионов аргона с энергиями в интервале 1-15 кэВ. Путем сравнения интенсивностей пиков кластера Cu_2 в полученном на стенде спектре с данными в работе [19] был вычислен коэффициент C_2 , который составил 0,94. Аналогичный коэффициент для кластера Cu_3 составил $C_3 = 0,91$.

В качестве примера рассмотрим случай, когда $n = 3$ в формуле (5). Выражение $[1 + 2C_2I(Cu_2^+)/I(Cu^+)]^{1/2}$ слабо зависит от энергии первичных ионов. Так, согласно рис. 7 при изменении энергии с 30 до 170 кэВ он изменяется на 4 %, в то время как полный коэффициент распыления меди $Y_{полн}$ согласно рис. 8 изменяется на 40 %. Таким образом, согласно рекомбинационной модели квадратный корень из относительной интенсивности сигнала кластера Cu_3 в первом приближении пропорционален полному коэффициенту распыления меди. На рис. 9 представлен соответствующий график, построенный на основе точек графиков на рис. 7 и 8.

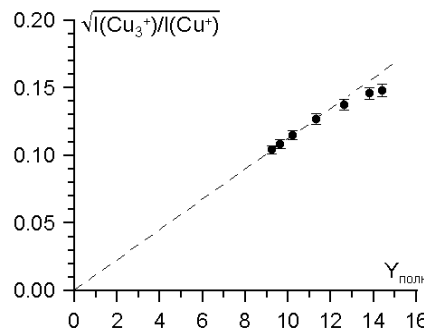


Рис. 9 – График зависимости величины $[I(Cu_3^+)/I(Cu^+)]^{1/2}$ от величины полного коэффициента распыления меди $Y_{полн}$

Согласно полученному графику, линейная зависимость действительно имеет место до $Y_{полн} \approx 11$. Однако при более высоких значениях $Y_{полн}$ наблюдается значительное отклонение от линейности и постепенный

переход в область насыщения. Это означает, что рекомбинационная модель формирования кластеров становится непригодной при высоких значениях коэффициентов распыления металлов.

Были получены также зависимости относительной интенсивности сигналов, соответствующих постинионизированным нейтральным кластерам Cu_2^+ и Cu_3^+ , от угла эмиссии частиц (рис. 10). Установка угла эмиссии осуществлялась перед началом эксперимента путем крепления системы регистрации вторичных частиц под необходимым углом на боковом фланце приемной камеры. При этом эффективный полуугол сбора вторичных нейтралей составлял примерно 5° . Измерения проводились при фиксированных значениях энергии, плотности тока и угла падения на образец пучка первичных ионов, а также настроек системы регистрации частиц. Согласно полученным данным с ростом угла эмиссии частиц относительное содержание кластеров в потоке распыленных частиц сильно уменьшается, причем относительная скорость уменьшения содержания выше у кластеров с большим n .

Это может быть объяснено различиями в угловых распределениях кластеров с разными n . Рекомбинационная модель формирования кластеров при распылении предсказывает, что если угловое распределение распыленных атомов можно описать функцией $f(\theta)$, то аналогичное распределение для кластера с числом атомов n будет описываться функцией $f^n(\theta)$, то есть более вытянутым в направлении нормали к поверхности, что и подтверждают зависимости на рис. 10.

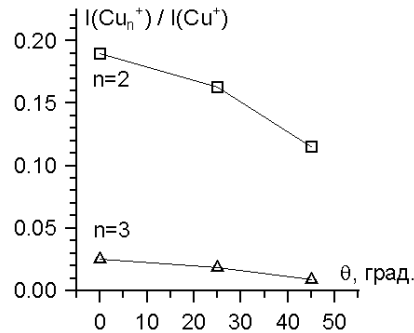


Рис. 10 – График зависимости относительной интенсивности сигналов, соответствующих постинионизированным нейтральным кластерам меди Cu_2^+ и Cu_3^+ от угла эмиссии частиц (первичные ионы – Ar^+ , энергия 75 кэВ, угол падения 45° плотность тока $0,3 \text{ мА/см}^2$; время накопления импульсов при регистрации Cu^+ и Cu_2^+ 200 мс, при регистрации Cu_3^+ 2000 мс)

На рис. 11 представлены зависимости относительных интенсивностей сигнала, соответствующих постинионизированным нейтральным кластерам меди Cu_2^+ и Cu_3^+ , от плотности тока первичных ионов аргона при фиксированной энергии первичных ионов. Поскольку ширина ионного пучка значительно превышала диаметр вырезающей диафрагмы, профиль той части пучка, которая вырезана диафрагмой, можно считать ровным, а величину плотности тока можно определить согласно формуле

$$j_{Ar} = \frac{I_{Ar} \cos \alpha}{S} = \frac{4I_{Ar} \cos \alpha}{\pi d^2}, \quad (6)$$

где I_{Ar} – ток первичных ионов, прошедший через вырезающую диафрагму и измеряемый подвижным цилиндром Фарадея; S – площадь отверстия диафрагмы; d – диаметр диафрагмы (2 мм); α – угол падения пучка первичных ионов (45°).

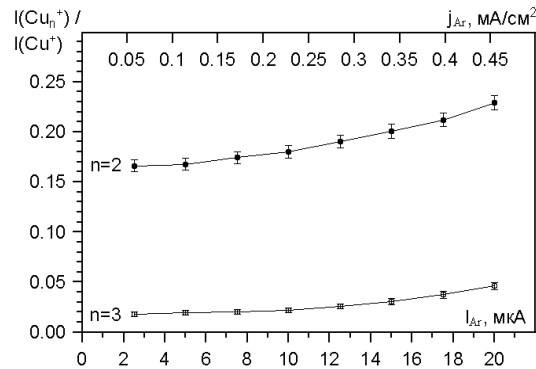


Рис. 11 – Зависимости относительной интенсивности сигналов, соответствующих постioniзированным нейтральным кластерам меди Cu_2^+ и Cu_3^+ , от тока (и плотности тока) первичных ионов (первичные ионы – Ar^+ , энергия 75 кэВ, угол падения 45°, угол сбора частиц 0°; время накопления импульсов при регистрации Cu^+ и Cu_2^+ 200 мс, при регистрации Cu_3^+ 2000 мс)

Согласно приведенному графику относительная интенсивность тока кластеров с ростом плотности тока пучка первичных ионов монотонно увеличивается, причем сильнее увеличивается относительная интенсивность Cu_3^+ (почти в 2 раза при увеличении плотности тока с 0,05 до 0,45 мА/см²). Это объясняется тем, что с ростом плотности тока пучка увеличивается плотность распыленных атомов меди у поверхности образца, а это означает увеличение вероятности их рекомбинации. При этом, чем больше число атомов в кластере, тем сильнее рост вероятности образования данного кластера с ростом плотности тока.

4.2 Исследование эффекта преимущественного распыления изотопов молибдена при ионной бомбардировке

Процесс распыления твердых тел потоком ускоренных ионов имеет ряд характерных особенностей, одной из которых является так называемый эффект преимущественного распыления. Он выражается в том, что для многокомпонентного материала состав эмитируемого в процессе распыления потока частиц может отличаться от стехиометрического состава мишени [2]. Более того, обнаружено, что этот эффект проявляется даже на уровне различных изотопов одного и того же элемента [24]. Для многокомпонентных материалов, кроме различия в массах компонентов, важным и зачастую доминирующим в этом явлении является эффект химической связи компонентов [25]. А для изотопов одного элемента это явление связано исключительно с их различием в массах. Предложенная Зигмундом аналитическая теория преимущественного распыления

[26, 27], базирующаяся на концепции линейных каскадов столкновений [28], предсказывает, что для двух изотопов одного элемента с массовыми числами M_1 и M_2 и объемными концентрациями C_1 и C_2 в гомогенном образце отношение их коэффициентов распыления при малых флюенсах бомбардирующих ионов $(Y_1/Y_2)_0$ определяется соотношением

$$\left(\frac{Y_1}{Y_2}\right)_0 = \frac{C_1}{C_2} \left(\frac{M_2}{M_1}\right)^{2m}, \quad (7)$$

где параметр m характеризует потенциал межатомного взаимодействия в степенном приближении ($0 < m < 1$). Поскольку в состоянии равновесия при распылении $(Y_1/Y_2)_\infty = C_1/C_2$ уравнение (7) определяет начальное отклонение состава потока распыленных частиц от объемной стехиометрии, величина изотопного обогащения характеризуется следующим параметром

$$\delta_0 = \frac{(Y_1/Y_2)_0}{(Y_1/Y_2)_\infty} - 1 = \left(\frac{M_2}{M_1}\right)^{2m} - 1. \quad (8)$$

В начале процесса ионного распыления наблюдается обогащение потока распыленных частиц более легким изотопом. По ходу процесса распыления это обогащение уменьшается, и в конце концов достигается состояние равновесия. При этом отношение содержания этих двух изотопов на поверхности образца отличается от объемного на величину δ_0^{-1} .

В зарубежной литературе опубликовано множество работ, посвященных экспериментальному изучению преимущественного распыления изотопов, проведенных как с помощью метода МСВН [29-31], так и с помощью метода ВИМС [32-36]. В большинстве из этих работ используются ионы с энергиями, не превышающими 20 кэВ. Представленная в данной работе установка позволяет провести исследование эффекта преимущественного распыления при бомбардировке ионами более высоких (до 170 кэВ) энергий. При этом более предпочтительным в нашем случае выглядит использование режима МСВН, а не ВИМС. Это связано с тем, что в режиме ВИМС интенсивность пиков двух исследуемых изотопов определяется их коэффициентами ионизации при распылении β_1 и β_2 , которые в общем случае не равны между собой, а являются функциями скорости соответствующих атомов в момент их распыления с поверхности [32, 37]. Хорошо известно, что интенсивность ВИЭ очень сильно зависит от состояния поверхности образца. В процессе ионного распыления вариация коэффициентов β_1 и β_2 может существенно исказить измеряемое отношение пиков двух изотопов. При работе в режиме МСВН отношение ионных токов двух изотопов (при условии постоянства тока первичных ионов) определяется соотношением

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{Y_1}{Y_2} \frac{P_1}{P_2} \frac{T_1}{T_2}, \quad (9)$$

где P_i и T_i – соответственно вероятность ионизации и полный коэффициент пропускания ионно-оптической системы для изотопа i . Благодаря использованию энергофильтра в масс-анализатор попадают

ионы в пределах некоторого энергетического диапазона. Для двух изотопов одного элемента с разными массовыми числами M_1 и M_2 их скорости $v_1 \neq v_2$, поэтому $P_1 \neq P_2$. Поскольку трансмиссия монополюсного масс-анализатора зависит от массового числа анализируемого иона, и, кроме того, присутствует поперечное магнитное поле в ионизаторе, то и $T_1 \neq T_2$. Таким образом, отношение интенсивностей пиков изотопов будет отличаться от реального соотношения изотопов в потоке распыленных частиц на определенный множитель, который определяется параметрами ионно-оптической системы. Если параметры ионно-оптической системы зафиксированы на время распыления образца, то $(P_1/P_2) (T_1/T_2) = \text{const}$. С учетом этого, подставляя (9) в (8), получаем формулу для параметра изотопного обогащения, выраженную через ионные токи двух изотопов I_1 и I_2 , регистрируемые детектором масс-спектрометра

$$\delta_0 = \frac{(I_1/I_2)_0}{(I_1/I_2)_\infty} - 1. \quad (10)$$

Поскольку для нас является желательным получение максимальных значений параметра обогащения δ_0 , то согласно уравнению (8) необходимо выбрать такой элемент периодической системы, который имеет два стабильных изотопа с максимальным отношением их массовых чисел M_2/M_1 . Кроме того, должны отсутствовать изотопы с массовыми числами $M_1 - 1$ и $M_2 - 1$, так как пики их гидридов могут накладываться на пики исследуемых изотопов. Перечисленным требованиям удовлетворяет германий (^{70}Ge и ^{76}Ge), а также молибден (^{92}Mo и ^{100}Mo). В нашем случае исследовался молибден, спектр изотопов которого представлен на рис. 12.

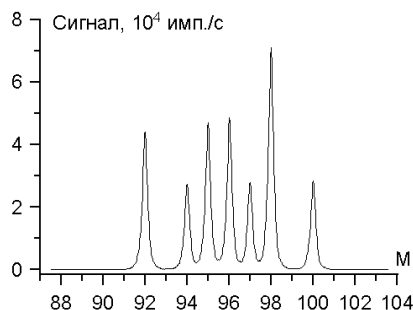


Рис. 12 – Масс-спектр изотопов молибдена, полученный в режиме МСВН в состоянии равновесия при распылении (первичные ионы – Ar^+ , энергия 80 кэВ, ток 10 мкА, угол падения 45° , угол сбора распыленных частиц 0° ; ток эмиссии электронов 1 мА, время накопления импульсов 500 мс)

Согласно данному спектру в состоянии равновесия отношение высоты пика изотопа ^{92}Mo к ^{100}Mo составляет $1,529 \pm 0,002$. Согласно табличным данным содержания изотопов в природе [38] отношение содержания изотопа ^{92}Mo к ^{100}Mo составляет 1,540. Расхождение в цифрах связано с разной чувствительностью установки по двум данным изотопам в режиме МСВН, а также с погрешностью определения интенсивностей пиков. Поскольку в методе МСВН регистрируются частицы, распыленные в

пределах некоторого телесного угла, определенное влияние на данное изотопное отношение оказывает различие угловых распределений для частиц с разными массами.

Перед тем как поместить молибденовые образцы в рабочую камеру, с них была снята окисная пленка путем погружения в соляную кислоту. Затем они были промыты водой, этанолом и высушены в сушильном шкафу. В ходе экспериментов температура образцов поддерживалась на уровне 150-200 °С для обезгаживания поверхности. Перед началом измерений была уточнена калибровка шкалы масс с тем, чтобы вершины исследуемых пиков точно соответствовали их массовым числам. Чтобы уменьшить погрешность измерения интенсивности пиков, необходимо использовать большие времена накопления импульсов (более 1 с). С другой стороны, время снятия спектра из двух исследуемых пиков должно быть достаточно малым (несколько секунд), чтобы дрейф величины тока первичных ионов не отразился на измеренном отношении пиков. Чтобы обеспечить высокую скорость сканирования пиков при большом времени накопления импульсов, использовался режим выборочного сканирования, т.е. измерялась интенсивность сигнала только в привершинной области пика. При этом время снятия одного спектра из двух пиков составило около 12 с при времени накопления импульсов 3 с. Чтобы интенсивности сигналов двух изотопов при определении их отношения соответствовали одному и тому же моменту времени регистрации этих сигналов, использовалась линейная интерполяция двух смежных значений сигнала изотопа в массиве типа значение сигнала – время его измерения (отдельно для каждого из изотопов).

Диаметр диафрагмы, задающей размеры пучка на поверхности образца, составлял 1,5 мм. Ток пучка ионов в ходе эксперимента поддерживался постоянным и составлял 2,5 мкА, что соответствовало плотности тока на поверхности образца 0,1 мА/см². Поскольку пучок ионов во время измерений был сильно расфокусирован одиночной линзой, диаметр пучка (около 30 мм) значительно превышал диаметр вырезающей диафрагмы. Это значит, что профиль пучка, прошедшего через диафрагму, близок к прямоугольному, что позволяет свести к минимуму так называемый «эффект кратера», вносящий погрешность в полученные результаты при распылении образца.

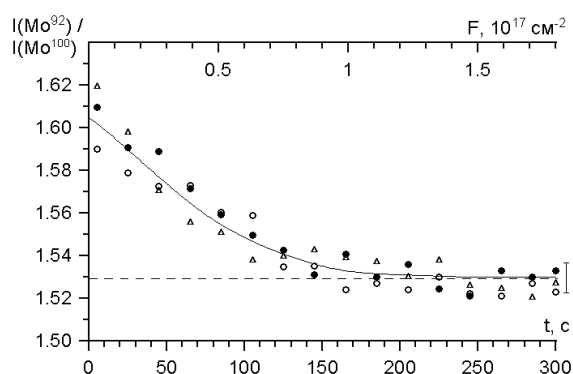


Рис. 13 – График отношения сигналов изотопов молибдена $I(^{92}\text{Mo}) / I(^{100}\text{Mo})$ от величины ионного флюенса F и времени распыления t (первичные ионы: Ar^+ , энергия 80 кэВ, угол падения 45° , угол сбора распыленных частиц 0°)

На рис. 13 представлена полученная в ходе эксперимента зависимость отношения сигналов изотопов молибдена ^{92}Mo к ^{100}Mo от флюенса первичных ионов.

Всего проведено 3 серии измерений на разных молибденовых образцах. Флюенс ионов вычислялся на основе времени измерения отношения сигналов изотопов и плотности ионного тока, текущего на образец. Величина параметра изотопного обогащения δ_0 , вычисленная на основе формулы (10), составляет в данном случае $(4,9 \pm 0,6) \cdot 10^{-2}$. Состояние равновесия достигается примерно через 230 с, что соответствует ионному флюенсу $F_{st} = 1,37 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$. Глубину, на которой достигается состояние равновесия, d_{st} можно определить по формуле

$$d_{st} = \frac{j_{Ar} Y_{Mo} m_{Mo} t}{e \rho_{Mo}}, \quad (11)$$

где j_{Ar} – плотность тока первичных ионов аргона Ar^+ ($j_{Ar} = 10^{-4} \text{ А/см}^2$); Y_{Mo} – коэффициент распыления молибдена при данных энергии и угле падения пучка ионов аргона ($Y_{Mo} = 5,7$ на основе компьютерного моделирования с помощью программы SRIM); m_{Mo} – атомная масса молибдена ($m_{Mo} = 1,6 \cdot 10^{-22} \text{ г}$); t – время распыления, соответствующее состоянию равновесия ($t \approx 220 \text{ с}$); e – заряд электрона ($e = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ Кл}$); ρ_{Mo} – плотность молибдена ($\rho_{Mo} = 10,2 \text{ г/см}^3$). При подстановке значений получаем $d_{st} = 1,23 \cdot 10^{-5} \text{ см} = 1230 \text{ Е}$.

Зависимости отношения сигналов изотопов $I(^{92}\text{Mo}) / I(^{100}\text{Mo})$ от ионного флюенса получены также при других значениях энергии бомбардирующих ионов. Полученные на основе этих зависимостей результаты представлены в табл. 1.

Таблица 1 – Результаты исследований преимущественного распыления в паре $^{92}\text{Mo} - ^{100}\text{Mo}$ при разных энергиях первичных ионов E_{Ar} (угол падения пучка 45° , угол сбора частиц 0°)

E_{Ar}	30	80	130	170
$\delta_0, \%$	$5,2 \pm 0,6$	$4,9 \pm 0,6$	$4,7 \pm 0,6$	$5,1 \pm 0,6$
m	0,30	0,29	0,28	0,30
$F_{st}, \text{ см}^{-2}$	$6,3 \cdot 10^{16}$	$1,4 \cdot 10^{17}$	$2,2 \cdot 10^{17}$	$2,7 \cdot 10^{17}$
$Y_{Mo} (45^\circ)$	6,4	5,7	5,1	4,8
$d_{st}, \text{ Е}$	640	1230	1728	2030
$R_p, \text{ Е}$	200	430	640	810

Согласно этим результатам с ростом энергии бомбардирующих ионов величина параметра δ_0 остается примерно на одном и том же уровне. Полученные значения глубин, на которую необходимо распылить образец для перехода в стационарный режим распыления, d_{st} значительно превышают среднюю глубину эмиссии распыленных атомов (порядка 1 нм [1, 4]). Кроме того, данная величина растет с ростом энергии первичных ионов. Это означает, что помимо собственно процесса преимущественного распыления на изотопный состав потока распыленных атомов значительное влияние оказывают еще два сопутствующих транспортных меха-

низма – имплантация атомов отдачи при соударениях и каскадное перемешивание атомов под действием ионной бомбардировки. Это приводит к миграции к поверхности атомов глубоколежащих слоев, имеющих естественный изотопный состав. Действие этих процессов распространяется на глубину, соизмеримую с пробегом первичных ионов в материале образца, величина которого растет с ростом энергии первичных ионов. Для определения величины пробега ионов в исследуемых образцах использовалось компьютерное моделирование с помощью программы SRIM. Пробег ионов R_p определялся как сумма нормальных составляющих средней глубины проникновения и страглинга. Согласно табличным данным глубина, на которой достигается состояние равновесия, в среднем в 2,5-3 раза превосходит пробег ионов. Данные результаты можно сравнить, например, с полученными в работе [30], где проведены исследования методом МСВН преимущественного распыления молибдена ионами аргона при низких энергиях первичных ионов (5 кэВ). Согласно этим результатам стационарное состояние достигается при ионном флюенсе $6 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$. При этом глубина, на которой достигается стационарный режим, в 4 раза превосходит пробег ионов.

Были также проведены исследования зависимости показателя изотопного обогащения от угла эмиссии распыленных частиц при прочих равных условиях (рис. 14). Согласно полученным данным изотопное отношение и величина показателя изотопного обогащения уменьшаются с ростом угла эмиссии распыленных частиц.

Для исследования процессов преимущественного распыления широко применяется компьютерное моделирование с помощью специально разработанных программ (OKSANA, TRIDYN, TRIM.SP и др.). В нашем случае для проверки полученных экспериментальных данных были использованы результаты компьютерного моделирования преимущественного распыления изотопов молибдена при бомбардировке ионами Ar^+ с энергиями в диапазоне от 0,1 до 100 кэВ, проведенного Шульгой в работе [39]. Моделирование в данной работе производилось с помощью

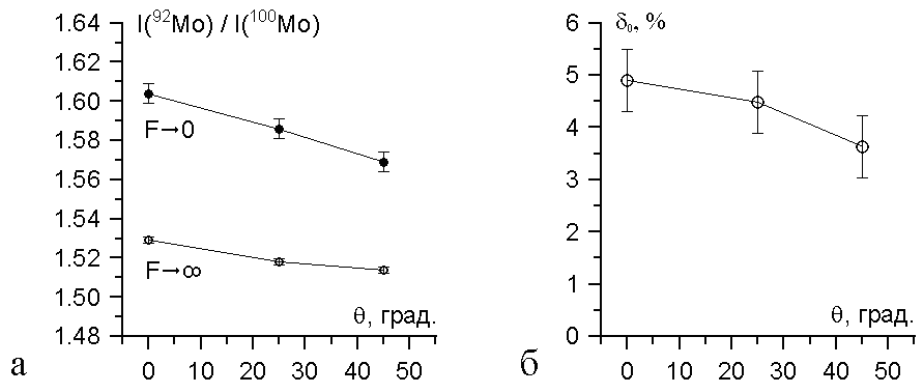


Рис. 14 – Зависимости отношений интенсивности сигналов изотопов молибдена $I(^{92}\text{Mo})/I(^{100}\text{Mo})$ в пределах нулевого и бесконечного флюенса первичных ионов F , а также соответствующего показателя изотопного обогащения δ_0 от угла эмиссии распыленных частиц θ (первичные ионы: Ar^+ , энергия 80 кэВ, угол падения 45°)

компьютерной программы OKSANA, детально описанной в [40-42]. На рис. 15 представлен один из результатов данного моделирования.

Согласно представленному графику наибольшие значения коэффициента m и соответственно показателя изотопного обогащения ζ_0 наблюдаются при энергиях ионов, близких к пороговым для ионного распыления (порядка 100 эВ). С ростом энергии ионов в интервале от 0,1 до нескольких кэВ эти показатели значительно уменьшаются и, начиная с энергии примерно 10 кэВ, переходят на стационарный уровень. Это соответствует полученным экспериментальным данным (таблица 1), согласно которым в интервале энергий ионов от 30 до 170 кэВ параметр изотопного обогащения остается стабильным. Результаты компьютерного моделирования также показывают, что с ростом угла эмиссии частиц коэффициенты m и δ_0 уменьшаются, что находится в согласии с полученными нами экспериментальными данными (рис. 14).

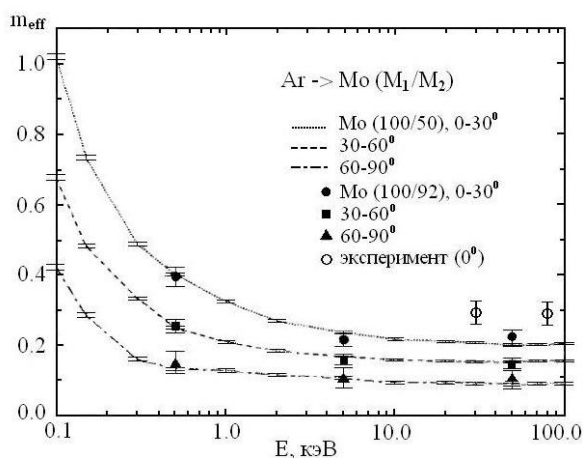


Рис. 15 – Зависимость эффективного значения коэффициента m от энергии бомбардирующих ионов Ar^+ для трех интервалов углов эмиссии распыленных частиц (компьютерное моделирование, изотопные смеси $^{100}Mo/^{50}Mo$ и $^{100}Mo/^{92}Mo$ в соотношении 1:1, для сравнения на графике приведены также полученные нами экспериментальные значения)

Полученное нами в эксперименте эффективное значение коэффициента m составляет в среднем 0,29 для энергий ионов в несколько десятков кэВ и угла эмиссии $\theta = 0^\circ$ (более точно $\theta = 0-5^\circ$ с учетом величины угла захвата распыленных частиц системой анализа). Оно несколько превышает соответствующее значение, полученное в результате моделирования ($m \approx 0,23$ для углов эмиссии $0-30^\circ$). Однако следует заметить, что моделирование производилось для широкого диапазона углов эмиссии, а поскольку с ростом угла эмиссии изотопное обогащение потока распыленных частиц уменьшается, то средняя величина коэффициента m будет меньше, чем для угла $\theta = 0^\circ$. Эффективные величины параметра m , полученные в этой и других [30, 35, 36] экспериментальных работах, а также в результатах моделирования на ЭВМ [39-45], значительно выше теоретического значения, предложенного Зигмундом ($m = 0,055$), соответствующего потенциалу взаимодействия Борна - Майера [26]. Кроме того, теория Зигмунда не предусматривает зависимости показателя изотопного обогащения от угла эмиссии распыленных частиц. Согласно данной теории главной причиной возникновения изотопного обогащения при распылении является различие в сечениях рассеяния атомов различных масс в каскадах столкновений. Значительные расхождения экспериментальных и теоретических значений объясняются авторами

перечисленных выше работ рядом недостатков и упрощений теоретической модели Зигмунда, в частности, пренебрежением поверхностными эффектами. Доминирующим фактором в процессе преимущественного распыления согласно компьютерному моделированию является асимметрия распределения импульсов между легкими и тяжелыми атомами в каскадах столкновений. Доля легких атомов, несущих импульс в направлении поверхности образца, значительно выше, чем тяжелых. Это связано с тем фактом, что более легкие атомы в каскаде столкновений могут рассеиваться в пределах большего диапазона углов при столкновении с более тяжелыми атомами. Важную роль в формировании угловых распределений распыленных частиц, согласно моделированию играет также их взаимодействие с притягивающим полем поверхностного барьера.

5. ВЫВОДЫ

1. Для исследования процессов ионного распыления материалов при высоких энергиях первичных ионов создана экспериментальная установка для масс-спектрометрического анализа потоков вторичных нейтральных частиц. В отличие от традиционных установок подобного типа источником первичных ионов в ней является высокодозный ионный имплантер, генерирующий сепарированные по массам пучки ионов с энергиями в диапазоне от 20 до 170 кэВ и плотностью тока на исследуемом образце до 1 мА/см².
2. Возможность работы в одном из трех режимов (МСВН, ВИМС и анализа газовой среды) значительно расширяет экспериментальные возможности установки. Для каждого из режимов работы проведено компьютерное моделирование траекторий ионов в системе анализа распыленных частиц и определены оптимальные потенциалы элементов ионной оптики. Также определены оптимальные энергии ионов в масс-анализаторе (20-30 эВ) и оптимальная величина магнитного поля в ионизаторе (22 мТл в центре ионизатора).
3. Проведены исследования эмиссии нейтральных кластеров меди Cu_n ($n = 2, 3$) при распылении медного образца высокоэнергетичным пучком ионов Ar^+ . Согласно полученным результатам с ростом энергии первичных ионов в диапазоне от 30 до 170 кэВ относительное содержание нейтральных кластеров в потоке частиц снижается, причем относительная скорость снижения выше у кластера Cu_3 . Снижение относительной доли кластеров наблюдается и при увеличении угла эмиссии распыленных частиц. С ростом плотности тока пучка первичных ионов доля кластеров растет, что связано с ростом плотности распыленных атомов у поверхности образца. Полученные результаты находятся в соответствии с теоретическими концепциями формирования кластеров при распылении.
4. Проведены исследования преимущественного распыления изотопов на примере пары $^{92}Mo - ^{100}Mo$ при распылении молибденового образца высокоэнергетичным пучком ионов Ar^+ . При малых флюенсах первичных ионов (менее 10^{17} см^{-2}) наблюдается повышенное содержание более легкого изотопа в потоке распыленных частиц. С ростом энергии первичных ионов в диапазоне от 30 до 170 кэВ растет глубина, на которую необходимо распылить образец для перехода процесса распыления в стационарный режим, и соответствующий этой

глубине флюенса пучка ионов, а параметр изотопного обогащения остается примерно на одном уровне (в среднем около 5 %). Отмечено также уменьшение величины изотопного обогащения с ростом угла эмиссии распыленных частиц. Полученные экспериментальные данные находятся в хорошем соответствии с результатами компьютерного моделирования процессов преимущественного распыления.

MASS-SPECTROMETRIC RESEARCH OF ION SPUTTERING PROCESSES AT HIGH PRIMARY ION ENERGIES

V.A. Baturin, S.A. Yeryomin

Institute of Applied Physics, National Academy of Sciences of Ukraine,
58, Petropavlivs'ka Str., 40030, Sumy, Ukraine

The article is devoted to mass-spectrometric investigation of ion sputtering processes in a wide range of primary ion energies. For this purpose a design of the secondary neutral mass-spectrometer is developed, which unlike the traditional devices of the given type is produced on the base of ion implanter that generates ion beams with energies up to 170 keV and current density on the target up to 1 mA/cm². Computer simulation of the electron and positively charged ion trajectories in sputtered particle detection system is performed and the optimal parameters of a system for three modes of operation are determined. The emission of sputtered neutral copper clusters and the preferential sputtering processes of molybdenum isotopes at different parameters of the primary ion beam are studied.

Keywords: ION BEAM, SPUTTERING, SECONDARY NEUTRALS, CLUSTER, ISOTOPE, MASS-SPECTROMETER.

МАС-СПЕКТРОМЕТРИЧНЕ ДОСЛІДЖЕННЯ ПРОЦЕСІВ ІОННОГО РОЗПИЛЕННЯ ПРИ ВИСОКИХ ЕНЕРГІЯХ ПЕРВИННИХ ІОНІВ

В.А. Батурін, С.О. Єрьомін

Інститут прикладної фізики НАН України,
вул. Петропавлівська, 58, Суми, Україна, 40030

Стаття присвячена мас-спектрометричному дослідженню процесів іонного розпилення в широкому інтервалі енергій первинних іонів. З цією метою розроблена конструкція мас-спектрометра вторинних нейтралей, що на відміну від традиційних установок даного типу побудована на базі іонного імплантера, що генерує пучки іонів з енергією до 170 кеВ і щільністю струму на мішені до 1 мА/см². Проведено комп'ютерне моделювання траєкторій електронів і позитивних іонів у системі реєстрації розпилених частинок і визначені оптимальні параметри системи для трьох режимів роботи установки. Проведено дослідження емісії розпилених нейтральних кластерів міді, а також процесів переважного розпилення ізотопів молибдену при різних параметрах пучка первинних іонів аргону.

Ключові слова: ПУЧОК ІОНІВ, РОЗПИЛЕННЯ, ВТОРИННІ НЕЙТРАЛІ, КЛАСТЕР, ІЗОТОП, МАС-СПЕКТРОМЕТР.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Распыление твердых тел ионной бомбардировкой. Физическое распыление одноэлементных твердых тел* (ред. Р. Бериша) (М.: Мир: 1984).
2. *Распыление твердых тел ионной бомбардировкой. Выпуск 2: Распыление сплавов и соединений, распыление под действием электронов и нейтронов, рельеф поверхности* (ред. Р. Бериша) (М.: Мир: 1986).
3. *Распыление под действием бомбардировки частицами. Выпуск 3: Характеристики распыленных частиц, применения в технике* (ред. Р. Бериша, К. Виттмака) (М.: Мир: 1998).
4. В.В. Плетнев, *Итоги науки и техники. Серия: Пучки заряженных частиц и твердое тело*, 115 (М.: ВИНТИ: 1991).
5. *Фундаментальные и прикладные аспекты распыления твердых тел* (ред. Е. С. Машковой) (М.: Мир: 1989).
6. H. Oechsner, *Appl. Phys. A* **8** No3, 185 (1975).
7. V.S. Smentkowski, *Prog. Surf. Sci.* **64**, 1 (2000).
8. В.Т. Черепин, *Ионный микрозондовый анализ* (К.: Наук. думка: 1992).
9. В.А. Батурич, С.А. Еремин, *Вісник СумДУ. Серія: Фізика, математика, механіка* №2, 127 (2007).
10. P. Fayet, F. Patthey, H.-V. Roy, Th. Detzel, *Surf. Sci.* **269-270**, 1101 (1992).
11. H.O. Lutz, K.H. Meiwes-Broer, *Nucl. Instrum. Meth. B* **53** No4, 395 (1991).
12. P. Fayet, L. Woste, *Zeit. Phys. D* **3** No2-3, 177 (1986).
13. H. Haberland, M. Karrais, M. Mall, *Zeit. Phys. D* **20** No1-4, 413 (1991).
14. W. Begemann, R. Hector, Y.Y. Liu, J. Tiggesbaumker, *Zeit. Phys. D* **12** No1-4, 229 (1989).
15. H. Gnaser, H. Oechsner, *Nucl. Instrum. Meth. B* **82** No2, 347 (1993).
16. H. Gnaser, H. Oechsner, *Nucl. Instrum. Meth. B* **58** No3-4, 438 (1991).
17. J. Schou, W.O. Hofer, *Appl. Surf. Sci.* **10** No3, 383 (1982).
18. K. Franzreb, A. Wucher, H. Oechsner, *Nucl. Instrum. Meth. B* **17** No1, 51 (1990).
19. K. Franzreb, A. Wucher, H. Oechsner, *Surf. Sci. Lett.* **279** No3, L225 (1992).
20. K. Franzreb, A. Wucher, H. Oechsner, *Phys. Rev. B* **43** No18, 14396 (1991).
21. H. Oechsner, H. Gerhard, *Sur. Sci.* **44** No2, 480 (1974).
22. G.P. Konnen, A. Tip, A.E. de Vries, *Radiation Effects* **21** No4, 269 (1974).
23. W. Gerhard, *Zeit. Phys. B* **22** No1, 31 (1975).
24. G.K. Wehner, *Appl. Phys. Lett.* **30** No4, 185 (1977).
25. H.H. Andersen, B. Stenum, T. Sorensen, H.J. Whitlow, *Nucl. Instrum. Meth. B* **2** No1-3, 601 (1984).
26. P. Sigmund, *Nucl. Instrum. Meth. B* **18** No1-6, 375 (1986).
27. P. Sigmund, *Nucl. Instrum. Meth. B* **82** No2, 242 (1993).
28. P. Sigmund, *Phys. Rev.* **184** No2, 383 (1969).
29. H. Gnaser, *Nucl. Instrum. Meth. B* **48** No1-4, 544 (1990).
30. H. Gnaser, H. Oechsner, *Phys. Rev. Lett.* **63** No24, 2673 (1989).
31. W. Bieck, H. Gnaser, H. Oechsner, *Nucl. Instrum. Meth. B* **101** No4, 335 (1995).
32. H. Gnaser, I.D. Hutcheon, *Surf. Sci.* **195** No3, 499 (1988).
33. N. Shimizu, S.R. Hart, *J. Appl. Phys.* **53** No3, 1303 (1982).
34. V. Shutthanandan, J. Zhang, P. Ray, *J. Appl. Phys. A* **76** No7, 1093 (2003).
35. L.M. Baumel, M.R. Weller, T.A. Tombrello, *Nucl. Instrum. Meth. B* **34** No4, 427 (1988).
36. D.L. Weathers, S.J. Spicklemire, T.A. Tombrello, I.D. Hutcheon, *Nucl. Instrum. Meth. B* **73** No2, 135 (1993).
37. H. Gnaser, I.D. Hutcheon, *Phys. Rev. B* **35** No2, 877 (1987).
38. K. Rosman, P. Taylor, *Pure Appl. Chem.* **70** No1, 217 (1998).
39. V.I. Shulga, *Radiat. Eff. Defect. S.* **142** No1, 351 (1997).

40. V.I. Shulga, *Radiat. Eff. Defect. S.* **70** No1, 65 (1983).
41. V.I. Shulga, *Radiat. Eff. Defect. S.* **82** No3, 169 (1984).
42. V.I. Shulga, *Radiat. Eff. Defect. S.* **84** No1, 1 (1985).
43. W. Eckstein, J.P. Biersack, *Appl. Phys. A* **37** No2, 95 (1985).
44. M.H. Shapiro, P.K. Haff, T.A. Tombrello, E.Jr. Harrison, *Nucl. Instrum. Meth. B* **12** No1, 137 (1985).
45. M.H. Shapiro, T.A. Tombrello, E.Jr. Harrison, *Nucl. Instrum. Meth. B* **30** No2, 152 (1988).