

## Молекулярно-динамическое моделирование распыления молибдена пучком газовых кластерных ионов аргона

А. В. Назаров, А. Д. Завильгельский

*В работе представлены результаты моделирования распыления твёрдого тела пучком газовых кластерных ионов методом молекулярной динамики. Монокристалл Мо бомбардируется кластерными ионами Ar с энергией 10 кэВ и размером от 50 до 2000 атомов при комнатной температуре. Угол падения совпадает с нормалью к поверхности (100) мишени. Проведено две серии моделирования с различными параметрами. В первой из них каждый ион кластера попадает в идеальную поверхность кристалла. Во второй серии моделируется последовательность соударений с учетом эволюции поверхности в результате бомбардировки и экспериментально измеренного распределения размеров кластера. Рассчитаны угловые распределения распыленных атомов для 1000 независимых столкновений и 2000 последовательных столкновений. Показано, что шероховатость поверхности в случае последовательных соударений оказывает влияние на форму угловых распределений. Показаны преимущества использования моделирования последовательности соударений.*

*Ключевые слова:* кластерные ионы, распыление, угловое распределение, молекулярная динамика.

**Ссылка:** Назаров А. В., Завильгельский А. Д. // Прикладная физика. 2019. № 5. С. 60.

**Reference:** A. V. Nazarov and A. D. Zavilgelskiy, Prikl. Fiz., No. 5, 60 (2019).

### Введение

В последние несколько десятилетий пучки газовых кластерных ионов находят применение во множестве областей науки и техники. С помощью кластерных пучков производится сглаживание и очистка поверхностей в опто- и микроэлектронике, ионная имплантация на малую глубину, обработка биомедицинских материалов, вторичная ионная масс-спектрометрия для анализа органических соединений. Полезной особенностью химических активных кластеров является по-

вышение скорости химической реакции без нагрева подложки.

Газовый кластер представляет собой ансамбль от нескольких атомов до десятков тысяч атомов, связанных между собой силами Ван-дер-Ваальса. Такие кластеры образуются путем адиабатического расширения газа через сверхзвуковое сопло, а затем ионизируются электронным ударом [1]. В отличие от одиночных ионов (мономеров), кластерные ионы характеризуются малой глубиной проникновения в мишень, низкой энергией в расчёте на один атом и выделением большого количества энергии в малом объеме вещества в области взаимодействия.

При облучении твёрдых тел кластерными ионами явление распыления является основным фактором, определяющим сглаживание либо развитие рельефа поверхности. Одной из наиболее важных характеристик процесса распыления служит угловое распределение распыленных атомов. С фундамен-

---

Назаров Антон Викторович, м.н.с.

Завильгельский Андрей Дмитриевич, бакалавр.

Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д. В. Скобельцына (НИИЯФ МГУ).

Россия, 119991, ГСП-1, Москва, Ленинские горы, 1, стр. 2.

Тел. +7(495) 393-37-70.

E-mail: av.nazarov@physics.msu.ru

Статья поступила в редакцию 25 марта 2019 г.

---

© Назаров А. В., Завильгельский А. Д., 2019

тальной точки зрения, информация об угловых распределениях позволяет делать выводы о механизме распыления, который представляет собой совокупность таких процессов, как нелинейные каскады атомных столкновений, формирование ударных волн и тепловых пиков. Механизм распыления для случая кластерных ионов является более сложным, чем для ионов-мономеров, и недостаточно описан на данный момент.

Отметим, что угловые распределения распылённых атомов являются одним из факторов, определяющих перераспределение атомов на поверхности мишени в процессе облучения и, таким образом, влияют на формирование рельефа поверхности в процессе обработки поверхности, что, в свою очередь, играет роль при практическом применении данной технологии.

Модель бинарных столкновений [2] широко используется для моделирования взаимодействия ионов с твёрдым телом, но неприменима для случая кластерных ионов, поскольку многие атомы кластера взаимодействуют со многими атомами мишени одновременно. Наиболее подходящим методом компьютерного моделирования процессов, происходящих при бомбардировке твердых тел кластерными ионами, является метод молекулярной динамики (МД). С помощью данного метода были продемонстрированы многие особенности взаимодействия кластеров с поверхностью твёрдых тел [3–5]. Этот метод также может быть использован для более точного моделирования взаимодействия мономеров с твердыми телами и наноструктурами [6]. Метод МД основан на численном интегрировании уравнений движения для каждой частицы системы. Данный метод позволяет отслеживать траектории каждого атома с высоким разрешением по времени, вычислять макроскопические параметры системы, такие как температура, анализировать дефекты кристаллической структуры и прочее.

### Метод

Для моделирования распыления методом молекулярной динамики был использован программный пакет PARCAS [7]. Данный пакет оптимизирован для задач, в рамках ко-

торых возникают каскады атомных столкновений. Расчёты производились с использованием суперкомпьютера «Ломоносов» МГУ им. М. В. Ломоносова [8].

Налетающая частица представляет собой кластер Ar с энергией 10 кэВ и размером от 50 до 2000 атомов, мишень – монокристалл Mo при комнатной температуре. Кластеры падают по нормали к поверхности Mo (100). Для описания взаимодействия частиц системы использованы следующие потенциалы: потенциал Леннарда-Джонса для Ar–Ar взаимодействия, потенциалы EAM [9] для Mo–Mo взаимодействия и парные потенциалы отталкивания [10], основанные на теории функционала плотности, для Ar–Mo взаимодействия.

Мишень представляет собой объёмно-центрированную кубическую решётку с параметром 3,142 Å. Размер ячейки моделирования составляет 102×102×34 элементарных ячеек и содержит 707472 атома Mo. Такой размер ячейки моделирования был выбран исходя из размера области взаимодействия кластера с поверхностью и необходимости дополнительного пространства для диссипации энергии из области взаимодействия. В направлениях  $x$  и  $y$  используются периодические граничные условия. Три нижних атомных слоя в направлении  $z$  фиксируются, чтобы предотвратить перемещение ячейки моделирования вдоль этого направления. Для того чтобы позволить теплу покинуть ячейку моделирования, на границах используется термостат Берендсена.

Кристалл генерируется при 0 К, а затем постепенно нагревается до 300 К с периодическими граничными условиями во всех направлениях. Для обеспечения теплового расширения решетки в процессе нагрева применяется баростат Берендсена. Затем контроль давления и периодическое граничное условие в направлении  $z$  отключаются для релаксации поверхности при 300 К. Подготовленная таким образом мишень используется для всех дальнейших расчётов.

Угловые распределения распылённых атомов рассчитываются исходя из направлений скоростей в конце моделирования. Некоторые атомы распыляются в виде димеров, тримеров и более крупных кластеров. Для таких структур вычисляется скорость их центра

масс. Угловое распределение атомов делится на  $\sin \theta$  (где  $\theta$  – угол распыления, отсчитываемый от нормали) для сравнения с результатами эксперимента, полученными с помощью метода цилиндрического коллектора [11]. В данном экспериментальном методе распылённые атомы переосаждаются на полумонокристаллический коллектор, расположенный перед образцом, и далее коллектор анализируется с помощью метода спектрометрии резерфордского обратного рассеяния [12].

Проведено две серии моделирования. В первой серии каждый кластер попадает в новую идеальную поверхность решетки Мо. Для каждого расчёта прицельный параметр выбирается случайным образом в пределах параметра решетки. Для получения достаточной статистики для углового распределения были проведено от 500 до 1000 расчётов для каждого размера кластера. Время моделирования составляет от 10 до 20 пс, и выбирается таким образом, чтобы завершились все процессы релаксации и переосаждения.

Вторая серия расчётов учитывает эволюцию морфологии поверхности при бомбардировке кластерными ионами. Производится моделирование серии столкновений в условиях, близких к реальному эксперименту. Размер кластера выбирается случайным образом с вероятностью, основанной на экспериментальном распределении размеров кластера в пучке. Он имеет максимум около 1000 атомов, при этом из пучка удаляются небольшие кластеры размером до 50 атомов. Кластер сгенерированного размера размещается над центром мишени, а мишень случайным образом смещается в направлениях  $x$  и  $y$  в пределах размера ячейки моделирования с учетом периодических граничных условий. Столкновение моделируется в течение 15 пс, затем атомы Ag и распыленные атомы Мо удаляются, и полученная решетка релаксирует при 300 К в течение 12 пс.

## Результаты

Для каждой серии были рассчитаны угловые распределения распыленных атомов. Угловое распределение, полученное в первой серии, представлено на рис. 1. Оно основано на 1000 столкновениях для кластеров с разме-

рами 200 и 700 атомов. Оба распределения имеют максимум около 55–65 градусов. Распределение для большего размера кластера смещено в сторону больших углов. При размерах кластера выше 700 распыление практически не наблюдается, так как энергия, приходящаяся на 1 атом кластера становится слишком малой. Таким образом, при моделировании отдельных соударений кластера с мишенью во всём диапазоне размеров кластера наблюдаются латеральные угловые распределения распылённых атомов.

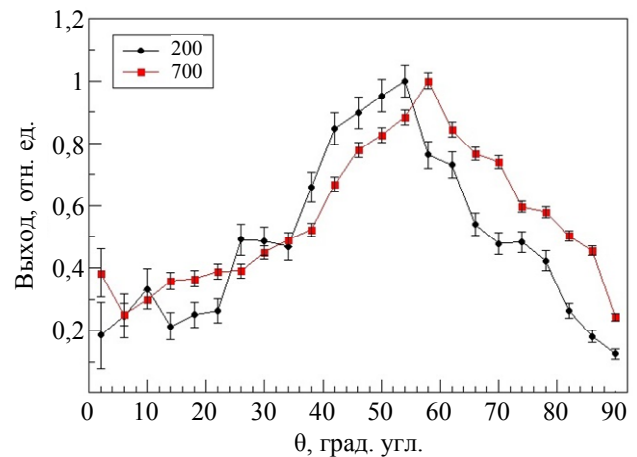
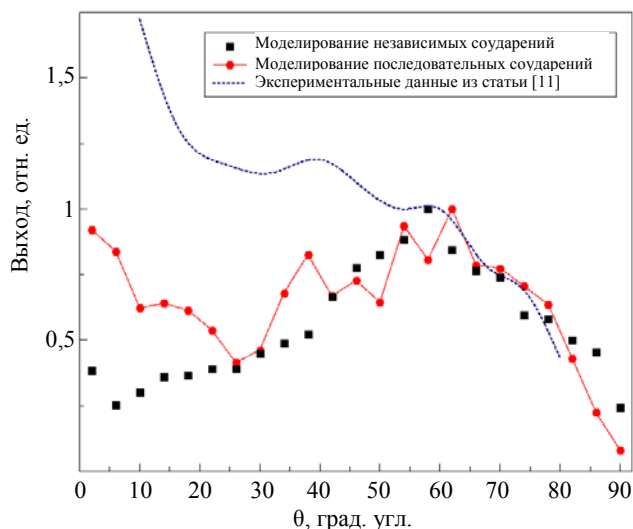


Рис. 1. Угловые распределения атомов Мо, распылённых пучком кластеров  $Ar_{200}$  и  $Ar_{700}$  при попадании каждого кластера в новую идеальную поверхность.

Во второй серии моделирования угловое распределение было рассчитано для 1000 последовательных соударений, что соответствует флюенсу  $10^{14}$  см<sup>-2</sup>. На рис. 2 представлено сравнение угловых распределений, полученных во второй серии моделирования, в первой серии для размера кластера 700 атомов и в эксперименте из работы [11]. Нормировка проведена таким образом, что выход распылённых в латеральном максимуме принят за единицу. При моделировании последовательных соударений наблюдается увеличенный выход распыленных атомов при углах, близких к направлению нормали к поверхности, что качественно согласуется с экспериментальными результатами для распыления молибдена в работе [11]. Вклад в формирование угловых распределений вносит множество факторов, этим объясняется неточное совпадение результатов расчётов с экспериментальными данными, однако показано, что рельеф поверхности и его эволюция в процессе

облучения играет значительную роль в этом процессе.



**Рис. 2.** Угловые распределения распыленных атомов Mo под действием облучения пучком кластерных ионов Ar с энергией 10 кэВ при нормальном падении пучка.

Каждый удар кластера образует дефекты на поверхности в форме кратеров. По мере увеличения количества упавших кластеров формируется шероховатая поверхность. Эффект сглаживания поверхности для большинства материалов наступает при флюенсах более  $10^{15} \text{ см}^{-2}$  [14], что значительно больше, чем в произведённых расчётах.

### Заключение

Продемонстрировано различие угловых распределений распылённых атомов, полученное в различных режимах моделирования взаимодействия ускоренного кластера с поверхностью твёрдого тела. Первый метод применим для изучения фундаментальных зависимостей от различных параметров, таких как размер или энергия кластера. Вторым методом – моделирование последовательных соударений – позволяет получать более сопоставимые с экспериментальными данными результаты. Также в этом режиме возможно исследовать изменение морфологии поверхности при облучении твердого тела пучком

газовых кластерных ионов. Показано, что шероховатость поверхности влияет на форму угловых распределений: для шероховатой поверхности наблюдается увеличенный выход распылённых атомов по нормали.

*Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 18-32-00725.*

### ЛИТЕРАТУРА

1. Куреев Д. С., Данилов А. В., Иешкин А. Е., Черныш В. С. // Вестник Рязанского государственного радиотехнического университета. 2018. № 66. Часть 2. Р. 40.
2. Ziegler J. F., Biersack J. P. The Stopping and Range of Ions in Matter. Treatise on Heavy-Ion Science. – New York: Springer Science+Business Media, 1985.
3. Aoki T., Matsuo J., Insepov Z., Yamada I. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. 1997. Vol. 121. P. 49.
4. Insepov Z., Yamada I. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. 1995. Vol. 99. P. 248.
5. Nazarov A. V., Chernysh V. S., Nordlund K., Djurabekova F., Zhao J. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. 2017. Vol. 406. P. 518.
6. Shemukhin A. A., Stepanov A. V., Nazarov A. V., Balakshin Y. V. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. DOI: 10.1016/j.nimb.2019.03.055
7. Nordlund K. // Comp. Mast. Sci. 1995. Vol. 3. P. 448.
8. Воеводин Вл. В., Жуматий С. А., Соболев С. И., Антонов А. С., Брызгалов П. А., Никитенко Д. А., Стефанов К. С., Воеводин Вад. В. // Открытые системы. 2012. № 7. С. 36.
9. Salonen E., Jarvi T., Nordlund K., Keinonen J. // Phys. Cond. Matt. 2003. Vol. 15. P. 5845.
10. Nordlund K., Runeberg N., Sundholm D. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. 1997. Vol. 132. P. 45.
11. Chernysh V. S., Ieshkin A. E., Ermakov Y. A. // Applied Surface Science. 2015. Vol. 326. P. 285.
12. Балакишин Ю. В., Шемухин А. А., Назаров А. В., Кожемяко А. В., Черныш В. С. // Журнал технической физики. 2018. Т. 88. № 12. С. 1900.
13. Toyoda N., Kitani H., Hagiwara N., Aoki T., Matsuo J., Yamada I. // Mater. Chem. Phys. 1998. Vol. 54. P. 262.
14. Иешкин А. Е., Кушкина К. Д., Куреев Д. С., Ермаков Ю. А., Черныш В. С. // Письма в журнал технической физики. 2017. № 2. С. 18.

## Molecular dynamics simulation of Mo sputtering by the Ar gas cluster ion beam

A. V. Nazarov and A. D. Zavilgelskiy

Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics (SINP MSU)  
1 (2), Leninskie gory, GSP-1, Moscow 119991, Russia  
E-mail: av.nazarov@physics.msu.ru

Received March 25, 2019

***Molecular dynamics simulation of gas cluster ion beam interaction with solid is presented in this paper. The projectile is an Ar cluster ion with the energy of 10 keV and the size from 50 to 2000 atoms. The target is a Mo single crystal at room temperature. The incident direction is normal to the lattice (100) surface. Two series of simulation with different parameters were performed. In the first series each cluster ion impacts the virgin crystal surface. In the second series the sequence of cluster impacts is simulated, taking into account the surface evolution due to the bombardment and the experimentally measured cluster size distribution. PARCAS molecular dynamics code was used for the simulations. Angular distributions of sputtered atoms were calculated for 1000 independent collisions and 2000 consequent collisions. It is shown that the surface roughness in the second approach influences the shape of the angular distributions. The benefits of using sequence simulation are shown.***

*Keywords:* molecular dynamics, sputtering, angular distributions, cluster ions.

### REFERENCES

1. D. S. Kireev, A. V. Danilov, A. E. Ieshkin, and V. S. Chernysh, Ryazan State Radiotechnical University Bulletin, No. 66 (2), 40 (2018).
2. J. F. Ziegler and J. P. Biersack, The Stopping and Range of Ions in Matter. Treatise on Heavy-Ion Science (New York: Springer Science+Business Media, 1985).
3. T. Aoki, J. Matsuo, Z. Insepov, and I. Yamada, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. **121**, 49 (1997).
4. Z. Insepov and I. Yamada, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. **99**, 248 (1995).
5. A. V. Nazarov, V. S. Chernysh, K. Nordlund, F. Djurabekova, and J. Zhao, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. **406**, 518 (2017).
6. A. A. Shemukhin, A. V. Stepanov, A. V. Nazarov, and Y. V. Balakshin, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. DOI: 10.1016/j.nimb.2019.03.055
7. K. Nordlund, Comp. Mast. Sci. **3**, 448 (1995).
8. V. Sadovnichy, A. Tikhonravov, V. Voevodin, and V. Opanasenko, "Lomonosov": Supercomputing at Moscow State University. In *Contemporary High Performance Computing: From Petascale toward Exascale* (Chapman & Hall/CRC Computational Science), pp. 283–307, Boca Raton, USA, CRC Press, 2013.
9. E. Salonen, T. Jarvi, K. Nordlund, and J. Keinonen, Phys. Cond. Matt. **15**, 5845 (2003).
10. K. Nordlund, N. Runeberg, and D. Sundholm, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. **132**, 45 (1997).
11. V. S. Chernysh, A. E. Ieshkin, and Y. A. Ermakov, Applied Surface Science **326**, 285 (2015).
12. Yu. V. Balakshin, A. A. Shemukhin, A. V. Nazarov, A. V. Kozhemiako, and V. S. Chernysh, Technical Physics **12**, 1900 (2018).
13. N. Toyoda, H. Kitani, N. Hagiwara, T. Aoki, J. Matsuo, and I. Yamada, Mater. Chem. Phys. **54**, 262 (1998).
14. A. E. Ieshkin, K. D. Kushkina, D. S. Kireev, Yu. A. Ermakov, and V. S. Chernysh, Technical Physics Letters **2**, 18 (2017).