

На правах рукописи



Николаев Иван Владимирович

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ  
ИОНИЗОВАННЫХ КЛАСТЕРОВ АРГОНА С ПОВЕРХНОСТЬЮ  
ОПТИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ**

1.1.9. Механика жидкости, газа и плазмы

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Новосибирск – 2021

Работа выполнена в Федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Новосибирский национальный исследовательский государственный университет».

**Научный руководитель:** кандидат физико-математических наук Коробейщиков Николай Геннадьевич

**Официальные оппоненты:**

Быков Николай Юрьевич, доктор физико-математических наук, Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Санкт-Петербургский политехнический государственный университет имени Петра Великого», профессор кафедры физики, ведущий научный сотрудник Научно-исследовательского отдела вычислительной физики сложных систем, г. Санкт-Петербург.

Мионов Сергей Григорьевич, доктор физико-математических наук, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт теоретической и прикладной механики им. С.А. Христиановича Сибирского отделения Российской академии наук, главный научный сотрудник Лаборатории № 13 Физических проблем управления газодинамическими течениями, г. Новосибирск.

**Ведущая организация:**

Институт физики микроструктур РАН – филиал Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики Российской академии наук», г. Нижний Новгород.

Защита состоится «06» апреля 2022 г. в 9 часов 30 минут на заседании совета по защите диссертаций на соискание ученой степени кандидата наук, на соискание ученой степени доктора наук 24.1.129.01 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте теплофизики им. С.С. Кутателадзе Сибирского отделения Российской академии наук по адресу: 630090, г. Новосибирск, пр. академика Лаврентьева, 1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН, <http://www.itp.nsc.ru/>.

Отзыв на автореферат в двух экземплярах, заверенный печатью учреждения, просьба направлять на имя ученого секретаря совета по защите диссертаций на соискание ученой степени кандидата наук, на соискание ученой степени доктора наук 24.1.129.01 по адресу: 630090, г. Новосибирск, проспект Академика Лаврентьева, 1 (факс: (383) 330-84-80, e-mail: dissovet@itp.nsc.ru)

Автореферат разослан « \_\_\_\_ » \_\_\_\_\_ 2022 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета  
д.ф.-м.н., профессор РАН



Терехов Владимир Викторович

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### Актуальность темы

Результаты, полученные в последние годы, показали, что газофазные ускоренные ионно-кластерные пучки (gas cluster ion beam, GCIB) являются перспективным инструментом модификации и диагностики поверхности различных материалов. Ионно-кластерные пучки эффективно применяются для сглаживания и травления поверхностей различных материалов, масс-спектрометрии вторичных ионов (МСВИ) и рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) органических и неорганических материалов. За счёт изменения как энергии, так и размеров кластеров (состоящих от сотен до тысяч атомов) можно сформировать интенсивный поток частиц с очень малой энергией, приходящийся на один атом в кластере (единицы эВ), сравнимой с энергией связи частиц на поверхности, что практически невозможно для мономерного ионного пучка из-за кулоновского расталкивания. Взаимодействие кластерных ионов с твердым телом сопровождается высоким локальным энерговыделением и приводит к распылению атомов мишени преимущественно вдоль поверхности мишени. Это позволяет получать сверхгладкие поверхности с малым (единицы нм) повреждением приповерхностной структуры обрабатываемого материала даже сверхтвердых материалов, таких как поликристаллический алмаз и карбид кремния.

В современной оптике большую роль играет качество поверхности оптических материалов. Одними из перспективных направлений являются рентгеновская многослойная оптика и коротковолновая оптика дифракционного качества и оптика высокомошных лазерных систем. Благодаря своим уникальным оптическим и физико-механическим свойствам, нелинейно-оптические (НЛО) монокристаллы широко используются в современной технике, интегральной оптике, фотонике для преобразования и управления лазерным излучением. В результате технологической обработки материала неизбежно формируется приповерхностный поврежденный слой (subsurface damage, SSD), который является областью повышенной концентрации как механических дефектов, так и примесных химических загрязнений. Несмотря на то, что современные методики обработки позволяют получать сверхгладкие поверхности с нанометровым уровнем шероховатости, толщина

поврежденного слоя в таких условиях составляет десятки или сотни нанометров. Считается, что именно поврежденный слой является основным фактором, определяющим ключевые характеристики оптических элементов: порог лазерного повреждения (laser-induced damage threshold, LIDT), срок службы оптического элемента, и др.

В настоящее время наноструктуризация функциональных поверхностей признана полноправным инструментом управления свойствами различных материалов: смачиванием, адгезией, термической и/или электрической проводимостью, оптической активностью и др. Одним из перспективных способов наноструктурирования являются самоорганизующиеся структуры, формирующиеся при бомбардировке поверхности ионным пучком при наклонных углах падения. Обработка традиционными ионами-мономерами проводится при энергиях частиц 1 кэВ и выше, что неизбежно приводит к значительному повреждению структуры мишени. В случае кластерных ионов, процессы столкновения существенно отличаются от эффектов для мономерных пучков, поэтому механизм формирования наноструктур не могут быть описаны известными моделями (Bradley-Harper, Carter-Vishnyakov и др.). Публикации по использованию кластерных ионов для формирования наноструктур немногочисленны, а для нелинейно-оптических кристаллов – отсутствуют.

В связи со всем вышеизложенным, апробация метода обработки поверхности оптических материалов с использованием газоструйного ионно-кластерного пучка аргона для получения сверхгладких поверхностей и формирования наноструктур является актуальной задачей. Очевидно, для оптимизации эффективности процессов важно понимать механизм распыления поверхности в различных условиях, в том числе при различных параметрах кластеров и режимах обработки.

**Целью работы** является экспериментальное исследование формирования газоструйного пучка ионизированных кластеров аргона с заданными параметрами и установление закономерностей его взаимодействия с поверхностью оптических материалов.

Для достижения данной цели поставлены и решены следующие **задачи**:

1. Определить условия формирования пучка ионизированных кластеров с заданными параметрами: средний размер кластеров  $N_{mean} = 100-1000$  атомов/кластер, полная кинетическая энергия кластеров  $E$  до 22 кэВ.

2. Исследовать характеристики ионно-кластерного пучка аргона (интенсивность, функции распределения по размерам кластеров) при различных условиях формирования кластеров.

3. Провести комплексный анализ эффективности воздействия кластерных ионов (коэффициенты распыления, скорости травления) на поверхность оптических материалов при различных параметрах кластеров и различных условиях облучения: угол падения  $0-80^\circ$ , доза облучения от  $10^{12}$  до  $10^{17}$  кластерных ионов/см<sup>2</sup>.

4. Выявить закономерности взаимодействия несепарированного по размерам ионно-кластерного пучка аргона с поверхностью оптических материалов и изменения морфологии мишени.

**Объектами исследования** являются ионизованные кластеры аргона, взаимодействующие с поверхностью оптических материалов, в частности: плавленого кварца, оптического стекла и нелинейных монокристаллов: КТР (КТiОPO<sub>4</sub>, титанил-фосфат калия), LBO (LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>, триборат лития), ВВО ( $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, бета-борат бария). Эти монокристаллы обладают превосходными оптическими характеристиками, благодаря чему являются наиболее широко используемыми для различных приложений: для преобразования частоты излучения мощных лазеров, электрооптической модуляции и параметрической генерации излучения видимого и инфракрасного диапазонов, создания элементов интегральной оптики и др.

**Предметом исследования** являются процессы взаимодействия ускоренных кластерных ионов аргона с поверхностью аморфных и монокристаллических оптических материалов.

#### **Научная новизна:**

1. Предложен параметр – эффективный средний размер кластеров, который позволяет сравнивать эффективность воздействия сепарированного и несепарированного ионно-кластерных пучков.

2. Доказано, что энергия, приходящаяся на один атом в кластере,  $E/N$  является одним из определяющих и универсальных параметров распыления поверхности оптических материалов несепарированным по размерам ионно-кластерным пучком аргона. Показано, что используя параметр удельной энергии кластеров  $E/N$ , можно обобщить коэффициенты распыления поверхности оптических материалов от удельной энергии  $E/N$ , как при нормальном, так и при наклонном падении кластеров.

3. Установлено, что последовательное уменьшение удельной энергии кластеров  $E/N$  обеспечивает эффективное сглаживание неровностей с латеральными размерами 5 мкм и менее.

4. Обнаружено, что при больших дозах облучения взаимодействие кластерных ионов с поверхностью гигроскопичных монокристаллов LBO и ВВО приводит к аномальному распылению – формированию кратеров с диаметром до 500 нм, что почти на два порядка больше диаметра ударного кратера от кластера. Предложен механизм, описывающий аномальное распыление.

5. Экспериментально показано, что при наклонном падении кластерные ионы с низкой удельной энергией  $E/N \approx 10$  эВ/атом наиболее эффективно формируют периодические наноструктуры на поверхности мишени, что объясняется малым распылением и интенсивным перемещением материала в приповерхностном слое мишени. Установлено что, варьируя массовый поток частиц и удельную энергию кластеров, можно регулировать характеристики периодических наноструктур.

**Теоретическая и практическая значимость.** Приведённые в работе данные по сглаживанию, распылению и формированию самоупорядоченных наноструктур позволяют получить фундаментальные знания о механизмах взаимодействия ионно-кластерного пучка с твёрдым телом благодаря вариации широкого спектра условий: угла падения, дозы облучения и различных параметров кластерных ионов. Полученные результаты демонстрируют как качественные (АСМ-изображения), так и количественные (амплитудные и спектральные параметры шероховатости, глубина травления) изменения морфологии поверхности. Получены обобщающие критерии, позволяющие сравнивать процессы распыления сепарированными и несепарированными ионно-кластерными пучками.

Результаты востребованы в производстве приборов и устройств управления лазерным излучением, т.к. являются основой для создания новой технологии суперфинишной обработки поверхности нелинейных монокристаллов, позволяющей существенно улучшить рабочие характеристики выпускаемого оборудования. Благодаря результатам по формированию самоупорядоченных наноструктур, можно подобрать оптимальные режимы обработки для получения наноструктур с определёнными параметрами (амплитудой и периодом).

### **Основные положения, выносимые на защиту:**

1. Результаты исследования влияния различных условий формирования на характеристики ускоренного ионно-кластерного пучка аргона.

2. Понятие эффективного среднего размера кластеров, позволяющее сравнивать воздействия сепарированного и несепарированного ионно-кластерных пучков.

3. Результаты экспериментального исследования особенностей взаимодействия кластерных ионов аргона с поверхностью оптических материалов, приводящих к сглаживанию, эффекту аномального распыления, либо формированию самоупорядоченных наноструктур.

4. Обобщённые зависимости коэффициентов распыления оптических материалов от удельной кинетической энергии кластеров при нормальном и наклонном падении ионно-кластерного пучка аргона.

**Достоверность результатов** обеспечивается: использованием современных измерительных методик, анализом погрешностей измерений, сравнением с экспериментальными и теоретическими результатами других исследователей, проведением тестовых и калибровочных измерений, воспроизводимостью результатов.

**Личный вклад автора** состоял в постановке и проведении серии экспериментов в составе научного коллектива, самостоятельной обработке экспериментальных данных, анализе и интерпретации результатов, а также подготовке докладов и тезисов для конференций, написании статей для публикации в рецензируемых журналах.

**Апробация работы.** Основные результаты диссертации докладывались и обсуждались на следующих конференциях: Russia-Japan conference “Advanced Materials: Synthesis, Processing and Properties of Nanostructures – 2016” (October 30 – November 3, 2016, Novosibirsk, Russia); 7-й международной научно-технической конференции «Техника и технология нефтехимического и нефтегазового производства» (24-28 апреля 2017 г., Омск, Россия); Всероссийской конференции с международным участием «Физика низкотемпературной плазмы» (5-9 июня 2017 г., Казань, Россия) XXIV научно-технической конференции с участием зарубежных специалистов «Вакуумная наука и техника» (16-23 сентября 2017 г., Судак, Россия); Всероссийской конференции с элементами научной школы для молодых учёных «XXXIV Сибирский теплофизический семинар» (27-

30 августа 2018 г., Новосибирск, Россия); 6<sup>th</sup> International Congress “Energy Fluxes and Radiation Effects” (September 16-22, 2018, Tomsk, Russia); 24-й Международной конференции «Взаимодействие ионов с поверхностью» (19-23 августа 2019 г., Москва, Россия); Всероссийской конференции с элементами научной школы для молодых учёных «XXXV Сибирский теплофизический семинар» (27-29 августа 2019 г., Новосибирск, Россия), 7<sup>th</sup> International Congress “Energy Fluxes and Radiation Effects” (September 14-26, 2020, Tomsk, Russia), Online Conference on Charged-Particle Sources & Beams (October 22, 2020, Wuhan, China).

**Публикации.** Список публикаций по теме диссертации включает 23 работы, в том числе 11 статей в рецензируемых журналах, рекомендованных ВАК для представления основных результатов диссертации, 1 патент РФ на изобретение, 11 материалов и тезисов конференций.

**Объем и структура диссертации.** Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения и списка литературы. Работа изложена на 127 страницах печатного текста, включая 75 рисунка, 13 таблиц, библиографический список из 140 наименований работ.

## ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность темы исследования, сформулированы цели и задачи работы, научная новизна, практическая значимость результатов, представлены основные положения, выносимые на защиту, обоснована достоверность результатов и описан личный вклад автора работы.

В **первой главе** приведен детальный литературный обзор экспериментальных и численных исследований по взаимодействию ионно-кластерных пучков благородных газов с поверхностью различных материалов. В *первом разделе* описаны основные принципы формирования ускоренных пучков кластерных ионов. На рисунке 1 показана общая схема формирования ионно-кластерного пучка, начиная от образования нейтральных кластеров при сверхзвуковом истечении с последующей эффективной их ионизацией, формированием ускоренного ионно-кластерного пучка, и заканчивая транспортировкой кластерных ионов к поверхности мишени.



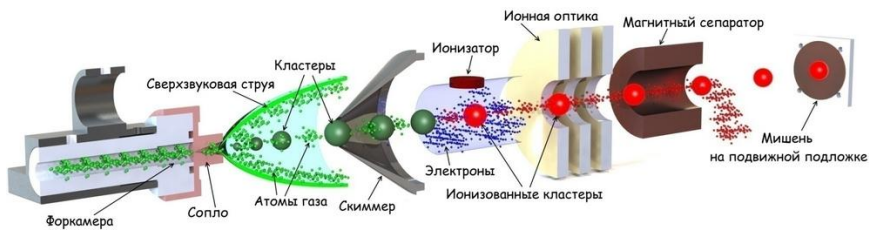


Рис. 1. Общая схема формирования ионно-кластерного пучка.

Во *втором разделе* рассматривается взаимодействие кластерных ионов с твердым телом при нормальном падении кластеров как при изолированных столкновениях отдельных кластеров с поверхностью мишени, так и при массовой бомбардировке. В результате изолированных столкновений кластерных ионов с поверхностью, которые происходят при дозах менее  $10^{12}$  ионов/см<sup>2</sup>, формируются ударные кратеры, к особенностям которых можно отнести, как правило, формирование «брустверов» и корреляцию формы кратеров с кристаллическими осями материала мишени.

В отличие от ионных пучков мономеров, индикатриса рассеяния атомов которых проявляет симметричный характер, массовая бомбардировка кластерных ионов приводит к распылению атомов мишени преимущественно вдоль поверхности, что является одной из причин эффекта сглаживания при нормальном падении кластеров.

*Третий раздел* посвящен взаимодействию кластерных ионов с твердым телом при наклонном падении кластеров. При таких условиях индикатриса рассеяния атомов имеет явно выраженный несимметричный характер. Это приводит к несимметричному смещению атомов вдоль направления падения кластеров и к формированию более выраженного фронтального бруствера.

Важнейшим универсальным параметром воздействия кластерных ионов на поверхность материалов является коэффициент распыления  $Y$ , который определяется соотношением количества распыленных атомов мишени к числу упавших частиц:

$$Y = N_{out} / N_{in} \quad (1)$$

где  $N_{OUT}$  – суммарное количество распыленных атомов мишени при бомбардировке кластерами  $Ag^+$ ;  $N_{IN}$  – суммарное количество кластерных ионов  $Ag^+$  за время экспозиции.

Не так давно в работах [M.P. Seah, 2013] (формула 2) и [P.J. Cumpson et al., 2013] (формула 3) было показано, что коэффициент распыления можно обобщить, используя зависимость удельного коэффициента распыления от удельной энергии кластера, т.е. коэффициента распыления и энергии, приходящихся на 1 атом в кластере.

$$\frac{Y}{N} = \frac{(E/(AN))^q}{1+(E/(AN))^{q-1}} \quad (2)$$

$$\frac{Y}{N} = EA \left[ 1 + \operatorname{erf} \frac{E-U}{s} \right] \quad (3)$$

где  $N$  – размер кластерных ионов, атомы;  $E$  – энергия кластерных ионов, эВ;  $A$ ,  $q$ ,  $U$ ,  $s$  – константы для конкретных материалов.

Это обобщение означает, что кластерные ионы, имеющие разные размеры  $N$  и разные энергии  $E$ , но при этом одинаковые удельные энергии  $E/N$  – дают одинаковый удельный коэффициент распыления  $Y/N$ .

Стоит отметить, что при наклонном падении, как мономерного ионного пучка, так и ионно-кластерного пучка, на поверхности мишени формируются самоупорядоченные наноструктуры. Анализ литературы показал, что максимально упорядоченные наноструктуры наблюдаются вблизи угла падения ионов  $60^\circ$ . С увеличением дозы облучения, наблюдается увеличение периода и амплитуды наноструктур. Необходимо отметить, что результаты по формированию наноструктур ионно-кластерными пучками при различных параметрах кластеров отсутствуют.

В *четвертом разделе* отдельное внимание уделено глубине повреждения ионизованными кластерами, которая составляет единицы нанометров. Это на два порядка ниже нарушенного приповерхностного слоя, который неизбежно формируется при различных видах обработки поверхности материала.

Во **второй главе** представлено описание инструментария: экспериментального стенда, измерительного оборудования, численных методов анализа базы данных измерений, которые применялись в данном исследовании. В *первом разделе* главы дано описание экспериментального стенда КЛИУС (рисунок 2) и времяпролетной диагностики ионно-кластерного пучка, с помощью которой определялся средний размер кластерных ионов.

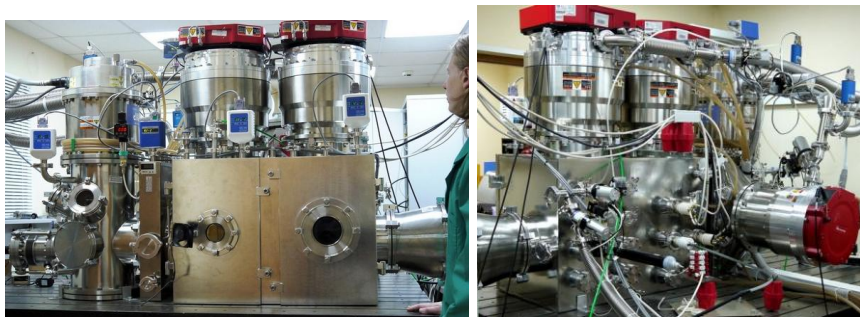


Рис. 2. Общий вид стенда КЛИУС.

*Второй раздел* посвящен диагностическим методикам, характеризующих воздействия кластеров на материалы, в частности, использованию атомно-силовой микроскопии (АСМ) для диагностики топографии материалов до и после взаимодействия кластерных ионов с материалами. Для более подробного описания топографии используется спектральная плотность мощности шероховатости (СПМ или *power spectral density*, PSD). PSD-функция описывает распределение высот в зависимости от пространственной частоты  $\nu$ , которая численно равна обратному расстоянию между различными точками, взятыми на профиле поверхности. Спектральная плотность мощности шероховатости учитывает латеральные параметры неровностей на поверхности, а интегралом данной функции является эффективный параметр шероховатости. PSD-функция особенно важна для оптических материалов, поскольку позволяет описать рассеяние света на их поверхности.

В *третьем разделе* описаны методики определения скорости травления и коэффициента распыления, применяемые в данной работе. С помощью АСМ измеряется глубина травления, т.е. перепад высот на границе обработанной области, которая формируется за счёт маскирования части поверхности образца. Определив объём распылённого материала (через измерения глубины травления и распыляемой площади) и рассчитав дозу облучения кластерных ионов, рассчитывается коэффициент распыления.

**Третья глава** посвящена описанию результатов измерения параметров несепарированного ионно-кластерного пучка. В *первом разделе* описаны результаты исследований распределения кластеров по размерам (массам) при различных условиях (варьируя ток эмиссии, давление торможения, а

также с установленным магнитным сепаратором и при его отсутствии), полученные с помощью времяпролётной диагностики.

*Второй раздел* посвящен определению эффективного размера кластерных ионов, благодаря которому можно охарактеризовать распыление материала несепарированным ионно-кластерным пучком. На рисунке 3 представлены масс-спектры кластерных ионов аргона при разных давлениях торможения  $P_0$ , используемых в рабочих режимах.

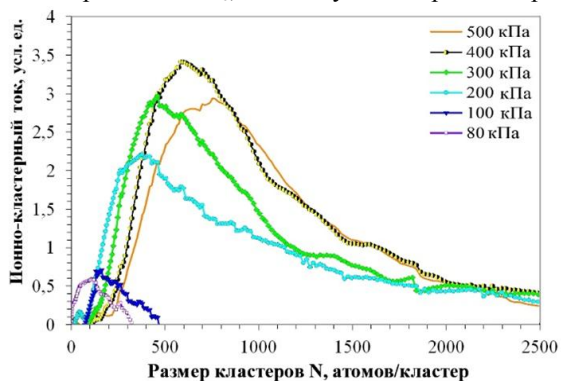


Рис. 3. Масс-спектры ионно-кластерного пучка аргона при разных давлениях торможения, измеренные за магнитным сепаратором.

Распределение кластерных ионов по размерам хорошо аппроксимируется логнормальной функцией:

$$f(N) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}N\sigma} \exp\left(-\frac{(\ln N - \mu)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (4)$$

где  $\sigma$  и  $\mu$  – подгоночные коэффициенты. Мода (максимум) такого распределения определяется как  $N_{peak} = \exp(\mu - \sigma^2)$ , а средний размер кластеров равен  $N_{mean} = \exp(\mu + \sigma^2/2)$ .

Очевидно, что кластеры, имеющие одинаковую кинетическую энергию, но разные размеры, имеют разные коэффициенты распыления мишени. Чтобы охарактеризовать распыление материала несепарированным ионно-кластерным пучком, предлагается использовать эффективное распределение кластеров по размерам. Зная зависимость коэффициента распыления от размера кластера  $Y(N)$  (2), эффективное распределение кластеров по размерам  $f_{eff}(N)$  можно получить как свёртку двух функций:

$$f_{eff}(N) = \int Y(N + \tau) f(N) d\tau \quad (5)$$

Результирующее распределение  $f_{eff}(N)$  также хорошо согласуется с логнормальным распределением, из которого можно определить эффективную моду распределения  $N_{peak}^{eff}$  и эффективный средний размер кластера  $N_{mean}^{eff}$ . На рисунке 4 показан результат для давления торможения  $P_0 = 500$  кПа. Данные параметры  $N_{peak}^{eff}$  и  $N_{mean}^{eff}$ , соответствующие рабочим режимам, показаны в Таблице 1.

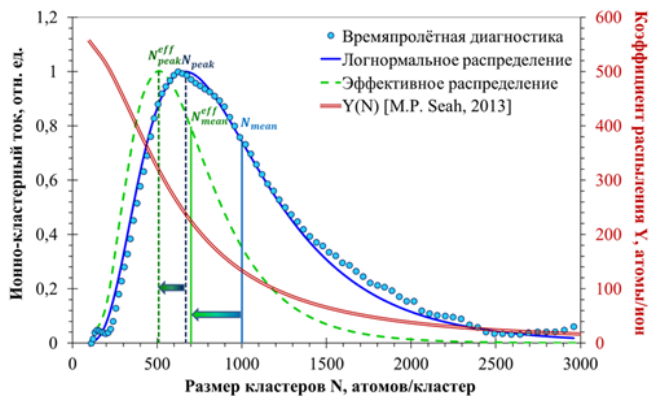


Рис. 4. Логнормальное и эффективное распределения кластеров по размеру.

Таблица 1 – Параметры распределений кластеров по размеру

$P_0$ , кПа	Времяпролётная диагностика		Эффективное распределение	
	$N_{peak}$ атомов/кластер	$N_{mean}$ атомов/кластер	$N_{peak}^{eff}$ атомов/кластер	$N_{mean}^{eff}$ атомов/кластер
80	115	170	110	160
100	150	210	140	200
150	280	310	240	260
200	370	600	310	460
300	510	800	410	580
400	590	870	470	640
500	660	1000	510	710

Значения эффективного среднего размера кластеров  $N_{mean}^{eff}$ , определенные таким образом, были использованы для расчета удельных коэффициентов распыления несепарированного ионно-кластерного пучка и дальнейшего их сравнения с удельными коэффициентами распыления сепарированного ионно-кластерного пучка.

Исследованы распределения плотности тока ионно-кластерного пучка в различных режимах. На рисунке 5 продемонстрирован поперечный профиль плотности тока пучка ионизованных кластеров для одного из режимов.

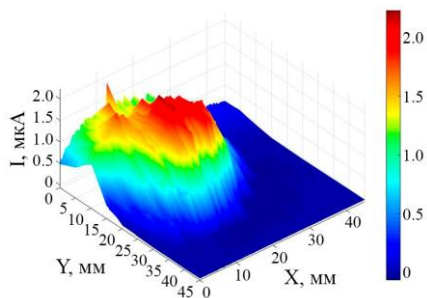


Рис. 5. Распределение плотности тока ионно-кластерного пучка при давлении торможения  $P_0 = 500$  кПа и энергии кластеров  $E = 22$  кэВ.

**Четвертая глава** посвящена описанию результатов взаимодействия кластерных ионов с оптическими материалами.

В *первом разделе* представлены экспериментальные результаты бомбардировки кластерами аморфных материалов. Продемонстрировано сравнение результатов сглаживания поверхности плавленого кварца при разных дозах облучения в одном режиме бомбардировки и при одинаковой дозе облучения кластерных ионов в трёх различных режимах. Показано, что режим бомбардировки с параметрами кластеров  $E = 11$  кэВ и  $N_{mean} = 800$  атомов/кластер наиболее эффективно снижает интегральный эффективный параметр шероховатости  $\sigma_{eff}^{total}$  – на 20%.

На рисунке 6 приведены обобщённые данные по распылению поверхности  $SiO_2$  кластерными и мономерными ионами. Как видно, коэффициенты распыления для сепарированных (из литературных источников) и несепарированных ионно-кластерных пучков имеют аналогичную тенденцию и обобщаются нелинейной зависимостью

$Y/N(E/N)$ . С увеличением энергии атома в кластере  $E/N$  разница значений удельных коэффициентов распыления  $Y/N$  между нормальным и наклонным падением кластеров уменьшается. При энергии на атом в кластере около 100 эВ и выше коэффициент распыления  $Y/N$  имеет тенденцию к линейной зависимости от  $E/N$ .

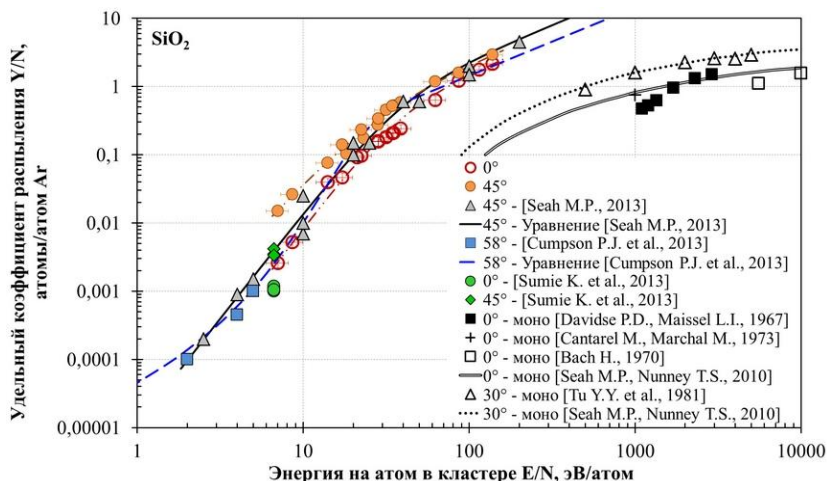


Рис. 6. Обобщённые данные по удельному коэффициенту распыления  $\text{SiO}_2$  в зависимости от энергии атома в кластере и энергии мономерных ионов.

Также были проанализированы зависимости скорости травления  $\langle v \rangle$  от параметров кластерных ионов. На рисунок 7 приведены обобщённые данные по скорости травления поверхности  $\text{SiO}_2$  кластерными и мономерными ионами. Пучки с различными средними размерами кластеров фокусируются по-разному, поэтому, для корректного сравнения, скорости травления в разных режимах были пересчитаны для одинаковой плотности тока  $j = 1 \text{ мкА/см}^2$ .

Скорость травления  $\langle v \rangle$  изменяется нелинейно и увеличивается на 2 порядка при изменении удельной энергии кластера в 26 раз. При сравнении с мономерным ионным пучком видно, что ионно-кластерный пучок обладает такими же коэффициентами распыления и скоростями травления при меньшей удельной энергии, что, очевидно, приводит к меньшему повреждению поверхности при бомбардировке.

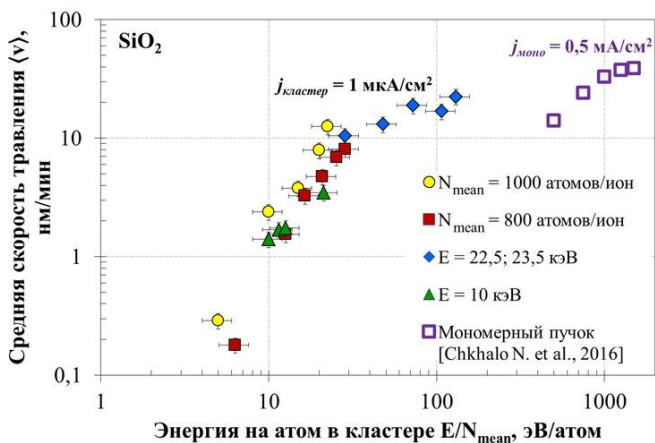


Рис. 7. Зависимость скорости травления от удельной энергии кластера.

*Второй раздел* посвящён результатам бомбардировки нелинейно-оптических материалов кластерными ионами. Наиболее наглядным примером является сглаживание ионно-кластерным пучком аргона монокристалла КТР в комбинированном режиме (сначала  $E/N_{mean} = 15$ , затем  $12,5$  эВ/атом Ar). В Таблице 2 приведены усреднённые значения шероховатости до и после бомбардировки кластерными ионами. На рисунке 8 видно, что шероховатость заметно уменьшилась, особенно на масштабе  $2 \times 2$  мкм<sup>2</sup>, где максимальная высота неровностей  $R_t$  составляет всего  $\approx 0,9$  нм.

Результаты, полученные в данной работе, доказывают эффективность сглаживания ионно-кластерным пучком аргона поверхности как аморфных, так и монокристаллических оптических материалов.

Таблица 2 – Шероховатость поверхности монокристаллов КТР до и после бомбардировки ионно-кластерным пучком аргона

Размеры области сканирования, мкм <sup>2</sup>	Исходная		После бомбардировки	
	$\langle R_q \rangle$ , нм	$\langle \sigma_{eff} \rangle$ , нм	$\langle R_q \rangle$ , нм	$\langle \sigma_{eff} \rangle$ , нм
100×100	0,28	0,28	0,25	0,24
40×40	0,26	0,30	0,25	0,22
2×2	0,28	0,27	0,12	0,10

Примечание.  $\langle R_q \rangle$  – средняя среднеквадратичная шероховатость,  $\langle \sigma_{eff} \rangle$  – средняя эффективная шероховатость.



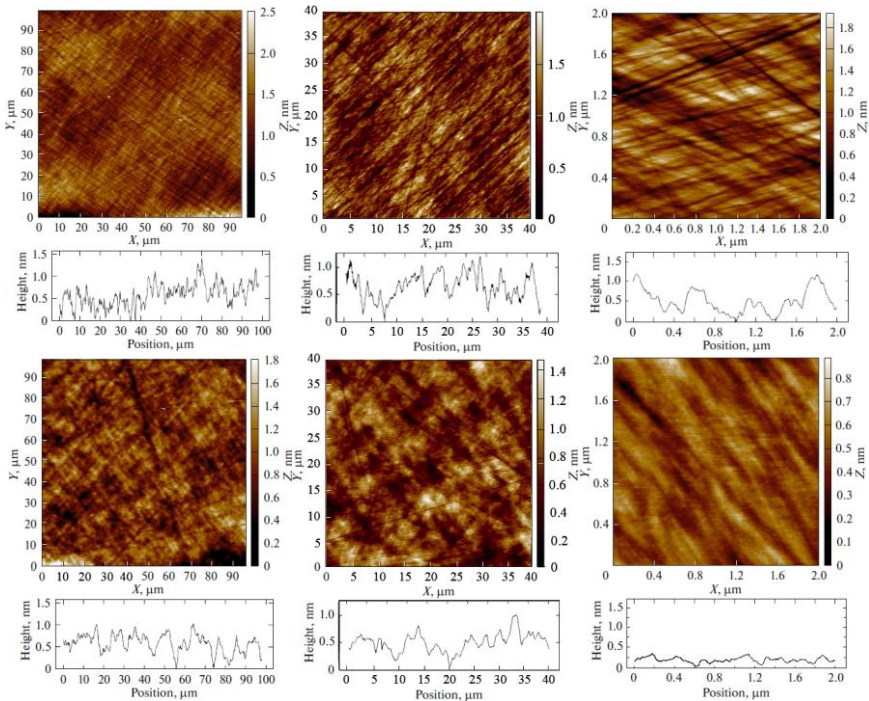


Рис. 8. АСМ-изображения поверхности монокристалла КТР: сверху — до бомбардировки; снизу — после бомбардировки кластерными ионами.

В *следующем подразделе* описано anomalous распыление гигроскопичных нелинейных боратных монокристаллов LBO и ВВО при бомбардировки как в низкоэнергетичном ( $N_{mean} = 1000$  атомов/кластер,  $E = 10$  кэВ), так и в высокоэнергетичном ( $N_{mean} = 210$  атомов/кластер,  $E = 22$  кэВ) режимах. В обоих случаях на поверхности формируются кратеры (рисунок 9) диаметром, превышающим диаметр обычных ударных кратеров кластеров на порядок и более, но почти такой же глубины. Средние диаметры больших кратеров составили 260 и 290 нм при высоко- и низкоэнергетичном режимах, соответственно. Глубина как больших, так и малых кратеров не превышает 10 нм в обоих режимах.

Как видно на рисунке 10, на поверхности монокристаллов ВВО после бомбардировки в режиме высоких удельных энергий также присутствуют кратеры, но менее выраженные, чем на LBO. Максимальная высота неровностей  $R_t$  на исходной поверхности составляет 5 нм, а на

обработанной – 7 нм, за исключением крупных редких царапин, глубина которых достигает  $\approx 20$  нм. Глубина кратеров не превышает 4 нм.

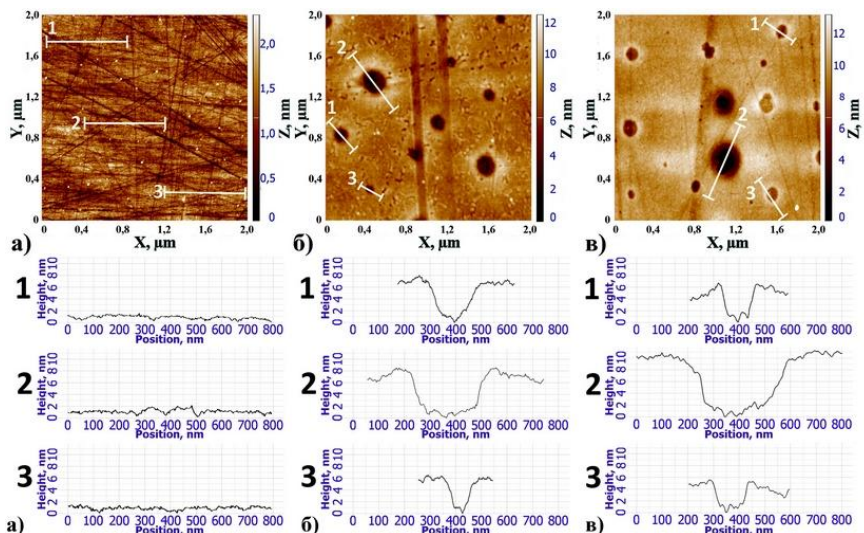


Рис. 9. АСМ-изображения поверхности монокристалла LBO (сверху) и профили исходной поверхности и поперечное сечение кратеров после ионно-кластерной бомбардировки (снизу): а) исходная поверхность, б) после высокоэнергетического режима; в) после низкоэнергетического режима.

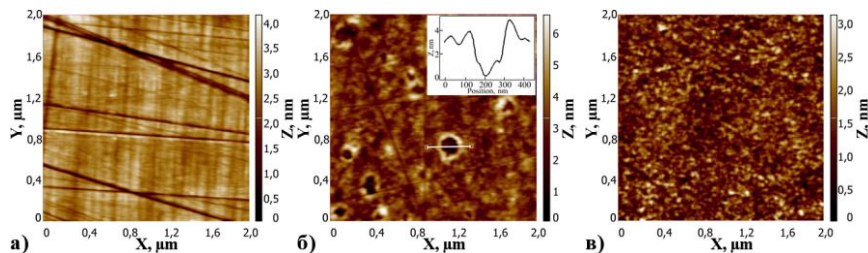


Рис. 10. 2D АСМ-изображения поверхности образца ВВО в масштабе  $2 \times 2 \text{ мкм}^2$ : а) исходная поверхность, б) после высокоэнергетического режима, в) после низкоэнергетического режима.

Учитывая различные материалы и режимы бомбардировки, было предположено, что причиной появления кратеров являются особенности

первоначальной химико-механической полировки гигроскопичных боратных монокристаллов LBO и ВВО с использованием абразивной суспензии на водной основе, которая широко применяется как конечный этап обработки поверхности оптических материалов. Бомбардировка кластерными ионами в тех же режимах специальных образцов LBO (которые предварительно механически полировались суспензией на безводной основе) и ранее показанного негигроскопичного монокристалла КТР (рисунок 8) не приводит к образованию аномальных кратеров при любой дозе облучения.

На основе проведённых экспериментов было выдвинуто предположение, что формирование аномальных кратеров объясняется таким механизмом, как «стимулированный блистеринг», индуцированный кластерными ионами при бомбардировки поверхностей: из-за высокого локального нагрева тонкого приповерхностного слоя кристалла из молекул воды (или, возможно, водорода) образуются пузырьки газов, далее происходит объединение в пузырьки большего размера, а в процессе ионно-кластерного травления газообразные пузырьки выходят на поверхность. Это приводит к аномальному локальному распылению поверхности и образованию кратеров, показанных выше.

**Пятая глава** содержит результаты экспериментального исследования и анализа особенностей взаимодействия ионно-кластерного пучка аргона с поверхностью монокристаллов КТР при наклонном падении кластеров, приводящие к формированию самоупорядоченных наноструктур. Был проведён комплекс экспериментов по формированию наноструктур в различных режимах с вариацией основных параметров: варьируя углы падения кластеров (*раздел 1*), удельную энергию кластерных ионов (*раздел 2*), используя различные режимы с одинаковым массовым потоком атомов аргона и одинаковой глубиной травления (*раздел 3*), используя низкоэнергетичный режим бомбардировки при различных дозах облучения кластерными ионами (*раздел 4*).

Для наглядности влияния различных режимов бомбардировки на формирование наноструктур, на рисунке 11 продемонстрированы АСМ-изображения поверхности КТР после бомбардировки с различными удельными энергиями кластеров (*раздел 2*). Стоит отметить, что при большой удельной энергии кластера  $E/N_{mean} = 110$  эВ/атом, формирование периодических наноструктур не наблюдается.

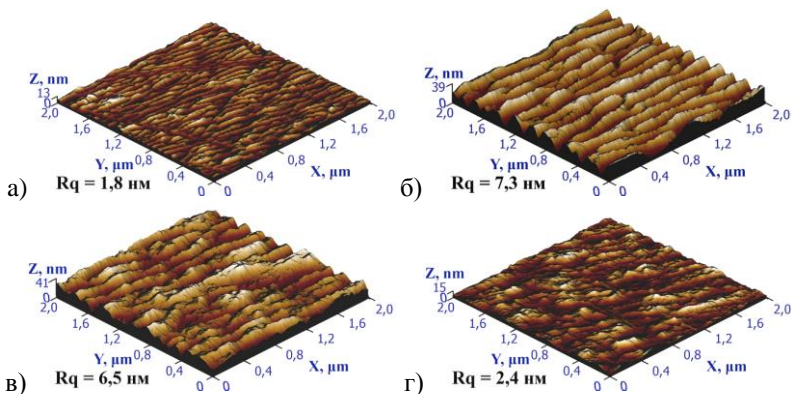


Рис. 11. 3D АСМ-изображения после бомбардировки под углом падения кластерных ионов  $\alpha \approx 60^\circ$  и ионной дозой облучения  $\Phi_{\text{ион}} \approx 6 \times 10^{15}$  кластерных ионов/см<sup>2</sup> с различной энергией, приходящейся на один атом в кластере  $E/N_{\text{mean}}$ : а) 8, б) 10, в) 28, г) 110 эВ/атом Ag.

На рисунке 12 представлены интегральные PSD-функции и, как видно из рисунка, при удельной энергии кластеров 10 эВ/атом Ag наблюдается ярко выраженный пик в диапазоне пространственных частот  $\nu$  от 2,5 до 10 мкм<sup>-1</sup>, который характеризует частоты самоупорядоченных наноструктур. Максимум пика наблюдается при частоте  $\nu \approx 5$  мкм<sup>-1</sup>, что соответствует периоду самоупорядоченных наноструктур, равному 200 нм.

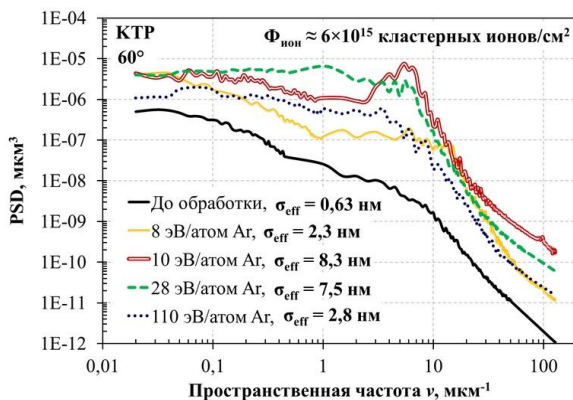


Рис. 12. PSD-функции поверхности КТР до и после формирования наноструктур под углом падения кластерных ионов  $\alpha \approx 60^\circ$ .

При удельных энергиях кластеров  $E/N_{mean} = 8$  и  $28$  эВ/атом Ar PSD-функции не имеют ярко выраженных пиков, что говорит о том, что как малые (рисунок 11а), так и большие наноструктуры (рисунок 11в) имеют различные частоты (и соответственно характерные размеры), поэтому не являются строго упорядоченными.

В зависимости от режимов бомбардировки пик у PSD-функции может быть более пологим – характерен для неровностей с различной частотой (периодом) в близком диапазоне, либо более крутым – преобладает определённая частота (период) – это характерно для периодических структур на поверхности, также сдвиг и амплитуда пика характеризуют смещение частоты и амплитуды наноструктур на поверхности.

На основе проведённых экспериментов сделаны следующие выводы: с помощью угла падения кластеров на поверхность и дозы облучения можно регулировать период и амплитуду формируемых наноструктур; эффективность формирования наноструктур предположительно определяется массовым потоком частиц и энергией, приходящейся на 1 атом в кластере; кластеры с большим размером и большей энергией при одинаковых массовых потоках частиц наиболее эффективно формируют наноструктуры; максимальная эффективность формирования наноструктур достигается при удельных энергиях кластерных ионов  $E/N \approx 10$  эВ/атом Ar.

В **заключении** диссертации сформулированы основные результаты и выводы работы.

## **ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ**

1. Исследовано влияние тока эмиссии электронов и давления торможения на изменение распределения размеров кластеров в ионно-кластерном пучке аргона. Показано, что распределение кластерных ионов по размерам аппроксимируется логнормальной функцией.

2. Для сравнения воздействия сепарированного и несепарированного ионно-кластерных пучков предложен параметр, эффективный средний размер кластеров, определяемый как свёртка функции распределения кластеров по размерам и функции коэффициента распыления.

3. Продемонстрировано, что удельная энергия кластеров  $E/N$  является одним из определяющих и универсальных параметров распыления поверхности оптических материалов несепарированным по размерам ионно-кластерным пучком аргона. Показано, что, как при нормальном, так и при наклонном падении кластеров, коэффициент распыления

поверхности оптических материалов можно обобщить в виде нелинейной зависимости удельного коэффициента распыления  $Y/N$  от удельной энергии кластеров  $E/N$ . Достоверность полученных результатов подтверждено сравнением экспериментальных и литературных данных.

4. С использованием функции спектральной плотности мощности шероховатости показано, что воздействие кластерных ионов на поверхность оптических материалов с последовательным уменьшением удельной энергии кластеров  $E/N$  обеспечивает эффективное сглаживание неровностей с латеральными размерами 5 мкм и менее.

5. Обнаружено, что взаимодействие кластерных ионов с поверхностью гигроскопичных монокристаллов LBO и ВВО приводит к аномальному распылению – формированию кратеров с диаметром до 500 нм, что почти на два порядка больше диаметра ударного кратера от кластера. Указанные кратеры формируются только при больших ионных дозах в режимах как с высокой ( $E/N \approx 105$  эВ/атом Ar), так и с низкой ( $E/N \approx 10$ ) удельной энергией кластерных ионов. Предложен механизм формирования аномальных кратеров.

6. Экспериментально показано, что наклонное падение ионизованных кластеров приводит к формированию периодических наноструктур на поверхности мишени, наиболее эффективному при удельной энергией  $E/N \approx 10$  эВ/атом и угле падения  $\sim 60^\circ$ , что объясняется малым распылением и интенсивным перемещением материала в приповерхностном слое мишени. Показано что, амплитуду и период самоупорядоченных периодических наноструктур можно регулировать, варьируя не только угол падения и ионную дозу облучения, но и массовый поток частиц и удельную энергию кластеров.

#### **Список публикаций автора по теме диссертации:**

1. Korobeishchikov N. G., Nikolaev I. V., Roenko M. A., Yakovlev V. V., Pelenovich V., Fu D. J., Tosltogousov A. Anomalous sputtering of the lithium triborate single crystal surface by argon cluster ions // Vacuum. – 2020. – Vol. 179. – Article No. 109555. DOI: 10.1016/j.vacuum.2020.109555. (из перечня ВАК)

2. Korobeishchikov N.G., Nikolaev I.V., Roenko M.A., Atuchin V.V. Precise sputtering of silicon dioxide by argon cluster ion beams // Applied

Physics A. – 2018. – Vol. 124. – Is. 12. – Article No. 833. DOI: 10.1007/s00339-018-2256-3. (из перечня ВАК)

3. Korobeishchikov N.G., Nikolaev I.V., Roenko M.A. Effect of argon cluster ion beam on fused silica surface morphology // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. – 2019. – Vol. 438. – P. 1–5. DOI: 10.1016/j.nimb.2018.10.019. (из перечня ВАК)

4. Николаев И.В., Коробейщиков Н.Г., Роеико М.А., Гейдт П. В., Струнин В. И. Сглаживание тонких поликристаллических пленок AlN кластерными ионами аргона // Письма в Журнал технической физики. – 2021. – Т. 47. – № 6. – С. 44–47. DOI: 10.21883/PJTF.2021.06.50759.18536. (из перечня ВАК)

5. Коробейщиков Н.Г., Николаев И.В., Роеико М.А. Финишная обработка поверхности монокристаллов титанил-фосфата калия кластерными ионами аргона // Письма в Журнал технической физики. – 2019. – Т. 45. – № 6. – С. 30–32. DOI: 10.21883/PJTF.2019.06.47496.17646. (из перечня ВАК)

6. Korobeishchikov N.G., Stishenko P.V., Popenko Y.A., Roenko M.A., and Nikolaev I.V. Interaction of accelerated argon cluster ions with a silicon dioxide surface // AIP Conference Proceedings. – 2017. – Vol. 1876. – Article No. 020064. DOI: 10.1063/1.4998884. (из перечня ВАК)

7. Korobeishchikov N.G., Nikolaev I.V., Roenko M.A. Materials surface smoothing to sub-nanometer level of roughness by argon cluster ion beam // Journal of Physics Conference Series. – 2017. – Vol. 927. – Article No. 012026 DOI:10.1088/1742-6596/927/1/012026. (из перечня ВАК)

8. Korobeishchikov N.G., Nikolaev I.V., Roenko M.A., and Antonenko A.Kh. Surface processing of amorphous optical materials by argon cluster ion beam // Journal of Physics Conference Series. – 2018. – Vol. 1105. – Article No. 012134. DOI: 10.1088/1742-6596/1105/1/012134. (из перечня ВАК)

9. Korobeishchikov N.G., Nikolaev I.V., Roenko M.A. Diagnostics of argon cluster ion beam for materials treatment // Journal of Physics Conference Series. – 2018. – Vol. 1115. – Article No. 032016. DOI: 10.1088/1742-6596/1115/3/032016. (из перечня ВАК)

10. Nikolaev I.V., Korobeishchikov N.G., Roenko M.A. Formation of nanostructures on the surface of KTP single crystals by argon cluster ion beam // Journal of Physics Conference Series. – 2019. – Vol. 1382. – Article No. 012162. DOI: 10.1088/1742-6596/1382/1/012162. (из перечня ВАК)

11. Коробейщиков Н.Г., Роенко М.А., Николаев И.В. Диагностика потоков газовых кластеров с помощью поперечных профилей интенсивности молекулярного пучка // «Сибирский физический журнал». – 2018. – Т. 13. – №1. – С. 80–94. DOI: 10.25205/2541-9447-2018-13-1-80-94 (из перечня ВАК)

12. Пат. РФ № 2703830, G01B 11/306, G02B 26/02. Способ неразрушающего контроля качества приповерхностного слоя оптических материалов / Горчаков А.В., Коробейщиков Н.Г., Николаев И.В., Федюхин Л.А. ; заявитель и патентообладатель федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Новосибирский национальный исследовательский государственный университет» (Новосибирский государственный университет, НГУ). – № 2019109433 ; заявл. 29.03.2019 ; опубл. 22.10.2019, Бюл. №. 30.

13. Nikolaev I., Korobeishchikov N., Roenko M. Potassium titanyl phosphate sputtering features by argon cluster ions // Proceedings – 7th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE). September 14–26, 2020 / Tomsk Polytechnic University. – Tomsk, 2020 – P. 526-528. DOI: 10.1109/EFRE47760.2020.9242181

14. Korobeishchikov N., Geydt P., Nikolaev I., Strunin V., Roenko M. Aluminium nitride thin films surface smoothing by argon cluster ions // Proceedings – 7th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE). September 14–26, 2020 / Tomsk Polytechnic University. – Tomsk, 2020 – P. 722–725. DOI: 10.1109/EFRE47760.2020.9242187

15. Nikolaev I.V., Korobeishchikov N.G. Influence of the Parameters of Cluster Ions on the Formation of Nanostructures on the KTP Surface // Appl. Nano. – 2021. – Vol. 2. – Is. 1. – P. 25-30. DOI: 10.3390/applnano2010003.

16. Николаев И.В., Коробейщиков Н.Г., Роенко М.А.. Ионно-кластерная полировка поверхности материалов до субнанометрового уровня шероховатости // «Вакуумная техника и технология» / Санкт-Петербург: Изд-во «Научно-техническое университетское вакуумное общество», 2018. – Т. 28. – С. 7.1–7.5.



Подписано к печати \_\_\_\_\_ 2022 г. Заказ №  
Формат 60×84/16. Объем 1 уч.-изд. л. Тираж 100 экз.

---

Отпечатано в Институте теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН  
630090, Новосибирск, пр. Ак. Лаврентьева, 1.