

# Estudios de los cambios topográficos en superficies producidos por bombardeo iónico.

G. Otero<sup>1-2</sup>, E.A. Sánchez<sup>1-2-3</sup>

<sup>1</sup>Instituto Balseiro, Universidad nacional de Cuyo - <sup>2</sup>Centro Atómico Bariloche, Comisión Nacional de Energía Atómica - <sup>3</sup>CONICET

Av. Ezequiel Bustillo 9500 – (8400) - S.C. de Bariloche – Río Negro - Argentina

e-mail: [oterog@ib.cnea.gov.ar](mailto:oterog@ib.cnea.gov.ar)

En este trabajo se analizan los cambios topográficos producidos en superficies de Al policristalino irradiadas con iones de Ar. En particular, se estudiaron los cambios ocurridos cuando se irradia con proyectiles de 5 y 20 keV para distintas condiciones de incidencia rasante  $\alpha$ . Se observó una disminución de la rugosidad de la superficie en la dirección paralela a la incidencia del haz a medida que se disminuye  $\alpha$ . La rugosidad no presenta cambios significativos cuando se disminuye la energía de los proyectiles de 20 keV a 5 keV para ángulos de incidencia comprendidos entre  $3^\circ$  y  $9^\circ$ , y dosis de irradiación constante ( $D=9 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup>). Por último se estudiaron los cambios topográficos de las superficies cuando se incide con un  $\alpha$  fijo y se varía la dosis de irradiación entre  $2.25 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup> y  $20 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup>, observándose una disminución de la rugosidad a medida que se aumenta la dosis.

We studied the topographical changes on polycrystalline Al surfaces induced by 5 and 20 keV grazing Ar<sup>+</sup> bombardment. At grazing incidence conditions the mechanism responsible for modification of surface topography is sputtering. The initial roughness of the surfaces (mechanical polished) can be removed by grazing Ar<sup>+</sup> bombardment in the direction parallel to the beam path. For both studied energies (5 and 20 keV), this phenomenon is more important for low incidence angles and high doses.

## I. INTRODUCCIÓN

Al irradiar superficies sólidas con haces iónicos se inducen cambios importantes en distintas propiedades superficiales, en particular, en su topografía y composición<sup>(1,2)</sup>.

Uno de los procesos más importantes que hay que tener en cuenta para comprender el origen de dichos cambios es el *sputtering*<sup>(3)</sup>, es decir, la remoción de átomos de la superficie por el impacto de proyectiles sobre la muestra. La probabilidad de emisión de átomos del blanco por impacto iónico (*Sputtering Yield* Y) depende de parámetros tales como la masa, energía y ángulo de los proyectiles incidentes, y de propiedades del blanco tales como su masa y energía de cohesión. Esto hace que los cambios topográficos producidos por dicho proceso también puedan depender de dichos parámetros.

Alguna de las aplicaciones del bombardeo iónico en superficies son: la remoción controlada a escala atómica para la obtención de superficies con corrugación nanométrica<sup>(4,5)</sup>, la deposición de *films* delgados y el análisis de materiales<sup>(6)</sup>.

La primera de las aplicaciones mencionadas es de gran interés en todos los experimentos que se realizan en el área de superficies, pues muchos de los fenómenos físicos que se estudian dependen fuertemente de la rugosidad de la muestra<sup>(7-11)</sup>. Una de las técnicas convencionales de preparación *insitu* de superficies limpias monocristalinas consiste en hacer ciclos de bombardeo con haces iónicos de gases nobles a bajas

energías (algunos cientos de eV) y a grandes ángulos de incidencia, combinados con recocido de la muestra (*annealing*). Recientemente, se ha comenzado a emplear en algunos laboratorios técnicas alternativas de preparación de muestras que producen superficies más planas que las preparadas por otros métodos<sup>(12-13)</sup>. La misma consiste en ciclos de bombardeo iónico a energías intermedias (25 keV) y ángulos muy rasantes ( $< 4^\circ$ ) combinados con *annealing*. Resultados presentados previamente por nuestro laboratorio muestran que esta técnica es particularmente útil para la preparación de superficies monocristalinas muy bien ordenadas de GaAs(110)<sup>(14)</sup> y Al(111)<sup>(15,16)</sup>.

El objetivo del presente trabajo es estudiar los cambios topográficos producidos por el bombardeo de muestras de Al policristalino con iones de Ar de 5 y 20 keV de energía, en función de la dosis ( $2.25 - 20 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup>) y del ángulo de incidencia ( $\alpha \sim 3^\circ - 9^\circ$ ). Los resultados muestran que bajo determinadas condiciones del experimento la rugosidad que dejada por el pulido mecánico (a espejo) realizado con las pastas más finas (0.05  $\mu\text{m}$ ) puede ser mejorado notablemente por el bombardeo iónico rasante.

## II DISPOSITIVO EXPERIMENTAL

Las irradiaciones se realizaron en una cámara de alto vacío conectada al acelerador "Kevatritio" de la división Colisiones Atómicas del Centro Atómico Bariloche. Los iones de Ar<sup>+</sup> utilizados como proyectiles fueron producidos por medio de un campo de

radiofrecuencia. Una vez ionizados, los proyectiles son acelerados, dirigidos y enfocados hacia la cámara de colisiones propiamente dicha. El haz fue colimado con una ranura rectangular para obtener un mejor aprovechamiento del área disponible sobre la muestra. Se realizó además un barrido del mismo aplicando una tensión alterna a un par de placas paralelas para homogeneizar el bombardeo sobre la zona de irradiación.

Dentro de la cámara de colisiones es posible seleccionar el ángulo del haz respecto de la superficie como así también la posición de la muestra que se desea bombardear y la dosis que se desea suministrar. Para medir la corriente del haz se utilizó una copa de Faraday instalada en la base del portamuestras.

Las imágenes de las muestras irradiadas se adquirieron con un microscopio de fuerza atómica (AFM) Autoprobe CP de Park Scientific Instruments instalado en la misma división. Todas las imágenes que presentamos fueron adquiridas con un barrido de  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  con una discretización de  $256 \times 256$  puntos. Esta área es suficiente para observar la estructuras de interés, con una buena resolución lateral (4 nm).

### III RESULTADOS

En la Fig. 1 mostramos las imágenes 3D obtenidas para a) una muestra virgen de Al policristalino pulida en forma mecánica con pasta de alúmina de  $0.05 \mu\text{m}$ , y b) la correspondiente a la muestra irradiada con proyectiles de

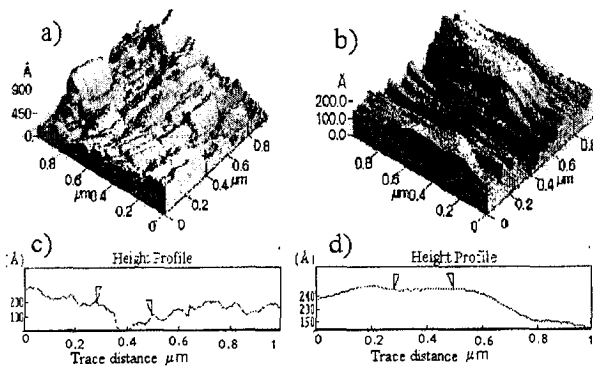


Figura 1. imágenes 3D de una muestra a) no irradiada y b) irradiada con  $\text{Ar}^+$  (ver texto). En los paneles c) y d) se muestran dos cortes, uno perpendicular y otro paralelo a la incidencia del haz, respectivamente.

$\text{Ar}^+$  de 20 keV de energía, dosis de  $20 \times 10^{15}$  iones/ $\text{cm}^2$  y  $\alpha=3^\circ$ . En los paneles c) y d) se muestran cortes de la superficie b) en las direcciones perpendicular y paralela a la incidencia del haz, respectivamente. Se observa que el efecto de la irradiación es disminuir la rugosidad, favoreciendo la creación de terrazas más grandes únicamente en la dirección paralela.

Con el objeto de analizar cuantitativamente los cambios producidos por la irradiación proponemos obtener la derivada punto a punto de las curvas que resultan de hacer los cortes paralelos y perpendiculares al haz. Construimos con ella un histograma que indique la cantidad de veces que se obtiene cada valor de la derivada, es decir, la frecuencia obtenida para cada pendiente. Con este método un plano perfectamente horizontal, que posee derivada nula en todos sus puntos, presentaría un histograma centrado en pendiente cero, con ancho total a mitad de altura (FWHM) nulo, y la máxima altura posible. En cambio una superficie rugosa presentaría un histograma cuya forma se aleja de la anterior, haciéndose menos intenso y más ancho. En las distribuciones experimentales la forma particular de cada histograma dependerá de la topografía específica de la superficie.

En la Fig. 2 se muestran los histogramas correspondientes a las muestras de la Fig.1 (muestra virgen e irradiada), analizadas tanto en la dirección paralela

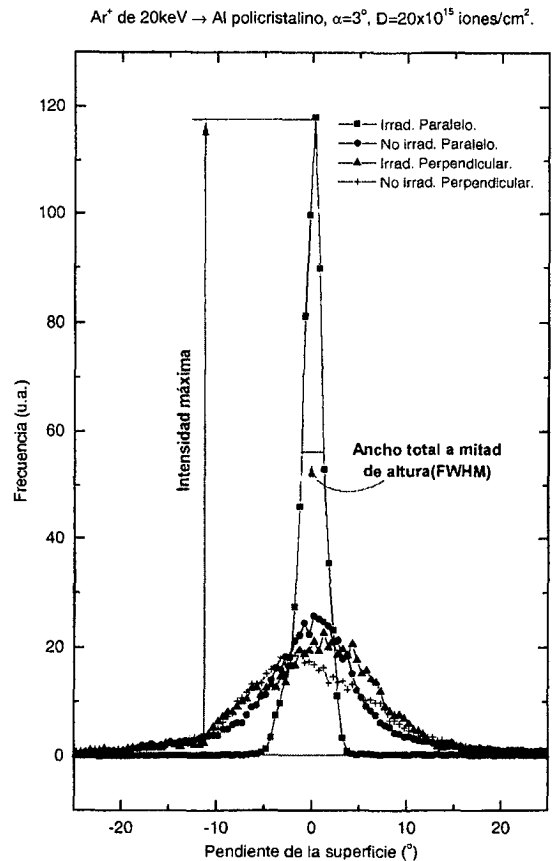


Figura 2. Histogramas obtenidos con el método de la derivada (distribución de pendientes) correspondientes a las imágenes presentadas en la Fig.1.

como la perpendicular a la incidencia del haz. Se observa que la distribución de pendientes para el caso del análisis

perpendicular en la muestra irradiada es similar a ambas distribuciones de la superficie no irradiada, mientras que la correspondiente a la paralela es mucho más intensa y angosta. Esto nos indica, como se había mostrado cualitativamente en la Fig. 1, que el bombardeo rasante produce una disminución de la rugosidad, creando terrazas más grandes, sólo en la dirección paralela.

### Cambios topográficos vs. $\alpha$ y energía del proyectil

En esta sección presentamos los resultados obtenidos para distintos ángulos de incidencia  $\alpha$  y distintas energías del proyectil. Para cada una de las muestras bombardeadas se adquirieron con el AFM las respectivas imágenes, construimos los histogramas de las pendientes, y de estos últimos obtuvimos la altura del pico y el FWHM. En la Fig. 3 se muestra como evolucionan estos parámetros cuando se mantiene constante la dosis ( $D=9 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup>) para tres  $\alpha$  distintos 3°, 6° y 9°. Estas irradiaciones se realizaron para proyectiles de 5 keV y 20 keV.

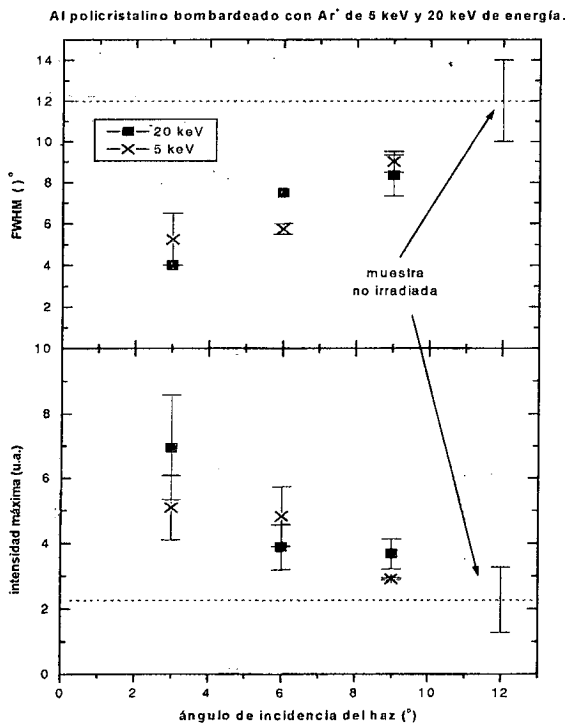


Figura 3. Intensidad máxima y anchos de la distribución de pendientes en función de  $\alpha$ . La dosis de irradiación es de  $9 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup> en todos los casos.

Observamos en la Fig. 3 que aumenta la intensidad máxima y disminuye el FWHM al disminuir  $\alpha$ . Esto muestra claramente que se forman terrazas tanto más largas cuanto más rasante es el bombardeo. En este sentido diremos entonces que el método de limpieza y preparación de muestras por bombardeo rasante produce muestras cuyas superficies están cada vez mejor pulidas al

disminuir  $\alpha$ . Esto se debe a que cuando el haz incide en forma rasante sobre una terraza plana los proyectiles son dispersados por una serie de colisiones suaves con la última capa atómica del sólido de forma tal que no produce grandes cambios en la superficie. Por otro lado cuando incide sobre las estructuras, como ser picos y escalones, los proyectiles chocan frontalmente provocando una cascada de colisiones importante. Es esta cascada la que provoca la eliminación selectiva de las rugosidades.

En la Fig. 3 se presentan también los datos obtenidos al irradiar con proyectiles de 5 keV. No se observa una diferencia apreciable con los datos obtenidos al irradiar con proyectiles de 20 keV. Este resultado está de acuerdo con el hecho de que para ambas energías el coeficiente de *sputtering* para proyectiles de Ar<sup>+</sup> en superficies de aluminio es prácticamente el mismo en condiciones de incidencia normal como puede observarse en la referencia 9 ( $Y=2.5$  para Ar<sup>+</sup> de 20 keV y  $Y=2.2$  para 5 keV). El hecho de que el coeficiente de *sputtering* sea prácticamente el mismo en ambos casos indica que las cascadas de colisiones que generan el daño superficial son similares, aún cuando la profundidad  $R_p$  de las mismas son diferentes ( $R_p(5 \text{ keV}) = 34 \text{ \AA}$ ,  $R_p(20 \text{ keV}) = 95 \text{ \AA}$ ).

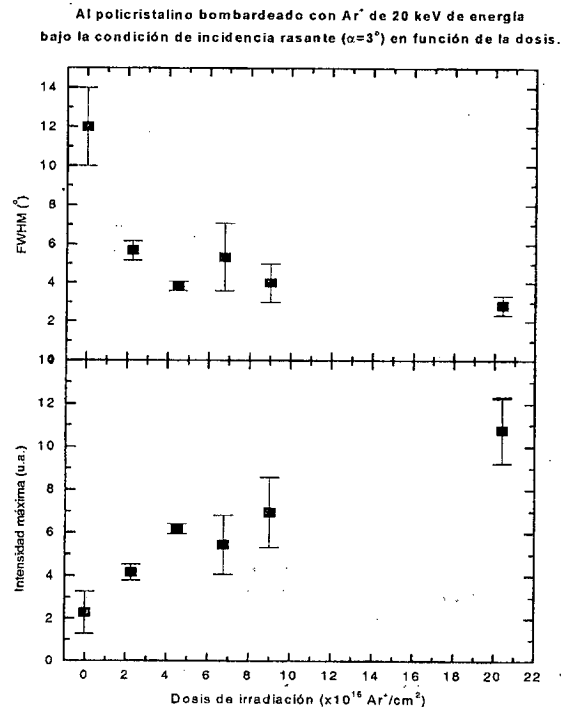


Figura 4: Intensidad máxima y anchos de las distribuciones de pendientes. La irradiaciones se realizaron con  $\alpha=3^\circ$ .

### Cambios topográficos vs. dosis de irradiación

Por otro lado se analizaron los cambios producidos cuando se fija  $\alpha=3^\circ$  y se varía la dosis de irradiación en el

rango comprendido entre  $D=2.2 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup> y  $20 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup>. En la Fig. 4 mostramos la intensidad máxima y el FWHM de los histogramas de pendientes obtenidos de las imágenes en función de la dosis de irradiación. Se observa un aumento de la intensidad máxima y una disminución del FWHM a medida que aumenta la dosis. Dosis cero corresponde a la superficie sin irradiar. No fue posible observar una dosis de saturación en este rango, es decir una dosis a partir de la cual si uno sigue irradiando no se observan cambios topográficos importantes, por lo cual se concluye que hasta la dosis máxima irradiada ( $D=20 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup>) el proceso de *sputtering* continúa contribuyendo al pulido de la superficie.

### III CONCLUSIONES

Se analizaron los cambios topográficos producidos en las superficies policristalinas de Al irradiadas en función de distintas condiciones de incidencia. En particular, se estudiaron los cambios ocurridos en función del ángulo de incidencia del haz observándose una gran disminución de la rugosidad de la superficie en la dirección paralela al haz para condiciones de incidencia rasante. Se observó también que en estas condiciones no se producen grandes cambios en la dirección perpendicular al haz, con respecto a la muestra no irradiada. Concluyendo de esta forma que para obtener una superficie homogéneamente pulida es necesario realizar la irradiación rotando continuamente la muestra alrededor del eje que forma su normal<sup>(15,16)</sup>.

Se estudiaron también los cambios topográficos de las superficies cuando se incide con  $\alpha=3^\circ$  fijo y se varía la dosis de irradiación entre  $2.25 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup> hasta  $20 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup>, observando una gran disminución de las rugosidades de la superficie en la dirección paralela al haz para la dosis máxima que aplicamos.

Por último no observamos cambios en la topografía superficial de las muestras irradiadas con proyectiles de 5 keV con respecto a las correspondientes irradiaciones realizadas con proyectiles de 20 keV bajo condiciones de bombardeo similares.

Concluimos finalmente que las mejores condiciones dentro del rango en el que trabajamos para eliminar las rugosidades superficiales son las de ángulo de incidencia  $\alpha=3^\circ$  y máxima dosis de irradiación ( $D=20 \times 10^{15}$  iones/cm<sup>2</sup>).

### AGRADECIMIENTOS

Agradecemos a la Agencia Nacional de Promoción Científica (PICT 03-4220) y al Instituto Balseiro por financiamiento parcial.

### REFERENCIAS

- 1 - E. Chason, T.M. Mayer, B.K. Kellerman, D.T. McIlroy, A.J. Howard, Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 3040.
- 2 - G. Gartner, B. Navinsek, J.L. Whitton, Sputtering by Particle Bombardment - R. Behrisch (Ed), vol 2, Springer, Berlin, 1983. p. 231
- 3 - O. Auciello and R. Kelly, Ion bombardment Modification of Surfaces, (Elsevier, 1984).
- 4 - R.A. House II, J.R. Bettis and A. H.Günther, Appl. Opt. 16 (1977) 1486
- 5 - E. Spiller, Appl. Phys. Lett. 54 (1989) 2293
- 6 - D.P. Woodinffand T.A. Delchan, Modern techniques of surface science - second edition, Cambridge solid state science series, Cambridge university press 1994.
- 7 - H.H. Andersen y H.L. Bay en Sputtering by Particle Bombardment I, ed. R. Behrisch, (Spring-Verlag, Berling, Heidelberg, New York 1981) pag. 168.
- 8 - T. Hecht, C. Auth, and H. Winter, Nucl. Instr. Meth. B135 (1998) 377.
- 9 - R. Pfandzelter, Phys. Rev. B57 (1998) 15496.
- 10 - O. Grizzi, E.A. Sánchez, J.E. Gayone, L. Guillemot, V.A. Esaulov, and R.A. Baragiola, Surf. Sci. 469 (2000) 71.
- 11 - G.R. Gómez, E.A. Sánchez and O.Grizzi, Phys. Rev. B57 (1998) 12573.
- 12 - Kenji Kimura, Akira Fukui, Kaoru Nakajima, Michi-hiko Mannami, Nucl. Instr. Meth. B148 (1999) 149.
- 13 - M. Holzwarth, M. Wissing, D.S. Simeonova, S Tzanev, and K.J. Snowdon, Surf. Sci. 331-333 (1995) 1093.
- 14 - J.E. Gayone, R.G. Pregliasco, E.A. Sánchez and O. Grizzi, Phys. Rev.B 56, 4186 (1997).
- 15 - O.Grizzi, E.A. Sánchez, J. E. Gayone, L. Guillemot, V.A. Esaulov and R.A. Baragiola, Surf. Sci. 469, 71-79 (2000).
- 16 -V.A. Esaulov, L. Guillemot, O. Grizzi and E.A. Sánchez, Phys. Rev. A 65, 052901 (2002).