

Д.М. Заячук¹, В.Є. Слинько², А. Чік³

Формування фази розпорошення кристалів PbTe плазмою іонів Ag⁺ і переосадження розпорошених елементів в умовах вторинної нейтральної маспектрометрії

¹Національний університет "Львівська політехніка", Львів, Україна, e-mail: zayachuk@polynet.lviv.ua

²Інститут проблем матеріалознавства ім. І.М. Францевича НАН України, Чернівецьке відділення, Чернівці, Україна, slynko_vasily@yahoo.com

³Інститут ядерних досліджень, Угорська Академія Наук (АТОМКИ), Дебрецен, Угорщина, csik.attila@atomki.mta.hu

Досліджено формування фази розпорошення та переосадження розпорошених Pb і Te при опроміненні іонами Ag⁺ в умовах вторинної нейтральної маспектрометрії бічних поверхонь кристалів PbTe, вирощених з розплаву методом Бріджмена. Наведено експериментальні докази взаємного впливу один на одного цих процесів під час профілювання вглиб кристалів PbTe. Розпорошення кристалічної поверхні PbTe формує сильно пересичену фазу розпорошених Pb і Te. Переосадження розпорошених атомів Pb і Te на поверхню кристалу PbTe, що розпорошується, веде до коливань у часі швидкості розпорошення кристалу, а також змін середніх інтенсивностей розпорошення Pb і Te. Обговорена можлива роль докритичних зародків переосаджуваної фази і її поверхневих структур посткритичних розмірів у формуванні особливостей розпорошення кристалів PbTe. Зроблено висновок, що формування і повторне розпорошення докритичних зародків переосаджуваної фази веде до коливань в часі виходів розпорошення Pb і Te. Ріст і повторне розпорошення переосаджених поверхневих структур посткритичних розмірів спричиняє зміни середніх значень виходів розпорошення Pb і Te з часом.

Ключові слова: розпорошення, переосадження, зародкоутворення, напівпровідникові сполуки свинцю.

Стаття поступила до редакції 13.12.2016; прийнята до друку 05.03.2017.

Вступ

Іонне розпорошення різних матеріалів широко використовується для вирощування тонких шарів і самоорганізованих наноструктур на різноманітних підкладках [1-3]. Воно також ефективно використовується у вторинній нейтральній маспектрометрії (ВНМС) для аналізу складу і профілювання вглиб багатокомпонентних твердих тіл [4-6]. Висока (аж до мільйонної долі) чутливість методу ВНМС робить його придатним для успішного аналізу твердих поверхонь і тонких плівок та елементної характеристики різного роду зразків [7-11].

Однією з передумов успішного застосування ВНМС для правильного кількісного аналізу складу є плоский характер поверхні, що розпорошується. Проте, для багатьох практичних цілей ця вимога не може бути виконана априорі. Зокрема, така ситуація виникає при боковому профілюванні кристалічних зливків, що мають конічно-циліндричну форму. Необхідність таких досліджень виникає, перш за все,

при вивченні розподілу легуючих домішок в поверхневих шарах кристалів, вирощених з легованих розплавів [12].

Недавно, вивчаючи процеси профілювання вглиб кристалів PbTe, ми виявили вкрай нетривіальні особливості їх розпорошення. Найбільш вражаючим з них є аперіодичні осциляції виходів розпорошення Pb і Te; гігантське преференційне розпорошення Te, що сягає більше двох порядків величини на початку процесу розпорошення; значне перевищення інтегрального виходу розпорошення Te над таким для Pb при тривалому розпорошенні аргоною плазмою низької енергії 50 - 160 еВ. Коротко про ці результати ми повідомили в роботі [13]. У даній роботі ми подаємо розширену картину цих нетривіальних явищ розпорошення з акцентом на їх взаємозв'язок з процесами повторного осадження розпорошених атомів Pb і Te на поверхню кристалу PbTe, що розпорошується пучками Ag⁺ плазми в умовах ВНМС. Для вивчення стану розпорошених поверхонь кристалів PbTe використовувалася сканувальна електронна мікроскопія (СЕМ).

Результати аналізу, проведеного методами ВНМС і СЕМ, доповнені даними енергодисперсійної рентгенівської спектроскопії (ЕДРС).

I. Експеримент

Кристалічний зливок РbТе, що використовувався для дослідження, був вирощений методом Бріджмена з розплаву вихідних компонентів високої ступені чистоти. Розпорошенню піддавалася його бокова поверхня. Експерименти розпорошення проводили з використанням системи ВНМС типу INA-X виробництва SPECS GmbH, Берлін. Морфологію поверхні зразків після іонного розпорошення аналізували за допомогою СЕМ Hitachi S-4300 CFE. Склад різних поверхонь зразків аналізувався методом ЕДРС. Експериментальні умови були такими ж, як це описано детально в [14].

II. Результати

Щоб отримати загальну картину преференційного і осцилюючого розпорошення кристалів РbТе, розглянемо перш за все початкову

стадію процесів розпорошення за різних його умов. На прикладі двох зразків, розпорошених Ag^+ плазмою з енергією пучків 50 і 350 еВ, ці стадії процесу показано на Рис. 1.

Наведені дані наочно ілюструють преференційний і осцилюючий характер розпорошення кристалічних поверхонь РbТе. Крім того, вони показують, що ступінь преференційності сильно залежить від енергії іонів, що розпорошують поверхню. За найменшої енергії в 50 еВ у розпорошеній фазі повністю домінує Те (рис. 1, *a*). При цьому протягом перших семи секунд розпорошення інший компонент кристалів РbТе Рb взагалі не проявлявся у розпорошеній фазі. Звичайно, перші кілька секунд після початку розпорошення плазма ще не стабілізувалася, але умови для розпорошення як Те, так і Рb були однаковими. До того ж, аналогічний стан речей спостерігався і на більш пізніх стадіях розпорошення плазмою Ag^+ мінімальної енергії 50 еВ, коли Рb час від часу не виявлявся у розпорошеній фазі протягом досить тривалих проміжків часу, аж до 5-6 секунд. У той же час атоми Те завжди були присутні у розпорошеній фазі. Ці особливості розпорошення кристалів РbТе за найменшої енергії розпорошення чітко видно з

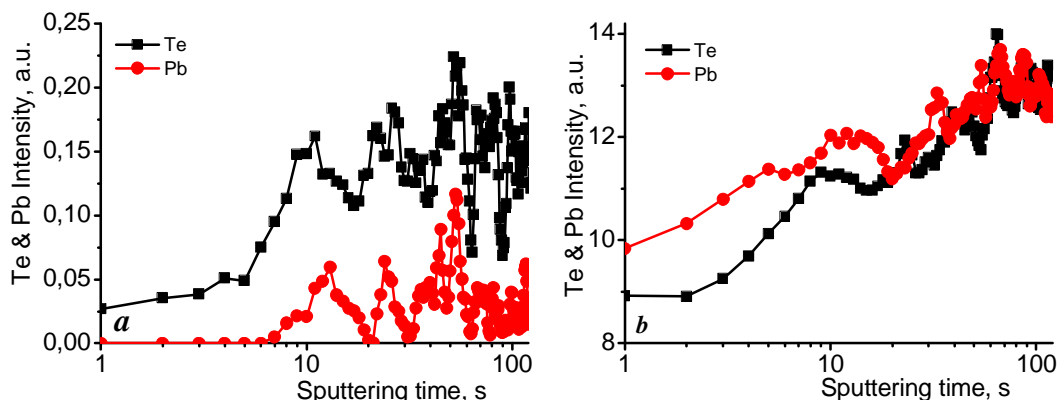


Рис. 1. Залежності інтенсивності розпорошення Те і Рb від часу при розпорошенні протягом початкових 100 с пучками Ag^+ з енергією 50 (*a*) і 350 еВ (*b*) бічної поверхні кристалу РbТе, вирощеного з розплаву методом Бріджмена.

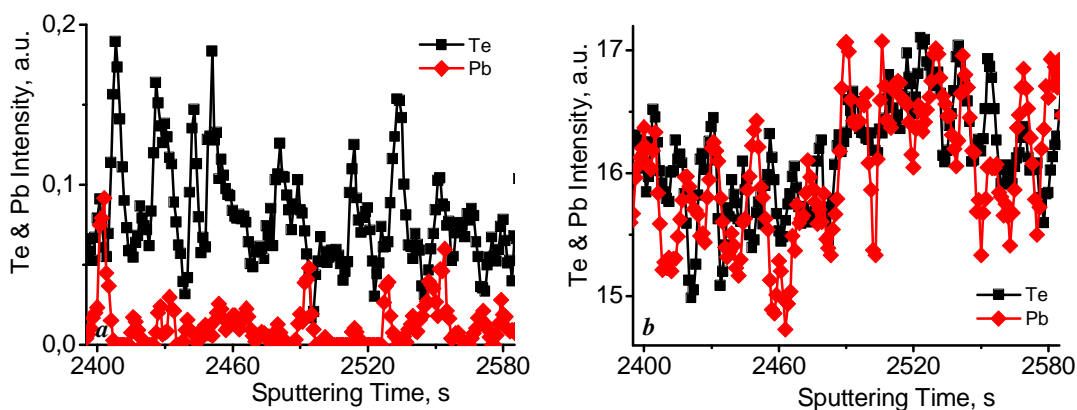


Рис. 2. Залежності інтенсивностей розпорошення Те і Рb від часу для тих же кристалічних поверхонь РbТе, що і на рис. 1, за енергій пучків Ag^+ 50 (*a*) і 350 еВ (*b*).

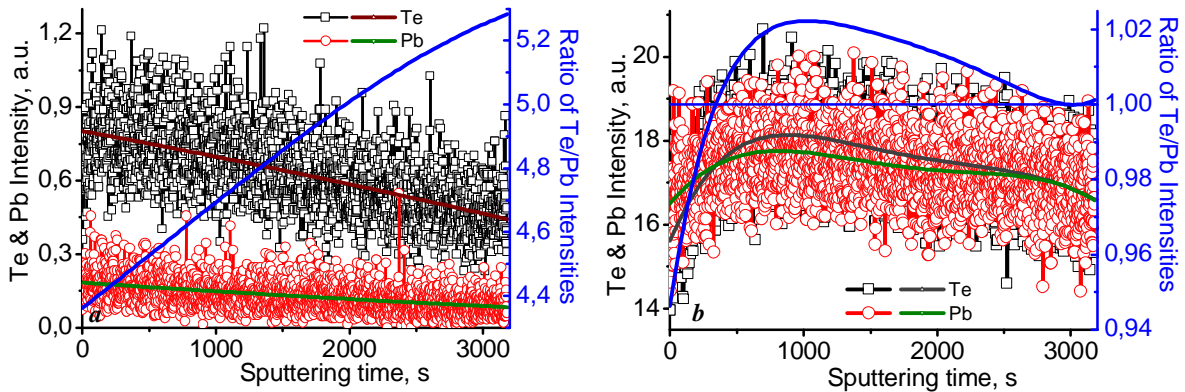


Рис. 3. Залежності інтенсивностей розпорошення Te і Pb і відношення їх усереднених значень від часу розпорошення кристалу PbTe пучками Ar⁺ з енергією 80 (a) і 550 eV (b). Значки - експериментальні дані; суцільні лінії – усереднені криві. Сині лінії показують відношення інтенсивностей розпорошення Te і Pb.

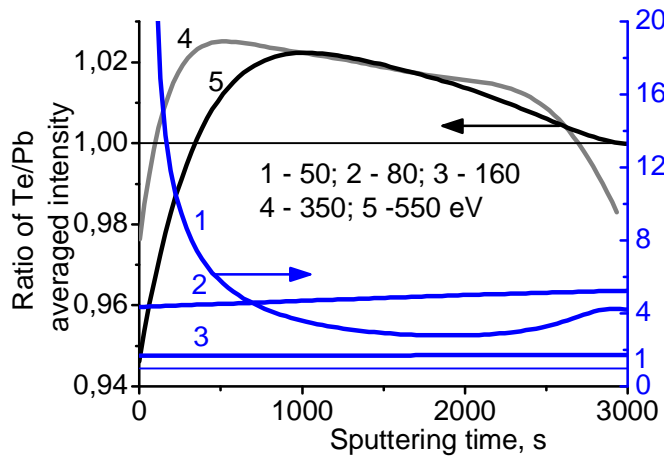


Рис. 4. Залежність відношення усереднених інтенсивностей розпорошення Te і Pb від часу розпорошення на різних енергіях.

даних, наведених на рис. 2, a.

При енергії розпорошення 350 eV спостерігалася абсолютно протилежна картина. На початку процесу розпорошення вже Pb явно домінує в розпорошеній фазі (рис. 1, b). На заключних етапах розпорошення кристалу PbTe інтенсивності сигналів Pb і Te в розпорошеній фазі близькі одна до одної (рис. 2, b).

Більш наглядно специфічні особливості преференційного розпорошення кристалів PbTe можуть бути отримані шляхом усереднення експериментальних даних. Приклади такого усереднення для двох із досліджених зразків, розпорошених іонними пучками Ar⁺ з енергією 80 і 550 eV, наведені на рис. 3. На рис. 4 показано зміну усереднених значень ступеня преференційного розпорошення індивідуальних атомів Te і Pb при тривалому розпорошенні кристалічних поверхонь PbTe іонними пучками Ar⁺ різної енергії.

Формування розпорошеної фази Pb і Te при розпорошенні кристалічного PbTe плазмою Ar⁺ супроводжується значними змінами стану поверхні кристала, що зазнає розпорошення. Як ми показали недавно [13, 14], поверхня, що розпорошується, покривається масивом поверхневих структур,

густина і середні розміри яких сильно залежать від енергії розпорошення. Чим менша енергія розпорошення, тим більша густина переосаджених поверхневих структур і менші їх середні розміри.

Для того, щоб перевірити вплив тривалості розпорошення на стан поверхні кристалів PbTe, одні і ті ж самі кристалічні поверхні були розпорошені трічі підряд. Тривалість першого етапу іонного розпорошення становила 5 хвилин; тривалість кожного з двох наступних етапів розпорошення становила 10 хвилин. Для прив'язки з кожним наступним розпорошенням маску Ta, крізь отвір в якій велося опромінення, зміщали на невелику відстань. Експериментальні результати представлені на рис. 5. Хрестиками позначено "реперні точки" на поверхні.

Час розпорошення, як і його енергія, впливає на параметри переосаджених структур. Чим він довший, тим більші середні розміри структур, що формуються на поверхні, яка зазнає розпорошення, і нижча їх поверхнева густина.

Розглянемо збільшені фрагменти поверхні, однократно і двічі розпорошеної протягом 10 хвилин (рис. 6).

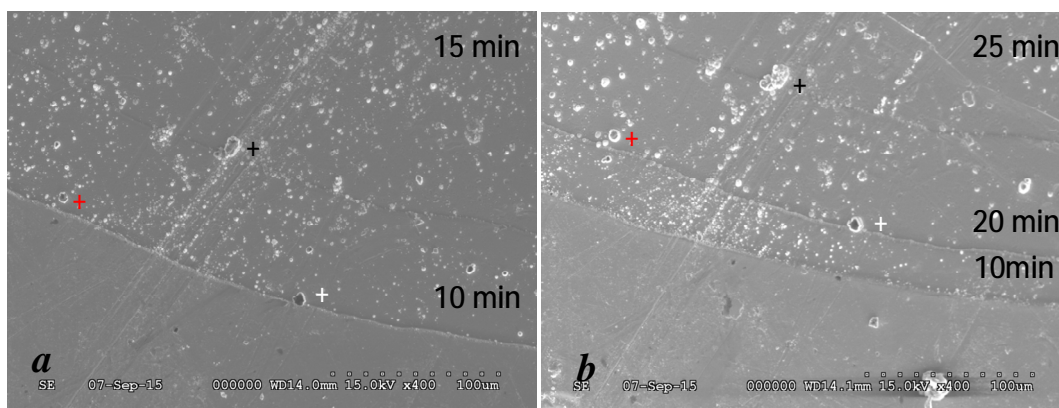


Рис. 5. СЕМ зображення приблизно одного і того ж фрагменту поверхні кристалу РbТе після двох (а) і трьох (b) послідовних розпорошень Аg плазмою з енергією іонів 350 еВ. Час розпорошення різних ділянок поверхні вказаний на рисунку.

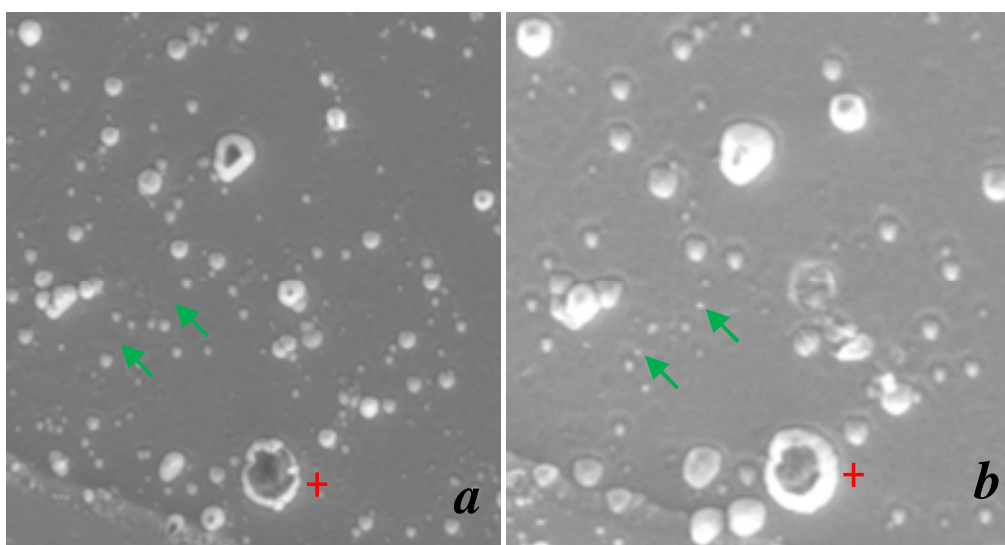


Рис. 6. Збільшені фрагменти однієї і тієї ж частини поверхні, показаної на рис. 5 (область червоного хрестика), після її розпорошення протягом 10 (а) і 10+10 (b) хвилин. Збільшення обох фрагментів однакове.

Порівнюючи в деталях СЕМ зображення, представлені на рис. 6, а і рис. 6, b, бачимо, що велика кількість дрібних структур, сформованих на поверхні протягом перших 10 хвилин розпорошення, зникла при повторному її розпорошенні. Поряд зі зникненням раніше сформованих структур під час другої стадії розпорошення на досліджуваній ділянці поверхні сформувалися нові структури (дві, які вдалося чітко ідентифікувати, відзначено стрілками на рис. 6). Це вказує на те, що процеси конденсації розпорошених елементів і утворення зародків нової фази на поверхні РbТе, що розпорошується, є неперервними, але тривале розпорошення поверхні кристалу РbТе погіршує умови для зародкоутворення.

Для того, щоб прояснити це питання, ми провели розпорошення протягом тривалого часу двох сусідніх ділянок поверхні кристалу, що частково перекривалися. Результати експерименту представлені на рис. 7. Сегмент (а) поверхні був розпорошений першим, сегмент (b) розпорошувався наступним. Область перекриття цих сегментів, розпорошена двічі внаслідок їх перекриття –

фрагмент поверхні(с).

Два абсолютно різні результати були отримані. На вихідній поверхні кристалу в області обох сегментів (а) і (b) сформувалися дуже багаті і практично однакові масиви поверхневих структур. Водночас в області перекриття цих сегментів (фрагмент (с)) при розпорошенні попередньо модифікованої аргоною плазмою ділянки кристалу ми спостерігали тільки ямкову структуру поверхні, по суті вільну від переосаджених поверхневих формувань. Таким чином, не зважаючи на те, що умови розпорошення всього сегменту (b) одні і ті ж, результат повторного осадження розпорошених атомів абсолютно різний в залежності від вихідної поверхні РbТе, що розпорошується. Вихідна бокова поверхня кристалу РbТе забезпечує ефективні умови для зародження переосаджуваних поверхневих структур. Поверхня кристалу, попередньо модифікована плазмою Ag^+ , значною мірою втрачає ці властивості.

Для порівняння складів кристалічної поверхні, що розпорошується, і переосаджених на неї поверхневих структур ми провели ЕДРС аналіз

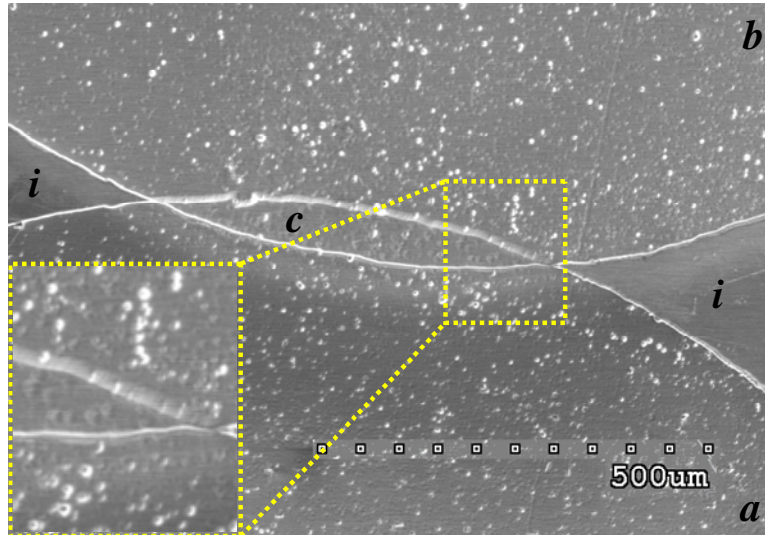


Рис. 7. СЕМ зображення бічної поверхні кристалу PbTe після розпорошення її сегментів (a) (розпорошений першим) і (b) (розпорошений другим) Ag плазмою з енергією іонів 350 еВ протягом 50 хвилин кожен: (i) – не розпорошена вихідна поверхня, (a) і (b) – сегменти однократно розпорошеної поверхні, (c) – двічі розпорошена внаслідок перекриття сегментів (a) і (b) ділянка. Вставка: збільшене зображення розпорошених сегментів в області перекриття.

зразка, підданого розпорошенню протягом 50 хвилин Ag плазмою з енергією 50 еВ. Були досліджені десять статистично випадкових точок не розпорошеної і розпорошеної поверхонь, та десять переосаджених пірамідальних поверхневих структур. У межах точності методу не розпорошена поверхня була стехіометричною. Склад розпорошеної поверхні, усереднений за результатами десяти вимірювань, виявився дещо збагачений свинцем, а саме $Pb_{0.517}Te_{0.483}$. Такий результат був очікуваний, враховуючи сильне збагачення Te розпорошеної фази PbTe [13]. Склад домінуючих пірамідальних структур займав проміжне положення між складами не розпорошених і розпорошених поверхонь – його середнє значення було $Pb_{0.508}Te_{0.492}$.

III. Обговорення

Як впливає з наведених вище експериментальних даних, під час профілювання вглиб бічної поверхні кристалів PbTe, вирощених з розплаву методом Бріджмена, поверхня кристалу одночасно є мішенню для розпорошення і ефективною підкладкою для переосадження розпорошених елементів. Таким чином, можна з упевненістю стверджувати, що розпорошена фаза кристалів PbTe і вихід розпорошення Pb і Te, що аналізується у вимірах ВНМС, формуються як результат суперпозиції двох одночасних процесів – розпорошення кристалу PbTe плазмою Ag^+ і осадження розпорошених елементів на поверхню, що розпорошується.

Відповідно до лінійної теорії каскадних зіткнень Зігмунда [15, 16], вихід розпорошення Y будь-якого елемента, що розпорошується, пропорційний до його поверхневої концентрації C_s та залежить від маси елемента M і поверхневої енергії зв'язку U :

$$Y \sim C_s^5 / M^{2m} U^{1-2m}, \quad (1)$$

де m – показник степені залежності поперечного перерізу пружного розсіювання від енергії.

Розпорошення кристалів PbTe є преференційним. Преференційне розпорошення змінює поверхневі концентрації всіх компонентів кристалу. Воно збіднює поверхню, що зазнає розпорошення, на елементи з високим виходом розпорошення, і збагачує її елементами з низьким виходом. В результаті виходи розпорошення Pb і Te в процесі профілювання кристалу PbTe вглиб змінюються з часом. Якщо розпорошення кристалу є єдиним процесом формування його розпорошеної фази, ці зміни мають бути монотонними [17].

Ситуація може різко змінитися, якщо ми розглянемо переосадження розпорошених елементів на поверхню кристалу, що розпорошується. Є три фізичні процеси, необхідні для осадження атомів на підкладку, але які, як ми вважаємо, відіграють абсолютно різну роль у процесі нетипового розпорошення поверхні кристалів PbTe в умовах ВНМС – адсорбція атомів, утворення докритичних зародків переосаджуваної фази і формування переосаджених поверхневих структур посткритичних розмірів.

Осадження атомів на підкладку починається з їх адсорбції, першим етапом якої є фізична адсорбція. На стадії фізичної адсорбції адсорбовані атоми не утворюють хімічних зв'язків. Таким чином, їх поверхнева енергія зв'язку U_{ads} повинна бути значно меншою, ніж поверхнева енергія зв'язку власних атомів кристалу U . Це означає, що заново адсорбовані атоми будуть перерозпорошуватися з високою швидкістю і їх час життя в умовах неперервного бомбардування іонами Ag^+ буде набагато меншим, ніж час накопичення сигналу в умовах ВНМС. Таким чином, якщо всі адсорбовані

атоми вибиваються знову, наявність адсорбції практично не впливатиме на результат вимірювання.

Зовсім інша справа, якщо якась частина переосаджених і адсорбованих атомів утримується на поверхні, що розпоршується, протягом деякого часу. Це можливо, якщо адсорбовані атоми мають достатньо часу для формування зародків нової фази завдяки поверхневій дифузії.

На першому етапі зародкоутворення на поверхні підкладки формуються докритичні зародки [18]. Як ми бачили вище, склад переважаючих поверхневих структур, сформованих на поверхні кристалу PbTe, що розпоршується, близький до стехіометричного. Розумно припустити, що також близькими до стехіометричного PbTe повинні бути і докритичні зародки. Формування стехіометричних докритичних зародків на поверхні, збагаченій одним з власних компонентів, буде змінювати склад цієї поверхні в напрямку до її початкового стану. Преференційне перерозпорощення заново сформованих структур повторно веде до збагачення загальної поверхні кристала. Формування наступних стехіометричних докритичних зародків знову знижує ступінь її збагачення, і так далі. Таким чином, у зв'язку з формуванням докритичних зародків і їх перерозпорощенням склад поверхні кристалу PbTe, що розпоршується, буде безперервно і випадковим чином коливатися. Відповідно до (1), виходи розпорощення Pb і Te також мають аперіодично коливатися, що й спостерігалось на експерименті.

Перерозпорощення докритичних зародків повинно бути досить швидким процесом. Тому логічно очікувати, що чим вищою буде енергія іонів Ag^+ , які розпорощують поверхню, тим більшою буде також і швидкість перерозпорощення докритичних зародків. Висока швидкість розпорощення веде до високого ступеня пересичення розпорощеної фази. Чим вище ступінь пересичення розпорощеної фази Pb і Te, чим вище швидкість переосадження розпорощених елементів. Таким чином, ми можемо очікувати збільшення середньої частоти коливань розпорощення Pb і Te, коли енергія розпорощення кристалу PbTe збільшується, що ми і спостерігали раніше [13].

На додачу до змін поверхневих концентрацій Pb і Te є ще одна причина, чому формування докритичних зародків веде до коливань розпорощеної фази кристалів PbTe. Для формування близького до стехіометричного зародку на поверхні, що розпоршується, атоми Pb і Te повинні бути вилучені з розпорощеної фази PbTe і переосаджені на поверхню приблизно у рівних кількостях. Це змінить склад нестехіометричного залишку розпорощеної фази, яка аналізується в ВНМС. Ці додаткові зміни проявлятимуть себе тим сильніше, чим менша інтенсивність сигналів розпорощених Pb і Te, тобто чим менша енергія розпорощення. Очевидно, це є причиною того, чому відносні зміни інтенсивностей сигналів Pb і Te зростають, коли енергія розпорощення поверхні кристалу PbTe зменшується [13]. Це може також пояснити, чому під час розпорощення кристалів PbTe при мінімальній енергії іонів 50 eV, коли інтенсивності сигналів Pb і

Te є досить малими, а ступінь преференційного розпорощення Te перевищує два порядки, Pb час від часу не спостерігається у розпорощеній фазі протягом досить тривалих проміжків часу (рис. 2, a).

На подальших етапах зародкоутворення і росту зародків, коли потенціальний бар'єр формування критичного зародку подолано, докритичні зародки перетворюються у посткритичні. Це стійкі формування, здатні розростатися [18].

Для того, щоб сформувати стабільні переосаджені структури на поверхні кристалу, що розпоршується, деяка кількість розпорощених атомів повинна покинути розпорощену фазу. Це знизить вихід розпорощення поверхні у порівнянні з таким за відсутності переосадження. Повторне розпорощення деякої частини переосаджених структур буде виступати як компенсуючий фактор. Поєднання цих двох процесів визначатиме зміни середньої інтенсивності сигналів розпорощених елементів. У загальному випадку втрати розпорощеної фази внаслідок утворення стабільних поверхневих структур і її поповнення за рахунок перерозпорощення цих структур не будуть рівними між собою. Співвідношення між ними буде визначати напрям зміни середньої інтенсивності розпорощення елементів з часом.

Виходячи з цих положень, розглянемо зміни середніх виходів розпорощення Pb і Te при розпорощенні поверхні кристалу PbTe [13].

Для того, щоб середні інтенсивності розпорощення Pb і Te зменшувалися з часом, втрати розпорощеної фази внаслідок розростання великих переосаджених структур посткритичних розмірів на даній стадії розпорощення повинні переважити надходження від перерозпорощення поверхневих структур, переосаджених на попередньому етапі. Така ситуація виникає, коли енергія розпорощення досить мала – порядку 160 eV і менше. В іншому випадку середні інтенсивності розпорощення Pb і Te будуть збільшуватися з часом, що ми спостерігаємо, якщо енергія розпорощення порядку 350 eV і вище [13].

Ми також вважаємо, що формування і ріст посткритичних структур на поверхні кристалу PbTe, що розпоршується, є відповідальними за значне відхилення відношення інтегральних виходів Te/Pb від одиниці при великих часах і низьких енергіях розпорощення порядку 160 eV і менше (криві 1-3, рис. 4). Ці процеси постійно змішують склад поверхні, збагаченої преференційним розпорощенням, від того, яке забезпечує співвідношення між виходами розпорощення компонентів, що дорівнюють відношенню їх об'ємних концентрацій, тобто одиниці у випадку кристалу PbTe.

Висновки

В умовах ВНМС в процесі профілювання вглиб бічних поверхонь кристалів PbTe, вирощених з розплаву методом Бріджмена, поверхня кристалу є одночасно як мішенню для розпорощення, так

ефективною підкладкою для переосадження розпорощених елементів. Внаслідок цього розпорощена фаза кристалів PbTe і вихід розпорощення Pb і Te, які аналізуються при вимірюваннях методом ВНМС, є результатом суперпозиції двох одночасних процесів – розпорощення кристалу PbTe плазмою Ag^+ і переосадження розпорощених елементів на поверхню, що розпорощується. Вихідна поверхня кристалів PbTe забезпечує ефективні умови для зародження нової фази переосаджуваних поверхневих структур. На поверхні кристалу PbTe, попередньо модифікованій плазмою Ag^+ , імовірність переосадження розпорощених елементів набагато нижча.

Нетипове розпорощення кристалів PbTe іонами Ag^+ і процеси переосадження розпорощених Pb і Te

на поверхню, що розпорощується, тісно зв'язані між собою. Осциляції виходів розпорощення Pb і Te ми пояснюємо формуванням докритичних зародків переосаджуваної фази на поверхні, що розпорощується, і їх перерозпорощенням. Зміни середніх значень виходів розпорощення Pb і Te можна пояснити ростом і перерозпорощенням переосаджених поверхневих структур посткритичних розмірів.

Заячук Д.М.- професор, доктор фізико-математичних наук, професор кафедри електронних засобів інформаційно-комп'ютерних технологій;

Слинько В.Є.- кандидат фізико-математичних наук, старший науковий співробітник;

Чік А. - доктор філософії, старший науковий співробітник.

- [1] A.R. González-Elipe, F. Yubero and J.M. Sanz: Low Energy Ion Assisted Film Growth (Imperial Collage Press, London, 2003).
- [2] O. Auciello, J. Engemann, Multicomponent and Multilayered Thin Films for Advanced Microtechnologies: Techniques, Fundamentals and Devices (Springer Science & Business Media, 2012).
- [3] Nanofabrication by Ion-Beam Sputtering: Fundamentals and Applications, Ed. by Tapobrata Som, Dinakar Kanjilal (Pan Stanford Publishing, 2013).
- [4] H. Oechsner, Secondary Neutral Mass Spectrometry (SNMS) and Its Application to Depth Profile and Interface Analysis. In: Thin Film and Depth Profile Analysis, Ed. by Oechsner H, Springer-Verlag, 1984, p. 63-86.
- [5] H. Oechsner, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 33,918(1988).
- [6] I.V. Veryovkin, W.F. Calaway, J.F. Moore, M.J. Pellin, J.W. Lewellen, Y.Li, S.V. Milton, B.V. King, M. Petravic, Applied Surface Science 231-232, 962(2004).
- [7] T. Albers, M. Neumann, D. Lipinsky, A. Benninghoven, Applied Surface Science 70-71,49(1993).
- [8] T.A. Dang, T.A. Frist, Surface and Coatings Technology 106,60(1998).
- [9] G.L. Katona, Z. Berényi, L. Péter, K. Vad, Vacuum 82/2,270(2007).
- [10] T. Schneider, M. Sommer, J. Goschnick, Applied Surface Science 252/1 257(2005).
- [11] Vasile-Dan Hodoroba, Wolfgang E.S Unger, Holger Jenett, Volker Hoffmann, Birgit Hagenhoff, Sven Kayser, Klaus Wetzig, Applied Surface Science 179/1-4,30(2001).
- [12] D.M.Zayachuk, O.S.Ilyina, A.V.Pashuk, V.I.Mikityuk, V.V.Shlemkevych, A.Csik, and D.Kaczorowski, J Cryst Growth 376,28(2013).
- [13] D.M. Zayachuk, E.I. Slynko, V.E. Slynko, and A. Csik, Materials Letters 173,167(2016).
- [14] D.M. Zayachuk, V.E. Slynko, and A. Csik, Physics and Chemistry of Solid State 17,336(2016).
- [15] P. Sigmund, Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets, Phys. Rev. 184,383(1969).
- [16] P.Sigmund, Elements of Sputtering Theory. In: Nanofabrication by Ion-Beam Sputtering. T. Som, D. Kanjilal (Pan Stanford Publishing, 2013).
- [17] L.C.Feldman, J.W.Mayer, Fundamentals of Surface and Thin Film Analysis (North-Holland, 1986).
- [18] Handbook of Thin Film Technology, Ed. by L.I. Maissel and R. Glang, V. 2 (McCraw Hill Hook Company, 1970).

Formation of the Sputtered Phase of PbTe Crystals by Ar⁺ Plasma and Re-deposition of the Sputtered Species at Secondary Neutral Mass Spectrometry Conditions

¹*Lviv Polytechnic National University, Lviv, Ukraine*

²*Frantsevich Institute for Problems of Materials Science NASU, Chernivtsy branch, Chernivtsy, Ukraine*

³*Institute for Nuclear Research, Hungarian Academy of Sciences (ATOMKI), Debrecen, Hungary*

Formation of the Pb and Te sputtered phase under exposure of the lateral surface of PbTe crystals grown from melt by the Bridgman method by Ar⁺ plasma at Secondary Neutral Mass Spectrometry (SNMS) conditions and re-deposition of the sputtered species on the sputtering crystal surface are investigated. Experimental evidence of mutual influence of the sputtering and re-deposition processes on each other during prolonged depth profiling of PbTe crystals is presented. Sputtering of the PbTe crystal surface forms the strongly supersaturated sputtered phase of Pb and Te. Re-deposition of the Pb and Te sputtered atoms on the crystal surface results in oscillations of sputtering rate of PbTe crystal and changes of average intensity of Pb and Te sputtering over sputtering time. A possible role of both the sub-critical nuclei of newly re-deposited phase and the re-deposited surface structures of post-critical sizes in generation of the features of PbTe crystal sputtering is discussed. It is concluded that formation and re-sputtering of the sub-critical nuclei of re-deposited phase leads to the oscillations of sputter yields of Pb and Te. Growth and re-sputtering of the re-deposited surface structures of post-critical sizes lead to changes of average values of Pb and Te sputter yields.

Keywords: sputtering; re-deposition; nucleation; semiconducting lead compounds.