

УДК 538.971

## СГЛАЖИВАНИЕ ПОВЕРХНОСТИ ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ МОЛИБДЕНОВЫХ ЗЕРКАЛ ПРИ РАСПЫЛЕНИИ С ОДНОВРЕМЕННЫМ ОСАЖДЕНИЕМ

*А.В. Рогов, М.Ю. Нагель, Ю.В. Мартыненко*

*НИИ «Курчатовский институт», Москва, Россия*

Представлены результаты исследования модификации поверхности поликристаллических молибденовых зеркал при распылении с одновременным осаждением материала зеркала. Экспериментально получено, что, когда скорость распыления равна скорости осаждения, происходит сглаживание рельефа. Компьютерное моделирование этого процесса показало, что для сглаживания поверхности скорости распыления и напыления не должны отличаться более чем в 2 раза.

**Ключевые слова:** распыление, напыление, рельеф поверхности.

## MOLIBDENUM POLYCRYSTAL MIRRORS SURFACE SMOOTHING AT SPUTTERING WITH SIMULTANEOUS DEPOSITION

*A. V. Rogov, M. Yu. Nagel, Yu. V. Martynenko*

*NRC «Kurchatov Institute», Moscow, Russia*

Results of investigation of Mo polycrystalline mirrors surface modification at sputtering with mirror material deposition are presented. Surface smoothing was experimentally shown to occur if sputtering rate and proper material deposition rate are approximately equal. Computer modeling of this process shows that for the surface smoothing sputtering and deposition rates should not differ more than 2 times.

**Key words:** sputtering, deposition, surface relief.

### ВВЕДЕНИЕ

В работе [1] экспериментально обнаружен эффект сглаживания микронеровностей поверхности при её распылении в сеточном пологом катоде, когда часть распылённого материала переосаждалась обратно на подложку. Эти результаты были получены на полированных образцах, выполненных из монокристаллического молибдена. Целями данной работы являются экспериментальное подтверждение данного эффекта применительно к поликристаллическим металлическим зеркалам и математическое моделирование обнаруженного эффекта.

### МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Эксперименты проводились в пологом катоде цилиндрической формы диаметром 65 мм и длиной 130 мм, изготовленном из нержавеющей сетки с размером ячейки 2,5 мм (диаметр проволоки 0,5 мм) с молибденовым покрытием. Исследуемый образец размещался внутри полого катода на его доньшке. В качестве рабочего газа использовался аргон. Для обеспечения равенства скорости распыления и осаждения в качестве дополнительного напылительного устройства использовался малоразмерный магнетрон на постоянном токе со встроенным изолированным кольцевым анодом. Он размещался со стороны открытого конца полого катода. Этот же магнетрон использовался для предварительного напыления материала зеркала на полый катод. Диаметр распыляемого катода магнетрона (с косвенным охлаждением) 23 мм при максимальной толщине 4 мм. Это позволило использовать образец молибдена из той же партии, что и исследуемый, в качестве распыляемого катода магнетрона. В ходе эксперимента анод магнетрона также использовался в качестве анода сеточного полого катода и был изолирован от вакуумной камеры. Такая конструкция обеспечивает высокую скорость распыления материала мишени и возможность регулировки скорости распыления и осаждения в широких пределах. Схема эксперимента представлена на рис. 1.

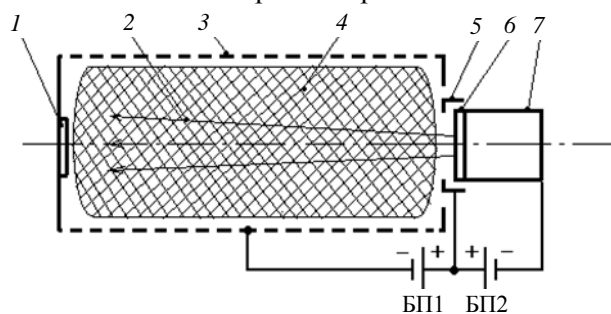


Рис. 1. Схема эксперимента: 1 — исследуемый образец зеркала; 2 — атомарный поток распылённого в магнетроне материала; 3 — цилиндрический полый катод; 4 — плазма тлеющего разряда в режиме полый катод—магнетрон; 5 — анод; 6 — распыляемый катод магнетрона; 7 — корпус магнетрона

В качестве образцов использовались круглые полированные поликристаллические молибденовые зеркала диаметром 23 мм и толщиной 3 мм.

Проведено две серии экспериментов: распыление в сеточном полом катоде и распыление в сеточном полом катоде с одновременным осаждением, когда скорость распыления  $V_p$  равна скорости осаждения  $V_h$ . При совместном включении магнетрона и полого катода формируется комбинированный разряд полый катод—магнетрон. Этим обеспечивается поддержание тлеющего разряда внутри полого катода при аномально низком давлении аргона, вплоть до нескольких мторр. Для обеспечения равенства рабочего давления в обоих режимах распыления эксперименты проводились при рабочем давлении аргона  $P_{Ar} = 1,0 \cdot 10^{-2}$  торр.

Распыление проводилось в полом катоде с выключенным магнетроном. При этом происходит частичное переосаждение распылённого материала со стенок полого катода на поверхность исследуемого образца. Однако скорость распыления значительно превышает скорость осаждения, что обеспечивает интенсивное ионное травление поверхности. Режим распыления в полом катоде: напряжение  $U_d \approx 525$  В, ток разряда  $I_d \approx 81$  мА. Время распыления  $t_d \approx 60$  мин. Толщина распылённого поверхностного слоя  $\Delta \approx 200$  нм (измерено весовым методом).

Комбинированный режим работы магнетрона и полого катода, при котором выполнялось условие  $V_h \approx V_p$  (после длительного распыления масса зеркала не изменялась): полый катод — напряжение  $U_d \approx 470$  В, ток разряда  $I_d \approx 86$  мА; магнетрон — напряжение  $U_d \approx 330$  В, ток разряда  $I_d \approx 125$  мА. Длительность процесса  $t_d \approx 60$  мин. Эффективная толщина напылённого/распылённого слоя также составляла  $\Delta \approx 200$  нм (измерено весовым методом в режиме распыления с выключенным магнетроном). Температура поверхности при напылении с распылением составляла  $\sim 280$  К (за счёт нагрева при распылении). На рис. 2 представлены результаты электронной микроскопии поверхности молибденового зеркала после ионного травления и после распыления с одновременным осаждением.

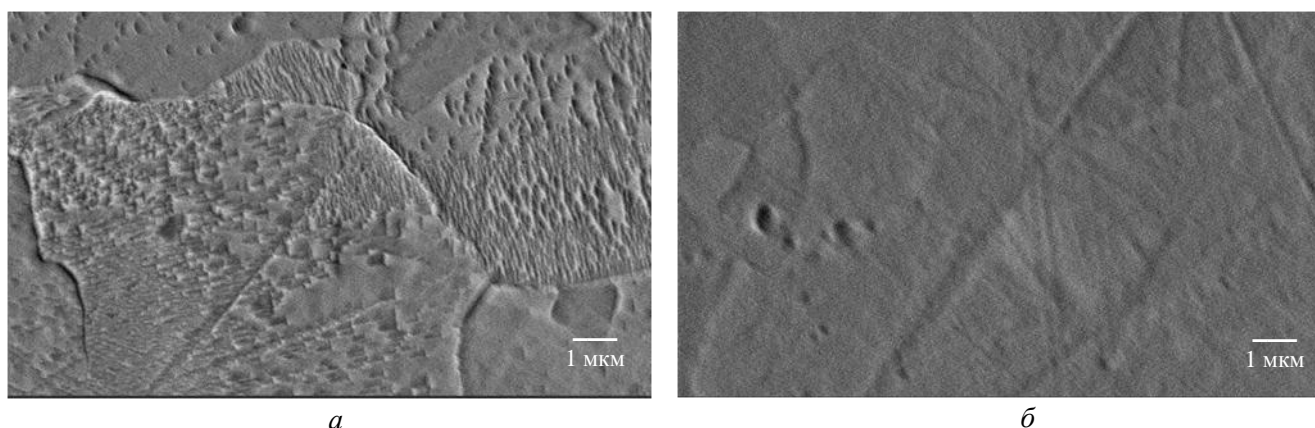


Рис. 2. Морфология поверхности после травления в сеточном полом катоде (а) и после распыления с осаждением (б)

На рис. 2 хорошо видно, что характер и размер дефектов травления при распылении поликристаллического металла сильно зависят от ориентации зёрен на поверхности подложки. Также проявляется хорошо известный эффект [2] протравливания границ зёрен.

После распыления в режиме с одновременным осаждением ямки травления, границы зёрен и следы механической обработки приобрели более сглаженные края и стали мельче. В целом рельеф стал более однороден, характерные дефекты имеют сглаженную форму и мало отличаются по размерам.

## МОДЕЛЬ РАСПЫЛЕНИЯ С ОСАЖДЕНИЕМ МАТЕРИАЛА ПОВЕРХНОСТИ

Изменение со временем рельефа поверхности тела при её распылении и одновременном осаждении атомов того же вещества численно моделировалось с помощью кода [3], дополненного учётом распыления. В расчётах атомы после осаждения могут диффундировать по поверхности, образовывать кластеры, которые затем растут, присоединяя новые диффундирующие атомы. Диффузия атомов по шероховатой поверхности описывается с учётом захвата атомов в ловушки, время жизни в которых так же, как и сама

диффузия, зависит от температуры. Кристаллическая решётка подложки для простоты считалась простой кубической. Молибден имеет объёмно-центрированную кубическую решётку, а поверхности разных граней поликристалла имеют разную конфигурацию кристаллической поверхности. Поэтому наши расчёты могут дать только качественное согласие с экспериментом. Однако общие закономерности расчёт передаёт хорошо.

Частота прыжка адатома из одного узла решётки в соседний узел равна [4]

$$v_j = kv \exp(-E_a/T), \quad (1)$$

где  $k$  — число возможных направлений диффузии (для простой решётки  $k = 4$ );  $v$  — частота колебаний атомов в узлах решётки, имеющая типичное значение  $v \approx 10^{13} \text{ с}^{-1}$  [4];  $T$  — температура поверхности в электрон-вольтах;  $E_a$  — энергия активации диффузии адатома по поверхности. Для молибдена  $E_a$  согласно модели [4] можно рассчитать по известной энергии активации диффузии для адатома по поверхности вольфрама  $E_{aw}$ :

$$E_a = E_{aw}(H_{Mo}/H_W) = 0,54—0,78 \text{ эВ/атом}, \quad (2)$$

где  $H_{Mo} = 6,65 \text{ эВ/атом}$ ,  $H_W = 8,5 \text{ эВ/атом}$  — энергия сублимации для молибдена и вольфрама соответственно [5];  $E_{aw} = 0,7—1 \text{ эВ}$  в зависимости от грани кристалла [6]. В расчётах принималось  $E_{aw} = 0,8 \text{ эВ}$ . При моделировании для удобства время обезразмеривалось на время одного прыжка. Так как энергия, необходимая для отрыва атома, определяется числом ближайших соседей [4], то вероятность отрыва атома с поверхности из «угла» (участка поверхности с двумя ближайшими соседями диффундирующего атома) за время одного прыжка подвижного атома в соседнее положение в данной модели можно считать равной

$$p_{ev} = v_{ev}/v_j = \frac{1}{k} \exp(-(E - E_a)/T), \quad (3)$$

где  $v_{ev}$  — частота отрыва атомов от данного участка поверхности;  $E$  — энергия связи атома в данном положении. Для участков поверхности с энергией активации меньше, чем на гладкой поверхности, например, отростков толщиной в один атом («пиков»), вероятность отрыва за время одного прыжка подвижных атомов по поверхности считалась равной единице, поскольку атом с вершины «пики» перемещается на его поверхность за время, много меньше времени прыжка диффундирующих атомов по подложке. Для участков с энергией активации диффузии в несколько раз больше, чем на гладкой поверхности, таких, как «ямы», вероятность отрыва полагалась равной нулю.

Скорость осаждения атомов на подложку задавалась отношением частоты прыжков подвижных атомов к частоте падения атомов на подложку:

$$v_j/v_a = v_j/(qS) = [kv/(qS)] \exp(-E/T), \quad (4)$$

где  $v_a = qS$  — частота осаждения атомов на подложку;  $q$  — плотность потока атомов на подложку;  $S$  — площадь подложки.

Таким образом, при низкой температуре ( $T < 400 \text{ К}$ ) влияние движения адатомов по подложке крайне мало, рельеф поверхности определяется только падением атомов и ионов. Следует, однако, заметить, что движение адатомов по поверхности может инициироваться ионно-стимулированной диффузией. Поэтому процессы могут идти и при меньшей температуре, чем даёт расчёт.

Распыление моделируется образованием ямы размером, равным параметру решётки. Скорость распыления различных участков поверхности зависит от угла падения  $\varphi$  (измерялся в градусах), вероятность образования дырки определялась по формуле

$$P(\varphi) = \left[ \frac{1}{\cos\left(\frac{x-5}{57,297}\right)} - \frac{0,01}{\cos\left(\frac{x-5}{57,297}\right)} \right]^3, \quad (5)$$

где принято, что максимум распыления находится при  $\varphi = 85^\circ$  [3].

Распылённые атомы могут переосаждаться на неровности поверхности с учётом диаграммы направленности вылета этих атомов  $\sim \cos\theta$ , где  $\theta$  — угол вылета распылённого атома, отсчитываемый от нормали к реальной поверхности.

При моделировании варьировались отношение  $V_h/V_p$ , а также параметры движения атомов по поверхности, зависящие от температуры. Моделирование проводилось как в 2-мерном (2D) варианте, когда изучалась динамика на плоскости, перпендикулярной поверхности образца, так и в 3-мерном (3D) варианте, моделирующем реальную поверхность. Начальная поверхность задавалась следующим образом: на участке плоской поверхности моделируется несколько неровностей, расположение которых определяется случайным образом. В 3D-варианте форма начальных неровностей для возможности сравнения с результатами 2D-моделирования задавалась зависящей только от одной координаты  $x$  (направленной вдоль длинной стороны прямоугольной подложки), зависимость от  $y$  (второй координаты на подложке) появляется в процессе эволюции поверхности. Результаты расчётов распыления без осаждения в 2D- и 3D-моделях представлены на рис. 3.

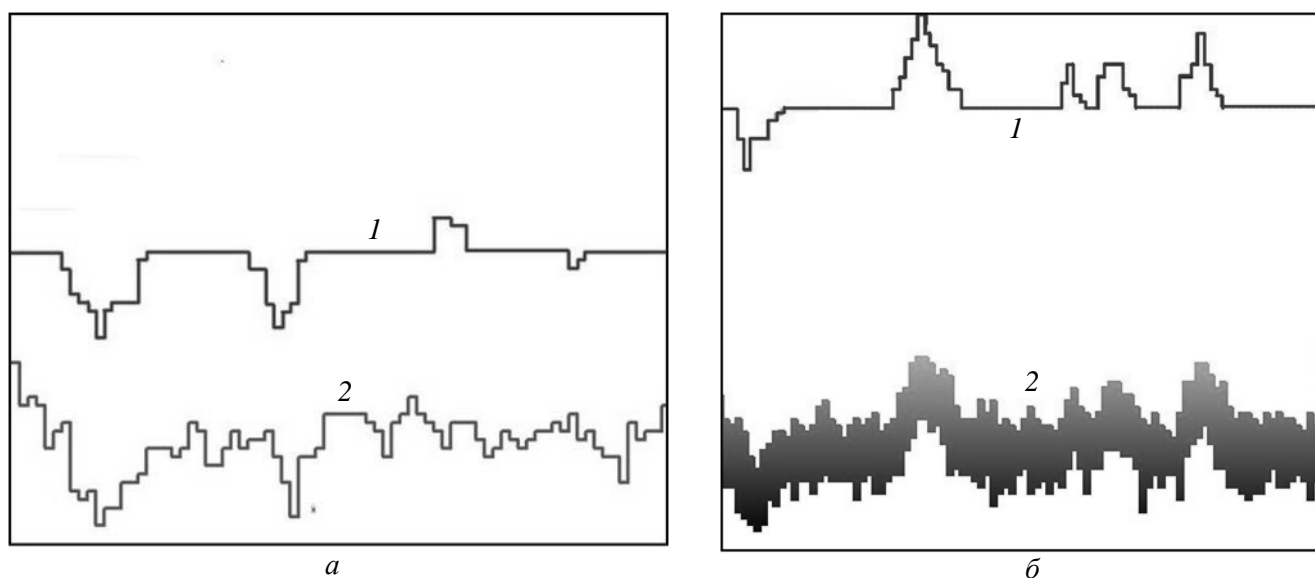


Рис. 3. Результаты расчёта профиля поверхности после распыления без осаждения в 2D- (а) и 3D-моделях (б) при  $T = 500$  К: 1 — начальный рельеф поверхности; 2 — рельеф после распыления. Длина показанного участка подложки здесь и далее  $100a$ , где  $a$  — диаметр атома мишени

Сравнение результатов 2D- и 3D-моделирования показывает их принципиальное совпадение. На рис. 3 также видно, что распыление без осаждения не приводит к сглаживанию поверхности. При совместном распылении и напылении атомов того же материала, что и подложка, возможно разравнивание поверхности.

Шероховатость поверхности характеризовалась среднеквадратичным отклонением от среднего уровня  $h_0$ :

$$\sigma = \left( \sum_i (h_i - h_0)^2 / S \right)^{1/2}, \quad (6)$$

где  $h_i$  — высота  $i$ -го атома поверхности относительно начального уровня поверхности.

Моделирование показало, что через некоторое время среднеквадратичное отклонение достигает равновесного значения (рис. 4), далее рассчитывалась именно установившаяся шероховатость.

Сглаживание поверхности происходило в узком диапазоне значений  $V_h/V_p$  от 1/2 до 2, наилучшее сглаживание достигалось при  $V_h/V_p = 1$  (рис. 5).

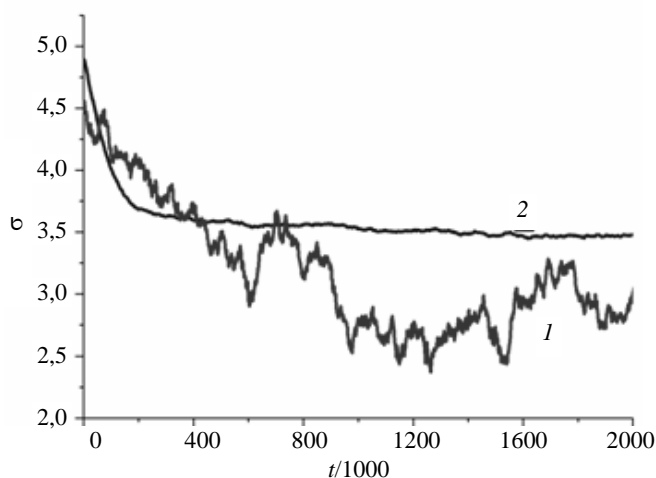


Рис. 4. Зависимость среднеквадратичного отклонения поверхности от времени (в единицах одного прыжка адатома) при совместном напылении и распылении в 2D- (1) и 3D-моделях (2) при  $T = 440$  К,  $V_h/V_p = 1$

Рельефы поверхности при распылении с осаждением представлены на рис. 6.

Моделирование показало, что осаждение распылённых атомов на другие участки поверхности также приводит к её разравниванию. Кроме того, разравниванию поверхности способствует наличие механизма, затрудняющего движение адатомов «вверх». Например, если выступающие элементы поверхности нагреты сильнее и коэффициент диффузии на вершинах больше, то возникает направленный поток адатомов от вершин к долинам рельефа.

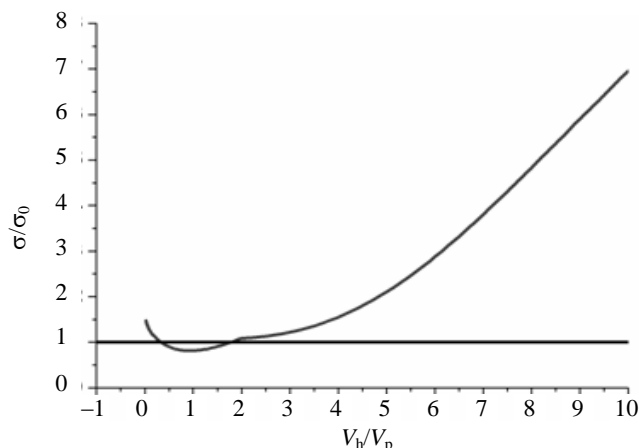
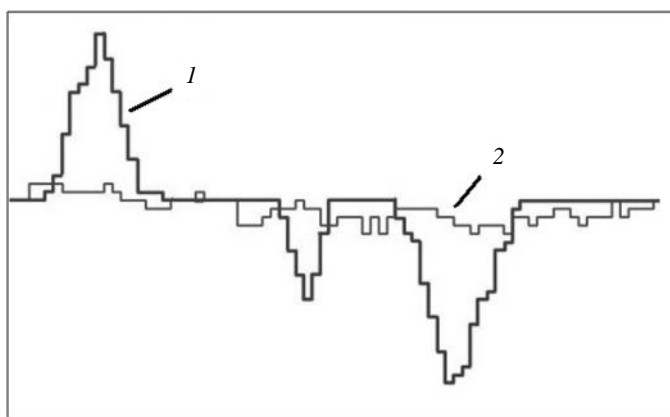
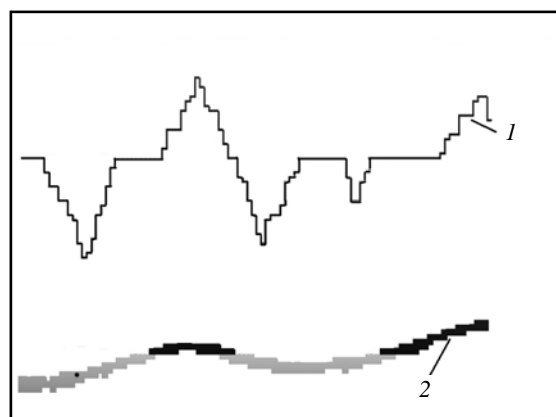


Рис. 5. Зависимость среднеквадратичного отклонения от параметра  $V_h/V_p$  при  $T = 700$  К,  $\sigma$  — начальное значение среднеквадратичного отклонения



*a*



*б*

Рис. 6. Разравнивание поверхности при одновременном распылении и напылении при  $V_h/V_p = 1$ ,  $T = 640$  К в 2D-модели (*a*), при  $V_h/V_p = 1$ ,  $T = 500$  К в 3D-модели (*б*): 1, 2 — начальный и конечный рельеф соответственно для 3D-модели (конечный рельеф для ясности показан ниже начального)

На рис. 7 представлена расчётная зависимость среднеквадратичного отклонения рельефа после распыления с осаждением от температуры поверхности.

На рис. 7 видно, что сглаживание лучше происходит при повышенной температуре. Однако можно ожидать, что ионно-стимулированная диффузия по поверхности облегчает сглаживание наиболее эффективно при низкой температуре, когда диффузия, обусловленная тепловым движением, мала.

Таким образом, одновременное распыление и напыление материала мишени позволяет получить сглаживание поверхности. Расчёты показали, что существует достаточно узкая область отношений скорости распыления и напыления  $V_h/V_p = 0,5—2$  (при типичных для напыления поверхности зеркал значениях потока атомов и температуры поверхности), при которых ожидается проявление эффекта сглаживания рельефа.

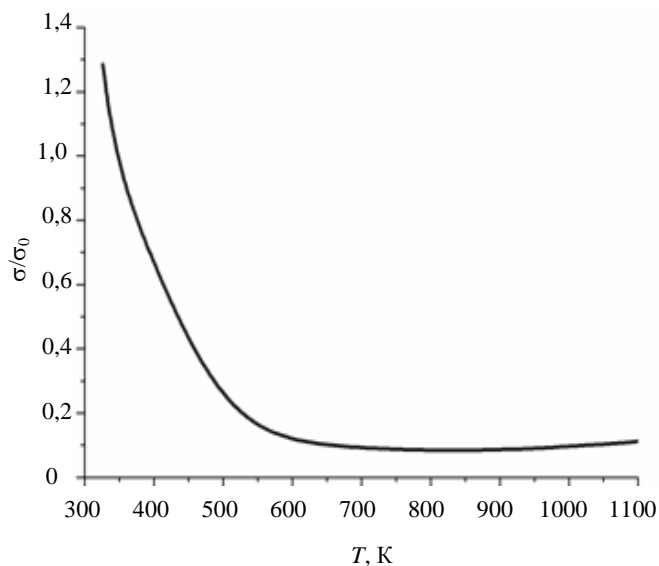


Рис. 7. Зависимость среднеквадратичного отклонения от среднего уровня поверхности от температуры при оптимальном сглаживающем соотношении скоростей распыления и напыления  $V_h/V_p = 1$ ,  $\sigma_0$  — начальное значение среднеквадратичного отклонения

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментальное исследование модификации рельефа молибденовых поликристаллических зеркал показало, что при одновременном распылении и напылении материала подложки происходит сглаживание рельефа. При этом поддерживалась приблизительно равная скорость распыления и напыления.

Компьютерное моделирование одновременного распыления и напыления показало, что для проявления эффекта сглаживания необходимо, чтобы скорости процессов распыления и напыления отличались не более чем в 2 раза. Применительно к молибдену полученные результаты расчётов хорошо согласуются с экспериментальными данными.

Расчётная модель и использованные при расчётах приближения позволяют сделать предположение, что описанный механизм сглаживания применим для широкого круга материалов, включая и неметаллы.

## REFERENCES

1. **Rogov A.V., Lozovan A.A.** Application of grid hollow cathode for cleaning of the substrate before vacuum sputtering. — *Poverkhnost'. Ser. Rentgen., Sinkhrotr. i neytr. issled.* (Surface. Ser. Roentgen., synchrotr. and neutr. research), 2008, № 5, pp. 1—5 (in Russian).
2. **Martynenko Yu.V., Moskovkin P.G.** Ion etching of dislocations outputs on the surface. — In the same place, 1997, № 10, pp. 50—53 (in Russian).
3. **Nagel M.Yu., Martynenko Yu.V.** Modeling of the deposited films growth. — *Rossiyskie nanotekhnologii* (Russian nanotechnologies), 2011, vol. 6, № 9—10, pp. 26—30 (in Russian).
4. **Stranskiy I.N., Knakke O.** Mechanism of evaporation. — *UFN (APhS)*, 1959, vol. 68, issue 2, pp. 261—305 (in Russian).
5. **Properties of elements.** Reference. Edited by G.V. Samsonov — M.: Metallurgiya (Metallurgy), 1976 (in Russian).
6. **Bouden F.P., Singer K.E.** Tungsten surface self diffusion. — *Nature*, 1969, vol. 222, pp. 977—979.

## AUTHORS

**Rogov A.V.** NRC “Kurchatov Institute”, pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia;  
alex-rogov@yandex.ru

**Nagel M.Yu.** NRC “Kurchatov Institute”, pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia

**Martynenko Yu.V.** NRC “Kurchatov Institute”, pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia;  
Martynenko\_YV@nrcki.ru

Received 25 February 2013  
Problems of Atomic Science and Technology  
Ser. Termoyadernyi sintez, 2013, vol. 36, issue 2, pp.19—24