

## **ЗАКОНОМЕРНОСТИ ФОРМИРОВАНИЯ ТОНКИХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК НА СТЕКЛЕ ПРИ ИОННО-АССИСТИРОВАННОМ ОСАЖДЕНИИ**

**И. И. Ташлыкова-Бушкевич<sup>1</sup>, Ю. С. Яковенко<sup>2</sup>, И. А. Бушкевич<sup>3</sup>,  
Д. Р. Гага<sup>1</sup>, А. С. Цаль<sup>1</sup>**

---

<sup>1)</sup> *Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники,  
ул. П. Бровки, 6, 220013 Минск, Беларусь, e-mail: iya.itb@bsuir.by*

<sup>2)</sup> *Минский государственный профессионально-технический колледж легкой  
промышленности и бытового обслуживания населения, ул. Казинца, 89,  
220108 Минск, Беларусь, e-mail: panta\_07@mail.ru*

<sup>3)</sup> *Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030 Минск, Беларусь*

Методами растровой электронной микроскопии (РЭМ) и атомно-силовой микроскопии (АСМ) исследовано влияние условий ионно-ассистированного осаждения на

микроструктуру поверхности тонких металлических пленок из молибдена на стеклянные подложки. Получено, что при пассивном нанесении *Mo* с увеличением времени осаждения покрытия с 3 до 9 ч шероховатость поверхности увеличивается от 1,05 до 1,66 нм и уменьшается при приложении потенциала, снижаясь до 0,33 нм при осаждении в течение 5 ч при  $U = 10$  кВ. Установлена корреляция характера изменения шероховатости пленок и среднего диаметра, объемной доли и удельной поверхности границ частиц микрокапельной фракции в зависимости от режима и времени нанесения покрытий. Построение гистограмм распределения высот и впадин рельефа поверхности позволило провести количественный анализ изменения микроморфологии пленок в процессе их роста.

**Ключевые слова:** ионно-ассистированное осаждение; металлические пленки; микроструктура; молибден.

## REGULARITIES OF FORMATION OF THIN METAL FILMS ON GLASS SUBSTRATE UPON ION-ASSISTED DEPOSITION

I. I. Tashlykova-Bushkevich<sup>1</sup>, Yu. S. Yakovenko<sup>2</sup>, I. A. Bushkevich<sup>3</sup>,  
D. R. Gagau<sup>1</sup>, A. S. Tsai<sup>1</sup>

---

<sup>1)</sup> *Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics, P. Brovki str. 6,  
220013 Minsk, Belarus,*

<sup>2)</sup> *Minsk State Vocational-Technical College of Light Industry and Consumer Services,  
Kazintsa str. 89, 220108 Minsk, Belarus,*

<sup>3)</sup> *Belarusian State University, Nezavisimosti av. 4, 220030 Minsk, Belarus,  
Corresponding author: I. I. Tashlykova-Bushkevich (iya.itb@bsuir.by)*

The effect of ion beam assisted deposition conditions on the surface microstructure of thin metal films of molybdenum on glass substrates was studied by scanning electron microscopy (SEM) and atomic force microscopy (AFM). For Mo deposition without ions, it was found that the surface roughness increases from 1.05 to 1.66 nm with increasing deposition time from 3 to 9 h and decreases to 0.33 nm upon ion-assisted deposition using Mo ions for 5 hours at  $U = 10$  kV. A correlation between the changes in the film roughness and the average diameter, volume fraction, and specific surface area of boundaries of microdroplets established depending on operating conditions and deposition time. Plotting of surface height/cavity histograms allowed performing a quantitative analysis of micromorphology changes during the growth of films.

**Key words:** ion-assisted deposition; metal films; microstructure; molybdenum.

## ВВЕДЕНИЕ

В последнее время тонкие металлические пленки на диэлектрических аморфных или поликристаллических подложках активно исследуются при разработке покрытий структурных составляющих солнечных батарей, а также в качестве материалов для полупроводниковой микроэлектроники [1]. При том что ионно-плазменные технологии широко применяются для создания тонкопленочных структур, для управления физико-химическими свойствами металлических покрытий, осаждаемых ионно-плазменным напылением, необходимо понимание влияния условий нанесения на микроструктуру поверхности системы покрытие/подложка.

В данной работе на примере тонких пленок молибдена с помощью методов РЭМ и АСМ исследованы закономерности формирования при гипервысоких скоростях кристаллизации микроструктуры тонких металлических пленок в зависимости от технологических режимов осаждения на стеклянную подложку. Для получения образцов Мо, пленки которого применяются в качестве тыльных контактов многослойных систем тонкопленочных солнечных элементов, был использован метод осаждения пленок, ассистированного собственными ионами (ОПАСИ) [2].

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Эксперименты по ионно-ассистированному осаждению пленок Мо на стекло проводились с использованием вакуумного резонансного плазменно-дугового источника (вакуум  $10^{-2}$  Па) [2, 3] при пассивном осаждении и при наличии ускоряющего потенциала  $U$  (сила ионного тока 100 мА, плотность ионного тока  $5,1$  мА/см<sup>2</sup>). Время осаждения покрытий при  $U = 0$  составляло 3, 6 и 9 ч, при  $U = 5$  кВ – 4 ч, при  $U = 10$  кВ – 4 и 5 ч. Скорость осаждения покрытия была  $\sim 0,1$  нм/мин. В соответствии с методикой, предложенной P. Sigmund [4], скорость «кристаллизации» (охлаждения каскадов) составляла  $10^{12}$ – $10^{13}$  К/с. Микроструктура поверхности образцов была изучена с применением растрового электронного микроскопа марки LEO-1455 VP. Для количественного анализа структурных элементов рельефа использовался метод случайных секущих. Дополнительно изучение топографии поверхности образцов было выполнено на атомно-силовом микроскопе NT-206. В качестве параметров, характеризующих шероховатость поверхности образца, были выбраны три величины, определяемые с помощью программы Surface Explorer: два «высотных» –  $R_a$  и  $R_z$  – и один «шаговый» параметр  $S$ . Для унифицированной оценки степени неоднородности поверхности пленок был также рассчитан коэффициент  $k = R_z/S$ , который позволяет количественно оценивать изменение высотных и продольных характеристик микрорельефа поверхности осажденной пленки в зависимости от условий формирования покрытия.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

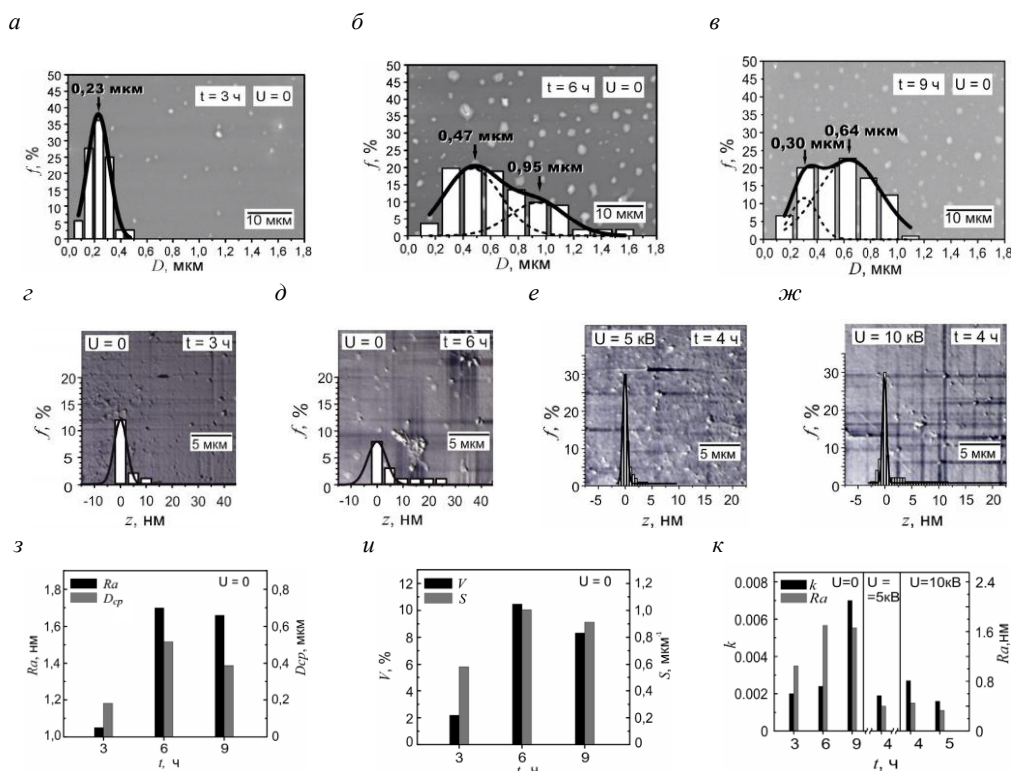
На рис. 1 приведены характерные РЭМ и АСМ изображения тонких пленок Мо на стекле в зависимости от условий их формирования. Установлено, что полученные пленки представляют собой сплошные достаточно однородные покрытия без присутствия локальных деформаций, вызванных градиентом температур при их формировании. Исходно островковый характер проявляется на поверхности исследованных пленок в виде характерной шероховатости.

Исследование образцов, осажденных при  $U = 0$ , методом РЭМ в режиме фазового контраста показало, что на поверхности тонких пленок присутствует микрокапельная фракция из наносимого покрытия. Полученные по результатам статистической обработки РЭМ изображений гистограммы (рис. 1, а–в) демонстрируют, что средний диаметр  $D_{cp}$  микрокапель растет от 0,23 мкм при времени нанесения покрытия  $t=3$  ч до 0,76 мкм при  $t = 6$  ч, снижаясь затем до 0,4 мкм при  $t = 9$  ч.

На рис. 1, а–в видно, что большинство микрочастиц на поверхности пленки имеет форму, близкую к сферической, но часть микрочастиц имеет неправильную форму. Это можно объяснить тем, что некоторые микрочастицы попали на поверхность в расплавленном состоянии и оказались расплюснутыми, а другие падали на поверхность в твердом состоянии и имели форму близкую к сферической [5]. Как видно на

рис. 1, б-в, распределение диаметров частиц микрокапельной фракции по размерным группам имеет преимущественно бимодальный характер и может быть описано суперпозицией двух гауссовых распределений. Такой подход к анализу РЭМ изображений позволяет выделить две подгруппы частиц микрокапельной фракций по измеренному диаметру, которые вносят наибольший вклад в формирование микрорельефа поверхности пленки, рис. 1, б, в. Получено, что с увеличением длительности осаждения пленки до 9 ч диапазон значений  $D$  сужается при увеличении относительного содержания более крупных частиц микрокапельной фракции.

На рис. 1, г-ж представлены типичные АСМ изображения поверхности тонких пленок, полученных при отсутствии ускоряющего потенциала (рис. 1, г, д) и при  $U = 5$  кВ (рис. 1, е) и  $U = 10$  кВ (рис. 1, ж) с соответствующими гистограммами распределения средних измеренных высот и впадин рельефа поверхности.



**Рисунок – РЭМ (а–в) и АСМ (г–ж) изображения поверхности тонких пленок Мо на стекле с соответствующими гистограмми распределения частиц микрокапельной фракции по размерам (а–в) и высот/впадин рельефа поверхности (г–ж) и зависимость значений параметров  $D_{cp}$ ,  $R_a$  (з),  $V$ ,  $S$  (и) и  $k$ ,  $R_a$  (к) от времени и условий осаждения**

Согласно данным АСМ при  $U = 0$  увеличение времени осаждения пленки с 3 до 6 ч сопровождается значительным увеличением  $R_a$  ее поверхности с 1,05 до 1,70 нм соответственно, рис. 1, з, к. При дальнейшем осаждении значение  $R_a$  остается практически неизменным и составляет 1,66 нм. Все построенные гистограммы для режима  $U = 0$  унимодальны (имеют ярко выраженный максимум) и обладают положительной асимметрией. Это свидетельствует о преобладании числа локальных макси-

мумов относительно средней линии поверхности по сравнению с гауссовым распределением и объясняется наличием микрокапельной фракции из материала наносимого покрытия, обнаруженной на снимках РЭМ. Отметим, что в случае использования катода из легкоплавкого материала, такого как алюминий и его сплавы с железом и хромом, полученные пленки характеризуются большей степенью неоднородности, роль микрокапельной фракции в формировании нанорельефа не является определяющей и величина  $R_a$  изменяется в диапазоне от единиц до десятков нм [3].

Анализируя данные, полученные при  $U = 5$  кВ и  $U = 10$  кВ [3], установлено, что при ионном ассистировании поверхность пленки сглаживается по сравнению с пленками, полученными при  $U = 0$ . Пленки обладают значительно меньшим значением шероховатости поверхности: при  $U = 5$  кВ ( $t = 4$  ч) значение  $R_a = 0,40$  нм, при  $U = 10$  кВ ( $t = 4$  ч) значение  $R_a = 0,45$  нм, а при  $U = 10$  кВ ( $t = 5$  ч) значение  $R_a = 0,33$  нм. При этом размер и плотность микрокапельной фракции на поверхности образцов уменьшается, о чем свидетельствуют полученные АСМ изображения. Определено, что степень симметричности соответствующих гистограмм распределения высот/впадин рельефа поверхности пленки увеличивается. Рис. 1, *е, ж* показывают, что для пленок, формируемых при приложении потенциала, характерно гауссово распределение высот и впадин. При повышении  $U$  до 10 кВ ( $t = 5$  ч) имеется практически равное количество локальных максимумов и минимумов с определенной высотой/глубиной соответственно выше и ниже средней линии поверхности.

Рис. 1, *з, и* наглядно демонстрируют эволюцию микроструктуры пленки Мо, получаемой пассивным осаждением. При увеличении времени нанесения покрытия от 3 ч до 6 ч мы наблюдаем рост параметра  $R_a$ , но затем при  $t = 9$  ч происходит его снижение, что хорошо коррелирует с характером изменения величин  $D_{cp}$ , а также объемной доли  $V$  микрокапельной фракции и удельной поверхности  $S$ . Обнаруженная закономерность объясняется тем, что первоначально увеличение поверхностной плотности микрочастиц происходит пропорционально росту времени осаждения пленки с 3 до 6 ч. Затем поверхностная плотность микрочастиц достигает насыщения и в дальнейшем практически не изменяется из-за “замуровывания” ранее осажденных микрочастиц по мере роста покрытия [5], что мы и наблюдаем при  $t = 9$  ч в режиме  $U = 0$ .

Для беспотенциального режима наличие на гистограммах характерного пика, максимум которого уменьшается с продолжительностью нанесения пленки с 3 до 6 ч вместе с ростом  $R_a$  и практически неизменном коэффициенте  $k$ , говорит об уменьшении числа локальных неоднородностей за счет заполнения областей с меньшей высотой в процессе роста пленки. Обнаруженное резкое возрастание параметра  $k$  практически в три раза от  $2,4 \cdot 10^{-3}$  до  $7,0 \cdot 10^{-3}$  (рис. 1, *к*) при увеличении времени пассивного осаждения с 6 до 9 ч свидетельствует, что плотность локальных неоднородностей на поверхности пленок возрастает. Характер изменения  $k$  при ионном ассистировании указывает на то, что доля неровностей на единицу поверхности пленки снижается при увеличении времени осаждения ( $k = 1,6 \cdot 10^{-3}$  при  $t = 5$  ч,  $U = 10$  кВ).

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На примере системы Мо/стекло методами РЭМ и АСМ исследована эволюция микроструктуры тонких металлических пленок на стеклянной подложке, полученных методом ионно-ассистированного нанесения, в зависимости от условий их фор-

мирования. Установлено, что при пассивном осаждении в процессе роста покрытия с 3 до 9 ч шероховатость поверхности увеличивается от 1,05 до 1,66 нм, снижаясь до 0,33 нм при  $U = 10$  кВ ( $t = 5$  ч). Рост пленки сначала сопровождается повышением плотности частиц микрокапельной фракции на ее поверхности при увеличении их размера, а затем достигается этап насыщения: наблюдается тенденция снижения среднего диаметра частиц до 0,4 мкм при  $t = 9$  ч. Обнаружено, что приложение потенциала повышает степень однородности покрытия: на гистограммах наблюдается симметричное распределение высот/впадин, что количественно выражается в минимальном значении коэффициента  $k$  равного  $1,6 \cdot 10^{-3}$  при  $U = 10$  кВ ( $t = 5$  ч). Полученные экспериментальные данные демонстрируют, как выбор параметров при формировании металлического покрытия методом ионно-ассистированного осаждения позволяет управлять процессами структурообразования покрытий, в частности плотностью микрокапельной фракции, определяющими в дальнейшем функциональные и эксплуатационные свойства пленок.

Работа финансировалась в рамках ГПНИ на 2016–2020 г. «Физическое материаловедение, новые материалы и технологии» (подпрограмма «Материаловедение и технологии материалов», задание 1.40, № ГР 20161123). Авторы благодарны О. Г. Бобровичу (БГТУ) и О. М. Михалковичу (БГПУ) за помощь при получении образцов методом ОПАСИ и проведении АСМ измерений.

#### БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЕ ССЫЛКИ

1. Арутюнян, Л. А. Физические характеристики пленок молибдена, осажденных на перлитовых стеклокерамических подложках методом магнетоэлектронного распыления / Л. А. Арутюнян, С. Г. Петросян, К. Э. Авджян // Известия НАН Армении. – 2015. – Т. 50, № 2. – С. 236–241.
2. Способ нанесения покрытий: пат. ВУ 2324 / И. С. Ташлыкков, И. М. Белый. – Оpubл. 16.03.1998.
3. Морфология и смачиваемость поверхности структур пленка Mo, Al, Al+1at.%Cr / стекло, сформированных ионно-ассистированным осаждением / О. М. Михалкович [и др.] // Взаимодействие излучений с твердым телом (ВИТТ-2017): матер. 11-й Междунар. конф., Минск, Беларусь, 23–25 сент. 2015 г. / редкол.: В. В. Углов (отв. ред.) [и др.]. – Минск: Изд. центр БГУ, 2015. – С. 248–250.
4. Sigmund, P. Energy density and time constant of heavy-ion-induced elastic-collision spikes in solids / P. Sigmund // Appl. Phys. Lett. – 1974. – V. 25. – P. 169.
5. Ryabchikov, A. I. Influence of bias parameters and plasma density to vacuum arc macroparticles accumulation / A. I. Ryabchikov, D. O. Sivin, A. L. Bumagina // Materials and Manufacturing Processes. – 2015. – V. 30. – P. 1471–1475.