

# **Untersuchung und Modellierung von Teilchenströmen in einem Beschichtungsprozess basierend auf Ionenstrahlzerstäubung**

Von der Fakultät für Mathematik und Physik  
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover  
zur Erlangung des Grades

**Doktor der Naturwissenschaften**

- Dr. rer. nat. -

genehmigte Dissertation

von

**Dipl.-Phys. Wjatscheslaw Sakiew**

2024

Betreuer, Gutachter, Prüfer: **Prof. Dr. Detlev Ristau**  
Institut für Quantenoptik  
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover,  
Laser Zentrum Hannover e.V.

Gutachter, Prüfer: **Prof. Dr. Jan Schmidt**  
Institut für Festkörperphysik  
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

Gutachter, Prüfer: **Prof. Dr. Thomas Arnold**  
Institut für Fertigungstechnik  
Technische Universität Dresden,  
Leibniz-Institut für Oberflächenmodifizierung e.V. in Leipzig

Vorsitzende der:  
Promotionskommission **Prof. Dr. Gunther Seckmeyer**  
Institut für Meteorologie und Klimatologie  
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

Tag der Disputation: 14.06.2024



---

# Eidesstattliche Erklärung

## Eidesstattliche Erklärungen

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich meine Dissertation selbstständig verfasst habe und die benutzten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben sind. Darüber hinaus erkläre ich an Eides statt, dass die von mir verfasste Dissertation nicht zuvor als Diplomarbeit oder ähnliche Prüfungsarbeit verwendet wurde.

## Declaration in Lieu of Oath

I hereby certify that the work presented in this dissertation is my original work and that all passages and ideas that are not mine have been fully and properly acknowledged. In addition I certify that this dissertation has never been used as diploma thesis or a similar work before.

---

Hannover, 24. Juni 2024

Wjatscheslaw Sakiew

## Erklärung betreffend die Schreibweise

Für eine durchgehende Konsistenz mit den englischsprachigen Publikationen wird in dieser kumulativen Dissertation durchgängig die englische Zahlennotation verwendet.

---

# Kurzfassung

Wjatscheslaw Sakiew

## Untersuchung und Modellierung von Teilchenströmen in einem Beschichtungsprozess basierend auf Ionenstrahlzerstäubung

Die Ionenstrahlzerstäubungsdeposition ermöglicht die Herstellung von kompakten Schichten und Schichtsystemen mit amorpher Mikrostruktur und niedrigsten prozessinduzierten Defektdichten. Demgegenüber stehen im Vergleich zu anderen auf physikalischer Gasphasenabscheidung basierenden Beschichtungsverfahren höhere Herstellungskosten, eine kleinere homogene Beschichtungsfläche und eine geringere Beschichtungsrate. Durch einen Übertrag der hohen Schichtqualität auf größere Beschichtungsflächen, über den üblichen Kreisdurchmesser von derzeit etwa 300 mm hinaus, könnten einerseits neue Anwendungen z. B. in Astronomie, Weltraum und Hochenergiephysik ermöglicht werden. Andererseits könnte ein höherer Materialnutzungsgrad die Technologie auf einem größeren Markt positionieren sowie den Verbrauch von kritischen Rohstoffen reduzieren. Zum Erreichen dieser Zielstellungen müssen die Teilchenströme im Beschichtungsprozess besser verstanden werden – dazu soll die vorliegende Arbeit einen Beitrag leisten.

Die experimentellen Untersuchungen basieren auf einer detaillierten ex-situ Kartierung in einem reaktiven Prozess sowohl der durch den breiten Ionenstrahl erodierten Targets als auch der durch Zerstäubung in der Beschichtungsebene realisierten Schichtdickenverteilungen. Als Projektilspezies werden Argon, Krypton und Xenon im Energiebereich 1.4 bis 1.9 keV betrachtet. Als Targetmaterial kommt vor allem Tantal zum Einsatz, mit welchem Tantalpentoxid beschichtet wird. Die untersuchten erodierten Targets lassen die Schlussfolgerung zu, dass die qualitative Erosionsform im betrachteten Prozess von geometrischen Prozessparametern dominiert wird, weniger von der polarwinkelabhängigen integralen Zerstäubungsausbeute und damit auch weniger von Wechselwirkungsmechanismen auf atomarer Ebene. Weiterhin zeigen die Experimente auf, dass für eine Vergrößerung der nutzbaren Beschichtungsfläche eher die über die Fläche variierenden Schichteigenschaften und weniger die Schichtdickenhomogenität eine Herausforderung darstellen.

Ausgehend von den Experimenten wird ein Modell für die Primärteilchen, die den breiten Ionenstrahl bilden, und die Sekundärteilchen, die das vom Target abgestäubte Material beschreiben, aufgestellt. Das Modell bestätigt, dass die Form der Targeterosion qualitativ betrachtet wenig von der integralen Zerstäubungsausbeute abhängt. Es sagt auch eine starke Durchmischung der Primärteilchentrajektorien voraus. Im Hinblick auf die Schichtdickenverteilungen ist ein Ergebnis, dass der verbreitete Ansatz, den von einem Target zerstäubten Teilchenstrom aus rotationssymmetrischen und ggf. entarteten Kosinusemittlern zu überlagern, für den betrachteten Prozess unzureichend ist. Eine numerische Nachbildung der Ionen-Materie-Wechselwirkung durch Simulationen mit *TRIDYN*, ein weit verbreiteter Monte-Carlo-Code auf diesem Gebiet, ergibt eine bessere Übereinstimmung zwischen 3D-Modell und Experiment. Als Begründung wird die Berücksichtigung sowohl von isotropen als auch anisotropen Anteilen bei der Zerstäubung eines Festkörpers gesehen. Weiterhin wird die Zerstäubung von Tantal aus Tantalpentoxid durch am Target gestreute Projektile simulativ untersucht. Es ergibt sich ein geringer Einfluss auf die resultierende Schichtdickenverteilung. Die dielektrische Versiegelung der Targetoberfläche scheint dagegen ein wichtiger Mechanismus innerhalb der reaktiven Ionenstrahlzerstäubungsdeposition zu sein, was bisher bei dieser Technologie weitestgehend außer Acht gelassen wurde.

**Schlagwörter:** Dünnschichttechnologie, Ionenstrahlzerstäubungsdeposition, optische Schichten, reaktiver Beschichtungsprozess, breiter Ionenstrahl, 2D-Beschichtungsratenverteilungen, 2D-Erosionsverteilungen, 3D-Modellierung, Teilchenströme, Zerstäubung, dielektrische Versiegelung

---

# Abstract

Wjatscheslaw Sakiew

## Investigation and modeling of particle fluxes in a deposition process based on ion beam sputtering

Ion beam sputter deposition enables the production of high density layers and layer stacks with an amorphous microstructure and the lowest process-induced defect densities. In contrast, compared to other coating processes based on physical vapor deposition, the production costs are higher, the uniform deposition area is smaller, and the deposition rate is lower. Transferring the high coating quality to larger deposition areas beyond the usual circular diameter of around 300 mm, new applications could be made possible, e.g., in astronomy, space, and high-energy physics, on the one hand. On the other hand, a higher degree of material utilization could position the technology on a larger market and reduce the consumption of critical raw materials. To achieve these objectives, the particle fluxes in the coating process must be better understood – this thesis intends to contribute to this.

The experimental investigations are based on a detailed ex-situ mapping in a reactive process of both, the targets eroded by the broad ion beam and the coating thickness distributions in the coating plane produced by sputtering. Argon, krypton, and xenon in the energy range of 1.4 to 1.9 keV are considered projectile species. The primary target material used is tantalum, with which tantalum pentoxide is coated. The investigated eroded targets allow the conclusion that the qualitative erosion shape in the considered process is dominated by geometric process parameters, less by the polar angle-dependent integral yield, and, thus, less by interaction mechanisms at the atomic level. The experiments show that the main challenge for increasing the size of the usable deposition area is the layer properties distributed over the deposition area rather than the uniformity of the layer thickness.

Based on the experimental findings, a model is developed for the primary particles, which form the broad ion beam, and the secondary particles, which describe the material sputtered from the target. The model confirms the minor impact of the integral yield on the qualitative erosion shape. It also predicts a strong mixing of the primary particle trajectories. With regard to the layer thickness distributions, one result is that the common approach of superimposing the particle flux sputtered from a target using rotationally symmetric and potentially distorted cosine emitters is insufficient for the investigated process. A numerical simulation of the ion-matter interaction using TRIDYN, a widely used Monte Carlo code in this field, gives a better agreement between the 3D model and the experiment. The reason for this is seen in the consideration of both isotropic and anisotropic components in the sputtering process of a solid. Furthermore, the sputtering of tantalum from tantalum pentoxide by projectiles scattered at the target is investigated by simulation. As a result, there is a minor impact on the deposited layer thickness distribution. Target poisoning, in contrast, appears to be an essential mechanism within reactive ion beam sputtering deposition, which has so far been largely ignored in this technology.

**Keywords:** Thin film technology, ion beam sputter deposition, optical coatings, reactive coating process, broad ion beam, 2D coating rate distributions, 2D erosion distributions, 3D modeling, particle fluxes, sputtering, target poisoning

---

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>7</b>
2.1	Ionenstrahlzerstäubungsdeposition – vom Edelgasatom zur dielektrischen Schicht	7
2.2	Verwendete Algorithmen, Modellfunktionen und Modelle . . . . .	18
<b>3</b>	<b>Experimente zu Primärteilchen</b>	<b>23</b>
3.1	Artikel A: Investigation of target erosion profiles sputter-eroded by a low-energy broad ion beam . . . . .	23
3.1.1	Beitrag des Autors . . . . .	23
3.1.2	Publizierter Artikel . . . . .	24
<b>4</b>	<b>Modellierung der Primärteilchen</b>	<b>35</b>
4.1	Artikel B: Target erosion process during broad ion beam sputtering using 3D modeling of ion trajectories . . . . .	35
4.1.1	Beitrag des Autors . . . . .	35
4.1.2	Publizierter Artikel . . . . .	36
4.2	Häufigkeitsverteilungen der Einfallswinkel der zerstäubenden Projektile auf dem Target . . . . .	52
<b>5</b>	<b>Experimente zu Sekundärteilchen</b>	<b>55</b>
5.1	Artikel C: Large area precision optical coatings by reactive ion beam sputtering	55
5.1.1	Beitrag des Autors . . . . .	55
5.1.2	Publizierter Artikel . . . . .	56
5.2	Artikel D: Impact of ion species on ion beam sputtered Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> layer quality parameters and on corresponding process productivity: A preinvestigation for large-area coatings . . . . .	64
5.2.1	Beitrag des Autors . . . . .	64
5.2.2	Publizierter Artikel . . . . .	65
<b>6</b>	<b>Modellierung der Sekundärteilchen</b>	<b>83</b>
6.1	Annahmen . . . . .	84
6.2	Substitution durch Punktemitter . . . . .	84
6.3	Flächenmitter als Überlagerung von Punktemittern mit rotationssymmetrischen Emissionscharakteristiken . . . . .	88
6.4	Flächenmitter als Überlagerung von Punktemittern mit mit TRIDYN simulierten Emissionscharakteristiken . . . . .	93
6.4.1	Dielektrische Belegung der Targetoberfläche . . . . .	94

6.4.2 Zerstäubung von Tantal aus Tantalpentoxid . . . . .	100
6.4.3 Streuung von Beschichtungsteilchen an der wachsenden Schicht . . . . .	109
6.4.4 Materialnutzungsgrad . . . . .	112
<b>7 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>113</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>119</b>
<b>Danksagung</b>	<b>127</b>
<b>Lebenslauf</b>	<b>129</b>
<b>Veröffentlichungen</b>	<b>131</b>

# 1

---

## Einleitung

Funktionsschichten bestehend aus Einzelschichten oder Schichtsystemen sind unverzichtbar für unzählige Produkte aus unterschiedlichsten Märkten wie Lasertechnologie, Telekommunikation, Mikroelektronik, Automobiltechnik, Weltraumanwendungen und andere. Sie ermöglichen die gezielte Einstellung von mechanischen, elektrischen, thermischen, optischen oder tribologischen Eigenschaften von Oberflächen und Werkstücken. Aber auch hydrophobe Eigenschaften oder die photokatalytische Aktivität einer Oberfläche können durch Beschichtungen modifiziert werden. Dadurch stellt die Dünnschichttechnologie einen wichtigen Innovationstreiber dar [1].

Unter den Beschichtungsverfahren, die auf physikalischer Gasphasenabscheidung basieren, ermöglicht die Ionenstrahlzerstäubungsdeposition (engl. *ion beam sputter deposition, IBSD*) oder allgemeiner Ionenstrahlzerstäubung (engl. *ion beam sputtering, IBS*), die Realisierung von optischen Schichten der höchsten Qualitätsstufe [2]. Bei der Größe der Beschichtungsfläche, der Beschichtungsrate und den Herstellungskosten reiht sich das Verfahren dagegen mit ganz hinten an. Dies zeigt sich auch in den prominenten Anwendungsbeispielen, die zugleich sehr kostenintensiv sind: hochreflektierende Spiegel mit geringsten optischen Verlusten für Gravitationswellendetektoren [3, 4], Laserkreisel für Navigationsmessungen in der Luft- und Raumfahrt oder für die Vermessung der Erdrotation in der Geodäsie [5], EUV-Masken für die Halbleiterfertigung [6] oder hochdispersive Spiegel für Ultrakurzpulslaser [7].

Betreffend die IBS-Technologie konnten in den letzten beiden Jahrzehnten durch intensive Forschungsaktivitäten enorme Fortschritte erzielt und Innovationen hervorgebracht werden – optisches Breitbandmonitoring [8], Rugate-Filter [9], magnetischer Separator [10] und Nanolamine [11] sind nur einige Beispiele mit Bezug auf das *Laser Zentrum Hannover e.V. (LZH)*.

Betreffend den Herausforderungen bei der Spiegelherstellung für Gravitationswelleninterferometer sind die Arbeiten vom *Laboratoire des Matériaux Avancés (LMA)* in Villeurbanne, Frankreich, besonders hervorzuheben [3, 12]. Zu einer Steigerung des Verständnisses von Ionenquellen, Ionenstrahlen und den Mechanismen in Ionenstrahlprozessen haben zahlreiche Forschungsarbeiten vom *Leibniz-Institut für Oberflächenmodifizierung e.V. (IOM)* in Leipzig beigetragen (z. B. [13, 14, 15]).

Weitere Entwicklungsschritte im Bereich IBSD, die bisher wenig im Fokus standen und die in Zukunft angegangen werden müssen, sind die Vergrößerung der nutzbaren Beschichtungsfläche sowie des Materialnutzungsgrades. Auch eine Steigerung der Produktivität gehört dazu. Mit einem Übertrag der hohen Schichtqualität eines IBS-Beschichtungsprozesses auf große Beschichtungsflächen über einen üblichen Kreisdurchmesser von etwa 300 mm hinaus können neue Anwendungsfelder z. B. in den Bereichen Astronomie, Weltraum oder Hochenergiephysik ermöglicht werden. Jede Erhöhung des Materialnutzungsgrades ist aus strategischer Sicht von signifikanter Bedeutung, weil Materialien wie Tantal, Titan und Niob, die für optische Beschichtungen als Targets zum Einsatz kommen, als kritische Rohstoffe eingestuft sind [16]. Mit einer höheren Produktivität könnte die IBS-Technologie schließlich auf einem größeren Markt positioniert werden.

Um diese Entwicklungen in der IBS-Technologie voranzubringen, müssen die Teilchenströme im Prozess im Detail verstanden werden – dazu soll diese Arbeit einen Beitrag leisten. Konkret fokussiert sich die vorliegende Forschungsarbeit darauf, die Teilchenströme bzw. deren Wirken in einem industriellen Beschichtungsprozess experimentell mit einem hohen Detaillierungsgrad zu untersuchen und darauf aufbauend durch ortsfeste und zeitinvariante Trajektorien dreidimensional zu modellieren. Es werden die Primärteilchentrajektorien – Trajektorien der energetischen Teilchen des Ionenstrahls – und die Sekundärteilchentrajektorien – Trajektorien der vom Target abgestäubten Atome – betrachtet. Das Ziel ist, zu verstehen, wie diese Teilchenströme im Prozessraum im statistischen Mittel orientiert sein müssen, um die großflächige Verteilung des Beschichtungsmaterials zu reproduzieren. Insofern ist der hier verfolgte Ansatz nicht darauf ausgerichtet, Eigenschaften der herzustellenden Schichten abseits der physikalischen Schichtdicke nachzuvollziehen, wie es z. B. der Multi-Skalen-Ansatz ermöglicht [17, 18].

Die vorliegende Arbeit wurde initial inspiriert durch Arbeiten von KORZEC et al. [19], TILSCH et al. [20] und TARTZ et al. [13]. Es wird ein reaktiver Beschichtungsprozess untersucht in welchem dielektrische Schichten abgeschieden werden. Die Zerstäubung erfolgt im niederenergetischen Bereich bei Energien 1.4 bis 1.9 keV. Aufgrund einer hohen Verbreitung



---

in der optischen Dünnschichttechnologie wurde Tantalpentoxid als Beschichtungsmaterial ausgewählt.

Der Forschungsansatz gliedert sich in vier Schritte: Im ersten Schritt wird die vom breiten Ionenstrahl als Folge der Zerstäubung bewirkte Erosion auf den planen Targets experimentell untersucht. Als Methode wird die zweidimensionale Kartierung der erodierten Flächen durch eine taktile Messung gewählt. Die Messungen erfolgen ex-situ bzw. nach einem Beschichtungsprozess. Damit wird umgangen, dass eine in-situ Sensorik Einfluss auf die Autokompensation des breiten Ionenstrahls und damit seine Geometrie nehmen kann. Außerdem ergibt sich der Vorteil gegenüber einer in-situ Charakterisierung des elektrischen Strahlprofils, dass eine Extrapolation der Primärteilchentrajektorien von einer Messebene auf die gegenüber dem Ionenstrahl geneigte Targetebene in einer nachfolgenden Modellierung nicht erforderlich ist. Durch die Vermessung der Erosionsprofile sollen Erkenntnisse zur Erosionsform und deren Abhängigkeiten z. B. vom Targetmaterial oder vom Abstand zwischen Ionenoptik und Target gewonnen werden.

Im zweiten Schritt werden die experimentellen Daten zu den Erosionsprofilen dazu verwendet, um ein dreidimensionales Modell zu den Primärteilchentrajektorien zu konstruieren. Dabei gibt es mehrere Herausforderungen: die radiale Variation der Plasmaeigenschaften im Entladungsraum der Ionenquelle, die Emissionscharakteristiken der Ionenkanäle, die die Ionenoptik bilden, und die Ausbreitungseigenschaften des breiten Ionenstrahls. Die polarwinkelabhängige integrale Zerstäubungsausbeute (engl. *yield* oder *sputtering yield*), welche die Ionen-Materie-Wechselwirkung quantitativ beschreibt, zählt ebenfalls dazu. Einige Größen können simulativ ermittelt werden, andere müssen durch Optimierungsalgorithmen aus den experimentellen Daten rekonstruiert werden.

Der breite Ionenstrahl, der den Primärteilchenstrom bildet, zerstäubt das Targetmaterial. Die abgestäubten Atome des Targetmaterials, die vom Target in den gesamten Halbraum wegfliegen, bilden den Sekundärteilchenstrom. Zur experimentellen Erfassung des Sekundärteilchenstroms im dritten Schritt wurde eine Vielzahl von Substraten in einer Beschichtungsebene über dem Target ortsfest platziert (bis zu 222 Stück auf einer Fläche von etwa 1 m<sup>2</sup>), auf denen sich die abgestäubten Atome in der reaktiven Prozessatmosphäre als dielektrische Schicht niederschlagen und über alle Substrate hinweg eine Schichtdickenverteilung bilden. In Analogie zum ersten Schritt basiert der dritte Schritt ebenfalls auf einer zweidimensionalen Kartierung, bei welcher die Dicken der hergestellten Einzelschichten auf den einzelnen Substraten zu bestimmen sind. Messtechnisch wird dafür die Information aus breitbandigen Transmissionsmessungen im sichtbaren Spektralbereich herangezogen. Mit dieser Methode

wird untersucht, wie sich die Schichtdickenverteilung als Abbild des Sekundärteilchenstroms ändert, wenn die Prozessparameter geändert werden. Dabei bietet sich die Möglichkeit, auch die Variation der optischen Schichtparameter wellenlängenabhängiger Brechungsindex  $n(\lambda)$  und wellenlängenabhängige Absorption  $k(\lambda)$  mit zu erfassen.

Durch die gewählte Methode entfällt die messtechnische Herausforderung einer in-situ Messung, einen Bruchteil des Sekundärteilchenstroms erfassen zu müssen, weil nur ein Bruchteil der Sekundärteilchen ionisiert abgestäubt wird [21]. Auch die Unsicherheit, dass die ionisiert abgestäubten Teilchen abhängig von ihrer Emissionsrichtung nicht mit identischem Anteil die neutral abgestäubten Sekundärteilchen repräsentieren, besteht mit der gewählten Methode nicht. Außerdem entfallen die im Zusammenhang mit einem in-situ Sensor notwendigen Verschiebung und Positionsbestimmung im Prozessraum, seine reproduzierbare Eichung und die Kompensation der Eichung während der Messung als Folge der Degradation durch Zerstäubung und durch dielektrische Versiegelung (engl. *target poisoning*) in der reaktiven Prozessatmosphäre.

Der vierte und letzte Schritt der gewählten Forschungsstrategie befasst sich mit der dreidimensionalen Modellierung der Sekundärteilchentrajektorien. Das Ziel dabei ist, die Ionen-Materie-Wechselwirkungen auf der Targetoberfläche unter Einbezug der Primärteilchenmodellierung, ausgedrückt durch integrale und differentielle Zerstäubungsausbeuten, derart zu rekonstruieren, dass die experimentell ermittelten Schichtdickenverteilungen möglichst genau nachgebildet werden. Hierbei ergibt sich die Möglichkeit, zu untersuchen, ob der verbreitete Ansatz der Annahme von rotationssymmetrischen und ggf. entarteten Kosinusemittern als Emissionscharakteristiken bei der Zerstäubung des Targetmaterials auch in einem IBSD-Prozess erfolgreich angewendet werden kann. Dem gegenübergestellt wird der Zerstäubungsvorgang mit dem Computerprogramm *TRIDYN* simuliert, einem weit verbreiteten Monte-Carlo-Code auf diesem Gebiet, und in die vollständig dreidimensionale Modellierung des IBSD-Prozesses eingebunden. Dadurch können unterschiedliche Mechanismen wie z. B. die dielektrische Versiegelung der Targetoberfläche, die Anhaftung von Sekundärteilchen an der wachsenden Schicht oder die präferenzielle Zerstäubung aus der wachsenden Schicht durch am Target gestreute Primärteilchen untersucht werden. Auch der Materialnutzungsgrad kann bestimmt werden, der in der Literatur bisher nicht gut dokumentiert ist.

## Gliederung

Diese kumulative Dissertation ist wie folgt gegliedert: In Kapitel 2 werden der IBS-Prozess und die verwendeten Modelle beschrieben. Anschließend folgen die publizierten Artikel. Artikel A in Kapitel 3 befasst sich mit der Kartierung der Erosionsflächen auf Targets, die mit einem breiten Ionenstrahl in einem IBS-Prozess erodiert wurden. Diese experimentellen Daten werden genutzt, um die Trajektorien der Primärteilchen im breiten Ionenstrahl zu modellieren und zu rekonstruieren, was im Artikel B des Kapitels 4 beschrieben wird. Die Artikel C und D im Kapitel 5 befassen sich mit der Kartierung der Schichtdickenverteilungen in der Beschichtungsebene als experimentelle Basis für die Modellierung der Sekundärteilchen, was schließlich Thema des Kapitels 6 ist. In Kapitel 6 werden die Emissionscharakteristiken der zerstäubten Targetatome durch Kosinusemitter beschrieben oder durch Simulationen mit *TRIDYN*. Primär- und Sekundärteilchenmodellierung werden in einer vollständig dreidimensionalen Modellierung der Teilchenströme zusammengeführt. Abschließend werden unterschiedliche Mechanismen simuliert und bewertet. Kapitel 7 fasst alle wichtigen Erkenntnisse zusammen und gibt einen Ausblick.



---

## Grundlagen

In diesem Kapitel wird ein Überblick zur Ionenstrahlzerstäubungsdeposition präsentiert. Anschließend werden die in dieser Arbeit verwendeten Modelle und Modellfunktionen dokumentiert.

### 2.1 Ionenstrahlzerstäubungsdeposition – vom Edelgasatom zur dielektrischen Schicht

Bei der Ionenstrahlzerstäubungsdeposition wird das Beschichtungsmaterial erst durch die Zerstäubung eines Festkörpertargets durch einen Ionenstrahl in die Gasphase überführt, bevor es als Schicht auf einem Substrat kondensieren bzw. deponieren kann. Damit gehört dieser Beschichtungsprozess zu der Gruppe der vakuumbasierten Beschichtungsverfahren, die unter dem Begriff physikalische Gasphasenabscheidung (engl. *physical vapour deposition*, *PVD*) zusammengefasst werden. Durch Zuführen eines Reaktivgases, im vorliegenden Fall Sauerstoff, wird weiterhin bewirkt, dass sich im Schichtbildungsprozess eine dielektrische bzw. oxidische Schicht bilden kann, was als reaktiver Beschichtungsprozess bezeichnet wird. Abbildung 1 des Artikels C im Kapitel 5.1 verdeutlicht eine typische Prozessgeometrie.

Der große Vorteil eines IBSD-Prozesses besteht in der Entkopplung der drei Prozessschritte (1) Plasmaerzeugung in der Ionenquelle und Ionenextraktion durch die Ionenoptik, (2) Zerstäubung des Targetmaterials durch den Ionenstrahl und (3) Deposition des zerstäubten Targetmaterials auf Substraten, die auf einem Substratträger über dem Target platziert sind. Dadurch ergibt sich einerseits der Freiheitsgrad, die Eigenschaften des Ionenstrahls (Teilchenspezies, Teilchenenergie, Ladungszustand, Emissionscharakteristik, Teilchenmenge pro

Zeit- und Flächeneinheit) quasi entkoppelt von den nachfolgenden Prozessschritten an die Prozesserfordernisse anzupassen. Andererseits verringert die realisierbare große räumliche Trennung der Deposition von den vorangehenden Prozessschritten den Einfluss von prozessinduzierten Defektmechanismen auf die Qualität der herzustellenden Schichten. Beim IBSD-Prozess induziert der Primärteilchenstrom – der Ionenstrahl – den Sekundärteilchenstrom – die Gesamtheit der abgestäubten Targetatome. Ionenquelle und Ionenoptik sind somit Hauptbestandteile und auch die technisch aufwändigsten Elemente eines IBSD-Prozesses.

## Plasma

Ionenquellen bzw. Ionenstrahlen sind nicht nur Bestandteile eines IBSD-Prozesses, sondern kommen auch in vielen anderen Bereichen zur Anwendung - einige Beispiele sind: als Ionentriebwerke für Satelliten [22], zur Ionenstützung in der Dünnschichttechnologie [23], zur Korrektur [24] oder Glättung [25] von optischen Oberflächen, zur Modifikation von Halbleitern durch Implantation [26], als Injektoren für Teilchenbeschleuniger [27] und Fusionsexperimente [28] oder in der Analytik [29]. Die Art der Plasmaerzeugung ist ein wichtiges Unterscheidungskriterium von Ionenquellen. Von den vielen Ionenquellentypen, die es gibt, werden in der Dünnschichttechnologie Quellen verwendet, bei denen die Plasmaanregung bzw. Ionenerzeugung durch Gasentladung erfolgt – folgende Plasmaanregungsmechanismen kommen zur Anwendung: DC- bzw. Gleichstromanregung (z. B. Quellentypen Kaufman [30, 31] und Hall-Effekt [32]), HF<sup>1</sup>- bzw. Radiofrequenzanregung mit kapazitiver oder induktiver Kopplung (z. B. Quellentyp RIT<sup>2</sup> [14, 33, 34]) sowie Mikrowellenfrequenzanregung ohne oder mit ECR<sup>3</sup>-Magnetfeldunterstützung [31, 35].

Die unterschiedlichen Anregungsmechanismen äußern sich in Variationen von z. B. dem Ionisationsgrad, der Plasmahomogenität, dem Plasmarandschichtpotential oder der Plasmaverunreinigung durch parasitäre Zerstäubung von Werkstoffen, die das Plasma umgeben. Entsprechend übertragen sich die unterschiedlichen Plasmaeigenschaften auf den durch die Ionenoptik extrahierten Ionenstrahl. Abgesehen von den Plasmaeigenschaften gibt es auch Unterschiede im Wartungsaufwand und damit der unterbrechungsfreien Betriebsdauer.

Bei allen drei Entladungsarten wird ein Niederdruckplasma bzw. kaltes Plasma gezündet, welches gemäß [36] ganz allgemein folgende Eigenschaften besitzt: Die eingekoppelte

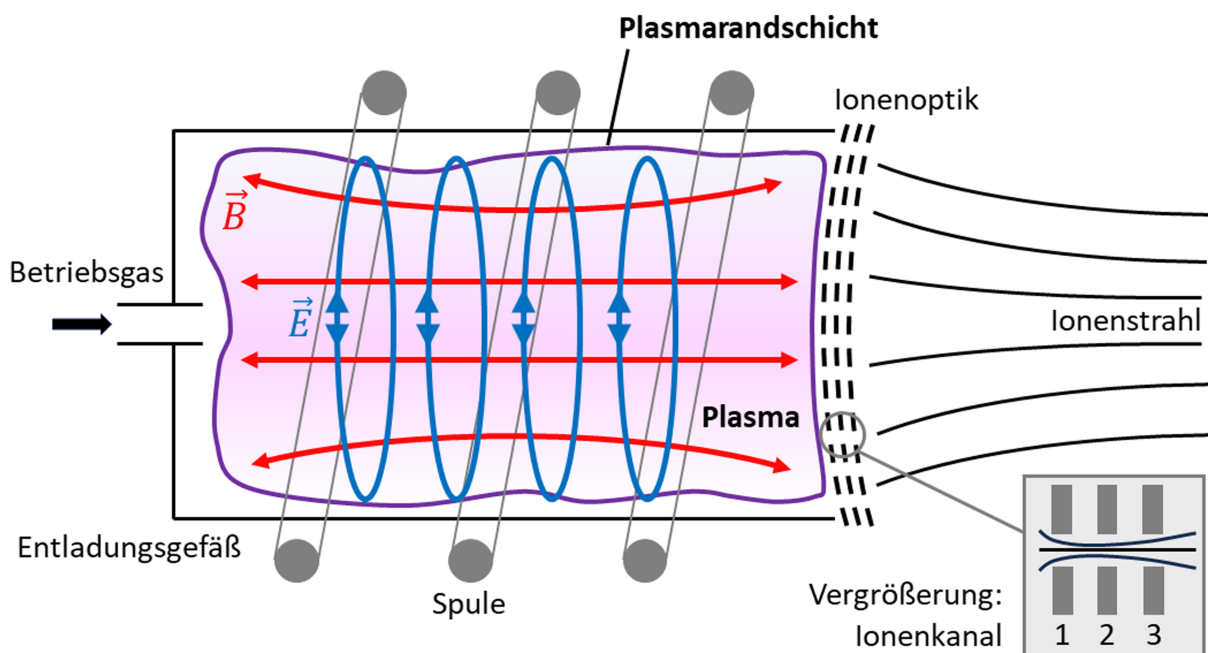
---

1 HF steht für Hochfrequenz

2 RIT steht für Radiofrequenz-Ionentriebwerk

3 ECR steht in Englisch für electron cyclotron resonance oder in Deutsch für Elektron-Zyklotron-Resonanz und bezeichnet einen Mechanismus zur Energieeinkopplung in ein Plasma

Energie wird „fast ausschließlich auf die Elektronen übertragen“ mit einer resultierenden kinetischen Energie im einstelligen Elektronenvoltbereich. Die deutlich schwereren Ionen und Neutralteilchen im Plasma besitzen mit maximal 0.1 eV [36] deutlich geringere kinetische Energien. Dies begründet sich mit dem Massenunterschied, der den Energieübertrag von den Elektronen auf die Ionen und Neutralteilchen über elastische Stöße vernachlässigbar macht. Die kinetischen Energien bzw. Temperaturen in einem Niederdruckplasma sind somit nicht identisch, weshalb es auch als nichtthermisches Plasma oder Nichtgleichgewichtsplasma bezeichnet wird.



**Abbildung 2.1:** Prinzip einer induktiv gekoppelten HF-Ionenquelle in Anlehnung an den Quellentyp RIT bzw. RIM. Zur besseren Veranschaulichung liegt der Plasmarand abweichend zur Realität nicht direkt auf den Begrenzungsflächen (Entladungsgefäß und Ionenoptik). Die Vergrößerung zeigt einen einzelnen von vielen Ionenkanälen, die die Ionenoptik bilden. Jeder Ionenkanal extrahiert Ionen aus der an der Ionenoptik anliegenden Plasmarandschicht. Die drei Elektroden, die einen Ionenkanal bilden, heißen (1) Schirm-, (2) Beschleunigungs- und (3) Abbremsselektrode.

Für die vorliegende Arbeit wird eine Ionenquelle mit Radiofrequenzanregung bei 2 MHz und induktiver Kopplung vom Typ RIT bzw. RIM [37] verwendet. Abbildung 2.1 verdeutlicht das Prinzip. Bei diesem Quellentyp wird das Betriebsgas in einen zylindrischen Entladungsraum eingelassen – an dieser Stelle beginnt die Prozesskette „vom Edelgasatom zur dielektrischen Schicht“. In der optischen Dünnschichttechnologie ist es ein Edelgas, Argon, Krypton oder Xenon, das je nach Prozessanforderung z. B. mit Sauerstoff, Stickstoff oder Fluor gemischt wird. Um das Entladungsgefäß ist eine Spule gewickelt, welche mit einem oszillierenden

elektrischen Strom beaufschlagt wird. In der Folge baut sich ein oszillierendes und rotations-symmetrisches Magnetfeld auf, welches wiederum ein phasenverschobenes oszillierendes elektrisches Wirbelfeld induziert. Das elektrische Feld beschleunigt die Elektronen, welche nach Durchlaufen einer gewissen Wegstrecke ausreichend Energie aufgenommen haben müssen, um durch Stoßionisation weitere Elektronen zu erzeugen, die wiederum im elektrischen Feld beschleunigt werden. Diese selbstverstärkende Ladungsträgererzeugung wird in einem Gleichgewichtszustand durch Rekombinationsmechanismen im Plasma und an den Plasmawänden ausbalanciert.

Allerdings läuft der Ionisierungsprozess mehrstufig ab, weil die Elektronen bis zur Richtungs-umkehr im Hochfrequenzfeld nicht ausreichend Energie aufnehmen können, um durch einen inelastischen Stoß eine Stoßionisation zu bewirken [36, 38]. Zum Beispiel liegt die Ionisationsenergie von Argon bei 15.76 eV. In [38] wird der Ionisierungsprozess wie folgt beschrieben: Ein Elektron muss nach der Beschleunigungsphase durch einen elastischen Stoß seine Bewegungsrichtung umkehren, so dass es nach Umkehr des elektrischen Feldes weiter beschleunigt werden und Energie akkumulieren kann. Da Stoßzeitpunkt und Stoßrichtung nicht an das Wechselfeld angepasst sind, müssen „die Elektronen im statistischen Mittel mehrere elastische Stöße ausführen,“ um die erforderliche Ionisierungsenergie zu akkumulieren. Ausgehend von diesem Mechanismus und einer entsprechenden Stoßstatistik, erklärt sich, warum in einem HF-Plasma nur sehr wenige zweifach oder mehrfach ionisierte Atome bzw. mehrfach geladene Ionen vorkommen, wie in [38] dokumentiert ist. Diese Eigenschaft überträgt sich auf einen aus dem Plasma extrahierten Ionenstrahl. Untersuchungen zur Strahlkomposition an Triebwerken RIT-10 [14] und RIT-22 [39] bestätigen dies mit Anteilen an mehrfach geladenen Ionen im Bereich von 1 % und weniger.

#### Plasmarandschicht und Wandpotential

Eine weitere Eigenschaft von einem Niederdruckplasma ist die Ausbildung einer Plasmarandschicht zu den Begrenzungsflächen des Plasmas. In Abbildung 2.1 ist dies mit einer Umrandung des Plasmas angedeutet. Der entsprechende Mechanismus wird im Folgenden aus [36, 38] vereinfacht wiedergegeben: Aufgrund der gegenüber den Ionen viel höheren Elektronengeschwindigkeiten würden Elektronen viel häufiger an den Begrenzungsflächen eingefangen werden bzw. rekombinieren. Es würde eine unkompenzierte positive Raumladung zurückbleiben und die Quasineutralität des Plasmas verletzen. Daher lädt sich das Plasma gegenüber den Begrenzungsflächen mit einem zu den Begrenzungsflächen abfallenden Potentialverlauf auf, in welchem die Ionen beschleunigt und die Elektronen im Sinne



einer Potentialbarriere abgebremst werden. Dadurch werden die Stromdichten der unterschiedlichen Ladungsträger ausbalanciert. Der aufgebaute Potentialunterschied wird als Wand-, Rand- oder Floatingpotential bezeichnet. Für RIT-10 und RIT-22 wurden Werte im Bereich 25 bis 32 V gemessen [14, 39]. An dieser Stelle soll nicht weiter erklärt werden, dass der Plasmarand sich in mehrere Zonen mit unterschiedlichen Eigenschaften die Teilchendichten betreffend unterteilen lässt.

### Ionenextraktion

Nachdem das Edelgas in ein Niederdruckplasma überführt wurde, das durch eine Grenzschicht von der Umgebung abgeschirmt wird, folgt der nächste Schritt im Prozess: Die Extraktion und Beschleunigung der ionisierten Edelgasatome aus dem Plasma in den Prozessraum. Diese Funktion wird durch die Ionenoptik erfüllt, welche als eine Begrenzungsfläche am Plasma anliegt. Für die vorliegende Forschungsarbeit wurden Ionenoptiken verwendet, die aus drei Lochgitterblechen bzw. Elektroden bestehen [40], wie auch Abbildung 2.1 verdeutlicht. Es gibt auch Extraktionssysteme mit weniger oder mehr Elektroden [41]. Die Geometrie der verwendeten Ionenoptiken wird in den Kapiteln 3.1 und 4.1 beschrieben.

Relevant an dieser Stelle ist, dass mit den Ionenkanälen, die die Ionenoptik bilden, die Ionen aus der Plasmarandschicht heraus in den Prozessraum beschleunigt werden. Sie bewegen sich dann durch die Prozessatmosphäre als energetische Teilchen und bilden im hier betrachteten Prozess einen breiten Ionenstrahl. Die drei Elektroden, die einen Ionenkanal bilden und die Extraktion bewirken, heißen Schirm- (am Plasma anliegend), Beschleunigungs- (mittig) und Abbremsselektrode (der Prozessseite zugewandt). Die Schirmelektrode wird mit der sog. Strahlspannung beaufschlagt, in dieser Arbeit mit Werten zwischen 1400 und 1900 V. Die Beschleunigungselektrode liegt auf -600 V und die Abbremsselektrode auf 0 V. Das Plasmapotential liegt um das Wandpotential höher als das Potential der angrenzenden Schirmelektrode und erklärt den Abfluss von Ionen in einen Ionenkanal hinein. Zur Aufrechterhaltung der Quasineutralität des Plasmas fließt für jeden extrahierten positiven Ladungsträger ein Elektron am Schirmgitter ab, was schließlich als Stromfluss am Hochspannungsnetzteil des Schirmgitters gemessen wird. Die Ionen werden zur Beschleunigungselektrode hin über die gesamte Potentialdifferenz zwischen Beschleunigungs- und Schirmelektrode beschleunigt. Anschließend werden sie um die Potentialdifferenz zwischen Abbrems- und Beschleunigungselektrode wieder abgebremst, so dass die verbleibende Teilchenenergie im Wesentlichen der Strahlspannung entspricht. Der zweite Teil mit der Abbremsung stellt eine Potentialbarriere für negative Ladungsträger dar und verhindert, dass Elektronen aus dem Prozessraum durch

den Ionenkanal ins Plasma gelangen können.

Die Form der typischerweise nichtlinearen Trajektorien der Ionen im Ionenkanal (Abbildungen z. B. in [41, 42]) und damit auch die Emissionscharakteristik eines Ionenkanals wird durch unterschiedliche Faktoren beeinflusst. Dazu zählen vor allem (1) die Geometrie des Ionenkanals, (2) die Spannungen der Elektroden, durch welche die initiale Feldgeometrie erzeugt wird, (3) die Krümmung der Plasmarandschicht am Eingang eines Ionenkanals, wodurch die initialen Bewegungsrichtungen der Ionen vorgegeben werden, (4) und der Ionenstrom selbst, der durch den Kanal geführt wird und dessen Ladungsdichte die initiale Feldgeometrie verzerrt. Es kommt hinzu, dass die Geometrie des im Entladungsraum induzierten Magnetfeldes mit zunehmendem Abstand von der Symmetrieachse der Spule zunehmend inhomogen wird. In Abbildung 2.1 ist dies angedeutet. Im Resultat kann die Plasmadichte und damit auch die Emissionscharakteristik eines Ionenkanals abhängig von dem Radius der Ionenoptik variieren [19, 42]. Für die Modellierung der Primärteilchentrajektorien wird dieser Punkt in Kapitel 4.1 nochmal aufgegriffen. Aus technischer Sicht gibt es noch mehr Einflüsse, durch welche die Emissionscharakteristiken beeinflusst werden könnten. Dazu zählen z. B. ein axialer Versatz der Gitterbleche [43] oder eine durch Wärmeausdehnung induzierte Änderungen an der Ionenoptik [44] und damit auch möglicherweise an den Ionenkanalgeometrien.

### Strahlausbreitung

Die Gesamtheit der von allen Ionenkanälen extrahierten Ionen bilden den breiten Ionenstrahl bzw. den Primärteilchenstrom. Als eine Komposition von geladenen Teilchen wird die Ausbreitung des Ionenstrahls vor allem durch die erzeugte Raumladung beeinflusst. Ohne unterschiedliche Mechanismen, durch welche sich Elektronen in das Strahlvolumen mischen und die Raumladung kompensieren, wäre eine Strahlausbreitung nicht möglich [38, 45, 46]. Im Fall einer Prozessatmosphäre, in welcher sich der Strahl ausbreitet, kommen weitere Mechanismen hinzu, z. B. Umladungsstöße [38, 47]. Dadurch gibt der Ionenstrahl die von ihm mitgeführte Ladung mit zunehmender Ausbreitungslänge an die Teilchen der Prozessatmosphäre ab. Weitere Details zu den Ausbreitungseigenschaften eines Ionenstrahls werden im Kapitel 4.1 präsentiert.

## Zerstäubung

Als Betriebsgas in den Entladungsraum der Ionenquelle eingelassen, in ein Plasma überführt, aus der Plasmarandschicht durch die Ionenoptik extrahiert und beschleunigt, treffen die energetischen Teilchen bzw. Projektile nach Durchlaufen einer Strecke durch die Prozessatmosphäre, in ionisierter oder durch Umladungsstöße neutralisierter Form, auf das Targetmaterial und bewirken den nächsten Schritt in der Prozesskette: Die Zerstäubung. Dadurch werden die Atome des Targetmaterials in die Gasphase überführt. Die Zerstäubung stellt allerdings nur einen Teilaspekt der Ionen-Materie-Wechselwirkung dar. Im Folgenden wird aus [48, 49, 50, 51] exzerpiert.

Bezogen auf die energetischen Projektile können diese ins Targetmaterial implantiert oder nach einem oder mehreren Stößen mit den Atomen des Targetmaterials das Target wieder verlassen, was als Streuung bezeichnet wird. Im Falle eines entsprechend dünnen Festkörpers kann auch eine Transmission stattfinden (für die vorliegende Arbeit nicht relevant). Während der Bewegung eines energetischen Projektils durch einen Festkörper überträgt es seine kinetische Energie auf den Festkörper und wird dabei abgebremst. Nach dem Abbremsvorgang können z. B. Diffusionsprozesse stattfinden, aber auch eine Desorption von der Targetoberfläche weg oder die Zerstäubung durch nachfolgende Projektile. In der Zerstäubungstheorie werden zwei Mechanismen unterschieden, durch die das Projektil Energie abgibt: Stöße mit den Atomen des Targetmaterials und Wechselwirkungen mit dem elektronischen System des Festkörpers.

Im ersten Fall wird die Frequenz der Stöße als ausreichend gering angenommen, sodass jeder Stoß auf eine Wechselwirkung zwischen zwei Teilchen mit Energie- und Impulserhaltung reduziert werden kann. Diese in der Zerstäubungstheorie verbreitete Näherung wird im Englischen als *binary collision approximation (BCA)* bezeichnet. Als Folge eines elastischen Stoßes bzw. Streuvorgangs ändern sich (bzw. können sich ändern) die kinetischen Energien und die Bewegungsrichtungen der Streupartner. Durch das Projektil angestoßene Atome können bei ausreichendem Energieübertrag ihre ursprüngliche Position verlassen und wiederum andere Atome anstoßen, so dass sich eine Stoßkaskade im Festkörper ausbilden kann. Dadurch verteilt sich die Energie auf eine zunehmend größere Anzahl an Atomen, welche zum Stehen kommen, wenn ihre Energie einen materialspezifischen Wert unterschreitet. Mit Atomen sind alle Bestandteile des Targets gemeint, auch im Vorfeld implantierte Projektilteilchen. Wird ein oberflächennahes Atom derart angestoßen, dass die vom Festkörper wegzeigende Energiekomponente größer als die materialspezifische Oberflächenbindungsenergie ist, dann kann dieses Atom den Festkörper verlassen, es wird physikalisch abgestäubt bzw. zerstäubt.

Diese Bindungsenergie wird in der Zerstäubungstheorie durch die Sublimationsenergie angenähert, die für Tantal 8.1 eV beträgt.

Die Zerstäubung kann, wenn das Projektil noch in Oberflächennähe ist, durch das Projektil selbst oder nach einigen Zwischenstößen zwischen oberflächennahen Atomen erfolgen. Eine Zerstäubung kann auch erfolgen, wenn das Projektil bereits eine gewisse Eindringtiefe erreicht hat, z. B. wenn sich ein Teil der Stoßkaskade umkehrt und mit ausreichend Restenergie die Oberfläche erreicht. Nicht nur die Stoßkaskade, auch das Projektil selbst kann die Richtung durch Stöße umkehren, zurück zur Oberfläche gelangen und Zerstäubung bewirken [50, 52]. Im Subkilo- und Kiloelektronenvoltbereich kann für die Zerstäubung die elastische Wechselwirkung als dominierend angesehen werden.

Der zweite Mechanismus bei der Bewegung eines Projektils durch einen Festkörper, die elektronische Wechselwirkung, bezieht sich auf inelastische Wechselwirkungen, bei denen das Projektil selbst oder die Atome des Festkörpers elektronisch angeregt oder ionisiert werden. Die Häufigkeit der inelastischen wird, im Vergleich zu den elastischen Wechselwirkungen, als viel höher angesehen, weswegen die inelastischen Wechselwirkungen in Form einer kontinuierlichen Energieabnahme zur Abbremsung eines Projektils beitragen, jedoch nicht dessen Bewegungsrichtung ändern. Im Falle einer Ionisation kann ein freigesetztes Elektron energetisch ins Leitungsband überführt werden oder, bei höheren Energien, den Festkörper verlassen, was als Sekundärelektronenemission bezeichnet wird. In der Literatur wird auch über die Entstehung von charakteristischer Röntgenstrahlung berichtet, falls ein Elektronen von einer äußeren auf eine innere Elektronenschale wechselt, weil ein inneres Elektron durch Energieübertrag entfernt wurde. Die elektronische Wechselwirkung wird für die Zerstäubung erst im Megaelektronenvoltbereich relevant.

Welcher der Mechanismen wie stark ausgeprägt ist und damit auch, wie viele Targetatome pro auftreffendes Projektil abgestäubt werden, hängt von den Randbedingungen ab. Dazu zählen vor allem die wechselwirkenden Teilchensorten – Projektilspezies und Atome des Targetmaterials, die Projektilenergie und der polare Einfallswinkel der Projektils. In der Praxis kann die Rauheit der Targetoberfläche erheblichen Einfluss haben [53]. Der oben beschriebene Fall mit der Stoßkaskade wird dem sog. *linear collision-cascade regime* zugeordnet. In diesem Bereich sind die Randbedingungen, insbesondere Projektilenergie und Streuquerschnitte der streuenden Teilchen, ausreichend für die Ausbildung einer Stoßkaskade. Die Dichte der Streuvorgänge ist hingegen derart gering, dass das Projektil oder ein angestoßenes Atom meistens mit einem anderen Atom stößt, das nicht in Bewegung ist (thermische Bewegung ausgenommen). Stöße zwischen Teilchen, die beide in Bewegung sind, sind vernachlässigbar.

Bei geringen Projektilenergien oder leichten Projektilen spricht man vom *single knock on regime*, mit Randbedingungen, die nicht ausreichen, um eine Stoßkaskade auszubilden. Und im Gegensatz dazu das *spike regime*, bei dem die meisten Atome im sog. Spike-Volumen quasi gleichzeitig in Bewegung versetzt werden.

Wird die Ionen-Materie-Wechselwirkung aus Sicht des Targets betrachtet, können unterschiedlichste Modifikationen am Target stattfinden: Durch Anregung von Stoßkaskaden werden die Targetatome aus ihren ursprünglichen Positionen verschoben, es kann zur Amorphisierung der Oberfläche kommen. Eine Zerstäubung von Targetatomen erodiert das Target. Eine Implantation verändert seine Zusammensetzung. Die Zusammensetzung kann sich auch ändern, falls es ein mehrkomponentiges Target ist, bei dem einzelne Komponenten bevorzugt bzw. präferenziell zerstäubt werden. Besteht das Target aus ausreichend dünnen Schichten unterschiedlicher Atomsorten, dann kann eine Vermischung über die Grenzfläche hinaus erfolgen. Die Targetoberfläche kann geglättet [25] oder periodisch strukturiert werden [54].

Ein für die Modellierung in dieser Arbeit wichtiger Aspekt der Ionen-Materie-Wechselwirkung ist, dass die meisten abgestäubten Atome (96% und mehr) in neutraler Form vorliegen [21, 51, 55]. Der Rest an ionisierten Sekundärteilchen sollte (nach Auffassung des Autors), wie auch die Primärteilchen, seine Ladung mit zunehmender Weglänge, zunehmend an die Prozessatmosphäre abgeben bzw. umladen.

Weiterhin sind für die Modellierung in dieser Arbeit wichtig: die Menge der abgestäubten Sekundärteilchen, ihre Emissionscharakteristik und ihre Energieverteilung. In der Literatur [15, 48, 56, 57, 58, 59] sind dazu folgende Zusammenhänge hergeleitet und dokumentiert: Eine voll ausgebildete Stoßkaskade breitet sich in einem amorphen oder polykristallinen Target isotrop aus und resultiert dann in einer Emissionscharakteristik, die einer Kosinusverteilung entspricht, und einer Energieverteilung, die einer *Thompson-Verteilung* entspricht. Unter bestimmten Randbedingungen, z. B. bei nicht normalen polaren Einfallswinkeln, leichten Projektilen oder kleinen Projektilenergien entwickelt sich die Stoßkaskade im Festkörper anisotrop und die durch das Projektil eingebrachte Energie wird z. B. eher oberflächennah deponiert. Eine plausible Anschauung ist, dass dann die ursprüngliche Richtungsinformation des Projektils eher erhalten bleibt und sich in gewissen Maßen auf die Richtung der abgestäubten Teilchen überträgt. Hilfreich ist dabei die Vorstellung, dass die Länge der Stoßkaskade nicht ausreichend lang ist, um die Richtungsinformation des Projektils zu löschen. Die Emissionscharakteristik kann dann einem entarteten und nahe der geometrischen Reflektionsrichtung des Projektils verkippten Kosinus entsprechen. Auch die Energieverteilung kann dann von

einer *Thompson-Verteilung* abweichen. Ein Ansatz ist dann, die Emissionscharakteristik durch einen isotropen und einen anisotropen Anteil zu superpositionieren [15, 59, 60, 61]:

$$\frac{\partial Y}{\partial \beta} \propto A_{iso} \cdot \cos(\beta) + A_{aniso} \cdot \cos^m(\beta - \beta_{max}), \quad (2.1)$$

mit  $\partial Y / \partial \beta$  als differentielle Zerstäubungsausbeute,  $\beta$  als polaren Emissionswinkel, der gegenüber der Targetnormalen gemessen wird,  $A_{iso}$  und  $A_{aniso}$  als die Amplituden des isotropen und des aniotropen Anteils,  $m$  als Entartungsgrad und  $\beta_{max}$  als Verkippungswinkel. In [62] wurde dieser Ansatz um weitere anisotrope Anteile erweitert, weil dadurch eine bessere Approximation der experimentellen Daten möglich war. Allerdings ist die resultierende Modellfunktion nicht mehr physikalisch interpretierbar:

$$\frac{\partial \bar{Y}}{\partial \beta} \propto A_{iso} \cdot \cos(\beta) + \sum_n A_{aniso,n} \cdot \cos^{m_n}(\beta - \beta_{max,n}), \quad (2.2)$$

Diese Gleichungen haben den Nachteil, dass sie auf eine Ebene beschränkt sind, die durch den Richtungsvektor der Projektile und den Normalenvektor der Targetoberfläche aufgespannt wird. Außerdem können ohne die Kenntnis über  $A_{iso}$ ,  $A_{aniso}$ ,  $m$  und  $\beta_{max}$  z. B. aus einem anderen Modell heraus (ein solches Modell ist dem Autor nicht bekannt) keine Vorhersagen zu einem Experiment gemacht werden. Dadurch reduziert sich der Zweck auf die Approximation eines gegebenen Datensatzes. In Kapitel 6.2 werden beide Gleichungen 2.1 und 2.2 nochmal aufgegriffen.

Aus der initialen Argumentation heraus, dass sich eine voll ausgebildete Stoßkaskade isotrop ausbreitet und in einer Kosinusverteilung resultiert [48], ist ein plausibler und verbreiteter Ansatz, die Emissionscharakteristik eines punktförmigen Zerstäubungsprozesses durch eine Kosinusfunktion zu modellieren:

$$\frac{\partial^2 Y}{\partial \beta \partial \phi} \propto A_{emitter} \cdot \cos^m(\beta), \quad (2.3)$$

mit  $A_{emitter}$  als Amplitude. Durch die angenommenene Rotationssymmetrie liefert Gleichung 2.3 auch für alle azimutalen Emissionswinkel  $\phi$  Werte und erlaubt somit eine dreidimensionale Modellierung. In Anlehnung an [57] wird weiterhin berücksichtigt, dass die nicht verkipperten Zerstäubungscharakteristiken entartet sein können, also dass  $m$  nicht auf den Wert 1 limitiert ist. Aber auch in einem solchen Ansatz ist der Entartungsgrad  $m$  nicht exakt bekannt und stellt an dieser Stelle einen freien Parameter dar. Eine solche vereinfachte Erweiterung von einem Azimut in Gleichungen 2.1 und 2.2 auf alle Azimute in Gleichung 2.3

bringt die Einschränkung mit sich, dass Verkippungen unberücksichtigt verbleiben. Sicherlich könnte Gleichung 2.3 um einen weiteren verkippten und möglicherweise asymmetrisch entarteten Anteil erweitert werden. Dies würde jedoch in einer Erhöhung der Anzahl an unbekanntem Parametern münden und wird deshalb in dieser Arbeit nicht weiter verfolgt.

Die abgestäubten Atome haben nicht nur eine Emissionsrichtung, sondern auch eine Energie. Die vollständige differentielle Zerstäubungsausbeute  $\partial^3 Y / \partial E \partial \beta \partial \phi$  stellt daher eine Faltung zwischen Emissionscharakteristik und Energieverteilung dar [15, 51]. Mit der Menge der Sekundärteilchen sowie ihren Richtungs- und Energieverteilungen befasst sich Kapitel 6.4.

Weiterhin ist in einer reaktiven Prozessatmosphäre von einer dielektrischen Versiegelung der Targetoberfläche auszugehen, ein Mechanismus, der im Bereich der reaktiven Magnetronzerstäubung seit Langem Gegenstand intensiver Forschung ist [63, 64]. Damit wird aus einem monoatomaren Target ein Multikomponenten-Target und die präferenzielle Zerstäubung kommt als Mechanismus hinzu.

## Deposition

Nachdem das in die Ionenquelle eingelassene Edelgas (zu einem gewissen Teil) in einen Ionenstrahl transformiert wurde und das Target zerstäubt hat, kommt der letzte Schritt im hier beschriebenen Prozessablauf: Die Deposition der zerstäubten Teilchen auf Substraten, die im Prozessraum über dem Target positioniert sind. Aus der Dünnschichttechnologie sind Strukturzonendiagramme [65, 66, 67] bekannt. Sie vermitteln eine Idee davon, welche Mikrostruktur bei der herzustellenden Schicht in Abhängigkeit von z. B. Temperatur und Prozessdruck während des Schichtwachstums zu erwarten ist. Ein höherer Prozessdruck etwa bewirkt, dass die Beschichtungsteilchen während der Bewegung zwischen dem Ort ihrer Entstehung und dem Ort der Beschichtung häufiger mit den Teilchen der Prozessatmosphäre zusammenstoßen und so kinetische Energie verlieren. Daraus resultiert eine geringere Mobilität der Beschichtungsteilchen auf der Oberfläche der wachsenden Schicht und damit auch eine geringere Fähigkeit, eine zur Bildung einer kompakteren Schicht energetisch „bessere“ Position einzunehmen. Im Hinblick auf die Mikrostruktur erreicht die Ionenstrahlzerstäubungsdeposition bei den optischen Schichten die höchste Qualitätsstufe unter den PVD-Beschichtungsverfahren [2]. Dies wird mit der Energieverteilung der mit einem Ionenstrahl zerstäubten Teilchen begründet: Die meisten Teilchen werden typischerweise im einstelligen oder auch im untersten zweistelligen Elektronvoltbereich emittiert. Ein kleiner Teil der Teilchen kann Energien bis zu mehreren Hundert Elektronenvolt haben (Kapitel 6.4.2). Im Fall eines auf thermischer Verdampfung basierenden Beschichtungsprozesses



liegen die Energien dagegen im Bereich von einigen Zehnteln eines Elektronenvolts [68]. Strukturzonendiagramme werden daher in dieser Arbeit nicht weiter thematisiert.

Eine hohe Energie der Sekundärteilchen ist nicht grundsätzlich vorteilhaft. Bei zu hohen Energien stellen die auf die wachsende Schicht auftreffenden Teilchen Projektile dar und können im Sinne der Ionen-Materie-Wechselwirkung, wie oben beschrieben, anstatt auf der wachsenden Schicht zu deponieren, diese zerstäuben und dadurch das Schichtwachstum beeinträchtigen. Da Primärteilchen zum Teil am Target rückgestreut werden, können auch diese die wachsende Schicht als Projektile zerstäuben, in diese implantieren oder an dieser wieder streuen. Die Konzentration an implantierten Primärteilchen in den hergestellten Schichten wird in Kapitel 5.2 bestimmt. Der Fragestellung nach der Streuung von Projektilteilchen wird in den Kapiteln 6.4.2 und 6.4.3 simulativ nachgegangen.

Da hier ein reaktiver Beschichtungsprozess betrachtet wird, in welchem durch zusätzlich zugeführten Sauerstoff eine dielektrische anstatt einer metallischen Schicht abgeschieden wird, stellt die wachsende Schicht genau genommen ein Multikomponenten-Target dar, aus welchem präferenziell zerstäubt werden kann.

Damit endet die Beschreibung der Prozesskette „vom Edelgasatom zur dielektrischen Schicht“, in welcher das Edelgasatom an vielen Mechanismen partizipiert: es wird ionisiert und beschleunigt, es zerstäubt die dann schichtbildenden Targetatome, es wird ins Target implantiert und durch nachfolgende Projektile aus dem Target wieder abgestäubt, es wird am Target gestreut, es kann die herzustellende wachsende Schicht zerstäuben, in diese implantieren und auch an dieser gestreut werden.

## 2.2 Verwendete Algorithmen, Modellfunktionen und Modelle

Im Folgenden werden die verwendeten Algorithmen, Modellfunktionen und Modelle dokumentiert.

### Optimierungsalgorithmus

Es wurde ein Optimierungsalgorithmus programmiert, mit dem multidimensionale Parameterräume durchsucht werden können. Dafür wurde eine zufallsgesteuerte Suchstrategie mit einem Gradientenverfahren und einer dynamischen Schrittweitenanpassung kombiniert. Der Algorithmus wird im Weiteren verwendet, um diskrete Datensätze durch mehrparametrische



Modellfunktionen zu approximieren und dadurch zu charakterisieren:

- Approximation eines diskreten Datensatzes an aus taktilen Messungen ermittelten Erosionstiefen auf einem Target durch eine empirisch konstruierte zweidimensionale und 14-parametrig Modellfunktion  $z_{APPROX}(x,y)$  [69] (und Kapitel 3.1).  $z_{APPROX}(x,y)$  repräsentiert das Erosionsprofil auf einem Target nach Erosion durch einen breiten Ionenstrahl. Die Anwendung erfolgt in Kapitel 3.1.
- Bestimmung der sieben freien Parameter aus der Primärteilchenmodellierung in Kapitel 4.1 anhand der dreidimensionalen Prozessgeometrie und  $z_{APPROX}(x,y)$ . Dadurch wird die Form des breiten Ionenstrahls rekonstruiert und die Primärteilchentrajektorien, die den Ionenstrahl bilden, werden festgelegt.
- Bestimmung des wellenlängenabhängigen Brechungsindex  $n(\lambda)$  und der physikalischen Schichtdicke  $d_{phys}$  einer dielektrischen Schicht anhand einer Transmissionsmessung  $T_{Messung}(\lambda)$  (siehe in diesem Kapitel unten). Die Anwendung erfolgt in Kapiteln 5.1 und 5.2.
- Approximation eines diskreten Datensatzes an physikalischen Schichtdicken in einer Beschichtungsebene über dem Target durch eine empirisch konstruierte zweidimensionale und 11-parametrig Modellfunktion  $d(x,y)$  bzw.  $R(x,y) = d(x,y)/T$  [70], mit  $T$  als Beschichtungsdauer, welche die resultierende Schichtdicken- bzw. Beschichtungsraatenverteilung repräsentiert. Die Anwendung erfolgt in Kapiteln 5.1 und 5.2.
- Approximation einer effektiven Emissionscharakteristik  $\partial Y_{eff} / \partial \beta$  durch Gleichung 2.2 in Kapitel 6.2. Mit  $n = 2$  sind sieben Parameter zu bestimmen.

### Schichtdickenbestimmung

Alle dielektrischen Schichten werden durch breitbandige Transmissionsmessungen  $T_{Messung}(\lambda)$  (mehr Details in Kapitel 5.1) spektral charakterisiert. Diese Information wird verwendet, um den wellenlängenabhängigen Brechungsindex  $n(\lambda)$  und insbesondere die physikalische bzw. geometrische Schichtdicke  $d_{phys}$  zu bestimmen.  $n(\lambda)$  wird dafür durch die zweiparametrig Sellmeier-Gleichung  $n_{Sellmeier}(a,b)$  modelliert (z. B. in [71]), wobei höhere Terme vernachlässigt werden. Die erforderliche theoretische Transmissionskurve  $T_{Theorie}(\lambda, n_{Sellmeier}(a,b), d_{phys})$  einer auf einem Substrat beschichteten Einzelschicht wurde unter Verwendung des entsprechenden Matrix-Formalismus (auch als Charakteristische Matrix bezeichnet, z. B. in [71])

hergeleitet. Die Approximation von  $T_{Messung}$  durch  $T_{Theorie}$  erfolgt mit dem oben beschriebenen Optimierungsalgorithmus.

### Semiempirische Modelle

Für die Rekonstruktion der Primärteilchentrajektorien aus Erosionsprofilen  $z_{APPROX}(x, y)$  sind die beiden wichtigsten Fragestellungen: die Menge an Primärteilchen, die auf einer Targetposition auftreffen, sowie die Menge der dann abgestäubten Sekundärteilchen. Die zweite Fragestellung betrifft die Ionen-Materie-Wechselwirkung und erfordert die Kenntnis von der integralen Zerstäubungsausbeute  $Y$ , welche die Menge an abgestäubten Atomen pro einfallendes Projektil quantifiziert [51].  $Y$  hängt von vielen Parametern ab. Für die vorliegende Arbeit ist vor allem die Abhängigkeit vom polaren Einfallswinkel  $\alpha$  von Bedeutung, weil die Ionen im breiten Ionenstrahl mit unterschiedlichen Einfallswinkeln auf das Target auftreffen. Projektilspezies, Projektilenergie und Targetmaterial sind innerhalb eines Prozesses fixiert. Zur Berechnung von  $Y(\alpha)$  in Kapiteln 3.1 und 4.1 wird auf semiempirische Modelle zurückgegriffen.

Ausgehend von theoretischen Betrachtungen durch PETER SIGMUND im Jahr 1969 [48] wurde die Modellierung von  $Y$  in den darauf folgenden Jahrzehnten angepasst, verfeinert und erweitert [72, 73, 74, 75, 76, 77]. Dazu beigetragen hat eine stetig wachsende experimentelle Datenbasis, durch welche z. B. die freien Parameter in den Modellen bestimmt, in der Genauigkeit verbessert und in Tabellen hinterlegt werden konnten (daher „semiempirisch“). Auch Erkenntnisse aus numerischen Simulationen sind eingeflossen. Ein wichtiger Antrieb waren und sind Fusionsexperimente, in welchen die Zerstäubung von Komponenten im Prozessraum durch leichte Ionen einen Kanal zur Verunreinigung des Plasmas darstellt.

Die Berechnung in dieser Arbeit läuft derart ab, dass zunächst die Zerstäubungsausbeute  $Y(\alpha = 0)$  mit dem durch GARCÍA-ROSALES et al. überarbeiteten [76] ursprünglichen Ansatz von BOHDANSKY [74] berechnet, und anschließend mit dem Modell von YAMAMURA et al. [73] auf Werte  $Y(\alpha > 0)$  umskaliert wird. Alle dafür erforderlichen Gleichungen und Tabellenwerte wurden entsprechend den Publikationen als Quellcode eines Computerprogramms nachprogrammiert und in die Modellierung des IBSD-Prozesses eingebunden.

### Numerische Modelle

Die integrale Zerstäubungsausbeute  $Y$  quantifiziert die Menge der abgestäubten Atome, beschreibt jedoch nicht deren Emissionsrichtungen oder Energien. Eine dreidimensionale Modellierung der Ionenstrahlzerstäubungsdeposition erfordert also die Kenntnis von

der differentiellen Zerstäubungsausbeute mit Informationen zu polaren und azimutalen Emissionswinkeln  $\beta$  und  $\phi$  und der Emissionsenergie  $E$ :  $\partial^3 Y / \partial E \partial \beta \partial \phi$ . Ohne eine Energieinformation muss z. B. davon ausgegangen werden, dass alle Sekundärteilchen an ihrem Auftreffort auf der Beschichtungsfläche deponieren. Mit Informationen zur Energieverteilung kann die Modellierung als Kaskade aufgebaut werden, d.h. es gibt die Möglichkeit, zu unterscheiden, ob ein Sekundärteilchen auf der wachsenden Schicht deponiert (Kapitel 6.4.1), diese als Projektil zerstäubt (Kapitel 6.4.2) oder an der Schicht gestreut wird (Kapitel 6.4.3). Weiterhin muss die differentielle Zerstäubungsausbeute für die hier angedachte Modellierung als Funktion vom polaren Einfallswinkel  $\alpha$  der Projektile bekannt sein, weil die Ionen im breiten Ionenstrahl mit unterschiedlichen Winkeln auf das Target treffen. Mit analytischen oder semiempirischen Modellen sind diese Informationen nicht zugänglich. Daher werden numerische Modelle benötigt.

Im Bereich der Ionen-Materie-Wechselwirkung werden im Wesentlichen zwei Arten von Simulationen unterschieden: Monte-Carlo-Simulationen (MC), in welchen die BCA-Näherung verwendet wird, und Molekulardynamik-Simulationen (MD) [78, 79]. Wie in Kapitel 2.1 beschrieben, wird eine Stoßkaskade im Fall von MC-BCA als eine Abfolge von Wechselwirkungen zwischen zwei Teilchen modelliert. Bei MD wird iterativ die zeitliche Entwicklung eines Systems von Teilchen durch Lösung der Bewegungsgleichungen ermittelt. Stark vereinfacht, ist MD genauer als MC-BCA. Dafür ist MC-BCA schneller. Ein weiterer Vorteil von MD ist, dass diese z. B. auch für Bereiche außerhalb der linearen Stoßkaskade (*linear collision-cascade regime*), für die Zerstäubung von größeren Clustern und bei chemischen Wechselwirkungen anwendbar sind [80].

Der vermutlich bekannteste Code im Bereich MC-BCA ist *TRIM* (TRansport of Ions in Matter) [81], welcher auf den Abbremsvorgang und die Streuung eines energetischen Ions in einem amorphen Target ausgerichtet ist, um z. B. Informationen zur Eindringtiefe zu erhalten. Mit *TRIM.SP* [82] wurde *TRIM* um die Zerstäubung und damit die Möglichkeit erweitert, die Emissionscharakteristiken und die Energieverteilung der zerstäubten Atome zu untersuchen. Diese Codes sind mittlerweile Bestandteile des Programmpakets *SRIM* (*The Stopping and Range of Ions in Matter*) [83]. Basierend auf *TRIM.SP* wurde der Code *TRIDYN* [84, 85] entwickelt, welcher die dynamische Veränderung des Targets durch Implantation der Projektile und die durch die Stoßkaskaden initiierten Verschiebungen der Targetatome mit berücksichtigt. Diese Nachverfolgung der im Target enthaltenen Atome wird als dynamische Simulation bezeichnet. Aufbauend auf *TRIM.SP* und *TRIDYN* wurde *SDTrimSP* [86] entwickelt. Aufgrund von dokumentierten Unzulänglichkeiten von *SRIM* bei der Berechnung der integralen und

differentiellen Zerstäubungsausbeuten [87], wurde in der vorliegenden Arbeit mit *TRIDYN* simuliert.

# 3

---

## Experimente zu Primärteilchen

Ein wesentlicher Aspekt der Ionenstrahlzerstäubungsdeposition ist, dass das Target durch einen breiten Ionenstrahl zerstäubt wird, um die Projektile über eine gewisse Fläche zu verteilen. Andernfalls würde das Target bei den für das Erreichen der Produktivitäten in einem industriellen Beschichtungsprozess erforderlichen Ionenströmen zu schnell lokal durcherodiert. Die breiten Erosionsverteilungen, die im anschließenden Kapitel 4 als Grundlage für die Modellierung der Primärteilchen dienen, werden im Folgenden experimentell untersucht.

### 3.1 Artikel A: Investigation of target erosion profiles sputter-eroded by a low-energy broad ion beam

#### 3.1.1 Beitrag des Autors

Die Planung der Experimente, die Formulierung einer Approximationsfunktion sowie die Programmierung aller Auswerteroutinen erfolgten durch den Autor (Erstautor des Artikels A). Die taktilen Vermessungen der erodierten Targets wurden durch Eileen Klocke durchgeführt. In die Deutung der experimentellen Ergebnisse waren alle Autoren des Artikels A eingebunden. Das Manuskript wurde vom Erstautor verfasst und von allen Koautoren fachlich geprüft. AIP Author Services war mit der sprachlichen Korrektur beauftragt.

### 3.1.2 Publizierter Artikel

W. Sakiew, E. Klocke, and D. Ristau, "Investigation of target erosion profiles sputter-eroded by a low-energy broad ion beam," *AIP Advances*, vol. 11, no. 3, p. 35239, 2021, DOI: <https://doi.org/10.1063/6.0000909>

Eingereicht: 25.02.2021 | Akzeptiert: 08.03.2021

Dieser Artikel durchlief ein Peer-Review-Verfahren und wurde nach einem Transfer vom *Journal of Vacuum Science and Technology A* in der wissenschaftlichen Fachzeitschrift *AIP Advances*, die von AIP Publishing herausgegeben wird, frei zugänglich (open-access) veröffentlicht. Die Zweitveröffentlichung des Artikels im Rahmen dieser kumulativen Dissertation erfolgt im Einklang mit der [Creative-Commons-Lizenz CC BY 4.0](#), unter welcher die Erstveröffentlichung stattfand.

#### **Ziele der Forschungsarbeit:**

- Form der Erosion eines planen Targets durch einen breiten Ionenstrahl bestimmen.
- Prüfen, ob sich die Erosionsverteilung mit der Erosionstiefe qualitativ verändert.
- Erosionen unterschiedlicher Targetmaterialien miteinander vergleichen.

#### **Ergebnisse der Forschungsarbeit:**

- Eine Approximationsfunktion für die Form der Erosion konnte bestimmt werden.
- Am Beispiel des Targetmaterials Silizium zeigte sich, dass mit zunehmender Erosionstiefe die Änderung in der qualitativen Form der Erosion ausreichend gering ist, so dass diese für die Modellierung als unabhängig von der Erosionstiefe angenommen werden kann.
- Die qualitative makroskopische Erosionsform erscheint stärker von geometrischen Größen (Abstand zur Ionenoptik und damit auch Form des Ionenstrahls) bestimmt zu werden, als von den mikroskopischen Zerstäubungsmechanismen.

# Investigation of target erosion profiles sputter-eroded by a low-energy broad ion beam

Cite as: AIP Advances 11, 035239 (2021); doi: 10.1063/6.0000909

Submitted: 25 February 2021 • Accepted: 8 March 2021 •

Published Online: 29 March 2021



Wjatscheslaw Sakiew,<sup>1,a)</sup>  Eileen Klocke,<sup>1</sup> and Detlev Ristau<sup>2</sup> 

## AFFILIATIONS

<sup>1</sup>Cutting Edge Coatings GmbH, Garbsener Landstrasse 10, 30419 Hannover, Germany

<sup>2</sup>Laser Zentrum Hannover e.V., Hollerithallee 8, 30419 Hannover, Germany

<sup>3</sup>Cluster of Excellence PhoenixD (Photonics, Optics, and Engineering – Innovation Across Disciplines), Leibniz University Hannover, Hannover, Germany

<sup>a)</sup>Author to whom correspondence should be addressed: [w.sakiew@gmail.com](mailto:w.sakiew@gmail.com)

## ABSTRACT

The demand for ion beam sputtering (IBS) coated substrates is growing. In order to find new fields of application for IBS coating technology, it is necessary to understand in detail the distributions of the involved particles in an industrial-scale reactive coating process. In pursuit of this goal, in the present investigation, profiles sputter-eroded from tantalum, silicon, and silicon dioxide targets by a low-energy broad ion beam (ion energy  $\leq 1.9$  keV, ion source RIM-20) are measured with a mechanical profilometer and compared. To approximate the discrete and two-dimensional erosion data accurately, an empirical function is developed. For an applied target tilt angle of  $55^\circ$ , the results indicate that the actual angle-dependent ion–solid interaction mechanisms at the atomic level have a rather subordinate role in the macroscopic surface modification of the target in terms of the qualitative distribution of the erosion profile. The applied process geometry seems to have a much larger impact. Furthermore, in the case of silicon, a linear erosion rate as a function of erosion time is observed. Thus, the form of the broad erosion profile does not seem to have a measurable effect on the erosion rate.

© 2021 Author(s). All article content, except where otherwise noted, is licensed under a Creative Commons Attribution (CC BY) license (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>). <https://doi.org/10.1063/6.0000909>

## I. INTRODUCTION

Ion beam sputter deposition (IBSD) is a well-established coating technology in optical thin film production facilities. The properties, applications, and achievable quality parameters have been well-documented in open literature.<sup>1–3</sup> Mirror coatings for gravitational wave detectors<sup>4</sup> and ring laser gyroscopes for inertial rotation measurements<sup>5</sup> are prominent scientific applications. A key element in ion beam sputtering (IBS) is the ion beam—predominantly a composition of primary particles, with which target atoms (secondary particles) are sputtered from a target surface. The removal of atoms by energetic ions is equivalent to an erosion process.

Over the past few decades, IBSD has been continuously improved,<sup>6</sup> new concepts have been implemented,<sup>7–9</sup> and systematic investigations of the underlying physical mechanisms have been carried out.<sup>10,11</sup> In contrast, the productivity parameters and economic factors involved have not received much attention. It is only in the last few years that a certain trend toward large-area optical coatings in the field of IBSD has been observed. The achievable uniform

deposition areas are still smaller than 1 m in diameter.<sup>12,13</sup> However, it is to be expected that larger coatings with an IBSD quality level will be required for future applications, e.g., meter-sized optical coatings for astronomy and space applications or meter-sized high-power laser optics for large optical systems.<sup>14</sup>

To open up new fields of application, there is a need to understand in detail the distributions of primary and secondary particles in an industrial-scale IBSD process. The approximation of the sputtering geometry by a single common point source as the point of origin of all sputtered particles is insufficient in this context if a broad ion beam is applied.<sup>12</sup> More precisely, in order to develop an understanding of how particle fluxes of secondary particles are emitted qualitatively and quantitatively from the target, it is necessary to know how the primary particles impinging on the target surface are distributed. In relation to this, the investigation of erosion profiles, as has been done for magnetron sputtering (MS), ion beam figuring (IBF), and focused ion beam microscopy tools over the past few decades, provides valuable information about the distributions of the involved particles. Comparable investigations in the field of IBSD,

which apply a broad ion beam and a tilted target, are not known to the authors (in Ref. 15, the RIM-10 ion source is used, which erodes a substrate made of silicon at a normal angle of incidence). The present investigation is intended to present corresponding experimental data and to provide a basis for modeling the distribution of the primary particles on the target surface later.

In the field of MS, which is a coating technology competing with IBSD (e.g., Ref. 16), an erosion profile is often referred to as a racetrack, erosion groove, or depth profile. In the case of reactive MS, target poisoning according to Berg's model<sup>17</sup> or the RSD2013 model<sup>18</sup> is an important additional mechanism and is most probably also relevant to reactive IBSD. Recently published results<sup>19</sup> indicate an almost fully oxidized titanium target surface during IBS in the presence of an O<sub>2</sub> atmosphere. In addition to that, stronger target poisoning of titanium targets compared to tantalum targets was a conclusion of Ref. 20.

Basic differences between IBF, IBSD for scientific purposes (with a focus on ion–solid interaction mechanisms), and industrial-scale IBSD processes (with a focus on production) are as follows: (1) the open diameter  $D_{\text{optic}}$  of the applied ion optic (which corresponds to the initial size of an ion beam<sup>21</sup>) with which ions are extracted from a plasma and an ion beam is formed, (2) the extracted ion beam current  $I_{\text{beam}}$ , (3) the distance  $d_{\text{target}}$  between the ion optic and the target (the beam propagation length), and (4) the resulting distribution of ions on the target surface.

In IBF processes, a smaller beam diameter on the workpiece to be machined (after beam propagation) possesses stronger error correction ability.<sup>22</sup> It is preferable that the beam shape and the resulting removal function on the workpiece are Gaussian. To meet these criteria, ion optics with  $D_{\text{optic}}$  in the range of 10–50 mm are applied.<sup>22,23</sup> In addition to that, diaphragms with diameters down to 0.5 mm are mounted between the ion source and the workpiece for beam shaping.<sup>22,24</sup> Literature values for  $I_{\text{beam}}$  vary in the range of 1–40 mA, and values for  $d_{\text{target}}$  of up to ~80 mm can be found.

For scientific investigations of ion–solid interaction mechanisms, the situation is quite similar. A small ion optic in combination with a corresponding short distance  $d_{\text{target}}$  ensures that only a small area on the target is sputtered by the primary particles (compared to the distance of secondary particle observation), which enables the consideration of a sputtering point source. Furthermore, a shorter ion propagation length reduces the number of ions that do not reach the target as a consequence of a finite mean free path. In Refs. 25–28, for instance, the following configurations were chosen for investigations of IBS and IBSD:  $D_{\text{optic}} = 16$  mm,  $I_{\text{beam}}$  in the range of 6–10 mA, and  $d_{\text{target}} = 150$  mm.

For industrial-scale IBSD processes, the situation is different. In order to meet the productivity demands of the optical thin film industry, higher beam currents are required to produce a certain quantity of secondary particles per unit time. From practical experience,  $I_{\text{beam}}$  varies in the range of 200–500 mA for high-quality thin film production. For beam currents in this range and above, it is necessary to distribute the ions over an appropriate target surface size. Otherwise, the target material is consumed too fast and the manufacturing of complex filters with corresponding long process durations becomes unfeasible. So far, the technically best solution is to apply a broad ion beam produced by a large multi-aperture extraction system.  $D_{\text{optic}}$  is usually larger than 100 mm, and the market even offers ion optics for IBSD with up to

$D_{\text{optic}} = 220$  mm. A higher beam current and, thus, a higher coating rate are the main benefits of a large ion optic. It is advantageous to adjust  $d_{\text{target}}$  to be as large as possible to prevent fast degradation of the ion optic through particle fluxes originating from the target, although this can affect the productivity of an IBSD process significantly.<sup>20</sup> Thus, productivity values as well as economic factors depend on  $d_{\text{target}}$ . For instance, in the IBSD coating machines NAVIGATOR 1100 and NAVIGATOR 2100,<sup>12,20</sup> manufactured by Cutting Edge Coatings GmbH (CEC), the common setups have  $d_{\text{target}} > 350$  mm. From practical experience, target distances in the range of 200–550 mm are used in IBSD for the production of optical thin films.

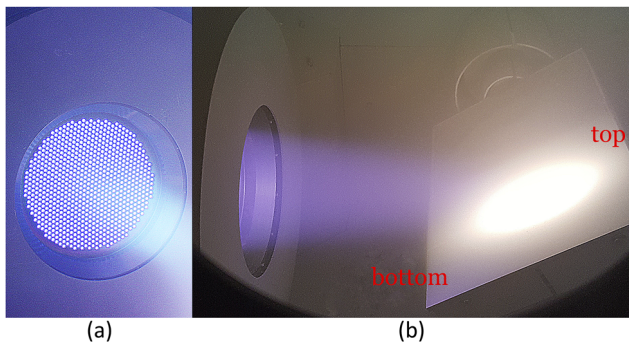
The focus of this work is to investigate target erosion profiles during low-energy (ion energy  $\leq 1.9$  keV, ion source RIM-20) reactive broad ion beam sputtering on a millimeter scale. Erosion profiles sputter-eroded from tantalum (Ta), silicon (Si), and silicon dioxide (SiO<sub>2</sub>) targets are experimentally determined and compared with one another. Ta is chosen because it is one of the most common “high-index” materials used for IBSD processes in optical thin-film technology. Equally, Si and SiO<sub>2</sub> are the most commonly used “low-index” materials. All three target materials are preferred for the production of low-loss mirror coatings in the VIS and near-infrared (NIR) regions. Two different distances of  $d_{\text{target}} = 370$  mm and  $d_{\text{target}} = 550$  mm are examined.

## II. EXPERIMENTAL METHOD

The sputter-erosion of the investigated Ta, Si, and SiO<sub>2</sub> targets was performed in CEC's NAVIGATOR 1100,<sup>20</sup> an industrial-scale IBS coating machine, with a sputter-up configuration of the main process components. The equipment is evacuated by a cryopump to a base pressure of  $4 \times 10^{-6}$  Pa in the high vacuum range. To generate a broad ion beam, NAVIGATOR 1100 is equipped with the inductively coupled radio-frequency (RF) type ion source RIM-20. The design is based on the RIT.<sup>29,30</sup> RIM-20 runs with a spherical shaped curve three-grid multi-aperture extraction system (accel-decel technique) made of titanium, with  $D_{\text{optic}} = 160$  mm and a curvature radius  $R_{\text{optic}} = 400$  mm. The ions are extracted from the plasma and accelerated by 847 beamlets distributed in a quasi-hexagonal pattern. All beamlets together make an ion optic transparency of 56.6%. Figure 1 shows the broad ion beam. To compensate for the space charge, a radio-frequency neutralizer (RFN) operates simultaneously with RIM-20 as a filament-less electron source (not shown in Fig. 1).

The sputter-erosion of the initially flat targets took place during several independent production processes of optical thin films and, thus, always in the presence of an O<sub>2</sub> atmosphere. To adjust the ion energy, only the beam voltage was varied (the accelerator grid voltage of  $-600$  V and decelerator grid voltage of  $0$  V were not varied). The Si target was sputtered with a fixed set of parameters: 1.4 keV xenon (Xe) ions,  $I_{\text{beam}} = 200$  mA, O<sub>2</sub> flow rate 90 SCCM, and working pressure in the range  $5.3\text{--}8.5 \times 10^{-2}$  Pa (depending on the position in the process chamber). The Ta target was sputtered under two sets of conditions: (1) with 1.8 keV argon (Ar) ions and with  $I_{\text{beam}} = 310$  mA and (2) with 1.45 keV Xe ions and with  $I_{\text{beam}} = 230$  mA. In both cases (1) and (2), the O<sub>2</sub> flow rate was set to 90 SCCM. For the sputtering of the SiO<sub>2</sub> target, 1.9 keV Ar ions and a 20 SCCM O<sub>2</sub> flow rate were selected. In all cases, an Ar flow rate



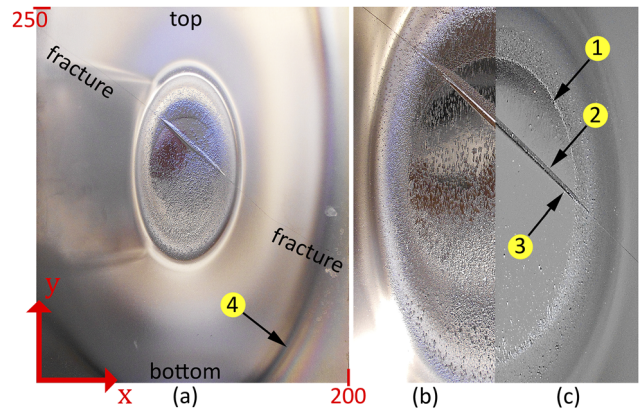


**FIG. 1.** IBSD process in CEC's industrial-scale coating machine NAVIGATOR 1100. (a) Front view of the operating multi-aperture ion optic of the ion source RIM-20 and (b) side view of the broad ion beam during the sputter-erosion of a target. The length of the target from bottom to top is 250 mm.

of 20 SCCM or a Xe flow rate of 15 SCCM was used to operate RIM-20. It is important to note that regulation of the ion energy usually results in a variation of the beam profile.<sup>30,31</sup> The process parameters listed—ion species, ion energy, and beam current—are the result of process optimizations aimed at achieving specific process properties (lateral layer uniformity, coating rate) and layer quality parameters in thin film production.

In all processes, the targets were tilted at  $55^\circ$ . In IBSD, target tilt angles (TTAs) in the range of  $45^\circ$ – $65^\circ$  are usually used. At smaller angles, the particle flux of secondary particles increases in the backward direction toward the ion optic (degradation of the ion optic), and the sputtering yield decreases (reduction of productivity). With larger angles, the proportion of primary particles that fly past the target increases (reduction of productivity, adverse parasitic sputtering of process chamber parts behind the target). Additionally, at large angles of incidence, the sputtering yield drops rapidly (reduction of productivity). The target tilt angle is measured between the target surface normal and the symmetry axis  $\vec{n}_{beam}$  of the ion beam.  $\vec{n}_{beam}$  also corresponds to the direction of propagation of the broad ion beam and is hereinafter also referred to as the beam vector. In the cases of Ta and Si, the target distance—ion optic to the target surface—measured along  $\vec{n}_{beam}$  was set to  $d_{target} = 370$  mm (the corresponding setup is shown in Fig. 1). For the erosion of the  $\text{SiO}_2$  target, a distance of  $d_{target} = 550$  mm was applied. Thus, the dielectric target was positioned behind the geometrical focal point of the ion optic ( $d_{target} > R_{optic}$ ), while the Ta and Si targets were located before the geometrical focal point. The target holder was electrically grounded (with a contact resistance from target to ground  $< 1 \Omega$ ) to eliminate potential electrical charging of the metallic targets.

To determine an erosion profile, the corresponding target was dismantled from the water-cooled target holder and its erosion was measured with a self-built mechanical profilometer. For each data record  $z_i(x_i, y_i)$ , the erosion depths  $z_i$  were measured with an accuracy of  $\pm 0.03$  mm at up to 315 positions  $(x_i, y_i)$ , almost evenly distributed over the relevant target area of  $200 \times 250 \text{ mm}^2$  [shown in detail in Fig. 3(a)]. The positioning accuracy of the profilometer amounts to 0.2 mm in the radial direction around each position  $(x_i, y_i)$ . For describing the erosion processes, the values  $z_i$  are

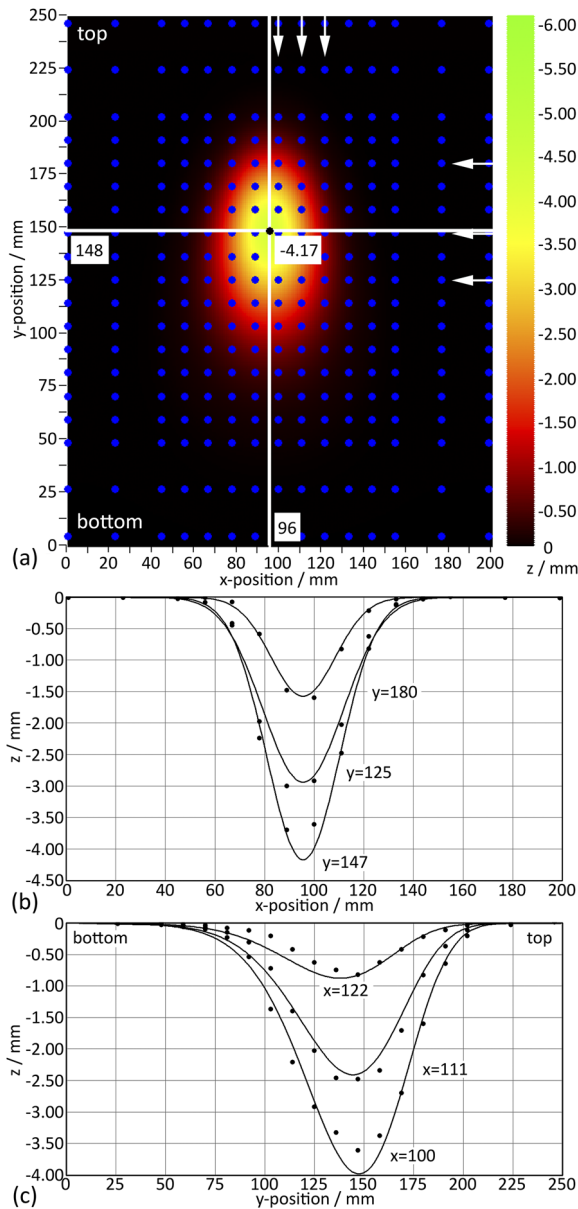


**FIG. 2.** A sputter-eroded Si target with dimensions  $200 \times 250 \times 6 \text{ mm}^3$ , sputtered by a beam of 1.4 keV Xe ions, with  $I_{beam} = 200$  mA,  $TTA = 55^\circ$ , and  $d_{target} = 370$  mm. (a) A top view and (b) an enlargement of the top view at  $T = 135,092$  s and  $z_{min} = -4.17$  mm. (c) An enlargement at  $T = 76,058$  s and  $z_{min} = -2.48$  mm. Circled numbers 1–4 and the fracture are explained in the main text.

treated as negative values ( $z = 0$  corresponds to the initial flat surface).  $x_i$  and  $y_i$  are measured in the chosen coordinate system of a target, as shown in Fig. 2(a). In the cases of Ta and Si, the target plate thickness amounts to 6 mm. The target plate thickness of the  $\text{SiO}_2$  target amounts to 8 mm. In the case of Si, six measurements were performed to investigate the evolution of the erosion characteristics as a function of erosion time  $T$ . The Ta and  $\text{SiO}_2$  targets were measured once. As described above, the erosion profile of Ta (Figs. 4 and 7) results from erosion processes with different ion beam parameters.

It is plausible to assume that the interaction process between an almost rotationally symmetric broad ion beam with a laterally inhomogeneous beam profile and a flat tilted target surface results in (1) a mirror-symmetric erosion profile and (2) irregular sputter conditions depending on the sputter position. In other words, it is assumed that the number of ions per unit area (and per unit time) and the angles of incidence of the ions are different for each point on the target surface (except for the corresponding symmetry points). Figures 2(a)–2(c) support both assumptions (1) and (2). In Figs. 2(a) and 2(b), the investigated Si target is shown after a total accumulated erosion time of  $T = 135,092$  s ( $\sim 37.5$  h). A general observation is a quasi-elliptical-shaped and mirror-symmetric erosion zone (actually, this observation is irrespective of a specific target material, see also Fig. 7 in the Appendix). The maximum erosion depth is  $z_{min} = -4.17$  mm (shown in detail in Fig. 3). At values  $z_{min} \leq -6$  mm, the thickness of the target plate is exceeded, as mentioned above.

For comparison, Fig. 2(c) shows the same target after a shorter erosion time of  $T = 76,058$  s ( $\sim 21.2$  h). Without generalizing, especially in the case of Si, two segments can be observed—a smooth inner segment (subjectively smoother than the initial surface) and a rough outer segment (subjectively rougher than the initial surface), separated by a more or less sharp edge [marked No. 1 in Fig. 2(c)]. In the course of sputter erosion, the inner segment reveals a rough spotty appearance as can be seen in Fig. 2(b). On the one hand, this irregular and dynamic structuring of a target surface could be assumed to be an expression of the position-dependent sputter



**FIG. 3.** Approximation of the erosion zone of the Si target at  $T = 135,092$  s as also shown in Figs. 2(a) and 2(b). (a) 2D distribution  $z_{APPROX}(x, y)$ . The 285 positions  $(x_i, y_i)$  of the measured erosion depths  $z_i$  are marked with blue dots. The fitting parameters are listed in Table II, and the characteristic values are summarized in Table III (line 7). (b) 1D distributions  $z_{APPROX}(x, y)$  in the  $x$ -direction at  $y_i$ -positions 125, 147, and 180. (c) 1D distributions  $z_{APPROX}(x, y)$  in the  $y$ -direction at  $x_i$ -positions 100, 111, and 122. The arrows in (a) are corresponding to the coordinates of interest in (b) and (c). The data points illustrate the experimentally determined erosion depths  $z_i$ .

conditions as described above. On the other hand, the transition between the smooth and rough segments may indicate different levels of target poisoning. With Ta, these effects are not visually recognizable (Fig. 7 in the Appendix).

Outside of the main erosion zone, a wider region of interaction between the charged particle beam and the target can be observed. This region visually extends to the edge, which is marked No. 4 in Fig. 2(a), but even at values  $z_{min} \leq -6$  mm, no erosion can be measured with the applied profilometer in this area. Thus, the wide interaction region manifests itself only as a discoloration of the target surface, and it is assumed to result from particles scattered during beam propagation due to a finite mean free path. Besides potential compound formation, additional oxide coverage may occur in the form of an undesired coating when the neighboring target is sputtered. The colored rings at the edge of this wider region indicate dielectric layers with varying layer thicknesses.

Although the Si target was initially fractured (by a handling mistake), it was decided that it should be used anyway for the present investigation. It is conspicuous that the fracture evolved into a mound with a rough side [marked No. 2 in Fig. 2(c)] and a smooth side [marked No. 3 in Fig. 2(c)] during sputtering, most probably as a result of simultaneous redeposition and ion-induced surface modification under varying conditions. No effect of the fracture on the process parameters or quality parameters of the produced films was observed, so the fracture is ignored in the following analyses.

### III. EROSION PROFILE APPROXIMATION

For the precise estimation of the characteristics of an erosion profile, each discrete data record  $z_i(x_i, y_i)$  is approximated using the following empirical function:

$$z_{APPROX}(x, y) = -z_B(y) \cdot (z_A(y) + z_0 \cdot G(x, y) \cdot H(y)),$$

$$G(x, y) = \exp\left\{-\frac{(x-x_0)^2}{2w(y)^2}\right\},$$

$$H(y) = \exp\left\{-\frac{[\ln(y-y_1) - v_2]^2}{2v_1^2}\right\}, \quad (1)$$

$$z_A(y) = z_1 + z_2 \cdot (y - z_3)^2,$$

$$z_B(y) = z_4 + z_5 \cdot \exp\{-z_6 \cdot y\}.$$

$$w(y) = w_1 + w_2 \cdot (y - w_3)^2$$

The above equation was developed starting from the function  $R(x, y)$  presented in Ref. 20. Except for the factor  $-z_B(y)$ , the equations of  $z_{APPROX}(x, y)$  and  $R(x, y)$  are identical. The minus sign in Eq. (1) indicates an erosion process (removal of particles) instead of a coating process (accumulation of particles). A mirror symmetry for the  $x$ -direction is imposed because of  $G(x, y)$ . More details on the parameters in Eq. (1) are given in Ref. 20. In total, 14 fitting parameters are included in the 2D function  $z_{APPROX}(x, y)$  without a direct link to a physical model or the beam profile. As a comparison, for the approximation of a rotationally symmetric erosion zone in a planar magnetron, a one-dimensional (1D) function with six fitting parameters was suggested in Ref. 32. The fitting of  $z_{APPROX}(x, y)$  to a determined dataset of erosion depths  $z_i(x_i, y_i)$  is performed by the software package Layer-Thickness-Optimization (LTO, developed by Wjatscheslaw Sakiew). The fitting parameters and the corresponding mean squared errors (MSEs) are summarized in Table II.

As a result of the fitting procedure, the following characteristic values of an approximated 2D erosion profile  $z_{APPROX}(x, y)$  are

**TABLE I.** Estimated coordinates of the intersection  $y_S$  between the target plane and the lengthened beam vector  $\vec{n}_{beam}$ . The coordinate system is illustrated in Fig. 2(a).

	$y_S$ (mm)
Ta and Si targets, $d_{target} = 370$ mm	$138 \pm 9$
SiO <sub>2</sub> target, $d_{target} = 550$ mm	$152 \pm 12$

calculated in LTO:  $x_0$  and  $y_0$  (the coordinates of the maximum erosion depth),  $z_{min} \leq 0$  (the maximum erosion depth),  $\Delta x_{FWHM}$  and  $\Delta y_{FWHM}$  (the full width at half maximum (FWHM) in the x-direction at the y-position  $y_0$  and in the y-direction at the x-position  $x_0$ ), and  $V$  (the eroded volume). Another advantage of the approximation is the averaging of sporadic erosion depth measurement errors.

In the present work, the erosion profiles are qualitatively compared with one another. For this purpose, the profiles approximated by Eq. (1) are normalized by  $z_{min}$  as

$$\overline{z_{APPROX}}(x, y) = z_{APPROX}(x, y) / z_{min}. \quad (2)$$

Figure 3 shows the approximated sputter-eroded Si target after an erosion time of  $T = 135,092$  s. The 1D distributions  $z_{APPROX}(x, y_i)$  in the x-direction [Fig. 3(b)] and  $z_{APPROX}(x_i, y)$  in the y-direction [Fig. 3(c)] indicate that the accuracy of the approximation for the x-direction is higher than that for the y-direction. It is important to point out that the erosion profile appears symmetrical in the x-direction and asymmetrical in the y-direction as a consequence of the target tilt angle  $TTA > 0$ . More precisely, under the conditions considered, the profile is stretched toward the lower target edge (bottom) and squeezed toward the upper target edge (top).

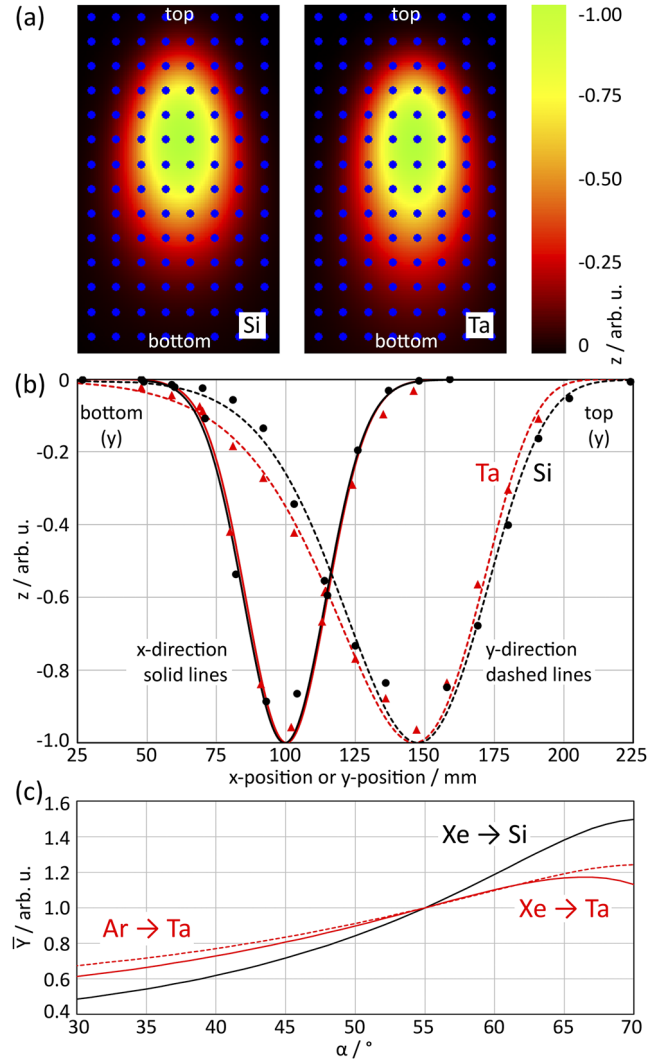
It can be seen that, in Fig. 3, the position of maximum erosion in the x-direction is  $x_0 = 96$  mm, which is not exactly the target center at  $x = 100$  mm. The observed misalignment results from the chosen target holder position and can, therefore, be compensated for by defining a new target holder position. Thus, in the following, the selected erosion profiles are shifted numerically in the x-direction to the target center ( $x_0 = 100$  mm) for a clearer illustration.

In this context, the y-direction is more significant for the present investigation. In Fig. 3, the position of maximum erosion in the y-direction is at  $y_0 = 148$  mm. By measuring the orientation of the target relative to the ion source, the coordinate of the intersection  $y_S$  of the beam vector ( $\vec{n}_{beam}$  lengthened) with the target surface could not be estimated with better accuracy than shown in Table I, if the manufacturing tolerances of the vacuum chamber and its warping due to high vacuum are taken into account. It is important to note that  $y_0$  and  $y_S$  are not necessarily identical.

## IV. RESULTS AND DISCUSSION

### A. Comparison of the Ta and Si erosion profiles

In Fig. 4,  $\overline{z_{APPROX}}(x, y)$  for the Si and Ta targets are compared for identical process geometries ( $TTA = 55^\circ$ ,  $d_{target} = 370$  mm). Although (1) different materials were eroded with (2) different ion energies and (3) different accumulated erosion times, resulting in (4) different erosion depths  $z_{min}$ s, and (5) in the case of Ta, both Ar and Xe ions have been used, the determined normalized erosion profiles are almost identical (see also Table III):



**FIG. 4.** Si and Ta erosion profiles normalized and represented as in Fig. 3. (a) Two 2D distributions  $\overline{z_{APPROX}}(x, y)$ . A section of the target area of size  $200 \times 250$  mm<sup>2</sup> is shown. The fitting parameters are listed in Table II, and the characteristic values are summarized in Table III (lines 1 and 7). (b) The 1D distributions of  $\overline{z_{APPROX}}(x, 147)$  are shown as solid lines and  $\overline{z_{APPROX}}(100, y)$  as dashed lines with Si in black and Ta in red.  $x_0$  is centered at  $x_0 = 100$  mm in both cases as described in Sec. III. The coordinates  $y_0$  are within or almost within the range  $y_S = 138 \pm 9$  mm given in Table I. (c) Sputtering yields normalized to  $\alpha = 55^\circ$  (identical to the applied TTA) as a function of the angle of incidence  $\alpha$  onto the target according to the revised Bohdansky model<sup>33</sup> and Yamamura model<sup>34</sup> with  $Y(1.4$  keV Xe, Si,  $\alpha)$  as the black solid line,  $Y(1.45$  keV Xe, Ta,  $\alpha)$  as the red solid line, and  $Y(1.8$  keV Ar, Ta,  $\alpha)$  as the red dashed line.

**Positions:** It can be seen that the values  $x_0$  and  $y_0$  are almost identical.

**Dimensions:** The erosion profiles appear identical in the x-direction (the values of  $\Delta x_{FWHM}$  are identical) and similar in the y-direction (the values of  $\Delta y_{FWHM}$  are almost identical).

**Stretching:** The asymmetrical shapes of the erosion profiles in the y-direction are comparable for the two materials.



The following explanatory approach is plausible: (1) The erosion profiles are mainly influenced by the process geometry (e.g., a rotationally symmetric broad ion beam, a flat and tilted target, the beamlet pattern, and the values of TTA,  $d_{target}$ ,  $R_{optic}$ , and  $D_{optic}$ ), and (2) the considered ion–solid interaction processes must be assumed to be qualitatively comparable—this means that the normalized sputtering yields,  $\overline{Y(\alpha)}$ , are similar in the corresponding angular range of ions impinging on the target surface.

Calculations using semi-empirical models<sup>33,34</sup> result in at least similar distributions  $\overline{Y(\alpha)}$  (normalized to  $\alpha = 55^\circ$ ) for the sputtering of Ta with Ar ions and Xe ions depending on the angle of incidence of the ions  $\alpha$  onto the target [Fig. 4(c)]. The angular dependence of the sputtering of Si compared to Ta appears to deviate more strongly. The variation of the polar angles of incidence along the y-direction is larger than that along the x-direction for the present process geometry, which probably causes the erosion profiles of Ta and Si to differ more in the y-direction than in the x-direction. However, regarding the calculations with the semi-empirical models, it should be noted that, in Ref. 35, it is indicated that the calculation of  $Y$  is accurate to within  $\pm 20\%$ .

The results in Fig. 4 allow for two further conclusions: (1) If compound formation<sup>17–20</sup> or undesired oxide coverage occurs (Sec. II), then it can only have a minor influence on the qualitative characteristics of the erosion profiles under the experimental boundary conditions presented herein. In particular, because different target materials are compared, different compound formation rates can also be assumed. However, it is quite conceivable that there is a quantitative effect on the erosion rate (a continuous adsorption of oxygen atoms, which then have to be additionally sputtered), which is not evaluated here. (2) If the regulation of the ion energy results in a variation of the beam profile, then this variation must be sufficiently small so that the widths  $\Delta x_{FWHM}$  are not influenced by it. Additionally, the experimentally determined erosion profiles confirm that there is no measurable material removal outside the main erosion zone.

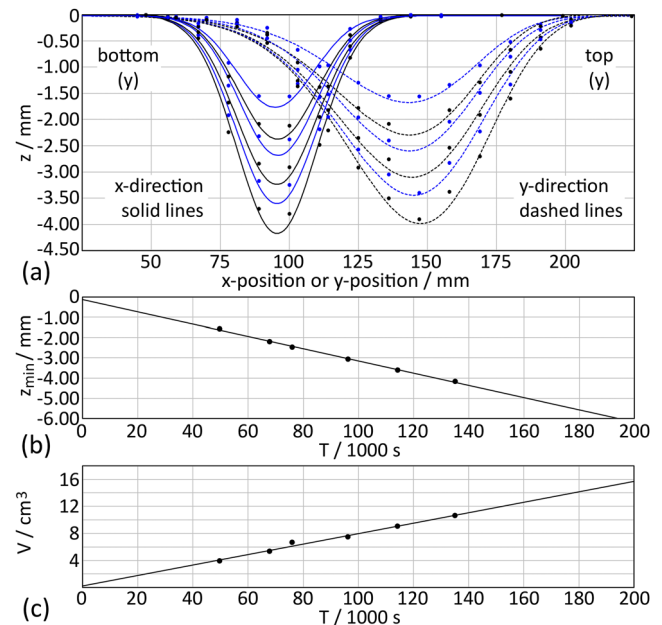
## B. Evolution of the Si erosion profile

The investigation of the erosion of the Si target and its dependence on the total accumulated erosion time  $T$  can be summarized as follows (see Fig. 5 and Table III):

**Positions:** There is no significant variation of  $x_0$ . This means that the direction of propagation  $\vec{n}_{beam}$  of the broad ion beam has not drifted within the observation period (e.g., due to degradation of the ion optic). A small increase in  $y_0$  was documented. This is plausible because the target is tilted relative to  $\vec{n}_{beam}$ .

**Dimensions:**  $\Delta x_{FWHM}$  and  $\Delta y_{FWHM}$  increase slightly with increasing  $T$  (and increasing  $z_{min}$ ). However, the variation of both values is 6% or less at a relative erosion depth of approximately 70% ( $z_{min}/6$ , in comparison with the maximum usable target thickness). Thus, the shape of the erosion profile appears to be almost independent of the erosion time and erosion depth. A similar observation was also documented for DC-MS.<sup>36,37</sup>

**Rates:** A linear scaling could be identified for  $z_{min}$  [Fig. 5(b)] and  $V$  [Fig. 5(c)]. The following conclusions can be drawn from this: The erosion rate is constant regardless of the erosion time



**FIG. 5.** (a) Evolution of the Si erosion profile as shown in Figs. 2–4. The 1D distributions of  $Z_{APPROX}(x, 147)$  are shown as solid lines and  $Z_{APPROX}(100, y)$  as dashed lines. The circle-shaped points represent the experimentally determined erosion depths  $z_i$ . In Table III (lines 2–7), the characteristic values of the approximated erosion profiles are summarized. (b) Maximum erosion depth  $z_{min}$  linearly interpolated as a function of  $T$  with  $z_{min}(T) = -3.024 \cdot 10^{-5} \cdot mm \cdot s^{-1} \cdot T - 0.1342 mm$ . Extrapolation to  $T = 0$  gives almost 0. According to the interpolation, a target plate thickness of 6 mm is reached after  $T = 193,974 s$  (~54 h). (c) Eroded volume  $V$  linearly interpolated as a function of  $T$  with  $V(T) = 7.706 \cdot 10^{-5} cm^3 s^{-1} T + 0.2602 cm^3$ .

or erosion depth. Such a finding is consistent with what is known for MS.<sup>37</sup> It is plausible that the investigated erosion depths are much smaller than the lateral dimensions of a target plate and the broad erosion profile itself. Nevertheless, a clear macroscopic modification of the surface geometry is evident. Consequently, there is also a certain effect on the distribution of the angles of incidence of the ions onto the target surface. However, this effect seems to be sufficiently small such that the change in the angle-dependent sputtering yield (for each ion) during the sputtering of the target is not reflected in the erosion rate [for clarification, see Fig. 4(c)]. This explanation also implies that, for hypothetical erosion depths, which are most probably greater than the thicknesses of the target plates used, non-linearities in the erosion rate must occur. Furthermore, other effects become relevant at large erosion depths, such as the redeposition of the sputtered material. A critical erosion depth cannot be determined at this point, but it is plausible that the critical erosion depth must be smaller than the lateral dimensions of a profile.

If other influences on the erosion rate occur (for the erosion depths investigated), such as compound formation,<sup>17–20</sup> redeposition,<sup>38</sup> target surface composition modification,<sup>39</sup> or ion-induced

surface modifications on the micrometer or nanometer scale (roughening, smoothing, nanopattern formation),<sup>40</sup> then they do not affect the linearity in the performed experiment.

With the observed linearity [Fig. 5(b)],  $z_{min}$  can be extrapolated:  $z_{min}$  reaches a value of 6 mm (the thickness of the Si target plate) at  $T \approx 54$  h (under the conditions of 1.4 keV Xe ions,  $I_{beam} = 200$  mA,  $d_{target} = 370$  mm). At this point, 5% of the target plate has been eroded. In a production process, however, the position of the target holder can be varied. Thus, from practical experience, depending on the target material,  $d_{target}$ , and other ion beam parameters, a target material utilization of up to 20% can be achieved in IBSD before the thickness of a target plate is exceeded. It should be noted that the target size and  $d_{target}$ , as applied for present investigation, are optimized for the production of optical coatings with the highest quality level. Through additional technical adaptations (e.g., target segmentation), a higher degree of utilization can be achieved.

### C. Comparison of the erosion profiles at different distances $d_{target}$

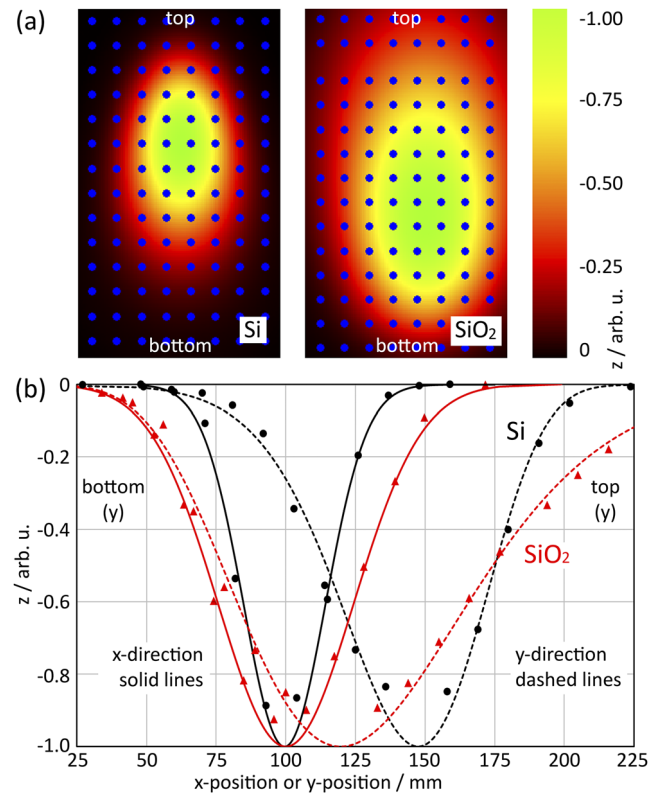
In Fig. 4, it is shown that the erosion profiles of Ta and Si are qualitatively almost identical if the target distance  $d_{target}$  is not changed, despite the different materials. On the basis of this result (process geometry appears superordinate, ion–solid interaction mechanisms appear subordinate), the dielectric SiO<sub>2</sub> target was eroded at a distance 180 mm larger. On the one hand, the greater propagation length of the broad ion beam through the process atmosphere and the associated interaction mechanisms that influence the characteristics of the ion beam should be taken into account. On the other hand, it should be considered that the SiO<sub>2</sub> target was positioned clearly behind the geometric focal point of the ion optic ( $d_{target} > R_{optic}$ ), while the other two targets were positioned close to but still in front of the geometric focal point ( $d_{target} < R_{optic}$ ). The following results were obtained (see Fig. 6 and Table III):

**Positions:** The coordinate  $y_0$  of the maximum erosion depth  $z_{min}$  is smaller. More precisely,  $y_0$  shifts below the coordinate  $y_S$  (Table I). It is assumed that this behavior results from the photometric law and the corresponding beam profile.

**Dimensions:** The erosion profile becomes broader.  $\Delta x_{FWHM}$  and  $\Delta y_{FWHM}$  scale with an almost identical scaling factor of 1.6 by increasing  $d_{target}$  from 370 to 550 mm, although different target materials are being compared at this point. This result can also be understood as an indication that the erosion profiles are more strongly influenced by geometrical parameters than by ion–solid interaction mechanisms, as mentioned in Sec. IV A.

**Stretching:** Compared to the Ta and Si erosion profiles, the qualitative characteristic of the SiO<sub>2</sub> erosion profile along the y-direction is reversed at the larger distance. The profile is stretched toward the upper target edge (top) and squeezed toward the lower target edge (bottom).

It can be concluded that, in qualitative terms, the erosion depends significantly on the propagation length of the broad ion beam or the characteristics of the ion beam. An uncertainty in the



**FIG. 6.** Si and SiO<sub>2</sub> erosion profiles normalized and represented as in Fig. 3.  $d_{target} = 370$  mm in the case of Si, and  $d_{target} = 550$  mm in the case of SiO<sub>2</sub>. (a) Two 2D distributions  $\bar{z}_{APPROX}(x, y)$ . A section of the target area of size  $200 \times 250$  mm<sup>2</sup> is shown. The fitting parameters are listed in Table II, and the characteristic values are summarized in Table III (lines 2 and 8). (b) 1D distributions for Si are shown in black and are identical to those in Fig. 4(b). The 1D distributions  $\bar{z}_{APPROX}(x, 120)$  are shown as solid lines and  $\bar{z}_{APPROX}(100, y)$  as dashed lines with SiO<sub>2</sub> in red.  $x_0$  is centered at  $x_0 = 100$  mm in both cases as described in Sec. III. In the case of SiO<sub>2</sub>,  $y_0 = 120$  mm is clearly out of the range  $y_S = 152 \pm 12$  mm given in Table I. The triangle-shaped points represent the experimentally determined erosion depths  $z_i$ . They are assigned to the coordinates  $x_i = 100$  mm and  $y_i = 122$  mm as the closest coordinates to  $x_0 = 100$  mm and  $y_0 = 120$  mm.

result arises from the fact that metallic and dielectric targets are being compared at this point. In the case of SiO<sub>2</sub>, charging effects are conceivable, as well as preferential sputtering.<sup>41</sup>

## V. SUMMARY AND CONCLUSIONS

The focus of this work was to investigate target erosion profiles during low-energy (ion energy  $\leq 1.9$  keV, ion source RIM-20) reactive broad ion beam sputtering on a millimeter scale. Erosion profiles sputter-eroded from flat Ta, Si, and SiO<sub>2</sub> targets were compared with one another. For the precise estimation of the characteristics of an erosion profile, an empirical approximation function was developed.

The experimental data showed similar erosion profiles when comparing Ta (sputtered by 1.8 keV Ar and 1.45 keV Xe ions) and

Si (sputtered by 1.4 keV Xe ions). In the case of Si, a linear erosion rate as a function of erosion time was observed. The qualitative distribution of the Si erosion profile appeared to be almost independent of the erosion time and erosion depth. Furthermore, a comparison of Si and SiO<sub>2</sub> (sputtered by 1.9 keV Ar ions) target erosion profiles, with the targets being eroded at different distances from the ion optic, showed a clear dependence on the propagation length of the broad ion beam. The lateral dimensions of the erosion profile and the position of the maximum erosion depth both changed. Furthermore, the shape of the profile along the *y*-direction was completely reversed. This behavior is associated with the beam profile and the photometric law.

The experimental results allow for the conclusion that the qualitative characteristics of the erosion profiles on a macroscopic scale are more strongly coupled to geometrical parameters (e.g., a rotationally symmetric broad ion beam, a flat and tilted target, the distance between the ion optic and the target, and the ion optic radius of curvature and diameter) than to the considered ion–solid interaction mechanisms at an atomic level, which are particularly coupled to the ion species and ion energy. It is conceivable that this result can be transferred to other broad ion beam sources commonly used in IBSD if a similar experimental setup is considered.

The impact of potential compound formation on the meaning of Berg's model, which is hardly accessible experimentally, is

unclear. In particular, for modeling of the target erosion in IBS, target poisoning is still a challenge.

## ACKNOWLEDGMENTS

This research was partially funded by the Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG, German Research Foundation) under Germany's Excellence Strategy within the Cluster of Excellence PhoenixD (EXC 2122, Project ID 390833453). Furthermore, the authors are grateful to the Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF, German Federal Ministry of Education and Research) for financial support of the research project PluTO<sup>plus</sup> (Contract No. 13N13207). The authors thank Dr. Kai Starke (CEC) for administration of the research project PluTO<sup>plus</sup>, Philippe Schwerdtner (CEC) for critical reading of this manuscript, and Dr. Benjamin Lotz (GIESS GmbH, Germany) for fruitful discussions on ion sources.

## APPENDIX: TABLES AND FIGURES

Table II lists the fitting parameters of the approximated erosion profiles  $z_{APPROX}(x, y)$ ; Table III lists the characteristic values of the approximated erosion profiles  $z_{APPROX}(x, y)$ ; and Fig. 7 shows the top view of a sputter-eroded Ta target with dimensions  $200 \times 250 \times 6 \text{ mm}^3$ , sputtered with different ion beam parameters as described in Sec. II.

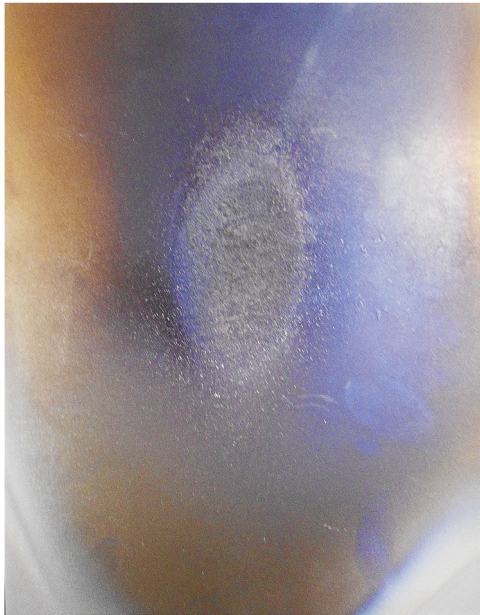
**TABLE II.** Fitting parameters of the approximated erosion profiles  $z_{APPROX}(x, y)$ . The erosion profiles of Ta and Si must be rotated numerically by 180°. The fitting of  $z_{APPROX}(x, y)$  to a determined dataset of erosion depths  $z_i(x_i, y_i)$  is performed by the software package LTO. The total number of data points is 150 for Ta, 285 for Si, and 315 for SiO<sub>2</sub>. In column 2, the corresponding mean squared error (MSE) is given.

Target (figure)	MSE	Fitting parameters
Ta (Fig. 4)	$2.7 \cdot 10^{-2}$	$x_0 = 101.820, y_1 = -0.039, z_0 = 9.433, z_1 = 1.0 \cdot 10^{-4}, z_2 = 1.553 \cdot 10^{-9}, z_3 = -6.562 \cdot 10^{-4}, z_4 = 0.036, z_5 = 0.241, z_6 = 0.013, v_1 = 0.258, v_2 = 4.698, w_1 = 10.870, w_2 = 3.461 \cdot 10^{-4}, w_3 = -0.047$
Si (Figs. 3–6)	$5.1 \cdot 10^{-1}$	$x_0 = 104.468, y_1 = -63.865, z_0 = 28.823, z_1 = 0.019, z_2 = 1.049 \cdot 10^{-6}, z_3 = -4.065 \cdot 10^{-3}, z_4 = -0.021, z_5 = 0.460, z_6 = 9.640 \cdot 10^{-3}, v_1 = 0.158, v_2 = 5.158, w_1 = 11.373, w_2 = 3.131 \cdot 10^{-4}, w_3 = -3.683 \cdot 10^{-5}$
SiO <sub>2</sub> (Fig. 6)	$1.7 \cdot 10^{-2}$	$x_0 = 103.548, y_1 = -62.109, z_0 = 48.452, z_1 = 4.297 \cdot 10^{-4}, z_2 = -1 \cdot 10^{-8}, z_3 = 500, z_4 = -4.443 \cdot 10^{-3}, z_5 = 0.958, z_6 = 1.388 \cdot 10^{-2}, v_1 = 0.243, v_2 = 5.355, w_1 = 22.569, w_2 = 3.067 \cdot 10^{-4}, w_3 = 44.887$

**TABLE III.** Characteristic values of the approximated erosion profiles  $z_{APPROX}(x, y)$  as described in Sec. III. All calculations are performed with LTO.

Target (figure)	<i>T</i> (s)	<i>x</i> <sub>0</sub> (mm)	<i>y</i> <sub>0</sub> (mm)	<i>z</i> <sub>min</sub> (mm)	$\Delta x_{FWHM}$ (mm)	$\Delta y_{FWHM}$ (mm)	<i>V</i> (mm <sup>3</sup> )
Ta (Fig. 4)	...	98	146	-0.93	35.0	64.0	2 505
Si (Fig. 5)	49 756	95	142	-1.58	33.0	59.0	3 925
Si (Fig. 5)	67 869	96	143	-2.20	33.5	59.0	5 358
Si (Fig. 5)	76 058	96	143	-2.48	33.5	58.5	6 639
Si (Fig. 5)	96 215	95	144	-3.07	34.5	60.5	7 492
Si (Fig. 5)	114 178	95	146	-3.61	34.5	61.0	9 050
Si (Fig. 5)	135 092	96	148	-4.17	35.0	61.0	10 644
SiO <sub>2</sub> (Fig. 6)	...	104	120	-7.06	57.0	97.0	46 309





**FIG. 7.** Top view of a sputter-eroded Ta target with dimensions  $200 \times 250 \times 6 \text{ mm}^3$ , sputtered with different ion beam parameters as described in Sec. II. The fitting parameters of the corresponding approximated erosion profile are listed in Table II, and the resulting characteristic values are summarized in Table III.

## DATA AVAILABILITY

The data that support the findings of this study are available within this article.

## REFERENCES

- <sup>1</sup>D. Ristau and T. Gross, in *Advances in Optical Thin Films II*, edited by C. Amra, N. Kaiser, and H. A. Macleod (SPIE, 2005), Vol. 5963, p. 596313.
- <sup>2</sup>C. J. Stolz and R. A. Negres, *Opt. Eng.* **57**, 1 (2018).
- <sup>3</sup>M. Becker, M. Gies, A. Polity, S. Chatterjee, and P. J. Klar, *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 023901 (2019).
- <sup>4</sup>J. Degallaix, C. Michel, B. Sassolas, A. Allocca, G. Cagnoli, L. Balzarini, V. Dolique, R. Flaminio, D. Forest, M. Granata, B. Lagrange, N. Straniero, J. Teillon, and L. Pinard, *J. Opt. Soc. Am. A* **36**, C85 (2019).
- <sup>5</sup>J. Belfi, N. Beverini, F. Bosi, G. Carelli, D. Cuccato, G. De Luca, A. Di Virgilio, A. Gebauer, E. Maccioni, A. Ortolan, A. Porzio, G. Saccorotti, A. Simonelli, and G. Terreni, *Rev. Sci. Instrum.* **88**, 034502 (2017).
- <sup>6</sup>H. Ehlers and D. Ristau, in *Optical Thin Films and Coatings*, 2nd ed., edited by A. Piegari and F. Flory (Woodhead Publishing, 2018), pp. 103–140.
- <sup>7</sup>M. Jupé, M. Lappschies, L. Jensen, K. Starke, and D. Ristau, in *Proceedings Vol. 6403, Laser-Induced Damage Optical Materials 2006*, edited by G. J. Exarhos, A. H. Guenther, K. L. Lewis, D. Ristau, M. J. Soileau, and C. J. Stolz (SPIE, 2007), p. 640311.
- <sup>8</sup>T. Willemsen, M. Jupé, L. Gallais, D. Tetzlaff, and D. Ristau, *Opt. Lett.* **42**, 4502 (2017).
- <sup>9</sup>S. Malobabic, M. Jupé, and D. Ristau, *Light: Sci. Appl.* **5**, e16044 (2016).
- <sup>10</sup>C. Bundesmann and H. Neumann, *J. Appl. Phys.* **124**, 231102 (2018).
- <sup>11</sup>H. Badorreck, M. Steinecke, L. Jensen, D. Ristau, M. Jupé, J. Müller, R. Tonneau, P. Moskovkin, S. Lucas, A. Pflug, L. Grinevičiūtė, A. Selskis, and T. Tolenis, *Opt. Express* **27**, 22209 (2019).
- <sup>12</sup>W. Sakiew, S. Schrammeyer, P. Schwerdtner, N. Erhart, and K. Starke, *Appl. Opt.* **59**, 4296 (2020).
- <sup>13</sup>A. Ribeaud, J. Pistner, H. Hagedorn, M. Brophy, P. Kupinski, J. Watson, and R. Hand, in *Laser-Induced Damage Optical Materials 2018 50th Anniversary Conference*, edited by C. W. Carr, G. J. Exarhos, V. E. Gruzdev, D. Ristau, and M. J. Soileau (SPIE, 2018), pp. 134–142.
- <sup>14</sup>T. A. Laurence, D. A. Alessi, E. Feigenbaum, R. A. Negres, S. R. Qiu, C. W. Siders, T. M. Spinka, and C. J. Stolz, *J. Appl. Phys.* **128**, 071101 (2020).
- <sup>15</sup>M. Becker, X. Li, T. Henning, and P. J. Klar, *Rev. Sci. Instrum.* **91**, 013905 (2020).
- <sup>16</sup>Y. Chen, D. Hahner, M. Trubetskoy, S. Schrammeyer, W. Sakiew, K. Starke, and V. Pervak, *Appl. Phys. B* **126**, 82 (2020).
- <sup>17</sup>S. Berg, E. Särhammar, and T. Nyberg, *Thin Solid Films* **565**, 186 (2014).
- <sup>18</sup>K. Strijckmans and D. Depla, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47**, 235302 (2014).
- <sup>19</sup>T. Lautenschläger, *Systematic Investigation of the Ion Beam Sputter Deposition of TiO<sub>2</sub>* (Universität Leipzig, 2018).
- <sup>20</sup>W. Sakiew, S. Schrammeyer, M. Jupé, P. Schwerdtner, N. Erhart, K. Starke, and D. Ristau, *Thin Solid Films* **682**, 109 (2019).
- <sup>21</sup>M. Sangregorio, K. Xie, N. Wang, N. Guo, and Z. Zhang, *Chin. J. Aeronaut.* **31**, 1635 (2018).
- <sup>22</sup>Y. Lu, X. Xie, L. Zhou, Z. Dai, and G. Chen, *Appl. Opt.* **56**, 260 (2017).
- <sup>23</sup>J. Bauer, F. Frost, and T. Arnold, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 085101 (2017).
- <sup>24</sup>T. Arnold, G. Böhm, R. Fechner, J. Meister, A. Nickel, F. Frost, T. Hänsel, and A. Schindler, *Nucl. Instrum Methods Phys. Res., Sect. A* **616**, 147 (2010).
- <sup>25</sup>T. Amelal, L. Pietzonka, E. Rohkamm, and C. Bundesmann, *J. Vac. Sci. Technol., A* **38**, 033403 (2020).
- <sup>26</sup>K. Oh, D. Kalanov, A. Anders, and C. Bundesmann, *J. Vac. Sci. Technol., A* **38**, 033011 (2020).
- <sup>27</sup>D. Kalanov, A. Anders, and C. Bundesmann, *J. Vac. Sci. Technol., A* **37**, 051507 (2019).
- <sup>28</sup>T. Lautenschläger and C. Bundesmann, *J. Vac. Sci. Technol., A* **35**, 041001 (2017).
- <sup>29</sup>H. W. Loeb, in *AIAA 7th Electric Propulsion Conference* (AIAA, Williamsburg, Virginia, 1969), p. 285.
- <sup>30</sup>J. Freisinger, J. Heland, D. Krämer, H. Löb, and A. Scharmann, *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 2571 (1992).
- <sup>31</sup>M. Zeuner, F. Scholze, H. J. Leiter, R. Kukies, D. Feili, M. Tartz, and H. Neumann, in *39th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference Exhibition* (AIAA, 2003), p. 5009.
- <sup>32</sup>A. V. Rogov and Y. V. Kapustin, *Tech. Phys.* **62**, 1437 (2017).
- <sup>33</sup>C. García-Rosales, W. Eckstein, and J. Roth, *J. Nucl. Mater.* **218**, 8 (1995).
- <sup>34</sup>Y. Yamamura, Y. Itikawa, and N. Itoh, *Angular Dependence of Sputtering Yields of Monoatomic Solids* (Institute of Plasma Physics, Nagoya University, 1983).
- <sup>35</sup>N. Matsunami, Y. Yamamura, Y. Itikawa, N. Itoh, Y. Kazumata, S. Miyagawa, K. Morita, R. Shimizu, and H. Tawara, *At. Data Nucl. Data Tables* **31**, 1 (1984).
- <sup>36</sup>D. Depla, K. Strijckmans, and R. De Gryse, *Surf. Coat. Technol.* **258**, 1011 (2014).
- <sup>37</sup>T. Nakano, Y. Saitou, and K. Oya, *Surf. Coat. Technol.* **326**, 436 (2017).
- <sup>38</sup>N. Anspach and S. J. Linz, *J. Stat. Mech. Theory Exp.* **2010**, P06023.
- <sup>39</sup>C. Bundesmann, T. Lautenschläger, D. Spemann, A. Finzel, E. Thelander, M. Mensing, and F. Frost, *Appl. Surf. Sci.* **421**, 331 (2017).
- <sup>40</sup>F. Frost, B. Ziberi, A. Schindler, and B. Rauschenbach, *Appl. Phys. A* **91**, 551 (2008).
- <sup>41</sup>M. Mende, F. Carstens, H. Ehlers, and D. Ristau, *J. Vac. Sci. Technol., A* **39**, 023406 (2021).





# 4

---

## Modellierung der Primärteilchen

In einem industriellen Beschichtungsprozess basierend auf Ionenstrahlzerstäubung wird das Target mit einem breiten Ionenstrahl zerstäubt. Die Modellierung der abgestäubten Targetatome in Menge und Richtung setzt voraus, dass für jede Position innerhalb der erodierten Fläche sowohl Menge als auch die polaren und azimutalen Einfallswinkel der Projektile bekannt sind. Das sind Informationen, die experimentell nur mit unverhältnismäßig großem Aufwand zugänglich sind, auch weil Projektile aus unterschiedlichen Richtungen auf dieselbe Targetposition treffen können. Im vorliegenden Kapitel wird daher der Ansatz verfolgt, die Trajektorien der energetischen Teilchen im Ionenstrahl zu modellieren und die freien Modellparameter anhand der experimentell ermittelten Erosionsverteilungen aus Kapitel 3 mit einem Optimierungsalgorithmus numerisch zu bestimmen.

### 4.1 Artikel B: Target erosion process during broad ion beam sputtering using 3D modeling of ion trajectories

#### 4.1.1 Beitrag des Autors

Die Modellierung sowie die Programmierung aller Auswerteroutinen erfolgten durch den Autor (Erstautor des Artikels B). In die Deutung der experimentellen Ergebnisse waren alle Autoren des Artikels B eingebunden. Das Manuskript wurde vom Erstautor verfasst und von allen Koautoren fachlich geprüft. AIP Author Services war mit der sprachlichen Korrektur beauftragt.

#### 4.1.2 Publizierter Artikel

W. Sakiew, E. Klocke, and D. Ristau, "Target erosion process during broad ion beam sputtering using 3D modeling of ion trajectories," *AIP Advances*, vol. 12, no. 4, p. 45123, 2022, DOI: <https://doi.org/10.1063/5.0090398>

Eingereicht: 06.03.2022 | Akzeptiert: 25.03.2022

Dieser Artikel durchlief ein Peer-Review-Verfahren und wurde in der wissenschaftlichen Fachzeitschrift *AIP Advances*, die von AIP Publishing herausgegeben wird, mit der Kennzeichnung **Editor's Pick** frei zugänglich (open-access) veröffentlicht. Die Zweitveröffentlichung des Artikels im Rahmen dieser kumulativen Dissertation erfolgt im Einklang mit der **Creative-Commons-Lizenz CC BY 4.0**, unter welcher die Erstveröffentlichung stattfand.

##### **Ziele der Forschungsarbeit:**

- 3D-Modellierung der Trajektorien der energetischen Teilchen in einem breiten Ionenstrahl als ortsfeste und zeitlich invariante Teilchenströme sowie der resultierenden Erosion des Targets.
- Bestimmung der freien Modellparameter anhand von experimentell ermittelten Erosionsverteilungen (Kapitel 3.1) mit einem Optimierungsalgorithmus.

##### **Ergebnisse der Forschungsarbeit:**

- Ein Modell bestehend aus sieben Parametern, mit dem die experimentell ermittelten Erosionsverteilungen qualitativ reproduziert werden, wurde aufgestellt.
- Die experimentell ermittelte Erosionsrate eines Siliziumtargets konnte auch quantitativ modelliert werden, ohne die Genauigkeitsgrenzen der zugrundeliegenden semiempirischen Modelle für die Beschreibung der integralen Zerstäubungsausbeute zu überschreiten.
- Die Genauigkeit des aufgestellten Modells wird für die darauf aufbauende Modellierung der Sekundärteilchen als hinreichend gut angenommen.

# Target erosion process during broad ion beam sputtering using 3D modeling of ion trajectories

Cite as: AIP Advances 12, 045123 (2022); doi: 10.1063/5.0090398

Submitted: 6 March 2022 • Accepted: 25 March 2022 •

Published Online: 20 April 2022



Wjatscheslaw Sakiew,<sup>1,a)</sup>  Eileen Klocke,<sup>1</sup> and Detlev Ristau<sup>2,3,4</sup>

## AFFILIATIONS

<sup>1</sup>Cutting Edge Coatings GmbH, Hollerithallee 18, 30419 Hannover, Germany

<sup>2</sup>Laser Zentrum Hannover e.V., Hollerithallee 8, 30419 Hannover, Germany

<sup>3</sup>Leibniz University Hannover, Institute of Quantum Optics, Callinstraße 36, 30167 Hannover, Germany

<sup>4</sup>Cluster of Excellence PhoenixD (Photonics, Optics, and Engineering–Innovation Across Disciplines), Leibniz University Hannover, Hannover, Germany

<sup>a)</sup>Author to whom correspondence should be addressed: [w.sakiew@gmail.com](mailto:w.sakiew@gmail.com)

## ABSTRACT

Understanding the distribution of particles sputtered from a target requires an appreciation of how ions impinge on the target. In pursuit of this goal, a fully three-dimensional model of the ion trajectories in a broad ion beam, assuming full space charge compensation, Gaussian emission characteristics of the beamlets, and beamlet deflection, was constructed. The modeled ion trajectories were used to simulate target erosion, enabling a comparison between the modeled erosion and the experimental erosion. The focus was on Ar and Xe ion species at ion energies in the range of 1.4–1.9 keV and on target materials, Si, Ta, and SiO<sub>2</sub>. Conclusions were drawn on the erosion process, the potential radial inhomogeneity of the plasma in the discharge chamber of the ion source, and on the opening angle of the emission characteristics of the beamlets. For the investigated process and an applied target tilt angle of 55°, the model verified that material-specific and angle-dependent ion–solid interaction mechanisms at the atomic level played only a minor role in the target’s macroscopic surface modification in the context of the qualitative distribution of the erosion profile. In contrast, the applied sputtering geometry played a significant role.

© 2022 Author(s). All article content, except where otherwise noted, is licensed under a Creative Commons Attribution (CC BY) license (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>). <https://doi.org/10.1063/5.0090398>

## I. INTRODUCTION

Ion beam sputter deposition (IBSD) is a well-established coating technology in optical thin film production. The achievable quality parameters have been well-documented.<sup>1,2</sup> The most prominent applications are coatings for gravitational wave detectors,<sup>3–5</sup> ring laser gyroscopes,<sup>6</sup> telecommunications,<sup>7</sup> ultra-short pulses,<sup>8</sup> and high-power lasers.<sup>9</sup> Ion beam sputtering (IBS) coatings are also well suited for space applications.<sup>10</sup> Over recent decades, IBSD has been continuously improved,<sup>11</sup> new concepts have been investigated,<sup>12–15</sup> and its underlying physical mechanisms have been studied systematically.<sup>16–18</sup> However, for an industrial-scale process, a detailed understanding of the distribution of the particles involved is not yet available. Furthermore, productivity parameters (deposition rate and size of the uniform deposition area) and economic factors (target material utilization and collection efficiency) have received little attention. The achievable uniform deposition areas are still smaller than 1 m in diameter.<sup>19,20</sup> However, it is expected that

larger coated areas with good IBSD quality levels will be required for future applications, for example, meter-sized optical coatings for astronomy, space applications, and high-power laser optics for large optical systems.<sup>9</sup>

A key element in IBS is the ion beam, which consists predominantly of primary particles, by which target atoms (secondary particles) are sputtered from a target surface. The removal of atoms by energetic ions is equivalent to an erosion process. For industrial production purposes, a low-energy (<2 keV) broad ion beam is usually applied, which creates a broad erosion profile on a target.<sup>21</sup> In this case, it is insufficient to approximate the sputtering geometry as a single, common point of origin of all sputtered particles.<sup>19</sup> Thus, the study of erosion profiles provides an improved understanding of the distribution of ions impinging on the target, and conclusions can be drawn regarding their trajectories. Furthermore, secondary particles can only be qualitatively and quantitatively modeled by knowing the incident primary particle count as a function of the incident polar and azimuth angles.

There are different sensors available to characterize an ion beam *in situ* and spatially resolved.<sup>22–24</sup> However, these require numerous assumptions when reconstructing the trajectories of the primary particles. A particular challenge is, for instance, the correct estimation of the cross sections for the so-called charge-exchange collisions (CEXs), through which the amount of charge transported by the ion beam decreases (addressed in Sec. III D). In addition, an extrapolation of trajectories from the sensor's measuring plane to the target plane is necessary. The latter point is removed if target erosion profiles are used to model the ion trajectories. For magnetron sputtering (MS) and ion beam figuring (IBF) processes, erosion profile investigations have been used for decades.

This study numerically calculates target erosion profiles using a fully 3D model of ion trajectories and compares them with experimentally determined erosion profiles (experimental data from Ref. 21 are used). The applied 3D model was initially inspired by Korzec *et al.*,<sup>25</sup> Tilsch *et al.*,<sup>26</sup> Tilsch,<sup>27</sup> Tartz *et al.*,<sup>28</sup> Ness *et al.*,<sup>29</sup> and Rubin *et al.*<sup>30</sup> They modeled the ion current distribution in the target plane (or the broad ion beam itself) directly, or in the more general sense as a superposition of many separate individual ion channels (referred to as “beamlets”), which form an ion optic.

The main question relates to whether a 3D broad ion beam model can describe an erosion profile using the following main assumptions: The first assumption (A1) is that each beamlet within a multi-beamlet ion optic has Gaussian emission characteristics. The second assumption (A2), relating to the propagation properties of the ion beam, is that all primary particles have linear trajectories, which is equivalent to full space charge compensation in the propagation volume of the ion beam (addressed in detail in Sec. III D). To the knowledge of the authors, A2 is not yet confirmed by the IBSD literature. Finally, the third assumption (A3) is that the plasma properties in the discharge vessel of the ion source may affect the emission characteristics of the beamlets both quantitatively (quantity of emitted ions) and qualitatively (the direction in which the whole emission characteristic of a beamlet is tilted). A1 remains unaffected by A3.

The goal is to reproduce erosion profiles using a 3D model with only the most necessary parameters to establish the ion distribution on the target surface. This information will help to elucidate IBSD, IBF, and other ion beam processes. It is not the aim of this paper to model ion sources in great detail—for this, models already exist, such as those in Refs. 31–34, in the context of ion thrusters. Hence, in this study, the parameters of the applied 3D model are treated as fitting parameters, and subsequently, an optimization algorithm is used to fit these to experimentally determined erosion profiles.

An essential assumption is that the erosion depth defines the number of sputtered particles per unit time at a specific position on the target. Furthermore, a macroscopically and microscopically flat target is assumed. Several effects are not considered: ion-induced target surface modification on the micrometer and nanometer scale (roughening, smoothing, and nanopattern formation), the influence of the target surface roughness on the sputtering yield,<sup>35–37</sup> and target surface composition modification (implantation of primary particles).<sup>38,39</sup> Ignoring the target surface morphology can be critical when calculating the sputtering yield. On the one hand, simulations using tungsten as an example show reductions of the sputtering yield to 25% compared to a planar

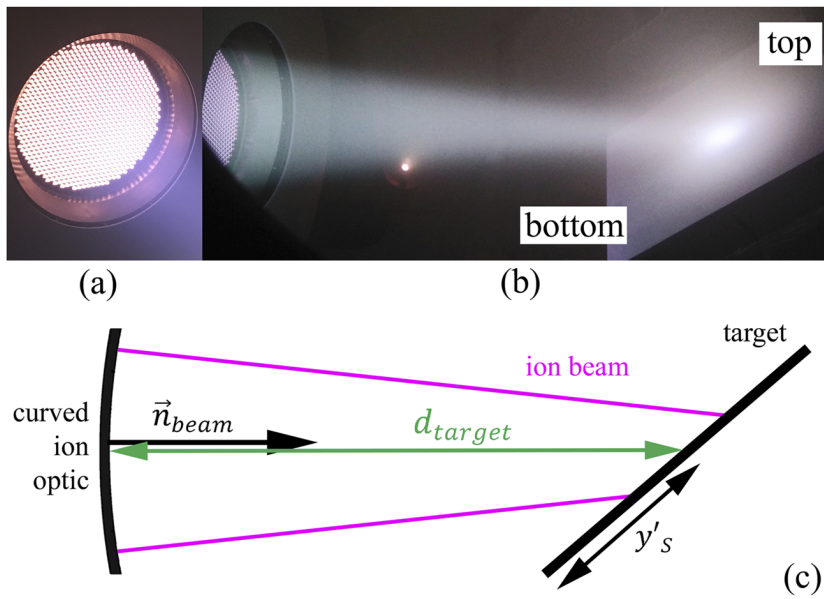
surface depending on the surface morphologies.<sup>36</sup> On the other hand, from practical experience, the coating rate in IBSD, which depends directly but not only on the sputtering yield, tends to drift in the single-digit percentage range over a target's useful life in an IBSD process.

Target poisoning,<sup>40–43</sup> which is difficult to examine experimentally and is often observed in the competing coating technology reactive MS (Ref. 44), may also be relevant in reactive IBSD. Here, the sputtering process may be affected by the formation of a surface compound. For example, an IBS Ti target surface in the presence of O<sub>2</sub> is “almost fully oxidized” (Ref. 38). In addition, experimental results suggest a stronger target poisoning of Ti targets when compared to Ta targets.<sup>45</sup> One reason for this may be that oxide formation on the surface of a metallic target in a reactive process, in which O atoms are continuously added to the target surface, results in slower erosion of the target. However, such a view is not universally valid. The key book “Sputtering by Particle Bombardment II” states that “the sputtering yields of oxides are in most cases similar to or even higher than those of the corresponding metals” (Ref. 46). For this reason, and due to a lack of experimental data, target poisoning is not considered in the modeling in this paper.

## II. EXPERIMENTAL

This section presents, for the readers' convenience, some of the experimental boundary conditions in Ref. 21 relevant to the model. Figure 1(c) shows the geometry of the study's IBS process in the industrial-scale coating machine, NAVIGATOR 1100, manufactured by Cutting Edge Coatings GmbH (CEC). The broad ion beam is generated using an inductively coupled radio frequency (RF) ion source RIM-20. It has a spherical curved, three-grid multi-aperture extraction system, with an open diameter of  $D_{\text{optic}} = 160$  mm (corresponding to the initial size of the ion beam<sup>47</sup>) and a radius of curvature of  $R_{\text{optic}} = 400$  mm. The ions are extracted from the plasma and accelerated through 847 identical ion channels ( $N_{\text{beamlets}} = 847$ ), which are distributed according to a quasi-hexagonal pattern, as shown in Fig. 1(a). This generates an almost rotationally symmetrical beam with a laterally inhomogeneous profile, which changes along the direction of propagation. The ion energies considered are in the range of 1.4–1.9 keV. To compensate for the space charge, a radio frequency neutralizer (RFN) operates simultaneously with the RIM-20 as a filament-less electron source [Fig. 1(b)]. The electron current emitted by the neutralizer is higher than the ion beam current by a factor of 1.6–2.5. With a keeper voltage of about 30 V, the electron energy is much lower than the energy of the ions in the ion beam. The process atmosphere is predominantly composed of Ar and Xe (the working gases of the ion sources), reactive O<sub>2</sub> gas, and different residual gases. The corresponding flow rates are given in Ref. 21. During IBSD, the working pressure is in the range of  $2\text{--}9 \times 10^{-2}$  Pa, depending on the applied process parameters and the position of measurement in the process chamber.

The dimensions of the initially flat targets are  $200 \times 250 \times 6$  mm<sup>3</sup>. The targets are tilted at a target tilt angle (TTA) of 55°. TTA is measured by the target surface normal relative to the ion beam symmetry axis  $\vec{n}_{\text{beam}}$ . The direction of propagation of the broad ion beam is  $\vec{n}_{\text{beam}}$  and hence represents the beam vector. Two target distances  $d_{\text{target}}$  are measured along  $\vec{n}_{\text{beam}}$ ,  $d_{\text{target}} = 370$  mm,



**FIG. 1.** IBS process in the industrial-scale coating machine NAVIGATOR 1100. (a) Front view of the operating multi-aperture ion optic of the RF ion source RIM-20 and (b) side view of the broad ion beam during sputter erosion of a metallic target. The length of the target (bottom to top) is 250 mm. (c) Beam vector  $\vec{n}_{beam}$ , the distance  $d_{target}$  between the ion optic and the target, and the intersection coordinate  $y'_s$  of  $\vec{n}_{beam}$  to the target surface.

and  $d_{target} = 550$  mm. Thus, the targets are located near the geometrical focal point of the ion optic or behind it when  $d_{target} > R_{optic}$ .  $y'_s$  is the intersection coordinate of  $\vec{n}_{beam}$  to the target surface.

Figure 2(a) shows a typical erosion profile, which has a mirror-symmetrical and quasi-elliptical shape. A 2D erosion profile  $z'_{APPROX}(x', y')$  is found [Fig. 2(b)] using a mechanical profilometer and a model function approximation.<sup>21</sup> The following characteristic values of the profile  $z'_{APPROX}(x', y')$  can then be found:  $x'_0$  and  $y'_0$  (coordinates of maximum erosion depth),  $z'_{min}$  (maximum erosion depth),  $\Delta x'_{FWHM}$  and  $\Delta y'_{FWHM}$  [full width at half maximum (FWHM) in the  $x'$ -direction at the  $y'_0$ -position and in the  $y'$ -direction at the  $x'_0$ -position], and  $V$  (eroded volume). A prime is used to

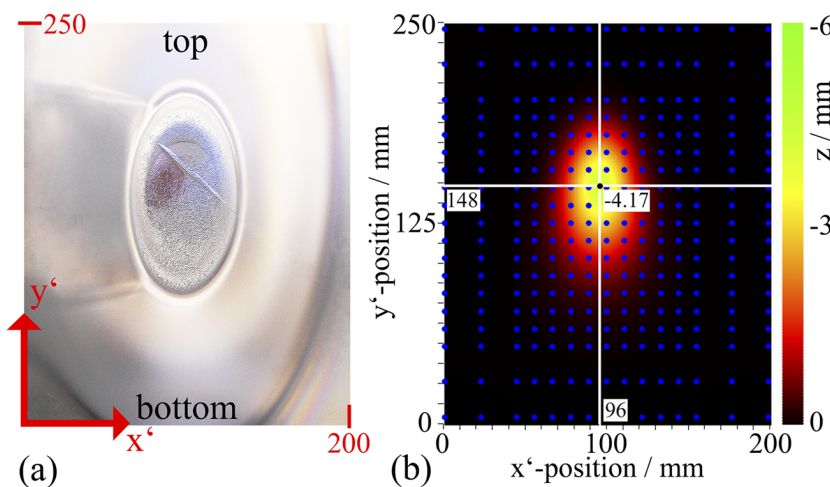
distinguish the target coordinate system [Fig. 2(a)] from the global coordinate system introduced in Sec. III.

Initially, Ta and Si target materials are considered, with SiO<sub>2</sub> considered later (Sec. V). More details on the experimental data and corresponding process parameters are presented in Ref. 21.

### III. EROSION PROFILE MODELING

#### A. Plume component assumptions

Plumes of inductively coupled RF ion sources, used in the study, contain different components: (i) fast ions extracted from the plasma and accelerated by the beamlets (primary particles). The



**FIG. 2.** (a) Sputter-eroded Si target, 1.4 keV Xe ions at TTA = 55° and  $d_{target} = 370$  mm. (b) Measured and subsequently approximated 2D erosion profile  $z'_{APPROX}(x', y')$  for the same target. The characteristic values are:  $x'_0 = 96$  mm,  $y'_0 = 148$  mm,  $z'_{min} = -4.17$  mm,  $\Delta x'_{FWHM} = 35$  mm,  $\Delta y'_{FWHM} = 61$  mm, and  $V = 10\,644$  mm<sup>3</sup>. Partially reproduced with permission from Ref. 21.



present investigation focuses only on these fast ions. Other plume components are not considered: the (ii) non-ionized (neutral) working gas (flowing from the discharge chamber of the ion source downstream across the multi-aperture extraction system into the process chamber) is ignored.<sup>48,49</sup> Additionally, (iii) particles from the ion optic material, which may contribute to the plume through sputtering by accelerated particles (grid erosion<sup>47,50</sup>), are discounted. As a result, and by neglecting other gases involved in the process, the process atmosphere between the ion optic and the target is assumed to be uniform in composition and density.

Furthermore, in reactive IBSD processes, (iv) other working gases from the process chamber, such as O<sub>2</sub>, may flow upstream across the ion optic into the discharge chamber, eventually becoming converted to a plasma and merging into the ion beam. The beam is now made up of different ion species (multi-ion species beam), and the modeling of the sputtering yield  $Y$  (Sec. III B) and erosion depths would be falsified. However, studies on beam compositions in a reactive IBS process are unknown to the authors, and therefore, this upstream flow of working gases is not considered. Studies on beam compositions produced by the RIT-10 and RIT-22 ion thrusters<sup>51–53</sup>—ion sources on which the RIM-20 is based and in which only an Xe propellant is used—have revealed no measurable beam pollution and very low impurities from background gases (H<sub>2</sub>O<sup>+</sup> and N<sub>2</sub><sup>+</sup>). Furthermore, the content of doubly or multiply charged Xe ions has been found to be 1% or less. Thus, only singly charged ions of a single species are considered. In addition, the velocities of the single charged ions are assumed to be identical.<sup>52</sup>

## B. Superposition of ion trajectories

In the context of physical sputtering, the sputtering yield  $Y$  is the mean number of atoms removed from the solid surface per incident projectile.<sup>54</sup> Thus, knowing  $Y$  and the number of impinging primary particles per unit time  $j_{\text{PRIM}}$  at a specific position  $(x', y')$  on

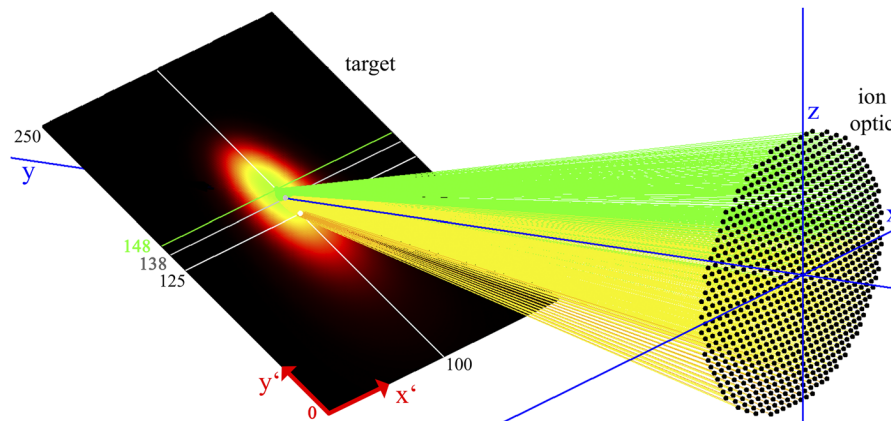
a target enables the calculation of the mean number of sputtered particles per unit time  $j_{\text{SEC}}$  at that position,

$$j_{\text{SEC}}(x', y', \alpha) = j_{\text{PRIM}}(x', y', \alpha) \cdot Y(\alpha), \quad (1)$$

where  $\alpha$  is the polar angle of the impinging primary particles expressed in a global coordinate system (see Fig. 3). Furthermore, the  $z'$ -coordinate (erosion depth) is excluded, which reveals an important assumption in this model: the target surface is assumed to be flat for the calculation of  $\alpha$  (addressed in Sec. III E).

In Eq. (1), three models are combined:  $Y(\alpha = 0)$  is calculated using a revised version<sup>55</sup> of the widely used Bohdansky formula.<sup>56</sup> For the conversion of  $Y(\alpha = 0)$  to sputtering yields  $Y(\alpha > 0)$  at oblique incidence, the Yamamura model<sup>57</sup> is applied; finally,  $j_{\text{PRIM}}(x', y', \alpha)$  is derived from a fully 3D model of the ion trajectories inspired from earlier studies.<sup>25–30</sup>

Therefore, the 2D distribution equation [Eq. (1)] corresponds to a modeled erosion profile if one assumes a point source for the primary particles [one  $\alpha$  for each position  $(x', y')$ ]. For the far-field region and in the context of ion thrusters (a few thruster radii<sup>58</sup> or at least eight thruster radii away<sup>59</sup> downstream from the thruster exhaust area), the current density profile of a thruster plume can be described, assuming that the ion trajectories are straight lines that appear to originate from a point source.<sup>48,59</sup> This concept is also applicable in the modeling of removal functions in IBF processes.<sup>60</sup> However, in the present study, the focus is on the near-field region since  $d_{\text{target}}/(D_{\text{optic}}/2) \approx 4.6$  (or 6.8 in the case of the larger  $d_{\text{target}}$  value). Thus, the assumption of a point source is not tenable. In other words, each of the  $N_{\text{beamlets}} = 847$  beamlets has to be modeled as an individual point source with its own emission characteristics  $j_n(\theta)$ , where  $n$  counts through the beamlets and  $\theta$  is the emission angle. As a result, primary particles from several beamlets may impinge on each position  $(x', y')$ , depending on the divergence angles of  $j_n(\theta)$ . Hence, the ion current distribution in the target plane is assumed to be a superposition of contributions from separate



**FIG. 3.** 3D plot of the numerical representation of the model and the process with  $d_{\text{target}} = 370$  mm. Both coordinate systems are shown. The coordinate system of the target (with a prime) has its origin in the lower-left corner of the target. The global coordinate system (without a prime) has its origin in the center of the ion optic.  $\bar{n}_{\text{beam}}$  corresponds to the  $y$ -axis. The point of intersection between the beam vector and target is at  $y'_0 = 138$  mm. All  $N_{\text{beamlets}} = 847$  beamlets with coordinates  $(x_n, y_n, z_n)$  are illustrated by black dots, and their symmetry axes are linearly lengthened. The identical erosion profile shown in Fig. 2(b) is plotted with  $y'_0 = 148$  mm. The different colors of the lengthened axes represent different propagation lengths. The maximum difference in the lengths is only 6% because the target is positioned near the geometric focal point of the ion optic.

individual beamlets. Thus, based on plausibility and partially following Refs. 26, 27, and 30,  $j_{SEC}(x', y')$  can be expressed as a superposition as follows:

$$j_{SEC}(x', y') = \sum_{n=1}^{N_{beamlets}} j_n(\theta) \cdot \frac{\cos(\alpha)}{r^2} \cdot \exp\left(\frac{-r}{r_{mean}}\right) \cdot Y(\alpha), \quad (2)$$

where  $\theta$  is the polar emission angle relative to the symmetry axis  $\vec{n}_{beamlet,n}$  of the corresponding beamlet. Additionally,  $\alpha$  is the angle of incidence of a primary particle impinging on the target, and  $r$  is the propagation length between a specific position  $(x', y')$  on the target and the corresponding beamlet center positions  $(x_n, y_n, z_n)$  on the ion optic. The coordinates  $(x_n, y_n, z_n)$  are illustrated by black dots in Fig. 3.

For simplification purposes, the left-hand side of Eq. (2) is formulated in the coordinate system of the target, as shown in Fig. 2(a), and the right-hand side is formulated in a global coordinate system, as shown in Fig. 3. The basic coordinate transformations are not explained here. The beamlet center positions  $(x_n, y_n, z_n)$  are obtained from the 3D manufacturing data of the applied multi-aperture extraction system.

Equation (2) is strongly influenced by the process geometry. A change in alignment between the ion optic and the target ( $d_{target}$ , TTA, target geometry) or changes in the ion optic itself ( $R_{optic}$ ,  $D_{optic}$ , beamlet pattern) influence  $\theta$ ,  $\alpha$ , and  $r$ .

In Eq. (2), the number of emitted primary particles per unit time is given by the emission characteristics  $j_n(\theta)$ . The emitted particle currents are transformed into the impinging particle currents through two further assumptions: the photometric law [the second term on the right-hand side in Eq. (2)] and a reduction (third term), which, according to the definition of the mean free path length, means that approximately two-thirds of the primary particles participate in scattering after propagating a mean free path length  $r_{mean}$ . For further simplification, it is arranged that scattered particles do not reach the target due to trajectory changes or impinge on the target at positions outside the main erosion zone. In this context, it needs to be added that the mean free path lengths used in this study are larger than the propagation lengths of the ions, which are approximately  $d_{target}$ . Accordingly, significantly less than two-thirds of the particles are removed from the simulated ion beam (Sec. III G). Finally,  $Y(\alpha)$  yields the number of sputtered particles per unit time based on semiempirical models<sup>55,57</sup> and represents the erosion depth at the corresponding target position.

Using the photometric law, the target area at position  $(x', y')$ , where erosion is calculated, is assumed to be infinitesimally small. Thus, Eq. (2) is applicable only for qualitative erosion profile modeling. In the present 3D numerical representation of the process, as shown in Fig. 3, the target is divided into  $200 \times 250$  identical elements. Thus, in the case of a qualitative calculation, the maximum number of different trajectories amounts to  $N_{traject} = 200 \times 250 \times N_{beamlets} = 42\,350\,000$ .

A quantitative calculation, calculating, for example, the erosion rate, requires more computational effort. Each emission characteristic  $j_n(\theta)$  must be divided into individual solid angles  $d\sigma$  and assigned correctly to the corresponding surface elements  $dA$  on the target. The surface integral to be solved replaces the factor  $\cos(\alpha)/r^2$  in Eq.

(2). The present study applied a qualitative calculation for the optimization algorithm, i.e., fitting the model parameters to an experimentally determined erosion profile. The fitted model parameters were finally used to determine the erosion rate via the additional and time-consuming numerical solving of surface integrals.

### C. Beamlet emission characteristics

Figure 3 shows a 3D plot of the numerical representation of the process with  $d_{target} = 370$  mm. The beamlet symmetry axes,  $\vec{n}_{beamlet,n}$ , are linearly lengthened to the target for demonstration purposes. This corresponds to a fictitious case, in which the beamlets emit only in the direction of their symmetry axis  $\vec{n}_{beamlet,n}$ . As a result, the experimentally determined erosion profile area [this profile is identical to the profile in Fig. 2(b)] is larger than the impinging ion distribution area. Therefore: (i) the ions are emitted at beamlet emission angles  $\theta > 0$ ; (ii) widening of the broad ion beam during propagation cannot be excluded. Consequently, as mentioned in Sec. I, the beamlet emission characteristics  $j_n(\theta)$  are assumed to be Gaussian, possessing the desired property  $j_n(\theta \geq 0) > 0$ ,

$$j_n(\theta) = \frac{1}{b} \cdot \exp\left(\frac{-\theta^2}{w}\right),$$

$$b = 2\pi \cdot \int_0^{\theta_{max}} \exp\left(\frac{-\theta^2}{w}\right) \cdot \sin \theta d\theta, \quad (3)$$

$$w = -\theta_{max}^2 / \ln(p),$$

where  $n$  counts through the beamlets,  $b$  is a normalization factor, and  $w$  is a scaling factor by which the fraction of emitted particles at the maximum output angle  $\theta_{max}$  is reduced to parameter  $p$  ( $0 < p < 1$ ). It is determined that at the polar emission angles  $\theta > \theta_{max}$ , no particles are emitted. The opening angle of the total emission cone is  $2 \cdot \theta_{max}$ ,  $j_n(\theta)$  are axisymmetric functions, and  $\theta = 0$  corresponds to the symmetry axis  $\vec{n}_{beamlet,n}$  of the  $n$ -th beamlet. The assumption of a Gaussian function is consistent with Refs. 25–27. An energy dispersion with respect to  $\theta$  does not occur, as covered in Sec. III A.

According to the literature on inductively coupled RF ion sources, it is common for radial inhomogeneities of the plasma to arise in the ion source discharge chamber. The locally changing plasma sheath properties may lead to different beamlet outputs depending on their position on the ion optic.<sup>25,33,49,61,62</sup> For instance, Tartz *et al.* stated that (for corresponding conditions), “the broad-beam characteristics cannot be obtained from simple average beamlet consideration” (Ref. 61). However, it is not known if, or how strongly, the beamlet properties vary under IBSD process conditions. There may be both quantitative and qualitative variations in the emission characteristics of the beamlets. One consequence, as the first option, could be a decreasing beamlet output current toward the edge of the ion optic,<sup>62</sup> which corresponds to a quantitative change in  $j_n(\theta)$ . In this case, all beamlets would continue to emit identically in qualitative terms. Such observations were not made in Ref. 45. However, the experiments in Ref. 45 were not directly aimed at addressing this question. The following approach is therefore used:

$$\begin{aligned}
 j_n(\theta, \vartheta_n) &= j_n(\theta) \cdot j_n(\vartheta_n), \\
 j_n(\vartheta_n) &= j_0 \cdot \left(1 - \frac{(\vartheta_n)^l}{(\vartheta_{\max})^l}\right), \\
 j_0 &= \left(\frac{I_{\text{beam}}}{q}\right) \cdot \left\{ \sum_{m=1}^{N_{\text{beamlets}}} \left(1 - \frac{(\vartheta_m)^l}{(\vartheta_{\max})^l}\right) \right\}^{-1},
 \end{aligned}
 \tag{4}$$

where  $j_n(\theta)$  is the same function as that in Eq. (3) and  $q$  is the elementary charge.  $\vartheta_n$  describes the angle between the ion beam symmetry axis  $\vec{n}_{\text{beam}}$  and the  $n$ -th beamlet's symmetry axis  $\vec{n}_{\text{beamlet},n}$  at the position  $(x_n, y_n, z_n)$  of the  $n$ -th beamlet on the ion optic. The beamlet in the center of the ion optic corresponds to  $\vartheta_n = 0$ . At angles  $\vartheta_n > 0$ , the extracted current of a beamlet reduces due to parameters  $l$  and  $\vartheta_{\max}$ . In Eq. (4),  $j_0$  is a normalization factor ensuring that the total output of all  $N_{\text{beamlets}}$  beamlets is identical to the ion beam current  $I_{\text{beam}}$ , irrespective of the individual outputs of the beamlets.

Another consequence of radial plasma inhomogeneity, as a second option, is a possible distortion of the beam, especially caused by beamlets at the outer parts of the ion optic. The distortion results from a deflection of the initial ion trajectories of the beamlets to greater off-axis angles (facing away from  $\vec{n}_{\text{beam}}$ ), as described in Ref. 25. In the present study, this phenomenon is considered numerically by a rotation of the symmetry axes  $\vec{n}_{\text{beamlet},n}$ , without changing the initial shape of  $j_n(\theta, \vartheta_n)$  with respect to  $\vec{n}_{\text{beamlet},n}$ . The additional deflection angle at the ion optic's center is assumed to be zero and increases linearly toward the edge of the ion optic, up to a maximum value of  $\theta_{\text{deflect}}$ . Figure 4 shows this schematically.

A further conceivable consequence of radial plasma inhomogeneity, as a third option, is an increase or decrease in the divergence of the emission characteristics toward the edge of the ion optic, i.e.,  $\theta_{\max} = \theta_{\max}(\vartheta_n)$ . In Ref. 62, for instance, a near-field diagnostic on the RIT-10 ion thruster shows a decrease in the output current and a reduction in the beamlet's emission cones toward the edge of the ion optic. However, this third option is not implemented in the model yet and is therefore not considered in the present study.

#### D. Trajectory type

In the present approach, the initial positions of the primary particles correspond to the beamlet center positions  $(x_n, y_n, z_n)$ . Their final impingement position on the target surface depends on

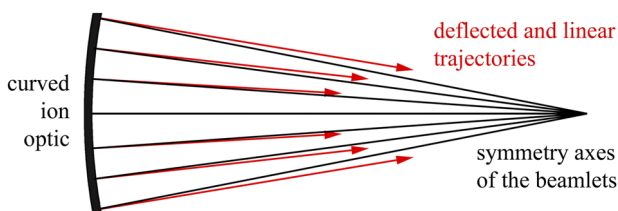


FIG. 4. Deflection of the ion trajectories to greater off-axis angles.

the broad ion beam propagation properties. Therefore, the trajectory type, linear or nonlinear, must be considered. The question of the so-called space charge compensation arises. It is necessary to state that the electrical charge compensation is not the same as the space charge compensation. The electrons must merge spatially with ions in the ion beam to contribute to the space charge compensation. Additionally, each trajectory represents a stationary and time-independent particle current.

In the complete absence of space charge neutralization, beam spreading and even beam stalling are expected.<sup>63</sup> Beam spreading involves the defocusing of the beam by a radial electric field (space charge blow-up), which results in nonlinear trajectories. Beam stalling prevents the formation of an ion beam. Thus, the transport of an intense charged particle beam is impossible without space charge neutralization.<sup>63-67</sup> Conversely, if full space charge compensation is assumed, then linear trajectories of the ions can be assumed (e.g., Ref. 28). According to Fig. 1(b) and the typically observed erosion profiles in IBSD [Fig. 2(a)], beam stalling can be excluded. Moreover, the visual impression in Fig. 1(b) suggests that the potential nonlinearity is very low or even non-existent. Nevertheless, for IBSD processes, research has not yet determined whether the space charge is fully or partially compensated.

In laboratory environments (including our study's process chamber), a passive production of space charge neutralizing particles with opposite charges occurs.<sup>63,68</sup> Two main mechanisms are responsible: (A) ionization of ambient gas atoms due to collisions with beam particles in the transport space and (B) emission of secondary electrons through sputtering of beam targets. Both processes are referred to as autocompensation. Additionally, in all experiments considered for the present investigation, an RFN was employed as an external electron source and as an additional channel for emerging electrons (C).<sup>21</sup> However, mechanisms (A)–(C) contribute to space charge neutralization to varying degrees.

In the low-energy range used in the present study, mechanism (A) is not effective.<sup>64</sup> Nevertheless, as a result of the corresponding cross sections, (B1) elastic collisions and (B2) charge-exchange collisions (CEX)<sup>28,48,69</sup> between fast ions and slow neutrals (process atmosphere) occur. Both mechanisms (B1) and (B2) are intermediate steps in mechanism (B). Elastic collisions directly dissipate the broad ion beam, resulting in trajectory changes. After collision, beam particles may generate secondary electrons at the chamber walls through sputtering. In turn, secondary electrons are attracted by the space charge of the ion beam and can contribute to neutralization of the space charge. CEX, in which fast neutral beam particles and slow ionized ambient gas atoms are produced, is one of the predominant effects in the near-field region of a plume. Hence, the amount of charge transported by the ion beam decreases with increasing propagation length (e.g., Ref. 28). With increasing ion beam propagation length, CEX transforms nonlinear trajectories into linear ones. During CEX, electrons are acquired in a two-stage process, in a similar manner to elastic collisions.<sup>69</sup> In addition to being generated via mechanisms (B1) and (B2), secondary electrons are also generated via primary particles in mechanism (B3), target material sputtering. According to the literature (e.g., Refs. 64 and 70), secondary electrons themselves have a lower density compared to that of a beam and thus cannot provide sufficient space charge neutralization in the first stage. In Ref. 70, for instance, the total electron yields (secondary electrons per incident ion) upon the



impact of single charged ions Ar, Kr, and Xe on Si at an energy of 1 keV are documented with values of 0.04 or less. However, trapped within the beam, electrons may enable further ionization of the ambient gas within the meaning of autocompensation.

With regard to the injection of electrons from an external source (C), the electron energy is important. At high energies, the electron beam passes through the broad ion beam<sup>23</sup> without compensating for the space charge. This mixing process is not obvious because of the difference between the dynamics of the electrons and the dynamics of the ions. In Ref. 71, for instance, a non-uniform distribution and a bouncing motion of electrons in the beam region were reported.

In summary, different mechanisms influence the propagation properties of an ion beam, but their exact contributions under IBSD conditions are not fully known. However, it is assumed that the space charge compensation in the present case is sufficiently high and that the propagation lengths in relation to it are sufficiently small for broad ion beam modeling with linear trajectories. A comparable study in which nonlinear trajectories are assumed is not available to the authors' knowledge. One challenge in such a study would be determining the composition of the process atmosphere in the entire propagation volume of the broad ion beam, i.e., position-dependent, and calculating the interaction cross sections between all particles. Therefore, linear trajectories are assumed in this study, and the extent is investigated to which the experimental data<sup>21</sup> can be reproduced with this assumption.

## E. 2D erosion profile calculation

To model a 2D erosion profile  $z'_{MODEL}(x', y')$ , Eqs. (2)–(4) must be calculated for each position  $(x', y')$  on the target.

First, a normalized modeled erosion profile is considered as follows:

$$\overline{z'_{MODEL}}(x', y') = -\frac{j_{SEC}(x', y')}{\max[j_{SEC}(x', y')]}, \quad (5)$$

where the negative sign indicates an erosion process. Then,  $\overline{z'_{MODEL}}(x', y')$  is compared with experimentally determined erosion profiles  $z'_{APPROX}(x', y')$  as described in Sec. II.

In summary, the seven model parameters are: the mean free path  $r_{mean}$  [Eq. (2)]; the two parameters that describe a beamlet emission qualitatively,  $p$  and  $\theta_{max}$  [Eq. (3)]; and the parameters  $l$  and  $\vartheta_{max}$  [Eq. (4)], which describe a beamlet output quantitatively, depending on its position on the spherical curved ion optic. Additionally,  $y'_S$  allows a tilt of  $\vec{n}_{beam}$  in the  $y'$ -direction of up to  $\pm 0.6^\circ$  (Sec. II and Ref. 21), and  $\theta_{deflect}$  models a potential beamlet deflection (Sec. III C). The application of an optimization algorithm is an improvement on what has been applied in previous key investigations (Refs. 25–30).

As assumed in Sec. I and mentioned in Sec. III B, the target is assumed to be flat for the calculation of the geometrical parameters  $\alpha$  and  $r$ . Thus, Eqs. (1), (2), and (5) represent the beginning of the erosion process ( $z'_{min} \approx 0$ ). In contrast, an experimentally determined erosion profile requires a measurable erosion depth ( $|z'_{min}| > 0$ ). Consequently, the qualitative distribution of an experimental erosion profile should be fully, or at least nearly, independent of  $z'_{min}$ ; such a result is documented in Ref. 21.

## F. Impact of $\theta_{max}$ on a modeled erosion profile

To obtain an initial impression of the 3D model, only one selected parameter,  $\theta_{max}$ , is varied. At this point, whether or not simulated values for  $\theta_{max}$  are possible or not is ignored. All other parameters are held constant, and their impact on the modeled erosion profile is minimized (Table I, line 1). All beamlets emit identically (qualitatively and quantitatively) in the direction of their particular symmetry axes  $\vec{n}_{beamlet,n}$ . The process geometry is selected to be identical to that of experimentally investigated Ta and Si target erosion processes.<sup>21</sup> For small values of  $\theta_{max}$ , a small modeled erosion area is obtained because  $d_{target}$  is close to the geometric focal point of the ion optic, and beam broadening is not taken into account. For a better interpretation of the values shown below, it should be noted that the opening angle of the total emission cone is  $2 \cdot \theta_{max}$  (Sec. III C). Figures 5(b)–5(d) show the expected strong influence of the beamlet emission characteristics on the modeled erosion profile.

### 1. Position

The coordinate  $y'_0$  of the maximum erosion depth shifts downward toward the bottom of the target with increasing  $\theta_{max}$  [Figs. 5(b) and 5(d)]. The shift occurs despite  $y'_S = 138$  mm (Sec. II and Fig. 3) remaining unchanged. This behavior is assumed to result primarily from the photometric law.

When comparing Ta and Si (1.8 keV Xe ions in both cases), the model shows that the coordinate  $y'_0$  is affected more strongly with large emission characteristics [Fig. 5(d)]. For larger  $\theta_{max}$ , the trajectories of the individual beamlets overlap more strongly, and the distribution of the angles of incidence on the target becomes wider. Accordingly, the impact of material-specific ion–solid interactions on the erosion process and the resulting profile increases.

### 2. Dimensions

The lateral dimensions (characterized by  $\Delta x'_{FWHM}$  and  $\Delta y'_{FWHM}$ ) of the modeled profile increase with increasing  $\theta_{max}$  [Figs. 5(b) and 5(c)]. This behavior is expected because broader beamlet emission characteristics result in a larger erosion area. For both Ta and Si, the model shows linear behavior for  $\Delta x'_{FWHM}$  and  $\Delta y'_{FWHM}$  up to a maximum emission angle of approximately  $\theta_{max} = 12^\circ$  [Fig. 5(c)].

### 3. Shape

Figure 5(b) shows the distribution of the erosion profile along the  $y'$ -direction. At beamlet emission angles  $\theta_{max} \geq 4^\circ$ , the modeled profile is stretched toward the upper target edge (top) and squeezed toward the lower target edge (bottom). In the case of small emission angles  $\theta_{max} \leq 2^\circ$ , the reverse trend is observed. This pattern is thought to be a result of the photometric law.

## G. Impact of $d_{target}$ on a modeled erosion profile

In addition to the emission characteristics of the beamlets, the propagation length of the broad ion beam has a significant influence on the erosion process.<sup>21</sup> Therefore, in this part of the study,  $d_{target}$  is varied, and  $\theta_{max}$  is held constant. A comparison of Figs. 2(b) and 5(b) shows that for values of  $\theta_{max}$  between  $4^\circ$  and  $8^\circ$  an erosion profile is obtained, which corresponds most closely in size to the experimentally obtained profile. Therefore,  $\theta_{max} = 8^\circ$  is chosen. Additionally, the influence of  $r_{mean}$  on the erosion process is examined. The other parameters take the values stated in Sec. III F. All parameters are

**TABLE I.** Overview of the selected and optimized parameters. The mean-squared-error (MSE) measures the agreement between the modeled profile and the experimental profile. Equation (4),  $\vartheta_{\max}$ , and  $l$  are used to find  $\eta$ , yielding the ratio of the beamlet emissions at the edge to those at the center of the ion optic. In lines 5–7,  $r_{\text{mean}}$  is limited to 2000 mm as the smallest acceptable value.

No.	Figures	Selected parameters	Optimized/varied parameters	MSE
1	5	Ta and Si targets, 1.8 keV Xe ions, $d_{\text{target}} = 370$ mm, $y'_S = 138$ mm, $r_{\text{mean}} = 50\,000$ mm, $p = 0.1$ , $\vartheta_{\max} = 100^\circ$ , $l = 10$ , $\theta_{\text{deflect}} = 0$	$\theta_{\max}$ is varied manually in the range $0.5^\circ$ – $16^\circ$	...
2	6	Ta and Si targets, 1.8 keV Xe ions, $y'_S = 138$ mm, $r_{\text{mean}} = 50\,000$ mm, $\theta_{\max} = 8^\circ$ , $p = 0.1$ , $\vartheta_{\max} = 100^\circ$ , $l = 10$ , $\theta_{\text{deflect}} = 0$	$d_{\text{target}}$ is varied manually in the range 25–600 mm	...
3	7(a) and 7(b)	Ta target, 1.8 keV Ar ions, $d_{\text{target}} = 370$ mm, $\theta_{\text{deflect}} = 0$	$y'_S = 147.4$ mm, $r_{\text{mean}} = 3700$ mm, $\theta_{\max} = 6.18^\circ$ , $p = 0.01$ , $\vartheta_{\max} = 16.84^\circ$ , $l = 7.38$ , $\eta = 0.94$	$3.82 \cdot 10^{-2}$
4	7(d) and 7(e)	Si target, 1.4 keV Xe ions, $d_{\text{target}} = 370$ mm, $\theta_{\text{deflect}} = 0$	$y'_S = 148.7$ mm, $r_{\text{mean}} = 2,077$ mm, $\theta_{\max} = 5.73^\circ$ , $p = 0.01$ , $\vartheta_{\max} = 100^\circ$ , $l = 8$ , $\eta = 1.00$	1.05
5	7(g) and 7(h)	SiO <sub>2</sub> target, 1.9 keV Ar ions, $d_{\text{target}} = 550$ mm, $\theta_{\text{deflect}} = 0$	$y'_S = 134.7$ mm, $r_{\text{mean}} = 2000$ mm, $\theta_{\max} = 4.55^\circ$ , $p = 0.20$ , $\vartheta_{\max} = 31.00^\circ$ , $l = 8$ , $\eta = 1.00$	$2.12 \cdot 10^{-3}$
6	7(c)	Ta target, 1.8 keV Ar ions, $d_{\text{target}} = 370$ mm	$y'_S = 145.2$ mm, $r_{\text{mean}} = 2000$ mm, $\theta_{\max} = 3.80^\circ$ , $p = 0.15$ , $\vartheta_{\max} = 15.31^\circ$ , $l = 5.14$ , $\eta = 0.77$ , $\theta_{\text{deflect}} = 1.8^\circ$	$3.49 \cdot 10^{-2}$
7	7(f)	Si target, 1.4 keV Xe ions, $d_{\text{target}} = 370$ mm	$y'_S = 146.4$ mm, $r_{\text{mean}} = 2000$ mm, $\theta_{\max} = 5.40^\circ$ , $p = 0.01$ , $\vartheta_{\max} = 100^\circ$ , $l = 8$ , $\eta = 1.00$ , $\theta_{\text{deflect}} = 1.8^\circ$	$4.22 \cdot 10^{-2}$

summarized in Table I, line 2, and the results are shown in Figs. 6(a)–6(c).  $d_{\text{target}}$  has a strong impact on the modeled erosion profile, with a similar pattern to that produced by  $\theta_{\max}$ .

### 1. Position

$y'_0$  shifts downward toward the bottom of the target with increasing  $d_{\text{target}}$  [Fig. 6(a)], although  $y'_S$  is unchanged.

### 2. Dimensions

If  $d_{\text{target}}$  is larger than  $d_{\text{target}} \approx 300$  mm with the chosen model parameters, then  $\Delta x'_{\text{FWHM}}$  and  $\Delta y'_{\text{FWHM}}$  increase with increasing  $d_{\text{target}}$  [Figs. 6(a) and 6(b)]. Owing to the spherical geometry of the applied ion optic, it is plausible that there are areas where the ion beam converges and diverges. With  $\theta_{\max} = 8^\circ$ , the smallest expansion of the modeled erosion profile occurs at a distance  $d_{\text{target}} \approx 300$  mm, that is, in front of the geometric focal point of the ion optic; the dimensions of the erosion profile are non-zero at this distance. This is the result of the beamlet emission characteristics, merging of trajectories, photometric law, and the angle-dependent sputtering yield. Therefore, the curves in Fig. 6(b) do not directly represent the shape of the broad ion beam.

### 3. Shape

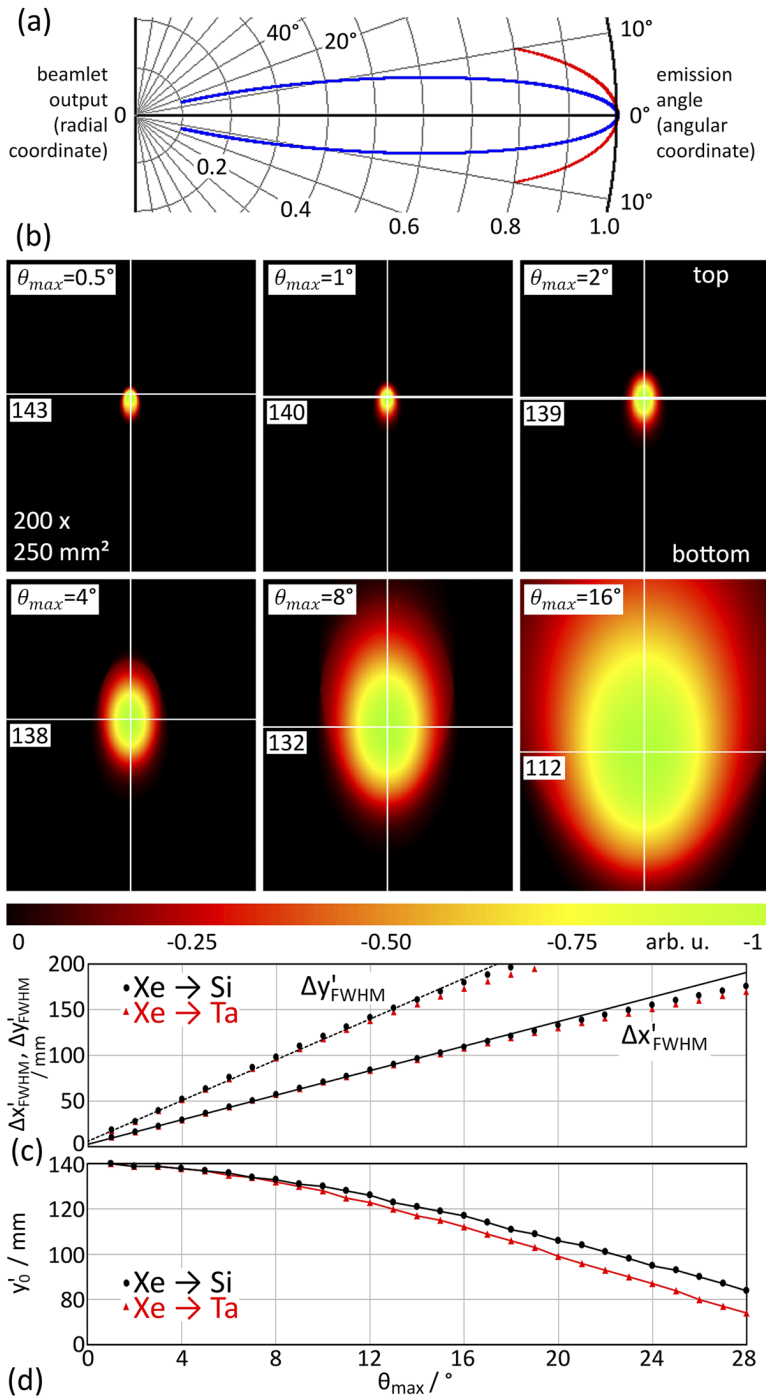
As observed with the variation of  $\theta_{\max}$  in Sec. III F, the modeled erosion profile is initially stretched downward for small values

of  $d_{\text{target}}$  and reverses to an upward stretch as  $d_{\text{target}}$  increases. At the turning point  $d_{\text{target}} \approx 300$  mm, the stretching upward and downward of the profile in the  $y'$ -direction is almost identical. Additionally, the lateral profile dimensions are the smallest. Thus, the following relation applies:  $y'_0 = y'_S$  (not examined further).

### 4. Further aspects

A comparison of the erosion profiles at  $d_{\text{target}} = 25$  and  $d_{\text{target}} = 50$  mm shows that the erosion profiles of the individual beamlets merge somewhere between these distances (for the model parameters used). This observation agrees with that using the NEXT ion engine,<sup>49</sup> for which a distance of 3 cm was found to be sufficient for the individual beamlets to merge completely.

Figure 6(c) shows the influence of  $r_{\text{mean}}$  on the proportion of ions that reach the target without scattering. According to Eq. (2),  $r_{\text{mean}}$  is applied to each trajectory. The model shows that even with an unrealistically high value of  $r_{\text{mean}} = 50\,000$  mm, at a distance of  $d_{\text{target}} = 550$  mm, 10% of the ions would participate in the scattering process and thus possibly not reach the target, yielding a reduction in the erosion rate. In addition, above a certain distance  $d_{\text{target}}$ , an additional loss channel is added. For  $d_{\text{target}} > 340$  mm, ions start to miss the target. However, for a hypothetical value  $r_{\text{mean}} = 1000$  mm (and smaller values), the scattering process is sufficiently pronounced that

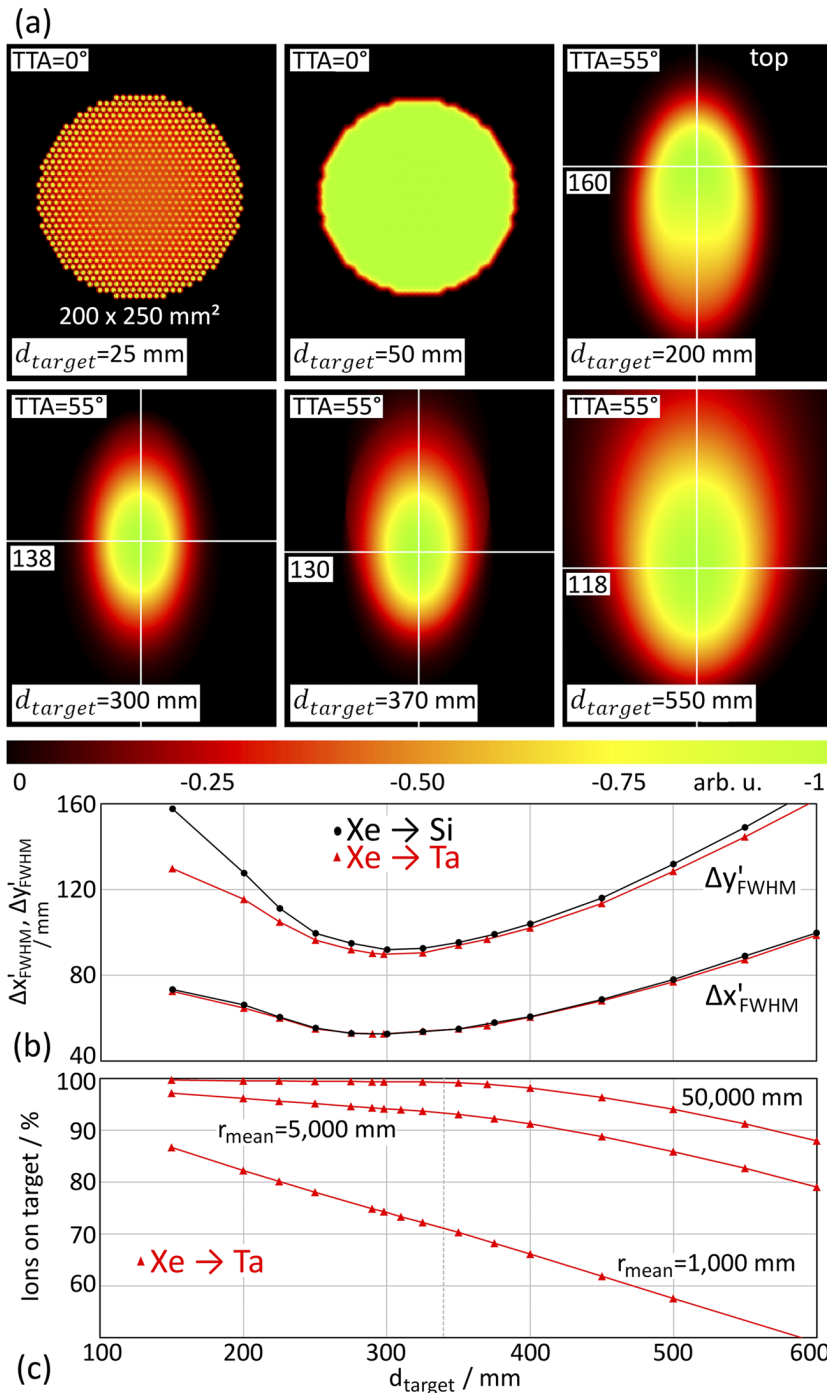


**FIG. 5.** Erosion profile modeling. Comparison by variation of  $\theta_{max}$ . (a) Two different beamlet emission characteristics, with  $\theta_{max} = 16^\circ, p = 0.1$  (blue) and  $\theta_{max} = 10^\circ, p = 0.8$  (red), are plotted to emphasize the axisymmetric function given in Eq. (3). (b) Ta target erosion modeled for 1.8 keV Xe ions. The parameters are summarized in Table I, line 1. Each modeled 2D erosion profile  $z'_{MODEL}(x', y')$  is shown on a target area of  $200 \times 250 \text{ mm}^2$ . (c)  $\Delta x'_{FWHM}$  and  $\Delta y'_{FWHM}$  as a function of  $\theta_{max}$  for Si and Ta, both sputter-eroded with 1.8 keV Xe ions. All calculated data points up to and including  $\theta_{max} = 12^\circ$  were used for the linear interpolations. (d)  $y'_0$  as a function of  $\theta_{max}$  for Si and Ta. The data points are connected by lines for clarity.

the ions flying past the target no longer constitute a significant loss channel. This consideration is simplified as it assumes that  $r_{mean}$  does not depend on the position in the process chamber and that scattered ions do not contribute to the erosion process (Sec. III B).

#### IV. COMPARISON WITH EXPERIMENTAL DATA

By comparing the modeled profiles in Figs. 5 and 6 (non-optimized model parameters) with the experimental results presented in Ref. 21, the following observations can be made:



**FIG. 6.** Erosion profile modeling. Comparison by variation of  $d_{target}$ . The parameters are summarized in Table I, line 2. (a) Ta target erosion modeled for 1.8 keV Xe ions. For  $d_{target} \leq 50$  mm, TTA = 0 is selected; otherwise, the target collides with the ion optic. (b)  $\Delta x'_{FWHM}$  and  $\Delta y'_{FWHM}$  as a function of  $d_{target}$  for Si and Ta, both sputter-eroded with 1.8 keV Xe ions. (c) Proportion of ions reaching the target without scattering as a function of  $d_{target}$  for different values of  $r_{mean}$ .

- (1) The near-identical values obtained for  $y'_0$  in the experimental comparison of the Ta and Si erosion processes indicate that  $\theta_{max} < 10^\circ$  (approximately) must apply for the model to correctly approximate the true beamlet emission characteristics [Fig. 5(d)].
- (2) For both Ta and Si, the model shows almost identical lateral dimensions up to an emission angle of approximately  $\theta_{max} = 12^\circ$ . A similar comparison of Ta and Si experimental results also provides almost identical values for  $\Delta x'_{FWHM}$  and  $\Delta y'_{FWHM}$ . Thus, the model indicates that the erosion profiles

are more strongly influenced by the process geometry rather than by material-specific ion–solid interaction mechanisms.

- (3) Based on linear interpolation, the quotient of the modeled profiles' lateral dimensions for Ta and Si is  $\Delta x'_{FWHM}/\Delta y'_{FWHM} = 1.69 \pm 0.01$  [see Fig. 5(c)]. In comparison, the experimental results are 1.74 and 1.83 for Si and Ta, respectively. Thus, the modeled values are close to the experimental values, although the model parameters have not yet been reoptimized at this point using the experimental data.
- (4) In both the model and experimental data,  $y'_0$  shifts to smaller values (toward the target bottom) with increasing  $d_{target}$ .
- (5) When experimentally comparing different target materials, increasing  $d_{target}$  from 370 to 550 mm provides a consistent scaling factor of 1.6 for  $\Delta x'_{FWHM}$  and  $\Delta y'_{FWHM}$ . For Ta, the 3D model yields  $\Delta x'_{FWHM}(d_{target} = 550)/\Delta x'_{FWHM}(d_{target} = 370) = 1.55$ , and  $\Delta y'_{FWHM}(d_{target} = 550)/\Delta y'_{FWHM}(d_{target} = 370) = 1.49$ , and the model also provides comparable values for Si, as shown in Fig. 6(b).
- (6) For all the  $d_{target}$  values considered, the model shows almost identical values for  $\Delta x'_{FWHM}$  [Fig. 6(b)]. In comparison, the values of  $\Delta y'_{FWHM}$  differ somewhat for the two materials. This aspect is supported by the experimental data.
- (7) For small values of  $d_{target}$ , the modeled erosion profile initially stretches downward and then upward as  $d_{target}$  increases [Fig. 6(a)]. The turning point is approximately  $d_{target} \approx 300$  mm. The experimental data show similar behavior: while the erosion profile of Si is stretched downward at  $d_{target} = 370$  mm, the erosion profile of a SiO<sub>2</sub> is stretched upward at  $d_{target} = 550$  mm. Neglecting the fact that two different targets are being compared, the experimental data show that the turning point is somewhere between 370 and 550 mm, i.e., at a greater distance than shown in Fig. 6.

## V. OPTIMIZATION OF MODEL PARAMETERS

Although similarities can be found by comparing the 3D model with the experiment (Sec. IV), there is one substantial difference. For  $d_{target} = 370$  mm, the experimentally determined erosion profiles are stretched downward and compressed upward,<sup>21</sup> but the 3D model shows the opposite pattern for the same distance [Figs. 5(b) and 6(a)]. For the 3D model to show a correct experimental stretching direction,  $d_{target}$  has to be reduced, as shown in Fig. 6. This indicates that the broad ion beam converges more slowly in the near-field region than it would if all the trajectories were linear. Figure 1(b) supports this interpretation, as the ion beam has not reached its turning point between converging and diverging even after a propagation length of 550 mm, which is larger than  $R_{optic}$ . Accordingly, Figs. 1(b) and 3 contradict each other. Nonlinear trajectories are probably causing this, on the one hand. On the other hand, the different stretching in the 3D model compared to the experimental data could be induced by the variation of the beamlet emission characteristics (Sec. III C). Moreover, the experimental data cannot be reproduced with the 3D model using only the parameter  $\theta_{max}$ . More parameters are needed.

Next, using the experimentally determined Ta, Si, and SiO<sub>2</sub> erosion profiles from Ref. 21 as the target functions (TFs), the model parameters  $r_{mean}$ ,  $\theta_{max}$ ,  $p$ ,  $\vartheta_{max}$ ,  $l$ ,  $y'_S$ , and  $\theta_{deflect}$  are varied by an optimization algorithm to find the best numerical solutions. The corresponding exact process geometry is then applied. A gradient descent iterative optimization algorithm was used in which all model parameters were weighted equally. The gradient method was automatically executed for 5000 randomly calculated starting points during each optimization run to eliminate local minima as far as possible. The best solution was found within the first 500 starting points so that a search in the parameter space beyond that point served solely to ensure that no better solutions existed. In this type of optimization, it cannot be ruled out that solutions are excluded, which, from a numerical point of view, are somewhat worse than the best solution found, but which make more sense from a physical point of view.

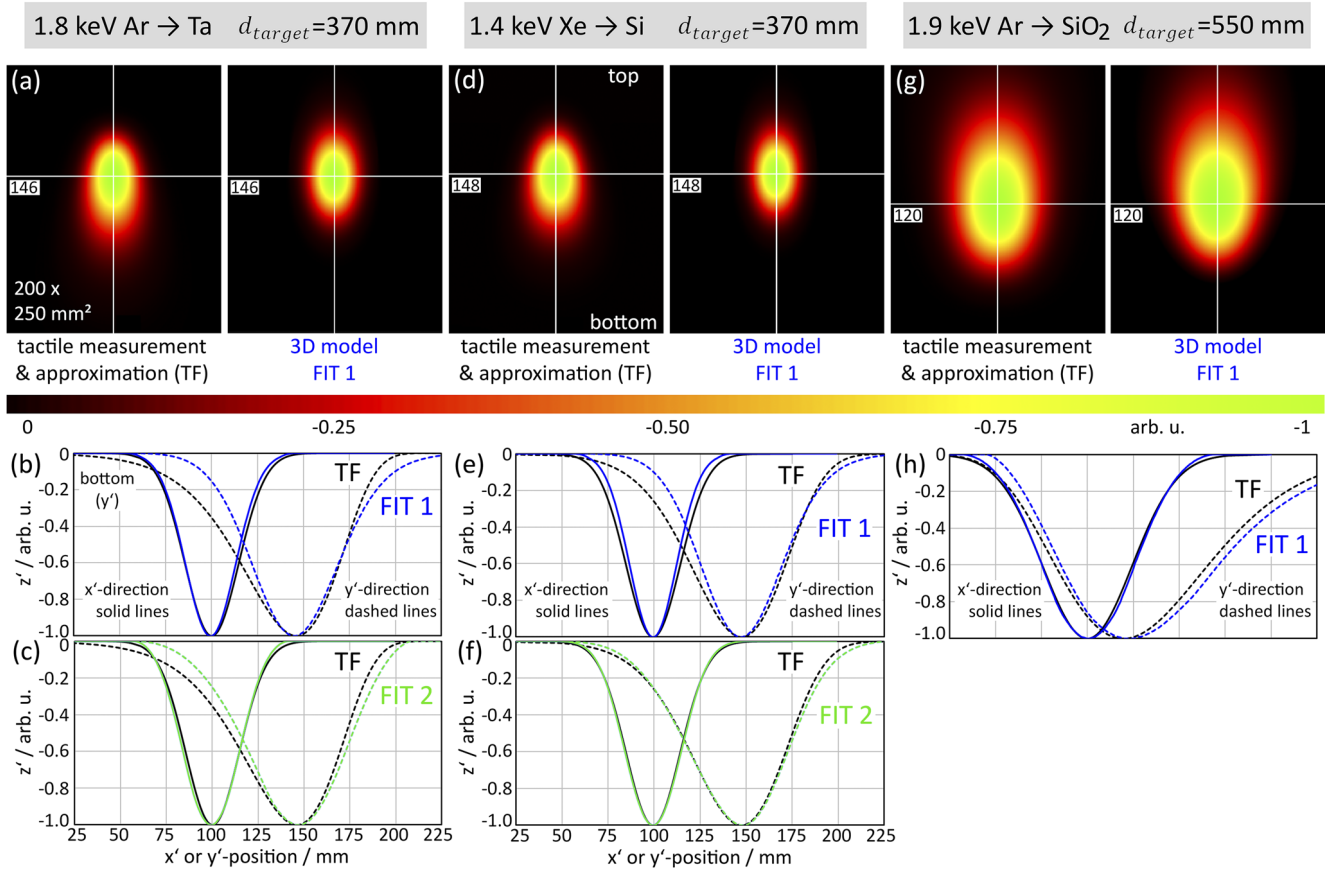
Furthermore, the following limitations occur: (i) the applied semiempirical models<sup>55,57</sup> are valid for monoatomic targets; therefore, the angle-dependent sputtering yield for Si is used for SiO<sub>2</sub>. (ii) Experimentally, the Ta target was eroded with both Ar and Xe ions. For the optimization process, only Ar ions are assumed to have been involved in erosion. For Si and SiO<sub>2</sub>, the exact ion parameters (ion species and ion energy) are used. Both assumptions (i) and (ii) are acceptable, as will be shown in Sec. VI.

The erosion profiles found experimentally and through the 3D model are compared, and the results are summarized in Fig. 7 and Table I. When  $\theta_{deflect} = 0$ , no numerical solutions could be found in which both the extreme positions  $y'_0$  and the full widths at half maximum  $\Delta x'_{FWHM}$  and  $\Delta y'_{FWHM}$  are sufficiently well reproduced by the applied 3D model [indicated by "FIT1" in Figs. 7(a), 7(b), 7(d), 7(e), 7(g), and 7(h)]. If the full widths at half maximum are forced to fit in the optimization, then a significant deviation in  $y'_0$  is observed (not shown). Thus, the six fitting parameters chosen are also insufficient to reproduce the experimental data.

By using the beamlet deflection  $\theta_{deflect} > 0$  as a seventh fitting parameter, an improvement in the optimization result is achieved, indicated by "FIT2" in Figs. 7(c) and 7(f). The best optimization result is obtained with a deflection angle of only  $\theta_{deflect} = 1.8^\circ$ , at the edge of the ion optic. Increasing  $\theta_{deflect}$  results in less agreement between the experiment and model.

With reference to Sec. III C, Ta optimization results in both a distortion of the beamlet emission characteristics ( $\theta_{deflect} = 1.8^\circ$ ) and a reduction in the beamlet output current to 77% at the edge of the ion optic compared to the output current at the center of the ion optic (see  $\eta$  in Table I, line 6). In the case of Si, the optimized parameters suggest that a reduction in the output current does not occur (see  $\eta$  in Table I, line 7). With respect to the radial inhomogeneity of the plasma in the ion source discharge chamber, the observed differences, expressed by parameter  $\eta$ , may be attributed to the different ion species and ion energies. With respect to  $\theta_{deflect}$ , it is also conceivable (as a thesis) that, by tilting the emission characteristics (and leaving the trajectories as linear), a different mechanism is substituted: ions originating from beamlets at the edge of the ion optic are reflected at the ion beam core as a result of electrical repulsion and insufficient space charge compensation. In such a scenario, the trajectories at the center of the beam would retain a linear shape longer than the trajectories at the edge of the beam because





**FIG. 7.** Optimization of model parameters using the exact process geometry. Experimentally determined and approximated erosion profiles<sup>21</sup> are used as TFs. The graphs marked with “FIT1” (a, b, d, e, g, and h) show the study’s results with  $\theta_{deflect} = 0$ , and Table I, lines 3–5, lists the optimized model parameters. By considering an additional distortion of the ion beam, the optimization results are improved (c and f). The best angle of deflection is  $\theta_{deflect} = 1.8^\circ$ , at the edge of the ion optic. The reoptimized model parameters are listed in Table I, lines 6 and 7.

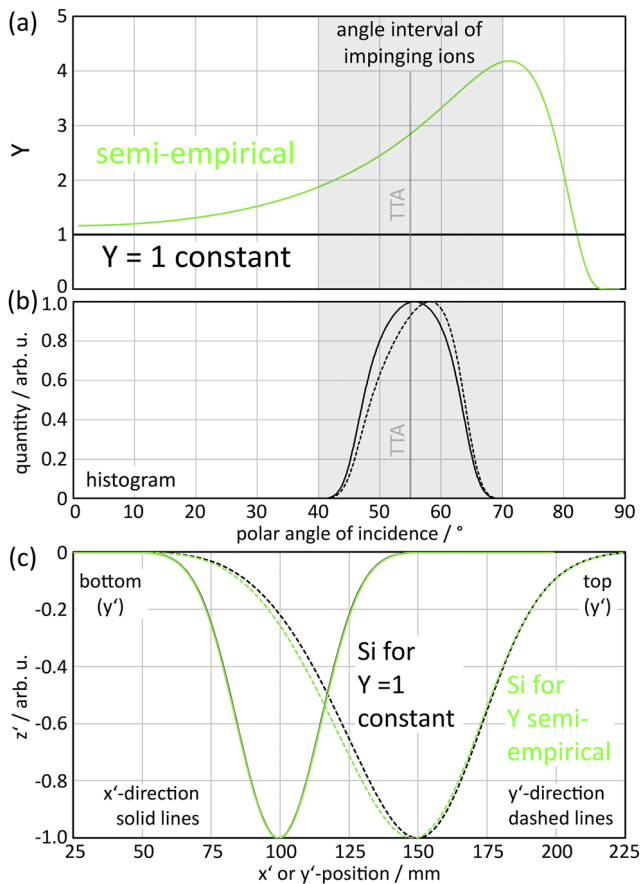
they are located in the center of a rotationally symmetric charge distribution.

## VI. CONCLUSIONS REGARDING THE EROSION PROCESS

From the experimental data, the erosion rate of the Si target is  $7.706 \times 10^{-5} \text{ cm}^3/\text{s}$  (1.4 keV Xe ions and  $I_{beam} = 200 \text{ mA}$ ).<sup>21</sup> By assuming a mass density of  $2.33 \text{ g/cm}^3$ , the erosion rate can be converted to  $0.0108 \text{ g/min}$ . In comparison, the 3D model [Fig. 7(f) and Table I, line 7] provides an erosion rate of  $0.0092 \text{ g/min}$ . The modeled value amounts to 85% of the experimental value. The quantitative difference potentially results from the obtained mean free path and from the applied semiempirical yield function  $Y(\alpha)$ ,<sup>55,57</sup> which is assumed to have  $\pm 20\%$  accuracy.<sup>72</sup> To bring agreement between the modeled erosion rate and the experimental erosion rate, either  $r_{mean}$  would have to be increased to approximately  $r_{mean} = 12 \text{ 500 mm}$ , or  $Y(\alpha)$  would have to be scaled up by a factor of 1.18. The former involves more ions impinging on the target because fewer ions participate in the scattering process, and the

latter involves more target atoms being removed per impinging ion. The scaling would still be within the semiempirical model’s accuracy limit. Target poisoning, the unconsidered morphology of the target, and a multi-ion species ion beam (Sec. III A) are obvious sources of discrepancies in this context.

To investigate the impact of  $Y(\alpha)$  on the qualitative characteristics of the erosion profile, the modeled Si erosion [Fig. 7(f) and Table I, line 7] is recalculated using the hypothetical yield function  $Y(\alpha) = 1$  [i.e., constant for all values of  $\alpha$ , as shown in Fig. 8(a) as a black line]. Figure 8(c) shows that both calculated Si erosion profiles are almost identical qualitatively, even appearing congruent in the  $x'$ -direction, regardless of whether the ion–solid interaction is described by a semiempirical model or by the constant function. Figure 8(b) shows the corresponding histogram. The ions’ polar angles of incidence are distributed as expected around the target tilt angle TTA =  $55^\circ$  (solid line). In relation to Eq. (2), this distribution includes all mechanisms except  $Y(\alpha)$  (i.e., it includes the individual emission characteristics of the beamlets, photometric law, and reduction in the number of particles through the scattering process). If the contribution of the ions to target erosion is evaluated as



**FIG. 8.** Comparison of Si erosion for different yield functions. (a) Semiempirical yield function (green curve)<sup>35,57</sup> and constant yield function  $Y(\alpha) = 1$  (black curve). The x-axis represents the polar angle of incidence  $\alpha$ . (b) Distribution of the polar angles of incidence  $\alpha$  at which the ions impinge on the target (solid line). Most ions impinge at  $55.6^\circ$ . The dashed line shows the contribution to erosion. Ions impinging at  $\alpha = 58.1^\circ$  make the largest contribution to total erosion. (c) Modeled Si erosion profiles with both yield functions as shown in (a). In the  $x'$ -direction, the distributions appear congruent, concurring with the experimental data.<sup>21</sup>

a function of the ion polar angle of incidence [i.e., after transformation into erosion by multiplication with  $Y(\alpha)$ ], the corresponding histogram changes little [dashed line in Fig. 8(b)]. This qualitatively demonstrates the role of the angular dependence of ion–solid interactions in planar target erosion by a low-energy broad ion beam. The process geometry dominates the qualitative erosion profile characteristics, as discussed in Secs. III B and IV, and concluded in Ref. 21.

## VII. SUMMARY

Two key assumptions—Gaussian emission characteristics for each beamlet within a multi-beamlet ion optic, and linear trajectories for all primary particles (equivalent to full space charge compensation)—led to a model that could not reproduce the experimental erosion profiles from Ref. 21. Another assumption was

required to improve the model: tilting of the beamlet emission characteristics away from the beam vector, caused by a potential radial inhomogeneity of the plasma in the discharge chamber of the ion source. The best optimization result was obtained with a maximum angle of deflection of only  $1.8^\circ$  at the edge of the applied ion optic. A more extensive database is needed to investigate this tilting mechanism further.

Considering that the opening angle of the emission characteristics of the individual beamlets was varied identically for all beamlets (all beamlets emit qualitatively identical) and that target poisoning and nonlinear trajectories were not taken into account, the study found the following scenarios for the investigated reactive IBS process: (1) full space charge compensation and tilted emission characteristics of the beamlets; (2) incomplete space charge compensation and not necessarily tilted emission characteristics.

The model revealed that beamlet emission was relatively focused. For Ar ions at 1.8 keV, the opening angle of the total emission cone was  $7.6^\circ$ . In the case of Xe ions at 1.4 keV, the opening angle was  $10.8^\circ$  if scenario (1) was assumed. This result corresponds to the expectation that if the acceleration voltage is lower, the focusing properties of the ion optic decrease (larger opening angle). No clear results were obtained for the currents of the beamlets as a function of beamlet position on the ion optic: the applied optimization algorithm resulted in a decreasing output current in the case of Ta target sputtering by 1.8 keV Ar ions while not in the case of Si target sputtering by 1.4 keV Xe ions. More data are needed to understand how ion species, ion energy, and RF power coupled into the plasma affect the beamlet currents.

The model showed three tendencies also seen in the experimental data. An increase in the ion beam propagation length resulted in a broadening of the erosion profile, a shift in the erosion maximum toward the lower target edge, and a reversal of the erosion profile shape. Moreover, the 3D model confirmed the conclusion from Ref. 21 that material-specific and angle-dependent ion–solid interaction mechanisms at the atomic level seem to play a minor role in the qualitative distribution of an erosion profile (for the process geometry investigated).

The Si target's experimentally determined erosion rate could be reproduced by the applied 3D model by neglecting a potential compound formation on the target surface and without exceeding the accuracy limits of semiempirical models used for sputtering yield calculation.

The 3D model is judged suitable for determining the distribution of ions impinging on a target. Thus, it can assist in the understanding of how secondary particles are emitted qualitatively and quantitatively from the target surface through broad ion beam sputtering.

## ACKNOWLEDGMENTS

This research was partially funded by the Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG, German Research Foundation) under Germany's Excellence Strategy within the Cluster of Excellence PhoenixD (EXC 2122, Project No. 390833453). The authors are grateful to the Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF, German Federal Ministry of Education and Research) for financial support of the research project PluTO<sup>plus</sup> (Contract No.

13N13207). The authors thank Dr. Benjamin Lotz (CEC) for fruitful discussions on ion sources.

## AUTHOR DECLARATIONS

### Conflict of Interest

The authors have no conflicts to disclose.

### DATA AVAILABILITY

The data that support the findings of this study are available from the corresponding author upon reasonable request.

## REFERENCES

- D. Ristau and T. Gross, *Proc. SPIE* **5963**, 596313 (2005).
- C. J. Stolz and R. A. Negres, *Opt. Eng.* **57**, 121910 (2018).
- L. Pinard, C. Michel, B. Sassolas, L. Balzarini, J. Degallaix, V. Doliq, R. Flaminio, D. Forest, M. Granata, B. Lagrange, N. Straniero, J. Teillon, and G. Cagnoli, *Appl. Opt.* **56**, C11 (2017).
- J. Degallaix, C. Michel, B. Sassolas, A. Allocca, G. Cagnoli, L. Balzarini, V. Doliq, R. Flaminio, D. Forest, M. Granata, B. Lagrange, N. Straniero, J. Teillon, and L. Pinard, *J. Opt. Soc. Am. A* **36**, C85 (2019).
- M. Abernathy, A. Amato, A. Ananyeva, S. Angelova, B. Baloukas, R. Bassiri, G. Billingsley, R. Birney, G. Cagnoli, M. Canepa, M. Coulon, J. Degallaix, A. Di Michele, M. A. Fazio, M. M. Fejer, D. Forest, C. Gier, M. Granata, A. M. Gretarsson, E. M. Gretarsson, E. Gustafson, E. J. Hough, M. Irving, É. Lalande, C. Lévesque, A. W. Lussier, A. Markosyan, I. W. Martin, L. Martin, B. Maynard, C. S. Menoni, C. Michel, P. G. Murray, C. Osthelder, S. Penn, L. Pinard, K. Prasai, S. Reid, R. Robie, S. Rowan, B. Sassolas, F. Schiettekatte, R. Shink, S. Tait, J. Teillon, G. Vajente, M. Ward, and L. Yang, *Classical Quantum Gravity* **38**, 195021 (2021).
- D. Zou, R. J. Thirkettle, A. Gebauer, G. K. MacDonald, K. U. Schreiber, and J.-P. R. Wells, *Appl. Opt.* **60**, 1737 (2021).
- A. V. Tikhonravov, I. V. Kochikov, and S. A. Sharapova, *Moscow Univ. Phys. Bull.* **74**, 160 (2019).
- Y. Chen, D. Hahner, M. Trubetskov, and V. Pervak, *Opt. Laser Technol.* **142**, 107192 (2021).
- T. A. Laurence, D. A. Alessi, E. Feigenbaum, R. A. Negres, S. R. Qiu, C. W. Sidors, T. M. Spinka, and C. J. Stolz, *J. Appl. Phys.* **128**, 071101 (2020).
- T. Böntgen, T. Alig, I. Balasa, L. Jensen, and D. Ristau, in *International Conference on Space Optics—ICSO 2018*, edited by Z. Sodnik, N. Karafolas, and B. Cugny (SPIE, 2019), pp. 1539–1545.
- H. Ehlers and D. Ristau, in *Optical Thin Film Coatings*, 2nd ed., edited by A. Piegari and F. Flory (Woodhead Publishing, 2018), pp. 103–140.
- M. Jupé, M. Lappschies, L. Jensen, K. Starke, and D. Ristau, *Proc. SPIE* **6403**, 640311 (2007).
- T. Willemsen, M. Jupé, L. Gallais, D. Tetzlaff, and D. Ristau, *Opt. Lett.* **42**, 4502 (2017).
- S. Malobabic, M. Jupé, and D. Ristau, *Light: Sci. Appl.* **5**, e16044 (2016).
- M. Trubetskov, *Appl. Opt.* **59**, A75 (2020).
- C. Bundesmann and H. Neumann, *J. Appl. Phys.* **124**, 231102 (2018).
- H. Badorreck, M. Steinecke, L. Jensen, D. Ristau, M. Jupé, J. Müller, R. Tonneau, P. Moskovkin, S. Lucas, A. Pflug, L. Grinevičiūtė, A. Selskis, and T. Tolenis, *Opt. Express* **27**, 22209 (2019).
- W. Sakiew, P. Schwerdtner, M. Jupé, A. Pflug, and D. Ristau, *J. Vac. Sci. Technol. A* **39**, 063402 (2021).
- W. Sakiew, S. Schrameyer, P. Schwerdtner, N. Erhart, and K. Starke, *Appl. Opt.* **59**, 4296 (2020).
- A. Ribeaud, J. Pistner, H. Hagedorn, M. Brophy, P. Kupinski, J. Watson, and R. Hand, in *Laser-Induced Damage Optical Materials 2018: 50th Anniversary Conference*, edited by C. W. Carr, G. J. Exarhos, V. E. Gruzdev, D. Ristau, and M. J. Soileau (SPIE, 2018), pp. 134–142.
- W. Sakiew, E. Klocke, and D. Ristau, *AIP Adv.* **11**, 035239 (2021).
- C. Bundesmann, C. Eichhorn, F. Scholze, D. Spemann, H. Neumann, D. Pagano, S. Scaranzin, F. Scortecchi, H. J. Leiter, S. Gauter, R. Wiese, H. Kersten, K. Holste, P. Köhler, P. J. Klar, S. Mazouffre, R. Blott, A. Bulit, and K. Dannenmayer, *Eur. Phys. J. D* **70**, 212 (2016).
- M. Jupé, S. Malobabic, C. Schmitz, C. Gouldieff, H. Steffen, R. Wiese, and D. Ristau, *Proc. SPIE* **8168**, 816825 (2011).
- D. L. Brown, M. L. R. Walker, J. Szabo, W. Huang, and J. E. Foster, *J. Propuls. Power* **33**, 582 (2016).
- D. Korzec, K. Schmitz, and J. Engemann, *J. Vac. Sci. Technol. B* **6**, 263 (1988).
- M. Tilsch, V. Scheuer, J. Biersack, and T. Tschudi, *Proc. SPIE* **2775**, 585–593 (1996).
- M. Tilsch, *Eigenschaften Ionenstrahlgespatterter Optischer SiO<sub>2</sub>- Und TiO<sub>2</sub>-Schichten Bei Unterschiedlichen Wachstumsbedingungen Und Veränderungen Bei Thermischer Nachbehandlung* (Herbert Utz Verlag Wissenschaft, München, 1997).
- M. Tartz, E. Hartmann, F. Scholze, H. Neumann, and F. Bigl, *Surf. Coat. Technol.* **97**, 504 (1997).
- D. Ness, D. Pitrat, and C. Wood, *Proc. SPIE* **7660**, 675–684 (2010).
- B. Rubin, J. George, and R. Singhal, *Adv. Opt. Technol.* **7**, 39 (2018).
- P. Chabert, J. Arancibia Monreal, J. Bredin, L. Popelier, and A. Aanesland, *Phys. Plasmas* **19**, 073512 (2012).
- M. Dobkevicius and D. Feili, *Eur. Phys. J. D* **70**, 227 (2016).
- A. Reeh, U. Probst, and P. J. Klar, *Eur. Phys. J. D* **73**, 232 (2019).
- K. Holste, P. Dietz, S. Scharmann, K. Keil, T. Henning, D. Zschätzsch, M. Reitemeyer, B. Nauschütt, F. Kiefer, F. Kunze, J. Zorn, C. Heiliger, N. Joshi, U. Probst, R. Thüringer, C. Volkmar, D. Packan, S. Peterschmitt, K.-T. Brinkmann, H.-G. Zaunick, M. H. Thoma, M. Kretschmer, H. J. Leiter, S. Schippers, K. Hannemann, and P. J. Klar, *Rev. Sci. Instrum.* **91**, 061101 (2020).
- M. A. Makeev and A.-L. Barabási, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **222**, 335 (2004).
- U. von Toussaint, A. Mutzke, and A. Manhard, *Phys. Scr.* **T170**, 014056 (2017).
- C. Cupak, P. S. Szabo, H. Biber, R. Stadlmayr, C. Grave, M. Fellingner, J. Brötznner, R. A. Wilhelm, W. Möller, A. Mutzke, M. V. Moro, and F. Aumayr, *Appl. Surf. Sci.* **570**, 151204 (2021).
- T. Lautenschläger, “Systematic investigation of the ion beam sputter deposition of TiO<sub>2</sub>,” Doctoral dissertation (Universität Leipzig, 2018), <https://core.ac.uk/download/pdf/226135824.pdf>.
- T. Lautenschläger, R. Feder, H. Neumann, C. Rice, M. Schubert, and C. Bundesmann, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **385**, 30 (2016).
- S. Berg, E. Särhammar, and T. Nyberg, *Thin Solid Films* **565**, 186 (2014).
- K. Strijckmans and D. Depla, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47**, 235302 (2014).
- R. Schelfhout, K. Strijckmans, and D. Depla, *Surf. Coat. Technol.* **399**, 126097 (2020).
- J. Houska and T. Kozak, *Surf. Coat. Technol.* **392**, 125685 (2020).
- Y. Chen, D. Hahner, M. Trubetskov, S. Schrameyer, W. Sakiew, K. Starke, and V. Pervak, *Appl. Phys. B* **126**, 82 (2020).
- W. Sakiew, S. Schrameyer, M. Jupé, P. Schwerdtner, N. Erhart, K. Starke, and D. Ristau, *Thin Solid Films* **682**, 109 (2019).
- G. Betz and G. K. Wehner, in *Sputtering by Particle Bombardment II: Sputtering of Alloys and Compounds, Electron and Neutron Sputtering, Surface Topography*, edited by R. Behrish (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1983), pp. 11–90.
- M. Sangregorio, K. Xie, N. Wang, N. Guo, and Z. Zhang, *Chin. J. Aeronaut.* **31**, 1635 (2018).
- R. I. S. Roy, D. E. Hastings, and N. A. Gastonis, *J. Spacecr. Rockets* **33**, 525 (1996).
- J. E. Pollard, K. D. Diamant, M. W. Crofton, M. J. Patterson, and G. C. Soulas, in *46th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit* (American Institute of Aeronautics and Astronautics, Nashville, TN, 2010).
- M. Nakano, *Vacuum* **83**, 82 (2008).
- M. Zeuner, F. Scholze, H. J. Leiter, R. Kukies, D. Feili, M. Tartz, and H. Neumann, in *39th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit* (AIAA, 2003), p. 5009.



- <sup>52</sup>F. Scholze, M. Tartz, H. Neumann, H. J. Leiter, R. Kukies, D. Feili, and S. Weis, in *43rd AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit* (AIAA, 2007), p. 5216.
- <sup>53</sup>C. Bundesmann, M. Tartz, F. Scholze, H. Neumann, H. J. Leiter, F. Scortecchi, D. Feili, P.-E. Frigot, and J. G. del Amo, in *31st International Electric Propulsion Conference* (American Institute of Aeronautics and Astronautics, 2009), pp. 20–24.
- <sup>54</sup>R. Behrisch and W. Eckstein, in *Sputtering By Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations From Threshold to MeV Energies*, edited by R. Behrisch and W. Eckstein (Springer, 2007).
- <sup>55</sup>C. García-Rosales, W. Eckstein, and J. Roth, *J. Nucl. Mater.* **218**, 8 (1995).
- <sup>56</sup>J. Bohdanský, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **2**, 587 (1984).
- <sup>57</sup>Y. Yamamura, Y. Itikawa, and N. Itoh, *Angular Dependence of Sputtering Yields of Monoatomic Solids* (Institute of Plasma Physics, Nagoya University, 1983).
- <sup>58</sup>F. Cichocki, M. Merino, and E. Ahedo, in *50th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference* (American Institute of Aeronautics and Astronautics, Cleveland, OH, 2014).
- <sup>59</sup>T. W. Reynolds, in *7th Propulsion Joint Specialist Conference* (American Institute of Aeronautics and Astronautics, Salt Lake City, UT, 1971).
- <sup>60</sup>W. Liao, Y. Dai, X. Xie, and L. Zhou, *Appl. Opt.* **53**, 4266 (2014).
- <sup>61</sup>M. Tartz, R. Deltshew, E. Hartmann, and H. Neumann, *Surf. Coat. Technol.* **142-144**, 34 (2001).
- <sup>62</sup>N. S. Mühlich, K. Holste, P. J. Klar, and H. J. Leiter, in *35th International Electric Propulsion Conference* (Georgia Institute of Technology, Atlanta, GA, 2017).
- <sup>63</sup>A. T. Forrester, *Large Ion Beams: Fundamentals of Generation and Propagation* (John Wiley & Sons, 1988).
- <sup>64</sup>S. V. Dudin, A. V. Zykov, and V. I. Farenik, *Rev. Sci. Instrum.* **65**, 1451 (1994).
- <sup>65</sup>A. Wheelock, D. L. Cooke, and N. A. Gatonis, *Comput. Phys. Commun.* **164**, 336 (2004).
- <sup>66</sup>S. Lounes-Mahloul, A. Bendib, and N. Oudini, *Eur. Phys. J.: Appl. Phys.* **81**, 10802 (2018).
- <sup>67</sup>P. Spädtke, *Plasma* **4**, 345 (2021).
- <sup>68</sup>I. G. Brown, *The Physics and Technology of Ion Sources*, 2nd Revised ed. (John Wiley & Sons, 2004).
- <sup>69</sup>M. C. Salvadori, F. S. Teixeira, A. Nikolaev, K. P. Savkin, E. M. Oks, P. Spädtke, K. M. Yu, and I. G. Brown, *J. Appl. Phys.* **110**, 083308 (2011).
- <sup>70</sup>H. D. Hagstrum, *Phys. Rev.* **119**, 940 (1960).
- <sup>71</sup>H. Usui, A. Hashimoto, and Y. Miyake, *J. Phys.: Conf. Ser.* **454**, 012017 (2013).
- <sup>72</sup>N. Matsunami, Y. Yamamura, Y. Itikawa, N. Itoh, Y. Kazumata, S. Miyagawa, K. Morita, R. Shimizu, and H. Tawara, *At. Data Nucl. Data Tables* **31**, 1 (1984).

## 4.2 Häufigkeitsverteilungen der Einfallswinkel der zerstäubenden Projektile auf dem Target

Die in den Kapiteln 3.1 (Artikel A) und 4.1 (Artikel B) gezeigten experimentellen und modellierten Erosionsverteilungen stellen die Erosionstiefe flächenaufgelöst dar. Ausgehend von einem monoatomaren und monoenergetischen Ionenstrahl, wie er hier betrachtet wird, resultieren die unterschiedlichen Erosionstiefen in den modellierten Erosionsverteilungen allein aus Variationen der Projektilmengen und deren polaren Einfallswinkeln gegenüber der Targetnormalen (Artikel B).

Als Abschluss der Primärteilchenmodellierung und als Überleitung zu der Sekundärteilchenmodellierung zeigt Abbildung 4.1 am Beispiel der Erosion von Tantal (Abbildung 4(b) des Artikels A und Abbildungen 7(a-c) des Artikels B) die aus Simulationen resultierenden Häufigkeitsverteilungen der polaren Einfallswinkeln der zerstäubenden Argonprojektile an vier ausgewählten Positionen auf dem Target. Wie im vorangegangenen Kapitel beschrieben, wird die Targetfläche numerisch in Segmente der Größe  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  unterteilt. Die Histogramme verdeutlichen, dass auf ein einzelnes Targetsegment Projektile mit unterschiedlichen Einfallswinkeln und somit auch aus unterschiedlichen Ionenkanälen der Ionenoptik auftreffen.

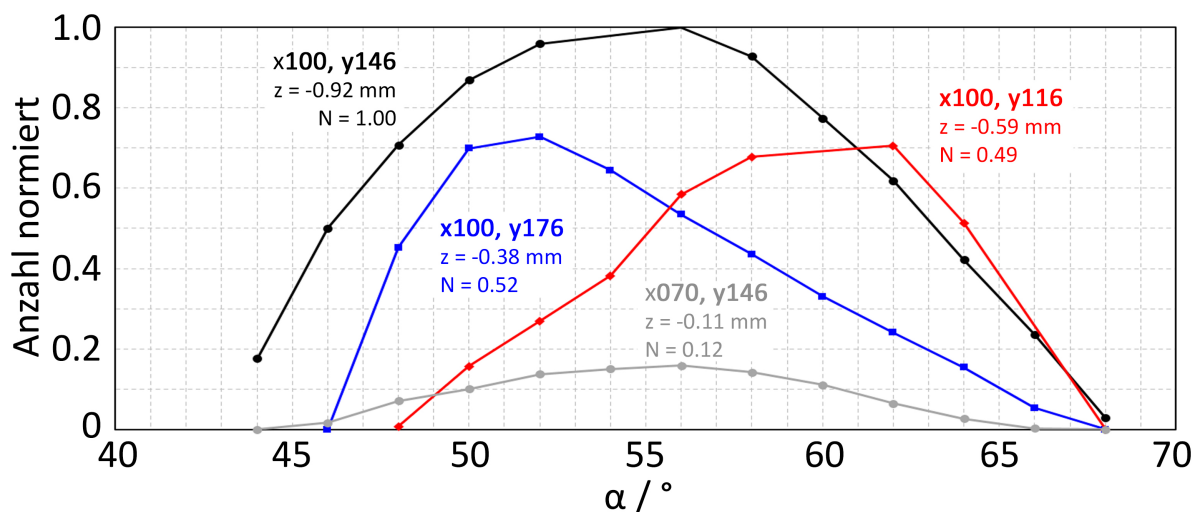
Ausgehend von einer Targetposition  $x = 100 \text{ mm}$ <sup>1</sup> und  $y = 116 \text{ mm}$  unterhalb des Erosionsmaximums, über das Erosionsmaximum bei  $(100, 146)$  zu einer Position  $(100, 176)$  oberhalb des Maximums, verschieben sich die Einfallswinkel zu kleineren Winkeln. Eine Änderung der Histogramme abhängig von der Targetposition wird erwartet, weil der modellierte Ionenstrahl aus linearen Trajektorien zusammengesetzt ist, die nicht parallel zur Symmetrieachse des Ionenstrahls verlaufen. Zusätzlich ist das Target gegenüber der Symmetrieachse des Ionenstrahls geneigt. Die Verschiebung zu kleineren Einfallswinkeln bei zunehmender  $y$ -Position bedeutet, dass die Trajektorien zur Symmetrieachse konvergieren. Auch dieser Zusammenhang ist zu erwarten, weil der betrachtete Targetabstand kleiner ist als der Krümmungsradius der Ionenoptik. Bei größeren Targetabständen oder bei einer unzureichenden Raumladungskompensation (nichtlineare Trajektorien aufgrund von Abstoßung gleichnamiger Ladungsträger) würde man ein umgekehrtes Verhalten erwarten.

Eine Folge der Änderung der Einfallswinkel ist die Änderung der Zerstäubungsausbeute und

---

<sup>1</sup> In Analogie zum Artikel B wird die Position des experimentell ermittelten Erosionsprofils in horizontaler Richtung im Folgenden um 2 mm auf  $x = 100 \text{ mm}$  verschoben und somit auf die Mitte des Targets in dieser Richtung ausgerichtet.

damit auch der resultierenden Erosionstiefen, wie ein Vergleich der Histogramme an den Positionen (100,116) und (100,176) aufzeigt: Während die normierten Mengen der Projektile, die pro Zeiteinheit auf die ausgewählten Segmente auftreffen, mit  $N = 0.49$  und  $N = 0.52$  ähnlich sind, unterscheiden sich die gemessenen Erosionstiefen auf dem Tantaltarget mit  $z = -0.59$  mm und  $z = -0.38$  mm deutlich. Bei (100,116) treffen die Projektile bei größeren polaren Einfallswinkeln auf das Target und zerstäuben aufgrund einer höheren Zerstäubungsausbeute mehr Tantalatome als bei der Position (100,176). Für die hier betrachtete Ionen-Materie-Wechselwirkung würde die Zerstäubungsausbeute laut semiempirischen Modellen [73, 76] erst bei Einfallswinkeln größer als etwa  $70^\circ$  wieder absinken. Solche Winkel treten bei der vorliegenden Prozessgeometrie gemäß der durchgeführten Simulationen nicht auf.



**Abbildung 4.1:** Häufigkeitsverteilungen der polaren Einfallswinkel der Argonprojektile für vier unterschiedliche Targetpositionen als Ergebnis der modellierten Erosion von Tantal. Die experimentell erfassten Erosionsverteilungen finden sich im Kapitel 3.1 (Abbildungen 4 und 7 im Artikel A). Die Modellierung der Erosion erfolgt im Kapitel 4.1 (Tabelle 1 und Abbildung 7 im Artikel B).  $N$  gibt die Mengen der auftreffenden Projektile pro Zeiteinheit an, jeweils normiert auf den Teilchenstrom bei der Position  $x = 100$  mm und  $y = 146$  mm (Erosionsmaximum),  $z$  die experimentell ermittelten Erosionstiefen. In allen Fällen wird ein Targetsegment der Größe  $1 \times 1$  mm<sup>2</sup> betrachtet.  $x$ ,  $y$ , und  $z$  sind im Koordinatensystem des Targets angegeben (Kapitel 3.1 oder 4.1).  $x = 100$  mm ist die Mittenposition des Targets in horizontaler Richtung. Es zeigt sich, dass auf einer Targetposition Ionen aus unterschiedlichen Richtungen auftreffen. Im Resultat führen ähnliche Projektilmengen aufgrund ihrer unterschiedlichen Einfallswinkelverteilungen an der jeweiligen Targetposition zu unterschiedlichen Erosionstiefen.



# 5

---

## Experimente zu Sekundärteilchen

Nachdem sich Kapitel 3 und 4 mit der experimentellen Untersuchung und der Modellierung der Primärteilchen befasst haben, knüpft das vorliegende Kapitel mit der experimentellen Untersuchung der Sekundärteilchen in einem reaktiven Beschichtungsprozess an. Als experimenteller Ansatz wird eine ex-situ Auswertung von simultan mit einer dielektrischen Einzelschicht beschichteten Substraten gewählt, die im Prozessraum großflächig verteilt auf einem ortsfesten und planen Substratträger platziert werden. Damit werden ortsaufgelöste Informationen zur Beschichtungsrate, in Kapitel 5.1, und zu den Materialeigenschaften Brechungsindex und Absorption, in Kapitel 5.2, erhalten. Diese Informationen stellen ein Abbild des vom Target abgestäubten Materials dar und dienen als Grundlage für die dreidimensionale Modellierung der Sekundärteilchentrajektorien im nachfolgenden Kapitel 6.

### 5.1 Artikel C: Large area precision optical coatings by reactive ion beam sputtering

#### 5.1.1 Beitrag des Autors

Die Planung der Experimente erfolgte durch den Autor (Erstautor des Artikels C). Alle Auswerterroutinen wurden vom Autor programmiert. Mehrere Koautoren haben in Zusammenarbeit mit und unter Anleitung des Autors die Experimente und Auswertungen durchgeführt. In die Deutung der experimentellen Ergebnisse waren alle Autoren des Artikels C eingebunden. Das Manuskript wurde vom Erstautor verfasst und von allen Koautoren fachlich geprüft.

### 5.1.2 Publizierter Artikel

W. Sakiew, S. Schrameyer, P. Schwerdtner, N. Erhart, and K. Starke, “Large area precision optical coatings by reactive ion beam sputtering,” *Applied Optics*, vol. 59, pp. 4296–4302, 2020, DOI: <https://doi.org/10.1364/AO.389883>

Eingereicht: 12.02.2020 | Akzeptiert: 14.04.2020

Dieser Artikel durchlief ein Peer-Review-Verfahren und wurde in der wissenschaftlichen Fachzeitschrift *Applied Optics*, die von der Optica Publishing Group herausgegeben wird, mit der Kennzeichnung **Editor’s Pick** veröffentlicht. Die Veröffentlichung des akzeptierten Manuskripts im Rahmen dieser kumulativen Dissertation erfolgt unter Einhaltung der jeweiligen Bestimmungen zum Urheberrecht ([https://opg.optica.org/submit/review/copyright\\_permissions.cfm?source=authornav&section=posting#posting](https://opg.optica.org/submit/review/copyright_permissions.cfm?source=authornav&section=posting#posting), Link abgerufen am 02.03.2024) und mit Zustimmung durch Optica Publishing Group vom 14.02.2022. Ein sprachlicher Feinschliff war im akzeptierten Manuskript noch nicht erfolgt.

#### **Ziele der Forschungsarbeit:**

- Das vom Target abgestäubte Material in einem reaktiven Beschichtungsprozess mit Hilfe von zweidimensionalen Beschichtungsratenverteilungen untersuchen.
- Die Verteilung des Materials unter Variation des Abstandes der Beschichtungsebene zum Target untersuchen.
- Vergrößerung der homogenen und kreisförmigen Beschichtungsfläche über einen Durchmesser von 400 mm hinaus.
- Steigerung des Nutzungsgrades des abgestäubten Materials.

#### **Ergebnisse der Forschungsarbeit:**

- Die Ergebnisse der Abstandsvariation deuten darauf hin, dass das vom Target mit einem breiten Ionenstrahl abgestäubte Material nicht durch einen Punktstrahler als Emissionsquelle aller Sekundärteilchen modelliert werden kann.
- Die homogene und kreisförmige Beschichtungsfläche konnte auf einen Durchmesser von 600 mm gesteigert werden.
- Der Nutzungsgrad des vom Target abgestäubten Materials konnte verdoppelt werden.

# Large area precision optical coatings by reactive ion beam sputtering

WJATSCHESLAW SAKIEW,<sup>1,\*</sup> STEFAN SCHRAMEYER,<sup>1</sup> PHILIPPE SCHWERDTNER,<sup>1</sup>  
NICK ERHART,<sup>1</sup> AND KAI STARKE<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Cutting Edge Coatings GmbH, Garbsener Landstrasse 10, 30419 Hannover, Germany

\*Corresponding author: [sakiew@cutting-edge-coatings.com](mailto:sakiew@cutting-edge-coatings.com)

Received XX Month XXXX; revised XX Month, XXXX; accepted XX Month XXXX; posted XX Month XXXX (Doc. ID XXXXX); published XX Month XXXX

**The demand for IBS coated substrates is growing. In order to introduce IBS technology into new fields of application, the uniform deposition area (UDA) must be further increased. In the present investigation a simple approach towards enlarging a UDA and the corresponding scaling laws are presented. By taking symmetry properties into account, the collection efficiency of the sputtered particles could be doubled. A process is demonstrated which allows the simultaneous and uniform coating of two areas each with a diameter of 600 mm.**

© 2018 Optical Society of America

<http://dx.doi.org/10.1364/AO.99.099999>

## 1. INTRODUCTION

Ion beam sputter deposition (IBS, IBSD) is well known for superior optical properties. Achievable quality parameters are numerous documented in open literature, e.g. [1,2]. Most prominent applications are: (a) Low loss mirror coatings for gravitational wave detectors [3] or (b) ring laser gyroscopes for inertial rotation measurements [4] and navigation, (c) chirped mirrors for ultra-short pulse lasers [5,6], (d) dense wavelength division multiplexing and gain flattening filters for telecommunications technology as well as (e) coatings with high damage threshold for high power lasers. IBS coatings are also well suited for space applications [7]. Over the past few decades IBSD has been continuously improved in layer composition, precision, process stability [8] and repeatability [9]. In contrast, productivity parameters such as (1) deposition rate  $R$ , (2) size  $A_{UDA}$  of the uniform deposition area (UDA) and (3) uniformity  $\Delta d_{phys}$  (variation of physical thicknesses along the UDA) haven't received much attention. Only over the last few years a certain trend towards large area optical coatings in the field of IBSD can be observed. An increase of the achievable UDA would not only enable a higher throughput, but also open up new fields of application: The establishment of ion beam sputtered meter-sized precision optical coatings for space applications and astronomy in general would represent a technological progress. Further conceivable future fields of application are meter-sized high power laser optics for large optical systems or large area coatings for automotive industry.

Currently, typical sizes  $A_{UDA}$  with a common uniformity  $\Delta d_{phys}$  of 1.0% peak-to-valley (PV) are still in the range from 200 to 400 mm in diameter in the industrial environment. One of the causes for the poor

size of a UDA is the complicated angular distribution of sputtered particles, by which a substrate is coated. A continuous movement of the substrate is required to achieve a certain UDA, which is in most cases a (1) simple rotation or a (2) planetary rotation.

Regardless of the type of movement, an improvement of  $\Delta d_{phys}$  can be achieved by the application of masks placed between the sputtered target and the substrate. From practical experience, with simple rotation configuration uniformity values of 0.10% PV on 400 mm in diameter can be achieved only with masks. To maintain this level, the masks have to be continuously mechanically adapted because the increasing erosion of a target leads to a variation in the angular distribution of the sputtered particles. Therefore, masks are rather disadvantageous for the use in a production. However, by accepting a much smaller  $A_{UDA}$  (and thus also lower productivity), the specification  $\Delta d_{phys} \leq 0.10\%$  PV can be achieved also without masks.

Taking into account highly customized processes, an enormous increase of  $A_{UDA}$  in one dimension was realized by applying (3) linear translation stages with a resulting uniformity of  $\pm 1.0\%$  on  $2000 \times 2000 \text{ mm}^2$  for excimer laser annealing optics [10], on the one hand. On the other hand, currently the largest circular shaped optical part coated by IBSD measures 550 mm in diameter as documented in [3]. For the production of mirrors for gravitational wave detectors usually a planetary rotation system is applied [3]. A further reduction of the variation of physical thicknesses along the UDA can be achieved by allowing a more complex movement of the substrate: In [11] for instance, a uniformity of 0.15% PV on 400 mm in diameter was demonstrated without the aid of masks by using a (4) modified planetary rotation system. Another approach to achieve a large UDA is to (5) overlap sub-layers, each with its own thickness distribution, by



moving a rotating substrate holder through the sputtering plume between certain positions, using different dwell times. With this technique a uniformity of  $\pm 0.7\%$  on 600 mm in diameter is feasible without masks, as specified for the coating machine Leybold Optics IBS 1600 [12].

To complement this, a significantly larger  $A_{UDA}$  could probably be realized by (6) superimposing several sputtering plumes simultaneously (also referred to as multi beam sputtering). Such an IBS process is (to the knowledge of the authors) not documented in open literature for large area coatings.

All mentioned approaches (1) to (6) have one thing in common: The substrate movement is adapted to the angular distribution of sputtered particles. An entirely new attempt would be to additionally (7) manipulate the angular distribution itself to obtain a better uniformity, a larger UDA and a higher collection efficiency of the sputtered material. Unfortunately the results shown in [13] indicate a weak coupling between the ion beam parameters of a broad ion beam by which a target is sputtered, and the resulting qualitative two-dimensional thickness distribution (2DTD) on a plane collector above the target. In other words: It doesn't seem possible to achieve a larger UDA just by changing the ion beam parameters (in the parameter range examined in [13]), if the process components (a) spherical curved ion optic and (b) flat target are retained.

To examine another simple approach towards enlarging  $A_{UDA}$  in IBS and to extend the investigations presented in [13], the focus of the present work is on 2DTDs of optical coatings deposited at different distances  $z_p$  to the target as illustrated in Fig. 1. On the basis of plausibility, an (8) increasing propagation length of the sputtered particles should result in a broadening of a 2DTD, and thus enable a larger UDA. Moreover, by varying  $z_p$  the angles of incidence of the sputtered particles with respect to the coating plane (for a fixed position on the collector) and the corresponding propagation lengths change. The angle of incidence could affect not only the sticking coefficient but also the growth process (amorphization, compactification) of the optical layers [14]. In the context of the mean free path length the propagation length may have an impact on the energy of the particles. Both of these effects could show up in the properties of the optical coatings. The obtained results were used to design the new industrial scale IBS coating machine NAVIGATOR 2100. First results concerning large area precision optical coatings are presented.

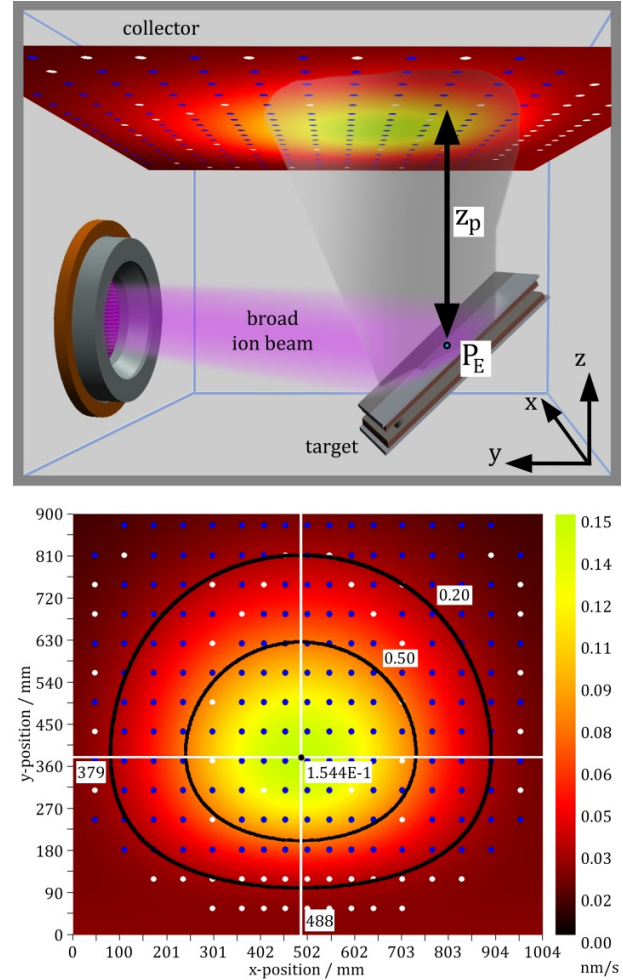
## 2. EXPERIMENTAL DETAILS

All thickness distributions of optical coatings in the present investigation were produced either with the NAVIGATOR 1100 or with the NAVIGATOR 2100. Both industrial scale IBS coating machines with sputter-up configuration of the main process components are manufactured by Cutting Edge Coatings GmbH (CEC) in Germany.

To generate a broad ion beam, the 2 MHz radio-frequency type and inductively coupled ion source RIM-20 was applied. It is equipped with a spherical curved three grid multi-aperture extraction system made of Ti, with an open diameter of 160 mm. The profile of the broad ion beam is laterally inhomogeneous and almost rotationally symmetric in direction of propagation. Furthermore, the profile of the charged particle beam varies depending on the propagation length. As shown in the schematic view in Fig. 1, the propagation direction of the ion beam corresponds to the y-axis of the chosen coordinate system. Ar and Xe were used as process gases to sputter from Ta targets with ion energy of 1.8 keV. Due to the application of a broad ion beam, the target is eroded over a certain area (full widths at half maximum of the corresponding erosion profile are in x-direction approx. 35 mm and in the perpendicular direction parallel to the target surface approx. 65 mm). Thus, the resulting sputtering geometry can most probably

not be approximated by a point source, if the particle distribution in the entire half-space above the target is to be modelled in detail.

To compensate the space charge, in all NAVIGATORS a radio frequency neutralizer operates simultaneously with the ion source as a filament-free electron source (not shown in Fig. 1). The Ta targets were tilted (target surface normal relative to the symmetry axis of the ion beam) either at  $55^\circ$  or  $60^\circ$ .



**Fig. 1: Top:** Schematic view of the deposition process. Above the target a 2D coating rate distribution is illustrated in the coating plane of the used stationary mounted plane rectangular substrate holder (collector).  $z_p$  is the distance between the point of maximum erosion  $P_E$  on the target and the coating plane. **Bottom:** 2D coating rate distribution for  $z_p = 381$  mm coated with NAVIGATOR 1100:  $R(x, y)$  for  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ , 1800 eV Ar ions, beam current 331 mA,  $R_{max} = 0.1544$  nm/s,  $x_0 = 488$  mm,  $y_0 = 379$  mm,  $R_{vol}^0 = 2.567$  mm<sup>3</sup>/min,  $R_{vol}^{0.2} = 1.973$  mm<sup>3</sup>/min,  $R_{vol}^{0.5} = 1.096$  mm<sup>3</sup>/min,  $\Delta x_{FWHM} = 493$  mm,  $\Delta y_{FWHM} = 425$  mm,  $\bar{n}(500 \text{ nm}) = 2.11$ . The positions  $(x_i, y_i)$  of the substrates are marked with blue dots. At the positions of the white dots no substrates were coated. The black solid lines are contour lines according to the relation  $R = C \cdot R_{max}$  with  $C = 0.5$  and  $C = 0.2$ . The parameters are explained in section 2.A.



In all coating runs Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> or SiO<sub>2</sub> single layers were formed in an O<sub>2</sub> atmosphere on glass substrates (material B 270) or quartz substrates, both with diameter 25 mm. The working pressure was in the range from 4–9 × 10<sup>-4</sup> mbar, depending on the process and on the position in the process chamber.

After the deposition process, each produced sample was characterized either fast by an ex-situ one-shot transmittance measurement setup (developed by the Laser Zentrum Hannover e.V.) within wavelength range 380–1070 nm, or with high accuracy by a spectrophotometer (PerkinElmer LAMBDA 1050 UV/Vis/NIR) within wavelength range 250–1000 nm. In both cases an almost normal angle of incidence ( $\leq 3^\circ$ ) was selected. Finally, the measurement curves  $T(\lambda)$  were used to calculate the physical thickness  $d_{phys}$  as well as the dispersion function  $n(\lambda)$  using either the software package Layer Thickness Optimization (LTO, CEC) or the thin film design software SPEKTRUM (Laser Zentrum Hannover e.V.). The extinction function  $k(\lambda)$  was also determined from  $T(\lambda)$  for selected samples.

Two types of thickness distributions were determined: (1) To acquire the 2DTDs, as illustrated in Fig. 1, a stationary mounted rectangular substrate holder (collector) was used with a dimension of 1004 × 900 mm<sup>2</sup> whereon up to 222 pieces of substrates on certain positions  $(x_i, y_i)$  can be placed. The rectangular substrate holder is oriented in parallel to the xy-plane and covers nearly the complete cross section of NAVIGATOR's 1100 coating chamber. (2) For the verification of  $A_{UDA}$  in case of single rotation configuration the usually installed plane circular substrate holder was applied and the thicknesses  $d_{phys}(r_i)$  of the produced layers were calculated depending on their radial position  $r_i$ . For the present investigation in total 1353 samples were coated and characterized.

### A. Stationary mounted rectangular substrate holder

For a precise estimation of the characteristics of a 2DTD, each discrete data record of up to 222 thicknesses  $d_{phys}(x_i, y_i)$  is approximated by LTO using an empirical function  $R(x, y) = d_{phys}(x, y)/T$  [13], where  $T$  is the coating time. By the factor  $1/T$  the comparability of 2DTDs resulting from coating runs with different  $T$  is ensured. As a result of the fitting procedure, the following characteristic values of an approximated two-dimensional coating rate distribution (2DCD)  $R(x, y)$  are calculated:  $R_{max}$  (maximum coating rate),  $x_0$  and  $y_0$  (coordinates of  $R_{max}$ ),  $\Delta x_{FWHM}$  and  $\Delta y_{FWHM}$  (full width at half maximum (FWHM) in x-direction at y-position  $y_0$  and in y-direction at x-position  $x_0$ ) as well as  $R_{vol}^C$  (volumetric coating rate, numerically integrated over the entire plot area in case of  $C = 0$ ). With the volumetric coating rate the productivity of a coating process can be measured. To ensure the comparability of different distributions, in the following the considered integration area is specified by  $R \geq C \cdot R_{max}$ , where  $0 < C \leq 1$ . More details on 2DCDs are presented in [13]. Concerning the material parameters in the following, each  $R(x, y)$  is additionally characterized by a mean refractive index

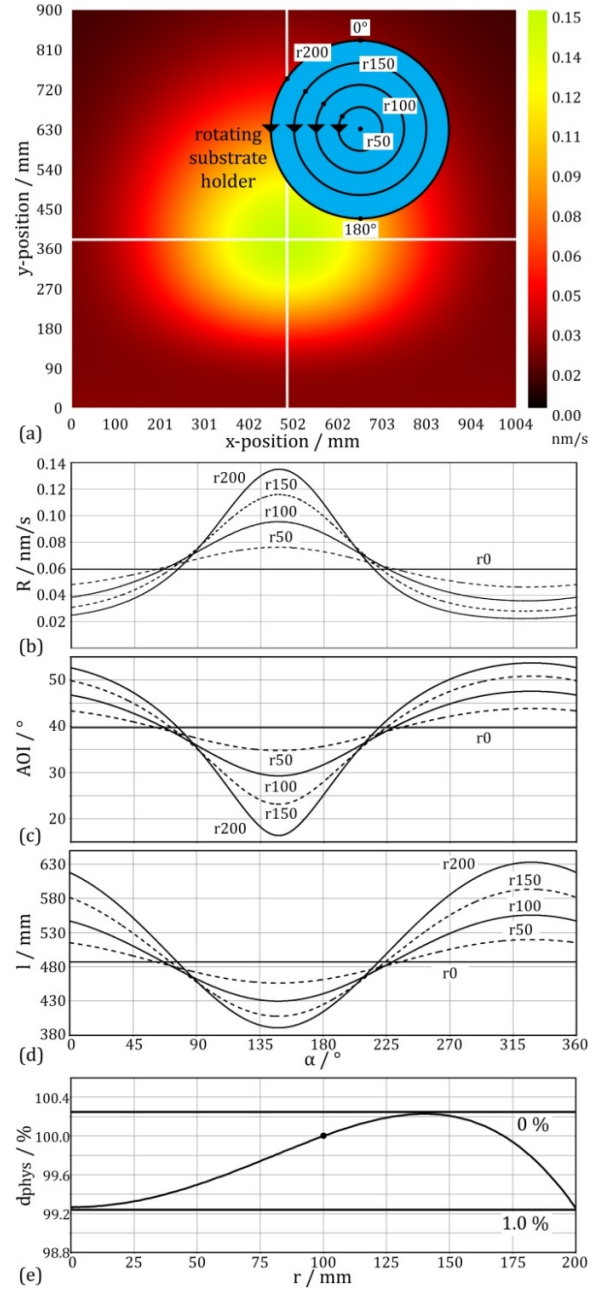
$$\bar{n}(\lambda') = \frac{1}{N} \cdot \sum_1^N n_i(x_i, y_i, \lambda'), \quad (1)$$

where  $N$  is the number of samples belonging to a 2DTD or 2DCD, respectively.  $n_i(x_i, y_i, \lambda')$  are the individual dispersion values of the evaluated samples with coordinates  $(x_i, y_i)$ . The selected wavelength of interest in case of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> is  $\lambda' = 320$  nm if substrates made of quartz are used, or  $\lambda' = 500$  nm if glass substrates are used. The wavelength  $\lambda' = 320$  nm was chosen because in optical thin film technology Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layers are defined as “quasi absorption-free” if the condition  $k(\lambda) \leq 1 \cdot 10^{-3}$  for all wavelengths  $\lambda' \leq \lambda \leq 2000$  nm is fulfilled.

### B. Rotating circular substrate holder

Concerning a UDA in IBSD for a simple rotation configuration for the

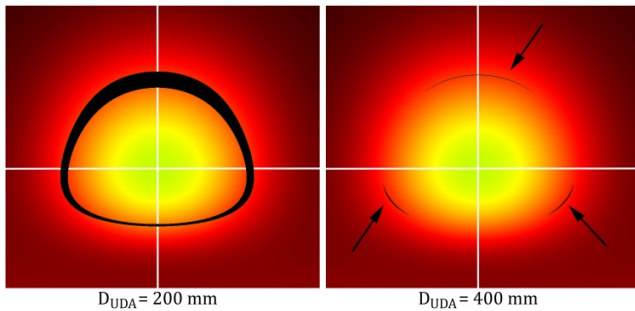
substrate movement, several aspects of the layer deposition parameters are shown exemplarily in Fig. 2. In order to ensure a certain



**Fig. 2:** (a):  $R(x, y)$  from Fig. 1 bottom. The substrate holder shown in blue is aligned to the numerically optimized position  $P_{opt}$ . Additionally, different radii  $r$ , the reference angle  $\alpha = 0$  and the direction of rotation are illustrated. (b): Coating rate distributions  $R(\alpha)$  for a rotating substrate holder at different  $r$ , numerically calculated from  $R(x, y)$ . (c): Distributions of the angle of incidence  $AOI(\alpha)$  with respect to  $P_E$  and the surface normal of the substrate holder. (d): Distributions of the propagation lengths  $l(\alpha)$ , analogous to  $AOI(\alpha)$ . (e): Uniformity plot  $d_{phys}(r)$  with specification  $\Delta d_{phys} = 1\%$  PV on 400 mm in diameter. All calculations are performed with LTO. (b) and (c) are scaled with the same abscissa as (d).

uniformity, which means that the resulting layer thicknesses do not deviate by more than  $\Delta d_{phys}$  from each other after every revolution of the substrate holder, the substrate holder is required to be placed at a specific position  $P_{opt}$  in the sputtering plume (in Fig. 2(a)  $P_{opt}$  corresponds to the centre of the substrate holder shown in blue). This position can be determined numerically from a 2DCD, as performed for the results shown in Fig. 2 with specification  $\Delta d_{phys} = 1\%$  PV on 400 mm in diameter. Although the layer thicknesses deviate less than 1% from one another (Fig. 2(e)), the individual radial positions  $r$  on the substrate holder are exposed to different conditions depending on the angle of rotation  $\alpha$ : While a sample at radius  $r = 0$  (fixed position) does not experience any variations in terms of layer growth, the conditions for a sample at  $r = 200$  mm, for example, vary significantly because the sample is moving through different sections of the sputtering plume: Coating rate variation  $\Delta R = R(327^\circ)/R(147^\circ) \approx 6$  (Fig. 2(b)), variation of the angle of incidence (with respect to the surface normal of the substrate holder)  $\Delta AOI = AOI(327^\circ)/AOI(147^\circ) \approx 3.3$  (Fig. 2(c)), variation of the propagation length  $\Delta l = l(327^\circ)/l(147^\circ) \approx 1.6$  (Fig. 2(d)). For the purpose of this exemplary estimation (Figs. 2(c) and 2(d)), it is assumed in a very simplified way that all sputtered particles from the target are emitted exclusively from the point of maximum erosion  $P_E$ . The parameters  $AOI(\alpha)$  and  $l(\alpha)$  are then determined with respect to point  $P_E$  using a three-dimensional calculation in LTO. The assumption made is grounded on the following reasons: (a) With increasing lateral distance to  $P_E$  on the target surface the proportion of sputtered particles and therefore their contribution to  $R_{vol}^c$  decreases (as can be seen from an erosion profile). Additionally, (b) only a small section of the half-space above the target is considered at this point.

From Fig. 2(b) it can be concluded (1) that the larger the UDA, the more the layer growth conditions vary on a rotating substrate holder with increasing  $r$ . Furthermore, based on the simplified estimation, it can be concluded (2) that in the plume section with the highest  $R$ , the values of  $AOI$  and  $l$  are lowest. From this aspect and in the context of the Photometric law the coating process appears as a quasi-pulsed process. It is therefore plausible that these variations may be expressed in the material properties  $n(\lambda)$  and  $k(\lambda)$  of the optical coatings, if samples of different  $r$  are compared accordingly. In such a case it is even possible that the desired specification with regard to  $\Delta d_{phys}$  is



**Fig. 3:** Identical  $R(x, y)$  as shown in Figs. 1 and 2 with a dimension of  $1004 \times 900 \text{ mm}^2$  of the plot area. **Left:** All possible positions of a rotating substrate holder's rotation axis with condition  $\Delta d_{phys} \leq 1\%$  PV on a circular shaped coating area with diameter 200 mm. The positions are numerically calculated by LTO and shown in black. **Right:** Analogue calculation for  $\Delta d_{phys} \leq 1\%$  PV and diameter 400 mm. For diameters larger than 400 mm no numerical solutions can be found. Thus, the largest UDA here is  $D_{UDA,max}(1\%) = 400 \text{ mm}$ .

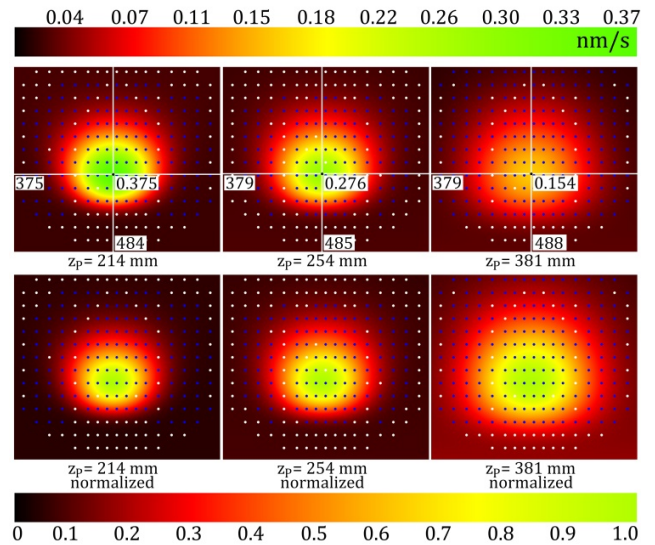
fulfilled for the desired area  $A_{UDA}$ , but the entire area  $A_{UDA}$  still cannot be used for production because the material properties  $n(\lambda)$  and  $k(\lambda)$  are not achieved everywhere on  $A_{UDA}$ . In practice, the distributions  $\Delta n(\lambda')$  and  $\Delta k(\lambda')$  at the desired wavelength  $\lambda'$  are determined in this context.

Furthermore, it is important to note that a maximum diameter  $D_{UDA,max}(\Delta d_{phys})$  for a circular shaped UDA can be determined for each distribution  $R(x, y)$  and a certain value  $\Delta d_{phys}$ . In other words: The achievable diameter  $D_{UDA,max}(\Delta d_{phys})$  is limited depending on the characteristics of  $R(x, y)$ . To support this allegation, a corresponding numerical calculation is presented in Fig. 3. It can be seen from the illustration that the larger the diameter of a UDA, the fewer suitable positions are available for the position of the substrate holder's rotation axis. The rotation axis must be adjusted more precisely in the process chamber.

### 3. RESULTS AND DISCUSSION

#### A. Stationary mounted rectangular substrate holder: Variation of distance $z_p$

2DCDs  $R(x, y)$  for different values of distance  $z_p$  were determined experimentally. Six coating runs with  $z_p$  in the range of 214–577 mm were performed on two different machines of the type NAVIGATOR 1100. In one case Xe was used, for the other coatings Ar was used as sputter gas for the ion sources. The 2DCDs with  $z_p = 659 \text{ mm}$  and  $z_p = 795 \text{ mm}$  were deposited with the new NAVIGATOR 2100 and Xe as sputter gas. The results are:

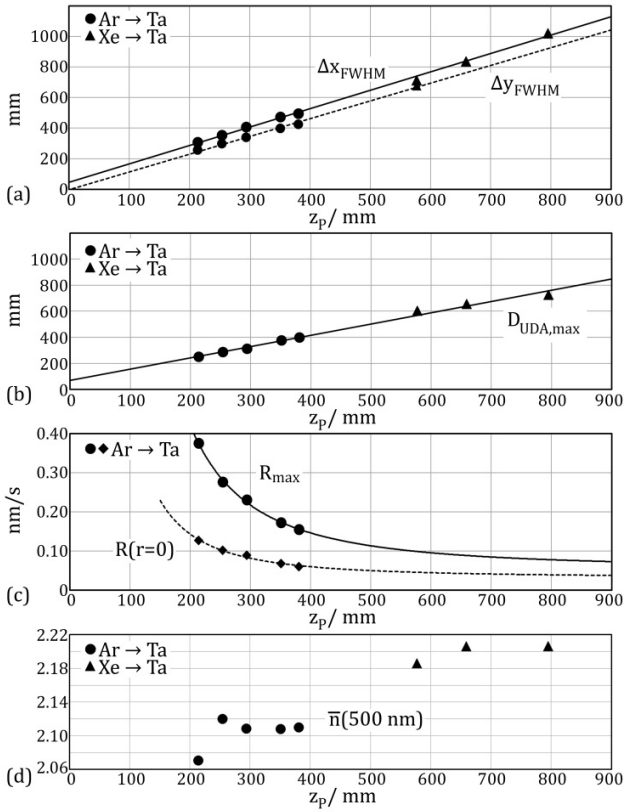


**Fig. 4:** 2DCDs  $R(x, y)$  for different values of distance  $z_p$ , deposited on NAVIGATOR 1100:  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  layers, Ta target, 1800 eV Ar ions, beam current 331 mA. The dimension of each plot area amounts  $1004 \times 900 \text{ mm}^2$  as shown in Fig. 1. The upper part shows that  $R_{max}$  decreases with increasing  $z_p$ . The lower part illustrates the broadening of the normalized distributions with increasing distance  $z_p$ .

- (1) As it can be seen in Figs. 4 and 6 the coordinates  $x_0$  and  $y_0$  of  $R_{max}$  are almost identical regardless of the value  $z_p$ . For the present process geometry, the material sputtered from a Ta target is distributed in such a way that the maxima of the

individual 2DCDs are aligning on a line vertically upwards (almost parallel to the z-axis).

- (2) As expected, the 2DCDs become broader with increasing distance  $z_p$  (Fig. 4 bottom part). More precisely, the full widths at half maximum  $\Delta x_{FWHM}$  and  $\Delta y_{FWHM}$  are directly proportional to  $z_p$  (Fig. 5(a)). This behaviour is explainable by the increasing propagation lengths of the sputtered particles, and does not depend on the sputter gas (Ar or Xe).
- (3) A direct consequence of the broadening of the 2DCDs is an increase of the achievable uniform deposition area  $A_{UDA}$ :  $D_{UDA,max}(1\%)$  is directly proportional to  $z_p$ , regardless of whether Ar or Xe is used (Fig. 5(b)).  $A_{UDA}$  increases quadratically.

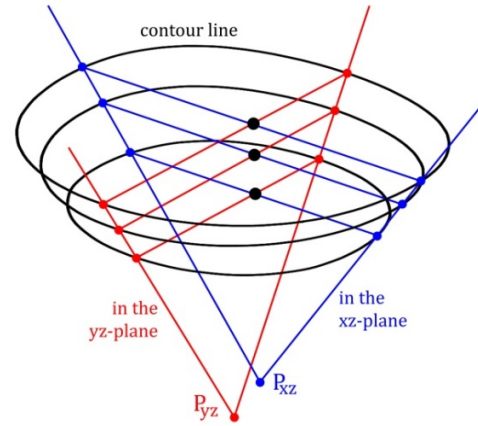


**Fig. 5:** Characteristic values of different 2DCDs depending on the distance  $z_p$ . For all coating runs with Ar the same ion beam current (331 mA) was applied. The slope of  $\Delta x_{FWHM}(z_p)$  in (a) amounts  $1.20 \cdot z_p$ . The slope of  $D_{UDA,max}(1\%)$  as a function of  $z_p$  in (b) amounts  $0.86 \cdot z_p$ . In case of Xe the ion beam currents amount to 240 mA or 420 mA. For this reason and due to different sputtering yields, no quantitative comparison between Ar and Xe is possible in (c). Thus, the Xe data is not shown in (c). The data points  $R(r=0)$  are numerically calculated by LTO from the 2DCDs and describe the expected coating rate on a rotating substrate holder for the values  $D_{UDA,max}(1\%)$  shown in (b). Both sets of data points  $R_{max}(r)$  and  $R(r=0)$  in (c) are approximated by  $A + B/z_p^2$ , where  $A = 0.055$  and  $B = 14593$  are the fitting parameters of  $R_{max}(r)$ .

- (4) The broadening of the 2DCDs is accompanied by a reduction of  $R_{max}$  (Fig. 4 upper part). A  $1/z_p^2$  behaviour could be verified

according to the Photometric law (Fig. 5(c)), although the sputtered particles do not originate from a point source but from an area with a certain size (see section 2).

- (5) The determined mean refractive indices  $\bar{n}(500 \text{ nm})$  confirm once again the observation already documented in [13], that the refractive index of a coated dielectric layer  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  is higher for Xe instead of Ar as used sputter gas. In the present study a difference of up to 6.5% was observed for  $\bar{n}(500 \text{ nm})$ , if all results are considered.
- (6) Far more significant for the realisation of large area coatings is the fact that there is no noticeable decrease of  $\bar{n}(500 \text{ nm})$  with increasing  $z_p$  (Fig. 5(d)). In the investigated range of  $z_p$  no influence of the mean free path on the resulting refractive index is observed. However, at the smallest distance  $z_p = 214 \text{ mm}$  a noticeable reduction of  $\bar{n}(500 \text{ nm})$  can be observed. It is assumed that the steep angles of incidence of the sputtered particles onto the coating plane have an impact on the thin film growth process [14].
- (7) The results from Fig. 5(a) indicate that it would be possible to model the individual material distributions, accumulated on the collector surfaces with different distances  $z_p$ , by a single common point source as the point of origin of the sputtered particles. The linear extrapolation to the point of origin in a 3D analysis, however, shows different points of origin depending on the plane considered (Fig. 6). This verifies that the present process geometry cannot be substituted by a single point source. The entire area on the target, which is eroded by the broad ion beam, must be modelled three-dimensionally as an emission surface for sputtered particles.



**Fig. 6:** Linear extrapolation to the point of origin in a 3D analysis. For 2DCDs with  $z_p = 214, 294$  and  $351 \text{ mm}$ , contour lines according to both relations  $R = C \cdot R_{max}$  and  $R_{vol}^C = 2.0 \text{ mm}^3/\text{min}$  are determined. Each contour line ( $C = 0.112, 0.159$  and  $0.189$ ) encloses an area with the same volumetric coating rate. The positions of the corresponding  $R_{max}$  are marked with black dots. The linear extrapolations result in different points of origin  $P_{xz}$  and  $P_{yz}$  depending on the plane considered (distance  $\overline{P_{xz}P_{yz}} = 84 \text{ mm}$ ).

It is particularly important to highlight the fact that the linear scaling laws found (Figs. 5(a) and 5(b)) are valid regardless of the sputter gas (Ar or Xe) applied for the ion source. The fact that the qualitative characteristics of 2DCDs are independent of the sputter gas has already been observed [13]. In addition, the linear broadening of the material



distributions (Fig. 5(a)) confirms the perception known from the theory of sputtering that the sputtered particles are (largely) uncharged, e.g. [15]. This means that the particles move on linear trajectories and their direction of propagation changes mostly as a result of collisions with other particles, not by the influence of electromagnetic fields.

It is equally important to understand to which factors the slopes of  $\Delta x_{FWHM}(z_p)$  and  $\Delta y_{FWHM}(z_p)$  are linked. Either they are the result of ion-solid interaction processes (sputtering) or they represent technical characteristics (e.g. rotationally symmetric broad ion beam, flat and tilted target) of the process. Finally, productivity of IBSD could be further increased with larger widths  $\Delta x_{FWHM}$  and  $\Delta y_{FWHM}$  at a smaller distances  $z_p$ .

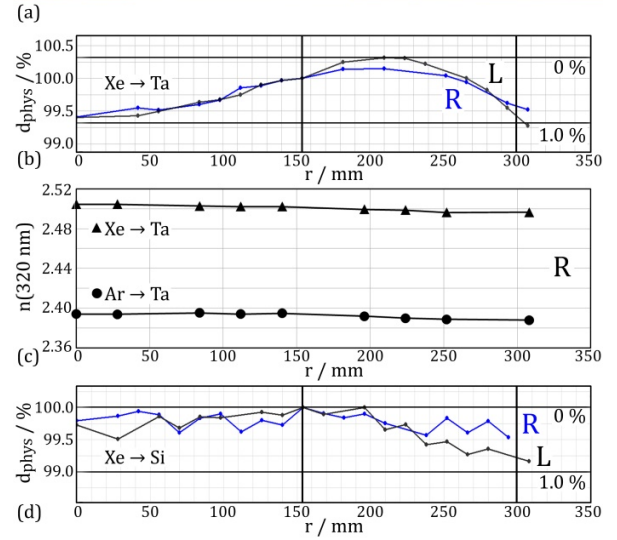
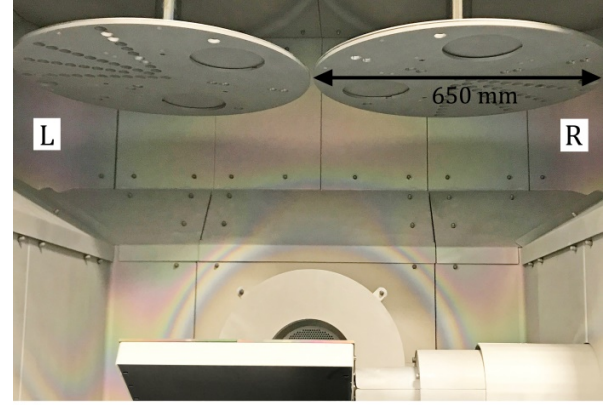
### B. Rotating circular substrate holder: Large area precision optical coatings by NAVIGATOR 2100

Based on the present investigation CEC's new IBS coating machine NAVIGATOR 2100 was designed. The deposition chamber and its main process components, oriented in a sputter-up configuration for high quality thin film production, are shown in Fig. 7(a). The concept takes the symmetry properties of the sputtering plume into account so that substrates on two substrate holders can be coated simultaneously. Both substrate holders rotate around their own axis of rotation and fulfill the criterion of  $D_{UDA,max}(1\%) \geq 600$  mm for Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> and SiO<sub>2</sub> without the application of masks (Fig. 7(b)).

With this approach, collection efficiency of the sputtered particles is doubled. This means that the production area per time unit is doubled. Alternatively, with two independent broadband optical monitoring systems, two different filters with similar thin film design can be produced simultaneously in one process (reducing of production time and increasing of material utilization).

Regarding the material property  $n(320$  nm) of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, the corresponding distributions for Ar and Xe are shown in Fig. 7(c). The determined variations within a diameter of 600 mm are  $\Delta n(320$  nm)  $\leq 0.7\%$  PV in both cases. On both production areas, each with a diameter of 600 mm, values  $k(320$  nm)  $\leq 9 \cdot 10^{-4}$  could be achieved for the extinction coefficient. For the chosen process geometry in the NAVIGATOR 2100, the variations shown in Figs. 2(b) – 2(d) do not appear to have an adverse effect on the growth process of the optical layers and the resulting distribution of material properties  $n(\lambda)$  and  $k(\lambda)$  depending on the radius  $r$ .

All other features known from a NAVIGATOR 1100 are also available in the NAVIGATOR 2100. The design of the machine also provides the installation of two assist ion sources, which would be aligned towards the substrate holders. In combination with broadband optical monitoring, high quality large area precision optical multilayer coatings can be produced.



**Fig. 7: (a):** IBS coating machine NAVIGATOR 2100, designed for sputter-up configuration and simultaneous deposition on two substrate holders (L: left, R: right). The pictured substrate holders have a diameter of 650 mm each. To generate a broad ion beam, the 2 MHz radio-frequency type ion source RIM-20 is installed. **(b):** Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> uniformity plots  $d_{phys}(r_i)$  (normalized to radius  $r = 154$  mm). The criterion  $D_{UDA,max}(1\%) \geq 600$  mm is fulfilled on both substrate holders L and R due to the mirror symmetry of the sputtering plume. **(c):** Radial dependence of the material property  $n(320$  nm) in case of Ar or Xe as sputter gas. The determined variations within a diameter of 600 mm are  $\Delta n(320$  nm)  $\leq 0.7\%$  PV for Ar and Xe. A difference of up to 4.7% can be observed for  $n(320$  nm) between Ar and Xe. **(d):** SiO<sub>2</sub> uniformity plots  $d_{phys}(r_i)$  (normalized to radius  $r = 154$  mm).

## 4. CONCLUSION

Two-dimensional thickness distributions of optical coatings (Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) on a plane collector above the target in dependence on the distance between the collector and the target were investigated. As a result linear scaling laws could be identified. The correlations found were used to design a new process geometry that allows areas with a diameter of 600 mm to be coated with a uniformity of 1%. By taking symmetry properties into account, the collection efficiency of the sputtered particles could be doubled. As a further result, the new

machine NAVIGATOR 2100 was designed for operation in industry and research facilities.

It is assumed that with the presented method, the uniform deposition area can be increased even further. However, in order to realize (1) extremely large-area IBS coatings with diameters of 1 m and larger or to coat (2) curved large-area surfaces in the future, it is necessary to fully understand the distribution of the sputtered particles (in the entire half-space above the target) in an industrial scale coating process. The assumption of a point source is insufficient for this according to the results obtained in the present study. The entire area on the target which is eroded by the broad ion beam must be modelled three-dimensionally as an emission surface for the sputtered particles.

**Funding.** The authors are grateful to the German Federal Ministry of Education and Research (BMBF) for the financial support of the research project PluTO<sup>plus</sup> (contract no. 13N13207).

**Acknowledgment.** The authors thank Dr. Marco Jupé (Laser Zentrum Hannover e.V.) for providing the fast ex-situ one-shot transmittance measurement device and Dr. Axel Scheibe (CEC) for his support in determining extinction functions  $k(\lambda)$  with the thin film design software SPEKTRUM (Laser Zentrum Hannover e.V.).

**Disclosures.** The authors declare no conflicts of interest.

## References

1. D. Ristau and T. Gross, "Ion beam sputter coatings for laser technology," in *Proceedings Volume 5963, Advances in Optical Thin Films II*, C. Amra, N. Kaiser, and H. A. Macleod, eds. (SPIE, 2005), **5963**, p. 596313.
2. C. J. Stolz and R. A. Negres, "Ten-year summary of the Boulder Damage Symposium annual thin film laser damage competition," *Opt. Eng.* **57**(12), 1–13 (2018).
3. L. Pinard, C. Michel, B. Sassolas, L. Balzarini, J. Degallaix, V. Dolique, R. Flaminio, D. Forest, M. Granata, B. Lagrange, N. Straniero, J. Teillon, and G. Cagnoli, "Mirrors used in the LIGO interferometers for first detection of gravitational waves," *Appl. Opt.* **56**(4), C11–C15 (2017).
4. D. Zou, C. L. Anyi, R. J. Thirkettle, K. U. Schreiber, and J.-P. R. Wells, "Sensing Earth rotation with a helium-neon laser operating on three transitions in the visible region," *Appl. Opt.* **58**(28), 7884–7891 (2019).
5. S. Melnikas, T. Tolenis, L. Smalakys, G. Batavičiūtė, A. Melnikaitis, and S. Kičas, "Enhancement of laser-induced damage threshold in chirped mirrors by electric field reallocation," *Opt. Express* **25**(22), 26537–26545 (2017).
6. T. Willemsen, M. Jupé, M. Gyamfi, S. Schlichting, and D. Ristau, "Enhancement of the damage resistance of ultra-fast optics by novel design approaches," *Opt. Express* **25**(25), 31948–31959 (2017).
7. T. Böntgen, T. Alig, I. Balasa, L. Jensen, and D. Ristau, "Advances in IBS Coatings for space applications on the topics of curved surfaces and laser damage," in *International Conference on Space Optics — ICSSO 2018*, Z. Sodnik, N. Karafolas, and B. Cugny, eds. (SPIE, 2019), **11180**, pp. 1539 – 1545.
8. H. Ehlers and D. Ristau, "Production strategies for high-precision optical coatings," in *Optical Thin Films and Coatings*, A. Piegari and F. Flory, eds., 2nd ed. (Woodhead Publishing, 2018), pp. 103–140.
9. O. Stenzel, S. Wilbrandt, J. Wolf, M. Schürmann, N. Kaiser, D. Ristau, H. Ehlers, F. Carstens, S. Schippel, L. Mechold, R. Rauhut, M. Kennedy, M. Bischoff, T. Nowitzki, A. Zöller, H. Hagedorn, H. Reus, T. Hegemann, K. Starke, J. Harhausen, R. Foest, and J. Schumacher, "Investigation of the refractive index repeatability for tantalum pentoxide coatings, prepared by physical vapor film deposition techniques," *Appl. Opt.* **56**(4), C193–C200 (2017).
10. M. Mende, J. Kohlhaas, and W. Ebert, "Ion beam sputtering for plane and curved optics on 2-meter scale," in *Proceedings Volume 9627, Optical Systems Design 2015: Advances in Optical Thin Films V*, M. Lequime, H. A. Macleod, and D. Ristau, eds. (SPIE, 2015), **9627**, p. 962710.
11. M. Gross, S. Dligatch, and A. Chtanov, "Optimization of coating uniformity in an ion beam sputtering system using a modified planetary rotation method," *Appl. Opt.* **50**(9), C316–C320 (2011).
12. A. Ribeaud, J. Pistner, H. Hagedorn, M. Brophy, P. Kupinski, J. Watson, and R. Hand, "Production of high laser induced damage threshold mirror coatings using plasma ion assisted evaporation, plasma assisted reactive magnetron sputtering and ion beam sputtering," in *Laser-Induced Damage in Optical Materials 2018: 50th Anniversary Conference*, C. W. Carr, G. J. Exarhos, V. E. Gruzdev, D. Ristau, and M. J. Soileau, eds. (SPIE, 2018), **10805**, pp. 134 – 142.
13. W. Sakiew, S. Schrameyer, M. Jupé, P. Schwerdtner, N. Erhart, K. Starke, and D. Ristau, "Influence of ion beam parameters onto two-dimensional optical thin film thickness distributions deposited by ion beam sputtering," *Thin Solid Films* **682**, 109–120 (2019).
14. H. Badorreck, M. Steinecke, L. Jensen, D. Ristau, M. Jupé, J. Müller, R. Tonneau, P. Moskovkin, S. Lucas, A. Pflug, L. Grinevičiūtė, A. Selskis, and T. Tolenis, "Correlation of structural and optical properties using virtual materials analysis," *Opt. Express* **27**(16), 22209–22225 (2019).
15. H. J. Barth, E. Mühling, and W. Eckstein, "Formation of different charge states and the charge state fractions of sputtered Ti and Ni," *Surf. Sci.* **166**(2), 458–479 (1986).

## 5.2 Artikel D: Impact of ion species on ion beam sputtered Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layer quality parameters and on corresponding process productivity: A preinvestigation for large-area coatings

### 5.2.1 Beitrag des Autors

Die Planung der Experimente erfolgte durch den Autor (Erstautor des Artikels D). Alle Auswerteroutinen wurden vom Autor programmiert. Philippe Schwerdtner hat in Zusammenarbeit mit und unter Anleitung des Autors die Experimente und Auswertungen durchgeführt. Mit der Bestimmung der Schichtzusammensetzung waren Andreas Pflug und Marco Jupé befasst. Alle Autoren des Artikels D haben zur Deutung der experimentellen Ergebnisse beigetragen. Das Manuskript wurde vom Erstautor verfasst und von allen Koautoren fachlich geprüft.



### 5.2.2 Publizierter Artikel

W. Sakiew, P. Schwerdtner, M. Jupé, A. Pflug, and D. Ristau, "Impact of ion species on ion beam sputtered Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layer quality parameters and on corresponding process productivity: A preinvestigation for large-area coatings," *Journal of Vacuum Science and Technology A*, vol. 39, no. 6, p. 63402, 2021, DOI: <https://doi.org/10.1116/6.0001224>

Eingereicht: 18.06.2021 | Akzeptiert: 09.08.2021

Dieser Artikel durchlief ein Peer-Review-Verfahren und wurde in der wissenschaftlichen Fachzeitschrift *Journal of Vacuum Science and Technology A*, die von American Vacuum Society (AVS) herausgegeben wird, veröffentlicht. Die Zweitveröffentlichung des Artikels im Rahmen dieser kumulativen Dissertation erfolgt mit Zustimmung durch [90] (Copyright 2021, AVS). AVS wurde über die Zweitveröffentlichung informiert (Email vom 24.05.2022).

#### **Ziele der Forschungsarbeit:**

- Das von einem Tantaltarget abgestäubte Material in einem reaktiven Beschichtungsprozess mit Hilfe von zweidimensionalen Beschichtungsratenverteilungen des Materials Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> untersuchen.
- Ionenspezies variieren und die Auswirkungen auf optische Schichteigenschaften und die Schichtzusammensetzung orts aufgelöst bestimmen.
- Beobachtete Schichteigenschaften mit Simulationen korrelieren.

#### **Ergebnisse der Forschungsarbeit:**

- Ionenspezies und der polare Streuwinkel werden in Übereinstimmung zu vorangegangenen wissenschaftlichen Arbeiten als kritische Einflussgrößen auch in einem industriellen Beschichtungsprozess bestätigt.
- Im Fall von Xenon als Ionenspezies wird eine räumlich begrenzte Degradation der optischen Schichteigenschaften im Schichtbildungsprozess beobachtet.
- Simulationen mit *SRIM-2013* unter der Annahme eines Punktstrahlers als Emissionsquelle für alle Sekundärteilchen liefern keine eindeutige Erklärung für die beobachtete lokale Degradation.

# Impact of ion species on ion beam sputtered Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layer quality parameters and on corresponding process productivity: A preinvestigation for large-area coatings

Cite as: J. Vac. Sci. Technol. A 39, 063402 (2021); doi: 10.1116/6.0001224  
Submitted: 18 June 2021 · Accepted: 9 August 2021 ·  
Published Online: 14 September 2021



Wjateschleslaw Sakiew,<sup>1,a)</sup>  Philippe Schwerdtner,<sup>1</sup> Marco Jupé,<sup>2,3</sup> Andreas Pflug,<sup>4</sup> and Detlev Ristau<sup>2,3</sup> 

## AFFILIATIONS

<sup>1</sup>Cutting Edge Coatings GmbH, Garbsener Landstrasse 10, 30419 Hannover, Germany

<sup>2</sup>Laser Zentrum Hannover e.V., Hollerithallee 8, 30419 Hannover, Germany

<sup>3</sup>Cluster of Excellence PhoenixD (Photonics, Optics, and Engineering—Innovation Across Disciplines), Leibniz University Hannover, 30167 Hannover, Germany

<sup>4</sup>Fraunhofer Institute for Surface Engineering and Thin Films IST, Bienroder Weg 54 e, 38108 Braunschweig, Germany

<sup>a)</sup>Author to whom correspondence should be addressed: [w.sakiew@gmail.com](mailto:w.sakiew@gmail.com)

## ABSTRACT

The demand for ion beam sputtering-coated substrates is growing. In order to introduce ion beam sputter deposition (IBSD) technology into new fields of application, the deposition area must be further increased. In this context, the ion species applied for the sputtering process is an important parameter. In the present investigation, an industrial scale IBSD process was characterized with respect to productivity and layer quality by varying the ion species. Ar, Kr, or Xe broad ion beams at an ion energy of 1.8 keV were used, and the evaluation was carried out on the basis of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layers. The dielectric films were produced in a reactive process through the sputtering of a metallic Ta target, and their two-dimensional distributions of the coating rate  $R$ , the refractive index  $n(320\text{ nm})$ , and the extinction coefficient  $k(320\text{ nm})$  were determined over a planar area of  $0.9 \times 1.0\text{ m}^2$  above the target by the collection method.  $R$  served as a measure of productivity, while  $n(320\text{ nm})$  and  $k(320\text{ nm})$  were quality parameters. Additionally, the layer composition was determined for selected samples on the collector by an electron probe microanalyzer (EPMA). As expected, the different ion-solid interaction mechanisms resulted in significant differences with regard to productivity. Linear scaling of productivity as a function of ion mass was observed. Calculations of the sputtering yield with semiempirical models or SRIM-2013, a binary collision Monte Carlo simulation program, did not confirm the observed linearity. Furthermore, the configuration with the highest productivity, Xe, led to a locally occurring and significant reduction in layer quality, more precisely, an increase of  $k(320\text{ nm})$ . Additionally, the layer compositions determined with EPMA confirmed that ions originating from the ion source were implanted in the thin films during their formation. A detailed evaluation of the angle-resolved energy distributions of the involved particles, simulated with SRIM-2013, was performed. However, the determination of the energies carried away from the target by backscattered ions and sputtered target atoms does not explain the observed degradation mechanism. This concludes that for the realization of future large-area coatings with IBSD, not all relevant mechanisms are yet understood in sufficient detail.

Published under an exclusive license by the AVS. <https://doi.org/10.1116/6.0001224>

## I. INTRODUCTION

Ion beam sputter deposition (IBSD) is well known for superior quality parameters, high layer precision, high process stability, high process repeatability, and low productivity in thin-film production compared to other physical vapor deposition (PVD)

techniques.<sup>1–3</sup> Dispersive mirrors for ultrafast laser systems<sup>3</sup> and low-loss mirror coatings for gravitational wave detectors<sup>4,5</sup> and ring laser gyroscopes for inertial rotation measurements<sup>6</sup> are prominent high-performance applications. With the achievable quality parameters, ion beam sputtering (IBS) coatings are also well suited for

high-power lasers<sup>7</sup> and space applications.<sup>8</sup> From current and previous developments in the field of IBSD, the following are particularly noteworthy: ternary oxides and Rugate technology through co-deposition,<sup>9</sup> magnetic field guiding technique,<sup>10</sup> and Nanolaminate sequences.<sup>11</sup> Other important components for the further development of PVD technology in general are the implementation of deep search methods in the coating design optimization process,<sup>12</sup> new algorithms in optical monitoring,<sup>13</sup> and process modeling and film growth simulations.<sup>14–16</sup>

With regard to the size of the realizable uniform deposition area (UDA), there is still a large backlog demand. Currently, in IBSD, the typical sizes of a UDA with a common uniformity of 1.0% peak-to-valley of the physical thicknesses are still in the range from 200 to 400 mm in diameter in industrial environments. The largest circular-shaped optical part coated by IBSD, so far as documented in open literature, was produced at the Laboratoire des Matériaux Avancés and measured 550 mm in diameter.<sup>17</sup> Following the trend toward large-area coatings, two IBSD machines are already available on the market that allow UDAs up to a diameter of 600 mm.<sup>18,19</sup> Furthermore, taking into account a highly customized IBSD process, an enormous increase in a UDA in one dimension was realized by applying a linear translation stage with a resulting uniformity of  $\pm 1.0\%$  on  $2000 \times 200 \text{ mm}^2$  for excimer laser annealing optics.<sup>20</sup>

In comparison, noticeably larger deposition areas are achieved with magnetron sputtering (MS). A prominent example is the PACA2M machine at CILAS, with which uniformities better than 5% on a size of  $2 \times 2 \text{ m}^2$  can be achieved.<sup>21,22</sup> In particular, MS technology still dominates IBSD in large-area, high-quality, metallic coatings, such as multilayer mirrors for EUV lithography<sup>23</sup> (EUVL), multilayer-based x-ray optics,<sup>24</sup> and aluminum- or silver-based reflective coatings for telescope mirrors (e.g., primary mirror segments of the Extremely Large Telescope,<sup>25</sup> each with a diameter of  $\sim 1.45 \text{ m}$ ). In contrast, IBSD is still the technology of choice for applications where low defect density is essential, such as low-loss mirror coatings<sup>3–6</sup> or multilayer metallic coatings for EUVL mask blanks.<sup>26,27</sup> The broadband antireflection coating on both surfaces of the world's largest fused silica lens with a diameter of 1570 mm,<sup>28</sup> produced by Safran Reosc company for the Vera C. Rubin Observatory (Large Synoptic Survey Telescope), further exemplifies large-area coating by a PVD process. Reference 22 presents some additional examples.

Transferring the quality parameters of today's IBSD coatings to significantly larger deposition areas would represent technological progress and extend the capabilities of PVD technology, especially in astronomy and space applications. A further conceivable future field of application would be the production of meter-sized, high-power laser optics for large optical systems, such as those at the Extreme Light Infrastructure facility.<sup>7</sup> The present investigation aims to contribute to this endeavor.

A key element in IBSD technology is the ion beam (primary particles), by which target atoms (secondary particles) are sputtered from a target surface. The spatial separation of the process steps—(1) ion beam generation, (2) ion-solid interaction at the target, and (3) thin film growth on the substrate—gives the flexibility to influence the individual mechanisms and thus to tailor the thin film properties, which is a major advantage of IBSD.

However, there is also an underestimated disadvantage. In the energy range relevant for optical thin-film technology (low-energy range, ion energy  $< 2 \text{ keV}$ ), when the energetic ions impinge on the target surface, not only are target atoms sputtered from the target, but also ions are partially backscattered at the target surface. It has long been documented that “the bombardment of a growing film during deposition with energetic particles of various types is generally the rule, rather than the exception, in almost all types of plasma-based or ion-beam-based film deposition techniques” (Ref. 29).

In this regard, the Leibniz-Institut für Oberflächenmodifizierung e.V. (IOM) has carried out systematic and comprehensive investigations for diverse ion species and target material combinations in recent years, e.g., Refs. 30–35, and showed (for a scientific setup) that scattered primary particles (Ar or Xe) are implanted into growing semiconductor or dielectric layers during IBSD even in the low-energy range and that thin film properties are influenced by the scattered particles. Furthermore, “sputtered and scattered particles can gain a maximum energy of several hundred eV” (Ref. 30), which is significantly higher than the threshold energy for sputtering a layer growing in the coating plane. A plausible conclusion, therefore, is that a certain part of the film-forming particles—the sputtered secondary particles and scattered primary particles—leads to resputtering the growing film, and especially preferential sputtering<sup>36</sup> if it is a composite layer; this results in changes to the structure, composition, and stoichiometry of the layers. Thus, energetic particles in the IBSD process not only enable dense and amorphous layers but can also damage the layers. Therefore, the angular and energy distributions of both sputtered and scattered particles are of major importance.

In conclusion, the focus of the present work is to study this phenomenon in an industrial scale, reactive, IBSD process. The collection method was applied, and only the ion species (Ar, Kr, or Xe) was varied, through which the ion-solid-interaction mechanisms were changed. Ar is the most common working gas for ion sources in IBSD processes for optical thin-film production. Xe is not widely used due to the high purity required (not available everywhere) and the high price, and Kr seems to be used even less than Xe based on practical experience. Ta was applied as the target material because  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  is one of the most frequently used “high-index” materials in optical thin-film technology. The results are compared and spatially resolved in terms of layer quality (refractive index and extinction coefficient, both at a wavelength of 320 nm), layer composition, and process productivity.

Furthermore, the experimental results are compared with results from the revised Bohdansky<sup>37</sup> and Yamamura<sup>38</sup> semiempirical models and from simulations with “The Stopping and Range of Ions in Matter” (SRIM-2013)<sup>39</sup> to provide an idea of which particles contribute which quantities and energies to the layer growth process.

It is important to highlight the fact that a high uniformity of physical thicknesses, i.e., a small variation of physical thicknesses, and a high productivity are useless if the layer quality does not meet the requirements over the entire deposition area. In this respect, and as already proposed for instance in Ref. 22, a UDA must also be related to the variation of the quality parameters. The present study builds thematically and methodically on previous studies.<sup>18,40,41</sup>

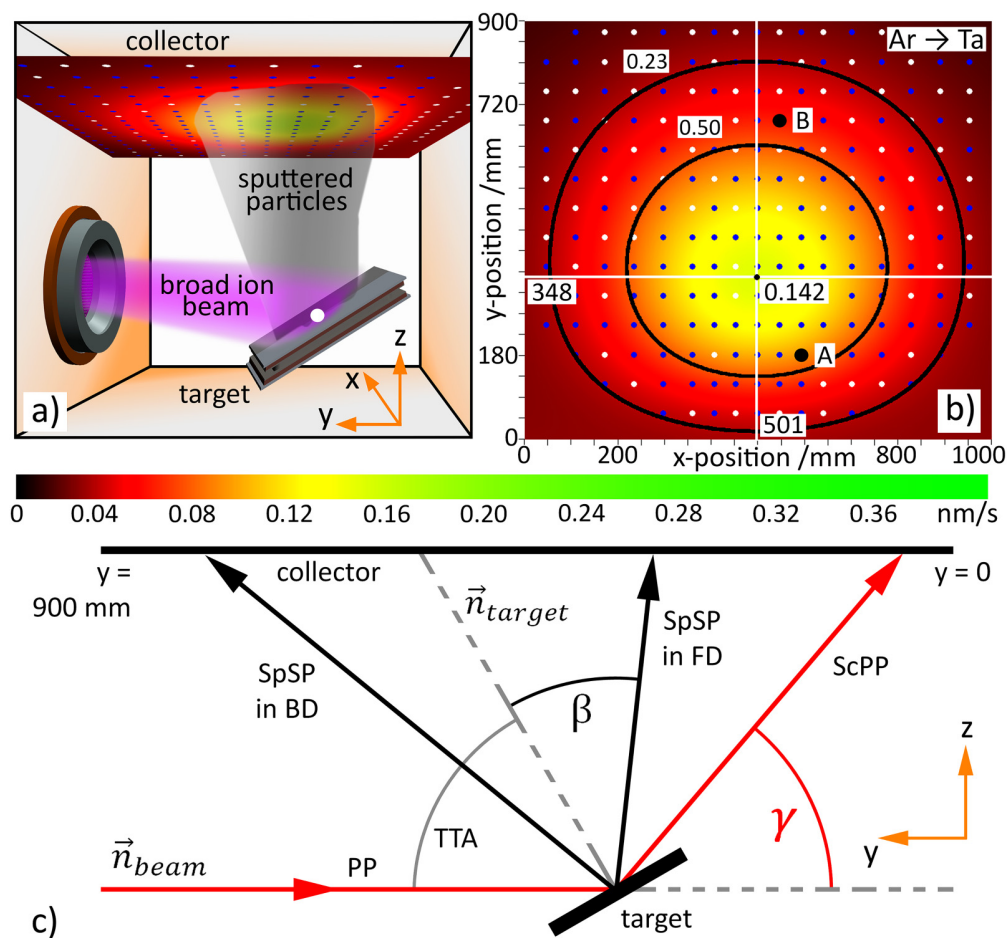
## II. METHODOLOGY

### A. Sample preparation

All Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin films in the present investigation were produced with the NAVIGATOR 1100, an industrial-scale IBS coating machine with a sputter-up configuration of the main process components manufactured by Cutting Edge Coatings GmbH (CEC). Figures 1(a) and 1(c) illustrate the process geometry. In this context, “industrial scale” in comparison to a scientific setup (e.g., Refs. 30–35) means a larger ion source, broader ion beam, higher beam currents, larger erosion profile on the target, denser process atmosphere, and longer propagation lengths of all particles.

An important consequence is that the ions do not impinge on the target at a certain single position and a single specific angle of incidence, but at different positions on the target, and also with a certain distribution of angles of incidence. This fact manifests itself through a broad erosion profile on the target.<sup>41</sup> As a result, effects occurring during sputtering that affect the layer properties in the coating plane are broadened—in the following referred to as (R1)—and cannot be assigned to a single specific emission angle or position on the target.

To generate a broad ion beam, the 2 MHz radio-frequency type and inductively coupled ion source RIM-20 was applied.<sup>41,42</sup> Ar, Kr, or Xe was used as the working gas for the ion source to



**FIG. 1.** (a) Schematic view of the deposition process. Above the target, a 2D coating rate distribution  $R(x, y)$  is illustrated in the coating plane of the stationary mounted plane rectangular substrate holder (collector). The white dot on the target represents the maximum erosion depth. (b)  $R(x, y)$  coated with CEC’s NAVIGATOR 1100: Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, 1.8 keV Ar ions, beam current 360 mA, target tilt angle TTA = 60°,  $T = 10\,712$  s,  $R_{max} = 0.142$  nm/s,  $x_0 = 501$  mm,  $y_0 = 348$  mm,  $\Delta x_{FWHM} = 560$  mm, and  $\Delta y_{FWHM} = 498$  mm (parameters are explained in Sec. II C). The positions  $(x_i, y_i)$  of the substrates are marked with blue dots. No substrates were coated at the positions of the white dots. The black solid lines are contour lines according to the relation  $R = C \cdot R_{max}$  with  $C = 0.50$  and  $C = 0.23$ . At two positions A and B, the layer composition was determined. All values are summarized in Table V. (c) Schematic view of the sputtering geometry in a plane spanned by  $\vec{n}_{beam}$  and  $\vec{n}_{target}$ .  $\vec{n}_{target}$  separates the sputtered secondary particles in the forward direction (SpSP in FD) from those in the backward direction (SpSP in BD).  $\beta$  is the polar emission angle of SpSP and  $\gamma$  is the polar scattering angle of the scattered primary particles (ScPP). (Color online.)

sputter from a Ta target with an ion energy of 1.8 keV and a beam current of 360 mA. The Ta target was tilted (target surface normal  $\vec{n}_{\text{target}}$  relative to the symmetry axis  $\vec{n}_{\text{beam}}$  of the ion beam) at a target tilt angle (TTA) of 60°, as illustrated in Fig. 1(c). To compensate for the space charge, in all NAVIGATORS, a radio frequency neutralizer operates simultaneously with the ion source as a filament-free electron source. The coating process with Kr was not performed on the same NAVIGATOR 1100 like the other two processes. However, except for the ion species and the coating duration  $T$ , all the process parameters and the process geometry were set as identical for the three coating runs.

To determine the quality parameters of the layers at different positions in the process chamber and the productivity of a process, the collection method was applied. Two spherical and planar substrate holders or collector geometries, respectively, are convenient for this purpose. A spherical collector has the advantage of starting from a pointlike sputtering geometry, where all propagation lengths up to the collector are identical and all particles impinge on the collector at a normal angle of incidence. When the investigation is limited to the polar angle, the collector simplifies to a circular arc (e.g., Refs. 30–35). However, due to the broad erosion profile's size compared to the collector distance, and as a result of Ref. 18, the present sputtering geometry can rather not be approximated by a single, common point of origin of all sputtered particles. In light of this, and since plane substrate holders are typically used in IBSD, for the present investigation, a plane collector was utilized. The observed stationary planar area above the target with dimensions of  $0.9 \times 1.0 \text{ m}^2$  covered nearly the complete cross section of the process chamber, as illustrated in Fig. 1(a). The image of a process accumulated on the plane collector, as shown in Fig. 1(b), is distorted in the sense of the photometric law—in the following referred to as (R2)—because the propagation lengths of the sputtered particles from the target to the individual positions on the collector differ and because the corresponding angles of incidence vary.<sup>43</sup> Figure 1(c) illustrates this by two emission directions of the secondary particles: the forward direction (SpSP in FD) and backward direction (SpSP in BD). Nevertheless, to evaluate the layer's quality parameters in terms of the polar scattering angle  $\gamma$ , as in Refs. 30–35, a pointlike sputtering geometry was assumed at the location of the erosion maximum on the target [white dot in Fig. 1(a)], even though it is in contradiction with (R1) and (R2). Furthermore, only polar angles oriented in a plane spanned by  $\vec{n}_{\text{beam}}$  and  $\vec{n}_{\text{target}}$  were considered. Under these conditions, the collector mapped  $\gamma$  in the angular range of 57°–141°.

To summarize, two important process parameters affecting the layer formation process—polar scattering angle  $\gamma$  and ion species<sup>30</sup>—were experimentally investigated in this study, whereby, in repetition, due to (R1) and (R2), the angle  $\gamma$  is only to be considered as a rough approximation.

In each coating run, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> single layers were formed in an O<sub>2</sub> atmosphere (90 SCCM) on quartz (Suprasil) and glass (B270) substrates, both with diameters of 25 mm, and almost evenly distributed on the collector at positions  $(x_i, y_i)$ , as can be seen in Fig. 1(b). The working pressure was in the range of  $5\text{--}9 \times 10^{-4}$  mbar, depending on the process and on the position in the process chamber. In this context, and concerning the comparison of experimental results with model calculations, it is essential to highlight that in a

reactive IBSD process, the sputtering may be modified by a potential compound formation on the target surface. This effect, target poisoning, is mainly known from reactive MS and is described by Berg's model<sup>44</sup> or also by the RSD2013 model.<sup>45</sup> In the case of IBS, only a few detailed investigations on this topic are known, e.g., Refs. 31 and 46. However, it is plausible that a continuously forming compound layer on the target surface—an oxide layer in the case of an O<sub>2</sub> atmosphere—must also be constantly sputtered so that the yield for sputtering the actual target material is lowered.

Some selected samples were annealed in the air after deposition to study the changes in the refractive index and the extinction coefficient. This posttreatment was carried out at a temperature of 350 °C and a duration of 10 h.

## B. Layer characterization

After the deposition process, each produced sample was characterized in the direction of transmission within a wavelength range of 250–2000 nm and at an almost normal angle of incidence ( $\leq 3^\circ$ ) using a spectrophotometer (PerkinElmer LAMBDA 1050 UV/Vis/NIR). Subsequently, in order to determine the physical thickness  $d_{\text{phys}}$ , the dispersion function  $n(\lambda)$ , and the extinction function  $k(\lambda)$  for each sample, the measurement curves were evaluated with thin film design software SPEKTRUM (Laser Zentrum Hannover e. V., LZH). In total, 435 samples were produced and characterized.

For the calculation of  $d_{\text{phys}}$ , no distinction was made between the substrate materials. For the calculation of  $k(\lambda)$ , however, only layers coated on quartz substrates were taken into account in order to ensure the highest possible accuracy. The same applies to the calculation of  $n(\lambda)$  in the case of the coating processes with Ar and Xe. In the case of Kr, for the calculation of  $n(\lambda)$ , layers on glass substrates were considered too, as an insufficient number of samples with quartz substrates were available (Table IV). This may cause the calculation results to fluctuate more because the properties of the glass substrates vary more than those of the quartz substrates.

In order to determine the layer composition of the selected samples, electron probe microanalysis (EPMA) measurements were carried out at the Fraunhofer Institute for Surface Engineering and Thin Films IST. The positions on the collector are marked with A and B in Fig. 1(b). The accuracy of a quantitative EPMA analysis depends on the atomic species in the examined layer but is typically below 0.01 weight percent with a maximum spatial resolution of 40–200 nm.<sup>47</sup> The measurements were performed at an energy of 8 keV and an electron current of 100 nA. To avoid falsification of the results by the substrate material (quartz or glass), substrates made of Si were used at positions A and B on the collector. In the case of Kr, no EPMA measurements could be performed.

## C. Data analysis

The following procedure was chosen to quantify the process productivity. First, each discrete data record of thicknesses  $d_{\text{phys}}(x_i, y_i)$  was approximated by an empirical function  $R(x, y) = d_{\text{phys}}(x, y)/T$ .<sup>41</sup> Using the factor  $1/T$ , the comparability of thin films resulting from coating runs with different coating times  $T$  was ensured. As a result of the approximation procedure, the



following characteristic values of a two-dimensional coating rate distribution (2DCD) are accessible:  $R_{\max}$  (maximum coating rate),  $x_0$  and  $y_0$  (coordinates of  $R_{\max}$ ),  $\Delta x_{\text{FWHM}}$  and  $\Delta y_{\text{FWHM}}$  (full width at half maximum, FWHM, in the x-direction at y-position  $y_0$  and in the y-direction at x-position  $x_0$ ), and  $R_{\text{vol}}^C$  (volumetric coating rate, numerically integrated over the entire plot area in the case of  $C = 0$ ). Second, to ensure the comparability of different distributions, the considered integration area was specified by  $R \geq C \cdot R_{\max}$ , where  $C = 0.23$ . Figure 1(b) clarifies this. Finally,  $R_{\max}$  and  $R_{\text{vol}}^{0.23}$  were used to quantify the productivity of a process. More details on 2DCDs are presented in Refs. 18 and 41.

In order to investigate the spatially resolved layer quality, 2D distributions of the refractive index  $n(x_i, y_i, \lambda')$  and extinction coefficient  $k(x_i, y_i, \lambda')$  were selected, with  $\lambda' = 320 \text{ nm}$ <sup>18,48</sup> as the reference wavelength. These were transformed by a bilinear interpolation to the distributions  $n(x, y, \lambda')$  and  $k(x, y, \lambda')$  only for visualization purposes. Furthermore, each discrete data record  $n(x_i, y_i, \lambda')$  and  $k(x_i, y_i, \lambda')$  was characterized by values  $n_{\max}$ ,  $n_{\min}$ ,  $k_{\max}$ , and  $k_{\min}$ , as well as the statistical values,

$$n_{\text{mean}} = \frac{1}{N} \cdot \sum_1^N n(x_i, y_i, \lambda') \quad (1)$$

and  $k_{\text{mean}}$  [equivalent to Eq. (1)]. To reduce the impact of potential locally occurring variations in the material data distributions on the statistical values, the mean values were additionally output in the forms  $n'_{\text{mean}}$  and  $k'_{\text{mean}}$ , for which the initial datasets were reduced to the intervals  $n_{\text{mean}} \pm s$  and  $k_{\text{mean}} \pm s$ , respectively, with  $s$  being the corresponding standard deviation. In the case of the quality parameters, no model function was applied, as in the case of 2DCD. Hence, the spatial accuracy of the quality parameter analysis was limited to the number of data points available. All calculated values are summarized in Table V.

#### D. Numerical simulation of the particles involved

The experimental results are compared with results from the revised Bohdansky model,<sup>37</sup> Yamamura model,<sup>38</sup> and SRIM-2013.<sup>39</sup> The two semiempirical and widely used models are utilized for calculations of sputtering yields  $Y$ . SRIM-2013, a popular binary collision Monte Carlo simulation program, is used to calculate total and angle-resolved 2D energy distributions of the sputtered secondary particles and the backscattered primary particles.  $Y$  is also calculated in SRIM-2013. One goal is to compare the relation between ion mass and the resulting productivity parameters observed in the experiments with yield calculations (Sec. III A). Another purpose is to relate irregularities in the quality parameters of the layers (Sec. III B) to the energy distributions of the particles involved (Secs. IV A and IV B).

A significant distinguishing feature is the interaction potential used. The revised Bohdansky model uses the Kr-C potential, the Yamamura model is based on the Thomas–Fermi potential (the revised Yamamura model is also based on Kr-C), and SRIM-2013 utilizes the Ziegler–Biersack–Littmark (ZBL)<sup>49</sup> potential. For each of the three ion species, Ar, Kr, and Xe, an amount of  $N_{\text{prim}} = 10^6$  primary particles are simulated with SRIM-2013. As in the experiment (Sec. II A), an ion energy of 1.8 keV and an angle

of incidence on the target of  $\alpha = \text{TTA} = 60^\circ$  are chosen. Thus, low-energy, heavy ions are simulated impinging on a target composed of heavy atoms. In all three cases, the reduced energy<sup>50</sup> is in the  $10^{-3}$  range, so the choice of the proper potential becomes essential for the calculation result.<sup>50</sup> The surface binding energy is approximated by the heat of sublimation;<sup>51</sup> for Ta, this value is 8.1 eV.

Both semiempirical models assume a monoatomic target. Therefore, a monoatomic target is also chosen for the simulations in SRIM-2013, even though it is plausible that the target surface is enriched with ions by implantation. However, the implanted primary particles are continuously removed from the surface by sputtering. Thus, in a balanced state, a certain concentration of primary particles is established on the target surface. The corresponding value is not known for the experimental conditions here. In Refs. 31 and 35, for instance, the simulation of Ti target sputtering with Ar and Xe was performed with a concentration of into-the-target implanted primary particles of 10%. Different effects result from this, such as the sputtering and scattering of primary particles by primary particles.<sup>30–35</sup> Most importantly, the yield for the secondary particles is expected to decrease because the implanted primary particles have to be sputtered as well. Nevertheless, for the present study, a pure Ta target is assumed, and probably even more importantly, a compound formation on the target surface<sup>31,44–46</sup> is neglected.

If one imagines the sputtering process simplified as a perfect elastic collision, then it results from the mass ratios of the particles involved that the energy of the ions after the collision is highest in the case of Ar. On the other hand, the energy of the Ta particles after the collision would be expected to be highest in the case of Xe.

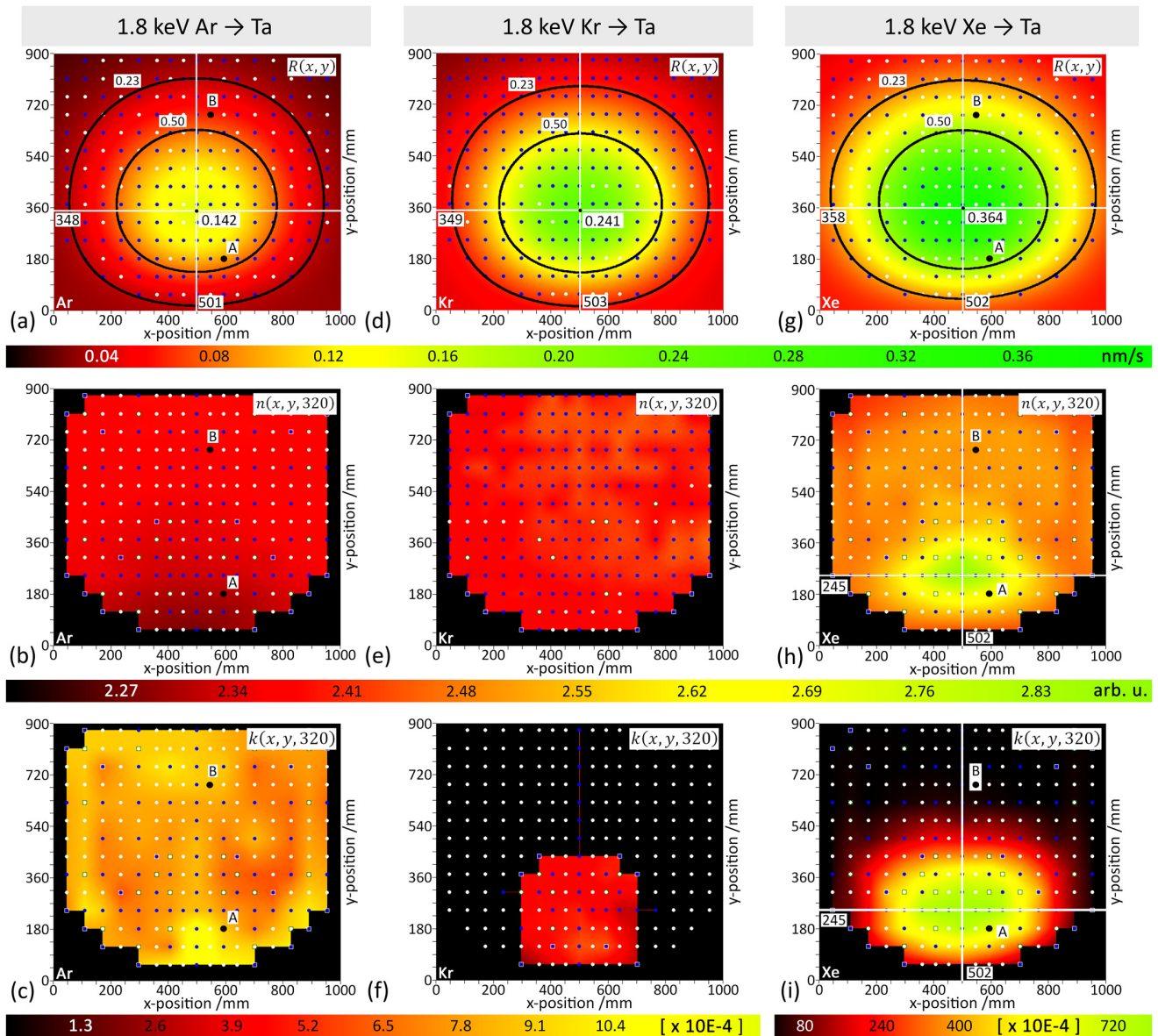
### III. EXPERIMENTAL RESULTS AND DISCUSSION

#### A. Productivity parameters

As shown in Figs. 2(a), 2(d), and 2(g), the amount of coated material per unit time increases when changing from Ar to Kr and Kr to Xe. Figure 3(a) illustrates this result with corresponding sectional views. More precisely, Fig. 3(c) reveals that both  $R_{\max}$  and  $R_{\text{vol}}^{0.23}$  appear to scale linearly and even almost identically as a function of ion mass. Rows 6 and 7 in Table V express this result numerically. In this respect, as expected, an IBSD process' productivity depends significantly on the ion species or ion-solid interaction mechanisms. A similar result is documented in Ref. 41 for Ar and Xe in combination with Ta and Ti.

However, if productivity values  $R_{\max}$  and  $R_{\text{vol}}^{0.23}$  obtained are compared with calculated sputtering yields  $Y$ , considerable deviations arise. Figure 3(c) shows that both  $Y$  calculated with two different semiempirical models<sup>37,38</sup> (marked B and Y) and  $Y$  simulated with SRIM-2013<sup>39</sup> (marked S), each normalized to corresponding argon's values, turn out to increase differently compared to the experimentally determined productivity parameters. If error margins in the range of  $\pm 20\%$  are assumed for the semiempirical models,<sup>52</sup> then the associated yields (normalized to argon's values) can be brought into agreement with the productivity parameters. Nevertheless, it appears that the calculated yields are underestimated at large ion masses. Particularly noteworthy in this comparison is that productivity values from an experiment with a broad



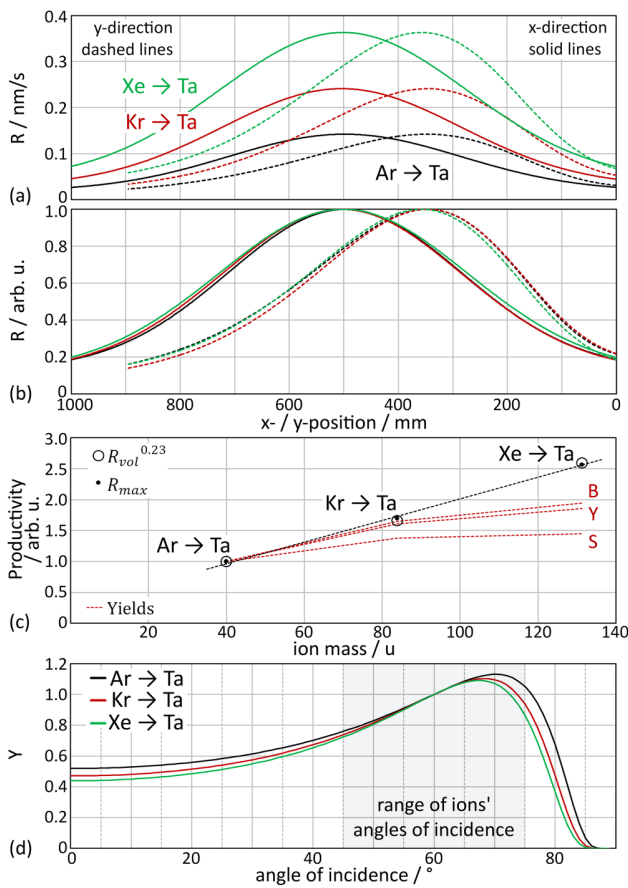


**FIG. 2.** Experimental results for the ion species Ar (a)–(c), Kr (d)–(f), and Xe (g)–(i). In (a), (d), and (g), the 2DCDs approximated by the empirical model function  $R(x, y)$  (Ref. 40) are shown. The two-dimensional distributions of the refractive index  $n(x, y, 320 \text{ nm})$  and extinction coefficient  $k(x, y, 320 \text{ nm})$  are presented in the form of bilinear interpolations  $n(x, y, 320 \text{ nm})$  in (b), (e), and (h) and  $k(x, y, 320 \text{ nm})$  in (c), (f), and (i). Due to a lack of data, only a portion of the area is shown in (f). However, the relevant range is mapped where a potential increase in extinction coefficients would be expected. In (f), all 14 data points are available for the coordinate  $x = 502 \text{ mm}$  (shown in detail in Fig. 4) (Color online).

ion beam are compared with yield calculations for which a single angle of incidence  $\alpha = \text{TTA} = 60^\circ$  is assumed. It is estimated that in the experiment the angles of incidence of the ions on the target vary in the range of  $60^\circ \pm 15^\circ$ , with most ions impinging on the target at  $60^\circ$  and the amount of ions decreasing with increasing distance from  $60^\circ$ . A quantitative comparison can therefore not be

attempted. A qualitative comparison, on the other hand, is helpful if the angle-dependent yields  $Y(\alpha)$  are qualitatively similar. Such a precondition is given according to the revised Bohdansky model, as shown in Fig. 3(d).

Nevertheless, many other reasons are conceivable that could lead to deviation between the calculations and the experimental



**FIG. 3.** Experimental results: one-dimensional distributions  $R(x, y_0)$  and  $R(x_0, y)$  along the axes of symmetry as approximated (a) and after normalization (b). The abscissa belonging to both (a) and (b) is shown inverted to represent the same perspective as in Fig. 1. In (c), the productivity parameters  $R_{\max}$  and  $R_{\text{vol}}^{0.23}$  are shown as a function of ion mass. The black dashed line shows the linear interpolation for  $R_{\max}$ , and the red dashed lines show the yields  $Y$  calculated with the Bohdansky model (Ref. 37) (B), Yamamura model (Ref. 38) (Y), and SRIM-2013 (Ref. 39) (S). All distributions in (c) are normalized to argon's corresponding values. The angle-dependent yields  $Y(\alpha)$ , calculated with the Bohdansky model and normalized to the corresponding value at  $\alpha = \text{TTA} = 60^\circ$ , are shown in (d). The gray area indicates the estimated range of incidence angles at which the ions impinge on the target. (Color online.)

data shown in Fig. 3(c). The ion currents extracted by the ion optic were set identically for all three ion species. However, the particle currents impinging on the target are probably subject to certain variations due to (i) ion-species-dependent focusing properties of the ion optic and (ii) different interaction mechanisms, e.g., different mean free path lengths, during the propagations of broad ion beams through the process atmosphere. A similar effect is conceivable for the secondary particles. As a consequence of different ion species, (iii) certain variations in the angular and energy distributions of the sputtered particles could affect their propagation

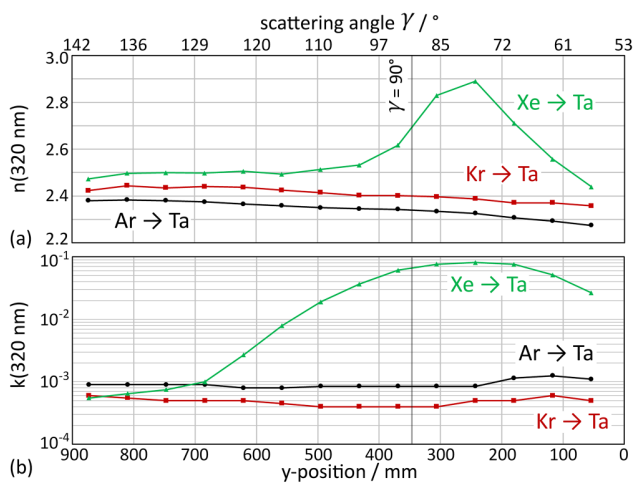
properties between the target and the collector. Furthermore, (iv) compound formation on the target surface, (v) implanted primary particles, (vi) varying sticking coefficients, or (vii) resputtering of the particles deposited on the collector by the film-forming particles themselves would also quantitatively affect the productivity parameters. Apart from that, the different interaction potentials listed in Sec. II D possibly contribute to the obtained deviations among the semiempirical models and SRIM-2013.

Compared to the quantitative variation of the 2DCDs, their qualitative variation appears to be relatively small, as Figs. 2(a), 2(d), 2(g), 3(a), and 3(b) show. Only marginal variations in the positions of the maxima and the FWHM of the 2DCDs are observed. The corresponding characteristic values  $x_0$ ,  $y_0$ ,  $\Delta x_{\text{FWHM}}$ , and  $\Delta y_{\text{FWHM}}$  are summarized in Table V (rows 2–5). Although different sputtering processes at the atomic level are compared here by varying the ion species, only minor differences in the macroscopic material distributions on the collector arise from this. Such an observation has already been documented and discussed in Ref. 41. So far, Xe appears to be the favored choice for sputtering Ta because it gives the highest productivity—a factor of 2.59 compared to Ar.

## B. Layer quality parameters

A different picture emerges when looking at the layer quality. Figures 2(b), 2(e), and 2(h) show that the  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  layers' refractive indices  $n(320 \text{ nm})$  increase with increasing ion mass. Figure 4(a) illustrates this result with corresponding sectional views; it can be seen from rows 9–13 in Table V that the change can be as large as 8%. The dependence of  $n(\lambda)$  on ion species has already been observed, e.g., for  $\text{SiO}_2$ ,<sup>32</sup>  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ,<sup>18,41</sup> and  $\text{TiO}_2$ .<sup>33,41</sup> Most strikingly, however, in the case of Xe, a region of significantly increased values  $n(x, y, 320 \text{ nm})$  occurs that is not present in the case of Ar and Kr. The position of the maximum is at  $y = 245 \text{ mm}$  and therefore does not correlate with the position  $y_0 = 358 \text{ mm}$  at which the maximum coating rate  $R_{\max}$  occurs. Consequently, this observation does not appear to be an effect of coating rate. Or, in other words, the amount of particles impinging on the collector per unit time and per unit area does not seem to have an adverse effect on the film formation process. It is more plausible that the energy delivered to the collector per unit of time and per unit of area is the crucial factor.<sup>46</sup> Thus, the energy and angular distributions from the involved particles come into question, as argued in Sec. I and which are addressed in detail in Sec. IV.

Furthermore, when the maximum in Fig. 4(a) is masked out, the data show for all three ion species that  $n(502, y_i, 320 \text{ nm})$  increases with increasing  $y$ -position or increasing scattering angle  $\gamma$ , respectively. The values vary within the angular range of  $57^\circ$ – $137^\circ$  about 4.4% in the case of Ar, 5.6% in the case of Kr, and approximately 4.2% in the case of Xe (rows 9 and 10 in Table V). An increase in the refractive index with an increasing scattering angle is also documented for  $\text{SiO}_2$ <sup>32</sup> ( $\gamma$  in the range of  $60^\circ$ – $120^\circ$ ) and  $\text{TiO}_2$ <sup>33</sup> ( $\gamma$  in the range of  $40^\circ$ – $120^\circ$ ); in both cases, the cause is concluded to be the energy distribution of secondary particles. Additionally, in Refs. 32 and 33, a collector with a circular arc geometry was applied where the particles are assumed to have identical propagation lengths, and all particles impinged at a normal



**FIG. 4.** Experimental results: one-dimensional distributions of the refractive indices  $n(502, y_i, 320 \text{ nm})$  in (a) and extinction coefficients  $k(502, y_i, 320 \text{ nm})$  in (b). The abscissa at the bottom belonging to both (a) and (b) is shown inverted to represent the same perspective as in Fig. 1.

angle of incidence. In the present case, a distortion occurs due to the chosen flat collector geometry [Fig. 1(c)]. This means that the different angles of incidence of the film-forming particles onto the collector and their varying propagation lengths do not lead to a qualitatively different result, at least up to  $\gamma = 137^\circ$ .

For the data shown in Fig. 4, the maximum angle of incidence onto the collector (deposition angle) is  $51^\circ$  and is obtained at the position corresponding to  $\gamma = 141^\circ$ . At this position, one other effect seems to appear; the refractive indices start to become smaller, contrary to the prior trend, as can be seen in Fig. 4(a). Possibly, a columnar structure or at least a reduction in packing density in the film growth process manifests itself here as a consequence of the increasing deposition angle. Such an effect is especially known from the glancing angle deposition method.<sup>16,18,53</sup>

When evaluating the 2D distributions of the extinction coefficients  $k(x_i, y_i, 320 \text{ nm})$  or  $k(x, y, 320 \text{ nm})$  as bilinear interpolation, respectively, one can notice that the maximum observed in the case of Xe is even more pronounced [Figs. 2(c), 2(f), and 2(i)]. This situation is illustrated more clearly by Fig. 4(b). In the case of ion species Ar and Kr, the extinction coefficients of  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  are consistently less than  $12.5 \times 10^{-4}$ . For Xe, compared to the maximum value in the case of Ar, the extinction coefficient at position  $y = 245 \text{ mm}$  increases to 66 times (Table V, row 14). The layer with the highest  $k(320 \text{ nm})$  also has the highest  $n(320 \text{ nm})$ . Furthermore, Fig. 4 shows that in the case of Xe, there are no noticeable features in  $n(502, y, 320 \text{ nm})$  at positions  $y \geq 550 \text{ mm}$ , whereas  $k(502, y, 320 \text{ nm})$  is increased up to position  $y \approx 700 \text{ mm}$ . Thus, it is evident that the mechanisms resulting from the IBSD process, which adversely modify the layer growth process, first show up in the extinction coefficient before they become apparent in the refractive index. Moreover, regarding the mean values  $k_{\text{mean}}$

and  $k'_{\text{mean}}$ , the lowest values are obtained with Kr, as Fig. 4(b) and rows 16 and 18 in Table V show.

The layer compositions determined with EPMA confirm that ions originating from the ion source are implanted in the  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  thin films during their formation. At position A ( $\gamma \approx 70^\circ$ ), which is in the region with increased extinction coefficients, as shown in Fig. 2(i), the atomic fractions are 3.8% in the case of Ar and 4.2% in the case of Xe (rows 22 and 23 in Table V). In comparison, at position B ( $\gamma \approx 128^\circ$ ), which is far from the local maximum, the fractions decrease to 2.3% for Ar and 0.6% for Xe (rows 30 and 31 in Table V). In this respect, the data indicate a correlation between the amount of implanted primary particles and the extinction coefficient obtained. Moreover, the amount of implanted particles decreases with increasing  $\gamma$ . A similar observation is documented in Refs. 32 ( $\text{SiO}_2$  films) and 33 ( $\text{TiO}_2$  films), both with atomic fractions of inert gas atoms (Ar or Xe) consistently lower than approximately 4.2%.

Two mechanisms lead to implantation. The major contribution is certainly due to the primary particles backscattered at the target. In addition, the primary particles, which are initially implanted into the target and then sputtered from the target surface as sputter-erosion continues, can also be implanted into the growing layers.

Notably, the change in layer composition due to the implantation of primary particles cannot be solely responsible for the high extinction coefficients observed. Otherwise, high extinction coefficients would also be obtained in the case of Ar and Kr. Strictly speaking, in the case of Ar and Kr, very low values  $k(502, 245, 320 \text{ nm})$  in the range of  $10^{-4}$  are obtained. Thus, it can even be concluded that the impact of the implanted particles on  $n(320 \text{ nm})$  and  $k(320 \text{ nm})$  with the atomic fractions observed is negligible. Consequently, when excluding impurities from the sputtering of nontarget materials in the process chamber and the ion optic itself, changes in the structure and stoichiometry of the layers are the main factors to be considered as possible causes for the high extinction coefficients.<sup>46</sup> In this context, the EPMA measurements confirm that in the case of Xe, there are in fact not enough O atoms in the oxide layers (rows 24 and 32 in Table V). More O atoms are missing at position A than at position B. This indicates position-dependent preferential sputtering of the  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  layers. On the other hand, Ref. 46 concludes that the absorption in the thin films produced by IBSD, if impurities can be neglected, is a consequence of the damage to the film structure and that the damage correlates with the amount of energy deposited into the films. Therefore, the experimental results do not allow concluding whether the high extinction coefficients and refractive indices obtained result from changes in stoichiometry or layer structure damages. Most likely, both mechanisms occur simultaneously, especially because both are based on the same cause—the deposition of energy into the growing layers by energetic particles. Among them are (A) backscattered primary particles, (B) sputtered secondary particles, (C) sputtered and previously implanted primary particles, and (D) sputtered O atoms due to a potentially oxidized target surface.<sup>30–35,46</sup>

After deposition, the highest  $k(320 \text{ nm})$  determined was  $820 \times 10^{-4}$  in the case of Xe as the ion species (Table I and row 14 in Table V). Under annealing, the extinction coefficient was



**TABLE I.** Experimental results: layer parameters of a sample at position (502, 245) on the collector produced with a Xe → Ta process, as deposited and after annealing.

	$d_{\text{phys}}/\text{nm}$	$n$ (320 nm)	$k$ (320 nm)/ $10^{-4}$
As deposited	3233	2.80	820
After annealing	3334	2.54	510

reduced to  $510 \times 10^{-4}$  for this sample, which is still 41 times higher than the highest value in the case of Ar. Further annealing did not bring any further improvement. Considering the recombination model,<sup>54</sup> the recombination of oxygen vacancies and the corresponding interstitials could not take place due to a lack of oxygen. It is assumed that the achieved reduction of the extinction coefficient results mainly from the diffusion of oxygen into the layers in the sense of the surface diffusion model.<sup>54</sup> This indicates that the layer growth consistently took place with an insufficient amount of oxygen, probably as a result of permanent preferential sputtering. The example shown in Table I is representative of all annealed samples.

It is also striking that the maximum observed in the Xe case is only expressed in the material data of the layers, not in the physical layer thicknesses (in the sense of a dent). This means that the stoichiometry and, most likely, the layer structure of the growing dielectric Ta<sub>2</sub>O<sub>3</sub> layers are affected in the process, but no sputtering of Ta atoms seems to occur. Nevertheless, the locally occurring, poor layer properties constitute a limiting factor for the realization of large-area coatings with Xe.

## IV. SIMULATION RESULTS AND DISCUSSION

### A. Particle and energy distributions

The results from the SRIM-2013 simulations are presented below. Some simulation parameters are summarized in Sec. II D. The focus is on mechanisms that can explain why, in the case of Xe, high extinction coefficients are observed in a spatially confined region on the collector. The quantities and energies of particles backscattered at and sputtered from the target are discussed below; these serve as a measure of the particle quantities and energies that contribute to the layer formation process in terms of a qualitative analysis. In other words, the focus is exclusively on the emission of particles from the target and their energies, not the impact of these on the growing dielectric layer, for which at least the photometric law, the propagation properties, and the interaction mechanisms of the different particles with the dielectric layer would have to be considered.

As described in Sec. II D, a pure Ta target is assumed for simulations, and the oxidation of the target surface is neglected. Thus, the focus is on the (A) backscattered primary particles and the (B) sputtered secondary particles, not on the (C) implanted and subsequently resputtered primary particles or the (D) sputtered O atoms due to a potentially oxidized target surface. Mechanisms (A) and (B) also contain so-called direct scattering and direct sputtering events as special cases, which are described in simplified terms by single, elastic, two-particle collisions.<sup>30</sup> A corresponding

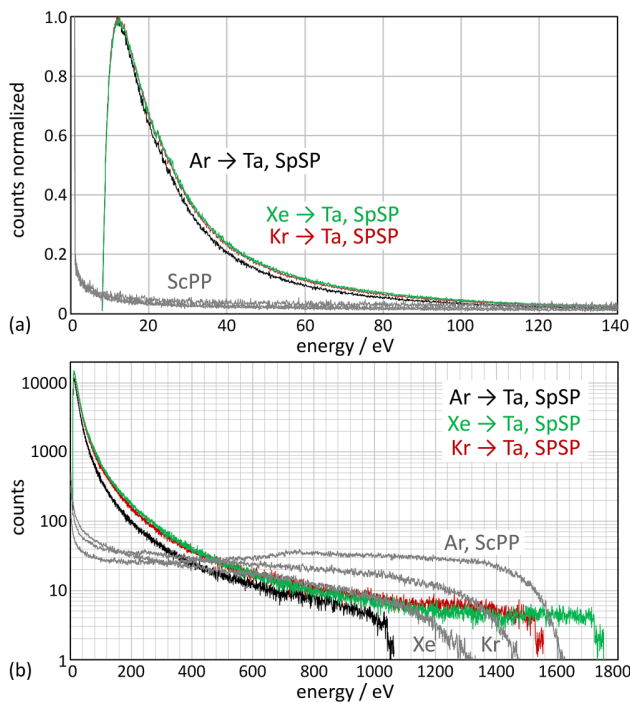
breakdown is not provided below. Similarly, a distinction between primary and secondary knock-ons<sup>50</sup> is not made since this study focuses on the energies of primary and secondary particles emitted from the target toward the collector, not the underlying collision cascade lengths in the target. However, it can be assumed that the secondary knock-ons dominate sputtering for heavy ions,<sup>50</sup> i.e., long rather than short collision cascade lengths. It should be noted that ion-matter interactions are very complicated and depend on countless factors such as the roughness of the target surface. Therefore, the values given below should be regarded as indicative. Additionally, anticipating that the results for Kr will systematically range between those for Ar and Xe, primarily Ar and Xe will be compared to each other in the following. Concerning the secondary particles, (B), no distinction is made in the present investigation between neutral and ionized Ta atoms since the proportion of ionized atoms during sputtering is assumed to be negligible.<sup>18,51,55</sup>

At first, Table II numerically expresses what, according to the simulation, happens to the primary particles after they impinge on the target and how the energy that is carried by the particles is distributed: Ar ions are backscattered most frequently, with 44.7% related to  $N_{\text{prim}} = 10^6$  ions impinging on the target. Even though direct scattering events occur, “backscattered” does not refer exclusively to a single two-particle collision. More precisely, a backscattered particle can also undergo a large number of collisions with target atoms and lose energy accordingly before it leaves the target again.<sup>56</sup> This fact is vividly expressed by the mode energy. The largest number of the backscattered ions has a very small amount of residual energy, as also shown in Figs. 5(a) and 5(b), which they carry with them as they leave the target. At about 1 eV (1 eV is the smallest value output in SRIM-2013), this energy is even smaller than the surface binding energy 8.1 eV of the Ta atoms. In contrast, there are smaller numbers of ions with comparatively much higher energies of up to 1693 eV in the case of Ar [Fig. 5(b)]. The decisive factor, compared to other two ion species, is the higher proportion of backscattered Ar ions. This leads not only to the highest mean energy but also to the largest fraction of energy, 18.3%, that is carried away from the target by the backscattered Ar particles related to the sum of the energies  $E_{\text{prim}} = 10^6 \cdot 1800 \text{ eV}$  of all primary particles impinging on the target. The results shown in rows 1 and 4 of Table II are documented in qualitatively comparable form for an angle of incidence of 0 in Ref. 56, for instance. If only particles with energies 0–500 eV are considered for determining the total energy carried away from the target by the backscattered particles, then similar values of about 2% are obtained for all ion species. Accordingly, the three ion species differ mainly in the energetic tails above roughly 500 eV, as shown in Fig. 5(b). Ar ions are backscattered not only with higher energies but also with larger numbers in the energy range above 500 eV compared to Kr and Xe ions. If the angular distribution is disregarded, this result indicates that more energy is deposited into the growing layers by backscattered Ar ions than by backscattered Kr or Xe ions. Nevertheless, the high extinction coefficients are observed only in the case of Xe (Sec. III).

Primary particles that do not leave the target, i.e., do not belong to the backscattered particles, are considered as implanted. Regardless of whether the primary particles are backscattered or implanted, they can initiate collision cascades that can lead to the

**TABLE II.** SRIM-2013: primary particles after impinging on a Ta target at an ion energy of 1800 eV and an angle of incidence of 60°. All percentages refer to  $N_{\text{prim}}$  (rows 1–3) or  $E_{\text{prim}}$  (rows 4 and 5).

	Ar → Ta	Kr → Ta	Xe → Ta
Backscattered particles with sputtering	44.7%	35.3%	28.6%
Implanted particles with sputtering	39.0%	58.3%	66.8%
Implanted particles without sputtering	16.3%	6.4%	4.6%
Backscattered particles total energy	18.3%	9.6%	5.4%
Backscattered particles total energy of all particles in the range 0–500 eV	1.9%	2.2%	1.9%
Backscattered particles mode energy (eV)	≈1	≈1	≈1
Backscattered particles mean energy (eV)	736	489	342
Backscattered particles maximum energy (eV)	1693	1606	1459
Yield Y	2.96	4.08	4.30



**FIG. 5.** SRIM-2013: energy histograms for backscattered primary (ScPP) and sputtered secondary particles (SpSP). (a) and (b) show the same data on different scales. In (a), the energy distributions of the ScPP from all three ion species are shown in the same color since it is not possible to distinguish them on the chosen scale. For a more precise representation, the noise of the high energetic tails in the scattered particles' data in (b) is reduced with a moving average.

sputtering of target atoms and thus contribute to the sputtering yield  $Y$ . For the present scenario, Xe ions are implanted most frequently at 66.8 + 4.6% related to  $N_{\text{prim}}$ . However, only 4.6% of Xe ions are implanted without contributing to  $Y$ . It is assumed that in these cases, the initiated collision cascades do not transport enough energy back to the target surface to overcome the surface binding energy. To summarize, the highest total sputtering yield is achieved with Xe—a result that is to be expected according to the mass ratios of the involved particles. Furthermore, in the case of Xe, the data shown in Fig. 3(c) suggest an even higher yield for sputtering Ta compared to Ar and Kr than indicated in Table II. Another aspect shown by the SRIM-2013 data is that at 1800 eV for all three ion species, without exception, all backscattered ions also contribute to the sputtering of Ta. In other words, no events occur where an ion is backscattered without at least one Ta atom also leaving the target surface. This becomes clear when the first three rows in Table II are summed, as the sum is 100%.

Next, the energy distribution of the sputtered secondary particles is considered. As can be seen from Fig. 5(a) and Table III, the energy distributions are qualitatively almost identical for all three ion species, and they appear like a Thompson energy spectrum with a steep rise to the maximum followed by a falloff toward higher energy roughly as  $E^{-2}$ .<sup>30,31,35,57,58</sup> Mainly, the energy histograms differ in the amount of sputtered particles per unit of energy, with the amounts scaling roughly like the yield ratios. This scaling becomes apparent when the values in the energy interval 0–500 eV (row 7 in Table III) are compared with  $Y$  (row 9 in Table II). In addition, there are variations in the maximum energy or, respectively, the cutoff energy. The cutoff in the energy spectra reflects the maximum fraction of energy that can be transferred from primary to secondary particles and depends only on the masses of the particles (e.g., Ref. 58). In the present case, the maximum energies simulated with SRIM-2013 (row 4 in Table III) agree very well with the analytically calculated maximum transferable energies<sup>58</sup> (row 5 in Table III). Two causes, more secondary particles per unit of energy and higher transferable energy, lead to the fact that in the case of Xe, the largest fraction of  $E_{\text{prim}}$ , 17.6%, is transported away from the target by sputtered secondary particles. In the case of Ar, it is only 9.7%.

It can therefore be summarized that concerning the primary particles, the largest fraction of  $E_{\text{prim}}$ , 18.3% (Table II), is transported away from the target by backscattered Ar ions. In contrast, concerning the secondary particles, 17.6% (Table III) of  $E_{\text{prim}}$  is carried away by Ta atoms sputtered by Xe ions. Both fractions, which take all particles in the entire half-space above the target in integral form into account, are almost equal. However, at this point, it is not clear where this energy is deposited, and, in repetition, the locally occurring poor layer properties are observed only in the case of Xe [Fig. 2(i)].

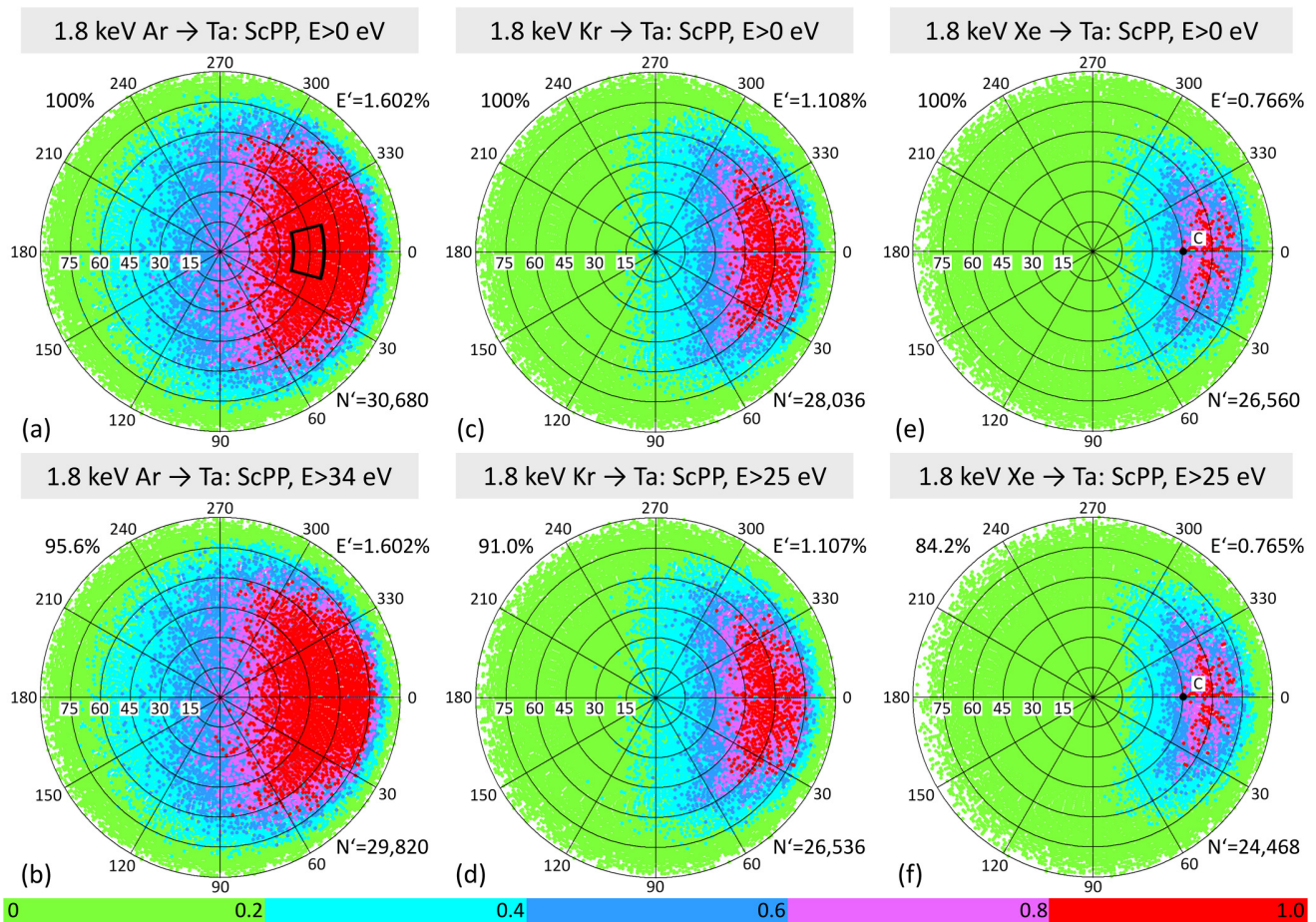
## B. Angle-resolved particle and energy distributions

In the following, the energy histograms are shown angle-resolved, i.e., taking into account the emission characteristics, to investigate by which of the involved particles more energy is deposited into the growing oxide layers, especially in the area where high extinction was observed. Moreover, it is considered that for the

preferential sputtering of O atoms from Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layers, a specific minimal energy threshold must be reached. According to SRIM-2013 simulations, at energies below 25 eV, there is no sputtering of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layers by the particle species Kr, Xe, or Ta. In the case of lighter Ar ions, preferential sputtering of O atoms even takes place only at energies above 34 eV. Therefore, energies below 25 or 34 eV, respectively, are filtered out.

Figure 6 shows the angle-resolved energy histograms for the backscattered primary particles. The simulations show a clear anisotropy for all three ion species, such that more energy is

carried away by particles in the forward direction (azimuth angle 0°) than in the backward direction (azimuth angle 180°). The finding that more energy is transported away by backscattered Ar ions than backscattered Kr or Xe ions given by the values in Table II is also clearly shown in this angle-resolved analysis. The energy values  $E'$  as proportions of  $E_{\text{prim}}$  express this fact quantitatively. Viewed as a model,  $E'$  is the sum of all energies of particles emitting from the erosion maximum on the target [Fig. 1(a)] within the solid angle ( $0 \pm 15^\circ$ ,  $45 \pm 15^\circ$ ), with the first coordinate as the azimuth angle and the second coordinate as the polar



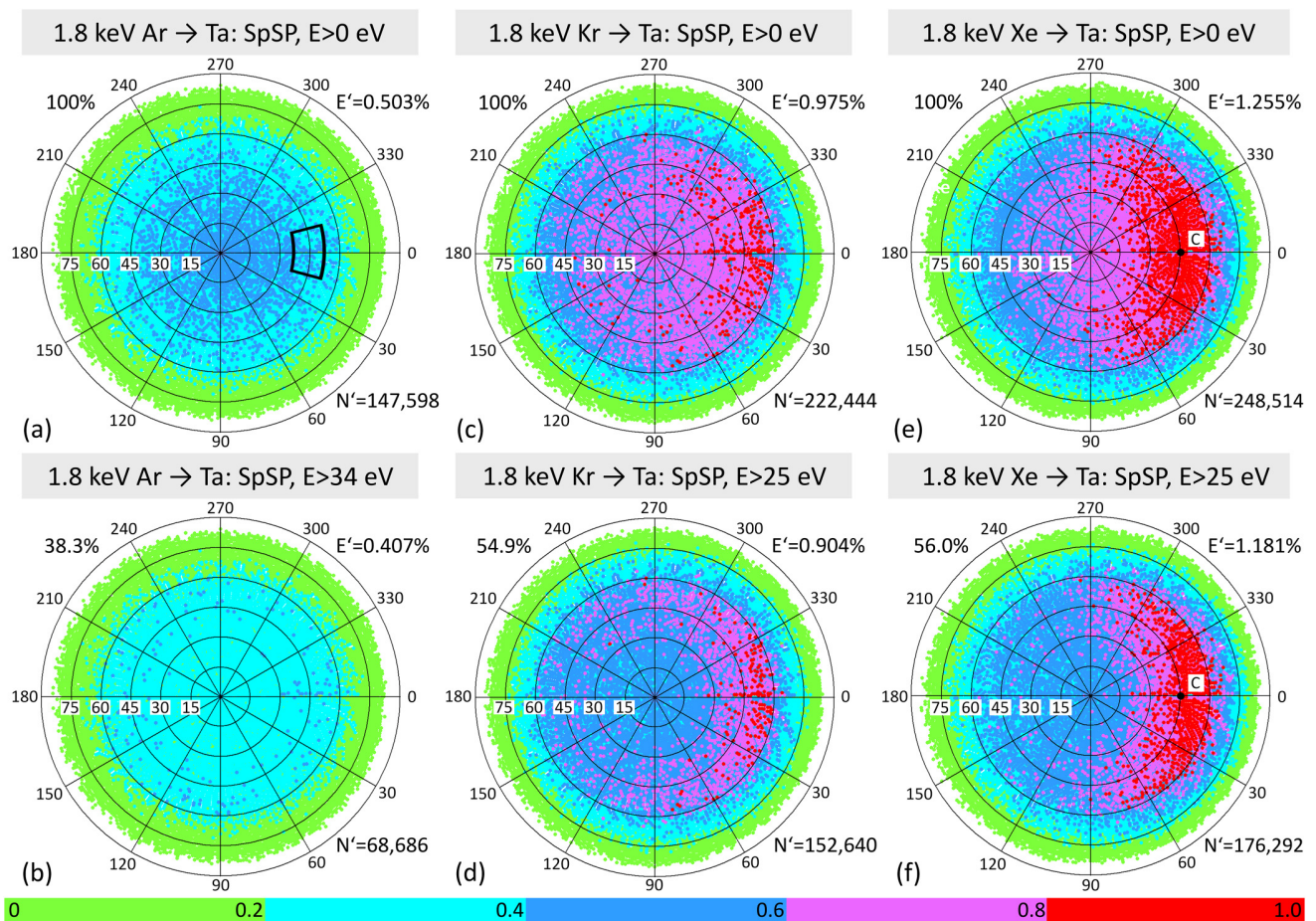
**FIG. 6.** SRIM-2013: angle-resolved energy histograms of the backscattered primary particles (ScPP) without an energy filter ( $E > 0$ ) in (a), (c), and (e) and with an energy filter ( $E > 25$  or  $E > 34$  eV) in (b), (d), and (f). If all particle energies are considered, then the numbers of particles contributing to histograms correspond to the values given in row 1 in Table II. The numbers of particles decrease to 95.6% (b), 91.0% (d), or 84.2% (f) of corresponding initial values by filtering out particle energies. Absolute values are shown without normalization, and the scaling is identical for all plots. The maximum value 1.0 shown in color red corresponds to energy  $2.22 \times 10^{-5} \times E_{\text{prim}}$ . The coordinate origin represents the erosion maximum on the target, marked as a white dot in Fig. 1(a), and the target surface normal  $\hat{n}_{\text{target}}$  is perpendicular to the image plane. The azimuth angle  $0^\circ$  points in the forward direction, and  $180^\circ$  corresponds to the backward direction [Fig. 1(c)]. The radii encode the polar angles, and  $\hat{n}_{\text{target}}$  corresponds to the polar angle  $0^\circ$ . C marks the direction in which the maximum extinction coefficient was observed in the case of Xe [Fig. 2(i)]. In (a), the black frame indicates the solid angle ( $0 \pm 15^\circ$ ,  $45 \pm 15^\circ$ ) around direction C.  $E'$  gives in each plot the energy proportional to  $E_{\text{prim}}$ , which is emitted by  $N'$  particles into this solid angle. It can be seen that  $E'$  almost does not change when filtering all particles whose energy is too small for the preferential sputtering of growing Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layers.



angle, and propagating in direction C [Figs. 6(e) and 6(f)], which points in the direction of the highest extinction coefficient observed in the experiment [Fig. 2(i)]. Compared to the value  $E' = 0.766\%$  in the case of Xe ions, Ar ions obtain a value  $E' = 1.602\%$  twice as high, as shown by Figs. 6(a) and 6(e). If now in this analysis all particles are filtered out, which cannot cause preferential sputtering due to their energy, then the values  $E'$  almost do not change at all, as a comparison of Figs. 6(a), 6(c), and 6(e) with Figs. 6(b), 6(d), and 6(f) shows. Figure 6 also gives the parameter  $N'$ , which denotes the number of particles that carry the energy  $E'$ . This demonstrates that the backscattered Ar ions have a higher mean energy  $E'/N'$  than backscattered Xe ions by a factor of 1.8, which is similar to the integral representation given in row 7 of Table II.

The results above suggest that the anisotropy in angular distribution is generated more strongly by particles with higher energies (not filtered out) than by particles with small energies (filtered out). It is plausible to assume that those backscattered particles have higher energies that leave the target after one (direct scattering) or after a small number of collisions, i.e., transfer less energy to target atoms. Therefore, for these particles, the information about their angle of incidence on the target should be conserved more strongly and then manifest itself in the emission angle. Such a concept is known as “conservation of momentum” and is encountered in the context of secondary particles.<sup>31,58,59</sup>

Figure 7 shows the angle-resolved energy histograms for the sputtered secondary particles in identical representation as Fig. 6. From the colors, it can be seen that the amount of emitted energy



**FIG. 7.** SRIM-2013: angle-resolved energy histograms of the sputtered secondary particles (SpSP) without an energy filter ( $E > 0$ ) in (a), (c), and (e) and with an energy filter ( $E > 25$  or  $E > 34$  eV) in (b), (d), and (f). If all particle energies are considered, then the numbers of particles contributing to the histograms correspond to the values given in row 1 in Table III. The numbers of particles decrease to 38.3% (b), 54.9% (d), or 56.0% (f) of the corresponding initial values by filtering out particle energies. All other details are identical to Fig. 6.

**TABLE III.** SRIM-2013: sputtered Ta atoms related to  $N_{\text{prim}}$  impinging primary particles at an ion energy of 1800 eV and an angle of incidence of  $60^\circ$ . Percentages relate to  $E_{\text{prim}}$ .

	Ar → Ta	Kr → Ta	Xe → Ta
Sputtered particles total number	$2.96 \times 10^6$	$4.08 \times 10^6$	$4.30 \times 10^6$
Sputtered particles mode energy (eV)	12.0	11.7	12.5
Sputtered particles mean energy (eV)	58.9	72.1	73.7
Sputtered particles maximum energy (eV)	1064	1555	1753
Maximum transferable energy <sup>57</sup> (eV)	1067	1558	1754
Sputtered particles total energy	9.7%	16.3%	17.6%
Sputtered particles total energy of all particles in the range 0–500 eV	7.9%	11.5%	12.5%

increases from Ar to Kr to Xe, a result that can also be seen from the values in Table III. However, a new piece of information is that the particle energies of Ta atoms sputtered by Ar ions behave largely isotropically, i.e., without a preferred direction. When simulating sputtering with Kr ions, a slight isotropy can be seen, which then increases significantly with Xe ions. As with backscattered particles, isotropy of sputtered particles develops almost exclusively in the forward direction. The energy values  $E'$  quantify that roughly by a factor of 2.5 if all energies are taken into account, and a factor of 2.9 if irrelevant energies are filtered out, more energy is emitted in the direction of C [Figs. 7(e) and 7(f)] during the sputtering of Ta by Xe ions than by Ar ions [Figs. 7(a) and 7(b)]. The mean energy  $E'/N'$  scales roughly by a factor of 1.5. This scaling factor reduces to 1.1 when the particles without a contribution to preferential sputtering are filtered out.

Concerning anisotropy, the simulation results are following the criterion documented in Ref. 59, which predicts a higher degree of isotropy at a higher mass ratio between the ion and the target atom. Corresponding experimental evidence for Ti as a target material can be found in Ref. 31. As with the backscattered primary particles, it is plausible to assume that the anisotropy is formed primarily by particles with higher energies. This means that anisotropy is preserved when filtering out all particles that cannot cause preferential sputtering. Such a result can be seen when comparing Figs. 7(a), 7(c), and 7(e) with Figs. 7(b), 7(d), and 7(f). Due to the energy distributions of the secondary particles with mode energies around 12 eV (Fig. 5), almost half of the secondary particles are filtered out in the case of Kr and Xe and even more in the case of Ar. The associated energy values  $E'$ , however, reduce to a much lesser extent.

By summing the energies  $E'$  given in Figs. 6(a), 6(c), 6(e), 7(a), 7(c), and 7(e), the following picture emerges. In the case of Ar, according to simulation results, backscattered primary particles and sputtered secondary particles transport a total of  $E' = 2.105\%$  of the input energy  $E_{\text{prim}}$  toward the region with high extinction coefficients of the dielectric layers experimentally observed with the plane collector. For Kr and Xe, the corresponding values are  $E' = 2.083\%$  and  $E' = 2.021\%$ , which are almost identical. Filtering out particle energies below 25 and 34 eV does not change this

result; to put it in other words, the analysis of energies  $E'$  as a measure of the structural damage of the  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  layers and thus as a measure of the extinction does not give a clear result.

A legitimate question arises as to whether structural damage contributes to extinction at all in the present scenario. This is because, apparently, comparable amounts of energy are carried away from the target in direction C in all cases. In the cases of Ar and Kr, however, no adverse effects on the growth process of the  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  layers are observed [Figs. 2(b), 2(c), 2(e), and 2(f)]. After all, the energy deposited into the layers per unit time can be regulated by the beam current, i.e., the amount of sputtering events occurring per unit time. From practical experience, it is known that in the case of Ar, no degradation of layer quality is observed even at higher beam currents around 500 mA. In the case of Xe ions, the layer quality is degraded even at 200 mA.

When considering sums of the particle quantities  $N'$  that also possess the minimum energy required to cause preferential sputtering as given in Figs. 6(b), 6(d), 6(f), 7(b), 7(d), and 7(f), there is a similar situation. Sputtering Ta by  $N_{\text{prim}} = 10^6$  Ar ions produces a total of 98 506 particles that are emitted in direction C, which can cause preferential sputtering of O atoms and may lead to an increase in extinction of the  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  layers in turn. For comparison, in the case of Xe ions, 200 760 particles are produced, an increase in a factor of 2. As a conclusion of simulations, if Kr is not taken into account, the high extinction coefficients observed in the experiments seem to result more likely from changes in stoichiometry due to preferential sputtering and less from structure damages due to the deposited energy. The EPMA measurements confirm that in the case of Xe, there are in fact not enough O atoms in the oxide layers (rows 24 and 32 in Table V). However, in the case of Kr, with which the best values  $k(320 \text{ nm})$  could be obtained, 179 176 particles are produced—only slightly less than in the case of Xe. Similar to the consideration of energies  $E'$ , the consideration of particle quantities  $N'$  does not yield a plausible result.

So, in a further investigation, other mechanisms have to be taken into account too. Of particular note, first, are the angle- and energy-dependent sputtering yields of Ta and O atoms from  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  upon the impact of energetic particles Ar, Kr, Xe, Ta, and O. It can be assumed that the Ta atoms, which have the largest mass among the particles involved, have the greatest impact on the  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  layer's formation process. Even more, Ta sputtering with Xe results in the highest anisotropy, the highest yield  $Y$ , and the highest energy carried away from the target by the Ta atoms.

Second, as listed in Sec. IV A, the implanted and subsequently resputtered primary particles, (C), and the sputtered O atoms due to a potentially oxidized target surface, (D), should also be investigated. Regarding the latter mechanism, there are detailed results presented for Ti as the target material in Refs. 31 and 46. One of the results from Ref. 46 is that more energy is carried away from the Ti target by backscattered Ar ions than backscattered Xe ions, which also applies to the present study. More importantly, in Ref. 46, it is pointed out as well that O atoms sputtered from a compound layer  $\text{TiO}_2$  on a Ti target can have significantly higher energies than backscattered primary particles, Ar or Xe, or sputtered secondary particles, Ti. Both Refs. 31 and 46 report, however, that the mean energy of the

sputtered O atoms is higher when sputtered with Ar ions than with Xe ions. Thus, if the preferential sputtering of O atoms from a compound layer Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> on a Ta target behaves similarly to TiO<sub>2</sub>, then the compound formation process could be largely ruled out as a cause for the degradation of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> film's quality parameters (in the coating plane) since the values  $k(320\text{ nm})$  are very low with Ar.

It is further seen from the simulation data that when the energies from the backscattered and sputtered particles (Tables II and III) are subtracted from the input energy  $E_{\text{prim}}$ , the energies deposited into the target are similar at 72%–77% for all three ion species.

## V. SUMMARY

The experimental results clearly show that the productivity of a reactive IBS process in which sputtering is performed from a Ta target, as expected, depends significantly on the ion species used. With Kr, by a factor of 1.66, higher productivity in the production of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> coatings was observed compared to Ar. In the case of Xe, productivity scales even more by a factor of 2.59. Furthermore, a linear dependence of productivity parameters on the ion mass was found for the studied ion species Ar, Kr, and Xe. This linear scaling, however, could not be reproduced by calculating the sputtering yields with semiempirical models and SRIM-2013. It appears that the calculated yields are underestimated at large ion masses. In contrast to productivity parameters, the normalized two-dimensional coating rate distributions changed little when the ion species were varied. As already stated in a previous study, the different interaction mechanisms on the atomic level seem to manifest themselves macroscopically, mainly quantitatively, and less qualitatively.<sup>41</sup> Considering this result in isolation, Xe takes a favored role.

Concerning the quality parameters  $n(320\text{ nm})$  and  $k(320\text{ nm})$  of the Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layers, there are several observations. First, a higher ion mass results in a higher refractive index—an observation already documented in previous studies.<sup>18,32,33,41</sup> Differences up to 8% could be determined. Second, the data show for all three ion species that  $n(320\text{ nm})$  increases with an increasing scattering angle  $\gamma$ . A similar observation is documented in Refs. 32 and 33, and in both cases, the cause is concluded to be the energy distribution of the secondary particles. The evaluation of the extinction coefficients  $k(320\text{ nm})$  yielded values almost exclusively in the range of  $10^{-4}$  for Ar and Kr, with the best results obtained with Kr. Most strikingly, however, in the case of Xe, a region of significantly increased values of  $n(320\text{ nm})$  and  $k(320\text{ nm})$  occurs that is not present in the case of Ar and Kr. The layer compositions determined with EPMA confirm that ions originating from the ion source are implanted in the Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin films during their formation. The data suggest that there is also a dependency on the scattering angle  $\gamma$  for the atomic fractions of implanted particles, such that the atomic fraction decreases with increasing scattering angle. This result also qualitatively accords with the results in Refs. 32 and 33. As found in previous studies, e.g., Ref. 30, the ion species and the polar scattering angle  $\gamma$  seem to be critical process parameters in IBS.

It is plausible that the demonstrated local degradation of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> quality parameters—an effect that has been known in the

IBS community for many years but has not yet been documented in the open literature—is a limiting factor for increasing the UDA in an industrial scale process. From this point of view, Xe is inappropriate and Kr is the more suitable choice. Otherwise, for processes where this region can be excluded, i.e., without placing substrates at the corresponding position in the coating chamber, Xe is the favored choice. For the realization of large deposition areas with diameters of 1 m and larger, it is less the uniformity of the physical thicknesses that is a challenge but much more the uniformity of the quality parameters.

The angle-resolved particle and energy distributions simulated with SRIM-2013 show pronounced anisotropies, especially for the backscattered Ar ions and the Ta atoms sputtered by Xe ions, which geometrically fit the experimental data since the anisotropic parts in the angular distributions point in the direction of high extinction coefficients. Nevertheless, a detailed examination of the particle quantities and energies emitted from the target does not yield a clear result as to why damage to the layers occurs in the case of Xe. It must be determined which particle quantities and particle energies reach the substrates and which impact the different particle species have on the layer formation process. Thus, a clear result can only be obtained when models for layer formation are also taken into account.<sup>14–16</sup> In addition, a fully three-dimensional model would be important for the design of future IBS processes with focus on large-area coatings. Such a model should consider the broad ion beam, the resulting broad erosion profile on the target,<sup>42</sup> and the angular and the energy distributions of all particles involved in the coating process.

## ACKNOWLEDGMENTS

This research was partially funded by the Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG, German Research Foundation) under Germany's Excellence Strategy within the Cluster of Excellence PhoenixD (EXC 2122, Project ID No. 390833453). Furthermore, the authors are grateful to the Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF, German Federal Ministry of Education and Research) for financial support of the research project PluTO<sup>plus</sup> (Contract No. 13N13207).

## APPENDIX

**TABLE IV.** Number of substrates used for the experiments (row 1) as well as a listing of the calculated layer parameters and the substrate materials used for this purpose (rows 2–4).

	Ar → Ta	Kr → Ta	Xe → Ta
1 Quartz/glass substrates	80/58	34/163	80/20
2 $d_{\text{phys}}$	Quartz and glass	Quartz and glass	Quartz and glass
3 $n(\lambda)$	Quartz	Quartz and glass	Quartz
4 $k(\lambda)$	Quartz	Quartz	Quartz



**TABLE V.** Overview of experimental results.  $T$  is the coating duration. Rows 2–8 list the characteristic values of the 2DCDs and the mean squared error (MSE) as a measure of the agreement between a record of  $d_{\text{phys}}(x_i, y_i)$  and the approximation function  $R(x, y)$  (Ref. 41). Starting from row 9, the statistical values for the layer parameters  $n(320 \text{ nm})$  and  $k(320 \text{ nm})$  are listed. Rows 20 onward show the results from EPMA measurements of samples at positions A and B (Fig. 2) on the collector.  $p_{Ta}$ ,  $p_{Ar}$ ,  $p_{Xe}$ , and  $p_O$  are the corresponding atomic fractions.  $\gamma_{\text{kmax}}$  is the scattering angle at which the value  $k_{\text{max}}$  is obtained, starting from the erosion maximum on the target [Fig. 1(a)].

	Ar → Ta	Kr → Ta	Xe → Ta	
1	$T/s$	10 712	10 740	10 662
2	$x_0/\text{mm}$	501	503	502
3	$y_0/\text{mm}$	348	349	358
4	$\Delta x_{\text{FWHM}}/\text{mm}$	560 (100%)	570 (101.8%)	590 (105.4%)
5	$\Delta y_{\text{FWHM}}/\text{mm}$	498 (100%)	487 (97.8%)	486 (97.6%)
6	$R_{\text{max}}/\text{nm/s}$	0.142 (100%)	0.241 (169.7%)	0.364 (256.3%)
7	$R_{\text{vol}}^{0.23}/\text{mm}^3/\text{min}$	2.357 (100%)	3.913 (166.0%)	6.112 (259.3%)
8	$\text{MSE}/10^{-2}$	2.52	3.39	7.33
9	$n_{\text{max}}$	2.38 (100%)	2.47 (103.8%)	2.89 (121.4%)
10	$n_{\text{min}}$	2.28 (100%)	2.34 (102.6%)	2.40 (105.3%)
11	$n_{\text{mean}}$	2.35 (100%)	2.40 (102.1%)	2.54 (108.1%)
12	$s$	0.025	0.027	0.108
13	$n'_{\text{mean}}$	2.35 (100%)	2.39 (101.7%)	2.51 (106.8%)
14	$k_{\text{max}}/10^{-4}$	12.5 (100%)	6.0 (48.0%)	820 (6560%)
15	$k_{\text{min}}/10^{-4}$	6.0 (100%)	2.0 (33.3%)	4.0 (66.7%)
16	$k_{\text{mean}}/10^{-4}$	8.0 (100%)	4.5 (56.3%)	261 (3263%)
17	$s/10^{-4}$	1.3	0.9	—
18	$k'_{\text{mean}}/10^{-4}$	7.9 (100%)	4.6 (58.2%)	9.6, for $y \geq 620 \text{ mm}$
19	$\gamma_{\text{kmax}}/^\circ$	—	—	75
20	$p_{Ta}/\%$ at pos. A	26.8	—	28.9
21	$p_O/\%$ at pos. A	69.3	—	66.9
22	$p_{Ar}/\%$ at pos. A	3.8	—	0
23	$p_{Xe}/\%$ at pos. A	0	—	4.2
24	$(p_{Ta}/p_O)/(2/5)$	0.967	—	1.080
25	$d_{\text{pyhs}}$ at pos. A/nm	950.38	—	2277.53
26	$n(320 \text{ nm})$ at pos. A	2.31	—	2.66
27	$k(320 \text{ nm})$ at pos. A/ $10^{-4}$	9.8	—	619
28	$p_{Ta}/\%$ at pos. B	27.0	—	29.1
29	$p_O/\%$ at pos. B	70.7	—	70.3
30	$p_{Ar}/\%$ at pos. B	2.3	—	0
31	$p_{Xe}/\%$ at pos. B	0	—	0.6
32	$(p_{Ta}/p_O)/(2/5)$	0.955	—	1.035
33	$d_{\text{pyhs}}$ at pos. B/nm	602.72	—	1512.21
34	$n(320 \text{ nm})$ at pos. B	2.38	—	2.50
35	$k(320 \text{ nm})$ at pos. B/ $10^{-4}$	8.8	—	11.1

**DATA AVAILABILITY**

The data that support the findings of this study are available from the corresponding author upon reasonable request.

**REFERENCES**

<sup>1</sup>D. Ristau and T. Gross, *Proceedings Volume 5963, Advances in Optical Thin Films II*, edited by C. Amra, N. Kaiser, and H. A. Macleod, Jena, Germany (SPIE, Bellingham, Washington, 2005), p. 596313.  
<sup>2</sup>C. J. Stolz and R. A. Negres, *Opt. Eng.* **57**, 121910 (2018).  
<sup>3</sup>Y. Chen, D. Hahner, M. Trubetskov, S. Schrameyer, W. Sakiew, K. Starke, and V. Pervak, *Appl. Phys. B* **126**, 82 (2020).  
<sup>4</sup>J. Degallaix *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. A* **36**, C85 (2019).  
<sup>5</sup>R. Birney *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 191101 (2018).

<sup>6</sup>D. Zou, C. L. Anyi, R. J. Thirkettle, K. U. Schreiber, and J.-P. R. Wells, *Appl. Opt.* **58**, 7884 (2019).  
<sup>7</sup>T. A. Laurence, D. A. Alessi, E. Feigenbaum, R. A. Negres, S. R. Qiu, C. W. Siders, T. M. Spinka, and C. J. Stolz, *J. Appl. Phys.* **128**, 071101 (2020).  
<sup>8</sup>T. Böntgen, T. Alig, I. Balasa, L. Jensen, and D. Ristau, *International Conference on Space Optics—ICSO 2018*, edited by Z. Sodnik, N. Karafolas, and B. Cugno, Chania, Greece (SPIE, Bellingham, Washington, 2019), pp. 1539–1545.  
<sup>9</sup>M. Jupé, M. Lappschies, L. Jensen, K. Starke, and D. Ristau, *Proceedings Volume 6403, Laser-Induced Damage in Optical Materials 2006*, edited by G. J. Exarhos, A. H. Guenther, K. L. Lewis, D. Ristau, M. J. Soileau, and C. J. Stolz, Boulder, CO (SPIE, Bellingham, Washington, 2007), p. 640311.  
<sup>10</sup>S. Malobabic, M. Jupé, and D. Ristau, *Light Sci. Appl.* **5**, e16044 (2016).  
<sup>11</sup>T. Willemsen, M. Jupé, L. Gallais, D. Tetzlaff, and D. Ristau, *Opt. Lett.* **42**, 4502 (2017).

- <sup>12</sup>M. Trubetskov, *Appl. Opt.* **59**, A75 (2020).
- <sup>13</sup>I. V. Kochikov, I. S. Lagutin, A. A. Lagutina, D. V. Lukyanenko, A. V. Tikhonravov, and A. G. Yagola, *J. Appl. Ind. Math.* **14**, 330 (2020).
- <sup>14</sup>M. Turowski, M. Jupé, T. Melzig, P. Moskovkin, A. Daniel, A. Pflug, S. Lucas, and D. Ristau, *Thin Solid Films* **592**, 240 (2015).
- <sup>15</sup>R. Tonneau, P. Moskovkin, J. Müller, T. Melzig, E. Haye, S. Konstantinidis, A. Pflug, and S. Lucas, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54**, 155203 (2021).
- <sup>16</sup>H. Badorreck *et al.*, *Opt. Express* **27**, 22209 (2019).
- <sup>17</sup>L. Pinard *et al.*, *Appl. Opt.* **56**, C11 (2017).
- <sup>18</sup>W. Sakiew, S. Schrameyer, P. Schwerdtner, N. Erhart, and K. Starke, *Appl. Opt.* **59**, 4296 (2020).
- <sup>19</sup>A. Ribeaud, J. Pistner, H. Hagedorn, M. Brophy, P. Kupinski, J. Watson, and R. Hand, *Laser-Induced Damage in Optical Materials, 2018 50th Anniversary Conference*, edited by C. W. Carr, G. J. Exarhos, V. E. Gruzdev, D. Ristau, and M. J. Soileau, Boulder, CO (SPIE, Bellingham, Washington, 2018), pp. 134–142.
- <sup>20</sup>M. Mende, J. Kohlhaas, and W. Ebert, *Proceedings Volume 9627, Optical Systems Design 2015: Advances in Optical Thin Films V*, edited by M. Lequime, H. A. Macleod, and D. Ristau, Jena, Germany (SPIE, Bellingham, Washington, 2015), p. 96271O.
- <sup>21</sup>C. Grèzes-Besset, G. Chauveau, N. Valette, H. Krol, D. Torricini, and D. Stojcevski, *Optical Systems Design 2015: Advances in Optical Thin Films V*, edited by M. Lequime, H. A. Macleod, and D. Ristau, Jena, Germany (SPIE, Bellingham, Washington, 2015), pp. 119–126.
- <sup>22</sup>C. Grèzes-Besset, G. Chauveau, and L. Pinard, in *Optical Thin Films and Coatings*, 2nd ed., edited by A. Piegari and F. Flory (Woodhead Publishing, Sawston, England, 2018), pp. 697–718.
- <sup>23</sup>M. Perske, H. Pauer, S. Yulin, V. Nesterenko, M. Schürmann, T. Feigl, and N. Kaiser, *Optical Interference Coatings* (Optical Society of America, Washington, D.C., 2010), p. MD3.
- <sup>24</sup>C. Morawe, *AIP Conf. Proc.* **2054**, 060002 (2019).
- <sup>25</sup>J. Schotsaert *et al.*, *Advanced Optical and Mechanical Technologies in Telescopes and Instrumentation IV*, edited by R. Navarro and R. Geyl (SPIE, Bellingham, Washington, 2020), pp. 199–208.
- <sup>26</sup>P. A. Kearney, C. E. Moore, S. I. Tan, S. P. Vernon, and R. A. Levesque, *J. Vac. Sci. Technol. B* **15**, 2452 (1997).
- <sup>27</sup>N. Srinivasan *et al.*, *International Conference on Extreme Ultraviolet Lithography 2019*, edited by T. Itani, P. A. Gargini, P. P. Naulleau, and K. G. Ronse, Monterey, CA (SPIE, Bellingham, Washington, 2019), pp. 78–83.
- <sup>28</sup>A. Ghrib, A. Hery, F. Riguet, J. Wolfe, C. Couteret, R. Lhuillier, and H. Leplan, *Optical Interference Coatings Conference 2019*, Washington, D.C. (OSA Publishing, Santa Ana Pueblo, NM, 2019), p. MB.7.
- <sup>29</sup>S. M. Rossnagel and J. J. Cuomo, *Thin Solid Films* **171**, 143 (1989).
- <sup>30</sup>C. Bundesmann and H. Neumann, *J. Appl. Phys.* **124**, 231102 (2018).
- <sup>31</sup>T. Lautenschläger and C. Bundesmann, *J. Vac. Sci. Technol. A* **35**, 041001 (2017).
- <sup>32</sup>M. Mateev, T. Lautenschläger, D. Spemann, A. Finzel, J. W. Gerlach, F. Frost, and C. Bundesmann, *Eur. Phys. J. B* **91**, 45 (2018).
- <sup>33</sup>C. Bundesmann, T. Lautenschläger, D. Spemann, A. Finzel, E. Thelander, M. Mensing, and F. Frost, *Appl. Surf. Sci.* **421**, 331 (2017).
- <sup>34</sup>C. Bundesmann, R. Feder, R. Wunderlich, U. Teschner, M. Grundmann, and H. Neumann, *Thin Solid Films* **589**, 487 (2015).
- <sup>35</sup>T. Lautenschläger, R. Feder, H. Neumann, C. Rice, M. Schubert, and C. Bundesmann, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.* **385**, 30 (2016).
- <sup>36</sup>M. Mende, F. Carstens, H. Ehlers, and D. Ristau, *J. Vac. Sci. Technol. A* **39**, 023406 (2021).
- <sup>37</sup>C. García-Rosales, W. Eckstein, and J. Roth, *J. Nucl. Mater.* **218**, 8 (1995).
- <sup>38</sup>Y. Yamamura, Y. Itikawa, and N. Itoh, *Angular Dependence of Sputtering Yields of Monoatomic Solids* (Institute of Plasma Physics, Nagoya, Japan, 1983).
- <sup>39</sup>J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.* **268**, 1818 (2010).
- <sup>40</sup>S. Günster, T. Kellermann, and D. Ristau, *Optical Interference Coatings 2016*, Washington, D.C. (OSA Publishing, Tucson, AZ, 2016), p. WA.3.
- <sup>41</sup>W. Sakiew, S. Schrameyer, M. Jupé, P. Schwerdtner, N. Erhart, K. Starke, and D. Ristau, *Thin Solid Films* **682**, 109 (2019).
- <sup>42</sup>W. Sakiew, E. Klocke, and D. Ristau, *AIP Adv.* **11**, 035239 (2021).
- <sup>43</sup>F. Schulz and R. Sizmann, *Philos. Mag. A J. Theor. Exp. Appl. Phys.* **18**, 269 (1968).
- <sup>44</sup>S. Berg, E. Särhammar, and T. Nyberg, *Thin Solid Films* **565**, 186 (2014).
- <sup>45</sup>K. Strijckmans and D. Depla, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47**, 235302 (2014).
- <sup>46</sup>V. Scheuer, M. Tilsch, and T. T. Tschudi, *Proc. SPIE* **2253**, 445 (1994).
- <sup>47</sup>R. Rinaldi and X. Llovet, *Microsc. Microanal.* **21**, 1053 (2015).
- <sup>48</sup>C. J. Stolz, R. A. Negres, and E. Feigenbaum, *Optical Interference Coatings Conference 2019*, Washington, D.C. (OSA Publishing, Santa Ana Pueblo, NM, 2019), p. ThA.1.
- <sup>49</sup>J. F. Ziegler, U. Littmark, and J. P. Biersack, *The Stopping and Range of Ions in Solids* (Pergamon, New York, 1985).
- <sup>50</sup>J. P. Biersack and W. Eckstein, *Appl. Phys. A* **34**, 73 (1984).
- <sup>51</sup>*Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies*, edited by R. Behrisch and W. Eckstein (Springer, Berlin/Heidelberg, Germany, 2007).
- <sup>52</sup>N. Matsunami, Y. Yamamura, Y. Itikawa, N. Itoh, Y. Kazumata, S. Miyagawa, K. Morita, R. Shimizu, and H. Tawara, *At. Data Nucl. Data Tables* **31**, 1 (1984).
- <sup>53</sup>T. Tolenis, L. Grinevičiūtė, R. Buzelis, L. Smalakys, E. Pupka, S. Melnikas, A. Selskis, R. Drazdys, and A. Melninkaitis, *Opt. Mater. Express* **7**, 1249 (2017).
- <sup>54</sup>M. Tilsch, V. Scheuer, and T. T. Tschudi, *Proc. SPIE* **3133**, 163 (1997).
- <sup>55</sup>H. J. Barth, E. Mühlhling, and W. Eckstein, *Surf. Sci.* **166**, 458 (1986).
- <sup>56</sup>W. Eckstein, *Reflection (Backscattering)-IPP-Report*, 2009.
- <sup>57</sup>M. W. Thompson, *Philos. Mag. A J. Theor. Exp. Appl. Phys.* **18**, 377 (1968).
- <sup>58</sup>A. Goehlich, N. Niemöller, and H. F. Döbele, *Phys. Rev. B* **62**, 9349 (2000).
- <sup>59</sup>M. Stepanova and S. K. Dew, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.* **215**, 357 (2004).





# 6

## Modellierung der Sekundärteilchen

Ziel des vorliegenden Kapitels ist, unterschiedliche Ansätze zur Modellierung der Sekundärteilchen vorzustellen und zu prüfen, mit welcher Übereinstimmung ausgewählte experimentelle Ergebnisse aus dem vorangegangenen Kapitel 5 reproduziert werden. Es soll ein Verständnis darüber aufgebaut werden, welcher Materialstrom von einem Festkörpertarget durch Zerstäubung mit einem breiten Ionenstrahl emittiert wird. Der Fokus wird auf die im Kapitel 5.1 gezeigten Beschichtungsratenverteilungen gerichtet, weil dort die Abstände des ortsfesten Substratträgers zum Target im Sinne einer dreidimensionalen Prozesskartierung variiert wurden. Bei diesen Experimenten führten die als möglichst identisch präparierten Zerstäubungsprozesse aufgrund von unterschiedlichen Weglängen der Beschichtungsteilchen zum, sowie deren unterschiedlichen Einfallswinkel am Beschichtungsort, so die Annahme, zu quantitativ und qualitativ unterschiedlichen Beschichtungsratenverteilungen.

Das Kapitel ist in mehrere Abschnitte unterteilt und beginnt mit der Substitution des vom Target zerstäubten Materialstromes durch einen Punktemitter. Weiterführend wird die Erosionsfläche als eine Überlagerung von Kosinusemittern aufgebaut mit einer ersten und noch unvollständigen Kopplung an die Ionenstrahlmodellierung aus Kapitel 4. Daran anschließend wird der numerische Aufwand weiter gesteigert, indem die vollständige Primärteilchenmodellierung mit detaillierten Zerstäubungssimulationen verbunden wird. Die Zerstäubungssimulationen erfolgen mit dem weit verbreiteten Computerprogramm *TRIDYN* [84, 85]. *TRIDYN* ermöglicht es, komplizierte Mechanismen der Ionen-Materie-Wechselwirkung, wie die parasitäre dielektrische Belegung der Targetoberfläche oder die konkurrierende Zerstäubung der aufwachsenden Schicht in der Beschichtungsebene durch am Target gestreute Projektile, in Simulationen zu untersuchen.

## 6.1 Annahmen

Die in Experimenten ermittelten Schichtdicken der dielektrischen Schichten betreffend wird angenommen, dass diese direkt proportional zur Menge der an der jeweiligen Position auftreffenden Beschichtungsteilchen sind. Ortsabhängige Schwankungen in Dichte, Stöchiometrie und Zusammensetzung der Schichten (Kapitel 5.2) haben für die Modellierung keine Relevanz. Für die zerstäubten Sekundärteilchen und die gestreuten Primärteilchen wird angenommen, dass diese ausschließlich in neutraler Form vorliegen (Kapitel 2.1). Daher werden alle vom Target emittierten Teilchen im Folgenden durch lineare und ortsfeste Trajektorien modelliert, die zeitinvariante Teilchenströme darstellen. Im Gegensatz zu den Primärteilchen ist die unsichere Annahme einer vollständigen Raumladungskompensation nicht erforderlich. Weiterhin wird die Implantation von Projektilen, die typischerweise Bestandteil einer physikalischen Zerstäubung ist und sich auch im vorliegenden industriellen Beschichtungsprozess zeigt (Kapitel 5.2), im Folgenden nicht berücksichtigt. Zudem wird die mittlere freie Weglänge für alle vom Target emittierten Teilchen als unendlich angenommen.

## 6.2 Substitution durch Punktemitter

Der einfachste Ansatz, den Beschichtungsprozess zu modellieren, ist, einen punktförmigen Emitter als Quelle für alle Sekundärteilchen anzunehmen. Ein solcher Ansatz berücksichtigt die Gesamtmenge der Projektilen, die sich zum Target bewegen, nicht jedoch die räumliche Ausdehnung des breiten Ionenstrahls. Die Prozessgeometrie wird damit auf einen linienförmigen Ionenstrahl reduziert, der das Target an einem einzelnen Punkt erodiert. Die tatsächliche flächige Erosion (Kapitel 3 und 4) wird damit durch einen Punkt substituiert. Folglich wird die Primärteilchenmodellierung aus Kapitel 4 für diesen Ansatz nicht benötigt. Abbildung 1 des Artikels C im Kapitel 5.1 verdeutlicht die Prozessgeometrie und definiert das im Folgenden verwendete Koordinatensystem. Der in dieser Abbildung auf dem Target eingezeichnete Punkt  $P_E$  stellt den Punktemitter dar. Eine solche Vereinfachung ist zweckmäßig, falls die Größe der Erosionsfläche klein gegenüber den Weglängen der Sekundärteilchen ist. Im Kapitel 5.1 wurde aus einem geometrischen Ansatz heraus bereits geschlossen, dass die hier betrachtete Prozessgeometrie wahrscheinlich nicht durch einen punktförmigen Emitter modelliert werden kann. Im Folgenden wird diese Fragestellung vertieft.

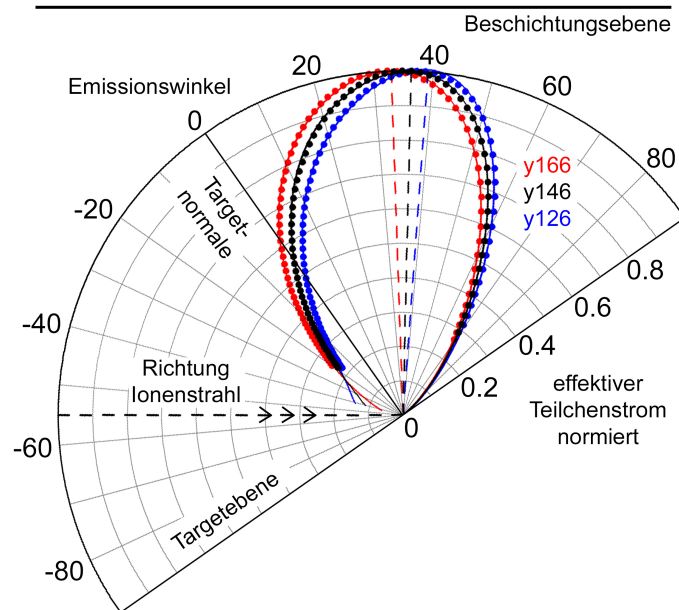
Die Untersuchung basiert auf einer numerischen Rekonstruktion einer effektiven Emissionscharakteristik  $\partial Y_{eff} / \partial \beta$  aus den experimentellen Daten heraus.  $\beta$  ist der polare Emissions-

winkel. Zur Vereinfachung wird der azimutale Emissionswinkel  $\phi$  nicht einbezogen. Damit wird die Betrachtung auf diejenige Ebene eingeschränkt, die von der Symmetrieachse des Ionenstrahls und der Targetnormalen aufgespannt wird. Die rekonstruierte Materialemission wird als effektiv angesehen, da nicht ausgeschlossen werden kann, dass im Experiment die in der Beschichtungsebene aufwachsende Schicht durch einen simultanen und konkurrierenden Prozess wieder zerstäubt wird. Deswegen und aufgrund der Substitution darf eine Emissionscharakteristik hier nicht als differentielle Zerstäubungsausbeute  $\partial^3 Y / \partial E \partial \beta \partial \phi$  [15, 51] interpretiert werden. Zu dem wird die Teilchenenergien  $E$  an dieser Stelle vollständig ignoriert. Für die Rekonstruktion wird das in diesem Zusammenhang weit verbreitete photometrische Entfernungsgesetz verwendet:

$$\frac{\partial \bar{Y}_{eff}}{\partial \beta} \propto R_{eff}(x_0, y, z_p) \cdot \frac{r_{sek}^2}{\cos(\alpha_{depos})}, \quad (6.1)$$

mit  $R_{eff}$  als experimentell ermittelte Beschichtungsrate am Beschichtungsort  $(x_0, y, z_p)$  und  $r_{sek}$  als Abstand zwischen der Position des Punktstrahlers auf dem Target und  $(x_0, y, z_p)$ .  $\alpha_{depos}$  beschreibt den Einfallswinkel des unter Winkel  $\beta$  emittierten Teilchenstromes am Beschichtungsort. Das Koordinatensystem ist in den Artikeln C (Kapitel 5.1) und D (Kapitel 5.2) verdeutlicht. Durch die Reduzierung auf die Symmetrieebene ist  $x_0$  fest.  $y$  ist kontinuierlich aufgrund der Approximation der experimentell ermittelten Beschichtungsratenverteilungen durch die Funktion  $R(x, y)$  aus [70]. Zudem wird durch den Verzicht, über Raumwinkel und Flächenelemente zu integrieren, eine qualitative bzw. normierte Emissionscharakteristik  $\partial \bar{Y}_{eff} / \partial \beta$  erhalten.

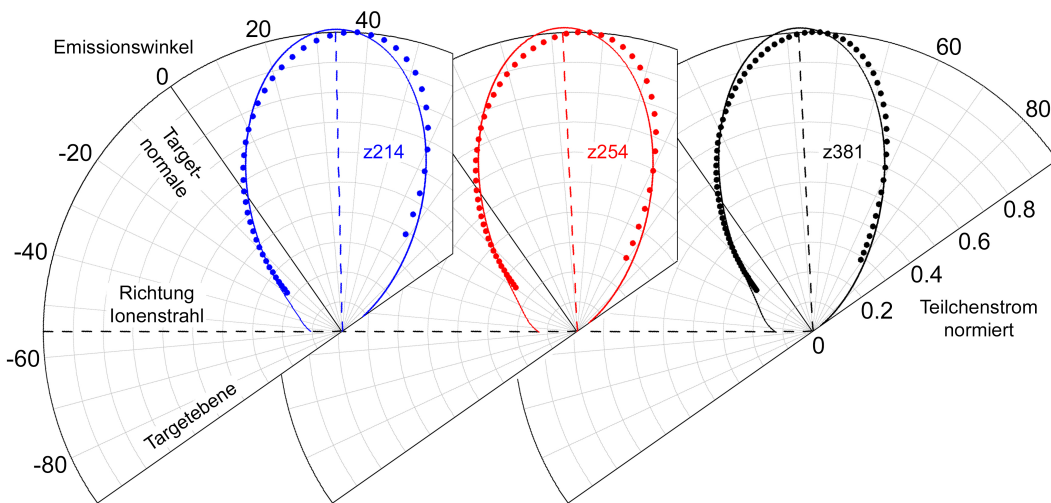
Eine Schwierigkeit bei der Substitution einer breiten Erosions- bzw. Emissionsfläche durch einen Punktstrahler äußert sich in der Wahl seines Ortes innerhalb der Erosionsfläche. Die Position des Erosionsmaximums dafür auszuwählen ist eine Möglichkeit. Die Simulationen im Kapitel 4.1 zeigen jedoch auf, dass am Ort des Erosionsmaximums nicht zwingend auch die meisten Primärteilchen auftreffen. Insofern fehlt eine plausible Argumentation für die Orstwahl. Abbildung 6.1 verdeutlicht die Unterschiede in den zurückgerechneten Emissionscharakteristiken, falls die Emitterposition auf dem Target verschoben wird.



**Abbildung 6.1:** Variation der Position des Punktemitters in y-Richtung. Die effektive Richtungscharakteristik bei der Zerstäubung von Tantal mit einem breiten Ionenstrahl, bestehend aus Argonionen mit einer Energie von 1800 eV, wird rekonstruiert. Die Targetnormale ist um  $55^\circ$  gegenüber der Symmetrieachse des Ionenstrahls geneigt. Es wird vereinfachend angenommen, dass der gesamte Materialstrom von einem Punkt innerhalb der Erosionsfläche emittiert wird. Im Koordinatensystem des Targets entspricht  $x = 100$  mm und  $y = 146$  mm der Position des Erosionsmaximums gemäß Approximation im Kapitel 3.1 (Abbildung 4(b) und Tabelle III des Artikels A). Die beiden anderen Positionen für den Punktemitter sind entlang der Targetoberfläche in y-Richtung um 20 mm in beide Richtungen verschoben. Zurückgerechnet wurde die im Kapitel 5.1 gezeigte Beschichtungsratenverteilung mit Abstand  $z_p = 381$  mm des ortsfesten Substratträgers zum Target (Abbildung 4 des Artikels C). Die Datenpunkte zeigen die experimentellen Daten nach Approximation durch Gleichung  $R(x,y)$  aus [70], umgerechnet auf Emissionscharakteristiken  $\partial \bar{Y}_{eff} / \partial \beta$  mit Gleichung 6.1. Die durchgezogenen Linien zeigen die Approximationen mit Gleichung 2.2, wobei zur besseren Übereinstimmung mit den Datenpunkten  $n = 2$  (ohne physikalische Deutung) gewählt wurde. Es zeigt sich deutlich, dass die rekonstruierte Emissionscharakteristik von der Wahl des Materialursprungs abhängt, mit Abweichungen bis zu etwa 12% für die gewählten Verschiebungen. Die Ausrichtung der Beschichtungsebene ist mit einer Linie angedeutet. Die Beschichtungsfläche erstreckte sich im Experiment im Polarwinkelbereich von etwa  $-19$  bis  $80$  Grad.

Ein weiterer Nachteil bei diesem Ansatz ist die fehlende Kopplung an Mechanismen der Ionen-Materie-Wechselwirkung. Für die Approximation der in Abbildung 6.1 gezeigten Daten durch Gleichung 2.2 wurde mit  $n = 2$  ein Ansatz ohne physikalische Deutung gewählt. Vernachlässigt man, dass die Position des Punktemitters auf dem Target ohne plausible Argumentation gewählt wurde und legt man  $n = 1$  fest (entspricht Gleichung 2.1), dann sind die experimentellen Daten aus Kapitel 5.1 deutlich schlechter approximiert. Abbildung

6.2 verdeutlicht dies. Es zeigt sich also, dass eine physikalisch interpretierbare Zerlegung in einen isotropen und anisotropen Anteil in einer deutlichen Abweichung zwischen Modell und Experiment resultiert. Als eine der Ursachen wird die Substitution eines Flächenemitters durch einen Punktemitter vermutet. Die fehlende Interpretierbarkeit wird auch durch die erhaltenen Amplitudenverhältnisse  $A_{aniso}/A_{iso}$  bestärkt, die sich deutlich unterscheiden (siehe Bilduntertext von Abbildung 6.2), obwohl die jeweiligen Zerstäubungsprozesse mit identischen Ionenstrahlparametern präpariert waren. Die zurückgerechneten Emissionscharakteristiken erscheinen damit inkonsistent gegenüber einer Variation des Abstandes  $z_p$  zwischen Target und Beschichtungsebene.



**Abbildung 6.2:** Variation des Abstand  $z_p$  zwischen Target und Beschichtungsebene. Die effektive Richtungscharakteristik wird für denselben Zerstäubungsprozess rekonstruiert, wie in Abbildung 6.1 gezeigt. Es werden die experimentellen Daten für die Schichtdickenverteilungen aus Kapitel 5.1 herangezogen, bei denen der Abstand  $z_p$  variiert wurde. Die Approximation (durchgezogene Linien) der zurückgerechneten Emissionscharakteristiken (Datenpunkte) erfolgt mit Gleichung 2.2 und  $n = 1$  statt  $n = 2$  (entspricht auch Gleichung 2.1). Die erhaltenen Amplitudenverhältnisse  $A_{aniso}/A_{iso}$  für die Abstände  $z_p = 214, 254$  und  $381$  mm unterscheiden sich mit 4.78, 3.64 und 3.80 deutlich. Die anisotropen Anteile sind mit  $\beta_{max,1} = 35.3, 33.9$  und  $33.7^\circ$  in Vorwärtsrichtung verkippt und erscheinen mit  $m_1 = 4.20, 4.85$  und  $5.42$  stark entartet. Die Beschichtungsebene wird nicht gezeigt, ist jedoch identisch ausgerichtet wie in Abbildung 6.1.

Die Abbildungen in diesem Abschnitt suggerieren aus Sicht des Punktemitters einen vom Target zerstäubten Materialstrom, der von einem anisotropen Anteil mit einem hohen Entartungsgrad dominiert wird. Die Emissionscharakteristiken der tatsächlichen, über die Targetoberfläche verteilten Zerstäubungsvorgänge können anders emittieren. Aufgrund der beschriebenen Nachteile wurde die Substitution durch einen Punktemitter nicht auf den azimuthalen Emissionswinkel  $\phi$  erweitert und auch sonst nicht weiter verfolgt.

### 6.3 Flächenmitter als Überlagerung von Punktemittern mit rotationssymmetrischen Emissionscharakteristiken

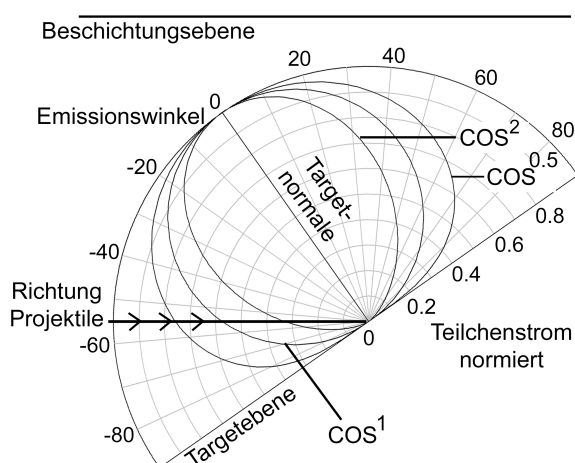
Anknüpfend an den vorangegangenen Ansatz, wird im Folgenden die Erosionsfläche auch als Fläche modelliert, um den vom Target emittierten Materialstrom nachzubilden. Dafür wird die Primärteilchenmodellierung aus Kapitel 4 herangezogen und somit die aus der Erosion des Targets rekonstruierte Geometrie des Ionenstrahls mit einbezogen.

Die Primärteilchenmodellierung liefert für jede Trajektorie, auftreffend auf eine Targetposition  $(x', y')$ , sowohl die Teilchenmenge pro Zeit- und Flächeneinheit, ausgedrückt als Teilchenstrom  $j_{PRIM}(x', y', \alpha, \theta)$ , als auch die zugehörigen polaren und azimutalen Einfallswinkel,  $\alpha$  und  $\theta$ .  $\alpha$  wird gegen die Targetnormale gemessen,  $\theta$  gegen diejenige Ebene, die durch die Symmetrieachse des Ionenstrahls und die Targetnormale aufgespannt wird. Jede Primärteilchentrajektorie erzeugt einen integralen Sekundärteilchenstrom  $j_{SEC}(x', y')$ , der in den Halbraum über dem Target emittiert wird. Für die Primärteilchenmodellierung ist nur entscheidend, wie viele Sekundärteilchen abgestäubt werden. Dies wird durch die integrale Zerstäubungsausbeute  $Y(\alpha)$  beschrieben und in der Primärteilchenmodellierung in Kapitel 4.1 mit ausgewählten semiempirische Modellen [73, 76] berechnet.  $Y(\alpha)$  transformiert also  $j_{PRIM}(x', y', \alpha, \theta)$  in  $j_{SEC}(x', y')$ . Für die Sekundärteilchenmodellierung besteht die Herausforderung darin, auch die Emissionsrichtungen der abgestäubten Teilchen, also die differentielle Zerstäubungsausbeute  $\partial Y / \partial E \partial \beta \partial \phi$ , als Funktion von  $\alpha$  zu kennen, wobei die Teilchenenergie  $E$  vorerst ignoriert wird.

Ausgehend von der rekonstruierten Verteilung der polaren Einfallswinkel der Projektile in Kapitel 4.2, deren Werte im Bereich  $55 + 13/-10$  Grad weit weg von normalen Einfallswinkeln sind, ist zu erwarten, dass die Emissionscharakteristiken der Sekundärteilchen gegenüber der Targetnormalen verkippt sind. Wie im Kapitel 2.1 jedoch beschrieben, ist kein nicht-numerisches Modell bekannt, das die differentielle Zerstäubungsausbeute in Abhängigkeit vom polaren Einfallswinkel  $\alpha$ , polaren Emissionswinkel  $\beta$ , azimutalen Emissionswinkel  $\phi$ , der Projektilenergie  $E$  und den beteiligten Teilchenspezies beschreiben kann. Um dennoch einen Ansatz entkoppelt von zeitaufwändigen Monte-Carlo-Simulationen (oder sehr kosten- und zeitaufwändigen Experimenten) zur Ionen-Materie-Wechselwirkung zu testen, wurde das folgende Modell konstruiert: Die Erosionsfläche wird aus Punktemittern gemäß Gleichung 2.3 zusammengesetzt, deren Emissionscharakteristiken zweidimensionale Kosinusfunktionen sind, die nicht gegenüber der Targetnormalen verkippt sind. Sie sind gegenüber der Targetnormalen rotationssymmetrisch. Damit können die Sekundärteilchenströme in alle



Richtungen des Halbraums über dem Target beschrieben werden. Die Rotationssymmetrie bringt die Vereinfachung mit sich, dass der azimutale Emissionswinkel  $\phi$  einer Sekundärteilchentrajektorie in der numerischem Implementierung nicht gegenüber dem azimutalen Einfallswinkel  $\theta$  einer Primärteilchentrajektorie ausgerichtet werden muss. In Anlehnung an [57] wird weiterhin eine Entartung  $m$  der Emitter zugelassen. Aufgrund der Tatsachen, dass die Primärteilchen nicht senkrecht auf das Target auftreffen und keine Verkippung der Emissionscharakteristiken implementiert ist, darf  $m$  in diesem Ansatz nur als Pseudo-Entartung bezeichnet werden. Weiterhin erfordert die Bestimmung eines Entartungsgrades ein numerisches Modell oder ein Experiment. Aus diesen Gründen stellt  $m$  hier einen freien Parameter dar und wird für alle Emitter als identisch angenommen. Abbildung 6.3 zeigt beispielhaft Kosinusemitter für drei unterschiedliche Entartungsgrade, eingezeichnet in der hier vorliegenden Prozessgeometrie, bei welcher das Target um 55 Grad gegenüber dem Ionenstrahl verkippt ist.



**Abbildung 6.3:** Kosinusemitter für drei unterschiedliche Entartungsgrade  $m$ . Die tatsächliche Beschichtungsfläche, die in den Experimenten verwendet wurde, ist größer als hier angedeutet. Für den kleinsten hier betrachteten Abstand  $z_p = 210$  mm der Beschichtungsfläche zum Erosionsmaximum auf dem Target erfasst diese einen Polarwinkelbereich von -32 bis 96 Grad. Für den größten betrachteten Abstand  $z_p = 381$  mm reduziert sich der Polarwinkelbereich auf -19 bis 80 Grad. Die eingezeichnete Richtung der Projektilen entspricht der Symmetrieachse des breiten Ionenstrahls. Zu besserer Übersicht ist die Geometrie des breiten Ionenstrahls nicht angedeutet.

Der Ionenstrahl ist breit, so dass die Projektilen über eine breite Fläche und unter unterschiedlichen Winkeln auftreffen, wie in Abbildungen in den Kapiteln 3 und 4 verdeutlicht ist. Unabhängig vom polaren Einfallswinkel einer Primärteilchentrajektorie auf dem Target bleiben bei diesem Ansatz Form und Ausrichtung des induzierten Emitter immer identisch. Nur die Amplitude  $A_{emitter}$  ändert sich, durch welche die in den Halbraum über dem Target

emittierten Sekundärteilchenströme skaliert werden:

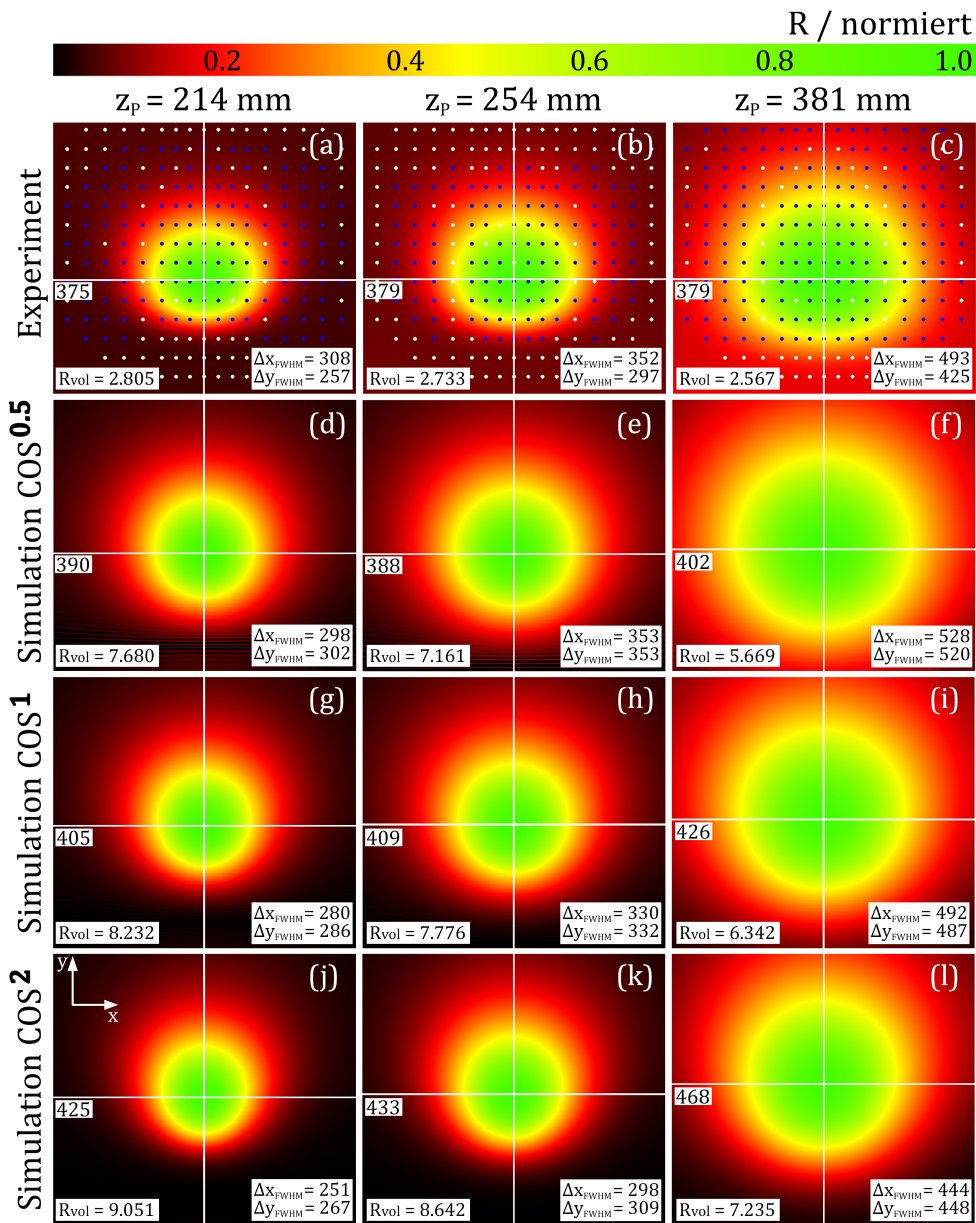
$$A_{emitter} \cdot \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi/2} \cos^m(\beta) \cdot \sin(\beta) d\beta = j_{SEC}(x', y') = Y(\alpha) \cdot j_{PRIM}(x', y', \alpha, \theta). \quad (6.2)$$

Der Modellierungsansatz besteht also darin, den erzeugten integralen Sekundärteilchenstrom jeder auf das Target auftreffenden Primärteilchentrajektorie entsprechend den Gleichungen 2.3 und 6.2 im Halbraum über dem Target zu verteilen. Oder anders ausgedrückt, wird jeder Primärteilchentrajektorie ein rotationssymmetrischer Kosinusemitter mit immer identischem Pseudo-Entartungsgrad  $m$  und einer individuellen Amplitude  $A_{emitter}$  zugeordnet. Die Primärteilchenmodellierung, deren freie Modellparameter anhand eines experimentellen Erosionsprofils und der dreidimensionalen Prozessgeometrie unter Verwendung von semiempirischen Modellen bestimmt werden, liefert hierbei  $j_{SEC}(x', y')$  (Kapitel 4). Mit den semiempirischen Modellen sind Ionenspezies, deren Energie und polarer Einfallswinkel sowie die Targetatomspezies berücksichtigt. Der einzige freie Parameter in diesem Ansatz ist somit  $m$ .

Im Detail basiert die numerische Implementierung darauf, dass jede Primärteilchentrajektorie in  $N_{SEC}$  Sekundärteilchentrajektorien aufgeteilt und jeder Sekundärteilchentrajektorie entsprechend ihrer Richtung und entsprechend Gleichung 6.2 ein Raumwinkel zugeordnet wird. Der Raumwinkel repräsentiert den Anteil am integralen Sekundärteilchenstrom  $j_{SEC}(x', y')$ .

Als Schlussfolgerung aus Kapitel 4.2 stellt jede Targetposition  $(x', y')$  eine Überlagerung von vielen Kosinusemittern mit unterschiedlichen Amplituden  $A_{emitter}$  dar, weil Primärteilchentrajektorien aus unterschiedlichen Richtungen mit unterschiedlichen Teilchenstrombeträgen auftreten. Die Anzahl an simulierten und überlagerten Kosinusemittern ( $\sim 10^7$ ) ist folglich deutlich größer als die Anzahl an Targetsegmenten (max. 50000), aus denen die Erosionsfläche modelliert wird. Zudem wurde mit einem hohen Wert  $N_{SEC} = 32400$  sichergestellt, dass in der simulierten Beschichtungsebene mit Segmenten der Größe  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  keine Segmente vorkommen, die nicht durch Sekundärteilchentrajektorien getroffen werden. Im Resultat wurden in der Größenordnung  $10^{12}$  Sekundärteilchentrajektorien berechnet, die den gesamten vom Target emittierten Teilchenstrom an Beschichtungsteilchen simulieren.

Abbildung 6.4 zeigt eine Parameterstudie, in welcher  $m$  variiert wird. Wie bereits geschrieben, werden ausgewählte Experimente simulativ nachgebildet, bei denen der Abstand  $z_p$  zwischen Target und Beschichtungsebene variiert wurde, der Ionenstrahl selbst sowie seine Ausrichtung gegenüber dem Target jedoch als möglichst identisch präpariert waren.



**Abbildung 6.4:** Vergleich simulierte mit experimentellen Beschichtungsrateverteilungen. (a) bis (c) zeigen die experimentellen Ergebnisse aus Kapitel 5.1 bzw. aus [89] für drei unterschiedliche Abstände  $z_p$  des ortsfesten Substratträgers zum Target. Der geringe Versatz der experimentellen Daten gegenüber der Targetmitte in x-Richtung ist hier kompensiert, da dieser aus einer Justagegenauigkeit resultiert. (d) bis (l) zeigen die Simulationen unter Verwendung der Primärteilchenmodellierung aus Kapitel 4 und einer Sekundärteilchenmodellierung, basierend auf Kosinusemittern. Mit einer Anzahl von 13,181,760 Primärteilchentrajektorien und somit auch Kosinusemittern und  $N_{SEC} = 32400$  Sekundärteilchentrajektorien pro Kosinusemitter werden 427,089,024,000 Sekundärteilchentrajektorien berechnet. Die Prozessgeometrie aus den Experimenten ist vollständig dreidimensional nachgebildet. Auf die virtuelle Beschichtungsfläche der Größe 1004 x 900 mm<sup>2</sup> (identisch mit Experiment) auftreffende Trajektorien werden akkumuliert. Der Pseudo-Entartungsgrad  $m = 0.5, 1$  oder  $2$  wird variiert. Alle Verteilungen sind zur besseren Vergleichbarkeit normiert. Jede Verteilung ist durch die Position  $y_0$  des Beschichtungsratemaximums in y-Richtung (in mm), die beiden Halbwertsbreiten  $\Delta x_{FWHM}$  und  $\Delta y_{FWHM}$  (in mm) sowie die Volumenbeschichtungsrate  $R_{vol}$  (in mm<sup>3</sup>/min) charakterisiert. Für  $m = 0.5$  stimmen vier der 12 Parameter aus den Simulationen innerhalb der favorisierten Fehlergrenze von  $\pm 5\%$  mit dem Experiment überein.

Zur Bewertung der Simulationsergebnisse werden die folgenden vier Parameter herangezogen: Position  $y_0$  des Beschichtungsratenmaximums in  $y$ -Richtung, die beiden Halbwertsbreiten  $\Delta x_{FWHM}$  und  $\Delta y_{FWHM}$  sowie die Volumenbeschichtungsrate  $R_{vol}$ . Das selbst gesetzte Ziel für die Simulationen ist, diese vier Parameter für alle drei Abstände  $z_p$ , also insgesamt 12 Parameter, weniger als  $\pm 5\%$  vom Experiment abweichend zu erhalten. Die Wahl dieses Fehlerfensters resultiert aus mehrjähriger Erfahrung bei der Auswertung von realen Beschichtungsprozessen und stellt eine praxisnahe Basis zur Planung und Realisierung von neuen Prozessgeometrien dar. Aus dieser Perspektive ist die in Abbildung 6.4 gezeigte Simulation nicht erfolgreich, auch wenn diese unter der Variation von  $z_p$  sowohl die Verbreiterung der Materialverteilungen als auch die geringe Änderung in den Positionen der Beschichtungsratenmaxima tendenziell nachbildet.

Mit der Pseudo-Entartung  $m = 0.5$  wird die geringste Abweichung zum Experiment erhalten: die in den Teilabbildungen (d) und (e) gezeigten Verteilungen weichen in ihren Werten  $y_0$  und  $\Delta x_{FWHM}$  weniger als fünf Prozent vom Experiment ab. Es werden also mit dem hier vorgestellten vollständig dreidimensionalen Modell, bei dem ein vereinfachter Ansatz für die Sekundärteilchentrajektorien an die Primärteilchenmodellierung aus Kapitel 4 gekoppelt ist, vier der angestrebten 12 Parameter durch die Simulation innerhalb der favorisierten Fehlergrenze reproduziert.

Das Simulationsergebnis deutet auf eher gestauchte ( $m < 1$ ) als gestreckte Emissionscharakteristiken ( $m > 1$ ) der Ionen-Materie-Wechselwirkung hin. Jedoch ist davon auszugehen, dass die Pseudo-Entartung den hier betrachteten Prozess nicht korrekt wiedergibt. Daher ist auch kein Vergleich mit den Entartungsgraden aus Abbildung 6.2 im vorangegangenen Kapitel möglich, die alle größer als 4.20 sind. Zudem wurde in Abbildung 6.2 die Flächenerosion durch einen Punktemitter substituiert, weswegen auch dort die Entartungsgrade als falsch einzuordnen sind.

Aus numerischer Sicht betrachtet, würde eine weitere Stauchung der Emissionscharakteristiken zu Werten  $m < 0.5$  die Abweichungen der Werte  $y_0$  in den Simulationen gegenüber den experimentellen Ergebnissen weiter reduzieren, gleichzeitig die Diskrepanz in den Werten  $\Delta y_{FWHM}$  jedoch weiter erhöhen. Folglich lässt sich kein Wert für den freien Parameter  $m$  in den Simulationen einstellen, bei dem sowohl die Breiten der Materialverteilungen als auch die Positionen der Beschichtungsratenmaxima entsprechend dem Experiment reproduziert werden. Eine detaillierte numerische Optimierung von  $m$  anhand der experimentellen Ergebnisse wurde daher nicht weiter ausgeführt. Die vereinfachte Modellierung durch rotationsymmetrische und nicht verkippte Emissionscharakteristiken stößt an ihre Grenzen.

Die beobachtete Abweichung zwischen Simulation und Experiment lässt die Vermutung zu, dass trotz einer Modellierung der Flächenerosion des Targets die anisotropen Anteile in der Ionen-Materie-Wechselwirkung nicht exkludiert werden dürfen, zumindest nicht wenn der Ionenstrahl schräg auf das Target trifft. Daher werden im folgenden Kapitel nicht-rotationssymmetrische Emissionscharakteristiken betrachtet.

Eine weitere wichtige Feststellung ist, dass die simulierten Volumenbeschichtungsraten  $R_{vol}$  um Faktoren 2.2 bis 3.2 höher als die experimentellen Raten ausfallen. Auch wenn Fehlergrenzen aus den verwendeten semiempirischen Modellen in Höhe von  $\pm 20\%$  angesetzt werden [75], bleiben die simulierten deutlich über der experimentell ermittelten Volumenbeschichtungsrate. Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Modellierung wichtige Mechanismen nicht berücksichtigt, durch welche  $R_{vol}$  deutlich reduziert wird.

## 6.4 Flächenmitter als Überlagerung von Punktemittern mit mit TRIDYN simulierten Emissionscharakteristiken

Die Simulationsergebnisse im vorangegangenen Kapitel zeigen auf, dass durch Einschränkung auf rotationssymmetrische Emissionscharakteristiken die experimentellen Daten nicht ausreichend genau nachgebildet werden können. Daher werden nun detaillierte Emissionscharakteristiken aus Simulationen mit *TRIDYN* [84, 85] herangezogen, die nicht auf isotrope oder anisotrope Anteile (Kapitel 2.1) limitiert sind.

Konkret wurden dafür in Schritten von einem Grad für alle polaren Einfallswinkel der Projektile auf das Target, die gemäß der Primärteilchenmodellierung vorkommen (Beispiel in Kapitel 4.2), die differentielle und damit auch die integrale Zerstäubungsausbeute mit *TRIDYN* simuliert und die Ergebnisse als multidimensionale Matrix in die Sekundärteilchenmodellierung eingebunden. Die Kopplung zwischen der Primär- und Sekundärteilchenmodellierung ist dann vollständig, weil nicht nur die Mengen, Positionen und die polaren Auftreffwinkel  $\alpha$  der auf das Target auftreffenden Projektile berücksichtigt sind, sondern auch deren azimutale Auftreffwinkel  $\theta$ . Der polare Auftreffwinkel einer Primärteilchentrajektorie beeinflusst die Menge an abgestäubten Sekundärteilchen sowie Form und Verkippungswinkel der zugehörigen Emissionscharakteristik gegenüber der Targetnormalen. Der azimutale Auftreffwinkel stellt die Ausrichtung einer nichtrotationssymmetrischen Emissionscharakteristik gegenüber dem Target als Drehung um die Targetnormale ein und überträgt damit

die azimutale Richtungsinformation einer Primärteilchentrajektorie auf alle induzierten Sekundärteilchentrajektorien.

Die Einbindung von *TRIDYN* zur Beschreibung der Sekundärteilchen ermöglicht es, die Zerstäubungsmechanismen gezielt zu untersuchen. Zum einen können die Eigenschaften sowohl der Projektile (Ionenspezies, Ionenenergie, Einfallswinkel, etc.) als auch des Targets (Zusammensetzung, homogen oder aufeinanderfolgende Schichten mit unterschiedlichen Eigenschaften, etc.) variiert werden. Zum anderen liefern die Simulationen die energiedispersiven Emissionscharakteristiken sowohl von allen im Target definierten Teilchensorten als auch von den am Target gestreuten Projektilen. Erst ein Abgleich mit geeigneten Experimenten zeigt jedoch auf, wie realitätsnah die Simulationen sind.

Neben einer besseren qualitativen Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment ist eine weitere Zielstellung, zu verstehen, durch welche Mechanismen die in Kapitel 6.3 erhaltene quantitative Abweichung der simulierten zu den experimentellen Volumenbeschichtungsraten zustande kommen kann. Drei Mechanismen werden im Folgenden betrachtet.

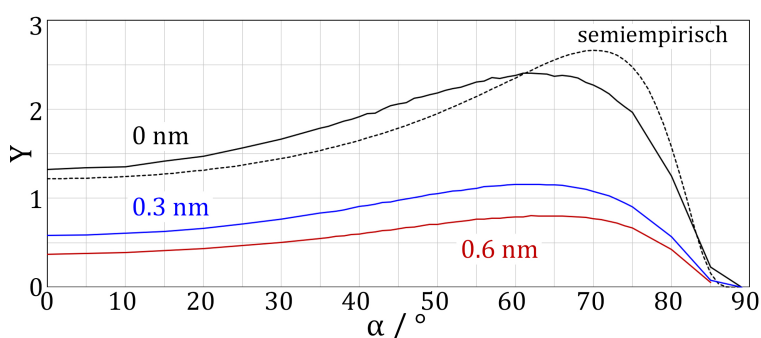
#### 6.4.1 Dielektrische Belegung der Targetoberfläche

In reaktiven Zerstäubungsprozessen kann die zerstäubte Targetoberfläche durch einen simultanen, konkurrierenden und als parasitär einzustufenden Prozess mit einer dielektrischen Schicht versiegelt werden. Dieser Mechanismus (im Englischen als *target poisoning* bezeichnet) ist im Bereich der reaktiven Magnetronzerstäubung seit vielen Jahren Gegenstand der Forschung, wie in Kapitel 4.1 bereits erwähnt. Experimentell, während einer Zerstäubung, ist er kaum zugänglich. Im Folgenden wird dieser Mechanismus im Kontext der reaktiven Ionenstrahlzerstäubung und im Rahmen der Modellierung der Sekundärteilchen untersucht.

Für den hier betrachteten Prozess, die Zerstäubung von einem Tantaltarget mit Argonionen in einem Prozessraum, dem Sauerstoff zugeführt wird, wird angenommen, dass die Targetoberfläche mit einer dünnen, über die Erosionsfläche konstant dicken Tantalpentoxidschicht belegt wird. Genauer, die Tantalpentoxidschicht wird permanent zerstäubt und durch Sauerstoff aus der Prozessatmosphäre, das Adsorbat, durch Chemisorption quasi instantan nachgebildet. Die Sauerstoffatome können auch als energetische Projektile in das Target implantiert werden und auf diese Weise zur dielektrischen Versiegelung beitragen [91]. Die initiale Ionen-Materie-Wechselwirkung findet in einem solchen Szenario zwischen Argonionen und der Oxidschicht statt. Auch wenn die Ionen oder die durch die Ionen angeregten



Stoßkaskaden durch die dünne Oxidschicht transmittieren, sind die oberflächennahen Prozesse dennoch verändert. Eine ergänzende Betrachtungsweise ist, dass eine quantitative Änderung bereits daraus resultiert, weil ein Teil der Projektile dafür verbraucht wird, um die sich permanent nachbildende dielektrische Schicht wieder abzutragen. Abbildung 6.5 zeigt aus statischen Simulationen mit *TRIDYN* erhaltene integrale Zerstäubungsausbeuten, ohne und mit dielektrischer Belegung der Tantaloberfläche.



**Abbildung 6.5:** Integrale Zerstäubungsausbeute  $Y(\alpha)$  in Abhängigkeit vom Einfallswinkel  $\alpha$  der Projektile für die Zerstäubung von Tantal mit Argonionen mit einer Energie von 1800 eV, berechnet mit semiempirischen Modellen [73, 76] und simuliert mit *TRIDYN*. Die numerischen Simulationen erfolgten statisch und ohne Berücksichtigung von implantierten Projektile. Es werden drei simulierte Fälle verglichen: ohne (0 nm) und mit einer Tantalpentoxidschicht (Schichtdicken 0.3 und 0.6 nm), mit welcher die Tantaloberfläche belegt ist. Tantalpentoxid ist als amorph simuliert. Die Zerstäubungsausbeute  $Y(55)$  sinkt im Resultat von 2.31 mit zunehmender Oxidschichtdicke auf 1.11 und schließlich auf 0.77.

Die Simulationsergebnisse verdeutlichen, dass für den vorliegenden Prozess eine permanente Versiegelung mit einer Tantalpentoxidschicht sich in einer deutlichen Verringerung der Menge an abgestäubten Tantalatomen pro Argonion äußert. Die simulierte Oxidschichtdicke von 0.6 nm wurde derart gewählt, dass die simulierten Volumenbeschichtungsrate, ausgehend von Abbildung 6.4, näherungsweise den experimentellen Werten entsprechen. Beim Einfallswinkel von 55 Grad, welcher der Targetneigung gegenüber der Symmetrieachse des Ionenstrahls entspricht, sinkt bei der geringen Oxidschichtdicke von 0.6 nm die simulierte integrale Zerstäubungsausbeute  $Y(55)$  bereits auf etwa 33 % des ursprünglichen Wertes ab. Als Parameterstudie angelegt, wurde die halbe Oxidschichtdicke zum Vergleich mit simuliert.

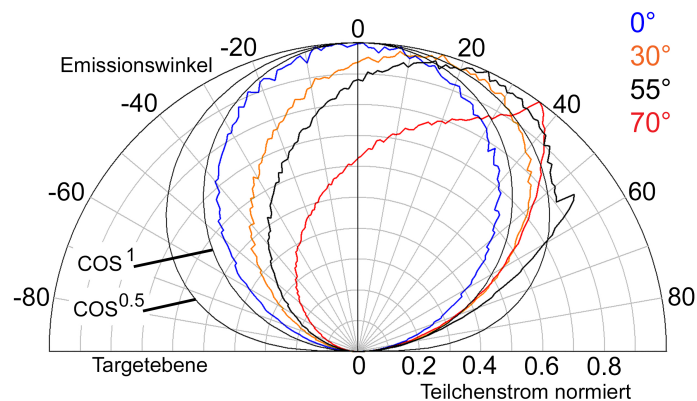
Die mit *TRIDYN* erhaltenen Änderungen in der jeweiligen integralen Zerstäubungsausbeute gegenüber der semiempirischen Modellierung sind für die folgenden Simulationen der

Sekundärteilchen in der Primärteilchenmodellierung rückwirkend berücksichtigt. Die Werte in Tabelle 1 des Artikels B (Kapitel 4.1) wurden also entsprechend der simulierten Kurven  $Y(\alpha)$  reoptimiert. Andernfalls würde die Integration der differentiellen Zerstäubungsausbeute über den Halbraum nicht die zugehörige integrale Zerstäubungsausbeute ergeben und die Daten wären nicht konsistent.

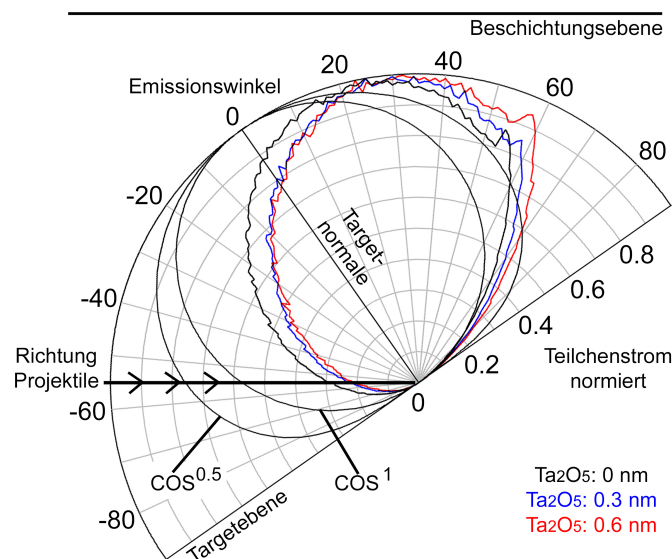
Zusätzliche dynamische Simulationen mit *TRIDYN*, die nicht im Fokus dieser Arbeit stehen, haben gezeigt, dass für einen Zustand mit einer während der Zerstäubung durch Argonionen stabilisierten Tantalpentoxidschichtdicke, wie in Abbildung 6.5 gezeigt, in grober Näherung ähnlich viele Sauerstoffatome aus der Prozessatmosphäre auf der Targetoberfläche adsorbieren müssten wie Projektilteilchen auftreffen. Das entspricht etwa 2 % des dem Prozessraum zugeführten Sauerstoffs von 90 sccm. Allerdings ist es nur eine grobe Abschätzung, weil die dynamischen Simulationen für einen einzelnen polaren Einfallswinkel von 55 Grad und nicht für die konkrete Häufigkeitsverteilung der polaren Einfallswinkel (Kapitel 4.2) erfolgten.

In Ergänzung zu den aufgezeigten deutlichen quantitativen Änderungen der simulierten integralen Zerstäubungsausbeuten in Abhängigkeit von der gewählten Oxidschichtdicke, zeigen Abbildungen 6.6 und 6.7 Simulationsergebnisse zu differentiellen Zerstäubungsausbeuten bzw. Emissionscharakteristiken. Abbildung 6.6 verdeutlicht, dass Form und Verkipfung einer Emissionscharakteristik signifikant vom polaren Einfallswinkel der Projektile abhängen. Bei der Modellierung mit Kosinusemittern konnte dieser Aspekt nicht berücksichtigt werden. Der Vergleich mit und ohne dielektrischer Belegung in Abbildung 6.7 zeigt eine zur Abbildung 6.6 vergleichsweise geringe, jedoch noch deutlich erkennbare Verlagerung der Emission im Winkelbereich von etwa 40 bis 80 Grad in Vorwärtsrichtung. Die beiden Abbildungen zeigen Schnitte durch die Simulationsdaten entlang einer Ebene, in der auch die Projektile orientiert sind. Die vollständigen Simulationsdaten liegen für den gesamten Halbraum vor und ermöglichen eine dreidimensionale Simulation der Sekundärteilchen.

Die im Falle einer dielektrischen Belegung abgestäubten Sauerstoffatome werden an dieser Stelle ignoriert. Ebenso werden die in das Target implantierten Primärteilchen, die im Zuge der Targeterosion wieder abgestäubt werden, nicht einbezogen. Schließlich wird in einem ersten Schritt festgelegt, dass alle abgestäubten Tantalatome unabhängig von ihrer Bewegungsenergie am Auftreffort innerhalb der simulierten Beschichtungsfläche gleichermaßen zur Beschichtung beitragen. Die Energiedispersion der Beschichtungsteilchen (nachfolgend in Abbildung 6.11 gezeigt) wird also für den Schichtbildungsprozess nicht berücksichtigt.



**Abbildung 6.6:** Mit *TRIDYN* statisch simulierte Emissionscharakteristiken für die Zerstäubung von Tantal durch Argonionen mit einer Energie von 1800 eV. Die Tantaloberfläche ist nicht durch eine Tantalpentoxidschicht versiegelt. Der polare Einfallswinkel der Projektile wurde variiert: 0, 30, 55 und 70 Grad (in der Abbildung aus den Richtungen 0, -30, -55 und -70 Grad auf das Target auftreffend). Zum Vergleich sind Emissionscharakteristiken von Kosinusemittern mit den beiden Entartungsgraden  $m = 1$  und  $m = 0.5$  mit eingezeichnet. Die Simulationen zeigen eine deutlich Verformung und Verkippung der Emissionscharakteristiken der abgestäubten Tantalatome in Abhängigkeit vom polaren Einfallswinkel, deutlich abweichend von den Kosinusemittern. Implantation der Primärteilchen ist nicht berücksichtigt.



**Abbildung 6.7:** Mit *TRIDYN* statisch simulierte Emissionscharakteristiken für die Zerstäubung von Tantal durch Argonionen mit einer Energie von 1800 eV und bei einem polaren Einfallswinkel von 55 Grad. Die Targetebene ist entsprechend der Prozessgeometrie geneigt. Verglichen werden Simulationsergebnisse ohne und mit einer dielektrischen Belegung (0,3 und 0,6 nm) der Tantaloberfläche durch eine amorphe Tantalpentoxidschicht. Es werden nur die Emissionscharakteristiken der Tantalatome, nicht der Sauerstoffatome gezeigt. Implantation der Primärteilchen ist nicht berücksichtigt. Es zeigt sich eine im Vergleich zur Abbildung 6.6 geringe Verlagerung in Vorwärtsrichtung im Winkelbereich etwa 40 bis 80 Grad.

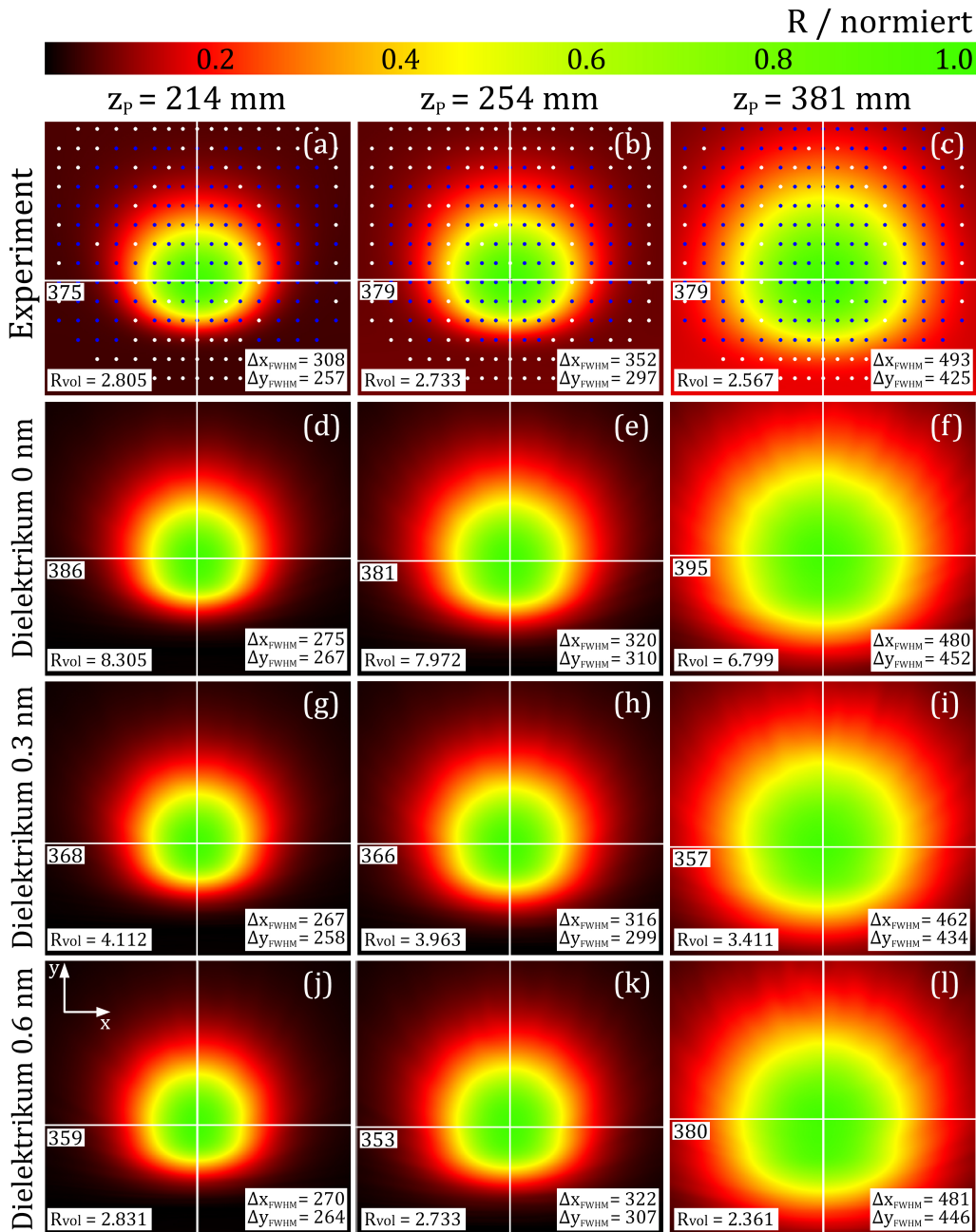
Abbildung 6.8 zeigt in Analogie zur Abbildung 6.4, wie sich die Verwendung von Simulationen mit *TRIDYN* sowie die Berücksichtigung einer dielektrischen Belegung auf die simulierten zweidimensionalen Beschichtungsratenverteilungen auswirken.

Erstens sind die Koordinaten  $y_0$  zu kleineren Werten verschoben und damit besser mit den experimentellen Daten übereinstimmend. Dies wird als Folge der in den Simulationen mit *TRIDYN* erhaltenen Verkippungen der Emissionscharakteristiken in Vorwärtsrichtung interpretiert (siehe Abbildung 6.6), welche in der Modellierung durch Kosinusemitter nicht enthalten ist. Die dielektrische Belegung verschiebt  $y_0$  zusätzlich zu kleineren Werten, weil die Emissionscharakteristiken in Vorwärtsrichtung verlagert werden (siehe Abbildung 6.7).

Zweitens nehmen fast durchgehend die Halbwertsbreiten  $\Delta x_{FWHM}$  und  $\Delta y_{FWHM}$  ab. Vermutlich als Resultat der vom polaren Einfallswinkel der Projektile abhängigen Formänderung der Emissionscharakteristiken der abgestäubten Beschichtungsteilchen. Im Fall von  $\Delta y_{FWHM}$  werden die experimentellen Daten dadurch besser abgebildet. Im Fall von  $\Delta x_{FWHM}$  nimmt der Abstand zu den experimentellen Daten zu. Möglicherweise löst eine Modellierung mit einer inhomogenen dielektrischen Belegung diese Diskrepanz auf.

Als dritter Punkt ist die in Abbildung 6.5 gezeigte Reduzierung in der integralen Zerstäubungsausbeute bei dielektrischer Belegung hervorzuheben, welche sich direkt als Reduzierung in der simulierten Volumenbeschichtungsrate  $R_{vol}$  äußert. Bei einer Oxidschichtdicke von 0.6 nm nähert sich die Simulation an das Experiment an. Bei zwei Abständen,  $z_p = 214$  und  $254$  mm, beträgt die Abweichung weniger als 1 %. Beim größten Abstand  $z_p = 381$  mm wird die Volumenrate mit etwa 8 % unterschätzt. Da in den simulierten Beschichtungsratenverteilungen mit etwa  $55 \pm 13/-10$  Grad ein breiter Einfallswinkelbereich der Projektile berücksichtigt ist und in Abbildung 6.7 nur ein Polarwinkel verglichen wird, lässt sich zusammenfassen, dass die dielektrische Belegung sich vor allem quantitativ auf die Beschichtungsratenverteilung in der Beschichtungsebene auswirkt.

Werden die in Abbildung 6.8 gezeigten Simulationsergebnisse nach demselben Schema bewertet wie in Kapitel 6.3, ergibt sich eine Verbesserung in der Sekundärteilchenmodellierung im Vergleich zur Modellierung durch Kosinusemitter: Durch den Einbezug von *TRIDYN*-Simulationen werden für den Fall einer Tantalpentoxidschichtdicke von 0.6 nm acht statt vier der angestrebten 12 Parameter innerhalb der favorisierten Fehlergrenze von  $\pm 5\%$  reproduziert. Werden alle 12 Parameter einbezogen, dann beträgt das Fehlerintervall beachtliche  $-12.3/ + 4.9\%$ , obwohl eine über die breite Erosionsfläche konstante Oxidschichtdicke angenommen wurde. Die  $-12.3\%$  Abweichung werden für  $\Delta x_{FWHM}$  erhalten.



**Abbildung 6.8:** Vergleich simulierte mit experimentellen Beschichtungsrateverteilungen in Analogie zu Abbildung 6.4. (a) bis (c) zeigen die experimentellen Ergebnisse aus Kapitel 5.1 bzw. aus [89] für drei unterschiedliche Abstände  $z_p$  des ortsfesten Substratträgers zum Target, vollständig reproduziert aus Abbildung 6.4. (d) bis (l) zeigen die Simulationen unter Verwendung der Primärteilchenmodellierung aus Kapitel 4 und einer Sekundärteilchenmodellierung, basierend auf Simulationen mit TRIDYN. 20,891,305 Primärteilchentrajektorien spalten in etwa  $4.7 \cdot 10^{11}$  Sekundärteilchentrajektorien auf. Auf die virtuelle Beschichtungsfläche der Größe  $1004 \times 900 \text{ mm}^2$  auftreffende Trajektorien werden akkumuliert. Die Tantalpentoxidschichtdicke wird variiert: 0, 0.3 oder 0.6 nm. Alle Verteilungen sind zur besseren Vergleichbarkeit normiert. Jede Verteilung ist durch die Position  $y_0$  des Beschichtungsratemaximums in y-Richtung (in mm), die beiden Halbwertsbreiten  $\Delta x_{FWHM}$  und  $\Delta y_{FWHM}$  (in mm) sowie die Volumenbeschichtungsrate  $R_{vol}$  (in  $\text{mm}^3/\text{min}$ ) charakterisiert. Bei einer dielektrischen Versiegelung von 0.6 nm stimmen acht der 12 Parameter aus den Simulationen innerhalb der favorisierten Fehlergrenze von  $\pm 5\%$  mit dem Experiment überein. Prozentual ist die Abweichung bei  $\Delta x_{FWHM}$  am größten.

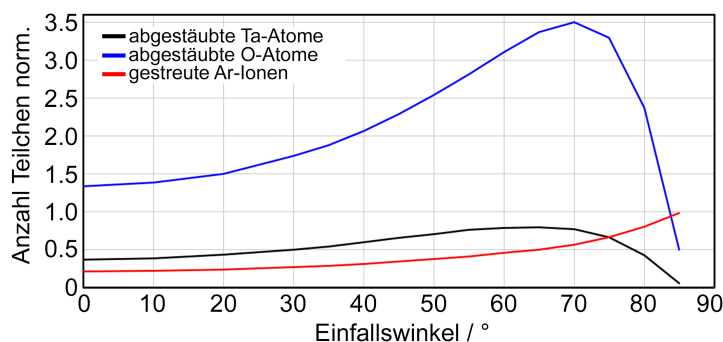
#### 6.4.2 Zerstäubung von Tantal aus Tantalpentoxid

Bei der Ionen-Materie-Wechselwirkung können, wie im Kapitel 2 beschrieben, Atome von einem Target abgestäubt, Projektile am Target gestreut, ins Target implantiert oder, falls das Target ausreichend dünn ist, durch das Target transmittiert werden (hier nicht relevant). Gemäß Simulationen mit *SRIM-2013* [83], wie im Kapitel 5.2 vorgestellt, besitzen sowohl unter den zerstäubten als auch unter den gestreuten Teilchen, ein gewisser Anteil der Teilchen Energien oberhalb von 50 eV. Diese Energien sind ausreichend, um die in der Beschichtungsebene aufwachsende Schicht zu zerstäuben. Daher kann nicht ausgeschlossen werden, dass die im Kapitel 5 gezeigten experimentellen Daten effektive Beschichtungsratenverteilungen darstellen, die aus mindestens zwei simultan stattfindenden und konkurrierenden Prozessen resultieren – Deposition und Zerstäubung. Man kann konstatieren, dass die Deposition stärker ausgeprägt ist als die Zerstäubung, ansonsten würde keine Beschichtung hergestellt werden. Das Verhältnis zwischen den beiden Volumenraten Deposition und Zerstäubung ist jedoch nicht bekannt und soll im Folgenden durch Simulationen bestimmt werden.

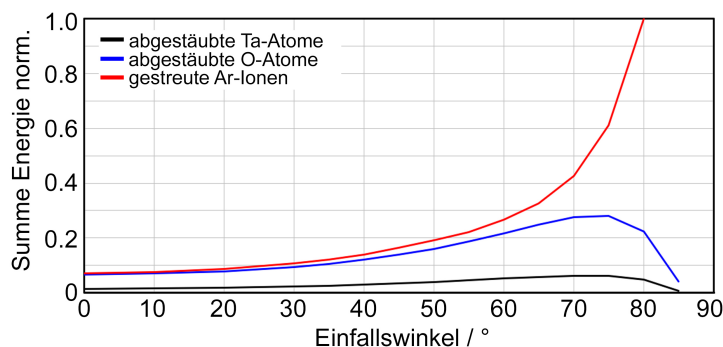
Die in Kapitel 5.2 gezeigten experimentellen Ergebnisse deuten auf eine lokal konzentrierte Zerstäubung in der Beschichtungsebene hin, zumindest im Falle einer Zerstäubung von Tantal durch Xenon. Die Ergebnisse schließen jedoch nicht aus, dass die Zerstäubung eigentlich im gesamten Halbraum über dem Target auftreten kann, ohne sich dann in den in dieser Arbeit untersuchten Materialeigenschaften zu äußern. Es stellt sich also die Frage nach den Winkel- und Energieverteilungen der vom Target in Richtung Beschichtungsebene emittierten Atomsorten Tantal (durch Zerstäubung vom Target) und Argon (durch Streuung am Target). In Kombination mit einer dielektrischen Versiegelung der Targetoberfläche, wie im vorangegangenen Kapitel betrachtet, zählen auch zerstäubte Sauerstoffatome hinzu. In die Targetoberfläche implantierte Argonprojektile, die im Verlauf der Erosion wieder abgestäubt werden, sind aus der Betrachtung ausgelassen. Die folgende Untersuchung baut ebenfalls auf Simulationen mit *TRIDYN* auf, die im Rahmen der Sekundärteilchenmodellierung mit der Primärteilchenmodellierung aus Kapitel 4 gekoppelt werden.

Die Winkelverteilungen bzw. Emissionscharakteristiken geben vor, wie viele Teilchen wo auf der Beschichtungsebene auftreffen. Die Energiedispersion bestimmt, ob das jeweilige Teilchen eher zur Schichtbildung oder als Projektil zur Zerstäubung der Schicht in der Beschichtungsebene beiträgt. Aufbauend auf den Ergebnissen im vorangegangenen Kapitel wird im Folgenden die Zerstäubung von Tantal durch Argonionen bei 1800 eV betrachtet, wobei die Tantaloberfläche durch eine 0.6 nm dicke Tantalpentoxidschicht belegt ist.





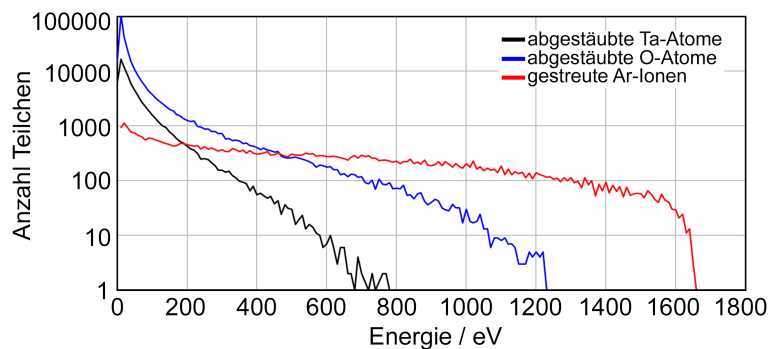
**Abbildung 6.9:** Aus statischen Simulationen mit *TRIDYN* ermittelte Anzahlen der beteiligten Teilchensorten, die vom Target in den Halbraum emittiert werden. Es wird die Zerstäubung von Tantal durch Argonprojekteile mit einer Energie von 1800 eV betrachtet, wobei die Tantaloberfläche mit einer 0.6 nm dicken Tantalpentoxidschicht bedeckt ist. Der polare Einfallswinkel der Projekteile wird variiert. Implantierte Argonprojekteile sind in die Betrachtung nicht mit einbezogen. Alle Teilchenanzahlen sind auf die in den Simulationen verwendete Anzahl von 100000 Argonprojekteilen normiert und entsprechen daher einer Zerstäubungsausbeute. Gemäß Kapitel 4.2 erstreckt sich der relevante Winkelbereich von etwa 44 bis 68 Grad. Die Simulationen ergeben, dass viel mehr Sauerstoff abgestäubt wird als Tantal. Gestreute Argonprojekteile stellen in dieser Bilanz für alle Einfallswinkel die geringste Anzahl dar.



**Abbildung 6.10:** Aus statischen Simulationen mit *TRIDYN* ermittelte Energie, die durch die in Abbildung 6.9 gezeigten Teilchensorten und Anzahlen vom Target wegtransportiert wird. Es wurden dieselben Simulationsdaten herangezogen, wie auch für die Auswertung in Abbildung 6.9. Die Auswertung zeigt auf, dass die Teilchensorte mit der geringsten Anzahl, die am Target gestreuten Projekteile, in Summe am meisten Energie mitführen. Ihre mittlere Energie pro Teilchen ist somit am höchsten. Die Daten sind auf den Energiewert der Argonprojekteile beim Einfallswinkel 80 Grad für eine übersichtliche Darstellung normiert.

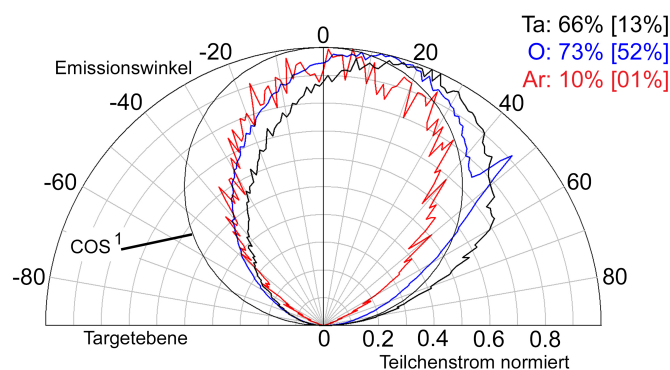
Abbildungen 6.9 und 6.10 zeigen die Bilanzen für die beteiligten Teilchensorten, ermittelt aus statischen Simulationen mit *TRIDYN*. Diese verdeutlichen, dass für alle Werte des polaren Einfallswinkels der Argonprojekteile die Anzahl an gestreuten Argonprojekteilen stets kleiner als die Anzahlen an zerstäubten Tantal- oder Sauerstoffatomen sein sollte. Gleichzeitig trans-

portieren die gestreuten Argonprojekte, beim jeweiligen Einfallswinkel über alle Teilchen summiert, die höchste Energiemenge. Die mittlere Energie pro gestreutem Argonprojektil ist damit durchgehend höher als die mittlere Energie der anderen zerstäubten Teilchensorten. Beim Einfallswinkel von 55 Grad, als Zahlenbeispiel, betragen die mittleren Energien eines abgestäubten Tantalatoms 58 eV, eines abgestäubten Sauerstoffatoms 64 eV und eines gestreuten Argonteilchens 518 eV, also um den Faktor etwa acht bis neun höher als bei den anderen beiden Teilchensorten. Abbildung 6.11 verdeutlicht dies exemplarisch anhand der Energieverteilungen für einen einzelnen polaren Einfallswinkel der Argonionen von 55 Grad. Ein gewisser Teil der mit 1800 eV auf das Target auftreffenden Projektile kann einen Großteil ihrer Energie nach der Streuung vom Target weg mitführen.

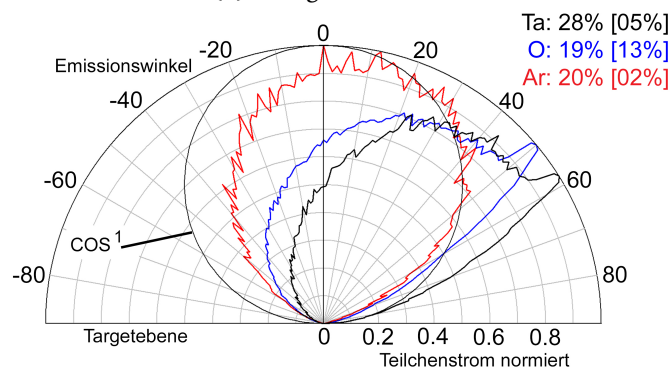


**Abbildung 6.11:** Aus statischen Simulationen mit *TRIDYN* ermittelte Energieverteilungen für einen einzelnen polaren Einfallswinkel von 55 Grad und für dieselben Teilchensorten und Parameter wie in den vorangegangenen Abbildungen gezeigt, also unter Berücksichtigung einer 0.6 nm dicken Tantalpentoxidschicht auf dem Tantaltarget. Die Anzahlen auf der logarithmisch skalierten Ordinate beziehen sich auf 100000 Argonprojekte, die für die Simulationen angesetzt waren. Es zeigt sich deutlich, dass die gestreuten Argonprojekte höhere Energien vom Target weg mitführen können als die anderen beiden Teilchensorten.

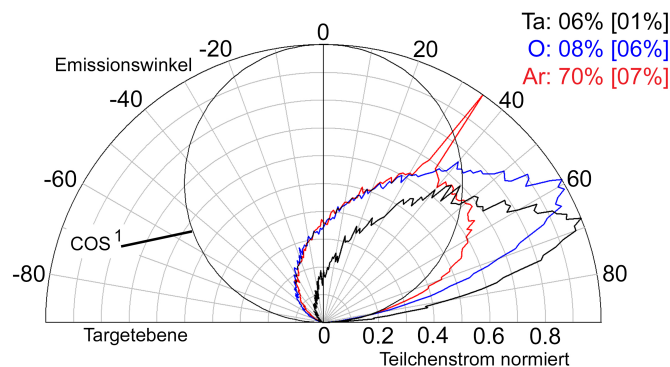
Die aufgezeigten, unter den betrachteten Teilchensorten nicht identischen, Energieverteilungen sind zudem gefaltet mit ihren individuellen Winkelverteilungen. Abbildung 6.12 vermittelt dazu einen Eindruck. Die Simulationen zeigen auf, dass einerseits Emissionsrichtung und Emissionsenergie korrelieren. Andererseits verhalten sich abgestäubte und gestreute Teilchen die Teilchenzahlen betreffend, die in eine bestimmte Richtung emittiert werden, gegenläufig. Die Vorgänge am Target sind durch die Faltung von Energie- und Winkelverteilung ausreichend kompliziert, so dass nicht trivial ersichtlich ist, welche Auswirkungen für das Schichtwachstum in der Beschichtungsebene resultieren.



(a) Energien bis 50 eV



(b) Energien ab 50 bis 200 eV



(c) Energien größer als 200 eV

**Abbildung 6.12:** Aus statischen Simulationen mit *TRIDYN* ermittelte Winkelverteilungen bzw. Emissionscharakteristiken für dieselben Teilchensorten und extrahiert aus denselben Simulationen wie in den vorangegangenen Abbildungen gezeigt. Es wird ein einzelner polarer Einfallswinkel der Argonprojekteile von 55 Grad betrachtet (im gezeigten Koordinatensystem aus der Richtung -55 Grad einfallend). Die vom Target emittierten Teilchen sind in drei Energieintervalle unterteilt. Je größer die Emissionsenergie eines Teilchens ist, desto stärker wird es in Vorwärtsrichtung emittiert. Bei den abgestäubten Teilchen Tantal und Sauerstoff nehmen die Teilchenzahlen mit steigender Energie und Verkippung in Vorwärtsrichtung ab. Die Anteile der gestreuten Argonprojekteile verhalten sich genau umgekehrt. Die Prozentangaben in den Abbildungen beziehen sich auf die Teilchenmenge innerhalb einer Teilchensorte (Werte ohne Klammern) bzw. auf die Summe aller drei Teilchensorten (Werte in eckigen Klammern).

Zur Komplexität trägt auch bei, dass die Projektile als Folge des breiten Ionenstrahls auf unterschiedliche Positionen und unter unterschiedlichen Winkeln auf das Target auftreffen. Der polare Einfallswinkel beeinflusst wiederum die integrale (Teilchenmenge) und die differentielle Zerstäubungsausbeute (Energie- und Winkelverteilung). Es kommt hinzu, dass gemäß den Ausführungen in Kapitel 4.2 auf jedes simulierte Targetelement nicht nur ein Teilchenstrom auftrifft, sondern viele quantitativ unterschiedliche Teilchenströme mit unterschiedlichen polaren und azimutalen Einfallswinkeln. Der resultierende, vom Target in Richtung Beschichtungsebene emittierte Gesamtteilchenstrom, stellt also eine Überlagerung von unterschiedlichen Teilchensorten mit breiten Intervallen für ihren Ursprungsort, ihre Richtungsinformation und ihre Energiedispersion dar.

Von der Projektil-Materie-Wechselwirkung am Target unterscheidet sich der Folgeprozess, die Projektil-Materie-Wechselwirkung in der Beschichtungsebene, erheblich. Auf das Target treffen identische Projektilspezies mit quasi derselben Energie (quasi-monoatomarer Ionenstrahl), jedoch mit unterschiedlichen polaren Einfallswinkeln auf – ein eindimensionaler Parameterraum für die integrale Zerstäubungsausbeute im einfachsten Fall. Auf die in der Beschichtungsebene wachsende Schicht treffen unterschiedliche Teilchenspezies nicht nur mit unterschiedlichen polaren Einfallswinkeln, sondern auch mit unterschiedlichen Energien auf. Für jede Teilchenspezies ergibt sich somit mindestens ein zweidimensionaler Parameterraum für die integrale Zerstäubungsausbeuten, die die Zerstäubungen von Tantal, Sauerstoff und implantierten Argonteilchen aus der sich bildenden Tantalpentoxidschicht in der Beschichtungsebene beschreiben. Für eine umfassende Modellierung der Zerstäubung in der Beschichtungsebene müsste also die integrale Zerstäubungsausbeute in Abhängigkeit vom Einfallswinkel und Energie für neun Wechselwirkungsmechanismen ermittelt werden: Tantal, Sauerstoff und Argon als Projektile, die jeweils Tantal, Sauerstoff und Argon aus der wachsenden Schicht zerstäuben. Dieser numerische Aufwand würde den Rahmen dieser Arbeit sprengen. Außerdem wäre ohne zusätzliche und aufwändige experimentelle Verifikation nicht sichergestellt, dass die Simulationen mit *TRIDYN* dieses extrem komplizierte Zerstäubungsszenario in annehmbarer Genauigkeit beschreiben.

Da Implantationseffekte in dieser Arbeit nicht berücksichtigt werden, entfallen drei von neun Wechselwirkungen. Aus der Annahme heraus, dass zerstäubte Sauerstoffatome aus der reaktiven Prozessatmosphäre kontinuierlich ersetzt werden können, wird auch die Zerstäubung von Sauerstoff im Schichtbildungsprozess hier nicht weiter betrachtet. Zerstäubte Tantalatome fehlen hingegen in der sich bildenden Tantalpentoxidschicht, wodurch die effektive Beschichtungsrate abgesenkt wird. Es verbleibt die Frage, auf welche Teilchensorte als

Projektilspezies für die Zerstäubung von Tantal aus amorphem Tantalpentoxid der Fokus zu legen ist. Tabelle 6.1 listet dazu entsprechende simulierte integrale Zerstäubungsausbeuten für ausgewählte Projektilenergien auf. In Kombination mit den Ergebnissen aus Abbildungen 6.9, 6.10, 6.11 und 6.12 erscheint Argon als dominierend: Die am Target gestreuten Argonprojektilen stellen im relevanten Energiebereich größer 200 eV die höchste Teilchenmenge dar, führen im Mittel die höchste Energiemenge pro Teilchen vom Target weg in Richtung Beschichtung mit und besitzen für die Zerstäubung von Tantal aus Tantalpentoxid die höchste Zerstäubungsausbeute unter den möglichen Projektilspezies. Folglich wurde als weitere Maßnahme zur Reduzierung des numerischen Aufwandes die Zerstäubung von Tantal auf am Target gestreute Argonionen als Projektilspezies eingeschränkt.

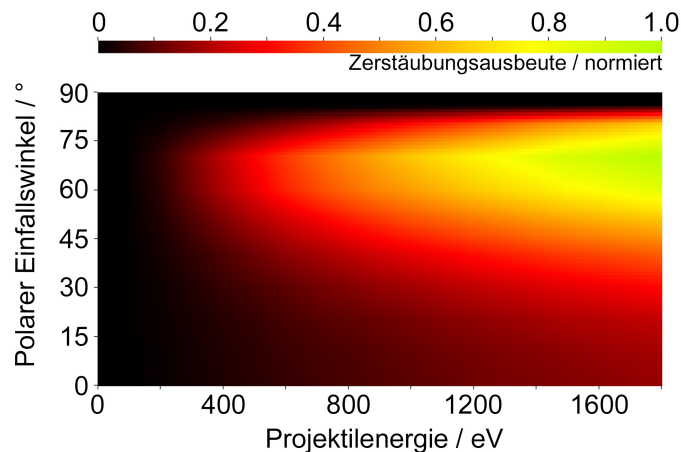
**Tabelle 6.1:** Aus statischen Simulationen mit *TRIDYN* ermittelte integrale Zerstäubungsausbeuten  $Y$  für die Zerstäubung von Tantal aus einer amorphen Tantalpentoxidschicht für unterschiedliche Projektilspezies bei einem Einfallswinkel der Projektilen von 0 Grad und für ausgewählte Energien. Werte in Klammern sind rein informativ da bei diesen Energien die jeweilige Projektilspezies gemäß Abbildung 6.11 nicht vorkommt.

Projektilenergie	50 eV	200 eV	500 eV	1000 eV	1500 eV
Y für Ta bei Ar auf Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0	0.004	0.022	0.049	0.071
Y für Ta bei O auf Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0	0.002	0.013	0.029	(0.040)
Y für Ta bei Ta auf Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0	0	0.011	(0.041)	(0.072)

Zur Beschreibung der Zerstäubung von Tantal aus der Tantalpentoxidschicht in der Beschichtungsebene wurde in 220 einzelnen statischen Simulationen mit *TRIDYN* eine zweidimensionale Wechselwirkungsmatrix bestimmt, die die integrale Zerstäubungsausbeute enthält und in Abbildung 6.13 zu sehen ist. Die den Parameterraum aufspannenden Größen sind der polare Einfallswinkel und die Projektilenergie. In y-Richtung der Matrix zeigt sich, wie erwartet, die typische Abhängigkeit vom Einfallswinkel mit einer ansteigenden Zerstäubungsausbeute bis zu einem Maximum bei 60 bis 75 Grad und einem folgenden steilen Absinken der Ausbeute (zum Vergleich siehe Abbildung 6.5). In x-Richtung, ebenfalls wie erwartet, steigt mit zunehmender Projektilenergie die maximale Zerstäubungsausbeute an mit einem maximalen Wert von 0.5 bei 1800 eV und 70 Grad.

Wird die Wechselwirkungsmatrix in Simulationen, wie in Abbildung 6.13 gezeigt, für jede der etwa  $4.7 \cdot 10^{11}$  Sekundärteilchentrajektorien berücksichtigt, die auch auf die virtuelle Beschichtungsfläche auftreffen, erhält man im Gesamtergebnis einen geringen Einfluss der Zerstäubung von Tantal aus Tantalpentoxid durch am Target gestreute Argonprojektilen

auf das simulierte Beschichtungsergebnis. Grafisch sind die Abbildungen 6.8 und 6.14 nahezu ununterscheidbar. Die experimentellen Daten werden nicht besser reproduziert. Am deutlichsten ändern sich die Volumenraten: Durch Resputtering reduzieren sich die Volumenraten um 2.2 bis 4.0 %.



**Abbildung 6.13:** Aus 220 statischen Simulationen mit *TRIDYN* ermittelte zweidimensionale Wechselwirkungsmatrix. Diese beschreibt die integralen Zerstäubungsausbeute für die Zerstäubung von Tantal aus amorphem Tantalpentoxid durch Argonprojekteile in Abhängigkeit vom polaren Einfallswinkel der Projektilen (Ordinate) und der Projektilenergie (Abszisse). Die 220 Stützstellen an denen simuliert wurde, wurden gleichmäßig im Parameterraum verteilt und die Lücken wurden bilinear interpoliert. Die farbkodierte Darstellung ist normiert. Der Maximalwert 1 entspricht einer integralen Zerstäubungsausbeute von 0.5.

Anhand der vorangegangenen Ausführungen ist nicht zu erwarten, dass die Projektilspezies Tantal und Sauerstoff einen größeren Einfluss auf den Beschichtungsprozess im Sinne einer Zerstäubung besitzen. Weiterhin sind Wechselwirkungen der unterschiedlichen Teilchenspezies mit den Teilchen der Prozessatmosphäre nicht berücksichtigt (Kapitel 6.1). Es ist zu erwarten, dass während der Bewegung der Teilchen vom Target zum Beschichtungsort die Teilchenenergien abhängig von der zurückgelegten Strecke im Mittel abnehmen [92] und dadurch die Zerstäubung in der Beschichtungsebene gegenüber der hier gezeigten Simulation weiter reduziert wird. Daher erscheint als Mechanismus, der die simulierten Volumenraten ohne Versiegelung um bis zu 66 % auf die experimentell ermittelten Werte absenkt, die dielektrische Versiegelung der Targetoberfläche (Kapitel 6.4.1) dominierend.

Selbst wenn für die mit *TRIDYN* simulierten Zerstäubungsausbeuten ein Fehler von  $\pm 20\%$ , wie auch bei den semiempirischen Modellen, angenommen würde, könnten die Unterschiede in den Volumenraten zwischen Simulation ohne dielektrische Versiegelung und Experiment

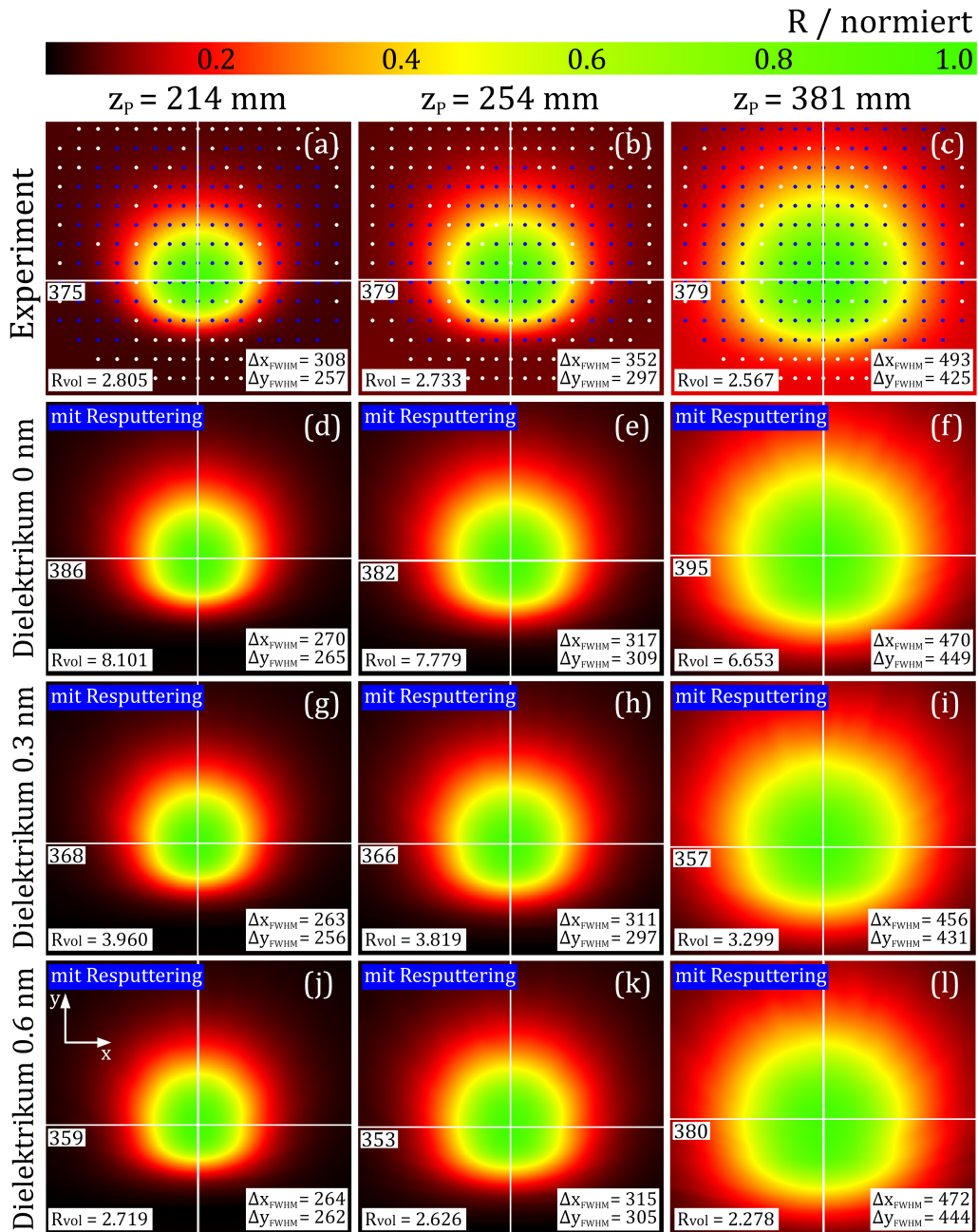


nicht erklärt werden. Eine weitere Fehlerquelle könnte die Annahme einer Tantalpentoxid-schicht darstellen, aus der zerstäubt wird. Dies bedeutet, dass sich die Oxidschicht in der Beschichtungsebene auf einer kürzeren Zeitskala ausbildet als die zeitlichen Abstände zwischen Beschichtungsteilchen, die auf die selbe Position in der Beschichtungsebene auftreffen. Möglicherweise treffen die vom Target emittierten Teilchensorten auf eine sich kontinuierlich verändernde Mischschicht, die noch keine homogene und stöchiometrische Tantalpentoxid-schicht ist. Eine solche Dynamik würde vermutlich andere Zerstäubungsausbeuten ergeben.

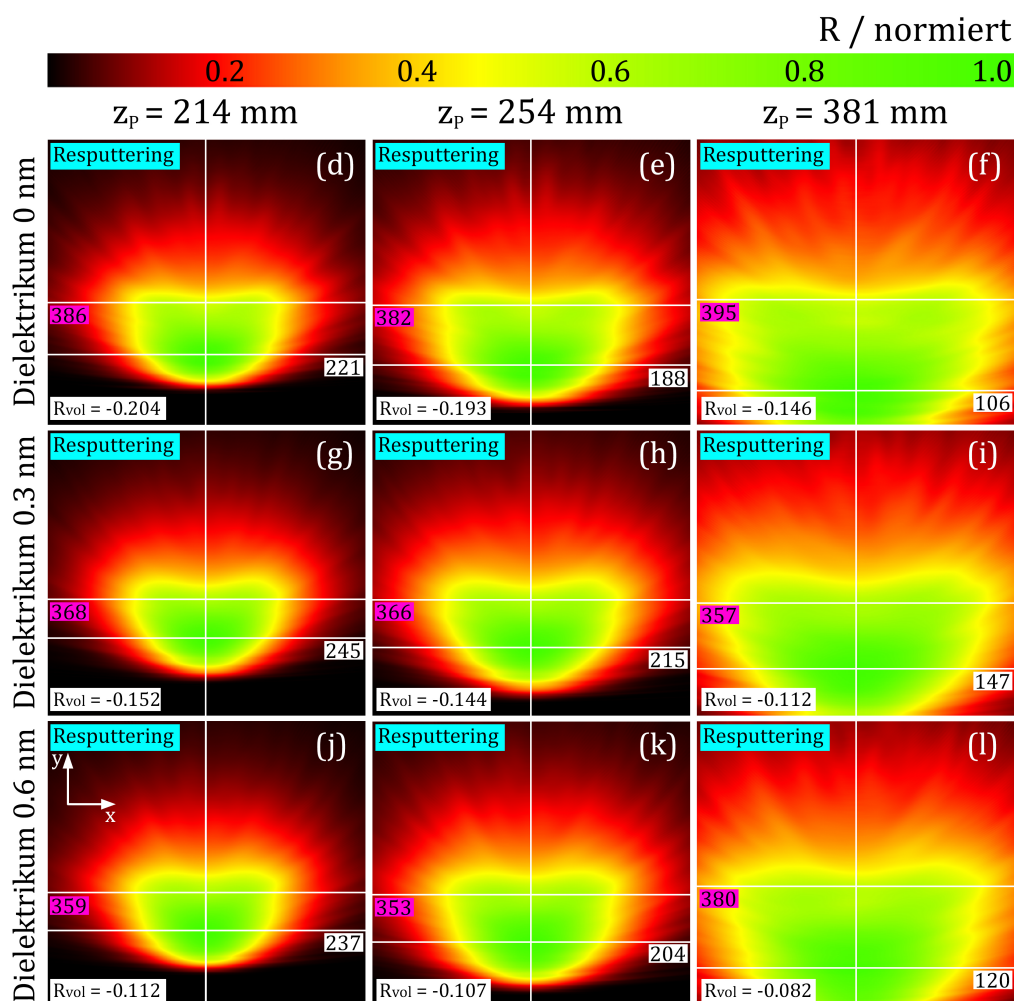
Weitere Erkenntnisse resultieren aus einer isolierten Betrachtung der simulierten Zerstäubung von Tantal aus Tantalpentoxid in Form von negativen Beschichtungsraten – eine Analyse, die experimentell nicht zugänglich ist. Abbildung 6.15 zeigt dazu Ergebnisse aufbereitet aus denselben Simulationen wie in Abbildung 6.14. Die örtliche Verteilung der am Target gestreuten Argonprojekte in der Beschichtungsebene ist dort mit der in Abbildung 6.13 gezeigten Wechselwirkungsmatrix gefaltet. Die Energiedispersion der gestreuten Argonprojekte ist also mit berücksichtigt.

Besonders auffallend sind die Unterschiede in den Positionen der Maxima. Die maximale Rate der Zerstäubung orientiert sich entlang der  $y$ -Richtung bei kleineren Werten als die zugehörigen Maximapositionen  $y_0$  der Beschichtungsratenverteilungen. Möglicherweise ist dieser Effekt im Fall einer Zerstäubung von Tantal durch Xenonionen noch stärker ausgeprägt und wäre dann ein Erklärungsansatz für die lokale Degradation der Schicht in der Beschichtungsebene, wie im Experiment beobachtet (Kapitel 5.2). Aufgrund einer ausgeprägten Verkipfung der Emissionscharakteristik der gestreuten Argonprojekte in Vorwärtsrichtung (siehe Abbildung 6.12) verschiebt sich die Positionen der maximalen Zerstäubung entlang der  $y$ -Richtung mit zunehmendem Abstand  $z_p$  zu kleineren Werten.

Ansonsten zeigt sich, bedingt durch die Geometrie, eine betragsmäßige Verringerung der Volumenrate mit dem Abstand  $z_p$ , wie auch bei den Simulationsergebnissen in den Abbildungen 6.4, 6.8 und 6.14, weil mit zunehmendem Abstand mehr Teilchen zu den Seiten hin an der Depositionsfläche vorbeifliegen. Der Betrag der Volumenrate verringert sich auch mit zunehmender dielektrischer Belegung der Targetoberfläche. Die mit *TRIDYN* durchgeführten Simulationen liefern dazu zwei Erklärungsansätze. Einerseits reduziert die dielektrische Versiegelung die Anzahl an gestreuten Argonprojekten. Andererseits wird die Energiedispersion der gestreuten Argonprojekte umverteilt: In grober Näherung nimmt die Menge an gestreuten Projektilen bei Energien größer 200 eV ab und dafür bei Energien kleiner 200 eV zu. Gemäß der Wechselwirkungsmatrix in Abbildung 6.13 nimmt die abtragende Wirkung der gestreuten Argonprojekte in der Beschichtungsebene dadurch ab.



**Abbildung 6.14:** Vergleich simulierte mit experimentellen Beschichtungsrateverteilungen in Analogie zu Abbildungen 6.4 und 6.8. (a) bis (c) zeigen die experimentellen Ergebnisse aus Kapitel 5.1 bzw. aus [89] für drei unterschiedliche Abstände  $z_p$  des ortsfesten Substratträgers zum Target, vollständig reproduziert aus Abbildung 6.4. (d) bis (l) zeigen die Simulationsergebnisse wie in Abbildung 6.8, nur mit der Erweiterung um eine simultane Zerstäubung von Tantal aus Tantalpentoxid (Resputtering) in der Beschichtungsebene basierend auf der in Abbildung 6.13 gezeigten Wechselwirkungsmatrix. Weitere Details siehe Bilduntertexte von Abbildungen 6.8 und 6.13. Bei einer dielektrischen Versiegelung von 0.6 nm stimmen acht der 12 Parameter aus den Simulationen innerhalb der favorisierten Fehlergrenze von  $\pm 5\%$  mit dem Experiment überein. Prozentual ist die Abweichung bei  $\Delta x_{\text{FWHM}}$  am größten. Die Nachbildung der experimentellen Daten wird gegenüber Abbildung 6.8 nicht verbessert.



**Abbildung 6.15:** Simulierte Zerstäubung von Tantal aus amorphem Tantalpentoxid durch am Target gestreute Argonprojekte (Resputtering), ausgedrückt als negative Volumenrate von Tantalpentoxid. Die Simulationsergebnisse (d) bis (l) sind den Ergebnissen in Abbildung 6.14 zugeordnet. Die Energiedispersion der zerstäubenden Projektile ist durch die Wechselwirkungsmatrix, wie in Abbildung 6.13 gezeigt, berücksichtigt. Die dreidimensionale Simulation baut auf Simulationen der Ionen-Materie-Wechselwirkung mit *TRIDYN* auf. Violett markiert sind zum Vergleich die Lagen der Maxima der Beschichtungsrateverteilungen in y-Richtung aus Abbildung 6.14. Die Positionen der Maxima der Zerstäubungsverteilungen in y-Richtung sind weiß markiert. Weitere Details siehe Bilduntertexte von Abbildungen 6.8, 6.13 und 6.14.

### 6.4.3 Streuung von Beschichtungsteilchen an der wachsenden Schicht

Im vorangegangenen Kapitel wird als Ergebnis von Simulationen erhalten, dass durch Zerstäubung von Tantal aus Tantalpentoxid durch am Target gestreute Argonprojekte die Volumenbeschichtungsrate um 2.2 bis 4.0 % reduziert wird. Resputtering von Tantal durch

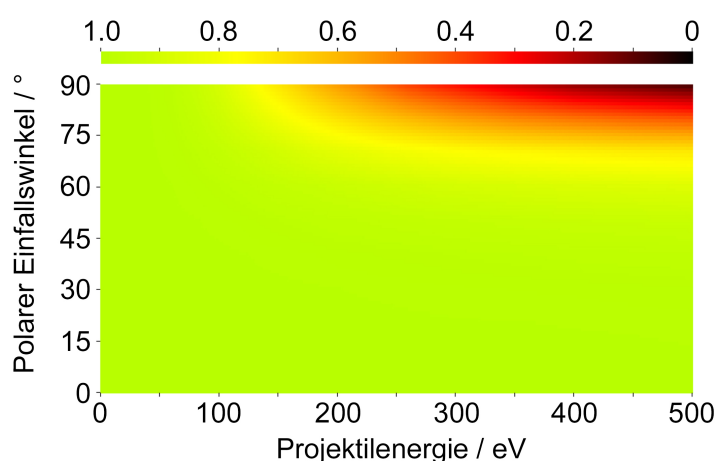
die anderen beiden Atomspezies Sauerstoff oder Tantal wird mit einem geringeren Einfluss auf die Volumenrate abgeschätzt. Es gibt noch weitere Mechanismen, durch welche die Volumenrate reduziert werden kann. Dazu zählt z. B. die Streuung von Beschichtungsteilchen mit anderen Teilchen der Prozessatmosphäre während der Bewegung vom Target zum Beschichtungsort. Allerdings wird dieser Mechanismus in der vorliegenden Arbeit mit einer unendlichen mittleren freien Weglänge außer Acht gelassen, wie in Kapitel 6.1 festgehalten. Eine thermisch induzierte Desorption sollte erst bei deutlich höheren Temperaturen am Substrat relevant sein. Schließlich werden Tantalatome an der wachsenden Schicht mit einem gewissen Anteil gestreut bzw. reflektiert (beide Begriffen beziehen sich auf denselben Mechanismus), ebenso wie es mit den Projektilteilchen an der Targetoberfläche im Rahmen der Ionen-Materie-Wechselwirkung passiert. Auf Letzteres wird im Folgenden der Fokus gerichtet.

In diesem Kontext wird in der Literatur von Schichthftung oder im Englischen von *sticking* gesprochen. Typischerweise wird der Sticking-Koeffizient durch  $Y_S = 1 - Y_R$  allein an den Reflektionskoeffizienten gekoppelt [93]. Es finden sich auch Definitionen von einem effektivem Sticking-Koeffizienten als Verhältnis zwischen dem Teilchenstrom, der am Beschichtungsort deponiert, und dem Teilchenstrom, der sich zum Beschichtungsort bewegt [94]. In einer solchen weiter gefassten Betrachtungsweise sind Reflektion, Resputtering und thermische Desorption als Beiträge zur Schichthftung zusammengefasst. Aus Sicht der Zerstäubungstheorie können Resputtering und Reflektion auch in einem Vorgang auftreten. So kann z. B. ein ankommendes Tantalatom zur Abstäubung eines anderen Tantalatoms beitragen und selbst nach einem oder mehreren Streuvorgänge mit den schichtbildenden Atomen die Oberfläche wieder verlassen. Entsprechend ist zu erwarten, dass Sticking mindestens vom polaren Einfallswinkel des Projektilteilchens, von der Projektilenergie und von der Oberflächentemperatur abhängt. Je nach Literaturstelle und Prozess werden diese Abhängigkeiten einzeln berücksichtigt oder durch einen einzelnen Wert substituiert [93, 94, 95, 96, 97]. In den benannten Literaturstellen liegen die Sticking-Koeffizienten im Bereich 0.5 bis 1.0.

Es bietet sich an, auch für diese Betrachtung Simulationen mit *TRIDYN* in Analogie zu Kapitel 6.4.2 heranzuziehen. Das Ergebnis, die aus 210 einzelnen Simulationen ermittelte zweidimensionale Wechselwirkungsmatrix für den Sticking-Koeffizient von Tantalatomen an amorphem Tantalpentoxid gemäß  $Y_S = 1 - Y_R$  in Abhängigkeit vom polaren Einfallswinkel und Teilchenenergie, zeigt Abbildung 6.16. Ein Vergleich mit der Wechselwirkungsmatrix aus Abbildung 6.13 und der exemplarischen Energieverteilung in Abbildung 6.11 verdeutlicht, dass die Reflektion bzw. die Schichthftung im betrachteten Prozess für die Volumenbe-

schichtungsrate eine noch untergeordnetere Rolle zu spielen scheint als die Zerstäubung durch am Target gestreute Argonprojekte. Die meisten Tantalatome treffen mit einer Energie unterhalb von 50 eV auf die wachsende Schicht auf und haften dann, gemäß der hier ermittelten Wechselwirkungsmatrix, mit einem Wert  $Y_S = 1$  an, unabhängig von ihrem polaren Einfallswinkel. Für eine quantitative Einordnung wurde der in Abbildung 6.8 (d) gezeigte Fall ohne Berücksichtigung einer dielektrischen Versiegelung der Targetoberfläche herangezogen. Die Simulation wurde unter Berücksichtigung der Schichthaftung wiederholt. Im Ergebnis wurde eine Reduzierung der Volumenrate von nur 0.4% erhalten. Wie auch bei der Zerstäubung durch am Target gestreute Argonionen bleibt eine Unsicherheit im Hinblick auf den zeitlichen Ablauf im Schichtbildungsprozess.

Das Gesamtergebnis bleibt unverändert: Es werden acht der 12 Parameter aus den Simulationen innerhalb der Fehlergrenze von  $\pm 5\%$  mit dem Experiment übereinstimmend erhalten. Das Fehlerintervall beträgt  $-12.3/+4.9\%$ , wenn alle 12 Parameter einbezogen werden. Prozentual weicht  $\Delta x_{FWHM}$  am stärksten ab.



**Abbildung 6.16:** Aus 210 statischen Simulationen mit *TRIDYN* ermittelte zweidimensionale Wechselwirkungsmatrix. Diese beschreibt den Sticking-Koeffizient  $Y_S = 1 - Y_R$ , welcher allein aus dem Reflektionskoeffizienten  $Y_R$  ermittelt wurde.  $Y_R$  beschreibt die Streuung bzw. Reflektion von Tantalatomen, als Projektile, an amorphen Tantalpentoxid in Abhängigkeit vom polaren Einfallswinkel der Projektile auf die wachsende Schicht (Ordinate) und der Projektilenergie (Abszisse). Die 210 Stützstellen an denen simuliert wurde, wurden gleichmäßig im Parameterraum mit Energien 0 bis 500 eV und Einfallswinkeln 0 bis 85 Grad verteilt. Die Lücken wurden bilinear interpoliert und Werte bei Winkeln größer als 85 Grad wurden linear extrapoliert. Der Minimalwert im gezeigten Datensatz beträgt 0.23, erhalten bei einer Energie von 500 eV und einem Einfallswinkel von 85 Grad. Gemäß Abbildung 6.11 beträgt die Energie der meisten abgestäubten Tantalatome weniger als 50 eV. Diese Atome tragen gemäß dieser Wechselwirkungsmatrix mit  $Y_S = 1$  für beliebige polare Einfallswinkel vollständig zur Volumenbeschichtungsrate von Tantalpentoxid bei. Erst bei Energien über 100 eV beginnt  $Y_S$  merklich abzufallen. In der numerischen Implementierung sind Teilchenenergien von Projektile höher als 500 eV mit 500 eV gleichgesetzt.



#### 6.4.4 Materialnutzungsgrad

Der Materialnutzungsgrad stellt in einem Beschichtungsprozess eine wichtige Prozessgröße dar. Er beschreibt, welcher Anteil von dem verbrauchten bzw. hier erodierten Targetmaterial tatsächlich für das herzustellende Produkt genutzt wird. Da einige Materialien wie z. B. Tantal, Titan und Niob, die in der optischen Dünnschichttechnologie verwendet werden, als kritische Rohstoffe eingestuft sind [16], ist es um so wichtiger, den Materialnutzungsgrad zu kennen und zu erhöhen. Für die Ionenstrahlzerstäubungsdeposition sind allerdings keine Werte aus der offenen Literatur bekannt. Die folgende Abschätzung basiert auf einer Kombination von experimentellen Daten und Simulationsergebnissen.

Die zweidimensionale Beschichtungsratenverteilung des exemplarisch herangezogenen Beschichtungsprozesses ist in Abbildung 1 von Artikel C und in Abbildung 6.8 (c) gezeigt. Die experimentell ermittelte Volumenbeschichtungsrate von Tantalpentoxid auf der stationären Beschichtungsfläche mit Abmessungen  $1004 \times 900 \text{ mm}^2$  beträgt dort  $2.567 \text{ mm}^3/\text{min}$ . Das Ergebnis der vollständig dreidimensionalen Simulation der Primär- und Sekundärteilchen, gezeigt in Abbildung 6.8 (l), ergibt mit  $2.361 \text{ mm}^3/\text{min}$  eine etwas geringere Rate. Für die Abschätzung des Materialnutzungsgrades ist diese quantitative Abweichung wenig relevant. Wichtig ist, dass die simulierte Materialverteilung das Experiment möglichst gut qualitativ nachbildet. Darauf aufbauend kann angenommen werden, dass die gesamte vom Target in den Halbraum emittierte Materialverteilung realitätsnah simuliert wird. Aus den Simulationsdaten lässt sich für den betrachteten Prozess ablesen, dass nur 23.36 % des vom Target abgestäubten Materials auf der stationären und virtuellen Beschichtungsfläche (mit identischen Abmessungen und identischer Ausrichtung gegenüber dem Target wie im Experiment) deponieren. Um möglichst homogene Schichten zu realisieren, kommen rotierende Substraträger zum Einsatz, wie im Kapitel 5.1 erklärt. Dadurch verringert sich die nutzbare Beschichtungsfläche erheblich. Die numerischen Betrachtungen in Kapitel 5.1 ergeben, dass bei einer maximal zulässigen Schichtdickenvariation von 1 % die maximale Beschichtungsfläche im betrachteten Prozess eine Kreisfläche mit einem Durchmesser von 400 mm sein kann. Der Anteil der Kreisfläche an der Volumenbeschichtungsrate der stationären Fläche beträgt dann 17.58 %. Folglich ergibt sich der resultierende Materialnutzungsgrad von lediglich  $0.2336 \cdot 0.1758 = 0.0411$ , was 4.11 % entspricht. Durch Ausnutzung der Spiegelsymmetrie kann der Materialnutzungsgrad verdoppelt werden, wie in Kapitel 5.1 demonstriert.



---

## Zusammenfassung und Ausblick

Durch Kartierungen von Targets, die mit einem breiten Ionenstrahl aus Argon- oder Xenonionen im Energiebereich 1.4 bis 1.9 keV in einem reaktiven IBS-Prozess erodiert wurden, zeigte sich experimentell, dass die Erosionsmuster im Fall von Tantal und Silizium sich qualitativ wenig voneinander unterscheiden. Die charakteristischen Werte (Position, Peakwert, Halbwertsbreiten), durch welche die Geometrien der erodierten Flächen approximiert wurden, unterschieden sich weniger als 8%. Auch im zeitlichen Verlauf der Erosion, untersucht am Beispiel eines Siliziumtargets, konnte eine Variation des Erosionsmusters beobachtet werden, die bei einer qualitativen Bewertung durch charakteristische Werte weniger als 8% beträgt. Im Gegensatz dazu zeigte die Kartierung der Erosion von Siliziumdioxid, bei einem größeren Abstand zwischen Ionenoptik und Target als bei den beiden anderen Materialien, eine deutliche Änderung im Erosionsmuster. Die experimentellen Ergebnisse lassen die Schlussfolgerung zu, dass die qualitative makroskopische Erosionsform im betrachteten IBS-Prozess wenig vom polaren Einfallswinkel der Projektile abhängt, welcher typischerweise großen Einfluss auf die differentielle und somit auch integrale Zerstäubungsausbeute bzw. auf die Wechselwirkungsmechanismen auf atomarer Ebene hat. Dominierend sind hingegen geometrische Prozessparameter wie die Geometrie des breiten Ionenstrahls und der Abstand zwischen Ionenoptik und Target.

Die experimentelle Beobachtung, dass die Targeterosion in ihrer qualitativen Form wenig von Erosionszeit bzw. Erosionstiefe abhängt, erlaubte eine Vereinfachung in der Modellierung der Primärteilchentrajektorien, die den breiten Ionenstrahl nachbilden: Das Modell konnte unabhängig von Erosionszeit bzw. Erosionstiefe aufgebaut werden. Weiterhin wurden zwei grundlegende Annahmen gemacht, um die Anzahl der Freiheitsgrade in der Modellierung möglichst klein zu halten. Erstens erfolgt die Strahlausbreitung im Modell vollständig

raumladungskompensiert - eine verbreitete Annahme, die es ermöglicht, Umladungsstöße nicht berücksichtigen zu müssen. Zweitens wurde die Auswirkung einer potentiell radial inhomogenen Plasmarandschicht im Entladungsraum der RF-Ionenquelle initial darauf eingeschränkt, dass sich die Emissionscharakteristiken der Ionenkanäle, die die Ionenoptik bilden, sich rein quantitativ ändern. Allerdings konnten die experimentell ermittelten Erosionsverteilungen mit diesen beiden Annahmen nicht ausreichend genau reproduziert werden, so dass die zweite Annahme zurückgenommen wurde. Zur Berücksichtigung der Variationen in der Plasmarandschicht wurde als Freiheitsgrad eine vom Radius der Ionenoptik abhängige Verkippung der Richtungsvektoren der Ionenkanäle implementiert, nicht die qualitative Änderung der Emissionscharakteristiken. Damit war es möglich, die experimentellen Daten zufriedenstellend numerisch zu rekonstruieren. Der maximale Verkippungswinkel am Rand der Ionenoptik beträgt gemäß der durchgeführten Optimierung nur 1.8 Grad. Ein Ergebnis ist, dass Raumladungseffekte nicht berücksichtigt werden müssen, um die Erosion bei einem bestimmten Abstand zwischen Target und Ionenoptik numerisch nachzubilden.

Das aufgestellte Modell für die Primärteilchentrajektorien ist vollständig dreidimensional. Es beschreibt für jedes Targetelement, aus welchen die Targetoberfläche numerisch aufgebaut wird, die auftreffenden Trajektorien, deren polare und azimutale Richtungsinformationen sowie die Teilchenströme, die sie repräsentieren. Die Beschreibung der Ionen-Materie-Wechselwirkung basiert dabei auf semiempirischen Modellen oder auf externen Simulationen, wie z. B. *TRIDYN*, einem weit verbreiteten Computerprogramm im Bereich der Ionen-Materie-Wechselwirkung. Als weiteres Ergebnis haben Parameterstudien aufgezeigt, dass auf jedes Targetelement eine Vielzahl von Primärteilchentrajektorien mit unterschiedlichen Eigenschaften auftreffen müssen. Dies entspricht dem Ergebnis in der Literatur, dass sich die Ionen aus den einzelnen Ionenkanälen bereits nach wenigen Zentimetern an zurückgelegter Weglänge vollständig durchmischen. Weiterhin bestätigt die Primärteilchenmodellierung die Erkenntnis aus den experimentellen Untersuchungen der Erosionsprofile, dass es eine geringe Kopplung der qualitativen Erosionsform an die polarwinkelabhängige integrale Zerstäubungsausbeute zu geben scheint. Dennoch kann nicht ausgeschlossen werden, dass die numerisch implementierte Verkippung der Symmetrieachsen der Ionenkanäle eigentlich die beiden nicht berücksichtigten Mechanismen Raumladungskompensation und qualitative Variation der Emissionscharakteristiken substituiert. Es ist daher zu vermuten, dass die Substitution sich dann nachteilig äußert, wenn der breite Ionenstrahl und seine Interaktion mit dem Target für mehrere Abstände zwischen Ionenoptik und Target nachgebildet werden soll, ohne dabei die Extraktionseigenschaften der Ionenoptik zu variieren.

In Analogie zur Kartierung von Targeterosionen konnte durch Kartierung von Schichtdicken- bzw. Beschichtungsratenverteilungen in der Beschichtungsebene eine experimentelle Datenbasis für die Modellierung der Sekundärteilchentrajektorien geschaffen werden. Zuerst wurde untersucht, wie sich das beschichtete Material mit zunehmendem Abstand vom Target verteilt. Wie erwartet konnten die mit dem Abstand lineare Verbreiterung der Beschichtungsratenverteilungen sowie die quadratische Abnahme der Peakrate auch in einem industriellen Beschichtungsprozess aufgezeigt werden. Insbesondere die lineare Verbreiterung der Beschichtungsverteilungen trifft die Erwartung, dass der Großteil der vom Target abgestäubten Teilchen in neutraler Form vorliegen muss und somit nicht an Raumladungseffekte gekoppelt ist. Darüber hinaus konnte numerisch aufgezeigt werden, dass der Durchmesser der für eine homogene Beschichtung nutzbaren Kreisfläche ebenfalls linear mit dem Abstand zwischen Target und Beschichtungsebene skaliert. Unter Ausnutzung der beobachteten Spiegelsymmetrie in den Materialverteilungen und der ermittelten Skalierungen konnte ein Prozess mit zwei Beschichtungsflächen mit je 600 mm Durchmesser realisiert werden, die simultan und mit einer kleineren Schichtdickenvariation als 1 % beschichtet werden. Mit einem solchen Prozess ist es möglich, den Materialnutzungsgrad zu verdoppeln.

In der experimentellen Arbeit wurde auch untersucht, welchen Einfluss die Projektilspezies auf das Beschichtungsergebnis hat. In diesem Zusammenhang ergab eine Variation des Arbeitsgases der Ionenquelle - Argon, Krypton und Xenon wurden verglichen - bei der Zerstäubung von Tantal nur eine geringe Änderung in der qualitativen Materialverteilung in der Beschichtungsebene. Die entsprechenden charakteristischen Werte, welche die zweidimensionalen Verteilungen beschreiben, änderten sich um maximal 5 %. Vorangegangene Beobachtungen in [70] konnten damit nochmals bestätigt und auch erweitert werden. Vor allem jedoch zeigten die Ergebnisse deutlich auf, dass für eine Vergrößerung der homogenen Beschichtungsfläche in der Ionenstrahlzerstäubungsdeposition nicht nur die Verteilung der abgestäubten Targetatome im Halbraum über dem Target im Detail verstanden werden muss. Es gibt weitere Mechanismen, durch welche die resultierenden Schichteigenschaften lokal bzw. abhängig von der Position im Prozessraum beeinträchtigt werden können. Dazu zählt die Beobachtung, dass im Fall einer Zerstäubung von Tantal mit Xenon gegenüber Krypton, die Absorption in den hergestellten Tantalpentoxidschichten lokal um einen Faktor 137 erhöht wurde. Eine solche Erhöhung macht die dielektrischen Schichten unbrauchbar. Weiterhin konnte in diesem Kontext, in Übereinstimmung mit vorangegangenen Beobachtungen von anderen Forschern, experimentell verifiziert werden, dass Projektile aus der Ionenquelle auch in einem industriellen Beschichtungsprozess in die Schichten implantiert werden. Zusammenfassend stellt sich also heraus, dass für die Realisierung von großen

Beschichtungsflächen weniger die bisher primär betrachtete Materialverteilung, also die Schichtdickenhomogenität, sondern mehr die resultierenden Schichteigenschaften sich als herausfordernd oder sogar limitierend auswirken.

Der letzte Abschnitt der Arbeit richtet sich auf die Modellierung der Sekundärteilchen, für welche die erzeugten experimentellen Daten zu den Beschichtungsratenverteilungen und die daraus gewonnen Erkenntnisse herangezogen wurden. Das Ziel war es, nicht nur eine experimentell erhaltene Materialverteilung, sondern drei Beschichtungsratenverteilungen mit unterschiedlichen Abständen zwischen Beschichtungsebene und Target nachzubilden. Der initiale Ansatz mit einem Punktemitter auf dem Target, der den gesamten Teilchenstrom an abgestäubten Teilchen substituiert, war nicht zielführend. Anschließend erfolgte die Nachbildung der flächigen Targeterosion als Superposition von vielen Punktemittern mit rotationssymmetrischen Emissionscharakteristiken. Bei einem solchen Ansatz wird angenommen, dass die Emissionscharakteristik einer physikalischen Zerstäubung vollständig isotrop und ggf. entartet beschrieben werden kann. Es gibt keinen anisotropen Anteil, der durch einen nicht senkrechten polaren Einfallswinkel der Projektile die Emissionscharakteristik verkippt und asymmetrisch deformiert. Im Resultat konnten damit die drei ausgewählten experimentellen Materialverteilungen in den Beschichtungsebenen in grober Näherung nachgebildet werden. Vier der 12 für eine Bewertung der Übereinstimmung des Modells mit dem Experiment ausgewählten Parametern konnten innerhalb des favorisierten Fehlerintervalls von  $\pm 5\%$  reproduziert werden. Dabei ist aufgefallen, dass die simulierten Volumenbeschichtungsraten um Faktor 2.2 bis 3.2 höher sind als im Experiment. Auf die in der Literatur beschriebenen Fehlergrenzen für die semiempirischen Modelle, die die integrale Zerstäubungsausbeute modellieren, konnte die beobachtete Abweichung nicht zurückgeführt werden. Ein nachvollziehbarer Erklärungsansatz konnte erst durch eine vollständige Kopplung der Primärteilchenmodellierung mit Simulationen aus TRIDYN erhalten werden. Durch Simulation einer dielektrischen Versiegelung der Targetoberfläche als Resultat der reaktiven Prozessatmosphäre konnte die simulierte Volumenrate auf das Niveau im Experiment abgesenkt werden. Die erhaltene Schichtdicke der parasitären Tantalpentoxidschicht auf dem Tantaltarget beträgt 0.6 nm. Die dielektrische Versiegelung wurde als mit einer über die gesamte Targetoberfläche konstanten Schichtdicke modelliert. Acht der 12 Parameter, die Simulation und Experiment vergleichen, wurden damit innerhalb der angestrebten Fehlergrenzen nachgebildet. Bezieht man alle 12 Parameter ein, dann bildet das aufgebaute Modell für die Ionenstrahlzerstäubungsdeposition die experimentellen Ergebnisse innerhalb eines Fehlerfensters von  $-12.3/ + 4.9\%$  ab.

Der Einbezug von *TRIDYN* hat weiterführende Untersuchungen ermöglicht. Simulationen zur Zerstäubung von Tantalpentoxid in der Beschichtungsebene durch am Target gestreute Argonprojekte haben eine Reduzierung der Volumenrate um maximal 4 % ergeben. Die Streuung bzw. Reflektion von Tantalatomen an der Tantalpentoxidschicht, als Maß für die Schichthaftung, reduzierte die Volumenrate um weniger als 1 %. Da thermische Desorption erst bei deutlich höheren Temperaturen relevant ist, lassen die Simulationen die Schlussfolgerung zu, dass Resputtering und Reflektion im betrachteten Prozess einen geringen Einfluss im einstelligen Prozentbereich auf die Volumenbeschichtungsrate besitzen. Die dielektrische Versiegelung der Targetoberfläche erscheint für die resultierende Volumenrate dominierend. Schließlich war es möglich, durch eine Kombination von experimentellen Daten mit Simulationsergebnissen einen Materialnutzungsgrad für einen ausgewählten Prozess zu bestimmen. Mit etwa 4 % wurde ein Wert im einstelligen Prozentbereich erhalten. Ausgehend von den Ergebnissen in [70] kann angenommen werden, dass für andere Targetmaterialien vergleichbare Nutzungsgrade gelten müssen. Dieses Ergebnis bestätigt, dass beim aktuellen Stand der Technik der hohen Schichtqualität der Ionenstrahlzerstäubungsdeposition, ein sehr geringer Materialnutzungsgrad gegenübersteht.

Das in dieser Arbeit aufgebaute Modell bietet die Möglichkeit, wichtige Fragestellungen simulativ zu untersuchen. Zum einen kann in Kombination mit *TRIDYN* der Frage nachgegangen werden, welcher Mechanismus dazu führt, dass eine lokale Degradation der Schichteneigenschaften von Tantalpentoxid im Fall von Xenon als Projektilspezies auftritt. Zum anderen können neue Prozessgeometrien optimiert werden, um den Materialnutzungsgrad zu vergrößern und um die Größe der Beschichtungsfläche weiter zu steigern.

Zur weiteren Steigerung des Prozessverständnisses und damit auch einer höheren Übereinstimmung zwischen Modell und Experiment kann unter anderem die Berücksichtigung folgender Mechanismen beitragen: qualitativ variierende Emissionscharakteristiken der Ionenkanäle aufgrund einer radial inhomogenen Plasmarandschicht in der Ionenquelle, Raumladungseffekte während der Strahlausbreitung, eine von der Teilchenstromdichte auf dem Target abhängige dielektrische Belegung der Targetoberfläche und die Berücksichtigung von Implantationen.





---

# Literaturverzeichnis

- [1] G. Bräuer, “Dünne Schichten für eine bessere Welt - Eine Zeitreise durch vier Jahrzehnte,” *JOT Journal für Oberflächentechnik*, vol. 60, no. 7, pp. 26–31, 2020.
- [2] D. Ristau and T. Gross, “Ion beam sputter coatings for laser technology,” in *Advances in Optical Thin Films II*, vol. 5963, p. 596313, International Society for Optics and Photonics, 2005.
- [3] L. Pinard, C. Michel, B. Sassolas, L. Balzarini, J. Degallaix, V. Dolique, R. Flaminio, D. Forest, M. Granata, B. Lagrange, N. Straniero, J. Teillon, and G. Cagnoli, “Mirrors used in the LIGO interferometers for first detection of gravitational waves,” *Applied Optics*, vol. 56, no. 4, pp. C11–C15, 2017.
- [4] G. I. McGhee, V. Spagnuolo, N. Demos, S. C. Tait, P. G. Murray, M. Chicoine, P. Dabadie, S. Gras, J. Hough, G. A. Iandolo, R. Johnston, V. Martinez, O. Patane, S. Rowan, F. m. f. Schiettekatte, J. R. Smith, L. Terkowski, L. Zhang, M. Evans, I. W. Martin, and J. Steinlechner, “Titania Mixed with Silica: A Low Thermal-Noise Coating Material for Gravitational-Wave Detectors,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 131, no. 17, p. 171401, 2023.
- [5] D. Zou, C. L. Anyi, R. J. Thirkettle, K. U. Schreiber, and J.-P. R. Wells, “Sensing Earth rotation with a helium-neon laser operating on three transitions in the visible region,” *Appl. Opt.*, vol. 58, no. 28, pp. 7884–7891, 2019.
- [6] K. Rook, A. Checco, P. Turner, A. A. Kulkarni, K. Yamamoto, and M. H. Lee, “Comparison of deposition techniques for Mo/Si reflective multilayers for EUV mask blanks,” in *International Conference on Extreme Ultraviolet Lithography 2021*, vol. 11854, p. 1185415, SPIE, 2021.
- [7] Y. Chen, W. Li, Z. Wang, D. Hahner, M. F. Kling, and V. Pervak, “Complementary dispersive mirror pair produced in one coating run based on desired non-uniformity,” *Opt. Express*, vol. 30, no. 18, pp. 32074–32083, 2022.
- [8] M. Lappschies, T. Gross, and D. Ehlers, Henrik and Ristau, “Broadband optical monitoring for the deposition of complex coatings,” in *Proc. SPIE 5250, Advances in Optical Thin Films*, vol. 5250, pp. 637–645, SPIE, 2004.
- [9] M. Lappschies, B. Görtz, and D. Ristau, “Application of optical broadband monitoring to quasi-rugate filters by ion-beam sputtering,” *Appl. Opt.*, vol. 45, no. 7, pp. 1502–1506, 2006.
- [10] S. Malobabic, M. Jupé, P. Kadhkoda, and D. Ristau, “Towards a magnetic field separation in Ion Beam Sputtering processes,” *Thin Solid Films*, vol. 592, pp. 271–275, 2015.

- [11] M. Willemsen, Thomas and Jupé, M. Gyamfi, S. Schlichting, and D. Ristau, “Enhancement of the damage resistance of ultra-fast optics by novel design approaches,” *Optics Express*, vol. 25, no. 25, pp. 31948–31959, 2017.
- [12] J. Degallaix, C. Michel, B. Sassolas, A. Allocca, G. Cagnoli, L. Balzarini, V. Dolique, R. Flaminio, D. Forest, M. Granata, B. Lagrange, N. Straniero, J. Teillon, and L. Pinard, “Large and extremely low loss: the unique challenges of gravitational wave mirrors,” *J. Opt. Soc. Am. A*, vol. 36, no. 11, p. C85–C94, 2019.
- [13] M. Tartz, E. Hartmann, F. Scholze, H. Neumann, and F. Bigl, “A new approach to ion beam modelling,” *Surface and Coatings Technology*, vol. 97, no. 1-3, pp. 504–509, 1997.
- [14] M. Zeuner, F. Scholze, H. J. Leiter, R. Kukies, D. Feili, M. Tartz, and H. Neumann, “Ion Beam Characterisation of the RIT 10 Ion Thruster,” in *39th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit*, p. 5009, AIAA, 2003.
- [15] C. Bundesmann and H. Neumann, “Tutorial: The systematics of ion beam sputtering for deposition of thin films with tailored properties,” *Journal of Applied Physics*, vol. 124, no. 23, p. 231102, 2018.
- [16] “COMMUNICATION FROM THE COMMISSION TO THE EUROPEAN PARLIAMENT, THE COUNCIL, THE EUROPEAN ECONOMIC AND SOCIAL COMMITTEE AND THE COMMITTEE OF THE REGIONS - Critical Raw Materials Resilience: Charting a Path towards greater Security and Sustainability,” 2020. Published by European Commission and available at (Link checked on March 4, 2024) <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/EN/TXT/PDF/?uri=CELEX:52020DC0474>.
- [17] M. Turowski, M. Jupé, T. Melzig, P. Moskovkin, A. Daniel, A. Pflug, S. Lucas, and D. Ristau, “Practice-oriented optical thin film growth simulation via multiple scale approach,” *Thin Solid Films*, vol. 592, pp. 240–247, 2015.
- [18] M. Turowski, M. Jupé, T. Melzig, A. Pflug, A. Demircan, and D. Ristau, “Multiple Scale Modeling of PVD Sputter Processes,” in *Optical Interference Coatings 2016*, p. WB.4, Optica Publishing Group, 2016.
- [19] D. Korzec, K. Schmitz, and J. Engemann, “Broad ion beam modeling for extraction optics optimization and etching process simulation,” *Journal of Vacuum Science and Technology B: Microelectronics Processing and Phenomena*, vol. 6, no. 1, pp. 263–267, 1988.
- [20] M. Tilsch, V. Scheuer, J. Biersack, and T. Tschudi, “3D simulation of thin film growth conditions at ion beam sputter deposition and comparison to experimental investigations,” in *Proceedings Volume 2775, Specification, Production, and Testing of Optical Components and Systems*, vol. 2775, SPIE, 1996.
- [21] H. Barth, E. Mühling, and W. Eckstein, “Formation of different charge states and the charge state fractions of sputtered Ti and Ni,” *Surface Science*, vol. 166, no. 2, pp. 458–479, 1986.

- [22] D. M. Goebel and K. Ira, *Fundamentals of Electric Propulsion: Ion and Hall Thrusters*. John Wiley and Sons, 2008.
- [23] D. Ristau and H. Ehlers, “Thin Film Optical Coatings,” in *Springer Handbook of Lasers and Optics* (F. Träger, ed.), pp. 401–424, Springer Berlin Heidelberg, 2012.
- [24] J. Bauer, F. Frost, and T. Arnold, “Reactive ion beam figuring of optical aluminium surfaces,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 50, no. 8, p. 85101, 2017.
- [25] F. Frost, R. Fechner, B. Ziberi, J. Völlner, D. Flamm, and A. Schindler, “Large area smoothing of surfaces by ion bombardment: fundamentals and applications,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 21, no. 22, p. 224026, 2009.
- [26] R. G. Elliman and J. S. Williams, “Advances in ion beam modification of semiconductors,” *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, vol. 19, no. 1, pp. 49–67, 2015.
- [27] M. P. Stockli and T. Nakagawa, “Ion Injectors for High-Intensity Accelerators,” *Reviews of Accelerator Science and Technology*, vol. 6, pp. 197–219, 2013.
- [28] U. Fantz, S. Briefi, A. Heiler, C. Wimmer, and D. Wunderlich, “Negative Hydrogen Ion Sources for Fusion: From Plasma Generation to Beam Properties,” *Frontiers in Physics*, vol. 9, 2021.
- [29] A. Zucchiatti and A. Redondo-Cubero, “Ion beam analysis: New trends and challenges,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 331, pp. 48–54, 2014.
- [30] H. R. Kaufman and R. S. Robinson, “Ion Source Design for Industrial Applications,” *AIAA Journal*, vol. 20, no. 6, pp. 745–760, 1982.
- [31] M. Zeuner, H. Neumann, F. Scholze, D. Flamm, M. Tartz, and F. Bigl, “Characterization of a modular broad beam ion source,” *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 7, no. 3, p. 252, 1998.
- [32] A. Bapat, P. B. Salunkhe, and A. V. Patil, “Hall-Effect Thrusters for Deep-Space Missions: A Review,” *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 50, no. 2, pp. 189–202, 2022.
- [33] H. Loeb, “State of the art and recent developments of the radio frequency ion motors,” in *7th Electric Propulsion Conference*, AIAA, 1969.
- [34] H. Löb, “Hochfrequenz-Ionenstrahlquelle, Offenlegungsschrift de 38 42 756 a1,” 1988.
- [35] R. Geller, “Electron Cyclotron Resonance (E.C.R.) Multiply Charged Ion Sources,” *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 26, no. 2, pp. 2119–2127, 1979.
- [36] G. Franz, *Oberflächentechnologie mit Niederdruckplasmen*. Springer Berlin, Heidelberg, 1994.
- [37] J. Freisinger, J. Heland, D. Krämer, H. Löb, and A. Scharmann, “Performance of the rf-ion sources RIM for reactive and nonreactive gases,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 63, no. 4, pp. 2571–2573, 1992.

- [38] H. Löb and J. Freisinger, *Ionenraketen*. Friedr. Vieweg und Sohn, Braunschweig, 1967.
- [39] F. Scholze, M. Tartz, H. Neumann, H. J. Leiter, R. Kukies, D. Feili, and S. Weis, "Ion analytical characterisation of the RIT 22 ion thruster," in *43rd AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit*, AIAA, 2007.
- [40] M. Sangregorio, K. Xie, N. Wang, N. Guo, and Z. Zhang, "Ion engine grids: Function, main parameters, issues, configurations, geometries, materials and fabrication methods," *Chinese Journal of Aeronautics*, vol. 31, no. 8, pp. 1635–1649, 2018.
- [41] R. Keller, "Ion extraction systems: optics and design," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 298, no. 1, pp. 247–254, 1990.
- [42] M. Tartz, E. Hartmann, R. Deltschew, and H. Neumann, "Approximation of the plasma inhomogeneity by broad-beam measurements and simulation," *Review of Scientific Instruments*, vol. 71, no. 2, pp. 678–680, 2000.
- [43] M. Tartz, E. Hartmann, R. Deltschew, and H. Neumann, "Thrust-vector tilting caused by grid misalignment," in *27th International Electric Propulsion Conference*, Electric Rocket Propulsion Society, 2001.
- [44] C. Bundesmann, M. Tartz, F. Scholze, H. Neumann, H. Leiter, F. Scortecci, D. Feili, P.-E. Frigot, and J. G. del Amo, "In-situ temperature, grid curvature, erosion, beam and plasma characterization of a gridded ion thruster RIT-22," in *31st International Electric Propulsion Conference*, Electric Rocket Propulsion Society, 2009.
- [45] A. J. T. Holmes, "Beam transport," *Radiation Effects*, vol. 44, pp. 47–58, 1979.
- [46] A. T. Forrester, *Large Ion Beams: Fundamentals of Generation and Propagation*. John Wiley and Sons, 1988.
- [47] M. C. Salvadori, F. S. Teixeira, A. Nikolaev, K. P. Savkin, E. M. Oks, P. Spädtke, K. M. Yu, and I. G. Brown, "Self-neutralized ion beam," *Journal of Applied Physics*, vol. 110, no. 8, p. 83308, 2011.
- [48] P. Sigmund, "Theory of Sputtering. I. Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets," *Physical Review*, vol. 184, no. 2, pp. 383–416, 1969.
- [49] G. M. McCracken, "The behaviour of surfaces under ion bombardment," *Reports on Progress in Physics*, vol. 38, no. 2, p. 241, 1975.
- [50] J. P. Biersack and W. Eckstein, "Sputtering studies with the Monte Carlo Program TRIM.SP," *Applied Physics A*, vol. 34, no. 2, pp. 73–94, 1984.
- [51] R. Behrisch and W. Eckstein, *Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies*, ch. Introduction and Overview. Springer, 2007.

- [52] R. Behrisch, G. Maderlechner, B. M. U. Scherzer, and M. T. Robinson, “The sputtering mechanism for low-energy light ions,” *Applied Physics*, vol. 18, no. 4, pp. 391–398, 1979.
- [53] C. Cupak, P. S. Szabo, H. Biber, R. Stadlmayr, C. Grave, M. Fellingner, J. Brötzner, R. A. Wilhelm, W. Möller, A. Mutzke, M. V. Moro, and F. Aumayr, “Sputter yields of rough surfaces: Importance of the mean surface inclination angle from nano- to microscopic rough regimes,” *Applied Surface Science*, vol. 570, p. 151204, 2021.
- [54] B. Ziberi, F. Frost, T. Höche, and B. Rauschenbach, “Ion-induced self-organized dot and ripple patterns on Si surfaces,” *Vacuum*, vol. 81, no. 2, pp. 155–159, 2006.
- [55] H. Oechsner, “Sputtering—a review of some recent experimental and theoretical aspects,” *Applied Physics*, vol. 8, no. 3, pp. 185–198, 1975.
- [56] B. Ziberi, F. Frost, T. Höche, and B. Rauschenbach, “Ion-induced self-organized dot and ripple patterns on Si surfaces,” *Vacuum*, vol. 81, no. 2, pp. 155–159, 2006.
- [57] M. Stepanova and S. K. Dew, “Estimates of differential sputtering yields for deposition applications,” *Journal of Vacuum Science and Technology A*, vol. 19, pp. 2805–2816, 11 2001.
- [58] H. Gnaser, *Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies*, ch. Energy and Angular Distributions of Sputtered Species. Springer, 2007.
- [59] T. Ono, T. Kenmotsu, and T. Muramoto, *Reactive Sputter Deposition*, ch. Simulation of the Sputtering Process. Springer, 2008.
- [60] T. Lautenschläger, R. Feder, H. Neumann, C. Rice, M. Schubert, and C. Bundesmann, “Ion beam sputtering of Ti: Influence of process parameters on angular and energy distribution of sputtered and backscattered particles,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 385, pp. 30–39, 2016.
- [61] T. Lautenschläger and C. Bundesmann, “Reactive ion beam sputtering of Ti: Influence of process parameters on angular and energy distribution of sputtered and backscattered particles,” *Journal of Vacuum Science and Technology A*, vol. 35, no. 4, p. 41001, 2017.
- [62] W. Sakiew, “Plasma und optische Technologien: Erhöhung der Qualität und Ausbeute optischer Beschichtungstechnologien: Akronym: Pluto+: Abschlussbericht: aktiv geregelte IBS-Prozesse höchster Qualität und Präzision,” tech. rep., Cutting Edge Coatings GmbH, 2018. Available at (Link checked on March 4, 2024) <https://www.tib.eu/de/suchen/id/TIBKAT:1032809728/>.
- [63] S. Berg, E. Särhammar, and T. Nyberg, “Upgrading the “Berg-model” for reactive sputtering processes,” *Thin Solid Films*, vol. 565, pp. 186–192, 2014.
- [64] K. Strijckmans and D. Depla, “A time-dependent model for reactive sputter deposition,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 47, no. 23, p. 235302, 2014.

- [65] B. A. Movchan and A. V. Demchishin, "Structure and properties of thick condensates of nickel, titanium, tungsten, aluminum oxides, and zirconium dioxide in vacuum," *Fiz. Metal. Metalloved.*, vol. 28, p. 653, 1969.
- [66] J. A. Thornton, "Influence of apparatus geometry and deposition conditions on the structure and topography of thick sputtered coatings," *Journal of Vacuum Science and Technology*, vol. 11, no. 4, pp. 666–670, 1974.
- [67] A. Anders, "A structure zone diagram including plasma-based deposition and ion etching," *Thin Solid Films*, vol. 518, no. 15, pp. 4087–4090, 2010.
- [68] D. M. Mattox, *Handbook of Physical Vapor Deposition (PVD) Processing*. Elsevier, 2010.
- [69] W. Sakiew, E. Klocke, and D. Ristau, "Investigation of target erosion profiles sputter-eroded by a low-energy broad ion beam," *AIP Advances*, vol. 11, no. 3, p. 35239, 2021.
- [70] W. Sakiew, S. Schrameyer, M. Jupé, P. Schwerdtner, N. Erhart, K. Starke, and D. Ristau, "Influence of ion beam parameters onto two-dimensional optical thin film thickness distributions deposited by ion beam sputtering," *Thin Solid Films*, vol. 682, pp. 109–120, 2019.
- [71] O. Stenzel, *The Physics of Thin Film Optical Spectra - An Introduction*. Springer, 2016.
- [72] J. Bohdanky, J. Roth, and H. L. Bay, "An analytical formula and important parameters for low-energy ion sputtering," *Journal of Applied Physics*, vol. 51, no. 5, pp. 2861–2865, 1980.
- [73] Y. Yamamura, Y. Itikawa, and N. Itoh, "Angular dependence of sputtering yields of monoatomic solids," 1983. Available at (Link checked on March 4, 2024) <http://dpc.nifs.ac.jp/IPPJ-AM/IPPJ-AM-26.pdf>.
- [74] J. Bohdanky, "A universal relation for the sputtering yield of monatomic solids at normal ion incidence," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 2, no. 1, pp. 587–591, 1984.
- [75] N. Matsunami, Y. Yamamura, Y. Itikawa, N. Itoh, Y. Kazumata, S. Miyagawa, K. Morita, R. Shimizu, and H. Tawara, "Energy dependence of the ion-induced sputtering yields of monoatomic solids," *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, vol. 31, no. 1, pp. 1–80, 1984.
- [76] C. García-Rosales, W. Eckstein, and J. Roth, "Revised formulae for sputtering data," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 218, no. 1, pp. 8–17, 1994.
- [77] Y. Yamamura and H. Tawara, "Energy dependence of ion-induced sputtering yields from monoatomic solids at normal incidence," *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, vol. 62, no. 2, pp. 149–253, 1996.



- [78] W. Eckstein and H. M. Urbassek, *Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies*, ch. Computer Simulation of the Sputtering Process. Springer, 2007.
- [79] W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*. Springer-Verlag, 1991.
- [80] H. M. Urbassek, “Molecular-dynamics simulation of sputtering,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 122, no. 3, pp. 427–441, 1997.
- [81] J. P. Biersack and L. G. Haggmark, “A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets,” *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 174, no. 1, pp. 257–269, 1980.
- [82] W. Eckstein and J. Biersack, “Sputtering investigations with the Monte Carlo program TRIM SP,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 2, no. 1, pp. 550–554, 1984.
- [83] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack, “SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010),” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 268, no. 11, pp. 1818–1823, 2010.
- [84] W. Möller and W. Eckstein, “Tridyn — a TRIM simulation code including dynamic composition changes,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 2, no. 1, pp. 814–818, 1984.
- [85] W. Möller, W. Eckstein, and J. Biersack, “Tridyn - binary collision simulation of atomic collisions and dynamic composition changes in solids,” *Computer Physics Communications*, vol. 51, no. 3, pp. 355–368, 1988.
- [86] W. Eckstein, R. Dohmen, A. Mutzke, and R. Schneider, “SDTrimSP: A Monte-Carlo Code for Calculating Collision Phenomena in Randomized Targets,” 2007. Available at (Link checked on March 4, 2024) [https://pure.mpg.de/rest/items/item\\_2142842/component/file\\_2142841/content](https://pure.mpg.de/rest/items/item_2142842/component/file_2142841/content).
- [87] H. Hofsäss, K. Zhang, and A. Mutzke, “Simulation of ion beam sputtering with SDTrimSP, TRIDYN and SRIM,” *Applied Surface Science*, vol. 310, pp. 134–141, 2014.
- [88] W. Sakiew, E. Klocke, and D. Ristau, “Target erosion process during broad ion beam sputtering using 3D modeling of ion trajectories,” *AIP Advances*, vol. 12, no. 4, p. 45123, 2022.
- [89] W. Sakiew, S. Schrameyer, P. Schwerdtner, N. Erhart, and K. Starke, “Large area precision optical coatings by reactive ion beam sputtering,” *Applied Optics*, vol. 59, pp. 4296–4302, 2020.
- [90] W. Sakiew, P. Schwerdtner, M. Jupé, A. Pflug, and D. Ristau, “Impact of ion species on ion beam sputtered Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layer quality parameters and on corresponding process productivity: A preinvestigation for large-area coatings,” *Journal of Vacuum Science and Technology A*, vol. 39, no. 6, p. 63402, 2021.

- [91] D. Rosén, I. Katardjiev, S. Berg, and W. Möller, “TRIDYN simulation of target poisoning in reactive sputtering,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 228, no. 1, pp. 193–197, 2005.
- [92] R. E. Somekh, “The thermalization of energetic atoms during the sputtering process,” *Journal of Vacuum Science and Technology A*, vol. 2, no. 3, pp. 1285–1291, 1984.
- [93] X. W. Zhou and H. N. G. Wadley, “Hyperthermal vapor deposition of copper: reflection and resputtering effects,” *Surface Science*, vol. 431, no. 1, pp. 58–73, 1999.
- [94] S. Mahieu, K. Van Aeken, D. Depla, D. Smeets, and A. Vantomme, “Dependence of the sticking coefficient of sputtered atoms on the target–substrate distance,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 41, no. 15, p. 152005, 2008.
- [95] A. Bogaerts, E. Wagner, B. W. Smith, J. D. Winefordner, D. Pollmann, W. W. Harrison, and R. Gijbels, “Three-dimensional density profiles of sputtered atoms and ions in a direct current glow discharge: experimental study and comparison with calculations,” *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 52, no. 2, pp. 205–218, 1997.
- [96] O. Yamazaki, K. Iyanagi, S. Takagi, and K. Nanbu, “Modeling of Cu Transport in Sputtering Using a Monte Carlo Simulation,” *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 41, no. 3R, p. 1230, 2002.
- [97] S. Mahieu, G. Buyle, D. Depla, S. Heirwegh, P. Ghekiere, and R. De Gryse, “Monte Carlo simulation of the transport of atoms in DC magnetron sputtering,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 243, no. 2, pp. 313–319, 2006.
- [98] P. Kadkhoda, W. Sakiew, S. Günster, and D. Ristau, “Fast Total Scattering facility for 2D inspection of optical and functional surfaces,” in *Proceedings Volume 7389, Optical Measurement Systems for Industrial Inspection VI* (P. H. Lehmann, ed.), vol. 7389, p. 738905, SPIE, 2009.

---

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich in meiner Forschungszeit unterstützt und zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Als erstes möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. Detlev Ristau (Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover und Laser Zentrum Hannover e.V. - LZH) für die Möglichkeit, diese Arbeit durchführen zu können, für seine Betreuung und die vielen fachlichen Anregungen bedanken.

Für die freundliche Übernahme der Korreferate danke ich Herrn Prof. Dr. Jan Schmidt (Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover) und Herrn Prof. Dr. Thomas Arnold (Technische Universität Dresden und Leibniz-Institut für Oberflächenmodifizierung e.V. in Leipzig).

Für die freundliche Übernahme des Prüfungsvorsitzes danke ich Herrn Prof. Dr. Gunther Seckmeyer (Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover).

Herrn Prof. Dr. Wolfhard Möller (Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf e. V. - HZDR) und dem HZDR danke ich für die Möglichkeit, Simulationen mit dem Computerprogramm *TRIDYN* durchführen zu können, einem wichtigen Baustein zum Verständnis der Ionen-Materie-Wechselwirkung.

Die Durchführung der gesamten experimentellen Arbeit hat Herr Dr. Kai Starke (Cutting Edge Coatings GmbH - CEC) ermöglicht. Er hat im Rahmen des Forschungsprojektes *PluTO+* die Forschungszeit an den Beschichtungsanlagen und der Messtechnik von CEC bereitgestellt, sowie das gesamte erforderliche Verbrauchsmaterial. Vielen Dank.

Meinen besonderen Dank möchte ich auch an Herrn Dr. Marco Jupé vom LZH und Herrn Dr. Benjamin Lotz von CEC richten für die vielen fachlichen Diskussionen und die Unterstützung beim Lösen von experimentellen und messtechnischen Herausforderungen.

Dem Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) sei für die finanzielle Unterstützung im Rahmen des Forschungsprojektes *PluTO+* (Förderkennzeichen 13N13207) gedankt. Der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) sei für die finanzielle Unterstützung im Rahmen des Exzellenzcluster *PhoenixD: Photonics, Optics, and Engineering - Innovation Across Disciplines* (EXC 2122, Projektnummer 390833453) gedankt.

Weiterhin möchte ich mich bei Eileen Klocke, Philippe Schwerdtner und Nick Erhart dafür bedanken, dass sie mir die Betreuung ihrer Bachelor- und oder Masterarbeiten anvertraut haben. Die Zusammenarbeit an zahlreichen Experimenten hat nicht nur viel Spass gemacht, sondern auch Impulse für die Modellierung geliefert.

Zum Abschluss gilt mein Dank dem LZH und CEC. Das LZH hat in mir als Student das Interesse für die Dünnschichttechnologie geweckt, in diesem Thema wichtige Grundlagen vermittelt und mir die Möglichkeit gegeben, noch während des Studiums an spannenden Forschungsprojekten zu partizipieren. Mit dem vermittelten Wissen und der gesammelten Erfahrung konnte ich mich nach dem Studium bei CEC im Bereich der Dünnschichttechnologie weiter entwickeln, auch weil CEC sich intensiv in den Bereichen Forschung und Entwicklung engagiert.

---

# Lebenslauf

## Persönliche Angaben

Name Wjatscheslaw Sakiew

## Ausbildung

1990 – 2002 Schulzeit, Abschluss: Abitur am Manfred-von-Ardenne Gymnasium Freital-Zauckerode, Sachsen

2002 – 2003 Zivildienst, Technische Werke Freital, Sachsen

2003 – 2009 Studium der Physik an der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, Studienrichtung Technische Physik mit Schwerpunkt Photonik, Diplomarbeit am Laser Zentrum Hannover e. V., Abschluss: Diplom-Physiker

## Beruflicher Werdegang

2009 – 2020 Senior Product Engineer / Process Engineer, Cutting Edge Coatings GmbH, Hannover

2018 – 2024 Doktorand / Promotionsstudent an der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

2021 – 2024 Wissenschaftlicher Mitarbeiter (extern) im Bereich Forschung und Entwicklung bei Carl Zeiss SMT GmbH, Oberkochen





---

# Veröffentlichungen

- P. Kadkhoda, W. Sakiew, S. Günster, and D. Ristau, “Fast Total Scattering facility for 2D inspection of optical and functional surfaces,” in *Proceedings Volume 7389, Optical Measurement Systems for Industrial Inspection VI* (P. H. Lehmann, ed.), vol. 7389, p. 738905, SPIE, 2009
- W. Sakiew, “Plasma und optische Technologien: Erhöhung der Qualität und Ausbeute optischer Beschichtungstechnologien: Akronym: Pluto+: Abschlussbericht: aktiv geregelte IBS-Prozesse höchster Qualität und Präzision,” tech. rep., Cutting Edge Coatings GmbH, 2018.  
Available at (Link checked on March 4, 2024) <https://www.tib.eu/de/suchen/id/TIBKAT:1032809728/>
- W. Sakiew, S. Schrameyer, M. Jupé, P. Schwerdtner, N. Erhart, K. Starke, and D. Ristau, “Influence of ion beam parameters onto two-dimensional optical thin film thickness distributions deposited by ion beam sputtering,” *Thin Solid Films*, vol. 682, pp. 109–120, 2019
- W. Sakiew, S. Schrameyer, P. Schwerdtner, N. Erhart, and K. Starke, “Large area precision optical coatings by reactive ion beam sputtering,” *Applied Optics*, vol. 59, pp. 4296–4302, 2020
- W. Sakiew, E. Klocke, and D. Ristau, “Investigation of target erosion profiles sputtered by a low-energy broad ion beam,” *AIP Advances*, vol. 11, no. 3, p. 35239, 2021
- W. Sakiew, P. Schwerdtner, M. Jupé, A. Pflug, and D. Ristau, “Impact of ion species on ion beam sputtered Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> layer quality parameters and on corresponding process productivity: A preinvestigation for large-area coatings,” *Journal of Vacuum Science and Technology A*, vol. 39, no. 6, p. 63402, 2021
- W. Sakiew, E. Klocke, and D. Ristau, “Target erosion process during broad ion beam sputtering using 3D modeling of ion trajectories,” *AIP Advances*, vol. 12, no. 4, p. 45123, 2022