

---

# ФОРМООБРАЗОВАНИЕ МЕТАЛЛИЧЕСКОГО ОСАДКА В ПРОЦЕССЕ ЛАЗЕРНОГО ПИРОЛИТИЧЕСКОГО ОСАЖДЕНИЯ ИЗ ГАЗОВОЙ ФАЗЫ НА ДИЭЛЕКТРИЧЕСКУЮ ПОДЛОЖКУ

**Е.В. Величко, А.В. Недоля, И.Н. Титов**

*Запорожский национальный университет  
Украина*

Поступила в редакцию 24.10.2008

Предложена математическая модель, учитывающая радиационный и конвективный теплообмен с поверхностью вещества в условиях лазерно-индуцированного осаждения тугоплавких металлов из газовой фазы на диэлектрическую подложку. Получены распределения температурного поля в осажденном веществе и скорости осаждения вещества в момент соприкосновения металлических частиц со свободной поверхностью. Предложено объяснение механизма формирования сложной формы поверхности осадка.

## ВВЕДЕНИЕ

Структуры тугоплавких металлов с различной формой поверхности, полученные путем осаждения из газовой фазы, нашли широкое применение в микроэлектронике [1]:

- при формировании электродов транзисторов и обкладок конденсаторов;
- при формировании контактов и проводящих областей на поверхности кремния;
- в качестве проводящих, адгезионных и барьерных слоев в системах металлизации.

В настоящее время для получения металлических осадков широко используют лазерное пиролизическое осаждение из газовой фазы. К преимуществам применения лазеров относятся [2]:

- возможность легко управлять процессом осаждения;
- высокая скорость протекания локальных лазерных процессов, которая на несколько порядков превышает скорость всех известных однородных процессов, причем, чем меньше размер зоны лазерного воздействия, тем выше скорость реакции;
- минимальное загрязнение, коробление и деформация поверхности;
- низкое содержание радиационных дефектов, поскольку энергия наиболее коротковолнового ультрафиолетового излучения не превышает нескольких электрон-вольт.

Кроме того, лазерное излучение обладает высокой когерентностью и моноэнергетичностью и легко может быть сфокусировано в пятно малых размеров с высокой плотностью энергии на единицу площади, что обеспечивает протекание локальных процессов.

Существующие теоретические модели, описывающие лазерное пиролизическое осаждение, в основном имеют схематический характер и не отражают в полной мере причин возникновения осадка, имеющего сложную форму поверхности [3, 4].

Поэтому целью работы является теоретическое исследование температурного поля в веществе, которое осаждается под действием неподвижного пучка лазерного излучения. В предложенной модели учитывается зависимость теплопроводности металлического осадка и буферного газа от температуры, а также радиационный и конвективный теплообмен с поверхностью осаждающегося вещества. Данный подход позволяет объяснить закономерности эволюции формы осадка.

## МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

При анализе процесса получения металлического осадка путем лазерно-пиролизического осаждения из газовой фазы примем следующие допущения:

- распределение температуры считаем стационарным, так как характерное время теплопроводности много меньше времени осаждения;
- влиянием диффузионного лимитирования на динамику процесса осаждения пренебрегаем;
- на нижней и боковой поверхности поддерживается постоянная температура;
- лазерное излучение с гауссовым пространственным распределением интенсивности по сечению пучка падает нормально к поверхности диэлектрической подложки;

- распределение температуры является осесимметричным;
- коэффициенты теплопроводности металлического осадка и буферного газа считаем линейно зависящими от температуры;
- теплопроводность осадка (металла) много больше теплопроводности подложки (диэлектрика).

Правомочность сформулированных допущений при изучении лазерно-индуцированного осаждения тугоплавких металлов из низкомолекулярных газообразных соединений типа  $WCl_6$ ,  $WF_6$ ,  $Mo(CO)_6$  подтверждается экспериментально [5]. В этом случае характерные температуры активации  $T_a \sim 10^4$  и жидкая фаза не образуется.

С учетом этого, после введения цилиндрической системы координат, задача о нахождении температуры в осадке сводится к решению уравнения

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \lambda(T) r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \lambda(T) \frac{\partial T}{\partial z} \right) = 0 \quad (1)$$

с граничными условиями

$$\begin{aligned} T(r, 0) &= T_0, & (2) \\ T(R, z) &= T_0, & (3) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} -\tilde{\lambda}(T) \frac{\partial T(r, H)}{\partial z} &= I_0 \exp(-r^2/r_0^2) - \\ &- \alpha(T(r, H) - T_0) - \epsilon \sigma (T^4(r, H) - T_0^4), \end{aligned} \quad (4)$$

где  $T_0$  – температура газовой среды,  $R$  – радиус осадка,  $\tilde{\lambda}$  – коэффициент теплопроводности буферного газа,  $H$  – толщина слоя осадка,  $I_0$  – интенсивность лазерного излучения на оси пучка,  $r_0$  – радиус пучка,  $\alpha$  – коэффициент теплообмена,  $\sigma$  – постоянная Стефана-Больцмана,  $\epsilon$  – степень черноты материала осадка,  $\lambda$  – коэффициент теплопроводности металлического осадка.

Скорость осаждения  $W$  определяется законом

где  $\Delta$  – приращение толщины осадка,  $T_a$  – температура активации.

В экспериментах по лазерно-индуцированному осаждению в качестве буферного газа чаще всего используется водород [6]. Методом интерполяции экспериментальных дан-

ных [7] были получены зависимости теплопроводности водорода и вольфрама от температуры для интервала температур 200

$$- 600 \text{ К в виде } \tilde{\lambda}(T) = \lambda_0 \frac{T}{T_0}, \quad (6)$$

$$\lambda(T) = kT + b, \quad (7)$$

где  $T_0 = 300 \text{ К}$ ,  $\lambda_0 = 0,183 \text{ Вт/м}\cdot\text{К}$ ,  $k = -0,086 \text{ Вт/м}\cdot\text{К}^2$ ,  $b = 197,025 \text{ Вт/м}\cdot\text{К}$ .

### РАСЧЕТ В РАМКАХ ПРЕДЛОЖЕННОЙ МОДЕЛИ

Перейдем в задаче (1) – (4) к новой неизвестной функции

$$U(r, z) = (T(r, z) - T_0) \left( T(r, z) + T_0 + \frac{2b}{k} \right). \quad (8)$$

Получим следующую граничную задачу

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial U}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} = 0, \quad (9)$$

$$U(r, 0) = U(R, z) = 0, \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \frac{\lambda_0}{2T_0} \left[ \left( b / \sqrt{U(r, H) + \left( T_0 + \frac{b}{k} \right)^2} \right) - 1 \right] \frac{\partial U(r, H)}{\partial z} - \\ - I_0 \exp\left(-\frac{r^2}{r_0^2}\right) + \alpha \left[ \sqrt{U(r, H) + \left( T_0 + \frac{b}{k} \right)^2} - \frac{b}{k} - T \right] + \\ + \epsilon \sigma \left[ \left( \sqrt{U(r, H) + \left( T_0 + \frac{b}{k} \right)^2} - \frac{b}{k} \right)^4 - T_0^4 \right] = 0. \end{aligned} \quad (11)$$

Общее решение уравнения (9), с учетом линейных однородных граничных условий (10), имеет вид [8]:

$$U(r, z) = T_0^2 \sum_{m=1}^{\infty} C_m J_0 \left( \frac{\mu_m r}{R} \right) \frac{\text{sh}(\mu_m z / R)}{\text{sh}(\mu_m H / R)}, \quad (12)$$

где  $J_0$  – функция Бесселя нулевого порядка,  $\mu_m$  –  $m$ -й положительный корень уравнения  $J_0(\mu) = 0$ .

Заменим граничное условие (11) на близкое к нему условие, но имеющее гораздо более простой вид. В диапазоне температур ( $T = 300 \div 600 \text{ К}$ ) зависимость  $U$  от  $T$ , задаваемая соотношением (8), является практически линейной и ее приближенно можно записать в виде

$$U(r, z) = \left( 3T_0 + \frac{2b}{k} \right) (T(r, z) - T_0). \quad (13)$$

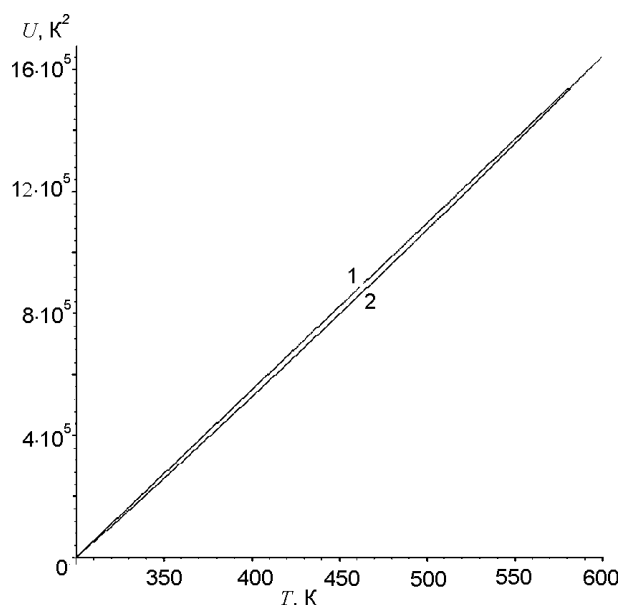


Рис. 1. Графики зависимости  $U$  от  $T$ , заданные соотношениями (8) – 1 и (13) – 2 в диапазоне температур  $T = 300 \div 600$  К.

Из рис. 1 видно, что обе зависимости  $U$  от  $T$ , построенные по (8) и (13), мало отличаются друг от друга.

Выражая из (13)  $T(r, z)$  через  $U(r, z)$  и подставляя полученное выражение в граничное условие (4)

$$-\frac{\lambda_0}{T_0} \left( T_0 + \frac{U(r, H)}{3T_0 + 2\frac{b}{k}} \right) \left( \frac{1}{3T_0 + 2\frac{b}{k}} \frac{\partial U(r, z)}{\partial z} \right)_{z=H} - I_0 \exp(-r^2/r_0^2) + \alpha \frac{U(r, H)}{3T_0 + 2\frac{b}{k}} + \varepsilon \sigma \left( \left( T_0 + \frac{U(r, H)}{3T_0 + 2\frac{b}{k}} \right)^4 - T_0^4 \right) = 0. \quad (14)$$

Для получения численных результатов в разложении (12) удерживалось конечное число слагаемых. Неизвестные коэффициенты определялись численно из условия минимальности отклонения левой части равенства (14) от нуля.

## РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Численно моделировался процесс осаждения вольфрама из его гексафторида. Расчеты проводились при следующих значениях параметров:

$$R = 10 \text{ мкм}; \quad H = 100 \text{ мкм}; \quad I_0 = 10^7 \text{ Вт/м}^2; \\ r_0 = 10 \text{ мкм}; \quad \alpha = 0,25 \text{ Вт/м}^2 \cdot \text{К}; \\ \sigma = 5,67 \cdot 10^{-8} \text{ Вт/м}^2 \cdot \text{К}^4; \quad \varepsilon = 0,1; \\ T_a = 3608,4 \text{ К}; \quad k_0 = 0,0081 \text{ м/с}.$$

Результаты расчетов представлены на рис. 2 – 4.

Предлагаемая модель является более точной по сравнению с моделью, предложенной авторами ранее [9].

Анализ распределения температуры (рис. 2) и скорости осаждения вольфрама

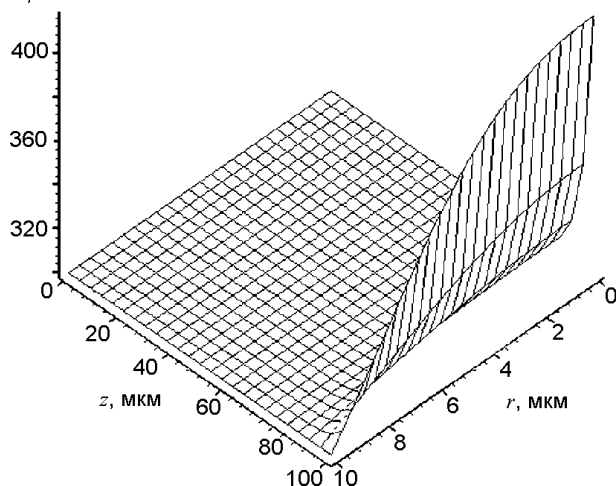


Рис. 2. Температурное распределение  $T(r, z)$  в осажденном вольфраме.

(рис. 3), а также формы поверхности осадка

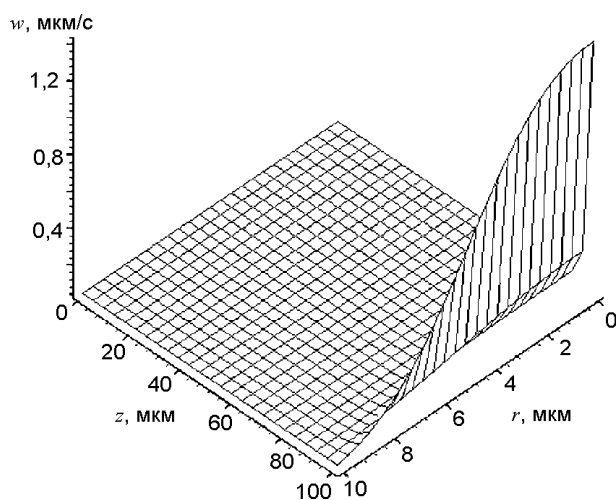


Рис. 3. Распределение скорости осаждения  $W(r, z)$  вольфрама из его гексафторида.

(рис. 4) позволяет сделать вывод о том, что при учете теплового обмена:

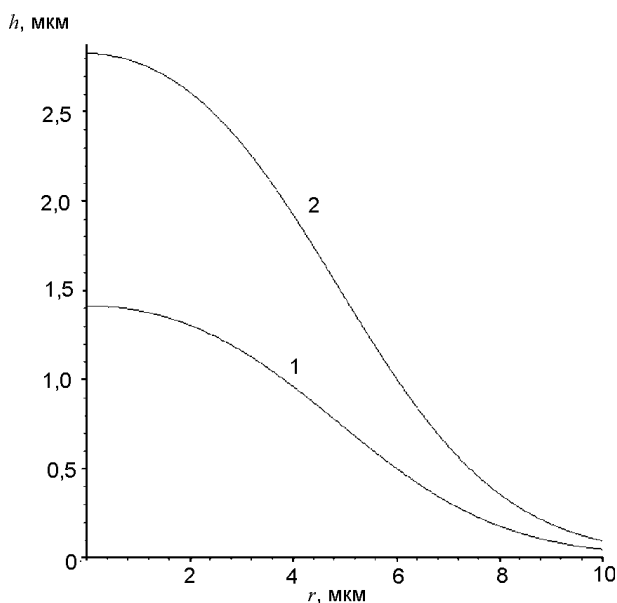


Рис. 4. Форма поверхности в процессе осаждения вольфрама из его гексафторида при:  $t = 1$  с (кривая 1),  $t = 2$  с (кривая 2).

- наблюдается качественное сходство с результатами, проведенными в рамках модели, не учитывающей теплообмен;
- происходит сглаживание температурного максимума у оси осадка;

- стабилизируется скорость осаждения в непосредственной близости от оси пучка;
- осадок имеет грибовидную форму, причем кривизна поверхности осадка меньше, чем в модели, не учитывающей теплообмен.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Киреев В.Ю., Столяров А.В. Технологии микроэлектроники. Химическое осаждение из газовой фазы. – М.: Техносфера, 2006. – 192 с.
2. Данилин Б.С. Применение низкотемпературной плазмы для нанесения тонких пленок. – М.: Энергоатомиздат, 1989. – 328 с.
3. Кириченко Н.А.//Изв. АН СССР, серия физическая. – 1991. – Т. 55, № 7. – С. 1333-1342.
4. Кириченко Н.А., Николаева Е.Г.//Квантовая электроника. – 1997. – Т. 24, № 3. – С. 260-264.
5. Toth Z., Kargl P., Grivas C. et al.//J. Appl. Phys. B. – 1992. – Vol. 54. – P. 189.
6. Карлов Н.В., Кириченко Н.А., Лукьянчук Б.С. //Успехи химии. – 1993. – Т. 62. – С. 223.
7. Физические величины. Справочник. – М.: Энергоатомиздат, 1991. – 1232 с.
8. Полянин А.Д. Справочник по линейным уравнениям математической физики. – М.: Физматлит, 2001. – 576 с.
9. Velichko I.G., Nedolya A.V., Titov I.N.//Proceedings III International Conference “Electronics and Applied Physics” Kiev. – 2007. – P. 87-88.

#### ФОРМОУТВОРЕННЯ МЕТАЛЕВОГО ОСАДУ ПІД ЧАС ЛАЗЕРНОГО ПІРОЛІТИЧНОГО ОСАЖДЕННЯ ІЗ ГАЗОВОЇ ФАЗИ НА ДІЕЛЕКТРИЧНУ ПІДКЛАДКУ

О.В. Величко, А.В. Недоля, І.М. Тітов

Запропонована математична модель, яка враховує радіаційний та конвективний теплообмін з поверхнею речовини в умовах лазерно-індукованого осадження тугоплавких металів із газОВОЇ фази на діелектричну підкладку. Отримані розподіли температурного поля у осадженій речовині та швидкості осадження речовини у момент стикування металевих часток з вільною поверхнею. Запропоновано пояснення механізму формування складної форми поверхні осаду.

#### THE SHAPE FORMING PROCESS OF METALLIC SEDIMENT DURING LASER PYROLYTIC DEPOSITION FROM GAS PHASE ON THE DIELECTRIC SUBSTRATE.

E.V. Velichko, A.V. Nedolya, I.N. Titov

The mathematical model, considering radiation and convection heat exchange from surface of matter during laser-induced vapour deposition of refractory metals on dielectric substrate is offered. The distributions of the temperature field in the deposition matter and rate of besieging of matter in the moment of contact of metallic particles with free surface is found. The explanation of forming process of the compound form of sediment is proposed.