

04;07

Исследование пространственного распределения интенсивности линий оптической эмиссии плазмы высокочастотного разряда в процессе напыления феррита висмута

© П.С. Пляка, Г.Н. Толмачев, А.П. Ковтун

НИИ Физики ЮФУ, Ростов-на-Дону
Южный научный центр РАН, Ростов-на-Дону
E-mail: pavstef@mail.ru

Поступило в Редакцию 20 февраля 2008 г.

Проведено исследование пространственного распределения линий оптической эмиссии плазмы кислородного ВЧ разряда в процессе напыления пленок BiFeO_3 . Получены экспериментальные зависимости интенсивности характерных эмиссионных линий в видимой и ближних УФ и ИК областях от расстояния до мишени. Показано отличие для ионов кислорода, атомов кислорода и атомов железа. Выявлены различия в пространственном распределении интенсивности для эмиссионных линий железа 613.7 и 688.6 nm.

PACS: 52.70.Kz, 52.80.Pi

Одним из самых популярных материалов, относящихся к классу мультиферроитов, является феррит висмута BiFeO_3 (BFO), на его основе уже созданы однокомпонентные и многокомпонентные тонкопленочные структуры на нескольких типах подложек с использованием различных технологий [1–4]. Основными причинами, приводящими к ухудшению параметров тонких пленок BFO, являются фазовая неоднородность, наличие дислокаций и химических флуктуаций, а также недостаточно гладкая поверхность [3–5].

Характеристики тонкопленочных структур на основе BFO сильно зависят от используемой технологии нанесения и технологических параметров. Пленки, полученные методом напыления импульсным лазером, имели меньшие токи утечки при более высоком (0.15 Torr) давлении в камере [3]. На структуру и качество пленок BFO, полученных методом

магнетронного ВЧ распыления [4], по мнению авторов, повлияла низкая (300°C) температура формирования пленки на подложке и увеличение подвижности поверхностных атомов энергичными распыленными частицами. Для приготовления пленок ВФО может оказаться перспективной технология напыления в кислородном емкостном ВЧ разряде без применения магнетронов, искажающих пространственную однородность плазмы, и при более высоком (от 0.2 до 2 Torr) давлении, хорошо зарекомендовавшая себя при выращивании пленок сложных оксидов, в частности BaSrTiO_3 и PbZrTiO_3 [6,7]. Достоинством данной технологии является возможность оптического контроля в режиме *in situ*, позволяющая установить корреляцию между пространственными параметрами спектров и свойствами полученных пленок. Созданию высококачественных пленок способствуют пучки быстрых электронов, повышающие подвижность частиц на формирующейся поверхности пленки, и формирование в объеме плазмы кластеров напыляемого материала, переносящих материал на подложку без нарушения стехиометрии.

Целью настоящей работы являлось исследование пространственного распределения интенсивности линий оптической эмиссии плазмы емкостного ВЧ разряда в процессе напыления пленок ВФО и поиск параметров, потенциально связанных с характеристиками получаемых пленок. В качестве исходного материала использовался феррит висмута с добавлением неодима в виде керамического диска диаметром около 48 mm и толщиной 3 mm. Напыление пленок проводилось в атмосфере кислорода при давлении около 1.4 Torr. Подводимая ВЧ мощность составляла около 300 W при частоте 13.56 MHz. В качестве подложки использовался MgO, принудительный нагрев подложки не проводился. Измерительная система благодаря дополнительной входной щели позволяла регистрировать оптическую эмиссию из выбранного на определенном расстоянии от мишени слоя плазмы толщиной около 0.5 mm.

В спектрах оптической эмиссии плазмы разряда в диапазоне от 350 до 950 nm преобладали, как и при напылении сегнетоэлектрических пленок [8], линии ионов кислорода, присутствовали сильные линии нейтрального кислорода и полосы молекул кислорода. Наблюдалась также значительная светимость линий, соответствующих атомам железа. Было исследовано пространственное распределение обособленных хорошо заметных линий O^* , O^{+*} , а также Fe^* . Полученные распределения для линий ионов кислорода 407.6, 441.5 и 465.9 nm с потенциалами

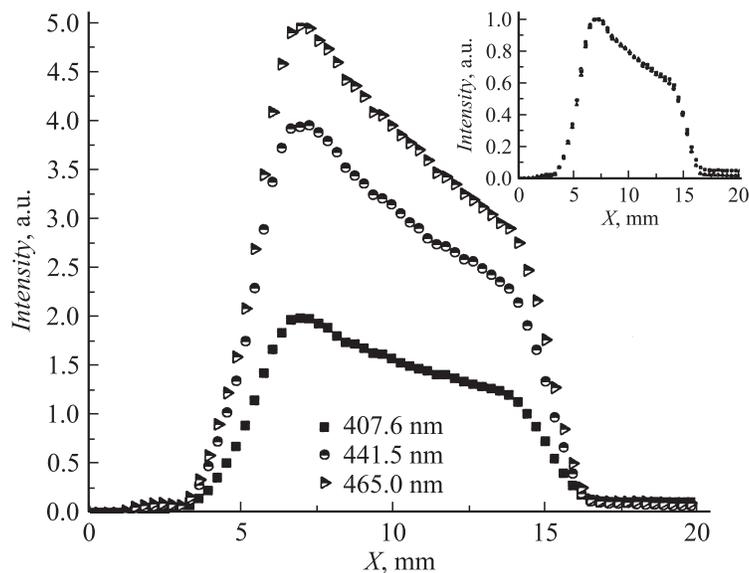


Рис. 1. Пространственное распределение интенсивности линий оптической эмиссии ионов O^+ $\lambda_1 = 407.6$ nm, $\lambda_2 = 441.5$ и $\lambda_3 = 465.0$ nm в плазме емкостного ВЧ разряда при напылении пленок $BiFeO_3$. На вставке показаны распределения, нормированные по амплитуде.

возбуждения 28.7, 26.24 и 25.65 eV показаны на рис. 1. Несмотря на отличие по абсолютной величине, нормированные по амплитуде кривые практически сливаются, что хорошо видно на вставке рис. 1. По мере удаления от мишени интенсивность эмиссии (J) сначала резко растет, достигая максимума (A), после чего отчетливо наблюдается экспоненциальный спад по закону ($J = A \cdot \exp(-h/b)$), где h — расстояние от максимума, b — параметр, зависящий, в частности, от давления и мощности. Резкое падение соответствует точке нахождения подложки.

Измеренное распределение интенсивности линии атомов кислорода для длин волн 615.8 и 777.1 nm с потенциалом возбуждения 12.75 и 10.74 eV показано на рис. 2. Помимо экспоненциального спада и резкого падения, как у иона кислорода, заметно выделяется первый максимум, находящийся вблизи катода. Абсолютные значения интенсив-

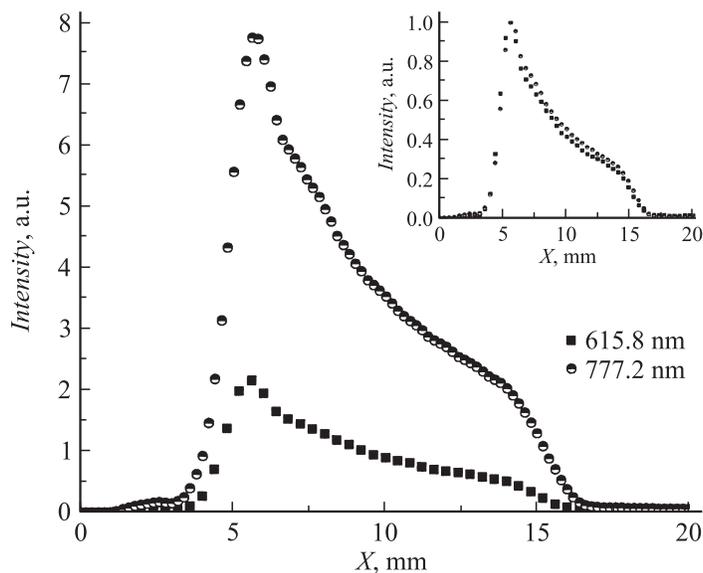


Рис. 2. Пространственное распределение интенсивности линий оптической эмиссии атомов O^* в плазме емкостного ВЧ разряда при напылении пленок $BiFeO_3$ $\lambda = 615.8$ nm и $\lambda = 777.2$ nm. На вставке показаны распределения, нормированные по амплитуде.

ности двух линий сильно отличаются, нормированные же по амплитуде зависимости, показанные на вставке рис. 2 несколько различны, но имеют сходный характер и одинаковое положение максимума. Пространственное распределение для кислорода близко к полученному при напылении сегнетоэлектрических материалов, в частности $BaSrTiO_3$ [6], но прикатодный максимум для атомарных линий в нашем случае значительно выше.

Для двух достаточно сильных линий, соответствующих атомам Fe, были получены зависимости, имеющие четкое „зануление“. Такое поведение, наблюдавшееся ранее для линий Ba и Sr при напылении $BaSrTiO_3$ [6], характеризуется монотонным почти линейным уменьшением интенсивности эмиссии от максимума вблизи мишени до нуля на границе подложки независимо от положения последней. На

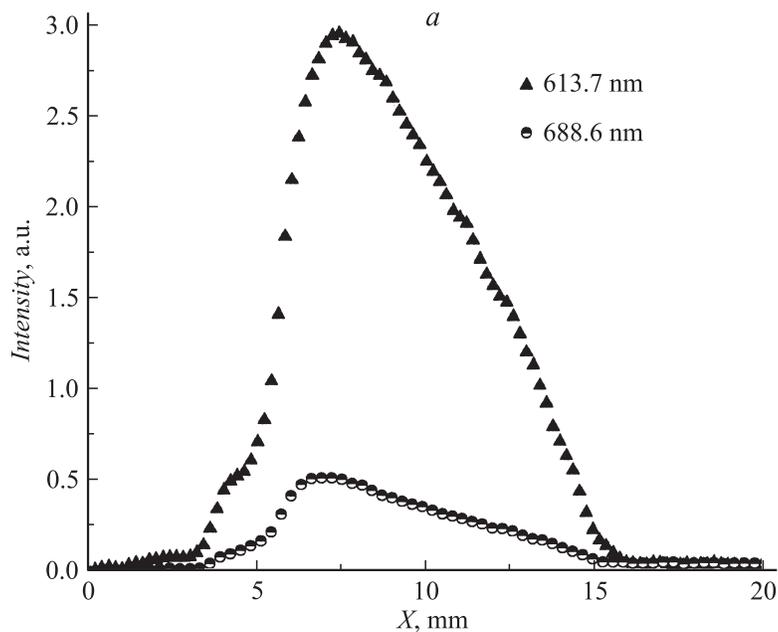


Рис. 3. *a)* Пространственное распределение интенсивности линий оптической эмиссии атомов Fe^* $\lambda_1 = 613.7 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 688.6 \text{ nm}$ в плазме емкостного ВЧ разряда при напылении пленок BiFeO_3 . *b)* Нормированное по амплитуде пространственное распределение на активном участке плазмы.

рис. 3, *a* показаны пространственные распределения интенсивности линий атомов железа 613.7 nm и 688.5 nm , а на рис. 3, *b* нормированные по амплитуде характеристики. Опираясь на полученные зависимости, можно утверждать, что при напылении пленок ВFO, как и при напылении сегнетоэлектрических пленок, имеет место кластерный механизм переноса напыляемого материала [8], и активную роль в формировании кластеров играют атомы железа.

Как видно на рисунках 3, *a* и *b*, пространственное распределение для двух исследованных линий атомов Fe существенно отличается. Для линии 688.5 nm с потенциалом возбуждения 6.45 eV спад интенсивности происходит практически по прямой, достигая фонового уровня у

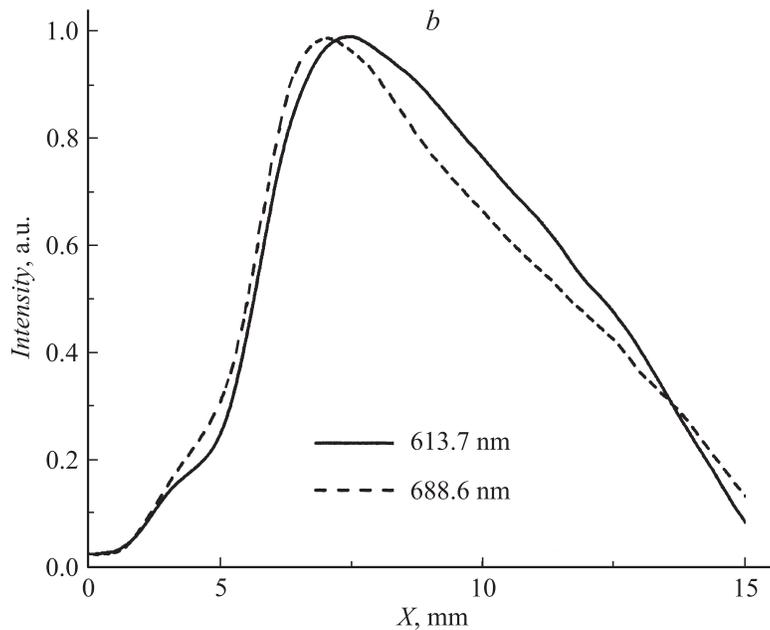


Рис. 3 (продолжение).

подложки. А для линии 613.7 nm с потенциалом возбуждения 4.47 eV характеристика выпуклая, падение вначале плавное, затем крутизна увеличивается. Положения максимумов обеих кривых отличаются примерно на 0.5 mm. Учитывая, что для рабочего газа пространственные зависимости сходны для всех эмиссионных линий вне зависимости от потенциала возбуждения и других параметров соответствующих электронных уровней, можно предположить, что отличие поведения эмиссионных линий атомов железа говорит о существовании в объеме плазмы разных групп атомов Fe. Из-за отличия в своем энергетическом состоянии эти атомы могут участвовать в образовании различных групп плазменных кластеров и приводить к образованию разных фаз кристаллической решетки при формировании пленок. Исследование этого явления планируется продолжить, чтобы установить возможную корреляцию с параметрами напыляемых пленок и определить оптимальные технологические режимы приготовления пленок ВФО.

Проведенные исследования показали перспективность анализа пространственного распределения интенсивности линий оптической эмиссии для контроля процессов напыления тонких пленок мультiferроиков на основе ВFO. Экспериментально полученные графики иллюстрируют принципиальные отличия пространственного распределения для атомов и ионов кислорода и атомов железа. Обнаружены отличия в пространственном поведении двух линий эмиссии атома Fe.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РФФИ № 06-08-00419 и темы ЮФУ № 05/6-180.

Список литературы

- [1] *Ramesh R., Spaldin N.A.* // Nature Materials. 2007. V. 6. P. 21–29.
- [2] *Yun et al.* // J. of Appl. Phys. 2004. V. 96. No 6.
- [3] *Bea et al.* // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 87. P. 072 508.
- [4] *Lee et al.* // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 87. P. 172 901.
- [5] *Qi et al.* // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 86. P. 062 903.
- [6] *Мухортов В.М. и др.* // Труды Южного научного центра РАН. Т. 2: Физика. Механика. Техника. Ростов-на-Дону 2007. С. 224–265.
- [7] *Мухортов В.М. и др.* // ЖТФ. 1992. Т. 62. В. 5. С. 22–28.
- [8] *Мухортов В.М. и др.* // ЖТФ. 1998. Т. 68. В. 9. С. 99–103.