

03;04

Магнетронное напыление при повышенных давлениях: процессы в газовой среде

© А.Г. Знаменский, В.А. Марченко

Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН,
142432 Черноголовка, Московская область, Россия

(Поступило в Редакцию 28 апреля 1997 г.)

Термализация эмиттированных мишенью энергичных атомов при давлениях до 100 Па приводит к нагреву и движению газовой среды. В зависимости от параметров магнетронного разряда измерены температура и скорость движения газа. Представлены зависимости скорости осаждения, профиля толщины и структуры пленок от давления и мощности разряда. Показано, что они хорошо описываются простой диффузионной моделью транспорта термализованных атомов мишени, учитывающей движение и нагрев газовой среды.

Введение

При ионно-плазменном напылении для снижения энергии частиц, поступающих на поверхность растущей пленки, часто используются повышенные (десятки паскаль) давления. Наибольшее распространение этот режим получил при осаждении пленок метастабильных соединений и ультратонких слоистых структур (см. [1] и ссылки в этой работе) и при наличии в разряде отрицательных ионов, ускоряющихся в темном катодном пространстве в направлении подложки до энергий, соответствующих потенциалу мишени [2]. Последний случай имеет место при напылении пленок многокомпонентных оксидов: сегнетоэлектриков, оптических материалов, высокотемпературных сверхпроводников и т.д. Используемые давления достигают 50 Па [3,4], скорости осаждения низкие, порядка $10^{-2} \text{ nm} \cdot \text{s}^{-1}$. Для контроля и оптимизации процесса роста пленок в этих довольно сложных условиях полезно рассмотрение особенностей транспорта атомов от мишени к подложке при повышенных давлениях.

При длине свободного пробега атомов много меньшей расстояния мишень–подложка эмиттированные мишенью частицы из-за соударений с газовой средой теряют импульс и энергию (разогревая и приводя в движение среду), термализуются и дальнейший их транспорт осуществляется диффузионным путем. Часть диффундирующих распыленных атомов поглощается мишенью, что приводит к снижению их потока на подложку. Разогрев газа ведет к снижению его плотности (при заданном давлении), увеличивая длину термализации, пропорциональную температуре. Движущаяся среда сносит диффундирующие атомы в направлении от мишени. Последние два эффекта должны приводить к росту скорости осаждения на подложку. Оценить, при каких условиях они существенны, можно следующим образом. Пусть d означает длину термализации, отсчитанную от поверхности мишени (далее для расстояний между объектами будут также использоваться обозначения d_{zs} , где индексы означают объект: t — мишень, s — подложка, p — датчик, измеритель). Время диффузии к мишени с этого расстояния $\tau \approx d^2/D$, D — коэффициент взаимной

диффузии (зависящий от температуры и давления). Если за это время среда и диффундирующие атомы сместятся от мишени на расстояние $u\tau \approx d$, где u — скорость газа, то движение среды окажет заметное влияние на скорость напыления. При $ud/D \gg 1$ все атомы будут снесены к подложке и обратного осаждения на мишень не будет, скорость напыления приближается к скорости для бесстолкновительного режима. В противоположном пределе движение среды не влияет на скорость напыления.

В литературе расчет скорости напыления при столкновительном режиме транспорта частиц проводится как численными методами, непосредственно рассчитывающими траектории индивидуальных атомов [5,6], так и в диффузионном приближении, где термализованные атомы образуют распределенный в пространстве диффузионный источник [7–10]. Принимается, что газовая среда неподвижна и ее температура однородна по пространству, что оправдано при малых мощностях разряда. Наиболее подробно концепция виртуального диффузионного источника разработана в [9]. На основе расчета столкновительного движения распыленных атомов в реакционном газе методом Монте-Карло и экспериментального измерения их концентрации в зависимости от расстояния до мишени при разряде в полном катоде получено, в частности, следующее. При длине свободного пробега распыленных атомов, много меньшей расстояния мишень–подложка, коэффициент возврата на мишень не успевших термализоваться и не участвующих в диффузионном транспорте атомов не зависит от давления и равен $G(\mu) \approx 0.09(3 - \ln \sqrt{\mu})$, где μ — отношение масс атомов мишени и газа. Поток не термализованных атомов от мишени к подложке можно пренебречь при расстоянии мишень–подложка $d_{ts} \geq 4d$. Это условие и определяет границу по давлению области диффузионного транспорта. Концентрация диффундирующих атомов в пространстве в основном определяется положением максимума функции распределения протяженного диффузионного источника. Замена ее на δ -функцию приводит к незначительному изменению концентрации.

Экспериментальные данные по динамике и нагреву газа при распылении имеются лишь для давлений

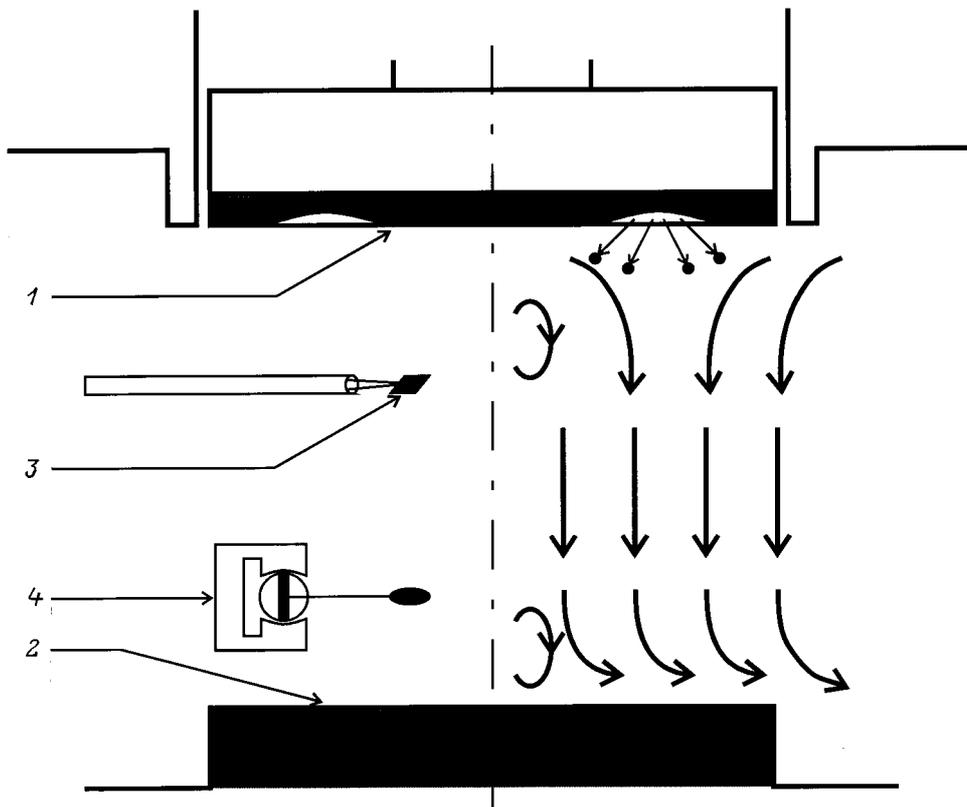


Рис. 1. Схема напыления. Правая часть рисунка — направления газовых потоков.

$P < 10$ Па. Вызванное нагревом снижение плотности газа вблизи планарного магнетрона наблюдалось в [11,12], ветер при распылении цилиндрическим магнетроном — в [13]. Эти эксперименты проведены при относительно небольших давлениях 0,2–4 Па; влияние разогрева газа на скорость осаждения на подложку оказалось незначительным [11]. Данные [10] показывают, что при давлении 9 Па скорость осаждения растет быстрее, чем мощность, что связывается авторами с разогревом газовой среды. Экспериментальные данные по транспорту распыленных атомов при давлениях до 4 Па обобщены в [12].

Насколько нам известно, распределение температуры и скоростей газа при магнетронном распылении и их влияние на скорость осаждения при повышенных (десятки паскалей) давлениях не исследовались. Кроме этого, торможение распыленных атомов в газе, эквивалентное охлаждению пара этих атомов, может привести к пересыщению пара и конденсации в газовой среде — явлению, хорошо изученному в технологии производства ультрадисперсных порошков [14]. Образовавшиеся частицы, выседая на поверхность пленки, вызовут изменение ее структуры.

Для выяснения, в какой степени перечисленные выше процессы существенны для роста пленок при повышенных давлениях, мы измерили распределения температуры и скорости газа, скорость осаждения и профиль толщины пленок в зависимости от давления и мощно-

сти в обычной планарной магнетронной распылительной системе. Для исключения влияния химических реакций, протекающих на поверхности мишени при реактивном распылении, на скорость напыления использовалась металлическая мишень и чистый инертный газ.

Методика эксперимента

Схема напыления и расположения датчиков показана на рис. 1. Мишень 1 диаметром 75 мм изготовлена из сплава Zr–30%(at)Y, рабочий газ — аргон. Средний диаметр зоны эрозии 55 мм, ширина 15 мм. Магнетрон работал в режиме стабилизации мощности. В диапазоне мощностей $W = 20–500$ Вт и давлений $P = 10–110$ Па рабочее напряжение $U = 130–200$ В, при $P = 2.5$ Па $U = 160–280$ В. Подложками служили кремниевые пластины. Скорость напыления рассчитывалась из толщины пленки, измеренной профилометром после химического травления дорожки. Конструкция установки для напыления (Z-400, Leybold) позволяла без разрыва вакуума перемещать магнетрон в горизонтальном и вертикальном направлениях. Давление в камере измерялось ионизационным и тепловым вакууметрами, отградуированными при больших давлениях по U-образному манометру, заполненному маслом.

Температура газа измерялась термопарой хромель–алюмель 3, сваренной из проволочек радиусом 40 мкм.

Для обеспечения теплового равновесия с газом и снижения доли тепловой мощности, уходящей по проводам в держатель, спай термопары помещен в конверт из металлической фольги размером 5×5 мм. Провода термопары входили в керамические трубки на расстоянии 6 мм от фольги. Плоскость фольги параллельна плоскости мишени. Анализ теплового баланса такой конструкции показал, что в использованном интервале давлений и температур теплоотвод по проводам занижает температуру газа не больше чем на 5°C . Для снижения нагрева термопары токами из плазмы измерительная цепь оторвана от земли, т.е. термопара и фольга имели плавающий потенциал, который мог быть измерен вольтметром, включенным между одним из проводов термопары и корпусом камеры.

Для измерения скорости ветра использовался датчик силы 4, изготовленный на базе измерительной системы микроамперметра: к стрелке была прикреплена круглая площадка из алюминиевой фольги радиусом $R = 0.3$ см. Предварительная калибровка датчика заключалась в измерении зависимости между весом грузиков, помещенных на фольгу, и величиной тока через обмотку микроамперметра, необходимого для возврата стрелки в начальное положение. Датчик располагался в напылительной установке на различных расстояниях от магнетрона и держателя подложек 2. При малых числах Рейнольдса $R = \rho u R / \eta$ сила F , действующая на тонкий диск при обтекании его ортогональным газовым потоком, вычисляется по формуле Стокса $F = 16\eta R u$, где u — скорость потока вдали от диска, η — динамическая вязкость, ρ — плотность газа [15]. Экспериментальная проверка применимости соответствующих формул для шара и длинного цилиндра [16] показывает, что с точностью $\approx 10\%$ они справедливы до $R \approx 5$. Для использованного размера площадки скорости ветра в аргоне $u = 10$ м/с соответствует сила 1 мг. При этой скорости и давлении $P = 20$ Па $R = 0.6$.

Экспериментальные результаты и обсуждение

1. Газовые потоки. Результаты измерения силы в зависимости от давления при постоянной мощности в четырех различных позициях датчика представлены на рис. 2 и 3 (измерения при постоянном давлении показывают, что во всем пространстве, за исключением области, примыкающей к центру подложкодержателя, сила пропорциональна мощности разряда). Вдоль правой оси на этих рисунках указаны формально вычисленные по формуле Стокса скорости движения газовой среды, соответствующие измеренным значениям силы. Зависимость силы от давления, измеренная под зоной эрозии (рис.2), проявляет насыщение в области малых давлений и близкий к $F \sim P^{-2}$ спад при высоких давлениях. Началу зависимости $F \sim P^{-2}$ на обеих кривых рис. 2 соответствует произведение $P \cdot d \approx 300$ Па · мм. Согласно [1],

эта величина близка к длине десятикратного снижения энергии отраженных от мишени атомов аргона. Данные, представленные на рис. 3, показывают, что на оси магнетрона вблизи поверхности мишени ($d_{tp} = 10$ мм) сила, измеряемая датчиком, при всех давлениях направлена к мишени; ближе к подложкодержателю (на расстоянии 18 мм над ним) направление силы зависит от давления и при больших давлениях она также направлена в сторону мишени. Представляется естественным считать, что в малых давлениях, когда расплывшие и отраженные от мишени атомы, обладающие заметной энергией и малым (в несколько раз меньше теплового) сечением рассеяния [17,18], испытывают на своем пути к датчику или подложкодержателю небольшое число актов рассеяния, датчик регистрирует изменение их импульса при взаимодействии с измерительной площадкой. На близком расстоянии от центра магнетрона, где расплывший и отраженный от мишени потоки пренебрежимо малы, на датчик воздействуют скорее всего отраженные от

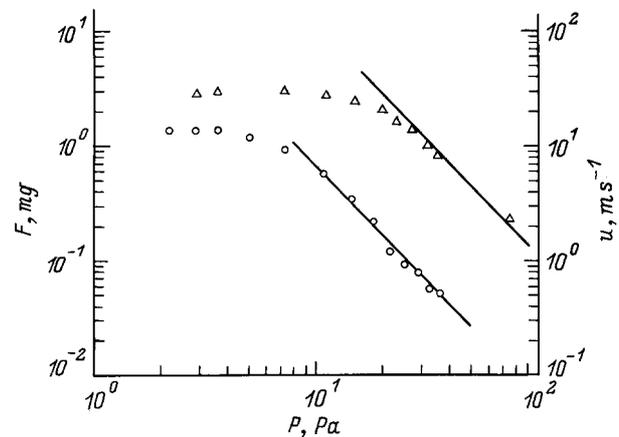


Рис. 2. Зависимость силы, измеряемой датчиком под зоной эрозии, от давления Ar. $W = 200$ W, \triangle — $d_{tp} = 10$ мм, $d_{is} = 38$ мм; \circ — $d_{tp} = 38$ мм, $d_{is} = 54$ мм, сплошные кривые — зависимости $F \sim P^{-2}$.

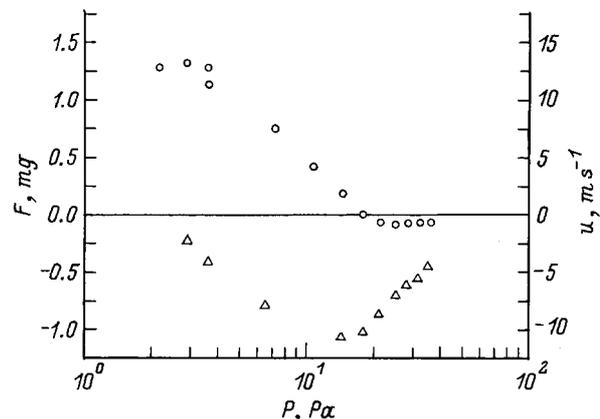


Рис. 3. То же, что на рис. 2, но датчик на оси магнетрона. Положительный знак соответствует направлению силы от магнетрона.

деталей камеры энергичные атомы аргона, приводя к обратному направлению силы. Такая картина согласуется с результатами [13] для газовой динамики при давлениях 0.2–4 Па в окрестности цилиндрического магнетрона.

При больших давлениях, когда термализация происходит на длинах, заметно меньших расстояния мишень–датчик, его показания определяются направленным движением прилегающей среды, т.е. ветром (вертикальной компонентой). При давлениях, где $F \sim P^{-2}$, измерения были проведены при различных расположениях датчика относительно мишени и подложки. Направления газовых потоков в пространстве мишень–подложка схематически показаны на рис. 1. Коротко динамика газа может быть интерпретирована следующим образом. Импульс, передаваемый газу выбитыми из зоны эрозии атомами мишени и отраженными атомами Ag (бывшими ионами), приводит к его оттоку от зоны эрозии. Отток из этой области компенсируется потоками из периферии и центра. При удалении от магнетрона газ под всей поверхностью мишени движется в одном направлении со скоростью, максимальной под зоной эрозии. Распределение потоков около подложкодержателя характерно для обтекания газом плоского препятствия с возникновением завихренности вблизи центра. Так как скорости течения газа существенно меньше звуковой, то при стационарном движении влияние скорости на плотность пренебрежимо мало [15]. Установившаяся скорость определяется равенством нулю суммы внешних сил, приложенных к газу, — импульса энергичных частиц в единицу времени и силе вязкого трения газа о внутренние детали камеры

$$\oint \int \eta du / \partial n dS + dP_{\text{ext}} / dt = 0.$$

Интегрирование ведется по всем внутренним поверхностям, производная от скорости берется вдоль нормали к поверхности.

2. Нагретый газ. Измерения радиального распределения температуры газа под магнетроном показали, что она неоднородна, максимум — под зоной эрозии; при

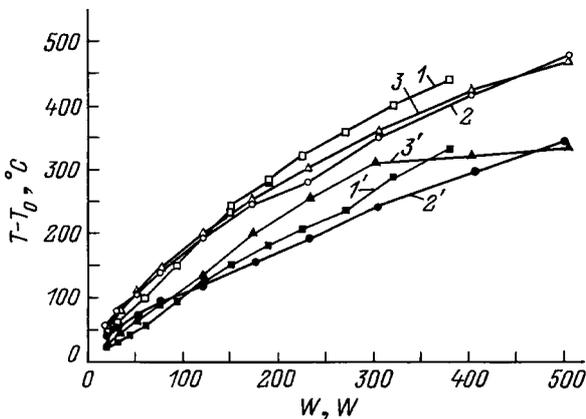


Рис. 4. Температура газа в зависимости от мощности разряда. $d_{tp} = 5$ мм; 1–3 — под зоной эрозии, 1'–3' — под центром магнетрона; 1, 1' — 36; 2, 2' — 17; 3, 3' — 7.2 Па.

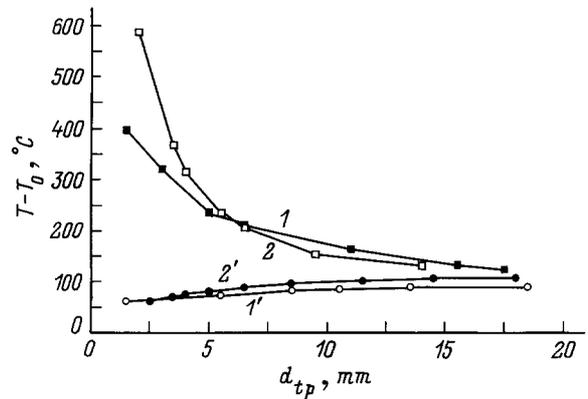


Рис. 5. Измеряемые значения температуры в зависимости от расстояния датчик–мишень. $W = 100$ Вт; квадраты — под зоной эрозии, кружки — под центром магнетрона; 1, 2' — 30; 2, 1' — 2.6 Па.

увеличении расстояния мишень–зонд неоднородность уменьшается. Часть экспериментальных данных представлена на рис. 4 и 5. Из данных рис. 5 заметно качественное различие координатных зависимостей температуры газа под зоной эрозии и центром мишени: под центром температура снижается при приближении к поверхности мишени. При отходе от мишени температуры под зоной эрозии и под центром мишени выравниваются. С ростом мощности измеряемая температура растет слабее, чем линейно (рис. 4).

3. Скорость напыления в зависимости от мощности и давления. Приведенные к единице мощности скорости напыления в зависимости от мощности (при постоянном давлении Ar $P = 33$ Па) и давления (при постоянной мощности $W = 125$ Вт) при $d_{ts} = 38$ мм показаны на рис. 6 и 7. Скорости напыления указаны в Å/Ws и соответствуют максимумам профиля толщины пленок. Как видно из рис. 6, в использованном диапазоне мощностей приведенная скорость напыления выросла более чем в три раза. Для сравнения на этом же рисунке показаны приведенные к 1 Вт скорости напыления при традиционном для магнетронов давлении (при несколько большем $d_{ts} = 40$ мм), слабо зависящие ($\approx 7\%$) от мощности, что согласуется с существующими представлениями.

Для количественной оценки влияния ветра и нагрева газа на скорость осаждения рассмотрим диффузию термализованных атомов мишени в простейшей геометрии диодного распыления. Пусть мишень и подложка представляют собой неограниченные параллельные плоскости, расстояние между которыми d_{ts} . Координата x отсчитывается от мишени в направлении подложки. Выбитые из мишени атомы термализуются на расстоянии d от мишени, создавая источник мощности N , равной скорости распыления, откуда они диффундируют, поглощаясь на поверхностях мишени и подложки. Коэффициент диффузии атомов мишени в газе — D , их концентрация — $c(x)$; скорость движения газовой

среды u направлена от мишени к подложке, D и u не зависят от координаты. Уравнение диффузии для потока атомов j в стационарном состоянии в этих условиях имеет вид $j = -Ddc/dx + cu$. Граничные условия $c(0) = c(d_{ts}) = 0$. Так как в стационарном состоянии потоки атомов j_t и j_s на мишень и подложку, по модулю равные скоростям осаждения, не зависят от координаты, то с учетом условия $j_s - j_t = N$ получим

$$j_s = N \frac{1 - \exp(-ud/D)}{1 - \exp(-ud_{ts}/D)}, \quad (1)$$

$$j_t = N \frac{\exp(-ud_{ts}/D) - \exp(-ud/D)}{1 - \exp(-ud_{ts}/D)}, \quad (1a)$$

$$c_1(x) = (j_s/u)(1 - \exp[ux - d_{ts}/D]), \quad (2)$$

$$c_2(x) = (j_t/u)[1 - \exp(ux/D)], \quad (2a)$$

где $c_1(x)$ — концентрация атомов мишени в пространстве между диффузионным источником и подложкой, $c_2(x)$ — между диффузионным источником и мишенью.

При $u \rightarrow 0$

$$j_s = N \frac{d}{d_{ts}}, \quad (3)$$

$$j_t = -N \left(1 - \frac{d}{d_{ts}}\right). \quad (3a)$$

Результат расчета скорости осаждения в зависимости от скорости ветра в этой простой модели показан на рис. 8 для трех расстояний мишень–подложка при постоянной мощности диффузионного источника и указанных температуре, давлении газа и длине термализации. Видно, что экспериментально наблюдаемые скорости, достигающие $15 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, должны заметно увеличивать скорость осаждения относительно скорости в неподвижной среде.

По сравнению с условиями вывода формулы (1) реальная ситуация отличается не только геометрией распылительной системы, но и неоднородным распределением скорости газовой среды и температуры, от которой зависят коэффициент диффузии и длина термализации. Расчеты для трехслойной среды с постоянными, но разными по слоям скоростями и коэффициентами диффузии показали, что скорость осаждения в основном определяется характеристиками среды вблизи плоскости диффузионного источника; изменение параметров в других слоях сказывается существенно слабее. Поэтому для получения расчетных зависимостей скорости напыления от мощности и давления мы использовали экспериментальные значения скорости и температуры газа на расстояниях от мишени, равных длинам термализации. Как уже отмечалось выше, в диффузионном режиме при пренебрежимо малой скорости ветра скорость осаждения пленки выражается простейшей формулой (3). N — мощность диффузионного источника принималась равной скорости напыления при низком давлении, при котором осаждение распыленных атомов на мишень пренебрежимо мало $N = j_s(0.4 \text{ Pa}) = 0.15 \text{ \AA} \cdot \text{W}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ (рис. 8). Строго

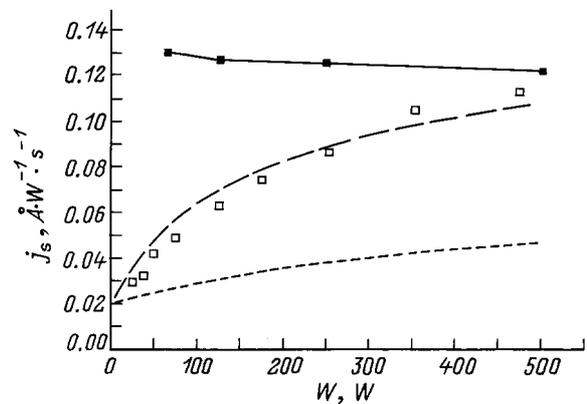


Рис. 6. Скорость напыления в зависимости от мощности. \square — $P = 33 \text{ Pa}$, $d_{ts} = 3.8 \text{ cm}$; \blacksquare — $P = 1 \text{ Pa}$, $d_{ts} = 4 \text{ cm}$; пунктир — расчетные значения без учета ветра, штриховая кривая — с учетом.

говоря, правильнее было бы $N = j_s(0.4 \text{ Pa})(1 - G(\mu))$. Учитывая независимость коэффициента возврата на мишень не успевших термализоваться распыленных атомов $G(\mu)$ от давления [9], для упрощения анализа мы им пренебрегли. Это может привести к небольшой численной ошибке ($\approx 25\%$) при расчете зависимости скорости напыления от давления, но не изменяет ее функциональный вид. Вторая причина неучета $G(\mu)$ приведена ниже. Так как длина термализации зависит от плотности частиц газа-рассеивателя, т. е. от его температуры и давления, то ее целесообразно определить из экстраполяции скорости напыления (рис. 6) на нулевую мощность, при которой нагрев газа отсутствует $j_s(33 \text{ Pa}) \approx 0.02 \text{ \AA} \cdot \text{W}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. С учетом $d_{ts} = 3.8 \text{ cm}$, используя (3), получим, что для термализации распыления атомов эффективное значение $Pd \approx 16(T_a + \Delta T)/T_a \text{ Pa} \cdot \text{cm}$, T_a — температура газа в камере, ΔT — нагрев газа при включенном разряде. Последовательный расчет длины термализации с использованием потенциала взаимодействия, полученного из экспериментальных данных по рассеянию, выполнен лишь для относительно высокой средней начальной энергии выбитых атомов $\langle E \rangle = 20 \text{ eV}$ [1]. Для Zr в Ar получено $Pd \approx 50 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$. В нашем случае катодный потенциал $U = 130\text{--}200 \text{ V}$ и $\langle E \rangle = 5\text{--}6.5 \text{ eV}$ [19,20]; величина Pd должна быть ниже. В ранней работе [17] с использованием термических сечений рассеяния рассчитывалась длина термализации в зависимости от начальной энергии. При $\langle E \rangle = 5 \text{ eV}$ для Zr в Ar получено $Pd \approx 5 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$. Учитывая эти результаты, полученное нами значение $Pd \approx 16 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$ представляется правдоподобным. Представляется, что расчетное значение коэффициента возврата $G(\mu)$ также зависит от выбранного потенциала взаимодействия, определяющего сечения рассеяния, и полученная в [9] для потенциала Леннарда–Джонса аппроксимация $G(\mu) \approx 0.09(3 - \ln \sqrt{\mu})$ может не соответствовать условиям эксперимента.

Для расчетов по формуле (1) коэффициент диффузии Zr в Ag принимался в виде $D = (1.56 \cdot 10^4 P)[(T_a + \Delta T)/273]^{1.5}$, следующим из формулы Ланжевена $D_{12} = (3\lambda/8)(\pi kT/2M_r)^{0.5}$ ($\lambda = (\sqrt{2}n\pi d_{12}^2)^{-1}$ — длина пробега, n — плотность частиц в газе, $d_{12} = (d_1 + d_2)/2$ — средний диаметр частиц, $M_r = m_1 m_2 / (m_1 + m_2)$ — приведенная масса). Скорость ветра в соответствии с результатами измерений принималась пропорциональной мощности разряда и обратно пропорциональной квадрату давления. Из-за ограниченности данных по зависимости скорости от координаты для учета ее снижения при удалении от мишени величина скорости принималась обратно пропорциональной координате. Результат расчета по формуле (1) показан на рис. 6 и 7 штриховыми линиями. Пунктир на рис. 6 показывает значения, вычисленные при нулевой скорости ветра. Видно, что, несмотря на грубость модели, учет нагрева и движения газовой среды приводит к удовлетворительному согласию с экспериментальной зависимостью скорости напыления от мощности. Учет одного лишь изменения длины термализации в результате нагрева в пренебрежении ветром (рис. 6, пунктир) явно недостаточен.

Из сопоставления экспериментальной и расчетной зависимостей скорости напыления от давления (рис. 7) видно, что ниже $P = 33$ Па они удовлетворительно согласуются, выше измеренные скорости напыления меньше результатов расчета. При больших давлениях расчетная скорость напыления почти обратно пропорциональна давлению. Такое поведение вызвано тем, что с ростом давления скорость ветра убывает быстрее, чем коэффициент диффузии ($u \sim P^{-2}$, рис. 2, $D \sim P^{-1}$), температура газа при постоянной мощности не зависит от давления (рис. 4) и диффузия расплывших атомов приближается к диффузии в неподвижной среде.

Экспериментальные данные по зависимости скорости напыления от давления показывают при $33 < P < 120$ Па

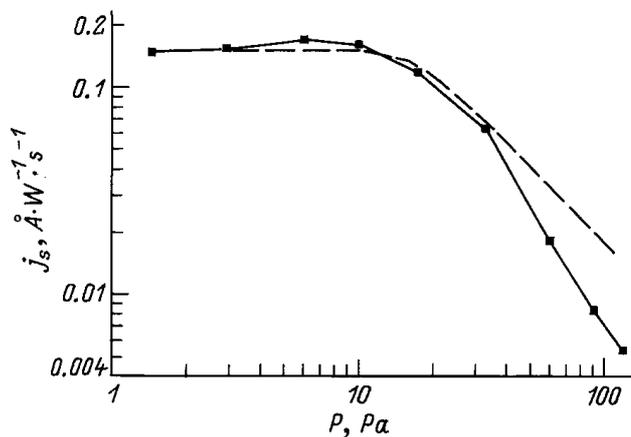


Рис. 7. Скорость напыления в зависимости от давления. $d_{is} = 38$ мм. $W = 125$ Вт. Штриховая кривая — расчетные значения.

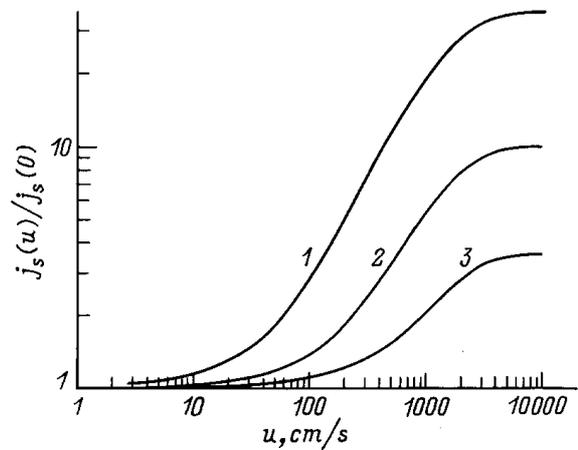


Рис. 8. Зависимость скорости напыления от скорости движения газа. d_{is} , см: 1 — 36, 2 — 10, 3 — 3.6; $P = 33$ Па, $T = 300^\circ\text{C}$, $d = 1$ см.

снижение скорости, близкое к $j_s \sim P^{-2}$ (рис. 7). Для объяснения похожего поведения, наблюдавшегося при напылении пленок $YBa_2Cu_3O_7$ [21], авторы предположили, что коэффициент возврата на мишень не успевших термализоваться атомов обратно пропорционален давлению. Это предположение противоречит полученному теоретически результату [9] о независимости G от давления. Вторая гипотеза, принципиально позволяющая объяснить снижение скорости напыления с ростом давления, — снижение энергии ионов Ag^+ , бомбардирующих мишень из-за соударений в области катодного падения потенциала, где происходит их разгон. С учетом порогового характера зависимости коэффициента распыления от энергии [22] это может привести к снижению скорости распыления. Однако проведенные нами измерения распределения потенциала вблизи катода электрическим зондом показали, что толщина катодного слоя во всем использованном диапазоне давлений меньше средней длины пробега ионов до перезарядки, следовательно, поток выбиваемых из мишени атомов при постоянной мощности разряда не зависит от давления.

Наиболее вероятно, что причина завышенных расчетных значений j_s в обсуждаемой области давлений заключается в следующем. При росте давления длина термализации d уменьшается и плоскость диффузионного источника располагается рядом с областью интенсивной плазмы вблизи зоны эрозии магнетрона, где газ разогрет заметно сильнее, чем в остальном пространстве. Так как $D \sim T^{1.5}$, то приближение постоянства коэффициента диффузии может стать слишком грубым. Эффективный коэффициент диффузии для обратного потока атомов на мишень должен заметно превысить таковой для потока атомов на подложку. Решение диффузионного уравнения $j = -Ddc/dx$ для неподвижной двухслойной среды с разными температурами и диффузионным источником на границе раздела показывает, что отношение скорости

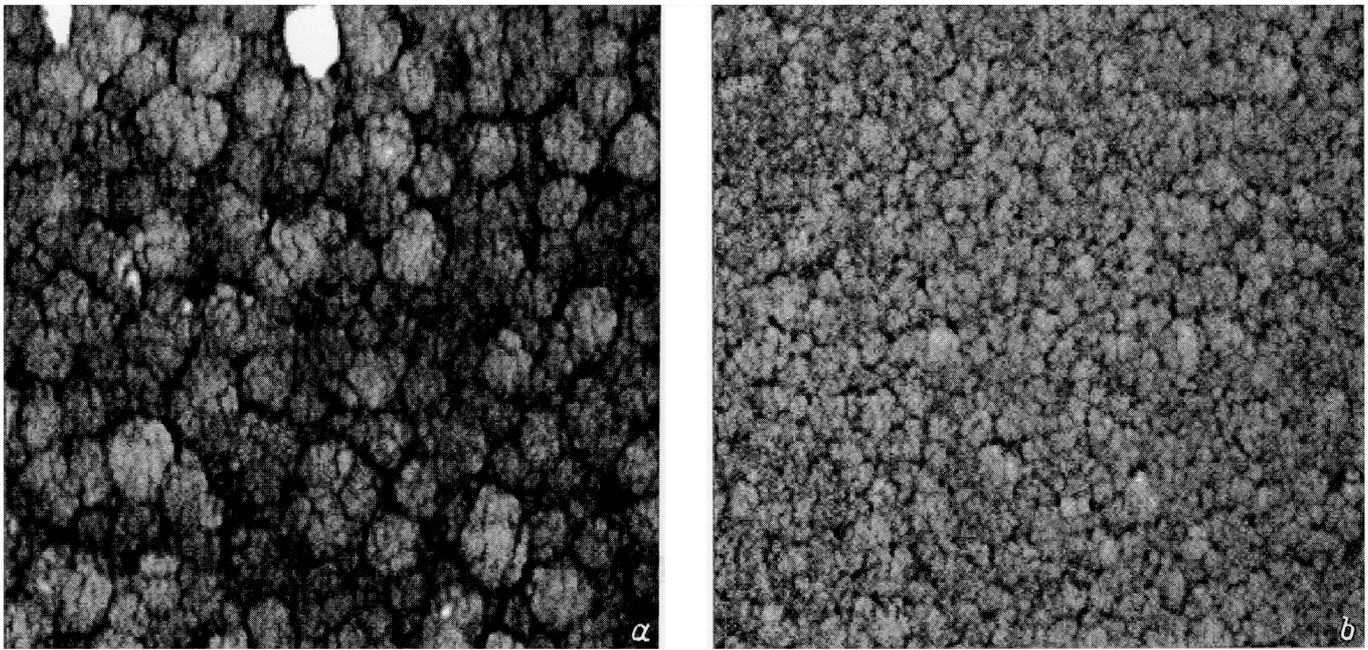


Рис. 9. Вид поверхности негладких пленок. *a* — в матовом пятне, *b* — в периферийной области. Размер поля съемки $8 \times 8 \mu\text{m}$.

напыления j_s^* для этого случая к скорости напыления в однородной среде j_s

$$\frac{j_s^*}{j_s} = \frac{d_{ts}}{d + (T_1/T_2)^{1.5}(d_{ts} - d)} \rightarrow (T_2/T_1)^{1.5} \quad \text{при } d_{ts} \gg d, \quad (4)$$

где T_1 — температура слоя вблизи мишени, T_2 — в остальном пространстве.

При расстояниях от мишени меньше 5 mm температура газа заметно растет (рис. 5). С учетом оценки $Pd \approx 16 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$ получим, что при $P > 30 \text{ Pa}$ приближение однородной среды теряет применимость. Значения температуры вблизи мишени таковы (рис. 5), что оценочно обеспечивается наблюдаемое на эксперименте снижение скорости напыления по сравнению с расчетом в модели однородной среды.

Неоднородность температуры приводит также к снижению концентрации термализованных атомов мишени по сравнению с рассчитываемой для однородной среды. Для неподвижной среды максимальная концентрация дается выражением

$$c_0 = \frac{Nd(d_{ts} - d)}{D_2d + D_1(d_{ts} - d)}. \quad (5)$$

При $d \ll d_{ts}$ для однородной среды ($D_1 = D_2 = D$) $c_0 = Nd/D$, для двухслойной $c_0 = Ndd_{ts}/(D_2d + D_1d_{ts})$.

4. Структура поверхности и профиль толщины пленок. Структура пленок, напыленных при $P = 33 \text{ Pa}$, зависит от мощности разряда. При $W = 25 \text{ W}$ вся поверхность пленок однородная, гладкая, при $W \geq 38 \text{ W}$ в центральной части пленок наблюдается

размытое матовое пятно. Вне центральной области поверхность пленки имеет слабо выраженную структуру, по мере приближения к пятну усиливающуюся. Вид ее в электронном микроскопе показан на рис. 9. Похожая эволюция структуры поверхности наблюдается у пленок, напыленных при постоянной мощности ($W = 125 \text{ W}$) при росте давления аргона. При давлениях до 10 Pa пленки гладкие, бесструктурные, при $17 \text{ Pa} \leq P \leq 90 \text{ Pa}$ присутствует сажеобразный налет в центре и слабо-выраженная структура поверхности в остальной части. При $P = 120 \text{ Pa}$ поверхность пленки снова гладкая, без пятна (далее будем ссылаться на давления и мощности, соответствующие переходам поверхности пленок от гладкой к матовой и наоборот, как на режимы *a*, *b* и *c* в порядке их упоминания). Добавочные напыления при смещении центра магнетрона относительно центра держателя подложек выявили, что пятно всегда располагается вблизи центра держателя, а не под центром магнетрона. По нашему мнению, это свидетельствует о том, что неоднородная структура пленки вызвана особенностью в динамике газового потока вблизи центра подложкодержателя. Известно [15], что при обтекании плоского тела газовым потоком с небольшой скоростью (числа Рейнольдса $R \ll 1$) всюду вблизи поверхности, за исключением центральной области, поток движется вдоль поверхности в радиальном направлении; в центральной (критической) точке скорость нулевая. При $R \sim 10$ обтекающий поток становится турбулентным. Как показывают измерения скорости газа в наших условиях, вблизи центра подложкодержателя она минимальна и в газовом потоке имеется завихренность (рис. 1). Мы предполагаем следующий сценарий образования налета

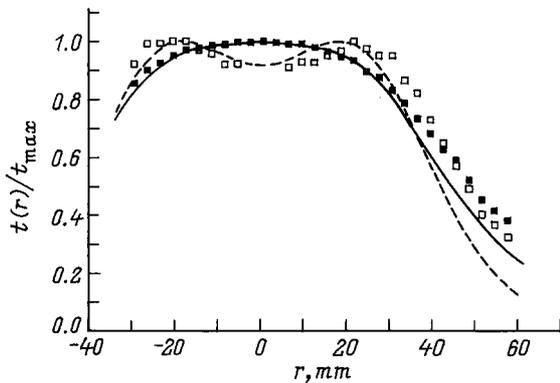


Рис. 10. Профиль толщины пленок. $d_{ts} = 36$ мм. Квадраты — экспериментальные данные, кривые — результат расчета; P , Па: ■ — 2, . . . , □ — 33.

частиц; эмитированные мишенью атомы термализуются, при достаточной их концентрации происходит конденсация пара. Конденсат увлекается газовым потоком в направлении подложки и может высаживаться на обтекаемых потоком поверхностях. Вблизи центра подложки, где имеется особенность в распределении скорости газа, время нахождения частиц вблизи подложки больше, чем над периферией, вероятность высаживания частиц в этом месте выше, что и приводит к их большей концентрации.

Наиболее интенсивно конденсация пара должна происходить в области наибольшей концентрации металлических атомов, т.е. вблизи диффузионного источника. Оценка концентрации по формуле (2) при $x = d$ дает $c_{Zr} = 1.6, 2.8, 2.1 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ для режимов a, b и c соответственно. Предположим, что лимитирующей стадией роста частиц в паре является образование двухатомных молекул распыляемого металла. Согласно химической кинетике [23], оно происходит в тройных столкновениях $Me + Me + Ar = Me_2 + Ar$, вероятность которых пропорциональна $c_{Zr}^2 \cdot n_{Ar}$. Для пороговых режимов в прежнем порядке перечисления имеем $c_{Zr}^2 \cdot n_{Ar} = 2.4, 3.9, 6 \cdot 10^{42} \text{ см}^{-6}$. Для режима c оценки концентраций должны быть завышены из-за явного невыполнения приближения однородной среды, в котором получена формула (2).

Профили толщины пленок, напыленных при больших и малых давлениях, качественно различаются: при малых давлениях профиль заметно более выпуклый (рис. 10). Для пленки, напыленной при $P = 33$ Па, экспериментальные результаты для центральной части не показаны в связи с сильным разбросом, вызванным шероховатостью поверхности в этой области.

Расчет профиля толщины для бесстолкновительного режима с вероятностью эмиссии, пропорциональной косинусу угла вылета и глубине зоны эрозии (рис. 10, сплошная линия), дает выпуклое распределение, близкое к наблюдаемому при $P \leq 2$ Па. Профиль толщины для больших давлений (рис. 10, пунктир) рассчитывался в рамках модели диффузионного источника по методике,

близкой к изложенной в [10]. Диффузионный источник моделировался плоским кольцом, расположенным под зоной эрозии на расстоянии, равном длине термализации. При варьировании расстояния от диффузионного источника до мишени в пределах 5–20 мм и ширины кольца от нуля до 20–40 мм соответственно получающиеся расчетные профили толщины при $d_{ts} = 36$ мм обладают провалом в центре. Трехмерный диффузионный источник может быть представлен в виде суммы рассмотренных плоских колец; интегральный профиль толщины пленки также будет с провалом в центре. Следовательно, диффузионный транспорт атомов приводит к менее выпуклому профилю толщины, чем бесстолкновительный. Такой же результат получен для давлений 10 Па при расчете методом Монте-Карло [6].

Отметим, что в исследованном диапазоне давлений и скоростей газа неоднородность скорости газового потока определяет распределение мелкодисперсных частиц на поверхности подложки, но не приводит к заметному отличию профиля толщины пленки от рассчитанного для неподвижной среды. Причиной этого может быть слабая чувствительность формы профиля к расстоянию диффузионного источника от мишени.

Заключение

В работе показано, что при магнетронном распылении при повышенных (десятки паскаль) давлениях торможение энергичных частиц, эмиттируемых мишенью, разогревает газовую среду и приводит ее в движение. Выяснена структура газового потока. Увеличение распыленных атомов движущейся средой заметно увеличивает скорость напыления. С ростом мощности скорость напыления растет быстрее чем линейно. Увеличение концентрации распыленных атомов в среде приводит к их конденсации в газовой фазе и выседанию мелкодисперсных частиц на растущей поверхности. Оценена пороговая концентрация, ниже которой частицы на поверхности пленки не выявляются.

Список литературы

- [1] *Somekh R.E.* // J. Vac. Sci. Technol. A. 1984. Vol. 2. N 3. P. 1285–1291.
- [2] *Harper J.M., Cuomo J.J., Gambino R.J.* et al. // J. Vac. Sci. Technol. 1978. Vol. 15. N 4. P. 1597–1600.
- [3] *Eom C.T., Phillips J.M., Cava R.J.* // Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 1994. Vol. 341. P. 229.
- [4] *Schurig Th., Menkel S., Quan Z.* et al. // Physica C. 1996. Vol. 262. N 1. P. 89–97.
- [5] *Myers A.M., Doyle J.R., Abelson J.R.* et al. // J. Vac. Sci. Technol. A. 1991. Vol. 9. N 3. P. 614–618.
- [6] *Chudnovskii F.A., Elkin B.Sh., Fursenko A.A.* et al. // Proc. 3^d German-Soviet Bilateral Seminar on High-Temperature Superconductivity. Karlsruhe, 1990. P. 451–457.
- [7] *Valles-Abarca J.A., Gras-Marti A.* // J. Appl. Phys. 1984. Vol. 55. N 5. P. 1370–1378.

- [8] Жиглинский А.Г., Измайлов А.М., Кучинский В.В. и др. Изв. вузов. Физика. 1982. Т. 25. № 10. С. 869–873.
- [9] Жиглинский А.Г., Кучинский В.В. Массоперенос при взаимодействии плазмы с поверхностью. М.: Энергоиздат, 1991. 206 с.
- [10] Petrov I., Ivanov I., Orlinov V. et al. // J. Vac. Sci. Technol. A. 1993. Vol. 11. N 5. P. 2733–2741.
- [11] Rossnagel S.M. // J. Vac. Sci. Technol. A. 1988. Vol. 6. N 1. P. 19–24.
- [12] Rossnagel S.M. // IEEE Trans. on Plasma Sci. 1990. Vol. 18. N 6. P. 878–882.
- [13] Hoffman D.W. // J. Vac. Sci. Technol. A. 1985. Vol. 3. N 3. P. 561–566.
- [14] Морозов И.Д., Трусов Л.И., Лаповок В.Н. Физические явления в ультрадисперсных средах. М.: Энергоиздат, 1984. 372 с.
- [15] Ландау Л.Д., Лившиц Е.М. Гидродинамика. М.: Наука, 1988. 736 с.
- [16] Von Dr. Herman Schlichting. Grenzschicht-Theorie. Karlsruhe: Verlag G. Braun. (пер. Шлихтинг Г. Теория пограничного слоя. М.: Наука, 1974. 480 с.)
- [17] Westwood W.D. // J. Vac. Sci. Technol. 1978. Vol. 15. N 1. P. 1–9.
- [18] Robinson R.S. // J. Vac. Sci. Technol. 1979. Vol. 16. N 2. P. 185–188.
- [19] Brizzolara R.A., Cooper C.B., Olson T.K. // Nucl. Instr. and Meth. 1988. Vol. B35. P. 36–42.
- [20] Okabe Y., Sasao M., Wada M. et al. // Jpn. J. Appl. Phys. 1991. Vol. 30. N 8A. P. L1428–L1431.
- [21] Sakuta K., Sakaguchi Y., Awaji T. et al. // IEICE Trans. 1991. Vol. E74. N 7. P. 1960–1966.
- [22] Sputtering by Particle Bombardment I. / Ed. R. Behrish. Appl. Phys. Vol. 47. Berlin: Springer, 1981. (пер. Распыление твердых тел ионной бомбардировкой / Под ред. Р. Бериша. М.: Мир, 1984).
- [23] Кондратьев В.Н., Никитин Б.Е. Кинетика и механизм газофазных реакций. М.: Наука, 1974. 558 с.