

УДК 621.793.1

Л.Ю. Цыбульский

Моделирование молекулярно-лучевого осаждения при испарении из тигля

В рамках модели молекулярного массопереноса при испарении с горизонтальной поверхности расплава и стенок цилиндрического тигельного источника аналитически определены граничные условия испарения с поверхностей тигля и получены аналитические зависимости распределения парциальных составляющих парового потока в пространстве его распространения и параметры осаждаемых плёнок, с учётом влияния конструктивных параметров тигля и характера движения подложки.

In the frame of molecular mass-transfer model during evaporation from horizontal molten metal surface and wall surface of a crucible vapor source, boundary conditions are analytically defined and analytical expression for distributions of partial vapor flows in the space of their propagation together with deposited films parameters are obtained taking into account effects of constructive crucible parameters and type of substrate moving.

Введение

В технологии получения микро- и наноструктур постоянно возникают задачи осаждения относительно равнотолщинных тонкоплёночных слоёв материалов на ступенчатые структуры. Обычно, применяемое для этих целей осаждение из ионизованных паровых потоков, не всегда приемлемо. Приходится применять осаждение из нейтральных (атомарно-молекулярных) паровых потоков, получаемых термическим испарением [1] из тигельных испарителей. Вопросы моделирования массопереноса при испарении из тигля с учётом испарения со стенок изучены не достаточно [2]. Выполнены численные расчёты для отдельных конкретных случаев.

Цель данной работы – создание аналитического описания пространственного распределения парциальных составляющих парового потока от испаряющих поверхностей цилиндрического тигля с учётом затеняющего действия стенок. А также получения на его основе распределения по поверхности подложки осаждаемой пленки по толщине для типовых траекторий перемещения подложки.

Для реализации термического испарения эффективно использовать тигельные испарите-

ли с индукционным нагревом, которые обладают рядом преимуществ: низкой энергией испаренных частиц, высоким энергетическим к.п.д., простотой организации процесса.

Аналитическое описание распределения парциальных составляющих парового потока позволяет оценить влияние физических факторов на процессы осаждения пленок и формирование наноразмерных структур.

Для определения распределений паровых потоков использовались предпосылки и результаты, полученные в [2].

1. Определение граничных условий

1.1. Граничные условия при массопереносе с поверхности расплава в тигле

Для нахождения пределов интегрирования используем уравнение конуса конденсации полученное в [1]:

$$\left(x - x_a \frac{h-z}{h-z_a}\right)^2 + \left(y - y_a \frac{h-z}{h-z_a}\right)^2 = r^2 \left(\frac{z-z_a}{h-z_a}\right)^2, \quad (1)$$

Пересечение конуса конденсации с поверхностью xOy ($z=0$) образует окружность $L1$ (рис. 1),

$$\left(x + x_a \frac{h}{z_a - h}\right)^2 + \left(y + y_a \frac{h}{z_a - h}\right)^2 = \left(\frac{r \cdot z_a}{z_a - h}\right)^2, \quad (2)$$

где r - радиус тигля, z_a - аппликата точки конденсации, h - высота стенок тигля над испаряющей поверхностью.

Испаряющая поверхность состоит из нескольких интегрируемых частей (области с разной штриховкой на рис. 1,а), количество которых зависит от соотношения координат точки конденсации A и параметров тигля. Когда $y_1 < y_0$ (y_0 - ордината центра окружности $L1$) появляется третья область интегрирования (рис. 2), которая сливается с первой когда точка A находится над тиглем. Введение полярных координат не упрощает задачу.

Задачу правильно решать если определить вначале распределение массопереноса в плоскости zOx , т.е. при $y_a = 0$. Затем, учитывая осевую симметрию тигельного источника, результат экстраполировать на всё пространство конденсации.

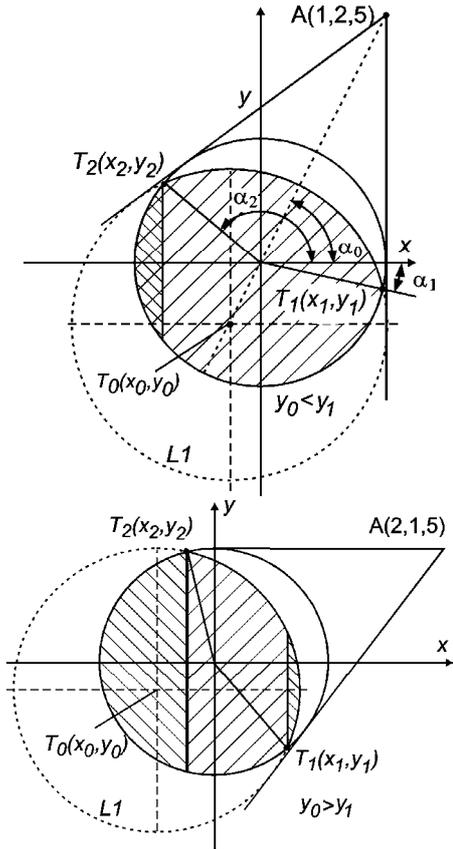


Рис. 1. К определению области испарения, участвующей в массопереносе в точку А

Графическая модель области испарения для этого случая представлена на рис. 2.

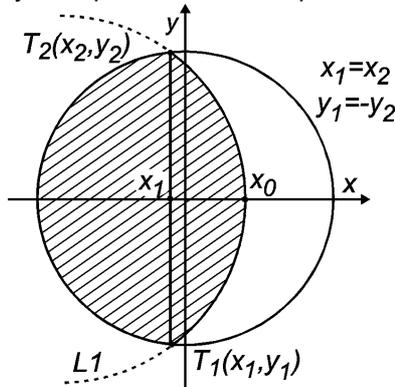


Рис. 2. К определению пределов интегрирования

Для левой части области пределы интегрирования по y от 0 до $y = \sqrt{r^2 - x^2}$, и по x от x_1 до $-r$. Для правой части области – по y от 0 до $y = f(x)$ линии $L1$, и по x от $x(0) = f(y)$ до x_1 . Результат интегрирования удваивается.

Решая систему из уравнения (2) при $y_a = 0$ и уравнения окружности $r^2 = y^2 + x^2$, определим пределы интегрирования:

$$x_{1,2} = \frac{2r^2 z_a - r^2 h - x_a^2 h}{2x_a(z_a - h)};$$

$$y_{1,2} = \pm \sqrt{r^2 - \left(\frac{2r^2 z_a - r^2 h - x_a^2 h}{2x_a(z_a - h)}\right)^2}. \quad (3)$$

В явном виде зависимость $y = f(x)$ линии $L1$:

$$y = \sqrt{\left(\frac{r \cdot z_a}{z_a - h}\right)^2 - \left(x + x_a \frac{h}{z_a - h}\right)^2}. \quad (4)$$

В общем виде распределение вертикальной составляющей (вдоль оси Oz) молекулярного потока в плоскости xOz , испаренного с плоскости радиуса r , описывается суммой:

$$s_{K2} = 2 \frac{M}{A_e \pi \rho} \left(\int_{-r}^{x_1} \int_0^{\sqrt{r^2 - x^2}} \frac{z_a^2}{[(x_a - x)^2 + y^2 + z_a^2]^2} dy dx + \int_{x_1}^{x_0} \int_0^{y_k} \frac{z_a^2}{[(x_a - x)^2 + y^2 + z_a^2]^2} dy dx \right) \quad (5)$$

где $x_1 = \frac{2r^2 z_a - r^2 h - x_a^2 h}{2x_a(z_a - h)}$; $x_0 = \frac{r \cdot z_a - x_a \cdot h}{z_a - h}$;

$$y_k = \sqrt{\left(\frac{r \cdot z_a}{z_a - h}\right)^2 - \left(x + x_a \frac{h}{z_a - h}\right)^2}.$$

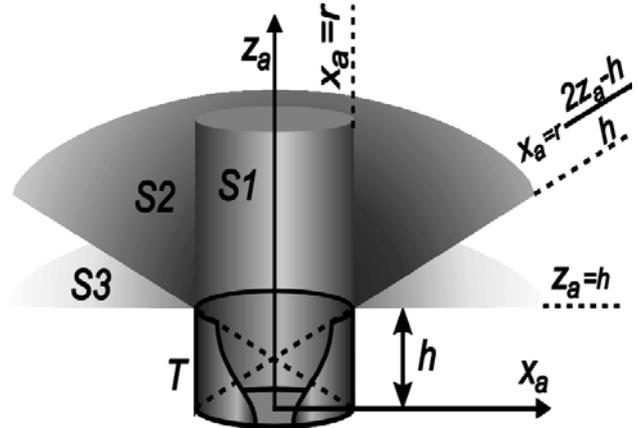


Рис. 3. Разделение зависимости массопереноса в пространстве конденсации

Необходимо учесть, что:

1. При $x_a < r$ окружность (2) и тигель не пересекаются и решение (3) отсутствует. Вместо (5) необходимо использовать выражение:

$$s_{K1} = 2 \frac{M}{A_e \pi \rho} \int_{-r}^r \int_0^{\sqrt{r^2 - x^2}} \frac{z_a^2}{[(x_a - x)^2 + y^2 + z_a^2]^2} dy dx \quad (6)$$

При $0 \leq x_a \leq r$ массоперенос осуществляется со всего испаряющего круга (область $S1$ ограничена цилиндром на рис. 3). При $x_a = r$ справедливо $x_1 = x_0 = r$. При этом второй интеграл в (5) обращается в ноль.

2. При $x_a \geq r$ массоперенос определяется выражением (5).

3. При $x_a \geq r \frac{2z_a - h}{h}$ (пространство ниже конуса на рис. 4) всё испарённое со дна тигля вещество перехватывается стенками и необходимо принять $s_{K3} = 0$.

1.2. Граничные условия при массопереносе со стенок тигля

В цилиндрических координатах интегрирование проще ввиду осевой симметрии системы.

С учетом ограничения $y_a = 0$ и парности функции интеграл в цилиндрических координатах, определяющий массоперенос со стенок, примет вид:

$$s_C = \frac{2M}{A_e \pi r} \times \int_{z_1}^h \int_0^\pi \frac{(z_a - z)(r^2 - x_a r \cos \alpha)}{[(x_a - r \cos \alpha)^2 + r^2 \sin^2 \alpha + (z_a - z)^2]^2} d\alpha dz \quad (7)$$

где z_1 - аппликата нижней точки E_2 линии пересечения конуса испарения и цилиндра стенки тигля (рис. 4).

Пределами интегрирования является две линии пересечения конуса (1) и цилиндра стенок тигля, которые образуют эллипс и окруж

ность, совпадающую с краем тигля. На рис. 4,б показан вид этого сечений в плоскости xOz . Линия E_1E_2 является большой полуосью эллипса пересечения и поскольку эллипс плоский (особенность сечения поверхностей с общей направляющей) E_1E_2 совпадает с проекцией эллипса на плоскость xOz .

Уравнение прямой E_1E_2 , построенное по координатам точек E_1 и E_2 (рис. 5), есть так же уравнением плоскости параллельной оси Ox :

$$x = \frac{(z-h)(x_a^2 - r^2)}{2x_a(z_a - h)} + r - \frac{r(x_a - r)}{x_a} \quad (8)$$

На пересечении плоскости (8) и цилиндра тигля образуется линия эллипса:

$$\begin{cases} x = \frac{z(x_a^2 - r^2) - hx_a^2 - hr^2 + 2r^2z_a}{2x_a(z_a - h)} \\ y = \pm \sqrt{r^2 - x^2} \end{cases} \quad (9)$$

В цилиндрических координатах эллипс можно выразить одним уравнением, зависимостью угла α_t от аппликаты z_t :

$$\begin{aligned} \alpha_t &= \arccos \frac{x}{r} = \\ &= \arccos \frac{(z_t - h)(x_a^2 - r^2) + 2r^2(z_a - h)}{2rx_a(z_a - h)} \end{aligned} \quad (10)$$

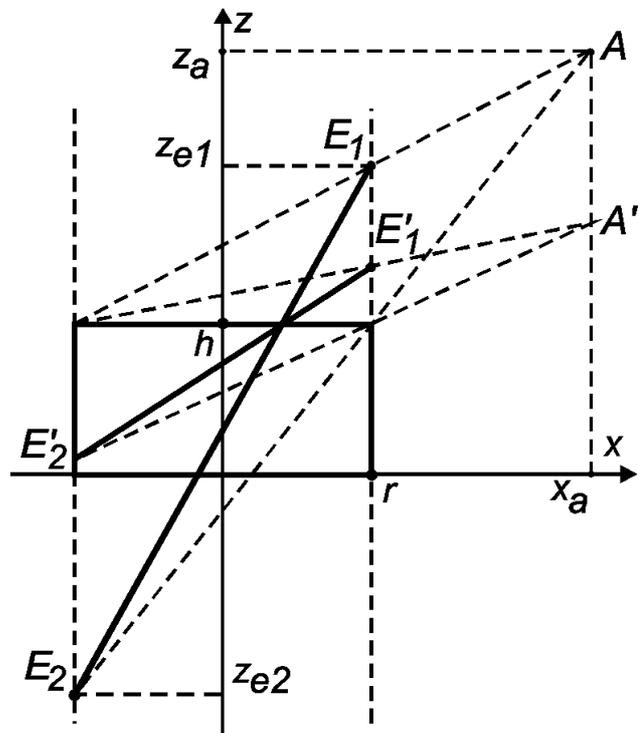
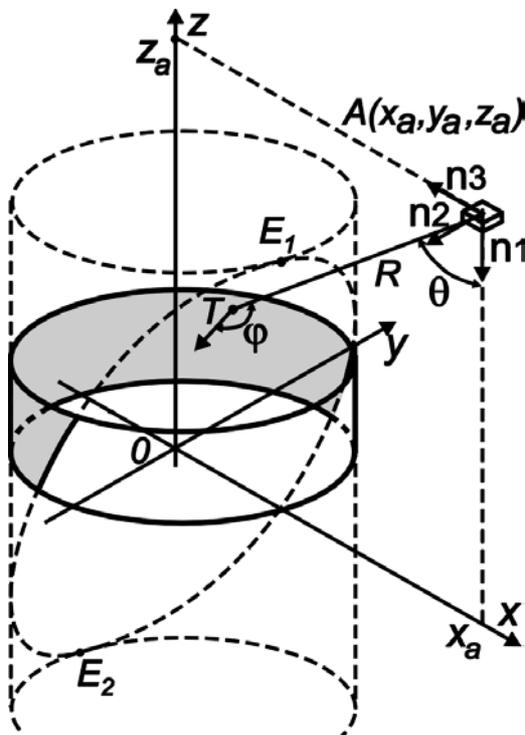


Рис. 4. Линии пересечения конуса конденсации с цилиндром тигля: а – аксонометрия; б – сечение в плоскости xOz

$$\text{Причём } \alpha_t = \arctg \frac{x}{y} = \arctn \frac{x}{\sqrt{r^2 - x^2}}.$$

Учтём, что $z_t \leq h$, и при $x_a > r$ аппликата точки конденсации $z_a > h$. При $x_a \leq r$ аппликата точки конденсации ограничена условием $0 \leq z_a \leq \infty$. В этой задаче также наблюдается разделение области существования функции массопереноса на три участка:

1. При $x_a \leq r$ вся стенка тигля испаряет в т.А и пределы интегрирования составят по полярному углу α от 0 до π , по аппликате z от 0 до h .

$$s_{C1} = 2 \frac{M}{A_e \pi r} \times \int_0^h \int_0^\pi \frac{r(z_a - z)(r - x_a \cos \alpha)}{[x_a^2 + r^2 - 2rx_a \cos \alpha + (z_a - z)^2]^2} d\alpha dz. \quad (11)$$

2. При $r < x_a < r \frac{2z_a - h}{h}$ массоперенос происходит в область s_2 (рис. 3). Нижняя вершина эллипса E_1 расположена ниже испаряющих поверхностей и при $z = 0$ углы составят $\alpha_{t1} = -\alpha_{t2} < \pi$. Испаряющая поверхности состоит из двух участков: с пределами по z от 0 до h и от линии эллипса до h .

Пределы интегрирования по полярному углу α от α_t до π .

Массоперенос можно определить как разницу двух интегралов:

$$s_{C2} = 2 \frac{M}{A_e \pi r} \times \left(\int_{z_{E2}}^h \int_{\alpha_t}^\pi \frac{r(z_a - z)(r - x_a \cos \alpha)}{[x_a^2 + r^2 - 2rx_a \cos \alpha + (z_a - z)^2]^2} d\alpha dz - \int_{z_{E2}}^0 \int_{\alpha_t}^\pi \frac{r(z_a - z)(r - x_a \cos \alpha)}{[x_a^2 + r^2 - 2rx_a \cos \alpha + (z_a - z)^2]^2} d\alpha dz \right), \quad (12)$$

где $z_{E2} = \frac{(x_a + r)h - 2z_a r}{x_a - r}$ - аппликата нижней вершины эллипса пересечения.

3. При $x_a = r \frac{2z_a - h}{h}$ справедливо $\alpha_1 = \alpha_2 = \pi$ и нижняя вершина эллипса смещается в т. $T(-r, 0, 0)$. Пределы интегрирования для $x_a \geq r \frac{2z_a - h}{h}$ (область s_3 на рис. 4) составят по полярному углу α от α_t до π , по аппликате z от z_{E2} до h . Массоперенос определяется выражением:

$$s_{C3} = 2 \frac{M}{A_e \pi r} \times \int_{z_{E2}}^h \int_{\alpha_t}^\pi \frac{r(z_a - z)(r - x_a \cos \alpha)}{[x_a^2 + r^2 - 2rx_a \cos \alpha + (z_a - z)^2]^2} d\alpha dz. \quad (13)$$

2. Паровой поток при испарении из тигельного источника

По пространственному распределению парового потока легко установить скорость роста пленки и распределение её толщины по подложке в зависимости от расстояния до тигельного источника, положения подложки и вида ее движения.

Отдельное рассмотрение составляющих парового потока, испаренных с поверхности расплава и со стенок тигля позволяет исследовать влияние физических факторов на параметры потока. В реальных системах [3] возможен перегрев или охлаждение края тигля относительно расплава навески. Вещества различаются смачиваемостью поверхности тигля. По мере испарения навески изменяется высота стенок тигля, что влияет на направленность потока.

2.1. Распределение парового потока вдоль при испарении с горизонтальной поверхности тигельного источника

В результате интегрирования выражения (6) (для области s_1 рис. 3) получено распределение вертикальной составляющей парового потока вещества, испаренного с поверхности расплава навески:

$$s_{K1} = A \cdot \frac{\pi \cdot z_a^2}{2} \left(\frac{1}{2a} \left(\frac{r^2 + a - 1}{\sqrt{(a+1)^2 + 2(a-1)r^2 + r^4}} - \frac{a-1}{(a+1)} \right) + \frac{1}{\sqrt{a}} \left(\arctg \frac{r^2 + a - 1}{2\sqrt{a}} - \arctg \frac{a-1}{2\sqrt{a}} \right) \right), \quad (14)$$

где $A = \frac{M}{A_e \pi r_c}$, $a = x_a^2 + y_a^2 + z_a^2 - 1$.

Коэффициент A характеризует скорость испарения вещества по толщине и зависит от температуры и вида вещества. При анализе результата было принято $A = 1$. На рис. 5 представлены графики, построенные по распределению (14) при $y_a = 0$.

Геометрические параметры испарителя выражены в единицах радиуса тигля.

Форма кривых на графиках рис. 5 прямо отражает распределение относительной толщины пленки и скорость её роста на неподвижной подложке при испарении с плоского диска.

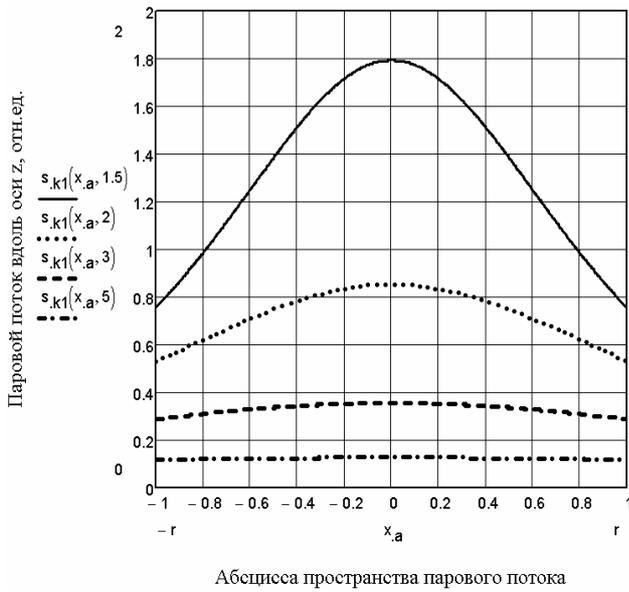


Рис. 5. Распределение вертикальной составляющей парового потока, испаренного с поверхности расплава при различном расстоянии от источника z_a : сплошная - 1,5; пунктирная - 2; штриховая - 3; штрих-пунктирная - 5

2.2. Распределение парового потока вдоль оси z при испарении со стенок тигельного источника

В результате интегрирования выражения (11) (для области s 1 рис. 3) получено распределение вертикальной составляющей парового потока, испаренного с цилиндрической стенки тигля:

$$s_2^1 = -\pi r^2 \times \left(\frac{(r^2 - x_a^2)b_1 - 2a_1 + (2r^2 - 2x_a^2 - b_1)(z_a - h)^2}{(4a_1 - b_1^2)\sqrt{a_1 + b_1(z_a - h)^2 + (z_a - h)^4}} - \frac{(r^2 - x_a^2)(b_1 + 2z_a^2) - 2a_1 - b_1z_a^2}{(4a_1 - b_1^2)\sqrt{a_1 + b_1z_a^2 + z_a^4}} \right) \quad (15)$$

где $a = (x_a^2 + y_a^2 - r^2)^2$, $b = 2(x_a^2 + y_a^2 + r^2)$.

Параметр A имеет тот же смысл, что и в выражении (14). Распределение (15) обладает теми же свойствами, что и (14), с той разницей, что образовано испарением со стенок. Графики распределения (15) для различных расстояний до плоскости z_a при $y_a = 0$ приведены на рис. 6.

На рис. 7 представлено то же распределение в зависимости от высоты стенок тигля h над поверхностью расплава в плоскости $z_a = 2$.

Все графики (рис. 5 - рис. 8) правильно отражают влияние геометрических параметров на распределение потока, что подтверждает сохранение физической сути распределения.

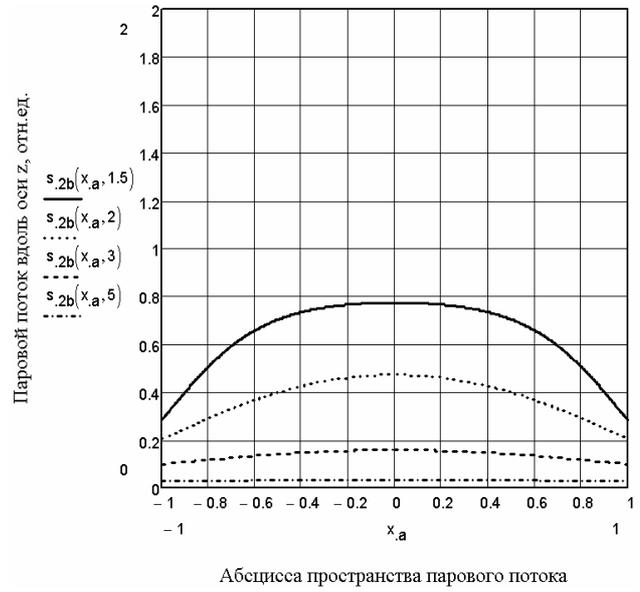


Рис. 6. Распределение вертикальной составляющей парового потока, испаренного со стенок тигля при различном расстоянии от источника z_a : сплошная - 1,5; пунктирная - 2; штриховая - 3; штрих-пунктирная - 5

На рис. 8 представлены графики распределения вертикальной составляющей молекулярного потока из тигля. По сути, кривые отражают распределение толщины пленки на поверхности неподвижной или вращающейся вокруг оси тигля подложки. Так же кривые отражают интенсивность потока и скорость роста пленки на подложке.

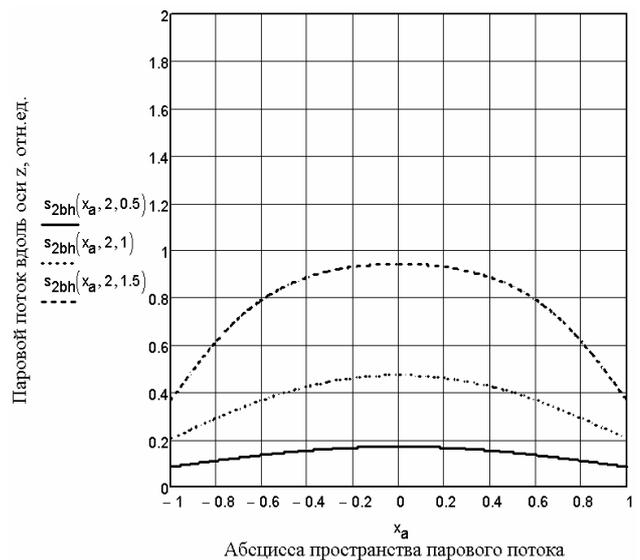


Рис. 7. Распределение вертикальной составляющей парового потока, испаренного со стенок тигля при различной высоте стенок тигля h над поверхностью расплава: сплошная - 0,5; пунктирная - 1; штриховая - 1,5

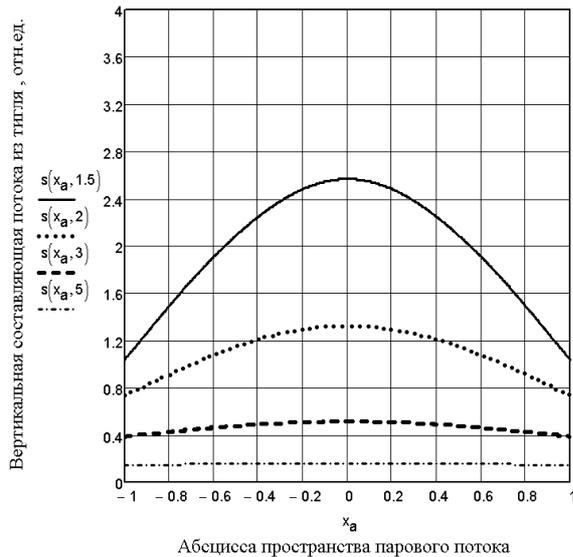


Рис. 8. Распределение вертикальной составляющей парового потока, испаренного из тигля при различном расстоянии от источника Z_a : сплошная - 1,5; пунктирная - 2; штриховая - 3; штрихпунктирная - 5

Выводы

Для определения количества переносимого вещества и энергетического влияния на механизм осаждения пленок определены распределения составляющих паровых потоков, испаренных с поверхности расплава и боковых стенок тигля, смоченных расплавленным веществом, с учётом затеняющего действия стенок тигля. Получены аналитические выражения, определяющие границы испаряющих поверхностей для дна и стенок тигля. Пространственные распределения паровых потоков позволяют определить толщину осаждаемых пленок на поверхности подложек с различными видами перемещения относительно тигля (прямолиней-

ное и вращательное движение в плоскости, перпендикулярно оси тигля; вращение вокруг оси, перпендикулярной оси тигля).

Полученные результаты предполагается использовать для моделирования массопереноса на подложки со сложным профилем (ступеньками и канавками с большим аспектным соотношением), получения наноразмерных структур, а также с другими конструкциями испарителей.

Основную сложность в определении аналитических выражений составляет как громоздкость интегральных преобразований, так и неоднозначность получаемых результатов, достоверность которых приходится обосновывать косвенными методами (чаще графически) и дополнительными физическими условиями.

Характерно, что не только вне тигля (см. рис. 3) распределение парового потока описывается различными зависимостями в разных областях пространства, но и внутри тигля распределение потока разделяется на две дополнительные области. На границах потока происходит изменение тенденций, т.е. дифференциальных пространственных и энергетических характеристик.

Литература

1. Воронов С.А., Цыбульский Л.Ю. Использование пучков нейтральных атомов в нанотехнологиях. Часть 2. Атомная литография. // Электроника и связь. Тематический выпуск "Проблемы электроники", Киев, 2007, ч.3, с. 13-18.
2. Кузьмичёв А.И., Цыбульский Л.Ю. Моделирование осаждения пленок при термовакуумном испарении из тигля // Электроника и связь. 2009. Часть 2. с 78-82.
3. Smith D.L. Thin-Film Deposition: Principles and Practice. Singapore: McGraw-Hill Co. 1997.— 616 p.