УДК 621.373.826

ОСОБЛИВОСТІ НАПИЛЕННЯ ПЛІВОК КОМПОНЕНТАМИ ПЛАЗМИ, СТВОРЕНОЇ НАНОСЕКУНДНИМИ ЛАЗЕРНИМИ ІМПУЛЬСАМИ

І. І. ОПАЧКО, Ю. Ю. ЖИГУЦ, М. В. ОПАЧКО

ДВНЗ "Ужгородський національний університет"

Розроблено спосіб формування періодичних структур під час опромінення цугом лазерних імпульсів, який забезпечує якісні гетерогенні і субґраткові структури за дотримання встановлених умов.

Ключові слова: *цуги, лазерні імпульси, мішень, фаза, напилення, періодичні структури.*

The method of the formation of periodic structures under irradiation by a train of laser pulses, which ensures the production of qualitative heterogeneous and sublattice structures provided that the conditions established in the work are observed, has been developed

Keywords: *pulse group, laser pulses, target, phase, sputtering, periodic structures.*

Вступ. Створення в 1962 р. лазера з модульованою добротністю [1, 2], який генерував відтворювані гігантські імпульси тривалістю 10...40 ns, підштовхнуло до вивчення взаємодії лазерного випромінювання з різними об'єктами. Зокрема, до дослідження параметрів лазерної плазми, які нелінійно залежать від густини потужності лазерних променів. Крім цього, ідея розігрівання речовини до термоядерних температур за допомогою лазерного випромінювання [3] стимулювала вивчення плазми, яка утворюється під час опромінення конденсованих речовин потоками високоінтенсивних променів (~ 10^{12} W/cm^2) [3–5].

Тому досліджень про емісійні процеси за цих густин потужності небагато, хоча результати дії лазерного випромінювання з густиною потужності 10^8... 10^{10} W/cm^2 на поверхню вже застосовують у напівпровідниковій технології, під час оброблення металів і скла, в мас-спектрометрії, лазерному напиленні плівок [6]. Можливості лазерної мас-спектрометрії для вивчення структури поверхні твердого тіла ще повністю не розкриті. До того ж через високу частоту проходження імпульсів лазера на парах міді зміцнюється характер іонної емісії, що необхідно детально вивчити.

Аналіз останніх досліджень. Для оптимізації напилення плівок необхідна інформація про основні параметри пари, що конденсується на підкладку. Дослідники зосереджували увагу на властивостях плівок, отриманих розпиленням мішені наносекундними лазерними імпульсами, а характеристики цієї фази практично не вивчали. Мас-спектрометричними та зондовими методами вдається визначити низку важливих параметрів конденсації, оптимізувати процес осадження, зрозуміти фізику випаровування складних мішеней [3–6].

Нижче розроблено спосіб формування періодичних структур під час опромінення цугом лазерних імпульсів і отримано якісні гетерогенні та надґраткові структури.

У сучасній мікроелектроніці важливе місце займають методи формування періодичних тонкоплівкових структур, засновані на рідкофазній, газофазній, мо-

Контактна особа: Ю. Ю. ЖИГУЦ, e-mail: yuzhiguts@gmail.com

лекулярно-пучковій епітаксії. Використовуючи сучасну лазерну техніку, можна сформувати періодичні структури (дзеркала м'якого рентгенівського діапазону) під час багатоетапного лазерного осадження плівок зі швидкістю 5...10 Å/imp. Оскільки такі структури утворюються за тривалий час, вакуум у робочих установках необхідно підтримувати в межах $p \le 10^{-9}...10^{-10}$ Torr. Щоб поліпшити технологічність процесу, послабити вимоги до вакуумних умов, пропонуємо спосіб утворення таких періодичних структур за допомогою цугу лазерних імпульсів, який можна реалізувати, забезпечуючи ідентичні умови вибухового випаровування в матеріалі імпульсами у цузі та почергове надходження пари на підкладку.

Теоретичні та експериментальні дослідження. Відомо [7], що під час напилення плівок лазерами з модуляцією добротності суттєво знижується температура епітаксії. При цьому параметри пари поблизу підкладки досягають екстремальних значень, що проявляється у високих густинах, напірних тисках, швидкостях конденсації та імпульсах. У результаті зростає енерговнесок осаджуваних компонентів у підкладку. За певних умов напилення наносекундними лазерними імпульсами отримувані плівки можуть ревипаровуватись, конденсуватися через рідку фазу тощо. Характерний час енерговнеску в підкладку становить $\tau \approx 10^{-5}... 10^{-6}$ s, а його ефект еквівалентний її нагріву мікросекундним лазерним імпульсом. В цьому випадку можна скористатися методикою розрахунку кінетики випаровування матеріалу під дією лазерного випромінювання.

Аналіз виконували під час випаровування мішені наносекундними лазерними імпульсами в діапазоні густин потужності $10^6...10^{10}$ W/cm^2 [8], характерною особливістю якого є діаграма направленості розлітання компонентів з тілесним кутом $\Omega = I$ sr і високим коефіцієнтом трансформації (η) енергії лазера (E_0) в кінетичну енергію випарених часток $\eta \approx 0{,}7$. Густину потоку енергії часток, конденсованих на відстані L від мішені, можна подати у вигляді

$$Q = \frac{\eta \cdot E_0}{\Omega \cdot L^2 \cdot \tau} = 0{,}7 \frac{E_0}{\Omega \cdot L^2 \cdot \tau}, \tag{1}$$

де τ – час їх осадження.

Використовуючи відомі результати [9], знайшли час осадження та густину потоку енергії частинок:

$$\tau = L\sqrt{\frac{m}{2}}\left[\frac{1}{\sqrt{E_{\min}}} - \frac{1}{\sqrt{E_{\max}}}\right], \tag{2}$$

$$Q(L) = \frac{0{,}7E_0}{L^3\sqrt{\frac{m}{2}}\left[\frac{1}{\sqrt{E_{\min}}} - \frac{1}{\sqrt{E_{\max}}}\right]} \sim \frac{1}{L^3}, \tag{3}$$

де $E_{\min}$, $E_{\max}$ – мінімальна та максимальна енергія компонентів лазерної плазми з масами молекул m.

Оскільки параметр Q суттєво залежить від значення L, то конденсація плівок залежатиме від відстані мішень–підкладка. Тому необхідно виявити закономірності конденсації на різних відстанях і визначити характерні з них, які відповідають тому чи іншому механізму.

Початок інтенсивного ревипаровування відповідає умові [8]

$$Q = \lambda_1 \cdot \rho\sqrt{\frac{\sigma}{\tau}}, \tag{4}$$

де λ_1 – питома теплота випаровування; ρ – густина конденсату; σ – коефіцієнт

температуропровідності; $\sqrt{\sigma/\tau}$ – швидкість теплової хвилі.

Використовуючи вирази (1)–(3), визначили відстань мішень–підкладка, яка відповідає початку інтенсивного ревипаровування конденсату

$$L_1 = \left[\frac{E_0^2}{2\lambda_1^2 \rho^2 \sigma \sqrt{\frac{m}{2}} \left(\frac{1}{\sqrt{E_{\min}}} - \frac{1}{\sqrt{E_{\max}}} \right)} \right]^{1/5}, \quad (5)$$

і початку його плавлення

$$L_2 = \left[\frac{E_0^2}{2\lambda_0^2 \rho^2 \sigma \sqrt{\frac{m}{2}} \left(\frac{1}{\sqrt{E_{\min}}} - \frac{1}{\sqrt{E_{\max}}} \right)} \right]^{1/5}, \quad (6)$$

де λ_0 – питома теплота плавлення,

$$L_2 = L_1 \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_0} \right)^{2/5} >> L_1 . \quad (7)$$

За густини потужності потоку енергії часток, що задовольняє рівняння (4),

$$V_1 \approx \frac{Q}{\rho \lambda_1} \sim \frac{1}{L^3}, \quad (8)$$

де V_1 – швидкість ревипаровування конденсату; V_2 – швидкість надходження пари на підкладку. Якщо $L \le L_1$, то коефіцієнт ревипаровування $\beta = V_2 / V_1$ не залежить від відстані L.

Потужність потоку часток $\frac{dN}{dt}$ (dN – кількість часток за одиницю часу dt) на підкладці [10]

$$P = E_0 \frac{dN}{dt} = \frac{-2\sqrt{2} E_0^{5/2}}{L\sqrt{m}} \frac{dN}{dE}, \quad (9)$$

де E – енергія лазерного імпульсу [10], і

$$\frac{dN}{dt} = \frac{-2\sqrt{2} E_0^{3/2}}{L\sqrt{m}} \frac{dN}{dE}. \quad (10)$$

З урахуванням цього для “однопікового” енергетичного розподілу [11] коефіцієнт ревипаровування,

$$\beta = \frac{\int_0^\infty P(t)dt}{m\lambda_0 \int_0^\infty \frac{dN}{dt} dt} = \frac{1}{m\lambda_0} \frac{\int_0^\infty E^{5/2} \frac{dN}{dE} dE}{\int_0^\infty E^{3/2} \frac{dN}{dE} dE} \approx \frac{E_0}{m\lambda_0}. \quad (11)$$

Якщо $L_1 < L < L_2$, то

$$\beta = V_1 \frac{\tau}{\Delta h}, \tag{12}$$

$$\Delta h = 0,7E \frac{m}{E_0 L^2} \rho, \tag{13}$$

де Δh – товщина осадженого за імпульс шару без урахування випаровування.

Швидкість надходження пари на підкладку [12]

$$V_2 = c\left(\frac{3}{4\pi}\right)^{1/3} \exp\left(-\frac{\lambda_2 m}{kT}\right), \tag{14}$$

де c – місцева швидкість звуку.

Починаючи зі значення $L > L_1$, згідно з (14) коефіцієнт β експоненціально зменшується і при $L \geq 1,3L_1$ становить ≈ 0, тобто конденсат практично не ревипаровується. Зауважимо, що в області $L \approx L_1$ можливий аналітичний перехід від виразу (11) до (12), що забезпечує неперервний хід кривої $\beta = \beta(L)$. Починаючи зі значення $L \geq 1,3L_1$, товщина осаджуваного за імпульс шару $\Delta h \sim 1/L^2$, що дає змогу експериментально перевірити відсутність ревипаровування. Швидкість надходження компонентів плазми на підкладку все ще вище, ніж їх дифузійного розсмоктування, що відповідає чергуванню полікристалів і монокристалічних вкраплень у плівці [9]. Якщо $L \geq L_2$, знижується температура епітаксії плівок внаслідок енерговиділення на поверхні під час їх осадження. При цьому відбуваються процеси, аналогічні лазерному відпалюванню [13], оскільки питомий енерговнесок приблизно однаковий.

Проаналізуємо процеси, що відбуваються за умови $L < L_1$. Особливо зацікавлює випадок, коли

$$\frac{\Delta h}{\tau} > \sqrt{\frac{\sigma}{\tau}}, \tag{15}$$

тобто, коли швидкість осадження перевищує швидкість теплової хвилі. Цій ситуації відповідає умова [14]

$$L \leq L_0 = \left[\frac{E^2 m^{3/2}}{3\rho^2 \sigma \cdot E_{med}\left(\frac{1}{\sqrt{E_{\min}}} - \frac{1}{\sqrt{E_{\max}}}\right)}\right]^{1/5} \approx L_1\left[\frac{\lambda_0 \cdot m}{E_{med}}\right]^{1/5} < L, \tag{16}$$

де E_{med} – середня енергія компонентів плазми.

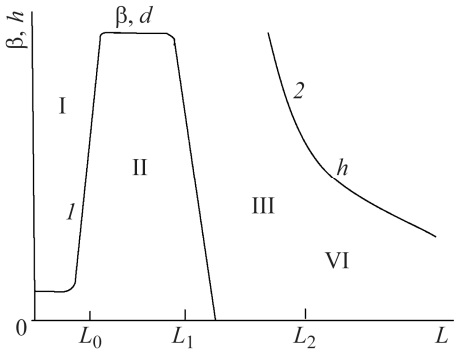
Оцінимо характер зміни параметра β при $L_0 < L < L_1$. Вираз (11) справедливий для значень, наближених до $L \leq L_1$. Якщо $L \approx L_0$, значення β можна опосередковано оцінити з умови незначного зростання швидкостей V_2 в діапазоні $L_0 \leq L < L_1$ і швидкості конденсації $V_1 = \Delta h / \tau \sim 1/L^3$ за кубічною залежністю.

Тоді (див. рисунок)

$$\beta_{L=L_0} = \frac{V_2}{V_1} \sim L^3 = \frac{\beta_{L=L_1}}{L_1^3} L_0^3 = \frac{E_{med}}{m\lambda_0}\left(\frac{m\lambda_0}{E_{med}}\right)^{6/5} = \left(\frac{m\lambda_0}{E_{med}}\right)^{1/5} \approx 1. \tag{17}$$

Значення $\beta \approx 1$ при $L = L_0$ відповідає ревипаровуванню з ефективною теплотою випаровування $\lambda_0 = E_{med} / m$, що свідчить про відсутність теплообміну між конденсатом та підкладкою і відбиття пари від підкладки. Таким чином, залежно від параметра L можна виокремити зони (див. рисунок), що відповідають відбиванню (I), ефективному ревипаровуванню (II), плавленню (III) та пониженню температури епітаксії (IV).

Залежність коефіцієнта ревипаровування плівок β (*1*) та товщини *h* осадженого за імпульсу шару (*2*) від відстані мішень–підкладка *L*; I–IV – зони досягнення максимального значення коефіцієнта β, стабільного значення (тобто ревипаровування), стрімкого зниження та зменшення товщини осадженого шару залежно від *L*, де *d* – кількість осаджених молекул за імпульс.



Dependence of the coefficient of re-evaporation of films β (*1*) and the thickness *h* of the layer deposited by the pulse (*2*) depending on the distance of the target-substrate *L*; I–IV the zones of maximum value of the coefficient β, stable value (that is, the re-evaporation), rapid decrease and decrease of the thickness of the deposited layer depending on *L*, where *d* is the number of deposited molecules per pulse.

Аналітичні розрахунки і експериментальні результати підтверджено під час напилення шаруватих структур періодичним лазерними імпульсами. Характерні значення L_0, L_1, L_2 для типових умов розпилення кремнієвої мішені E_0 = 3 J, $Q = 10^9$ W/cm^2 (E_{min} = 10; E_{max} = 200 eV) для L_0 = 0,24; L_1 = 0,84; L_2 = 2 cm [14]. За всіх режимів напилення для d < 6...7 Å/imp (L > 7...8 cm) параметри середнього порядку в одержаних плівках осцилюють із зміною кута надходження пари на підкладку. Найоптимальнішим для "вибухового" механізму випаровування і збереження хімічного складу є режим випаровування наносекундними імпульсами з $Q = (1...5)\cdot 10^8$ W/cm^2, а також напилення цугом ≈ 10 імпульсів субмікросекундної тривалості.

ВИСНОВКИ

За густин потоку лазерного випромінювання $10^8...10^{10}$ W/cm^2 та імпульсного й імпульсно-періодичного опромінення мішені діє "вибуховий" характер випаровування з діаграмою направленості ~ 1 sr. З підвищенням імпульсної густини потоку випромінювання до 10^{10} W/cm^2 в мішені виникають ударна і теплова хвилі, що зумовлює додатковий викид речовини в післяімпульсний період. Внаслідок енерговнеску компонентів лазерної плазми може знизитись температура епітаксії, відбуватися ревипаровування та відбивання плазми. Під час опромінення мішені цугом перші 10–15 імпульсів викликають "вибухове" випаровування, до якого додається термічний потік, викликаний подальшими імпульсами в цузі.

1. *Mc. Clung F. G. and Hellward R. W.* Giant optical pulsations from ruby // J. Appl. Phys. – 1962. – **33**. – P. 828–830.
2. *Басов Н. Г., Крохин О. Н.* Условия разогрева плазмы излучением оптического генератора // Журн. эксперимент. и теорет. физики. – 1964. – **46**, вып. 1. – С. 171–174.
3. *Попов В. К.* Мощные эксимерные лазеры и новые источники когерентного излучения в вакуумном ультрафиолете // Успехи физ. наук. – 1985. – **147**, вып. 3. – С. 587–604.
4. *Имплантация* в кремний излучением мощного Kr–F лазера / В. Л. Канцырев, Н. В. Морозов, Б. А. Ольшвангер, П. Б. Сергеев, М. А. Тюнина // Письма в журн. техн. физики. – 1991. – **17**, вып. 2. – С. 56–61.
5. *Земсков К. И., Казарян М. А., Петраш Г. Г.* Усилители яркости изображений в оптических системах // Тр. Физич. ин-та им. П. Н. Лебедева Российской академии наук. – 1991. – **206**. – С. 1–62.
6. *Hutt K. W. and Wallach E. R.* Laser initiated electron avalanches observed in a laser microprobe mass spectrometer // J. Appl. Phys. – 1989. – № 66 (5). – P. 127–130.

7. *Ориентированная* кристаллизация тонких пленок, полученных с помощью лазера / Ю. А. Быковский, А. Г. Дудоладов, В. П. Козленков, П. А. Леонтьев // Письма в журн. техн. физики. – 1974. – № 20. – С. 304–306.
8. *Опачко И. И.* Особенности конденсации пленок компонентами плазмы, созданной наносекундными лазерными импульсами // Журн. техн. физики. – 1981. – **51**, вып. 2. – С. 439–442.
9. *Особенности* получения пленок сложного соединения с помощью гигантских лазерных импульсов / И. И. Опачко, О. В. Лукша, И. П. Запесочный, С. С. Поп, Ю. Ю. Фирцак // Україн. фіз. журн. – 1977. – **22**, № 4. – С. 659–663.
10. *Опачко И. И.* Особенности использования лазерной плазмы в физических экспериментах // Україн. фіз. журн. – 1979. – **24**, № 6. – С. 766–773.
11. *Зельдович Я. Б., Райзер Ю. П.* Физика ударных волн и высокотемпературных явлений. – М.: Наука, 1966. – 686 с.
12. *Коновалова Л. С., Загромов Ю. А.* Основы теплотехники. Техническая термодинамика. – Томск: Изд. ТПУ, 2000. – 116 с.
13. *Вобицкий Я. В., Осередько С. А.* Приближенный расчет динамики рядовых превращений при лазерном облучении полупроводников // Материалы VI конф. по процессам роста и синтеза полупроводниковых кристаллов и пленок. – Новосибирск, 1982. – **1**. – С. 12–13.
14. *Жигуц Ю. Ю., Опачко І. І.* Особливості ефективного напилення шаруватих структур періодичним лазерними імпульсами // Міжвуз. зб. Луцьк. нац. техн. ун-ту "Наукові нотатки". – 2017. – № 59. – С. 112–118.

Одержано 29.12.2020