

ВЛИЯНИЕ ПАРАМЕТРОВ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ОБРАЗОВАНИЕ МЕТАЛЛИЧЕСКОГО МИКРООСАДКА ПРИ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОМ ПИРОЛИЗЕ ИЗ ПАРОВОЙ ФАЗЫ

И.Г. Величко, А.В. Недоля, И.Н. Титов

Запорожский национальный университет

Украина

Поступила в редакцию 06.10.2011

Предложена математическая модель, учитывающая влияние лазерного излучения на распределение температуры и формирование осадка тугоплавкого металла на диэлектрическую подложку при лазерно-индуцированном пиролизе из паровой фазы. Модель учитывает параметры лазерного излучения для получения поверхностных структур с наперед заданными размерами и формой.

Ключевые слова: лазерный пиролиз, осадок, параметры лазерного излучения, моделирование.

Запропонована математична модель, яка враховує вплив лазерного випромінювання на розподіл температури і формування осаду тугоплавкого металу на діелектричну підкладку при лазерно-індукованому піролізі з парової фази. Модель враховує параметри лазерного випромінювання для отримання поверхневих структур з наперед установленими розмірами і формою.

Ключові слова: лазерний піроліз, осад, параметри лазерного випромінювання, моделювання.

The mathematical model, which considers the effect of the laser radiation on the temperature distribution and shaping of sediment of refractory metal on dielectric substrate by pyrolysis LCVD is proposed. The model takes into account the parameters of laser radiation for obtaining surface structures with predetermined size and shape.

Keywords: laser pyrolysis, sediment, parameters of laser radiation simulation.

ВВЕДЕНИЕ

Использование на протяжении трех десятилетий лазерного излучения в методе химического осаждения из газовой фазы (CVD) позволило не только получать наноразмерные порошки, но и микро- и наноструктуры, а также локальные покрытия и пленки [1 – 3]. Лазерно-индуцированное осаждение (LCVD) активно используется для изготовления микроэлектромеханических систем (МЭМС) и в микроэлектронике, а также для “печатания” 3D структур [4 – 5]. Особое место среди LCVD методов занимает метод лазерного пиролиза, который сочетает локальное температурное воздействие на подложку и осаждаемый материал с возможностью получения структур с плотностью, близкой к исходному материалу [6]. Это позволяет эффективно использовать лазерный пиролиз для металлизации поверхности тугоплавкими металлами, включая вольфрам [7 – 9]. Однако, развитие LCVD технологий сдерживается в связи со сложностью и нелинейностью тепловых процессов, которые имеют место при осаждения материала на подложку и влиянием на них

параметров лазерного излучения, что приводит к формированию микро- и наноструктур со сложной поверхностью и нечеткими краями [9 – 10]. Использование математических моделей позволило бы ускорить решение этих проблем, однако, современные модели уделяют недостаточно внимания вопросу влияния параметров лазерного излучения на тепловые процессы в осадке и его формообразование [11 – 14].

Поэтому целью работы является теоретическое исследование влияния параметров непрерывного лазерного излучения на температурное распределение и формирование металлического осадка на диэлектрической подложке путем создания адекватной математической модели.

МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Математическая модель, которая более универсальная, чем предложенная ранее [15], учитывает влияние параметров лазерного излучения (плотности мощности, радиуса пучка и степени поляризации излучения) и состоит из нелинейного нестационарного уравнения теплопроводности

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

граничных условий на подложке

$$T(r, 0, t) = T_n \quad (2)$$

на боковой поверхности осадка

$$T(r, z, t) = T_0 \quad (3)$$

и на поверхности осаждающегося вещества

$$-\tilde{\lambda}(T) \frac{\partial T}{\partial \vec{n}} \vec{n} = I_0 (1 - \tilde{R}(h(r, t), r)) e^{-r^2/r_0^2} - \rho Q \frac{\partial h}{\partial t}, \quad (4)$$

где $\vec{n} = \frac{(-(\partial h/\partial z)\vec{e}_r + \vec{e}_z)}{\sqrt{1 + (\partial h/\partial r)^2}}$ – вектор нормали,

и кинетического уравнения

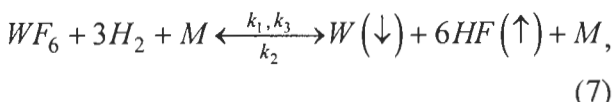
$$\frac{\partial h}{\partial t} = k_0 e^{-T_a/T} \sqrt{1 + \left(\frac{\partial h}{\partial r}\right)^2} \quad (5)$$

с начальным условием, характеризующим отсутствие осадка в начальный момент времени

$$h(0) = 0, \quad (6)$$

где: $T_0 = 300$ К – температура окружающей газовой среды; R – радиус осадка; h – толщина слоя осадка; I_0 – интенсивность лазерного излучения на оси пучка; r_0 – радиус пучка; $\tilde{\lambda}$ – коэффициент теплопроводности водорода; λ – коэффициент теплопроводности металлического осадка; \tilde{R} – коэффициент отражения лазерного излучения поверхностью осаждающегося вещества; T_n – температура подложки; T_a – температура активации; ρ и C_p – плотность и теплоемкость материала осадка; Q – удельная теплота перехода из парообразной в твердую фазу, k_0 – максимальная скорость протекания реакции осаждения.

Предложенную модель можно использовать при изучении LCVD одностадийных пиролитических реакций восстановления в атмосфере водорода галогенидов тугоплавких металлов. Примером такой реакции может служить реакция с гексафторидом вольфрама



где M – буферный газ (гелий, аргон и др.); k_1 и k_3 – константы, характеризующие ско-

рость гетерогенной и гомогенной реакции осаждения соответственно; k_2 – характеризует скорость гетерогенной реакции травления [9]. В этом случае характерные температуры активации $T_a \sim 10^4$ К и жидкая фаза не образуется. Методом интерполяции экспериментальных данных [16] были получены зависимости теплопроводности водорода и вольфрама от температуры в интервале 200 – 1000 К в виде:

$$\tilde{\lambda}(T) = \lambda_0 \frac{T}{T_0}, \quad \lambda(T) = aT + b. \quad (8)$$

Расчеты проводились для вольфрама и молибдена с учетом следующих значений параметров (табл. 1).

Значение $\lambda_0 = 0.183$ Вт/м·К.

Исходя из того, что по мере образования металлического осадка изменяются условия отражения лазерного излучения от металлической поверхности вследствие изменения его кривизны, необходимо рассчитать коэффициент отражения при $z = h$ с учетом тригонометрических функций угла отражения

$$\sin \varphi = \frac{1}{\sqrt{1 + (\partial h/\partial r)^2}}, \quad \cos \varphi = \frac{\partial h/\partial r}{\sqrt{1 + (\partial h/\partial r)^2}}, \quad (9)$$

где $\partial h/\partial r \ll 1$ – величина, характеризующая искривление поверхности осадка. Поэтому принимаем $\sin \varphi \approx 1$; $\cos \varphi \approx \partial h/\partial r$ и получим:

$$1 - R|_{z=h} = \frac{1 + n_1^2 + 2n_1n_2 - n_2^2}{\sqrt{n_1n_2}} \frac{\partial h}{\partial r}, \quad (10)$$

где n_1 и n_2 – действительная и мнимая часть комплексного показателя преломления материала осадка.

Тогда окончательно условие (4) принимает вид:

$$-\frac{\lambda_0}{T_0} T|_{z=h} \left(\frac{\partial T}{\partial z} - \frac{\partial T}{\partial r} \frac{\partial h}{\partial r} \right) \Big|_{z=h} = \left(-\rho Q \frac{\partial h}{\partial t} + I_0 \frac{1 + n_1^2 + 2n_1n_2 - n_2^2}{\sqrt{n_1n_2}} \times \exp \left(-\frac{r^2}{r_0^2} \right) \frac{\partial h}{\partial r} \right) \sqrt{1 + \left(\frac{\partial h}{\partial r} \right)^2}. \quad (11)$$

Значение параметров для расчетов

Me (MeF ₆)	T _m , К	T ₀ , К	T _a , К	k ₀ , м/с	a, Дж/К ² ·м·с	b, Дж/К·м·с	n ₁	n ₂
Mo (MoF ₆)	705	300	8.1·10 ⁻³	3798.4	-0.051	78.179	3.3	2.9
W (WF ₆)	760	300	8.1·10 ⁻³	3608.4	-0.086	197.025	3.46	3.15

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Расчеты, проведенные в рамках модели, показали, что пространственно-временные распределения температуры осадков вольфрама и молибдена имеют сложный характер, но подобны, хотя температурные условия осаждения для обоих металлов отличаются (рис. 1, 2).

На примере вольфрама из расчетных кривых следует, что под действием непрерывного лазерного излучения температура металличе-

ского осадка, который образуется на диэлектрической подложке, существенно повышается со временем на оси лазерного пучка и слабо изменяется на краю пучка (рис. 3, кривые 1 – 3).

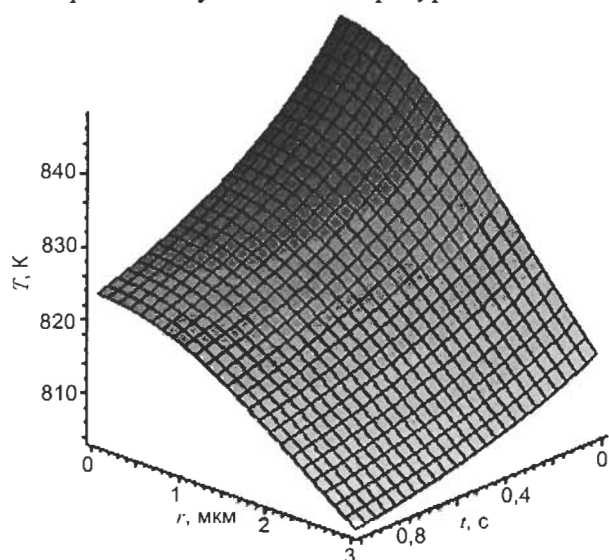


Рис. 1. Пространственно-временное распределение температуры в осадке вольфрама при $r_0 = 1$ мкм, $I_0 = 10^7$ Вт/м².

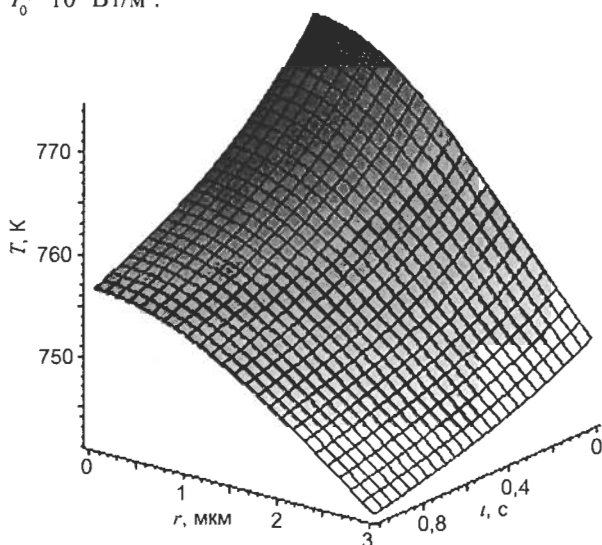


Рис. 2. Пространственно-временное распределение температуры в осадке молибдена при $r_0 = 1$ мкм, $I_0 = 10^7$ Вт/м².

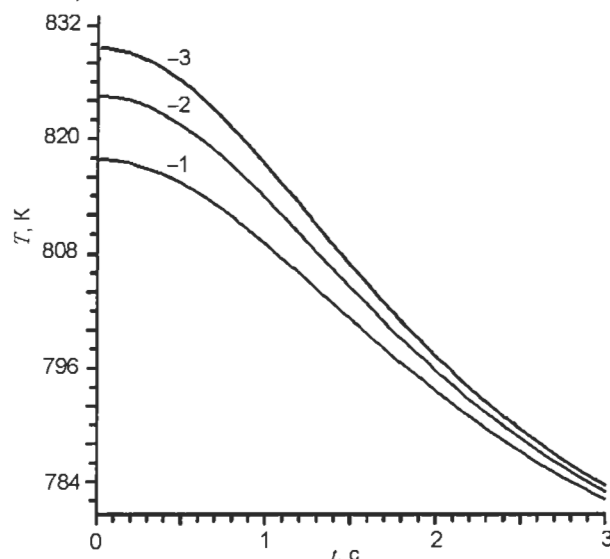


Рис. 3. Радиальное распределение температуры в осадке вольфрама в моменты времени: 1 – $t = 0.2$ с, 2 – $t = 0.6$ с, $t = 1$ с.

Это существенно влияет на изменение формы осадка со временем, делая его более крутым возле оси пучка и слабо меняющимся на границе лазерного пятна (рис. 4, кривые 1 – 3).

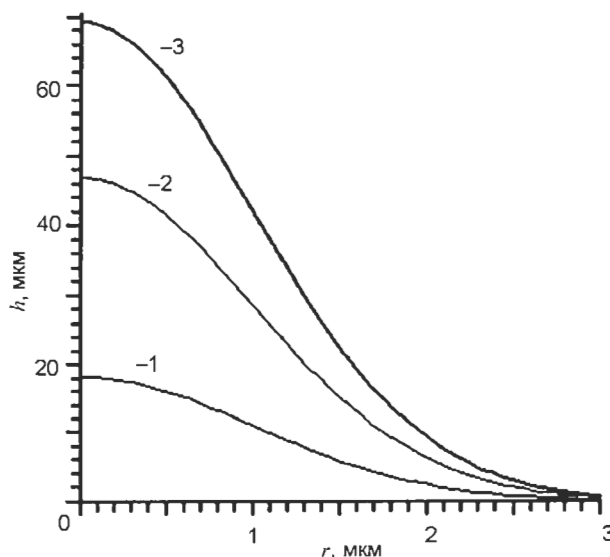


Рис. 4. Профиль осадка вольфрама в момент времени: 1 – $t = 0.2$ с, 2 – $t = 0.6$ с, $t = 1$ с.

Вследствие того что при лазерно-индуцированном осаждении из паровой фазы важным условием является стабильность процесса осаждения и обеспечение возможности регулирования формы и высоты получаемых микроструктур, исследование влияния плотности мощности лазерного излучения на процессы осаждения тугоплавкого металла имеет практический интерес. Проведенные в рамках предложенной модели расчеты показали, что изменение плотности мощности лазерного излучения существенно влияет на высоту осадка вольфрама – изменение плотности мощности с $I_0 = 10^6$ Вт/м² в 20 раз приводит к существенному росту осадка на оси пучка с 7 до 140 мкм (рис. 5, кривые 1 – 5). При этом на расстоянии от оси пучка интенсивность осаждения постепенно уменьшается и на краю пучка влияние изменения плотности мощности практически не существенно. Это позволяет получать металлические структуры заранее определенной высоты, меняя плотность мощности лазерного излучения.

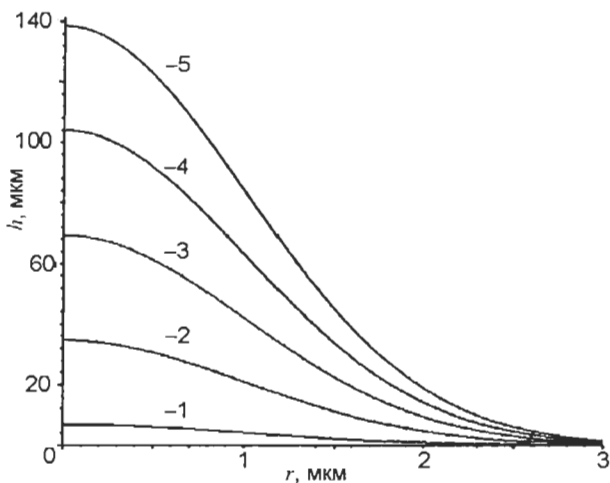


Рис. 5. Профиль осадка вольфрама при изменении плотности мощности лазерного излучения I_0 (Вт/м²): 1 – 10^6 ; 2 – $5 \cdot 10^6$; 3 – 10^7 ; 4 – $1.5 \cdot 10^7$; 5 – $2 \cdot 10^7$.

По мере роста осадка при LCVD пиролизе фокус лазерного излучения перемещается с поверхности в глубину осадка. Поэтому для поддержания стационарных условий на поверхности приходится постоянно корректировать фокус лазерного излучения, так как в противном случае изменяется размер фокального пятна лазера на поверхности осадка. Для изучения влияния степени расфокусирования лазерного излучения на процесс осаждения, в рамках модели было изучено влияние ра-

диуса пучка на размеры металлического осадка. Расчеты показывают, что, как и ожидалось, увеличение радиуса лазерного пучка приводит к увеличению радиусу осадка (рис. 6, кривые 1 – 5). При этом изменение радиуса пучка практически не влияет на высоту осадка на оси пучка, но его увеличение приводит к уменьшению крутизны. Это позволяет за счет увеличения радиуса пучка или изменения его степени расфокусирования регулировать поперечные размеры и форму получаемого металлического осадка, изменяя ее с цилиндрической до конусообразной.

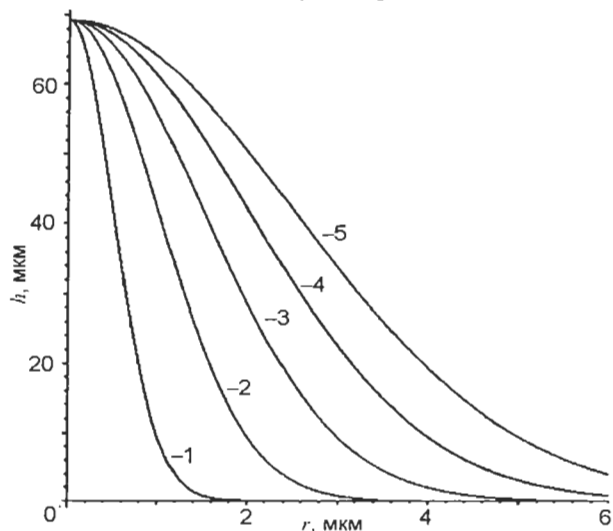


Рис. 6. Профиль осадка вольфрама при изменении радиуса лазерного пучка r_0 (мкм): 1 – 0.5; 2 – 1; 3 – 1.5; 4 – 2; 5 – 2.5.

В связи с широким применением различных устройств, позволяющих изменять профиль и поляризацию лазерного излучения, вызывает интерес исследования влияние поляризации лазерного излучения на формирование осадка при LCVD. В модели это учитывается введением коэффициента отражение лазерного излучения поверхностью металлического осадка, который зависит от поляризации

$$\tilde{R} = \epsilon R_s + (1 - \epsilon) R_p, \quad (12)$$

где R_s – коэффициент отражения в случае линейной поляризации в плоскости подложки ($\epsilon = 1$); R_p – коэффициент отражения в случае поляризации в плоскости перпендикулярной подложке ($\epsilon = 1$); ϵ – степень поляризации ($\epsilon = 0.5$ соответствует круговой поляризации).

Такое влияние поляризации, на наш взгляд, должно увеличиваться по мере роста метал-

лического осадка, который становится сам дополнительным фактором вследствие изменения его кривизны, что существенно влияет на отражающую способность каждого участка осадка. Расчеты показали, что высота осадка при изменении поляризации с линейной перпендикулярной поверхности подложки через круговую на линейную, которая параллельна поверхности подложки, приводит к существенному росту высоты осадка на оси пучка и мало влияет на высоту осадка на краю пучка (рис. 7, кривые 1 – 5). Этот фактор также можно использовать при получении микроструктур в LCVD процессах.

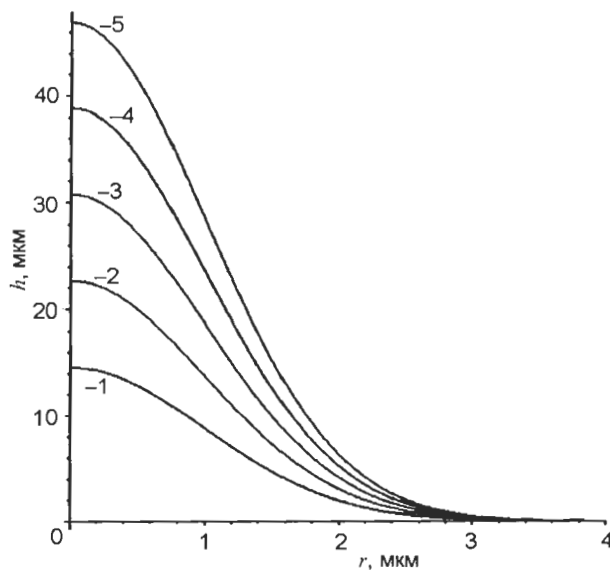


Рис. 7. Профиль осадка вольфрама при изменении поляризации лазерного излучения: 1 – $\epsilon = 0$; 2 – $\epsilon = 0.25$; 3 – $\epsilon = 0.5$; 4 – $\epsilon = 0.75$; 5 – $\epsilon = 1$.

Аналогичные расчеты были проведены и для молибдена и показали подобные результаты с той только разницей, что ввиду более высокой температуры активации реакции для молибдена, была ниже интенсивность формирования осадка и его высота при одинаковых условиях осаждения была существенно ниже (рис. 8, кривые 1 – 2).

ВЫВОДЫ

1. Предложена математическая модель, которая учитывает влияние параметров лазерного излучения на температурное распределение и формообразование осадка тугоплавкого металла на диэлектрической подложке при LCVD пиролизе.

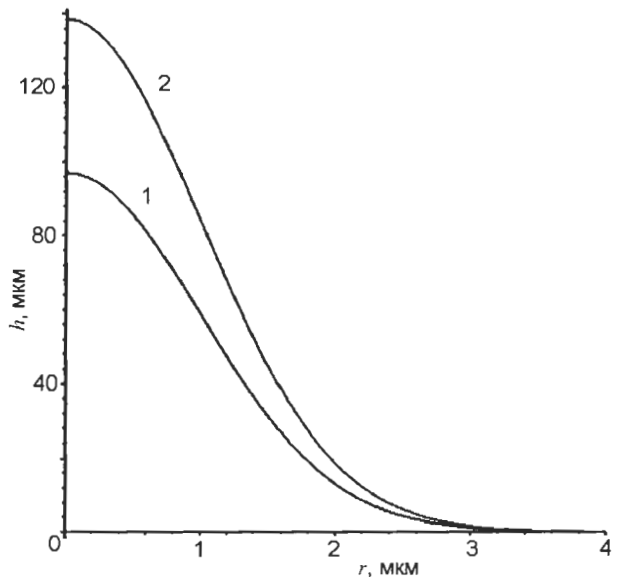


Рис. 8. Профиль осадка молибдена (1) и вольфрама (2) при $I_0 = 2 \cdot 10^7$ Вт/м², $r_0 = 1$ мкм.

2. Результаты расчетов показывают, что плотность мощности лазерного излучения существенно влияет на высоту образующегося металлического осадка, особенно вблизи оси пучка. На краю пучка влияние мощности лазерного излучения незначительно.
3. Изменение радиуса лазерного пучка не влияет на высоту металлического осадка, но приводит к изменению радиуса образующегося осадка. Увеличение радиуса пучка лазера приводит к изменению профиля осаждающихся структур с прямоугольного на треугольный.
4. Установлено, что степень поляризации лазерного излучения должна существенно влиять на профиль и высоту осадка тугоплавкого металла, что становится дополнительным фактором влияния на формообразование в процессе осаждения.
5. Модель позволяет учитывать характеристики лазерного излучения при получении методом LCVD пиролиза поверхностных структур с наперед заданными параметрами.

ЛИТЕРАТУРА

1. Bauerle D. Chemical Processing with Laser: Recent Developments//J. Appl. Phys. B. – 1988. – Vol. 46. – P. 261-270.
2. Bauerle D., Denk R., Pedarning J.D. et al.//J. Appl. Phys. A. – 2003. – Vol. 77. – P. 203-207.

3. Bauerle D. Laser chemical processing: an overview to the 30th anniversary//J. Appl. Phys. A. – 2010. – Vol. 101. – p. 447-459.
4. Jhou Jian, Luo Yin-she, Li Li-jun et al.//J. Cent. South Univ. Technol. – 2008. – Vol. 15 (sl). – P. 197-201.
5. Drovna L.A., Dranenko A.S. //J. Powder Metallurgy and Metal Ceramics. – 2000. – Vol. 39, No. 9-10. – P. 520-523.
6. Conde O., Silvestre A.J.//J. Appl. Phys. A. – 2004. – Vol. 79. – P. 489-497.
7. Лакоткин Ю.В., Гончаров В.Л., Кузьмин В.П. Газофазный синтез конструкционных наноструктурированных покрытий и материалов //В кн.: Современные проблемы химии наноматериалов– М.: Граница.– 2008. – С. 206-218.
8. Krauter W., Bauerle D. and F. Fimberger//J. Appl. Phys. A. – 1983. – Vol. 31. – P. 13-18.
9. Toth Z., Kargl P., Grivas C., et al.//J. Appl. Phys. B. – 1992. – Vol. 54. – P. 189-192.
10. Petzoldt F., Piglmayer K., Krauter W., et al.//J. Appl. Phys. A. – 1984. – Vol. 35. – P. 155-159.
11. Kirichenko N., Piglmayer K. and D.Bauerle//J. Appl. Phys. A. – 1990. – Vol. 51. – P. 498-507.
12. Arnold N., Thor E., Kirichenko N., et al.//J. Appl. Phys. A. – 1996. – Vol. 62. – P. 503-508.
13. Gordiets B.F., Andujar J.I., Corbella C., et al.// Eur. Phys. J. D. – 2005. – Vol. 35. – P. 505-511.
14. Camarero J.Yu.R.//J. Appl. Phys. A. – 2009. – Vol. 95. – P. 601-611.
15. Недоля А.В., Титов И.Н.//Физическая инженерия поверхности. – 2009. – Т. 7, № 4. – С. 347-350.
16. Физические величины: Справочник. – М.: Энергоатомиздат, 1991. – 1232 с.

LITERATURA

1. Bauerle D. Chemical Processing with Laser: Recent Developments//J. Appl. Phys. B. – 1988. – Vol. 46. – P. 261-270.
2. Bauerle D., Denk R., Pedarning J.D. et al.//J. Appl. Phys. A. – 2003. – Vol. 77. – P. 203-207.
3. Bauerle D. Laser chemical processing: an overview to the 30th anniversary//J. Appl. Phys. A. – 2010. – Vol. 101. – p. 447-459.
4. Jhou Jian, Luo Yin-she, Li Li-jun et al.//J. Cent. South Univ. Technol. – 2008. – Vol. 15 (sl). – P. 197-201.
5. Drovna L.A., Dranenko A.S.//J. Powder Metallurgy and Metal Ceramics. – 2000. – Vol. 39, No. 9-10. – P. 520-523.
6. Conde O., Silvestre A.J.//J. Appl. Phys. A. – 2004. – Vol. 79. – P. 489-497.
7. Lakhotkin Yu.V., Goncharov V.L., Kuzmin V.P. Gazofaznyy sintez konstruksionnykh nanostrukturirovannykh pokrytiy i materialov//V kn.: Sovremennyye problemy khimii nanomaterialov. – М.: Granitsa. – 2008. – S. 206-218.
8. Krauter W., Bauerle D. and F. Fimberger//J. Appl. Phys. A. – 1983. – Vol. 31. – P. 13-18.
9. Toth Z., Kargl P., Grivas C., et al.//J. Appl. Phys. B. – 1992. – Vol. 54. – P. 189-192.
10. Petzoldt F., Piglmayer K., Krauter W., et al.//J. Appl. Phys. A. – 1984. – Vol. 35. – P. 155-159.
11. Kirichenko N., Piglmayer K. and D.Bauerle//J. Appl. Phys. A. – 1990. – Vol. 51. – P. 498-507.
12. Arnold N., Thor E., Kirichenko N., et al.//J. Appl. Phys. A. – 1996. – Vol. 62. – P. 503-508.
13. Gordiets B.F., Andujar J.I., Corbella C., et al.// Eur. Phys. J. D. – 2005. – Vol. 35. – P. 505-511.
14. Camarero J.Yu.R.//J. Appl. Phys. A. – 2009. – Vol. 95. – P. 601-611.
15. Nedolya A.V., Titov I.N.//Fizicheskaya inzheneriya poverkhnosti. – 2009. – Т. 7, № 4. – С. 347-350.
16. Fizicheskiye velichiny: Spravochnik. – М.: Energoatomizdat, 1991. – 1232 с.