

И. Ш. Абдуллин, В. С. Желтухин, В. И. Струнин,  
А. Ю. Шемахин, Г. Ж. Худайбергенов, А. А. Хубатхузин

## МОДЕЛИРОВАНИЕ ГАЗОДИНАМИЧЕСКОГО ИСТЕЧЕНИЯ СТРУИ АРГОН-СИЛАНОВОЙ ПЛАЗМЫ В ЗАТОПЛЕННОЕ ПРОСТРАНСТВО

*Ключевые слова:* аргон-силановая плазма, высокочастотный разряд, осаждение тонких пленок, аморфный кремний, струйное течение, математическое моделирование.

*В работе описана математическая модель струйного течения ВЧ-плазмы при давлении 0.1-10 Па и числах Кнудсена  $0.3 \leq Kn \leq 3$  для несущего газа. Модель построена на основе статистического подхода для нейтральной компоненты ВЧ-плазмы с учетом влияния распределенного по объему источника тепла. Приведены результаты расчета течения нейтральной компоненты ВЧ-плазмы при наличии в струе образца.*

*Keywords:* silane argon plasma, RF glow discharge, thin films deposition, amorphous silicon, jet flow, mathematical modeling.

*A mathematical model of the RF plasma flow at a pressure of 0.1-10 Pa for Knudsen  $0.3 \leq Kn \leq 3$  is described. The model is based on the statistical approach of the neutral component of the RF plasma. The results of the plasma flow calculation with a specimen is described.*

### Введение

Получение пленок аморфного гидрогенизированного кремния (a-Si:H) обусловлено всевозрастающими потребностями в новых материалах для компонент электронных устройств, главным образом для солнечных элементов. В настоящее время, среди прочих методов синтеза a-Si:H наиболее перспективными считаются струйные методы, которые различаются по способу активации газообразных реагентов [1,2]. Главным преимуществом таких систем осаждения являются высокие скорости роста пленок, что выгодно отличает их от обычно используемых PECVD-реакторов. Метод [3], получивший название струйно-плазмохимического, предполагает предварительное разложение газа, содержащего силан, в емкостном ВЧ-разряде (по типу PECVD-реактора) с последующим выносом продуктов разложения из разрядной зоны в вакуумную камеру через сопло. Такие системы позволяют реализовать достоинства как методов типа [2] так и традиционных способов, использующих PECVD-реакторы. Большой интерес представляет поведение радикалов силана и атомов буферного газа в свободно расширяющейся струе в процессе осаждения тонких пленок аморфного кремния. Важной задачей является поиск режимов и условий работы реактора струйной системы, определение распределения электронной компоненты и нейтральных частиц в струе.

Первым шагом такой работы представляется моделирование газодинамического истечения нейтральной компоненты плазмы в затопленное пространство.

Для эффективного управления технологическими параметрами плазменного воздействия необходим расчет характеристик потока плазмы с помощью математической модели, учитывающей газодинамику процессов течения и обтекания образца.

Анализ элементарных процессов и оценка характерных масштабов плазмы показали, что течение нейтральной компоненты ВЧ-плазмы при данных параметрах происходит между переходным режимом течения и свободномолекулярным потоком.

Число Кнудсена для нейтрального газа находится в диапазоне  $0,3 \leq Kn \leq 3$ . Значение  $Kn \geq 1$  соответствует свободномолекулярному течению,  $0,3 \leq Kn < 1$  – переходному режиму от свободномолекулярного к течению сплошной среды. Для таких течений не существует устоявшихся моделей типа уравнения Навье-Стокса [5]. Поэтому необходимо разрабатывать специальную модель.

### Математическая модель струйного течения ВЧ-плазмы при числах Кнудсена $0,3 \leq Kn \leq 3$

При построении модели, в виду незначительности ряда эффектов для рассматриваемого типа плазмы, пренебрежем процессами прилипания электронов, эффектом Холла, возбуждения атомов, объемной рекомбинацией, образованием многозарядных ионов, проскальзыванием ионов, градиентом электронного давления, потерями энергии на излучение. Предположим, что основным механизмом рождения заряженных частиц является ударная ионизация, среда является изотропной, не гиротропной, концентрация ионов равна концентрации электронов, температура ионов совпадает с температурой нейтральных атомов, скорость ионов совпадает со средней скоростью электронов.

Пусть струя ВЧ-плазмы вытекает в цилиндрическую вакуумную камеру радиусом  $R_{vk}$  и длиной  $L_{vk}$  через выходное отверстие плазматрона радиусом  $R_{tk}$ , которое расположено на базовой плите. Для границ области течения введем следующие индексные обозначения: входное отверстие вакуумной камеры - *inlet*, выходное - *outlet*, образец - *body*, остальные стенки вакуумной камеры — *walls*.

Для расчета нейтральной компоненты струйного течения ВЧ-плазмы при числах Кнудсена  $0.3 < Kn < 3$  разработана статистическая модель на основе уравнения Больцмана с учетом влияния распределенного по объему источника тепла. Прототип данной модели был предложен в [10]. Модель можно записать в виде:

$$\begin{aligned} \frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{c} \cdot \frac{\partial f}{\partial \mathbf{r}} + \tilde{\mathbf{F}} \cdot \frac{\partial f}{\partial \mathbf{c}} &= S(f), \\ f(\mathbf{c}, \mathbf{r}, 0) &= f_0(\mathbf{c}, \mathbf{r}), \\ \tilde{\mathbf{F}} &= -(1/m_a) \text{grad } W_T \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь  $f(\mathbf{c}, \mathbf{r}, t)$  – функция распределения плотности частиц нейтральной компоненты плазмы в фазовом пространстве,  $\mathbf{c}$  – вектор скорости,  $\mathbf{r}$  – радиус-вектор,  $f_0$  – максвелловская функция распределения по скоростям,  $S(f)$  – интеграл столкновений,  $\tilde{\mathbf{F}}$  – приведенная сила, действующая на нейтральные атомы в процессе упругих соударений с электронами.

Поток плазмы отличается от потока нейтрального газа наличием распределенного по объему источника тепла, так как в результате упругих столкновений электронов с атомами и ионами происходит нагрев тяжелых частиц. В виду этого метод Г.Бёрда потребовал модификации.

Частота упругих столкновений, при которых происходит обмен энергией между частицами плазмы, в ВЧ-разряде пониженного давления  $n_e = 10^{10} - 10^{11}$  Гц. В упругих столкновениях электроны передают атомам энергию

$$E_c = \frac{3}{2} K_B n_e (T_e - T_a) \quad (2)$$

Удельную мощность данного распределенного источника тепла можно записать в виде

$$W_T = \int E_c dV \quad (3)$$

где  $dV$  – элемент объема.

Здесь  $W_T$  – энергия, передаваемая нейтральным атомам электронами в процессе упругих соударений,  $n_e$  – концентрация электронов,  $\nu_c$  – частота упругих столкновений электронов с атомами и ионами,  $\sigma$  – проводимость плазмы,  $k_B$  – постоянная Больцмана,  $\delta = m_e/2m_a$ ,  $m_a$  – масса атома,  $m_e$  – масса электрона.

Граничные условия для уравнения (1) устанавливаются при реализации численной схемы методом прямого статистического моделирования.

### Численный метод и результаты расчета характеристик потока несущего газа при числах Кнудсена $0.3 \leq Kn \leq 3$

Одним из основных инструментов для численного решения прикладных задач динамики разреженного газа является группа методов прямого статистического моделирования (ПСМ). Метод прямого моделирования Г.Бёрда успешно применяется для широкого класса задач, в том числе и для расчета течения газа в переходном и свободномолекулярном режимах. Метод Г.Бёрда основан на расщеплении уравнения Больцмана по процессам и хорошо описывает газодинамические процессы в переходном и свободномолекулярном режимах для течения нейтральных разреженных газов.

Для решения задачи (1)-(3) используется модифицированный метод ПСМ Г.Бёрда [10], в котором учтено влияние распределенного источника

тепла удельной мощностью (3) на нейтральную компоненту ВЧ-плазмы.

Для расчета основных газодинамических параметров потока ВЧ-плазмы пониженного давления разработана программа, которая позволяет найти пространственные распределения основных характеристик потока нейтральной компоненты ВЧ-плазмы при  $0.3 \leq Kn \leq 3$  в заданной геометрии вакуумной камеры как для невозмущенной струи, так и для струи с образцом.

Программа использует библиотеку DSMC среды OpenFOAM и работает под управлением ОС Linux.

С помощью созданной программы проведения расчетов основных газодинамических характеристик потока нейтральной компоненты ВЧ-плазмы. Для моделирования течения использовалась модель вакуумной камеры с размерами:  $R_{vk} = 37.5$  см, расстояние до образца  $L_{fb} = 5$  см, длина образца – 2 см, образец моделировался в виде цилиндра. Расчеты проводились для потока ВЧ плазмы при использовании в качестве несущего газа аргона. В расчетах в качестве граничного условия на образце установлена температура 550 К, ввиду специального нагрева подложки при обработке потоком аргон-силановой плазмы.

Результаты расчетов показали, что при данных условиях время установления течения до стационарного состояния составило порядка 1 с.

На рис. 1-3 представлены результаты расчетов при расходе плазмообразующего газа  $Q = 1$  ст. см<sup>3</sup>/с. Температура на входе в камеру  $T_{inlet} = 370$  К, скорость потока на входе в камеру  $V_{inlet} = 550$  м/с.

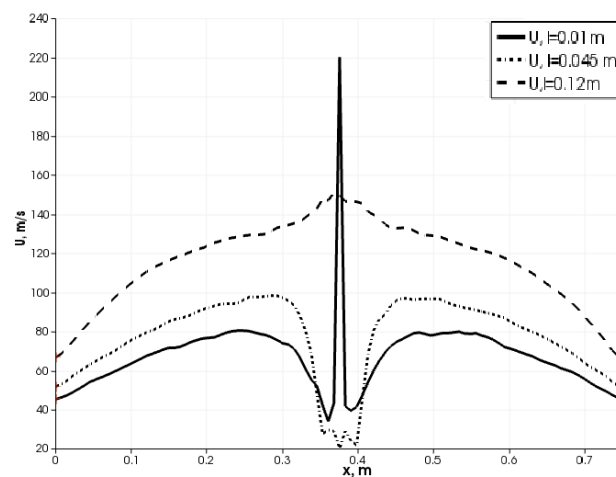
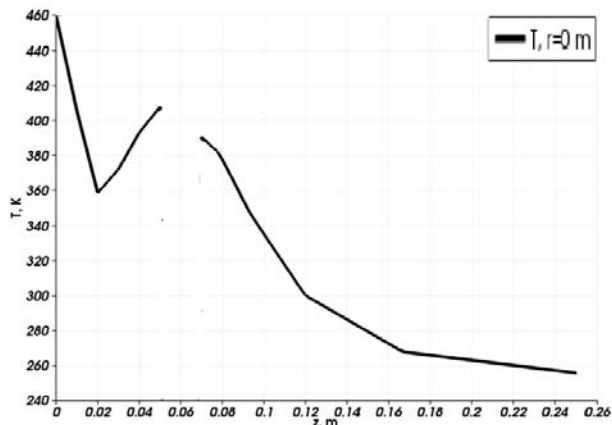


Рис. 1 – Распределение модуля скорости несущего газа в различных сечениях струи при наличии образца

Из рис. 1 видно, что в модели с образцом скорость убывает при приближении потока газа к телу (кривая 2), а далее поток огибает образец с двух сторон, где скорость газа в несколько раз выше, чем за образцом.

Вдоль оси вакуумной камеры модуль скорости в начале входного потока в вакуумную камеру резко убывает с 550 м/с до 220 м/с, что связано с резким торможением молекул при входе в камеру и

передачей кинетической энергии движения во внутреннюю, так как температура газа на входе резко возрастает с 370 К до 460 К (рис. 2). Вдоль оси потока скорость газа падает при подходе к образцу до нуля, а за образцом постепенно возрастает, что связано с влиянием откачки на верхней стороне вакуумной камеры.



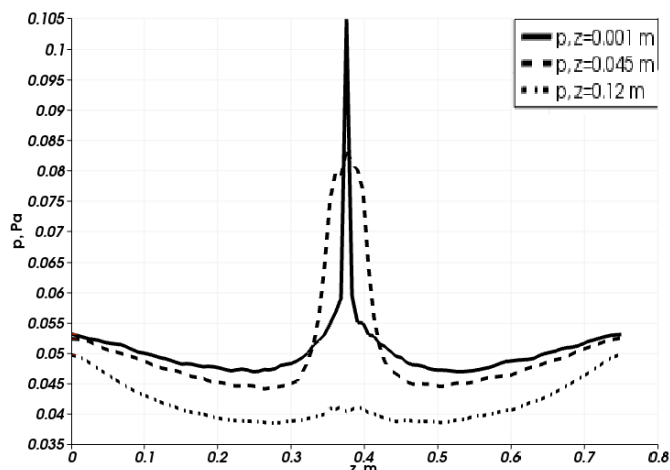
**Рис. 2 - Распределение температуры  $T$  вдоль оси потока. Разрыв кривой обозначает местоположение образца**

При обтекании потоком плазмы образца высотой 2 см, помещенного в струю на расстоянии 5 см от входного отверстия вакуумной камеры, давление на удалении 0—0.02 м от входного отверстия сначала падает с 0.11 Па до 0.07 Па, затем при подходе газа к образцу — нарастает до 0.085 Па, что связано с торможением потока. За образцом давление уменьшается за счет моделирования области откачки на верхней стороне вакуумной камеры. Распределение давления  $p$  в поперечном сечении струи сильно неравномерно (рис. 3).

Результаты расчетов показали, что помимо резкого скачка температуры на входе в вакуумную камеру, наблюдается повышение температуры несущего газа за счет торможения потока и нагрева от, а далее за образцом газ постепенно охлаждается до 290–300 К. Распределение температуры в поперечном сечении, также, как и давления, сильно неоднородно, имеет ярко выраженную колоколообразную форму с пиком на оси потока.

### Влияние характеристик потока ВЧ плазмы на результаты напыления пленки кремния

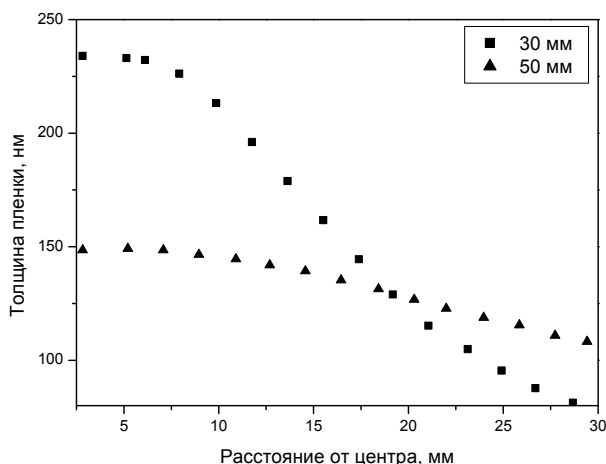
С целью проверки адекватности описания математической моделью основных процессов в струе ВЧ-плазмы проведены эксперименты по осаждению тонких пленок аморфного и микрокристаллического кремния на вакуумной установке ННВ 6.1. Плазма тлеющего разряда возбуждалась в плазмотроне диаметром 7 см, длиной 10 см. Давление в камере варьировалось в пределах 100–300 мТорр и контролировалось емкостным вакуумным датчиком SETRA 100. Емкостной высокочастотный тлеющий разряд возбуждался генератором АСГ-6б колебательной мощностью 600 Вт (напряженность поля составила  $E = 50$  В/см).



**Рис. 3 - Распределение давления  $p$  в поперечных сечениях плазменной струи**

Два пластинчато-роторных насоса и диффузионный насос откачивали вакуумную камеру до предельного остаточного давления  $5 \cdot 10^{-6}$  Торр. Стекланные подложки размером  $6 \times 6$  см проходили очистку с использованием кипящего раствора серной кислоты и дистиллированной воды. Перед напылением подложки, отжигались в вакуумной камере при температуре 200 – 300 °С. Расходомер УГФПС-4 позволял контролировать поток рабочего газа в пределах 4–60 станд. см<sup>3</sup>/мин. После повышения давления в камере плазмотрона до рабочего диапазона, зажигался вначале тлеющий разряд, затем высокочастотный емкостный разряд. Время осаждения контролировалось с помощью заслонки.

Осаждение проводилось для разных значений расстояния от сопла до подложки (30 и 50 мм), диаметр сопла составлял 3 мм, время осаждения 20 минут. Результаты измерений толщины пленок аморфного кремния от расстояния от центра пленки, представлены на рис. 4. Хорошо видно, что для случая в 30 мм пленки имеют сильно неравномерную толщину, вследствие неравномерности плотности плазменного потока, что видно и из результатов расчета (рис. 3, пунктирная кривая) - в центре и по краям струи достаточно большой перепад давлений.



**Рис. 4 – Толщина пленки от расстояния от центра**

При расположении подложки на расстоянии в 50 мм перепад толщины пленки составляет примерно 30%, что коррелирует с результатами расчета характеристики потока (рис. 3, точечная кривая), так как в радиусе около 60 мм наблюдается небольшой перепад давлений. Однако, в данном случае, скорость осаждения резко снижается, что объясняется снижением локальной плотности газа вблизи подложки и охлаждением потока (рис. 2). Поэтому для получения равномерных по толщине покрытий с неравномерностью менее 5%, целесообразно устанавливать не одно сопло, а несколько сопел так, чтобы газовые струи пересекались на 60% расстояния от сопла до подложки [11].

### Выводы

Разработана математическая модель струйного течения ВЧ плазмы в диапазоне давлений 0.1 — 10 Па при числах Кнудсена  $0,3 \leq Kn \leq 3$ . Математическая модель описывается кинетическим уравнением Больцмана для несущего газа, в котором учитывается наличие в потоке распределенного источника тепла, влияющего на функцию распределения атомов газа по скоростям. Для созданной математической модели построен численный метод решения, который представляет собой метод прямого статистического моделирования Г.Берда, модифицированный с учетом наличия в потоке распределенного источника тепла.

В результате численных расчетов установлены основные закономерности течения несущего газа, которые дают в первом приближении качественную картину струйного потока ВЧ плазмы и позволяют дать удовлетворительную интерпретацию экспериментальным фактам, обнаруженным при напылении аморфных и микрокристаллических пленок кремния.

Работа проводилась при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ, соглашение о предоставлении гранта в форме субсидии № 14.B37.21.0771 и по ГК № 14.132.21.1420.

### Литература

1. Шарафутдинов Р.Г., Бакланов М.Р., Аюпов Б.М. и др. // ЖТФ, Т.65, в.1, стр.181-185 (1995).
2. M.C.M. van de Sanden, R.J. Severens et al. // J. Appl. Phys. Vol. 84 (5) pp. 2426-2433 (1998)
3. Струнин В.И., Ляхов А.А., Худайберганов Г.Ж., Шкуркин В.В. // ЖТФ, том 72, вып.6, 2002, стр. 109-114
4. Абдуллин И.Ш. Модификация нанослоев в высокочастотной плазме пониженного давления: монография [Текст] / И.Ш.Абдуллин, В.С.Желтухин, И.Р.Сагбиев, М.Ф.Шаехов.- Казань: Изд-во Казан. гос. технол. ун-та, 2007.- 356 с.
5. Белоцерковский О.М. Численное моделирование в механике сплошных сред – Москва «Наука» Главная редакция физико-математической литературы. 1984. – 518 с.
6. Берд Г.А. Молекулярная газовая динамика. Москва, 1981.
7. Печатников Ю.М. Современные методы расчета характеристик вакуумных агрегатов для среднего вакуума (Обзор) // Вак. техн. и технол.- 2002.- Т.12, №4.
8. В.Г. Дулов, Г.А. Лукьянов. Газодинамика процессов истечения // Москва «Наука», 1984 г. – 234 с.
9. Печатников Ю.М. Физические явления и процессы переходного течения разреженного газа // Прикладная физика. 2004. № 2. С.19-25
10. А.Ю.Шемахин, В.С.Желтухин. Расчет газодинамики струй ВЧ плазмы пониженного давления.// Ученые записки Казанского университета, Т.153, кн.4, 2011 г. - с.135-142
11. Пат. 2188878 МПК 7 С 23 С 16/24, С 16/50, Н 01 L 21/205. Способ нанесения пленок аморфного кремния и устройство для его осуществления / Баранова Л.В., Струнин В.И., Худайберганов Г.Ж. и др. - № 2000119336/28; Заявлено 19.07.2000; Опубл.10.09.2002 Бюл. №25 – 5 с.: ил.

© **И. Ш. Абдуллин** – д. т.н., зав.каф. ПНТБМ КНИТУ, abdulin\_i@kstu.ru; **В. С. Желтухин** – д.ф.-м.н., зав. каф. мат. статистики ИВМиИТ КФУ, vzheltukhin@gmail.com; **В. И. Струнин** – д.ф.-м.н., проф., зав. каф. экспериментальной физики и радиопизики ОмГУ им. Ф.М. Достоевского, strunin@omsu.ru; **А. Ю. Шемахин** – к.ф.м.н., асс. каф. мат. статистики ИВМиИТ КФУ, shemakhin@gmail.com; **Г. Ж. Худайберганов** – к.ф.-м.н., доцент каф. экспериментальной физики и радиопизики ОмГУ им. Ф.М. Достоевского, hudaiber@omsu.ru; **А. А. Хубатхузин** – к. т. н., доцент кафедры ПНТБМ, КНИТУ, al\_kstu@mail.ru.