

Das Wachstum amorpher Kohlenstoffschichten auf Basis von Toluol

Zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Ingenieurwissenschaften

der Fakultät für Maschinenbau
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

genehmigte

Dissertation

von

Christoph Hormann

Tag der mündlichen Prüfung: 13. Oktober 2011

Hauptreferent: Prof. Dr. rer. nat. Peter Gumbsch

Korreferent: Prof. Dr. Hans Jürgen Seifert

Kurzfassung

Diamantähnlicher amorpher Kohlenstoff stellt aufgrund seiner stark variablen und zum Teil ungewöhnlichen Eigenschaften einen für viele Anwendungen interessanten Schichtwerkstoff dar. Die Methoden zur Abscheidung von Schichten dieses Materials und die dabei im Detail ablaufenden physikalischen Prozesse sind jedoch derzeit noch unzureichend verstanden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Wachstum derartiger Schichten aus der Gasphase auf Basis von Toluol sowohl experimentell mittels Rasterkraftmikroskopie als auch durch Simulation mit Hilfe von Kontinuums-Wachstumsmodellen untersucht. Das beobachtete Wachstum deutet auf eine große Bedeutung von Selbstabschattung der Oberflächenstruktur gegenüber dem Depositionsstrom hin. Dieses Phänomen wurde hier erstmalig mittels numerischer Simulation umfangreich untersucht.

Mit Hilfe dieses nichtlokalen Modells ist es gelungen, das beobachtete Wachstum in wesentlichen Aspekten zu erklären. Die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen zum Einfluss der verschiedenen Prozessparameter wie auch die auf Basis des entwickelten Modells durch Parameterstudien ermittelten Daten deuten jedoch darauf hin, dass die etablierten Vorstellungen vom Wachstum wasserstoffhaltiger Kohlenstoffschichten zumindest für die Beschreibung von Prozessen auf Basis aromatischer Kohlenwasserstoffe unzureichend sind.

Das lose Anhaften von Kohlenwasserstoffen an der Schichtoberfläche vor der Integration in die wachsende Schicht sowie die Reemission von Molekülen von der Oberfläche konnten als vermutlich bedeutende Phänomene identifiziert werden, welche für eine realistische Beschreibung des Wachstums berücksichtigt werden sollten.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	7
2. Literaturübersicht	9
2.1. Die Natur von Wachstumsprozessen	9
2.2. Schichtwachstumsprozesse	10
2.3. Modellierung des Schichtwachstums	10
2.3.1. Modellierung auf der Ebene der Einzelmoleküle	11
2.3.2. Mesoskopische diskrete Modelle und Kontinuumsmodelle	11
2.3.3. Transientes Verhalten lokaler Modelle	15
2.3.4. Nichtlokale Wechselwirkungen	16
2.3.5. Geometrische Selbstabschattung der Oberflächentopographie	18
2.3.6. Lösung der Wachstumsgleichung	20
2.4. Plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung	23
2.5. Diamantähnliche Kohlenstoffschichten	25
2.6. Das Wachstum von DLC-Schichten auf Basis von Toluol	27
3. Methoden	29
3.1. Die Abscheidung von DLC-Schichten mittels PECVD-Verfahren	29
3.2. Schichtdickenmessung	29
3.3. Rasterkraftmikroskopische Messungen	30
3.4. Analyse der Oberflächentopographie	31
3.4.1. Messfehler und Artefakte bei der Rasterkraftmikroskopie	32
3.4.2. Rauigkeit	35
3.4.3. Korrelationsfunktionen	36
3.4.4. Analyse durch Fourier-Transformation	37
3.5. Mesoskopische Simulation des Wachstumsprozesses	41
3.5.1. Oberflächenbeschreibung	42
3.5.2. Kontinuumsmodell des Schichtwachstums	42
3.5.3. Der Depositionsstrom aus dem Plasma	42
3.5.4. Materialtransport auf der Oberfläche	48
3.5.5. Lösung der Wachstumsgleichung	49
4. Ergebnisse	55
4.1. Schichtwachstumsexperimente	55
4.1.1. Schichtdickenreihen	55
4.1.2. Einfluss der Substrattemperatur	62
4.1.3. Einfluss der Prozessparameter	64
4.1.4. Vergleich mit anderen Prozessgasen	66

4.1.5.	Beschichtungsversuche auf strukturierten Substraten	68
4.2.	Simulationen	75
4.2.1.	Grundlegende Simulation der Abschattung	76
4.2.2.	Konvergenz der Abschattungsberechnung	79
4.2.3.	Parameterstudien für die Winkelverteilung und den Transportterm .	82
4.2.4.	Die zeitliche Entwicklung der Oberflächenstruktur	87
4.2.5.	Einfluss der Ausgangstopographie	94
5.	Diskussion	101
5.1.	Abschattung als dominierender Effekt beim Schichtwachstum	101
5.2.	Methodik der Modellierung von Abschattung	104
5.3.	Wachstumsverhalten des Modells im Vergleich mit den Experimenten und der Literatur	105
5.3.1.	Zur Strukturentwicklung	105
5.3.2.	Die lokalen Transportmechanismen	109
5.3.3.	Kritische Überlegungen zum Konzept der Korrelationslänge	110
5.3.4.	Die Bedeutung der Winkelverteilung	111
5.3.5.	Die mögliche Bedeutung von Reemission	112
5.3.6.	Die Bedeutung lose gebundener Kohlenwasserstoffe an der Oberfläche	113
6.	Ausblick	115
7.	Zusammenfassung	117
A.	Beispiel zur Deposition mit Abschattung in 1+1 Dimensionen	119
B.	Zusammenstellung der Simulationsergebnisse	123
B.1.	Parameterstudien zur Richtungsverteilung des Depositionsstroms	123
B.2.	Topographiedarstellungen zum Wachstum auf strukturierten Substraten . .	134
	Abkürzungsverzeichnis	139
	Symbolverzeichnis	141

1. Einleitung

Die Möglichkeit, einen Werkstoff zu beschichten, um seine Oberflächeneigenschaften zielgerichtet und unabhängig von den Eigenschaften des Werkstoffvolumens zu verändern, stellt eines der ältesten technologischen Verfahren überhaupt dar¹. Während der Schutz von Oberflächen vor chemischer Reaktion mit der Umgebung zu den frühesten [Bil84, Rol90, Elu91] und heute weitverbreitetsten Anwendungen von Beschichtungen zählt, hat die dauerhafte Beschichtung tribologisch hochbelasteter Oberflächen erst in jüngerer Zeit größere Verbreitung erlangt². Dies liegt nicht zuletzt in der Tatsache begründet, dass durch den in tribologischen Kontakten zwangsläufig auftretenden Verschleiß die Entwicklung geeigneter Schichten eine vergleichsweise anspruchsvolle Aufgabe darstellt.

Die Eignung einer Schicht für die Reduktion von Reibung und Verschleiß wird meist in erster Linie mit ihren mechanischen Eigenschaften in Verbindung gebracht. Bei der Untersuchung beschichteter tribologischer Kontakte hat sich allerdings in manchen Fällen herausgestellt, dass die mechanischen Eigenschaften der Schicht nur eine geringe Auswirkung auf Reibung und Verschleiß haben [Har97, Erd00]. Die Oberflächenstruktur der Reibpartner beeinflusst hingegen in vielen Bereichen das Reibverhalten deutlich [Oha04, Har06, Sha11].

Die Struktur einer beschichteten Bauteiloberfläche ist Ergebnis einer komplexen Wechselwirkung des jeweiligen Schichtwachstumsprozesses mit der ursprünglichen Oberflächenstruktur des unbeschichteten Bauteils [Maj96, Sil97]. Dieser Wachstumsprozess ist für eine große Zahl von Beschichtungsverfahren empirisch untersucht worden [Her92, He92, Kah92, Col94]. Nur bei einem Teil der untersuchten Beschichtungsvorgänge entspricht die beobachtete Strukturentwicklung jedoch den Vorhersagen, welche auf Grundlage verbreiteter Modelle [Edw82, Kar86, Wol90, Sun89] für das Wachstum von Schichten gemacht werden können.

Im Rahmen dieser Arbeit wird das Wachstum eines Schichttyps auf Kohlenstoffbasis untersucht, welcher sich unter tribologischer Belastung als leistungsfähig erwiesen hat und welcher bereits in einer Vielzahl von Anwendungen wie auf Zahnrädern, Gleitringdichtungen und Ventilen zum Einsatz kommt. Dieser Schichttyp zeichnet sich durch eine markante Oberflächenstrukturentwicklung während der Deposition aus, durch welche auf einer glatten Bauteiloberfläche bereits bei etwa 1 μm Schichtdicke die Bildung deutlich detektierbarer Wachstumsstrukturen feststellbar ist, welche durch ihrer Anordnung klar erkennbar

¹Beschichtungen werden vereinzelt auch von Tieren beispielsweise zum Schutz der Haut [McK73] genutzt und sind somit als Technologie vermutlich älter als die menschliche Entwicklung.

²Zu den schon früh vermutlich auch gezielt zur Reduktion von Reibung und Verschleiß eingesetzten Schichten zählen Glasuren von Keramiken [Pel71, Moo94]. Im Wesentlichen sind Schichten für tribologische Anwendungen jedoch eine neuzeitliche Erfindung.

1. Einleitung

nicht das Ergebnis von Störungen und Unregelmäßigkeiten im Abscheidungsprozess sind. Für die Optimierung der Schichten für die jeweilige Anwendung wäre es von großem Nutzen, die Grundlagen dieser Strukturentwicklung zu verstehen.

Mit dem verwendeten Verfahren der Schichtabscheidung lassen sich ohne Probleme Schichten bis etwa $70\ \mu\text{m}$ Dicke produzieren. In den meisten Untersuchungen in der Literatur zu Schichtwachstumsvorgängen wird im Gegensatz dazu nur ein sehr kleiner Ausschnitt der Strukturentwicklung erfasst – das Verhältnis der minimalen zur maximalen untersuchten Schichtdicke beträgt meist weniger als 1:10, wodurch eine recht hohe Wahrscheinlichkeit besteht, dass der betrachtete Ausschnitt aus der Strukturentwicklung nur einen vorübergehenden, für das gesamte Wachstum wenig repräsentativen Teil der Entwicklung wiedergibt. Durch den großen hier untersuchten Schichtdickenbereich von etwa 1 bis $70\ \mu\text{m}$ ist hingegen ein recht belastbarer Vergleich zwischen dem empirisch beobachteten Wachstum und möglichen Modellansätzen durchführbar.

2. Literaturübersicht

2.1. Die Natur von Wachstumsprozessen

Wachstumsprozesse aller Art, vom Wachstum biologischer Formen wie Bakterienkolonien oder Pflanzen über das Fortschreiten von Erstarrungs- und Verbrennungsfronten bis zu den hier behandelten Beschichtungsvorgängen ähneln sich ungeachtet der unterschiedlichen physikalischen Prozesse, die im Detail für das Wachstum verantwortlich sind, in den Formen, welche sie hervorbringen. Eine mathematische Charakterisierung dieser Formen ist schwierig, da oft weder die zeitliche Entwicklung noch die momentane räumliche Form eine greifbare Struktur aufweist. Selbst wenn, wie beispielsweise im Fall von durch Wind oder Wasser erzeugten Wellen im Sand, eine charakteristische Strukturgröße erkennbar ist, unterliegt diese meist einer chaotischen Dynamik.

Dass sich derartige Strukturen in erster Linie durch ihr *Skalenverhalten* in Raum und Zeit charakterisieren lassen, wurde erstmals in den 1960er Jahren von MANDELBROT [Man63, Man65, Man67] auf eine mathematische Grundlage gestellt. Das Skalenverhalten beschreibt, wie sich Kenngrößen einer Struktur in Abhängigkeit von der betrachteten räumlichen oder zeitlichen Größenordnung ändern. Allen diesen Wachstumsstrukturen gemeinsam ist eine äußere treibende Kraft, durch welche sich das System während des Wachstums in einem Zustand außerhalb des Gleichgewichts bewegt. Ein solches, zurückgehend auf BAK, TANG und WIESENFELD [Bak87] als *selbstorganisiert kritisch* bezeichnetes Verhalten (engl.: *self-organized criticality*) ist bei einer Vielzahl von natürlichen und technologischen strukturbildenden Prozessen beteiligt¹.

Ein besonderes Merkmal dieser Vorgänge besteht in der Entstehung makroskopischer Strukturen, ohne dass hierfür ein physikalischer Effekt auf dieser Ebene vorhanden sein muss. So bilden sich beispielsweise bei der Erstarrung einer Schmelze unter entsprechenden Bedingungen makroskopische dendritische Strukturen obwohl hierfür ausschließlich atomare Diffusionvorgänge und mikroskopische Strömungsprozesse verantwortlich sind, welche selbst keine makroskopische Struktur vorgeben [Kes85, War95].

¹Umfangreiche Beispiele zu derartigen Prozessen finden sich in [Bar95] und [Mea98].

2.2. Schichtwachstumsprozesse

Bei den Beschichtungsverfahren, welche im weiteren Sinne Gegenstand dieser Arbeit sind, handelt es sich um Techniken, bei denen der Auftrag an Schichtmaterial quasikontinuierlich über die gesamte Schichtoberfläche erfolgt. Anders als beispielsweise bei Plattierverfahren oder dem Auftrag von Farben und Lacken, bei denen sich die durch die Prozessführung bestimmte räumliche und zeitliche Struktur des Materialauftrages direkt auf die Struktur der produzierten Schicht auswirkt, entsteht bei diesen Schichtwachstumsvorgängen eine Oberflächenstruktur erst (und im Falle des Fehlens einer Ausgangsstruktur des beschichteten Substrates ausschließlich) durch die oben beschriebenen Selbstorganisationsphänomene. Gleichwohl findet die Materialdeposition immer in Form von Atomen, Molekülen oder größeren Aggregaten also niemals im engeren Sinne kontinuierlich statt, was bei der Modellierung des Wachstumsprozesses, wie in Abschnitt 3.5 noch gezeigt wird, eine entscheidende Rolle spielt.

Von der Vielzahl von Schichtwachstumsvorgängen, bei denen Phänomenen der Selbstorganisation eine zentrale Bedeutung zukommt, beschäftigt sich diese Arbeit vor allem mit dem Verfahren der *plasmaunterstützten chemischen Gasphasenabscheidung* (engl.: *plasma enhanced chemical vapor deposition – PECVD*). Hierbei wird wie bei der klassischen CVD-Technik² aus einer gasförmigen Vorgängersubstanz (engl.: *Precursor*) durch chemische Reaktionen an der Substratoberfläche ein Film abgeschieden. Dadurch, dass das Gas über der Substratoberfläche als teilweise ionisiertes Plasma vorliegt, wird der schichtbildende Reaktionsprozess unterstützt. Deshalb kann bei der PECVD-Technik anders als bei klassischer CVD mit niedrigen Substrattemperaturen gearbeitet werden [Tho83, Cot99].

Auf die PECVD-Technik wird in Abschnitt 2.4 noch detaillierter eingegangen, nachdem nun zunächst die Modellierung von Schichtwachstumsvorgängen thematisiert wird.

2.3. Modellierung des Schichtwachstums

Bei der PECVD-Beschichtung wie auch bei verschiedenen anderen Beschichtungsverfahren (von konventioneller CVD über PVD-Verfahren [Wes76] bis hin zu Sprühbeschichtungen [Aul56]) besteht der Schichtwachstumsprozess aus der Deposition diskreter Materialpakete sowie anschließenden Reaktionen, Umwandlungsprozessen und Materialtransport auf der Oberfläche. Ein weiterer Materialtransport nach der eigentlichen Deposition ist hierbei zwingend notwendig, damit eine massive Schicht ohne Hohlräume entsteht. Bei den deponierten Materialpaketen kann es sich je nach Beschichtungsverfahren um Einzelatome, Moleküle, Radikale oder Ionen [Tsu77] sowie größere Aggregate oder Cluster [Hab92] oder eine Kombination hiervon handeln. Dieser Prozess lässt sich auf verschiedene Arten mathematisch modellieren.

²Die Ursprünge der chemischen Gasphasenabscheidung sind nicht eindeutig zu identifizieren. Die erste bedeutende Anwendung lag jedoch in der Abscheidung von Metallen auf Glühwendeln [Ark25]. Ein Überblick über die Grundlagen der CVD-Technik findet sich in [Blo74, Bry77].

2.3.1. Modellierung auf der Ebene der Einzelmoleküle

Die PECVD-Beschichtung lässt sich auf der Ebene der einzelnen Depositionsereignisse mit Hilfe molekulardynamischer Methoden simulieren [Ald59, Rap96]. Hierbei wird der Wachstumsprozess durch Lösung der Bewegungsgleichungen der Einzelmoleküle unter Berücksichtigung der zwischen ihnen wirkenden Kräfte simuliert. Jedoch sind selbst bei Verwendung effizienter Wechselwirkungs-Potentiale [Bre90, Pas08] und Rechenmethoden [Boy88, Pin91, Pli95b, Rap06] die räumlichen und zeitlichen Dimensionen, welche mit Hilfe dieser Verfahren erfasst werden können, sehr begrenzt [Pli95a, Zho98, Rap06]. Diese Grenzen lassen sich deutlich erweitern, wenn auf die Beschreibung der Dynamik der Moleküle verzichtet wird und stattdessen die Entwicklung des Systems basierend auf den aus der statistischen Mechanik resultierenden Übergangswahrscheinlichkeiten durch Monte-Carlo-Methoden untersucht wird (*Molekulare* oder *atomistische Monte-Carlo-Modellierung*) [Met49, All87, Rub03]. Ohne die Möglichkeit einer Aussage über die Dynamik des Systems eignet sich diese Methode bei der Betrachtung von Schichtwachstumsprozessen jedoch lediglich zur Untersuchung von Detailspekten wie der Oberflächenchemie oder der Entwicklung der Mikrostruktur bei kristallinen Schichten.

Wird auf Basis eines atomistischen Monte-Carlo-Modells auf einer deutlich makroskopischeren Zeitskala wieder die Dynamik ins Spiel gebracht, spricht man von *kinetischen Monte-Carlo-Modellen*. An Stelle der tatsächlichen kontinuierlichen Dynamik auf Basis der Bewegungsgleichungen der Einzelatome bei der Molekulardynamik tritt hierbei die Dynamik der Übergänge zwischen diskreten Zuständen auf der vergrößerten Zeitskala, zum Beispiel bei Diffusion der Übergang von einem Gitterplatz auf einen anderen [Bee66, Fic91, Bat97].

Da jedoch in allen Fällen die molekulare Struktur der Materie die Basis der räumlichen Diskretisierung darstellt, kann mit allen genannten Methoden nur ein kleiner Ausschnitt der wachsenden Schicht betrachtet werden. Die Wechselwirkungen zwischen den Elementarprozessen über längere Zeiträume und damit verbunden größere räumliche Dimensionen einschließlich der auftretenden Selbstorganisationseffekte (vgl. Abschnitt 2.1) entziehen sich einer Betrachtung mit molekularen Methoden.

2.3.2. Mesoskopische diskrete Modelle und Kontinuumsmodelle

Um Schichtwachstumsvorgänge auf einer Längenskala im Nanometer- bis Mikrometer-Bereich und in Zeiträumen von Sekunden bis Stunden zu untersuchen, ist es notwendig, sich von der molekularen Ebene zu lösen. Ausgehend von kinetischen Monte-Carlo-Modellen lässt sich dies durch eine räumliche Vergrößerung erreichen – man betrachtet also nicht mehr die Dynamik der Einzelmoleküle, sondern größere diskrete Einheiten von Materie [And83, Bat02]. Hierdurch können im Fall der PECVD-Beschichtung, bei welcher die Deposition in Form einzelner Moleküle stattfindet, die Depositionsereignisse nicht mehr einzeln, sondern nur noch pauschalisierend abgebildet werden.

Bekanntere Beispiele für derartige Modelle stellen die Techniken der diffusionsbegrenzten

2. Literaturübersicht

Aggregation (engl.: *diffusion limited aggregation* – *DLA*) [Wit81] und der statistischen Deposition (engl.: *random deposition* – *RD*) [Fam86] dar. Abhängig von den Regeln, nach denen sich die Materiepakete im System bewegen, lassen sich eine große Bandbreite physikalischer Vorgänge abbilden [Mol99]. Durch die einfache Numerik derartiger Modelle lassen sich mit ihnen relativ große Systeme in drei (oder mehr [Mea83, Par84]) Dimensionen simulieren. Weiterhin erfordert die Berücksichtigung komplexer nichtlokaler Wechselwirkungen wie Abschattung [Mea86, Mea92] nur einen geringem Mehraufwand. Neben gitterbasierten Modellen lassen sich von vielen diskreten Modellen auch gitterlose Varianten formulieren, was helfen kann, Artefakte durch Gitteranisotropie zu vermeiden [Ker86].

Mesoskopische diskrete Modelle werden meist nicht stringent aus der Dynamik der Atome hergeleitet, sondern sie werden gewöhnlich wie in den beiden oben genannten Beispielen als abstrakte Modelle auf Basis einer begrenzten Auswahl dynamischer Vorgänge, welche als für den jeweils modellierten Prozess bedeutend angesehen werden, aufgestellt [Fic91, Bat02]. Ziel der Simulation von Schichtwachstumsvorgängen auf Basis solcher Modelle ist meistens nicht die quantitativ exakte Abbildung eines Experimentes, sondern eine qualitative Untersuchung der Frage, welchen Einfluss verschiedener Materialtransportmechanismen auf das Wachstumsverhalten haben.

Lokale Kontinuumsmodelle

Tritt die quantitative Untersuchung der beim Schichtwachstum involvierten Vorgänge in den Vordergrund, bietet eine Kontinuumsbeschreibung des Wachstumsprozesses große Vorteile gegenüber den zuvor beschriebenen mesoskopischen diskreten Modellen. Die wachsende Schicht und ihre Oberfläche werden in diesen Fällen als Kontinuum angenähert und ihre Veränderung beim Depositionsprozess wird mit Hilfe kontinuumsmechanischer Gleichungen beschrieben.

Die Entwicklung der Form der Grenzfläche, üblicherweise vereinfachend durch eine zweidimensionale Profilfunktion $h(\mathbf{x}, t)$, $\mathbf{x} \in \mathbb{R}^2$ repräsentiert, wird hierbei durch eine partielle Differentialgleichung beschrieben. Um das durch den nicht kontinuierlichen Depositionsvorgang verursachte Rauschen zu berücksichtigen, enthält die Gleichung eine stochastischen Komponente $\eta(\mathbf{x}, t)$. Das System wird gewöhnlich in einem Koordinatensystem beschrieben, welches mit einer konstanten Geschwindigkeit v mit der wachsenden Schicht mitbewegt wird. Die Geschwindigkeit v entspricht der mittleren Depositionsrate des Schichtwachstumsprozesses so dass für konservative Wachstumsmodelle $\langle h \rangle = \text{const}$ gilt [Bar95].

Tritt neben der Deposition kein weiterer Materialtransport auf, lässt sich die Entwicklung von $h(\mathbf{x}, t)$ durch Integration des Depositionsrauschens beschreiben. Dieses Szenario entspricht dem oben genannten diskreten RD-Modell und das Wachstumsverhalten dieser Modelle stimmt überein. Im Allgemeinen beeinflusst jedoch Materialtransport auf der Oberfläche das Wachstum und in Abhängigkeit von den auftretenden Mechanismen des Transports ergeben sich verschiedene Wachstumsgleichungen – die bekanntesten hiervon sind im Folgenden kurz aufgelistet:

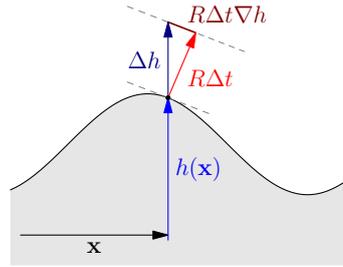


Abbildung 2.1: Der geometrische Ursprung des KPZ-Terms: Berechnung der Wachstumsrate in Vertikalrichtung Δh aus der lokalen Wachstumsrate in Normalenrichtung

Die Edwards-Wilkinson-Gleichung: in den namensgebenden Arbeiten von EDWARDS und WILKINSON [Edw82] als Modell für Sedimentationsvorgänge unter dem Einfluss von Gravitation entwickelt:

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \nu \nabla^2 h(\mathbf{x}, t) + \eta(\mathbf{x}, t) \quad (2.1)$$

hat sich dieses Modell ebenso für die Beschreibung von mikroskopischen Wachstumsvorgängen als geeignet erwiesen, bei denen Gravitation als treibende Kraft für den Materialtransport keine Rolle spielt und der $\nabla^2 h$ -Term als Beschreibung von Evaporations-Kondensations-Dynamiken [Her50, Mul57] oder von impulsinduzierten Hangabtriebsströmen [Mos00, Mos05] dient.

Die Kardar-Parisi-Zhang-Gleichung: mit welcher KARDAR, PARISI und ZHANG [Kar86] die EW-Modellbeschreibung um einen nichtlinearen Term erweitern:

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \nu \nabla^2 h(\mathbf{x}, t) + \frac{\lambda}{2} (\nabla h(\mathbf{x}, t))^2 + \eta(\mathbf{x}, t). \quad (2.2)$$

Der $(\nabla h)^2$ -Term beschreibt in dieser Gleichung ein Wachstum der Schicht (oder bei negativem Vorzeichen einen Materialabtrag) in lokaler Normalenrichtung der Oberfläche. Er stellt eine Näherung für $\sqrt{1 + (\nabla h)^2}$ dar, die sich aus einer TAYLOR-Reihenentwicklung ergibt:

$$\sqrt{1 + (\nabla h)^2} = 1 + \frac{1}{2} (\nabla h)^2 + \mathcal{O}((\nabla h)^4). \quad (2.3)$$

Die geometrische Motivation für den Ausdruck $\sqrt{1 + (\nabla h)^2}$ wird in Abbildung 2.1 verdeutlicht. Durch den $(\nabla h)^2$ -Term erhält die Gleichung nicht mehr einen konstanten Mittelwert $\langle h \rangle = \text{const}$ für das Oberflächenprofil. Der Grund hierfür liegt in der Tatsache, dass bei einer strukturierten Oberfläche die lokale Depositionsrate R im Mittel geringer ist als die mittlere Wachstumsrate $\frac{d\langle h \rangle}{dt}$, da die tatsächliche Schichtoberfläche größer ist als die Nominalfläche.

Die Mullins-Herring- oder Wolf-Villain-Gleichung: benannt nach den Arbeiten von MULLINS [Mul57], HERRING [Her50], WOLF und VILLAIN [Wol90] zur Beschreibung der

2. Literaturübersicht

Entwicklung einer Oberfläche unter dem Einfluss von Oberflächendiffusion mit Hilfe der Gleichung:

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\kappa \nabla^4 h(\mathbf{x}, t) + \eta(\mathbf{x}, t). \quad (2.4)$$

Dieser Transportterm eignet sich gleichermaßen für die Beschreibung von viskosem Fließen, welches auf die unmittelbare Oberflächenschicht beschränkt ist [Umb01]

Die wichtigste Voraussetzung für die Anwendung derartiger Modelle liegt darin, dass die Betrachtung auf einer ausreichend makroskopischen Größenskala erfolgt, damit sich die inhärent diskreten Depositionsereignisse in die Kontinuumsbeschreibung integrieren lassen [Mos98].

Das Wachstumsverhalten, welches diese Modelle zeigen, weist nach einer von den Anfangsbedingungen abhängigen Einlaufphase selbstaffine Charakteristika auf. Dies bedeutet, dass die auf verschiedenen räumlichen und zeitlichen Größenskalen entstehenden Oberflächenstrukturen einander ähneln. Das Skalenverhalten der Systeme, also die Art und Weise, wie strukturelle Kenngrößen von der betrachteten Größenordnung abhängen, unterscheidet sich je nach Wachstumsmodell.

Betrachtet man das Wachstum über die Entwicklung einer Rauigkeitskenngröße w für die Beschreibung der vertikalen Struktur und über eine charakteristische laterale Strukturgröße ξ so lässt sich bei den vorgestellten Modellen ein Verhalten der Form

$$w(t) \sim t^\beta \quad (2.5)$$

$$\xi(t) \sim t^\zeta \quad (2.6)$$

beobachten wobei β als *Wachstumsexponent* bezeichnet wird. Dieses Verhalten endet, wenn die laterale Strukturgröße ξ die Systemgröße L erreicht. Für diesen *Sättigungszeitpunkt* t_\times gilt folglich $t_\times = L^{\frac{1}{\zeta}} = L^z$ wobei z als *dynamischer Exponent* bezeichnet wird. Ab diesem Zeitpunkt steigt die Rauigkeit w nicht weiter an und es gilt $w_{\text{sat}} = t_\times^\beta = L^{\beta z} = L^\alpha$ wobei α *Rauigkeitsexponent* genannt wird. Zwischen den Exponenten besteht die Beziehung [Fam85]

$$z = \frac{1}{\zeta} = \frac{\alpha}{\beta}. \quad (2.7)$$

Die verschiedenen diskreten Modelle und Kontinuumsbeschreibungen werden aufgrund des beschriebenen Skalenverhaltens in sogenannte *Universalitätsklassen* eingeteilt. Diese Klassen werden im Allgemeinen nach den zugehörigen Kontinuumsgleichungen benannt, von denen die wichtigsten oben genannt wurden.

Werden einige einschränkende Annahmen getroffen – dies betrifft insbesondere die Unkorreliertheit des Depositionsrauschens und die lokale Natur der relevanten Wechselwirkungen, lässt sich zeigen, dass die Zahl der möglichen Universalitätsklassen begrenzt ist [Bar95, Cue04]. Vergleiche mit experimentellen Untersuchungen zum Schichtwachstum zeigen jedoch, dass sich viele beobachtbare Wachstumsvorgänge nicht einer der bekannten Klassen zuordnen lassen [Col94, Rei97, Dü03]. Dies gilt insbesondere für die KPZ-Klasse,

deren Skalenverhalten bei Schichtwachstumsvorgängen nur in wenigen Fällen beobachtet werden kann [Kar96]. Wird bei einem Schichtwachstumsprozess ein Wachstumsverhalten beobachtet, welches nicht im Rahmen der bekannten Universalitätsklassen liegt, lässt dies zwei mögliche Erklärungen zu:

1. Das experimentell beobachtete Skalenverhalten entspricht nicht dem asymptotischen Verhalten des jeweiligen Systems für große Zeiträume und Längenskalen. In diesem Fall können asymptotisch nicht relevante Terme das beobachtete transiente Systemverhalten entscheidend prägen.
2. Die genannten Annahmen lassen sich bei dem beobachteten System nicht ohne weiteres treffen. Hierbei kommt insbesondere die Existenz nichtlokaler Wechselwirkungen in Frage. Nichtlokal bedeutet in diesem Fall, dass die Entwicklung der Oberflächenform $h(\mathbf{x}, t)$ nicht nur von der Form von h lokal an der Stelle \mathbf{x} abhängt, sondern zusätzlich von der globalen Form von $h(\mathbf{x})$ beeinflusst wird. Die Bandbreite an möglichen Skalenverhalten unter Einfluss nichtlokaler Phänomene ist bis jetzt noch nicht umfassend untersucht worden. Existierende Arbeiten zu einzelnen nichtlokalen Modellen legen jedoch nahe, dass sich hierdurch eine ungleich größere Variation von Skalenverhalten eröffnet [Dro00a, Kar09] als durch die bekannten Universalitätsklassen.

2.3.3. Transientes Verhalten lokaler Modelle

Bei den meisten Wachstumsgleichungen mit mehreren Termen unterscheidet sich das anfängliche Systemverhalten vom asymptotischen Verhalten, da bei glatten Anfangsbedingungen in der Anfangsphase der Strukturentwicklung andere Gleichungsterme dominieren als im Stadium fortgeschrittener Strukturentwicklung. So zeigt Gleichung (2.2) zu Beginn das Skalenverhalten von Gleichung (2.1) [Ama92, Oli06], da der nichtlineare Gleichungsterm erst bei größeren Gradienten der Oberflächenfunktion $h(\mathbf{x})$ Bedeutung erlangt.

Besonders deutlich zeigt sich dieses Phänomen bei Modellen mit destabilisierenden Komponenten. Das einfachste und sehr weitreichend untersuchte Modell dieser Art stellt die KURAMOTO-SIVASHINSKY-Gleichung (KS-Gleichung) dar [Kur76, Siv77]:

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\nu \nabla^2 h(\mathbf{x}, t) - \kappa \nabla^4 h(\mathbf{x}, t) + \frac{\lambda}{2} (\nabla h(\mathbf{x}, t))^2 + \eta(\mathbf{x}, t). \quad (2.8)$$

Diese Gleichung und Varianten von ihr [May99] werden zur Beschreibung von Wachstumsprozessen herangezogen, bei denen das Wachstum beispielsweise durch Ionenbeschuss [Sig73, Bra88] destabilisiert wird.

Das Wachstumsverhalten von Gleichung (2.8) zeichnet sich durch eine vorübergehend instabile Strukturentwicklung aus. Der $\nabla^2 h$ -Term bewirkt in Kombination mit dem $\nabla^4 h$ -Term ein instabiles Wachstum für Wellenlängen $l > \sqrt{\frac{\nu}{\kappa}}$ [Uen05], was im 2+1-dimen-

2. Literaturübersicht

sionalen³ Fall zur Entstehung von Kappen in der Oberflächenstruktur führt. Der $(\nabla h)^2$ -Term stabilisiert mit wachsenden Strukturamplituden das Wachstum, wodurch die Strukturentwicklung für große Längen und Zeiten in eine KPZ-Charakteristik übergeht [Sne92], während auf der Längenskala der Instabilität eine chaotische Entwicklung der Kappenstruktur zu beobachten ist [Mun06].

Infolge dieser Instabilität zeigt das durch Gleichung (2.8) beschriebene System vorübergehend einen stärkeren Anstieg der Rauigkeit, als dies bei lokalen Modellen ohne Instabilität möglich ist ($\beta > 0.5$) [Dro99]. Diese instabile Phase dauert jedoch nur sehr kurze Zeit an. Durch zusätzliche nichtlineare Terme ergibt sich eine länger andauernde instabile Phase [Rai01], wobei sich jedoch auch der Anstieg der Rauigkeit verlangsamt.

Gleichung (2.8) und erweiterte Varianten werden vereinzelt zur Beschreibung von Schichtwachstumsvorgängen eingesetzt [May99, Rai00] – jedoch beschränkt sich das untersuchte Wachstum oft auf den transienten Bereich der Strukturentwicklung. Ob eine Übereinstimmung zwischen dem experimentell untersuchten Wachstum und dem Modell über diesen kurzen Zeitraum hinaus besteht ist meist ungewiss.

2.3.4. Nichtlokale Wechselwirkungen

Bei Schichtwachstumsvorgängen spielen zwei Arten von nichtlokalen Wechselwirkungen eine potentielle Rolle:

Wechselwirkungen im Inneren der wachsenden Schicht

Diese lassen sich in Kontinuumsmodellen trotz ihrer nichtlokalen Natur durch eine Transformation der Problembeschreibung in den Frequenzbereich integrieren [Gia01, Gia02]. Zurückgehend auf [Mul59] lässt sich eine allgemeine lineare Wachstumsgleichung im Fourier-Raum formulieren (deterministische Version ohne stochastischen Term):

$$\frac{\partial H(k)}{\partial t} = -\nu_1 k H(k, t) - \nu_2 k^2 H(k, t) - \nu_3 k^3 H(k, t) - \nu_4 k^4 H(k, t) - \dots \quad (2.9)$$

Die Terme mit geraden Exponenten von k beschreiben die lokalen Transportprozesse entsprechend der $\nabla^2 h$ - und $\nabla^4 h$ -Terme in Gleichung (2.1) und (2.4). Mit den Termen ungerader Ordnung lassen sich verschiedene nichtlokale Prozesse modellieren. Der ν_1 -Term beschreibt den Einfluss von viskosem Fließen des Schichtmaterials auf die Topographieentwicklung [Her50, Mul59] während der ν_3 -Term den Einfluss von Volumendiffusion auf die Oberflächenentwicklung wiedergibt [Zha00].

³Die Dimensionalität eines Grenzflächenproblems wird hier in der üblichen Form $X+1$ angegeben, wobei X die Dimensionalität der Grenzfläche wiedergibt, während das Wachstum im übergeordneten $X+1$ -dimensionalen Raum erfolgt

Weiterhin können Eigenspannungen in der wachsenden Schicht eine Auswirkung auf die Strukturentwicklung haben, da durch eine stärker strukturierte Oberfläche Spannungen auf Kosten höherer Oberflächenenergie abgebaut werden können. Dieses Phänomen wurde zuerst beim Wachstum kristalliner Materialien beobachtet [Asa72, Gri93, Sro89] und wird üblicherweise als ASARO-TILLER-GRINFELD-SROLOVITZ-Instabilität bezeichnet. Eine solche Instabilität kann in ähnlicher Form jedoch auch bei amorphen Schichten auftreten [Ros00]. Dieses Phänomen wird im Allgemeinen ebenfalls über lineare Terme im Frequenzraum beschrieben [Ros00, Rai01] wobei für den Materialtransport von Oberflächendiffusion ausgegangen wird.

Materialtransport im Raum über der wachsenden Schicht

Bei der PECVD-Beschichtung wird das Schichtmaterial wie in Abschnitt 2.2 beschrieben in Form eines gasförmigen Prekursors in die Beschichtungskammer eingeleitet. Dem eigentlichen Depositionsprozess ist damit der Transport der zu deponierenden Materie von der Einlassöffnung zur Substratoberfläche vorgelagert. Dieser kann, da er durch die Oberflächenform $h(\mathbf{x}, t)$ als Randbedingung geprägt wird, einen nichtlokalen Einfluss der Oberflächentopographie auf den Depositionsstrom bewirken selbst wenn der Transportvorgang an sich lokaler Natur ist.

Je nach Art und Zustand des Mediums, aus welchem die Deposition erfolgt, können verschiedene Transportmechanismen von Bedeutung sein:

1. Diffusion im Raum über der wachsenden Grenzfläche spielt bei einer Vielzahl von Wachstumsprozessen eine Rolle für die Entwicklung der Grenzflächenform. Dies betrifft die Kristallisation von Feststoffen aus der Schmelze [Mul64] ebenso wie die Abscheidung fester Substanzen aus einer Lösung [Mat84, Saw86] oder einem Gasgemisch [Lib05]. Wirkt Diffusion als Transportprozess zur Bildung der Schicht werden Aufwölbungen der Oberfläche besser mit Material versorgt als Vertiefungen, in denen die Diffusion durch die umgebende Oberflächentopographie stärker eingeschränkt wird. Wie MULLINS und SEKERKA gezeigt haben [Mul63], wirkt der Diffusionsprozess deshalb destabilisierend auf den Wachstumsvorgang.
2. Konvektion tritt meist in Verbindung mit Diffusion auf. Beide Effekte lassen sich experimentell oft nur schwer separieren [Tri01]. Die Wirkung von konvektivem Materialtransport ähnelt der von Diffusion, da hier ebenfalls der Transport zu Vertiefungen in der Oberflächenstruktur durch die Umgebung eingeschränkt wird.
3. Ballistischer Transport ist in den Fällen von Bedeutung, in denen die Deposition aus einem stark verdünnten Gas erfolgt, in welchem der Materialtransport auf der für die Strukturentwicklung relevanten Längenskala überwiegend stoßfrei und damit ballistisch erfolgt. Dies ist der Fall, wenn die mittlere freie Weglänge der Partikel l deutlich größer ist, als die betrachteten Oberflächenstrukturen, quantifiziert durch

2. Literaturübersicht

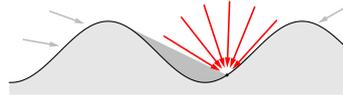


Abbildung 2.2: Selbstabschattung der Oberflächentopographie bei geradliniger Teilchenbewegung mit flachem Einfallswinkel

die Rauigkeit w und die Korrelationslänge ξ (vgl. Abschnitt 3.4), also

$$l \gg w \quad (2.10)$$

$$l \gg \xi. \quad (2.11)$$

Auch in diesem Fall wirkt der Transportprozess destabilisierend auf die Topographieentwicklung, da auch der ballistische Transport Vertiefungen in der Oberflächenstruktur schlechter erreicht als Vorsprünge.

2.3.5. Geometrische Selbstabschattung der Oberflächentopographie

Der ballistische Materialtransport führt an einer strukturierten Oberfläche zum Phänomen der Selbstabschattung wie in Abbildung 2.2 gezeigt. Bewegen sich Teilchen des Depositionstroms auf der Größenskala der Oberflächenstrukturen geradlinig, können bei flachem Einfallswinkel nicht alle Bereiche der Oberfläche von einem einfallenden Teilchen erreicht werden.

Da sich auch die destabilisierende Wirkung von diffusivem Materialtransport als Abschattungseffekt interpretieren lässt [Wit81], spricht man im ballistischen Fall auch von *geometrischer Abschattung* [Bar95].

Geometrische Selbstabschattung wurde zuerst im Rahmen einfacher abstrakter Monte-Carlo-Modelle als potentiell bedeutungsvoller Effekt bei Wachstumsvorgängen identifiziert [Ben84, Mea86, Joa87]. Derartige Modelle weisen eine große Ähnlichkeit mit Modellen für das diffusionsbegrenzte Wachstum auf (vgl. Abschnitt 2.3.2) – nur dass die Simulation der Diffusion als zufällige Bewegung der Materiepakete (engl.: *random walk*) hier durch eine geradlinige Bewegung ersetzt wird.

Da wie bei Modellen für das diffusionsbegrenzte Wachstum kein Materialtransport auf der Oberfläche des wachsenden Aggregates berücksichtigt wird, lassen sich mit dieser Methode Schichtwachstumsprozesse nicht realistisch beschreiben. Jedoch wird bereits anhand dieser einfachen Ansätze deutlich, dass der Winkelverteilung, mit welcher die Teilchen des Depositionstroms auf die Oberfläche treffen, eine große Bedeutung zukommt. Trifft der Depositionstrom senkrecht auf das Substrat, wie im Fall von ionenstrahlbasierten Beschichtungsverfahren bei entsprechender Ausrichtung, findet unabhängig von der Form der Oberfläche keine Abschattung statt, vorausgesetzt die Oberfläche ist frei von Überhängen. Bei nicht senkrechtem Teilcheneinfall spielt geometrische Abschattung dann eine Rolle, wenn für den Einfallswinkel θ (siehe Abbildung 2.3) und die maximale Neigung der Ober-

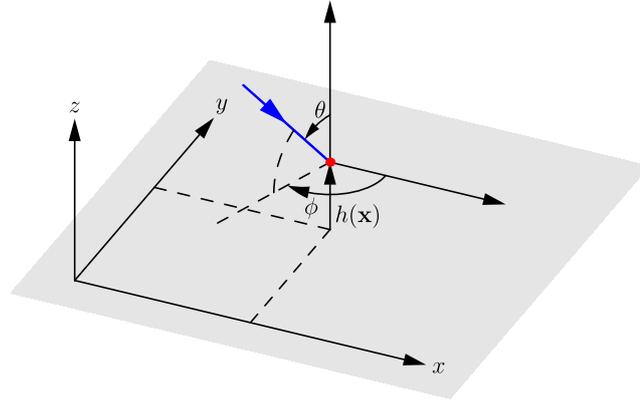


Abbildung 2.3: Geometrie der Deposition mit schrägem Teilcheneinfall mit Definition der verwendeten Winkelgrößen θ und ϕ

flächentopographie s_{\max} gilt [Car99]:

$$\tan\left(\frac{\pi}{2} - \theta\right) < s_{\max} \quad (2.12)$$

In der Praxis bedeutet dies, dass Abschattung lediglich in den Fällen das Schichtwachstum beeinflusst, in denen die Richtung des Depositionsströms zumindest teilweise stark von der Senkrechten abweicht. Der Fall der gerichteten Beschichtung unter flachem Teilcheneinfall (engl.: *glancing angle deposition*) ist sowohl experimentell [Bel95, Haw07] als auch theoretisch [Kru89] recht umfassend untersucht worden.

Für den Fall einer Deposition mit breiter Winkelverteilung haben erstmalig KARUNASIRI, BRUINSMA und RUDNICK [Kar89] eine mathematische Beschreibung im Rahmen eines Kontinuums-Modells entwickelt (KBR-Modell). Hierbei wird die Depositionsrate $R(\mathbf{x})$ als proportional zum unbedeckten Teil des Halbraums über der Stelle \mathbf{x} angenommen. Wie BALES und ZANGWILL zeigen [Bal89, Bal91] führt ein gegenüber diesem einfachen Ansatz verfeinertes Modell, bei welchem die Orientierung der Oberfläche in den Depositionsterm mit eingeht, zu einem vom KBR-Modell abweichenden Wachstumsverhalten. Beide Modelle werden weit verbreitet zur Modellierung von Schichtwachstumsvorgängen verwendet [Yao93, Dro00b]. Der Vorteil des KBR-Modells liegt vor allem in der numerisch einfacheren Handhabung [Bal90]. Inwiefern sich Erkenntnisse aus dessen Untersuchung jedoch auf das Wachstum unter Abschattung generell verallgemeinern lassen, ist unklar.

Da die Berechnung der Abschattung im Rahmen einer Kontinuumsbeschreibung mit einem im Vergleich zu lokalen Modellen hohem numerischen Aufwand verbunden ist, beschränken sich die meisten Arbeiten auf die Untersuchung des 1+1-dimensionalen Falls. Für die Simulation von Abschattung in 2+1 Dimensionen kommen fast ausschließlich diskrete Monte-Carlo-Modelle (siehe Abschnitt 2.3.2) zur Anwendung. Die wenigen Ausnahmen hiervon [Yao93, Tur10] sind auf kleine räumliche Dimensionen (Gittergrößen von maximal 128×128 Punkten, vgl. Abschnitt 2.3.6) beschränkt.

Grundsätzlich ergibt sich bei einer isotropen Verteilung der Teilchenbewegungen im Raum

2. Literaturübersicht

für den Depositionsstrom eine Verteilung der Ursprungsrichtungen der Form $\cos \theta$ während umgekehrt ein isotrop verteilter Depositionsstrom einer $\frac{1}{\cos \theta}$ Winkelverteilung der Teilchentrajektorien entspricht [Yu02].

Im Allgemeinen besteht also zwischen der Winkelverteilung der Teilchentrajektorien in Abhängigkeit von der Einfallrichtung (ϕ, θ) (vgl. Abbildung 2.3) $P_t(\phi, \theta)$ und der Winkelverteilung des Depositionsstroms $P_s(\phi, \theta)$ die Beziehung

$$P_s(\phi, \theta) = \cos \theta P_t(\phi, \theta). \quad (2.13)$$

Da im Rahmen dieser Arbeit der Wachstumsprozess im Vordergrund steht, beziehen sich Winkelverteilungen im Weiteren immer auf den Materialtransportstrom, also $P(\phi, \theta) = P_s(\phi, \theta)$. Andere Arbeiten zur Abschattung verwenden teilweise andere Definitionen.

Theoretische Untersuchungen zum Schichtwachstum unter Abschattung gehen von verschiedenen Annahmen zur Winkelverteilung aus. Bales und Zangwill gehen in Ihrem Modell von einer isotropen Teilchenbewegung im Raum und entsprechend $P_s(\phi, \theta) = \cos \theta$ aus während das KBR-Modell und hierauf basierende Arbeiten für den Grenzfall einer ebenen Oberfläche einer Verteilung $P_s(\phi, \theta) = \text{const}$ entsprechen [Yao92].

Bei Sputterprozessen entspricht die Winkelverteilung des Depositionsstroms im Fall von geringem Gasdrücken direkt der Richtungsverteilung, welche aus dem Sputtervorgang am Target resultiert. Diese ist experimentell bereits recht umfassend untersucht worden [Ste61, Rö74, Wuc88]. Bei höheren Prozessdrücken wie auch bei Abscheidung aus der Gasphase sind die Verhältnisse komplizierter. Neben der experimentellen Beobachtung, beispielsweise durch die Analyse der Depositionsverteilung unterhalb einer Öffnung in der Elektrode [Hop99, Hop00] besteht auch die Möglichkeit, den Materialtransport mittels Monte-Carlo-Modellen zu simulieren [Kus85, Tho88]. Entsprechende Simulationen ermöglichen unter anderem die Ermittlung der Winkelverteilung des Teilchenstroms [Man91, Bog95]. Da derartige Modelle die Physik des Plasmas jedoch nur sehr unvollständig abbilden, sind die hiermit bestimmten Richtungsverteilungen mit einer großen Unsicherheit behaftet.

2.3.6. Lösung der Wachstumsgleichung

Zusammen mit einer Ausgangstopographie

$$h(\mathbf{x}, t_0) = h^{(a)}(\mathbf{x}) \quad (2.14)$$

als Anfangsbedingung beschreibt eine lokale Wachstumsgleichung wie Gleichung (2.1), (2.2) oder (2.4) das Modellsystem vollständig. Allerdings lassen sich Aussagen zur Existenz und Eindeutigkeit von Lösungen aufgrund der stochastischen Komponente nur im statistischen Mittel treffen.

Eine Lösung lässt für lineare Modelle im Fourier-Raum analytisch bestimmen. Im Fall der Edwards-Wilkinson-Gleichung (2.1) lässt sich die partielle Differentialgleichung durch

Fourier-Transformation in eine gewöhnliche Differentialgleichung im Fourier-Raum umwandeln [Ant96]:

$$\frac{\partial H(\mathbf{k})}{\partial t} = -\nu k^2 H(\mathbf{k}, t) + \tilde{\eta}(\mathbf{k}, t) \quad (2.15)$$

Die Lösungen dieser Differentialgleichung lassen sich mit den Fourier-transformierten Anfangsbedingungen $H(\mathbf{k}, 0)$ formulieren als

$$H(\mathbf{k}, t) = e^{-\nu k^2 t} H(\mathbf{k}, 0) + \int_0^t \tilde{\eta}(\mathbf{k}, \tau) e^{-\nu k^2 (t-\tau)} d\tau. \quad (2.16)$$

Numerische Lösung mittels Finiter Differenzen

Im Allgemeinen entziehen sich die Wachstumsgleichungen jedoch einer analytischen Betrachtung, weshalb eine numerische Herangehensweise notwendig wird. Der meistverbreitete Ansatz hierfür besteht in der Methode der *Finiten Differenzen*. Allerdings besteht auch für die numerischen Herangehensweise die Möglichkeit einer Lösung im Fourier-Raum, was als *pseudospektraler Ansatz* bezeichnet wird [Gia02, Gal07].

Die Methode der Finiten Differenzen erfordert eine räumliche Diskretisierung des Simulationsraums. Hierfür wird die kontinuierliche Oberflächenfunktion $h(\mathbf{x}, t)$, $\mathbf{x} = (x, y) \in \mathbb{R}^2$ innerhalb des Gebietes $[0, L]$ auf die Werte an diskreten Gitterpunkten

$$\mathbf{x}_{ij} = (x_i, y_j) \quad \text{mit } x_i = x_0 + i \cdot d_x, \quad y_j = y_0 + j \cdot d_y \quad i, j \in [0, N] \quad (2.17)$$

reduziert:

$$h_{ij}(t) = h(\mathbf{x}_{ij}, t) \approx h(\mathbf{x}, t). \quad (2.18)$$

Die Diskretisierung wird in den meisten Fällen isotrop gewählt, also $d_x = d_y = d$. In diesem Fall gilt $L = Nd$.

Entsprechend der diskreten Beschreibung der Oberflächenform $h_{ij}(t)$ werden ebenso die Anfangsbedingungen in diskreter Form festgelegt:

$$h_{ij}^{(a)} = h^{(a)}(\mathbf{x}_{ij}, t_0) \quad (2.19)$$

Auf Basis einer derartigen Diskretisierung der Oberflächenbeschreibung lassen sich nun die räumlichen Ableitungen der Modellbeschreibung durch Differenzenquotienten annähern.

2. Literaturübersicht

Diese lassen sich aus einer Taylor-Reihe herleiten woraus sich auch der Fehler der Näherung abschätzen lässt [Ric11]. Für die erste Ableitung in x -Richtung gilt beispielsweise

$$\frac{\partial h}{\partial x} = \frac{h(x+d, y) - h(x-d, y)}{2d} + \mathcal{O}(d^2). \quad (2.20)$$

Dieses Prinzip lässt sich auf höhere Ableitungen und mehrdimensionale Differentialoperatoren erweitern. So lautet die entsprechende Näherung für den 2D-LAPLACE-Operator

$$\begin{aligned} \nabla^2 h &= \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 h}{\partial y^2} \\ &= \frac{h(x+d, y) + h(x, y+d) + h(x-d, y) + h(x, y-d) - 4h(x, y)}{d^2} + \mathcal{O}(d^2). \end{aligned} \quad (2.21)$$

Analog lassen sich auch Approximationen anderer Ableitungen über Differenzenquotienten formulieren [Bic48].

Zeitdiskretisierung

Durch die Finite-Differenzen-Diskretisierung wird die partielle Differentialgleichung des Wachstumsmodells durch gewöhnliche Differenzialgleichungen approximiert. Deren Lösung und damit die Bestimmung der zeitlichen Entwicklung des Modells erfolgt oft mit einer einfachen EULER-Diskretisierung, genauso können aber auch Verfahren höherer Ordnung wie beispielsweise RUNGE-KUTTA-Verfahren [But96, Bur96] oder Mehrschrittverfahren [Buc07] verwendet werden.

Diskretisierung der stochastischen Komponenten

Für die stochastische Komponente η wird im Allgemeinen ein normalverteiltes, räumlich und zeitlich unkorreliertes Rauschen angenommen mit einem Mittelwert $\langle \eta \rangle = 0$ und einer Kovarianz

$$\langle \eta(\mathbf{x}, t) \eta(\mathbf{x}', t') \rangle = 2D \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \delta(t - t'). \quad (2.22)$$

Für die numerische Lösung der Wachstumsgleichung muss dieser stochastische Term über die Gitterzelle im Finite-Differenzen-Schema d^2 sowie über den Zeitschritt Δt integriert werden wodurch sich die diskretisierte stochastische Komponente ergibt [Rai00]:

$$R_d(d, \Delta t) = \sqrt{\frac{2D\Delta t}{d^2}} r_n, \quad (2.23)$$

wobei r_n eine normierte normalverteilte Zufallszahl mit Mittelwert $\langle r_n \rangle = 0$ und Standardabweichung $\sigma_r = 1$ darstellt, welche sich aus üblichen gleichmäßig verteilten Zufallszahlen über Transformationen wie die BOX-MUELLER-Methode [Box58] oder die Ziggurat-Methode [Mar00] erzeugen lässt.

2.4. Plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung

Plasmaunterstützte CVD-Prozesse arbeiten in den meisten Fällen bei geringen Gasdrücken (etwa 0.1 bis 10 Pa) obwohl auch Anwendungen mit höheren Drücken bis hin zu Atmosphärendruck existieren [Kan88, Saw95]. Als Energiequelle für die Erzeugung und Aufrechterhaltung des Plasmas dient ein elektromagnetisches Feld, entweder in Form eines Gleichspannungsfeldes (*DC-Plasma*, gepulst) oder in Form eines induktiv [Eck62, Hop92] oder kapazitiv gekoppelten Hochfrequenz-Feldes [Rei79, Tho83].

Das Plasma entsteht nach Aufbau des elektromagnetischen Feldes nach dem Prinzip einer Glimmentladung [Jon53]. Durch thermische Prozesse vorhandene Ladungsträger werden durch das Feld beschleunigt und produzieren durch Stoßionisation weitere Ladungsträger bis ein Gleichgewicht zwischen Ionisation und Rekombination erreicht ist.

Bei den in dieser Arbeit behandelten kapazitiv gekoppelten Hochfrequenz-Entladungen steht die Bewegung der Elektronen im Vordergrund, da diese aufgrund ihrer geringeren Masse eine wesentlich höhere Geschwindigkeit erreichen als die Ionen. Die Chemie des Plasmas, also die Entstehung neuer chemischer Spezies aus den Prekursor-Molekülen, insbesondere die Bildung von Ionen und Radikalen, wird durch die inelastischen Stöße der Elektronen mit den Molekülen geprägt. Anders als bei klassischer CVD-Technik befindet sich das Gas nicht im thermischen Gleichgewicht. Es erfolgt nur ein begrenzter Energieaustausch zwischen den Elektronen und den Gasmolekülen, so dass die Elektronentemperatur um Größenordnungen oberhalb der Gastemperatur liegt [Cha80].

Durch die im Plasma gebildeten reaktiven Teilchen kommt es bei geeigneter Gaszusammensetzung zu einer Deposition von Schichten an allen Oberflächen in der Plasmakammer. Zusätzlich zu diesem auf Diffusion der reaktiven Spezies basierendem Prozess bewirkt die unterschiedliche Mobilität der Elektronen und Ionen, dass sich die Wände der Plasmakammer negativ aufladen während das Plasmavolumen einen positiven Ladungsüberschuss aufweist. Zwischen Plasmavolumen und den Kammerwänden bildet sich eine Zone mit reduzierter Konzentration von Ladungsträgern, *Plasmarandschicht* oder *Dunkelraum* genannt [But63].

Durch den elektrischen Potentialabfall über der Plasmarandschicht kommt es neben der Diffusion der Neutralteilchen zu den Kammerwänden zu einen Ionenfluss in Richtung aller

2. Literaturübersicht

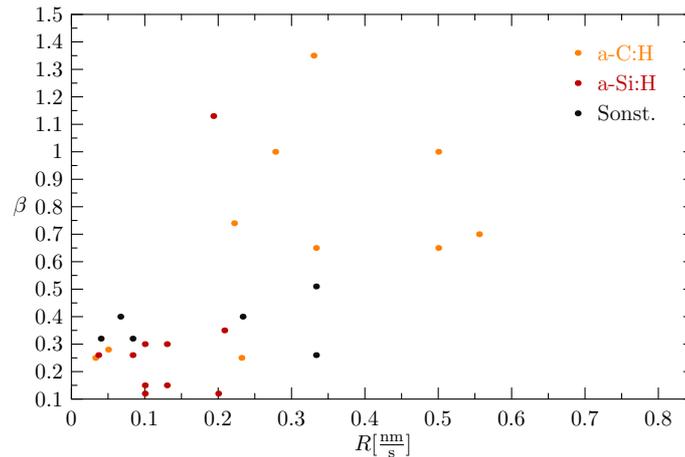


Abbildung 2.4: Aus der Literatur bekannte Werte für den Exponenten des Rauigkeitsanstiegs (Wachstumsexponent β entsprechend Gleichung (2.5)) bei (PE)CVD-Prozessen, aufgetragen über der Wachstumsrate der Schicht. Die dargestellten Werte stammen aus den Quellen [Col94, Tan97, Oje00, Zha00, Bra01, Kar02, Dum02, Dal05, Zor06, Bor07, Bui08, Bal08, Lee08, Wan09].

dem Plasma ausgesetzten Oberflächen. Wenn, wie im hier behandelten Fall, die Elektroden unterschiedliche Größen aufweisen, entsteht an der kleineren Elektrode ein größerer Potentialabfall [Koe70], welcher zu höheren Ionenenergien führt, was für die Steuerung der Schichteigenschaften bei der PECVD-Beschichtung genutzt werden kann.

Die genauen Mechanismen der Schichtabscheidung hängen stark von den verwendeten Prekursoren und den Abscheidebedingungen ab. Die mittels PECVD-Verfahren bei niedrigen Temperaturen abgeschiedenen Schichten weisen aufgrund der Nicht-Gleichgewichtsbedingungen bei der Deposition im Allgemeinen eine amorphe Struktur auf.

Das Schichtwachstum, insbesondere die Entwicklung der Oberflächenstruktur, wurde bereits bei einer Vielzahl von PECVD-Prozessen mit unterschiedlichen Prekursoren und Schichtzusammensetzungen sowie bei unterschiedlichen Depositionsbedingungen untersucht. Die Ergebnisse unterscheiden sich im beobachteten Wachstum erheblich voneinander. Abbildung 2.4 zeigt den aus der Rauigkeitsentwicklung gemäß Gleichung (2.5) bestimmten Wachstumsexponenten β aus einer Auswahl von Wachstumsuntersuchungen in Abhängigkeit von der Wachstumsrate der Schicht. Die untersuchten Prozesse arbeiten auf Basis unterschiedlicher Prekursoren (Silan, Methan, Buten, Xylol und Derivate, Tiisopropoxid, Octafluorocyclobutan), dem Verfahren der Plasmaerzeugung (kapazitiv und induktiv gekoppeltes Plasma - 13.56 MHz und 40 MHz, Mikrowellenverfahren, thermische CVD ohne Plasma) sowie den Abscheidebedingungen. Die beobachteten Werte für β liegen zwischen weniger als 0.2 bis zu Werten über 1.0 und damit zum Teil deutlich außerhalb des Bereiches, welcher durch die bekannten lokalen Wachstumsmodelle (siehe Abschnitt 2.3.2) abgedeckt wird. Die meisten dieser Untersuchungen decken jedoch nur einen kleinen Schichtdickenbereich ab. Insbesondere im Bereich geringer Wachstumsraten wurden meist nur Schichten bis zu einigen hundert Nanometern Schichtdicke untersucht [Tan97, Bal08]. In diese Fällen ist es wahrscheinlich, dass das beobachteten Wachstum nur einen vorüber-

gehenden Teil der Wachstumscharakteristik wiedergibt.

Abhängig vom jeweils beobachteten Wachstum werden unterschiedliche Modellansätze zur Erklärung herangezogen. Bei großen Werten für β stellt die Destabilisierung durch geometrische Abschattung einen häufig verwendeten Ansatz dar [Col94, Oje00, Kar02].

2.5. Diamantähnliche Kohlenstoffschichten

Unter den Schichttypen, welche mittels PECVD-Verfahren abgeschieden werden können, beschäftigt sich diese Arbeit vor allem mit wasserstoffhaltigen diamantähnlichen Kohlenstoffschichten (engl.: *(hydrogenated) diamond like carbon – DLC*), auch a-C:H genannt. Diese Modifikation des Kohlenstoffs nimmt eine Mittelstellung zwischen den in der Natur vorkommenden Varianten Graphit und Diamant sowie den Polymeren ein [Rob02].

Die ersten Untersuchungen zu amorphen Schichten aus Kohlenstoff resultierten aus der Beobachtung der Entstehung von Kohlenstoffschichten als unerwünschter Nebeneffekt bei Vakuumexperimenten [Kö51, Hei58]. Die Entstehung von Diamantbindungen bei der Abscheidung derartigen Schichten wurde zuerst von SCHMELLENMEIER [Sch55] beobachtet.

Neben der PECVD-Technik existieren verschiedene andere Verfahren zur Erzeugung von diamantähnlichen Kohlenstoffschichten. Im Falle von wasserstofffreien Varianten sind hier vor allem Sputter-Verfahren [Log96] und verschiedene Ionenstrahl-Techniken [Ais71, Loc91] zu nennen. Für wasserstoffhaltige Schichten kommt neben reaktiven Sputtertechniken [Jan85] auch das Sputtern mit Polymer-Targets [Bie00] in Frage. Ebenfalls möglich ist die Kombination verschiedener Techniken [Mit91].

Die Abscheidung von a-C:H Schichten mittels PECVD-Verfahren erfolgt auf Basis von gasförmigen Kohlenwasserstoffen. Diese werden durch Stöße im Plasma teilweise in kleinere Kohlenwasserstofffragmente zerlegt oder ionisiert. Für die Bildung einer harten, diamantähnlichen Schicht mit einer Mischung aus sp^2 und sp^3 Kohlenstoffbindungen ist nach derzeitigem Kenntnisstand das Bombardement der Schichtoberfläche mit energiereichen Ionen verantwortlich. Durch einen sogenannten *Subplantationprozess* kommt es hierbei zur Bildung der sp^3 -Bindungen unterhalb der Oberfläche der wachsenden Schicht [Lif90, Uhl98] – die Details dieses Vorgangs, insbesondere auch für wasserstoffhaltige Schichten [Mur10], sind jedoch nach wie vor Gegenstand intensiver Diskussion [Rob02, Rob05].

Das Schichtwachstum erfolgt jedoch nicht ausschließlich auf Basis der Kohlenwasserstoffionen. Abschätzungen ergeben, dass die Ionen nur einen geringen Anteil am gesamten Depositionsstrom ausmachen und den Neutralteilchen eine große Bedeutung zukommt [Pet07]. Die Anteile hängen jedoch stark von den verwendeten Prekursoren ab. An der Oberfläche einer wachsenden a-C:H-Schicht sind die freien Bindungen der Kohlenstoffatome weitgehend mit Wasserstoffatomen abgesättigt [Rob02, Ney07]. Abbildung 2.5 skizziert dieses Bild für einen PECVD-Prozess auf Methan-Basis. Ob es sich bei den auf der wachsenden Schicht deponierten Neutralteilchen in erster Linie um Radikale handelt, welche an frei-

2. Literaturübersicht

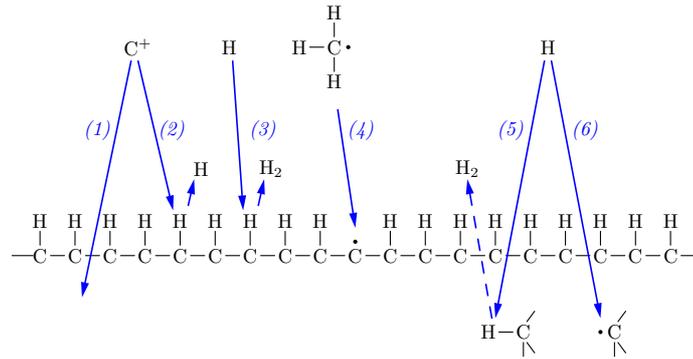


Abbildung 2.5: Oberflächenreaktionen bei der PECVD-Abscheidung von a-C:H entsprechend [Ney07]. Bei den dargestellten Prozessen handelt es sich um Ionen-Subplantation (1), Erzeugung freier Bindungen an der Oberfläche durch Ionenbeschuss (2), Erzeugung freier Bindungen an der Oberfläche durch Wasserstoff-Radikale unter Bildung von molekularem Wasserstoff (3), Anbindung von Kohlenwasserstoffradikalen an freien Bindungen an der Oberfläche (4), Erzeugung freier Bindungen unterhalb der Oberfläche durch Wasserstoff-Radikale unter Bildung von molekularem Wasserstoff (5) und Repassivierung freier Bindungen unterhalb der Oberfläche durch Wasserstoff (6).

en Bindungen direkt an die Kohlenstoffmatrix angebonden werden wie in der Abbildung skizziert oder um zunächst lose über VAN DER WAAL'sche Wechselwirkungen adsorbierte Prekursor-Moleküle, welche erst später über den Ionenbeschuss in die a-C:H-Matrix eingebaut werden, ist unklar. Für Methan wird die Adsorption im Allgemeinen als vernachlässigbar angenommen [Mö93] – für andere, insbesondere deutlich größere Prekursor-Moleküle kann hiervon jedoch nicht ausgegangen werden.

In vielen Anwendungen wird das Kohlenwasserstoffgas durch ein Inertgas – in den meisten Fällen Argon – verdünnt [Kim03]. Diese Maßnahme dient der Stabilisierung der Plasma-Entladung und stellt eine zusätzliche Möglichkeit dar, die Depositionsbedingungen zu variieren.

Die abgeschiedenen Schichten können je nach Depositionsbedingungen sehr unterschiedliche Eigenschaften aufweisen. Eine grobe Klassifikation findet sich in [Cas05]. Chemisch sind a-C:H-Schichten aus einem amorphen Netzwerk von Kohlenstoffatomen aufgebaut, in welchem ein mehr oder weniger großer Anteil der Bindungen der Kohlenstoffatome durch Wasserstoffatome abgesättigt wird. Bei großen Wasserstoffanteilen führt dies trotz hohen sp³-Bindungsanteilen zu relativ weichen Schichten. Schichten mit einem hohem Anteil von sp³ C-C-Bindungen und gleichzeitig geringem Wasserstoffanteil zeigen hingegen eine hohe Härte von bis zu 50 GPa.

a-C:H-Schichten weisen wie andere Formen von DLC eine gute chemische Beständigkeit auf, zeigen jedoch nur eine geringe Beständigkeit gegenüber erhöhten Temperaturen. Unter sauerstoffhaltiger Atmosphäre kommt es ab 200°C zu Oxidation [Wu99] während im Vakuum ab etwa 400°C unter Ausgasung von Wasserstoff zunächst ein Anstieg der sp²-

Anteile auf Kosten der sp^3 -Anteile und bei höheren Temperaturen eine Umwandlung in Graphit einsetzt [Nad84, Kni91].

Diamantähnliche Kohlenstoffschichten weisen in fast allen untersuchten Fällen mit nur wenigen Ausnahmen [Jia89, Pen98a] erhebliche Druckeigenstressungen von bis zu mehr als 10 GPa auf [Nir87]. Diese Spannungen entstehen während des Abscheidungsprozesses und nehmen mit wachsender Schichtdicke zu, was in vielen Fällen die erreichbaren Schichtdicken begrenzt [Hai07]. Die genauen Mechanismen, welche zur Entstehung dieser Eigenstressungen führen, sind noch nicht geklärt, jedoch scheinen bei der PECVD-Abscheidung sowohl der Ionenbeschuss während der Deposition als auch die verwendeten Kohlenwasserstoffe einen großen Einfluss hierauf zu haben [Pen98b].

2.6. Das Wachstum von DLC-Schichten auf Basis von Toluol

Als Kohlenwasserstoffbasis für die Abscheidung von a-C:H-Schichten mittels PECVD-Technik kommen in den meisten Fällen Methan (CH_4) [Kli89, Sun00] und Azetylen (C_2H_2) [Vas77, Gri90, Doy97] zum Einsatz. Ein Grund hierfür liegt in der einfachen Handhabung dieser Substanzen. Insbesondere bei Methan spielt aber auch eine große Rolle, dass die Schichtabscheidung über einen weiten Parameterbereich bezüglich Prozessdruck und elektrischer Leistung stabil möglich ist [Kli89]. Die erreichbaren Wachstumsraten liegen wiederum bei Azetylen deutlich höher als bei Methan [Fed01].

Jedoch wurden bereits in einigen frühen Experimenten aromatische Kohlenwasserstoffe, insbesondere Benzol [Hei58, Deu79], aber auch Toluol und Styrol [Goo60] zur Schichtabscheidung aus der Gasphase verwendet. Bei den hierbei produzierten Schichten handelt es sich mit wenigen Ausnahmen [Koi89, Lee94] um relativ weiche, polymerartige Typen.

Von großer Bedeutung bei der Wahl des Prekursor-Gases ist die jeweilige Ionisationsenergie der Moleküle. Wie in [Rob02] dargestellt bewirkt eine geringe Ionisationsenergie meist eine hohe Depositionsrate, weshalb sich Prozesse auf Basis von Aromaten durch eine hohe Schichtwachstumsrate auszeichnen. Auch unter den Aromaten herrschen hierbei noch erhebliche Unterschiede [Kou04]. Gleichzeitig führen die relativ großen Ionen aromatischer Kohlenwasserstoffe zu geringen Ionenenergien pro Kohlenstoffatom.

Toluol wird als Ausgangsstoff für a-C:H-Schichten im PECVD-Verfahren bis jetzt relativ wenig verwendet [Nak05, Pet10], obwohl es sich als Modellsubstanz für aromatische Kohlenwasserstoffe aufgrund seiner gegenüber Benzol geringeren Toxizität gut eignet. Untersuchungen zur Abscheidung polymerartiger Schichten auf Basis von Toluol [Kap03] zeigen, dass die überwiegende Zahl der Kohlenwasserstofffragmente im Plasma aromatischer Natur sind und sich die chemischen Reaktionen im Plasma weitgehend auf die Methylgruppe beschränken.

2. Literaturübersicht

3. Methoden

3.1. Die Abscheidung von DLC-Schichten mittels PECVD-Verfahren

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Depositionsexperimente wurde eine PECVD-Beschichtungsanlage mit runder Kammer- und Elektrodengeometrie verwendet, wie sie in der PECVD-Beschichtung weit verbreitet ist. Zur Plasmaerzeugung dient eine Hochfrequenzquelle mit einer Frequenz von 13.56 MHz, welche über ein Anpassnetzwerk an die Substratelektrode angebunden ist. Die Kammerwände bilden die Gegenelektrode. Im Gegensatz zu üblichen Kammerkonfigurationen wurde ein vollständig isolierter Aufbau verwendet, bei welchem sowohl die Kammerwände als auch die Elektrode gegenüber dem Plasma durch eine Keramikscheibe und einen Kunststoffeinsatz isoliert sind. Diese Anordnung bietet insbesondere bei längeren Beschichtungsprozessen den Vorteil, dass die Belegung der Kammerwände durch die Diffusion reaktiver Partikel aus dem Plasma nicht zu Unregelmäßigkeiten in der Entladung führt. Durch diese Maßnahme können wesentlich dickere Schichten sauber abgeschieden werden als in einer Beschichtungskammer mit metallischen Wänden.

Die Plasmakammer hat einen Innendurchmesser von 270 mm und eine Höhe von 100 mm. Der Durchmesser der Substratelektrode beträgt 170 mm. Hieraus resultiert ein Flächenverhältnis der Elektroden von $\frac{A_1}{A_2} \approx 6.26$.

Die Elektrode wurde während der Experimente auf eine Temperatur von 5°C gekühlt, insbesondere um vergleichbare Depositionsbedingungen bei kurzen und bei längeren Prozessen sicher zu stellen. Die für den Depositionsprozess entscheidende Temperatur der Substratoberfläche liegt durch den Energieeintrag aus dem Plasma und die Wärmewiderstände von Substrat und Elektrode zwar deutlich höher, bleibt durch die Kühlung jedoch über die Prozessdauer weitgehend konstant.

3.2. Schichtdickenmessung

Die Messung der Dicke der abgeschiedenen Schichten erfolgte durch die Vermessung des Höhenprofils über einer während des Beschichtungsprozesses abgedeckten Stelle der Probe. Zur Messung wurde ein mechanisches Profilometer (*Hommelwerke Tester T-5000*) verwendet.

3. Methoden

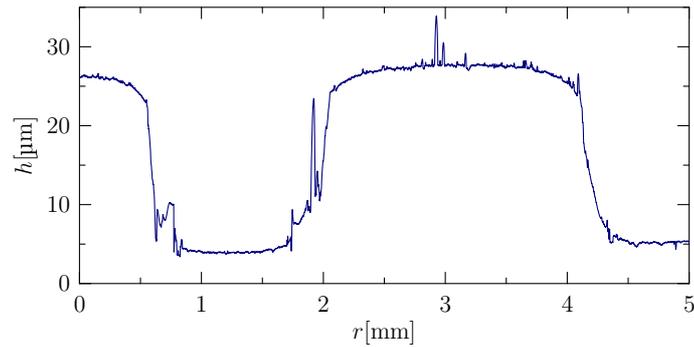


Abbildung 3.1: Mittels Profilometer ermittelter Höhenverlauf über einem abgedeckten Teil einer Probe zur Schichtdickenbestimmung

Abbildung 3.1 zeigt ein hiermit aufgenommenes Höhenprofil. In den unteren Bereichen hat die Abdeckung eine Abscheidung von Schichtmaterial verhindert, so dass das Oberflächenprofil in den dazwischenliegenden, nicht abgedeckten Bereichen aufgrund der abgedeckten Schicht hervorgehoben erscheint. Anhand des Höhenunterschiedes lässt sich die Dicke der Schicht bestimmen. Der bei der praktischen Anwendung dieses Verfahrens auftretende Messfehler liegt bei mittleren bis großen Schichtdicken bei etwa 1 Prozent, bei kleinen Schichtdicken etwas höher. Auf eine Mittelung mehrerer Messergebnisse wurde verzichtet, da die Streuung der Messwerte im Vergleich zu systematischen Abweichungen in Form von über die Probenoberfläche oder infolge der aufgetragenen Abdeckung ungleichmäßigen tatsächlichen Schichtdicke nur gering ist.

3.3. Rasterkraftmikroskopische Messungen

Das Verfahren der Rasterkraftmikroskopie (engl.: *atomic force microscopy, AFM*) [Bin86] wurde aus der Rastertunnelmikroskopie [Bin82] abgeleitet, um die Oberflächengeometrie nichtleitender Oberflächen zu vermessen. Hierbei wird eine mikroskopische Spitze, befestigt am Ende einer kleinen Blattfeder (Cantilever), über die zu vermessende Oberfläche bewegt und die Beeinflussung der Feder durch die zwischen Spitze und Oberfläche wirkenden Kräfte wird optisch bestimmt (siehe Abbildung 3.2). Mit Hilfe eines Rückkopplungskreises wird die Aufhängung der Feder, bzw. die Probe entsprechend der Oberflächenform nachgeführt. Für die Durchführung der Messung sind mehrere Betriebsarten möglich:

- Die Spitze wird in direktem Kontakt über die Oberfläche bewegt (engl.: *contact mode*). Hierbei werden relativ weiche Cantilever verwendet. Die auftretenden Kräfte und damit der Verschleiß der Spitze und die Beeinflussung der Oberfläche sind bei dieser Betriebsart am größten.
- Die Spitze wird in geringem Abstand (≈ 10 nm) über der Oberfläche zu Eigenschwingungen angeregt und die Frequenzverschiebung durch die zwischen Spitze und Oberfläche wirkenden Kräfte wird ohne eine direkte Berührung der Oberfläche detektiert

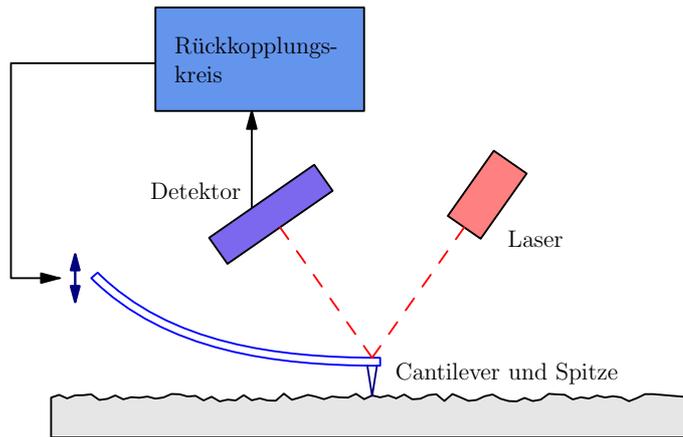


Abbildung 3.2: Arbeitsprinzip eines Rasterkraftmikroskops

(engl.: *non contact mode*). Bei dieser Variante wird gewöhnlich unter Vakuumbedingungen gearbeitet.

- Die Spitze wird in Schwingungen mit einer größeren Amplitude versetzt. Gemessen wird hierbei die Veränderung der Schwingungsamplitude durch die Wechselwirkung mit der Oberfläche (engl.: *tapping mode*).

In allen Fällen entsteht durch die Aufzeichnung der Vertikalbewegung der Spitze beim zeilenweisen Abrastern der Probe ein dreidimensionales Bild der Probenoberfläche.

Für die im Rahmen diese Arbeit durchgeführten Messungen kam ein *easyScan AFM* der Firma *Nanosurf* zum Einsatz. Gemessen wurde im *tapping mode* mit Silizium-Spitzen auf Cantilevern mit einer Federkonstante von 21 bis $98 \frac{\text{N}}{\text{m}}$.

3.4. Analyse der Oberflächentopographie

Die Oberfläche einer beschichteten Probe kann im Allgemeinen eine beliebig komplexe Form aufweisen, insbesondere wenn in der Schicht Poren oder andere Defekte auftreten. Sowohl für die rasterkraftmikroskopische Messung als auch für die mathematische Modellierung wird hier angenommen, dass die Oberfläche über den gesamten Schichtwachstumsprozess frei von Überhängen ist, also durch eine reelle Funktion der zweidimensionalen Position auf der Oberfläche

$$h(\mathbf{x}) \quad \mathbf{x} = (x, y) \in \mathbb{R}^2 \quad (3.1)$$

eindeutig beschreiben werden kann. Diese Einschränkung ist für die hier untersuchten Ausgangsstrukturen und Schichten auf den betrachteten Größenskalen unproblematisch, wie die Abschätzungen zur Spitzenfaltung gezeigt haben, welche in Abschnitt 3.4.1 beschrieben sind.

3. Methoden

Die rasterkraftmikroskopische Messung basiert wie die Simulation eines Kontinuumsmodells mit Hilfe Finiter Differenzen auf einer diskreten Approximation der Oberflächenform – hier mit identischer Diskretisierung und Ausdehnung L in beide Oberflächenrichtungen wie in Gleichung (2.18) beschrieben.

3.4.1. Messfehler und Artefakte bei der Rasterkraftmikroskopie

Durch die zeilenweise Abtastung der Oberfläche, die Charakteristik des Rückkopplungskreises und die Form der Messspitze entsprechen die rasterkraftmikroskopisch ermittelten Daten nicht exakt der tatsächlichen Topographie der Probenoberfläche. Die auftretenden Abweichungen lassen sich zum Teil durch eine Nachbearbeitung der Messdaten reduzieren.

Kompensation von Sichtfeldneigung und -krümmung

Durch das nichtlineare Verhalten der Aktuatoren zur Steuerung der Position der Messspitze wird selbst eine perfekt ebene Oberfläche vom Rasterkraftmikroskop leicht gekrümmt abgebildet. Wenn die Probenoberfläche nicht parallel zur Abtastebene des Mikroskops ausgerichtet ist, tritt außerdem eine Neigung des Sichtfelds auf. Zur Kompensation dieser beiden Effekte wird eine biquadratische Funktion

$$h_{\text{fit}}(\mathbf{x}) = h_{\text{fit}}(x, y) = c_0 + c_{1x}x + c_{1y}y + c_{2x}x^2 + c_{2y}y^2 \quad (3.2)$$

mittels linearer Regression an die Messdaten $\hat{h}_{ij}^{(AFM)}$ angepasst und anschließend von den Messdaten subtrahiert:

$$\hat{h}_{ij}^{(comp)} = \hat{h}_{ij}^{(AFM)} - h_{\text{fit}}(\mathbf{x}_{ij}). \quad (3.3)$$

Abbildung 3.3 zeigt die Wirkung dieser Kompensation anhand des Bildes eines Si-Wafers. Die Verzerrungen können durch die einfache biquadratische Anpassung nicht vollständig kompensiert werden. Da die exakte Form der Verzerrung jedoch abhängig von den Messbedingungen schwankt ist eine präzisere Kompensation nicht ohne Weiteres möglich. Die Rauigkeit (siehe Abschnitt 3.4.2), welche allein aus dieser unkompensierten Sichtfeldverformung resultiert, liegt gewöhnlich unterhalb von $w = 1$ nm.

Die Spitzenfaltung

Die ideale Form der Messspitze eines Rasterkraftmikroskopes ist die einer dünnen Nadel von vernachlässigbarer Dicke. Mit einer solchen Spitze ließe sich jede überhangfreie Oberfläche perfekt abbilden. Reale Rasterkraftmikroskop-Spitzen haben jedoch im Allgemeinen eine Pyramiden- oder Kegelform mit einem Spitzenwinkel im Bereich von 20° bis 60° und eine abgerundete Spitze mit einem Radius von 10 bis 40 nm. Infolgedessen wird die Form der Oberfläche bei der Abtastung nicht 1:1 abgebildet, sondern mit der Spitzengeometrie gefaltet (siehe Abbildung 3.4).

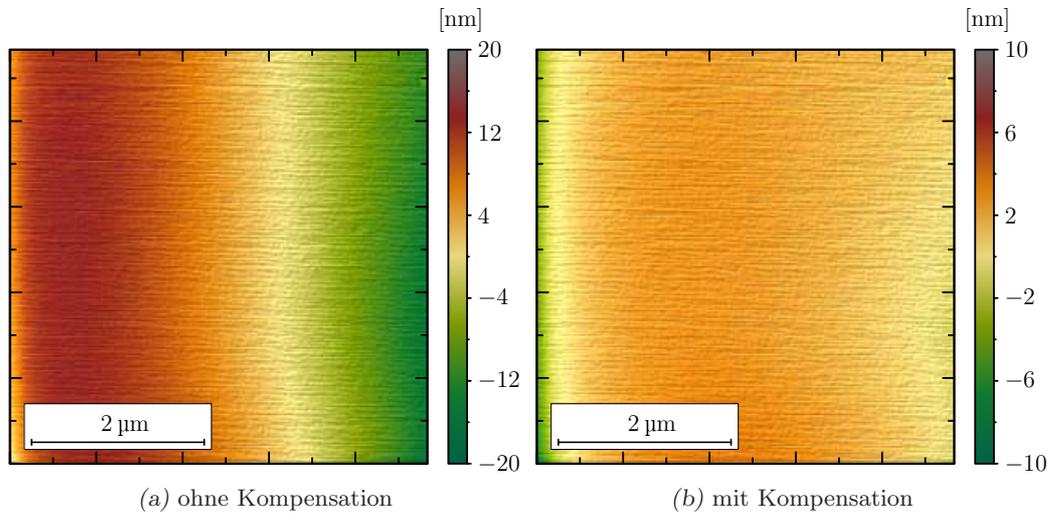


Abbildung 3.3: Kompensation der Sichtfeldverzerrung am Beispiel der rasterkraftmikroskopischen Messung eines Si-Wafers. Der in (b) erkennbare Abfall des Höhenprofils am rechten und linken Rand des Messfeldes stellt den durch die biquadratische Korrektur nicht vollständig kompensierten Anteil der Verzerrung dar.

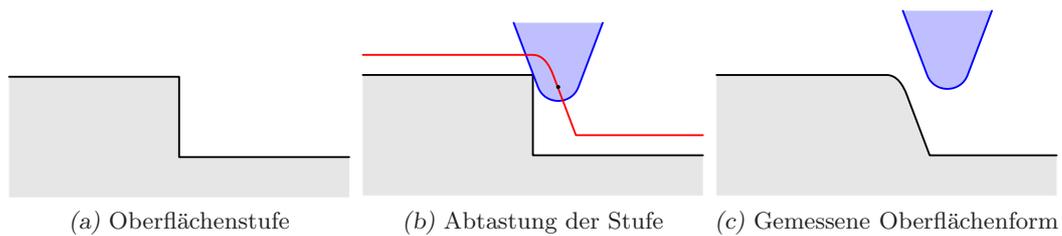


Abbildung 3.4: Abtastung einer Oberflächenstufe mittels Rasterkraftmikroskop

3. Methoden

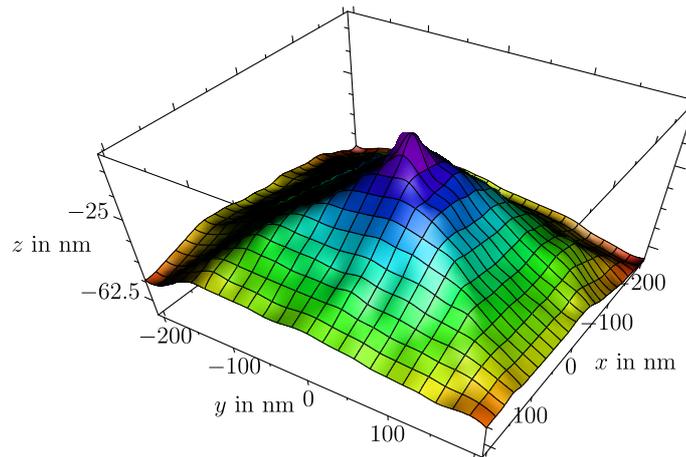


Abbildung 3.5: Abschätzung der Spitzenform auf Basis der durchgeführten Messungen

Ist die exakte Form der Spitze bekannt, lässt sich die tatsächliche Form der Oberfläche aus der gefalteten Form rekonstruieren [Kel93]. Die rasterkraftmikroskopische Messung entspricht einer morphologischen Dilatation der Oberflächenform mit der Spitzenform und die Rekonstruktion erfolgt durch Erosion¹. Dies gilt nicht für die Bereiche, an denen die Messspitze die Oberfläche an mehr als einem Punkt berührt. An diesen Stellen werden nicht alle Teile der Oberfläche durch die Abtastung erfasst (im Beispiel in Abbildung 3.4b der gepunktete Abschnitt) und die Rekonstruktion bleibt unvollständig.

Im Allgemeinen ist jedoch die exakte Form der Messspitze nicht von vorneherein bekannt. Durch die Vermessung geeigneter Testformen mit bekannter Geometrie lässt sich die Form der Spitze ermitteln [Mar95]. Dieses Verfahren ist durch die zusätzlich notwendigen Messungen jedoch relativ aufwendig. Auch ohne diesen zusätzlichen Aufwand besteht die Möglichkeit, direkt aus den gemessenen Topographien auch ohne dass deren tatsächliche Geometrie bekannt ist, eine konservative Abschätzung der Spitzenform zu ermitteln (engl.: *blind tip estimation*) [Vil96, Vil97]. Die hierdurch ermittelte Spitzenform stellt eine äußere Grenze für deren tatsächliche Form dar. Der Rauschanteil der Messdaten und andere Fehler [Vil97] können bewirken, dass die Abschätzung weniger konservativ ausfällt und die „Schärfe“ der Spitze überschätzt wird.

Dieses Verfahren wurde unter Verwendung eines Großteils der im Rahmen dieser Arbeit produzierten Messdaten angewandt, um abzuschätzen, ob bei der rasterkraftmikroskopischen Vermessung der Schichten die Spitzenfaltung einen signifikanten Einfluss auf das Messergebnis hat. Abbildung 3.5 zeigt die ermittelte Spitzenform.

Selbstverständlich lässt sich mit Hilfe der so abgeschätzten Spitzenform keine Aussage über diejenigen Messungen treffen, welche die Basis dieser Charakterisierung bildeten. Allerdings lässt sich damit die rasterkraftmikroskopische Messung der Topographien simu-

¹Die Konzepte der Dilatation und Erosion entstammen der *mathematischen Morphologie*, einem mathematischen Konzept, welches um 1964 von Georges MATHERON und Jean SERRA entwickelt wurde. Ein guter Überblick über die Geschichte der mathematischen Morphologie findet sich in [Mat02].

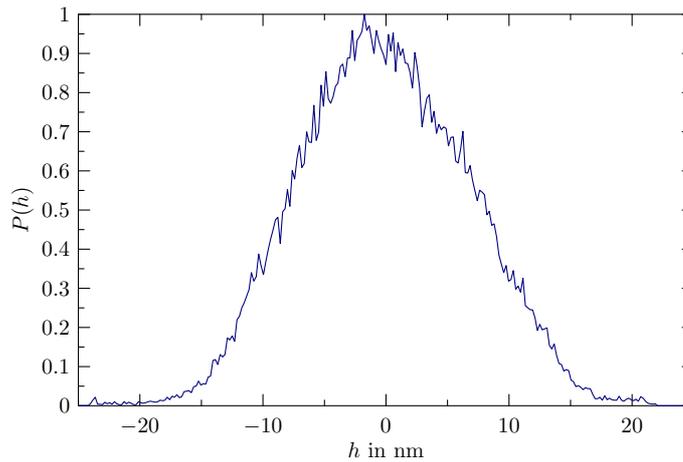


Abbildung 3.6: Beispiel eines Höhenwert-Histogramms einer Schichtoberfläche

lieren, welche auf Basis mathematischer Modelle berechnet wurden (siehe Abschnitt 3.5). Bei den im Rahmen dieser Arbeit auf Grundlage von Wachstumsmodellen berechneten Oberflächentopographien modifizieren die auf diese Weise simulierten rasterkraftmikroskopischen Messungen die Oberflächenstruktur jedoch nur geringfügig. Die Auswirkungen auf die im folgenden beschriebenen und zur Charakterisierung der Oberflächenstrukturen herangezogenen Größen können vernachlässigt werden.

3.4.2. Rauigkeit

Die einfachste Möglichkeit zur Charakterisierung der Struktur einer Schichtoberfläche besteht in der Bestimmung einer Rauigkeitskenngröße. Hierfür hat sich die Standardabweichung der diskreten Höhenfunktion \hat{h}_{jk} oder die quadratische Rauigkeitsbreite (engl.: *root mean square (RMS) roughness*) etabliert:

$$w = \sqrt{\frac{1}{N^2} \sum_{i=0}^{N-1} \sum_{j=0}^{N-1} (\hat{h}_{ij} - \langle h \rangle)^2} \quad (3.4)$$

Für den Fall, dass die Höhenwerte des Oberflächenprofils gaussverteilt sind, charakterisiert die Rauigkeit w diese Verteilung vollständig. Ist dies nicht der Fall, kann eine detailliertere Betrachtung des Höhenwert-Histogramms wie in Abbildung 3.6 gezeigt zusätzliche Informationen über die Höhenwertverteilung der Oberfläche liefern.

3.4.3. Korrelationsfunktionen

Sowohl die Rauigkeit als auch das Höhenwert-Histogramm und hieraus bestimmte weitere Kenngrößen charakterisieren die Oberfläche lediglich in Höhenrichtung unter Vernachlässigung der lateralen Dimensionen. Da jedoch die Höhenwerte der Oberflächenfunktion $h(\mathbf{x})$ nicht vollständig unkorreliert sind, bedarf es zusätzlicher Analysemethoden, um die lateralen Strukturen zu beschreiben.

Eine Methode zur Quantifizierung der lateralen Strukturierung stellt die Höhendifferenz-Korrelationsfunktion (engl.: *height height correlation function*) dar:

$$C(r) = \sqrt{\langle (h(\mathbf{x}) - h(\mathbf{x}'))^2 \rangle_{|\mathbf{x} - \mathbf{x}'| = r}} \quad (3.5)$$

Eng verwandt mit der Autokorrelationsfunktion beschreibt diese, wie sich im statistischen Mittel zwei Oberflächenpunkte \mathbf{x} und \mathbf{x}' im Abstand $|\mathbf{x} - \mathbf{x}'| = r$ in ihrer Höhe voneinander unterscheiden.

Bestimmung der Korrelationslänge

Da zwei nahe beieinander liegende Oberflächenpunkte im Mittel einen geringeren Höhenunterschied aufweisen als zwei weiter entfernte Punkte, steigt der Verlauf der Korrelationsfunktion $C(r)$ für kleine r an. Dieser Anstieg folgt bei vielen Arten von strukturierten Oberflächen einem Potenzgesetz:

$$C(r) \sim r^\alpha \quad (3.6)$$

wobei der Rauigkeitsexponent α oft charakteristisch für den zugrundeliegenden strukturierenden Prozess ist (siehe Abschnitt 2.3.2). Aus diesem Grund wird der Verlauf von $C(r)$ in doppelt logarithmischer Form dargestellt (siehe Abbildung 3.7). Bei den meisten Oberflächen gewachsener Schichten liegt für kleine r ein solcher Verlauf nach einem Potenzgesetz vor und endet bei einer charakteristischen Länge $r = \xi_{\parallel}$, oberhalb derer er in einen konstanten oder abfallenden Verlauf oder einen weiteren Anstieg mit einem vom ursprünglichen Wert abweichendem Exponenten übergeht.

Abbildung 3.7 skizziert die verwendete Technik zur Bestimmung von ξ_{\parallel} . Für kleine r wird ein Potenzgesetz nach (3.6) an die Form von $C(r)$ angepasst. Je nach Form von $C(r)$ für $r > \xi_{\parallel}$ wird entweder die Distanz r bestimmt, bei der dieser exponentielle Verlauf das Maximum von $C(r)$ erreicht (Abbildung 3.7a) oder für $r > \xi_{\parallel}$ wird ein weiteres Potenzgesetz angepasst und der Schnittpunkt beider Verläufe bestimmt (Abbildung 3.7b).

Die laterale Korrelationslänge ξ_{\parallel} stellt denjenigen Abstand dar, über welchen Punkte der Oberfläche in ihrer Höhe noch einen Zusammenhang zueinander aufweisen. Für Distanzen

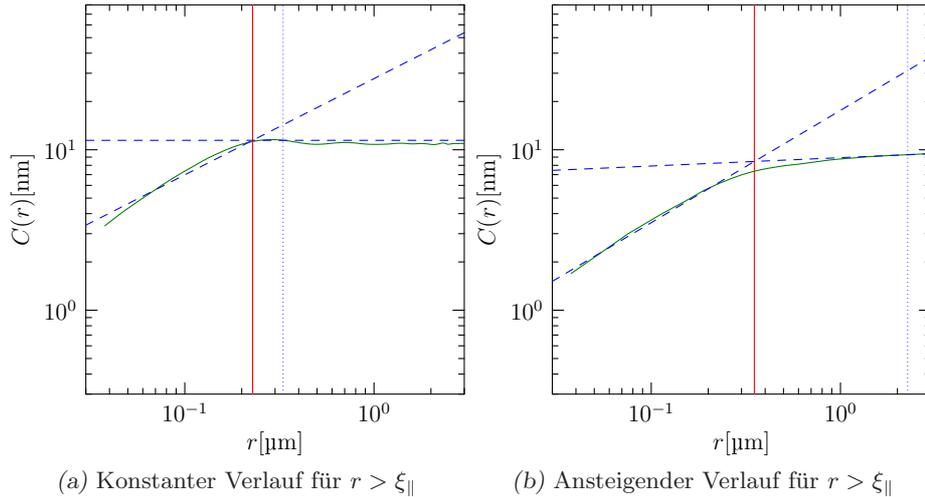


Abbildung 3.7: Bestimmung der Korrelationslänge einer Oberfläche $\xi_{||}$ aus dem Verlauf der Korrelationsfunktion

oberhalb von $\xi_{||}$ sind die Höhenwerte im Gegensatz dazu unkorreliert. Im Fall kappenförmigen Oberflächenstrukturen entspricht die Korrelationslänge der mittleren Kappengröße, jedoch nicht notwendigerweise dem mittleren Abstand zwischen den Kappen [Pel06]. Der mittlere Abstand der Kappen lässt sich aus den Spektren über die dominante Wellenlänge ermitteln (siehe Abschnitt 3.4.4).

3.4.4. Analyse durch Fourier-Transformation

Neben der räumlichen Darstellung der Oberfläche als diskrete Funktion \hat{h}_{ij} ermöglicht die Transformation in den Frequenzbereich mittels FOURIER-Transformation² in vielen Fällen ein besseres Verständnis der Oberflächenstruktur. Aus einem eindimensionalen Profil der Oberfläche $\hat{h}_j = h(x_j)$ lässt sich mittels Diskreter Fourier-Transformation (DFT) das komplexe Fourier-Spektrum

$$H(k) = \sum_{j=0}^{N-1} \hat{h}_j e^{-\frac{2\pi i j k}{N}} \quad (3.7)$$

bestimmen (mit $i = \sqrt{-1}$).

Bei reellwertigen $\hat{h}_j \in \mathbb{R}$ ist die Hälfte der Fourier-Transformierten redundant, sie stellt das konjugiert Komplexe der anderen Hälfte dar: $H(k) = H(N - k)^*$. Die Komponente $H(0)$ ist reell und stellt den konstanten Anteil dar, entspricht also dem Mittelwert von \hat{h}_j :

²Die Fourier-Transformation geht zurück auf Jean Baptiste Joseph FOURIER (1768–1830), welcher die nach ihm benannten Fourier-Reihen als Lösungsansatz für Wärmeleitungsprobleme nutzte [Fou22].

3. Methoden

$$H(0) = \frac{1}{N} \sum_{j=0}^{N-1} \hat{h}_j = \langle h \rangle \quad (3.8)$$

Die übrigen Komponenten stehen nach der PARSEVALSchen Gleichung mit der quadratischen Rauheitsbreite w in folgender Beziehung:

$$\frac{1}{N} \sum_{k=1}^{N-1} |H(k)|^2 = \sum_{j=0}^{N-1} |\hat{h}_j - \langle h \rangle|^2 \quad (3.9)$$

Der Parameter k entspricht der Frequenz oder im mehrdimensionalen Fall dem Wellenvektor, es gilt:

$$f_k = \frac{k}{N\Delta x}. \quad (3.10)$$

Durch die diskrete Natur der Daten und die Begrenzung des Messfeldes ergeben sich eine maximale und minimale Frequenz im Spektrum

$$f_{min} = f_1 = \frac{1}{N\Delta x} \quad (3.11)$$

$$f_{max} = f_c = \frac{1}{2\Delta x} \quad (3.12)$$

letzteres auch NYQUIST-Frequenz genannt.

Zweidimensionale Analyse

Das Konzept der Fourier-Transformation lässt sich auf mehrdimensionale Daten übertragen. Während die eindimensionale diskrete Fourier-Transformation einer Approximation des Profils mittels harmonischer Funktionen unterschiedlicher Frequenz und Amplitude entspricht, ist die mehrdimensionale Fourier-Transformation als eine Näherung über ebene Wellen mit unterschiedlichen Richtungen interpretierbar. Analog zu Gleichung (3.7) berechnet sich das zweidimensionale Fourier-Spektrum zu

$$H(k_x, k_y) = \sum_{l=0}^{N-1} \left(e^{-\frac{2\pi i l k_y}{N}} \sum_{m=0}^{N-1} e^{-\frac{2\pi i m k_x}{N}} \cdot \hat{h}_{lm} \right). \quad (3.13)$$

Auch im zweidimensionalen Fall entspricht bei reellen Eingangsdaten die eine Hälfte der Fourier-Transformation dem konjugiert Komplexen der anderen Hälfte:

$$H(k_x, k_y) = H(N - k_x, N - k_y)^*. \quad (3.14)$$

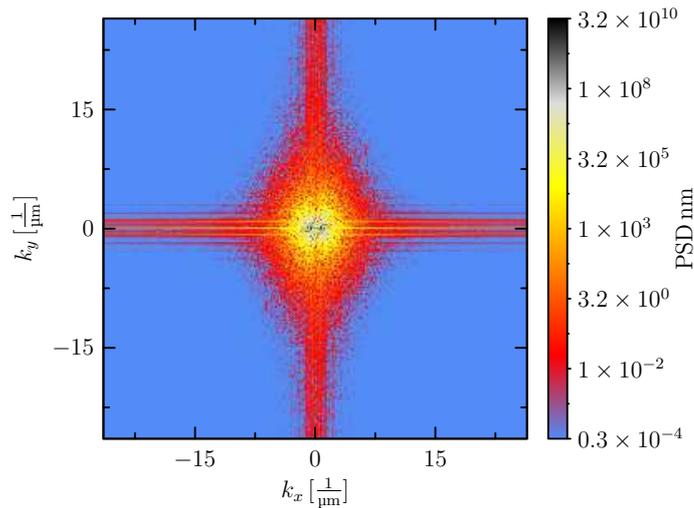


Abbildung 3.8: Darstellung einer zweidimensionalen diskreten Fourier-Transformation einer AFM-Messung

Ebenso gelten die übrigen Zusammenhänge für die eindimensionale Transformation entsprechend.

Für die graphische Darstellung der zweidimensionalen Fourier-Transformation wird gewöhnlich der Nullpunkt in die Mitte des Diagramms gelegt. Abbildung 3.8 zeigt eine solche Darstellung.

Für die numerische Umsetzung der diskreten Fourier-Transformation besteht die Möglichkeit, durch Einsatz der schnellen Fourier-Transformation (engl.: *fast fourier transform*, *FFT*) den rechnerischen Aufwand hierfür im Vergleich zur direkten numerischen Umsetzung von Gleichung (3.13) von $\mathcal{O}(N^2)$ auf $\mathcal{O}(N \log N)$ zu reduzieren³.

Bestimmung der Leistungsdichtespektren

Für eine statistische Analyse der Oberflächenstruktur ist die Phaseninformation von untergeordneter Bedeutung und die Auswertung beschränkt sich auf den Betrag, das sogenannte *Leistungsdichtespektrum* (engl.: *power spectral density*, *PSD*). Das Leistungsdichtespektrum wird gewöhnlich mit einem Vorfaktor normiert, um die Skalen- und Diskretisierungsunabhängigkeit sicherzustellen, im eindimensionalen Fall:

$$S(k) = \frac{L}{N^2} |H(k)|^2. \quad (3.15)$$

Für die zweidimensionale Fourier-Transformation lässt sich analog ein 2D-Leistungsdich-

³Die Methode der schnellen Fourier-Transformation mit einem Aufwand kleiner als $\mathcal{O}(N^2)$ wird im Allgemeinen COOLEY und TUKEY zugeschrieben [Coo65] obwohl Carl Friedrich GAUSS die Grundlagen hierfür vermutlich bereits um 1805, also vor den Arbeiten von FOURIER zu der nach ihm benannten Methode schuf [Hei84].

3. Methoden

tespektrum bestimmen:

$$S(k_x, k_y) = \frac{L^2}{N^4} |H(k_x, k_y)|^2. \quad (3.16)$$

Bei einer isotropen Oberflächenstruktur sind die statistischen Eigenschaften der Oberflächenfunktion $h(\mathbf{x})$ unabhängig von der Orientierung des Koordinatensystems. Für das zweidimensionale Spektrum bedeutet dies, dass die Komponenten in alle Richtungen im statistischen Mittel identisch sind. Es bietet sich deshalb im isotropen Fall an, das zweidimensionale Spektrum unter Summierung über alle 2D-Raumrichtungen auf einen eindimensionalen Verlauf zu reduzieren:

$$S(k_r) = \frac{L^2}{N^4} \frac{1}{L} \sum_{k_r=|k|} |H(k_x, k_y)|^2 \quad (3.17)$$

mit $|k| = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$.

$S(k_r)$ wird für ganzzahlige \hat{k}_r bestimmt gemäß

$$S(\hat{k}_r) = \sum_{\hat{k}_r - \frac{1}{2} \leq k_r < \hat{k}_r + \frac{1}{2}} S(k_r). \quad (3.18)$$

Wird das eindimensionale Leistungsdichtespektrum nach dieser Definition bestimmt, gilt auch hierfür die Parsevalsche Beziehung (siehe Gleichung (3.9)) zwischen Spektrum und Rauigkeit, analog zum eindimensionalen Fall mit

$$w^2 = \int S(k) dk = \frac{1}{L} \sum S(k) = \frac{1}{N^2} \sum_{k=0}^{N-1} |H(k)|^2 \quad (3.19)$$

also

$$\begin{aligned} w^2 &= \frac{1}{L^2} \sum S(k_x, k_y) = \frac{1}{L} \sum S(k_r) \\ &= \frac{1}{N^4} \sum_{k_y=0}^{N-1} \sum_{k_x=0}^{N-1} |H(k_x, k_y)|^2. \end{aligned} \quad (3.20)$$

Bestimmung der dominanten Wellenlänge aus den Spektren

Das Leistungsdichtespektrum gibt die Komponenten der Oberflächenstruktur aufgegliedert nach räumlicher Frequenz wieder. Hieraus lässt sich eine dominante laterale Strukturgröße bestimmen. Diese entspricht nicht automatisch der aus der Korrelationsfunktion bestimmten Korrelationslänge (vgl. Abschnitt 3.4.3), sondern gibt die dominante Wellenlänge der Oberflächenstruktur wieder [Pel06].

Da die gemessenen Spektrenverläufe insbesondere bei geringen Schichtdicken kein ausgeprägtes Maximum ausweisen, wird zur Bestimmung der dominanten Frequenz folgendes

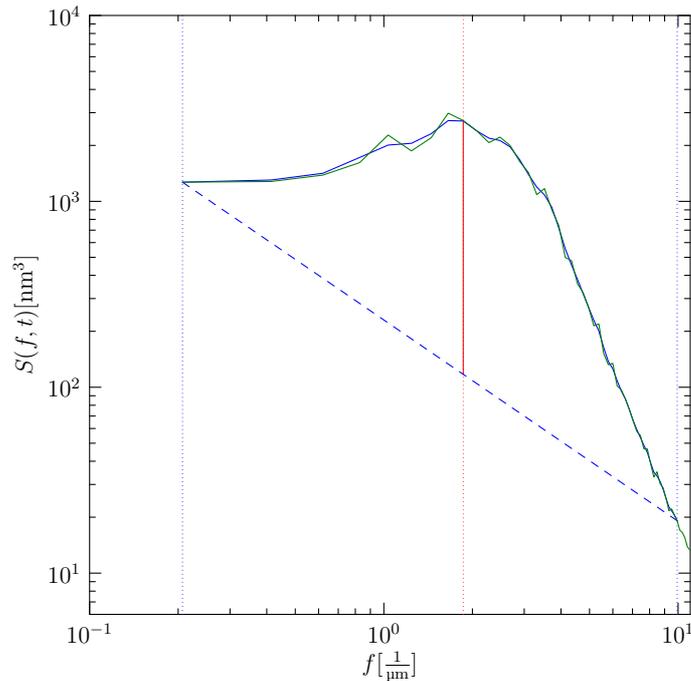


Abbildung 3.9: Bestimmung der dominanten Wellenlänge λ einer Oberfläche aus dem Verlauf des Leistungsdichtespektrums. Ursprünglicher Spektrenverlauf in grün, geglätteter Verlauf in blau.

Verfahren angewandt: Zwischen Beginn und Ende des Spektrenverlaufs wird in der doppelt logarithmischen Darstellung eine Gerade gezogen und der Punkt des Spektrenverlaufes ermittelt, an welchem die Leistungsdichte am weitesten oberhalb dieser Gerade liegt. Der Spektrenverlauf wird hierfür vorher geringfügig geglättet. Abbildung 3.9 illustriert dieses Verfahren. Auf diese Weise ist es möglich auch ohne ausgeprägtes Maximum im Spektrenverlauf zuverlässig eine dominante laterale Strukturgröße zu bestimmen. Die Spektren einfacher selbstaffiner Wachstumsstrukturen ohne eine dominante Strukturgröße weisen einen gleichförmigen Abfall zu höheren Frequenzen auf [Pli87] und das skizzierte Verfahren bestimmt die Position der maximalen Abweichung hiervon.

3.5. Mesoskopische Simulation des Wachstumsprozesses

Die Simulation des Schichtwachstums erfolgt im Rahmen dieser Arbeit unter Verwendung von Kontinuumsmodellen. Diese ermöglichen, wie in Abschnitt 2.3.2 erläutert, im Gegensatz zu diskreten Monte-Carlo-Modellen einen einfachen quantitativen Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen und vereinfachen die Zuordnung der Modellparameter gegenüber den physikalischen Größen.

Die im folgenden beschriebenen Modelle und numerischen Verfahren wurden in der Programmiersprache C++ implementiert, wobei das *C++ Template Image Processing Toolkit*

3. Methoden

(CImg)⁴ verwendet wurde. Die Parallelisierung der Simulationsrechnungen erfolgte mit Hilfe von boost::thread⁵.

3.5.1. Oberflächenbeschreibung

Analog zu den experimentellen Untersuchungen mittels Rasterkraftmikroskop (vgl. Abschnitt 3.4) wird für die Modellierung des Wachstumsprozesses davon ausgegangen, dass sich auf der betrachteten Größenskala die Form der Schichtoberfläche durch eine zweidimensionale Höhenfunktion $h(\mathbf{x})$ entsprechend Gleichung (3.1) beschreiben lässt. Die im Folgenden formulierten Modelle behalten ihre grundsätzliche Gültigkeit zwar auch für allgemeine Oberflächenformen, jedoch lassen sich viele der verwendeten numerischen Ansätze dann nicht mehr ohne Weiteres anwenden und viele getroffenen vereinfachenden Annahmen verlieren ihre Gültigkeit.

3.5.2. Kontinuumsmodell des Schichtwachstums

Unter der Annahme, dass sich die Schicht und ihre Oberfläche wie oben beschrieben als Kontinuum darstellen lassen, lässt sich die Entwicklung der Oberflächenform während des Schichtwachstums durch eine partielle Differentialgleichung beschreiben:

$$\frac{\partial h}{\partial t} = G[\mathbf{x}, \{h\}, t] + S[\mathbf{x}, \{h\}, t] \quad (3.21)$$

wobei die rechte Seite der Gleichung aufgeteilt ist in die deterministische Komponente G und die nichtdeterministische stochastische Komponente S , welche alle Materialtransportvorgänge beinhaltet, die durch das Depositionsrauschen beeinflusst werden. G und S können in dieser allgemeinen Beschreibung auch in nichtlokaler Art und Weise von der Form von $h(\mathbf{x}, t)$ abhängen, was durch die geschweiften Klammern verdeutlicht wird.

3.5.3. Der Depositionsstrom aus dem Plasma

Das Schichtwachstum bei der PECVD-Abscheidung von a-C:H-Schichten wird durch die Anlagerung von Kohlenwasserstofffragmenten an der Oberfläche angetrieben. Hierbei handelt es sich entweder um neutrale Moleküle oder Radikale mit einer Summenformel C_aH_b oder um positive Ionen der Form $C_aH_b^+$. Unter der vereinfachenden Annahme, dass die Einbettung der deponierten Teilchen in die wachsende Schicht unmittelbar beim Kontakt mit der Oberfläche erfolgt, nehmen die Teilchen mit einer Masse von etwa $N = (12a + b)$ u nach der Deposition in der Schicht ein Volumen $V = N\Omega_A$ ein. Ω_A steht für das spezifische Volumen des Schichtmaterials, welches sich aus dessen Dichte mittels $\Omega_A = \frac{1}{\rho}$ ergibt.

⁴CImg Library von D. TSCHUMPERLÉ, <http://cimg.sourceforge.net/>

⁵Boost C++ Libraries, <http://www.boost.org/>

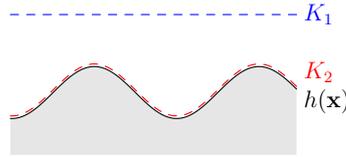


Abbildung 3.10: Kontrollflächen K_1 und K_2 für die Modellierung des Depositionsstroms

In den meisten in der Literatur untersuchten Kontinuumsmodellen wird eine senkrechte zeitlich und räumlich unkorrelierte Deposition angenommen, welche von der Oberflächen-topographie unbeeinflusst ist. Die Zufälligkeit ist plausibles Ergebnis der thermischen Be-wegungen der Teilchen im Plasma und ihrer Kollisionen. Eine solche Deposition kann über eine POISSON-Verteilung angenähert werden, welche für eine hinreichend große Anzahl von Depositionsereignissen mit guter Näherung durch eine Normalverteilung mit identischen Werten für Mittelwert und Varianz angenähert werden kann.

Modellierung des richtungs- und größenverteilten Depositionsstroms

Im allgemeinen Fall gilt dies nur für den Materialstrom durch eine Kontrollfläche K_1 , welche sich oberhalb der Oberflächentopographie parallel zur x-y-Ebene befindet (siehe Abbildung 3.10). Der eigentliche Depositionsstrom, gleichbedeutend mit dem Strom durch die Kontrollfläche K_2 , hängt jedoch von der Form der Oberfläche h ab. h wird über die Differentialgleichung wiederum durch den Depositionsstrom beeinflusst, weshalb es sich beim Vorgang der Deposition genaugenommen um einen zeitkontinuierlichen MARKOV-Prozess handelt, bei welchem die einzelnen Depositionsereignisse nicht unabhängig von-einander sind. Unter der Annahme, dass Wechselwirkungen zwischen Teilchen im Raum zwischen den Kontrollflächen K_1 und K_2 vernachlässigbar sind, kann, wie im Folgenden erläutert, der tatsächliche Depositionsstrom aus dem bekannten, Poisson-verteilten Strom durch die Kontrollfläche K_1 und der jeweiligen Oberflächenform h berechnet werden. Diese Annahme ist gleichbedeutend mit der Voraussetzung, dass die mittlere freie Weglänge im Plasma groß gegenüber den Oberflächenstrukturen ist (rein ballistischer Transport).

Der Durchtritt eines Teilchens durch die Kontrollfläche K_1 wird durch die jeweilige Masse des deponierten Teilchens N , die Richtung ω des Teilcheneinfalls, den Ort des Durchtritts \mathbf{x} und den Zeitpunkt des Ereignisses t charakterisiert. Der Materialfluss durch K_1 lässt sich somit als Poisson-Prozess im durch $(N, \omega, \mathbf{x}, t) \in \mathbb{R}^6$ beschriebenen Parameterraum V_D darstellen.

Die Anzahl der Durchtritte eines Teilchens der Masse im Bereich $[N, N + dN]$ aus dem Winkelbereich $d\omega = \sin \theta d\theta d\phi$ um die Raumrichtung ω durch das Flächenelement $(\Delta x)^2$ um \mathbf{x} im Zeitintervall $[t, t + \Delta t]$ lässt sich damit beschreiben durch:

$$n_P = n(N, \omega, \mathbf{x}, t)(\Delta x)^2 \Delta t d\omega dN = n(N, \phi, \theta, \mathbf{x}, t)(\Delta x)^2 \Delta t \sin \theta d\theta d\phi dN. \quad (3.22)$$

Die transportierte Masse ergibt sich zu $N n_P$. Nach Division durch $(\Delta x)^2$ und Δt , Multiplikation mit dem spezifischen Volumen Ω_A und Integration über alle Teilchengrößen und

3. Methoden

Raumrichtungen erhält man die lokale Materialflussrate durch K_1 :

$$R_1(\mathbf{x}, t) = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} N \Omega_A n(N, \phi, \theta, \mathbf{x}, t) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN. \quad (3.23)$$

n_P lässt sich als Zählmaß eines Poisson-Prozesses bei Betrachtung einer genügend großen Anzahl von Durchtrittsereignissen als normalverteilt mit Mittelwert und Varianz $\langle n_P \rangle = \langle (n_P - \langle n_P \rangle)^2 \rangle = r f(N, \phi, \theta) (\Delta x)^2 \Delta t \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN$ beschreiben. Für die Materialflussrate R_1 gilt folglich:

$$\langle R_1 \rangle = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} N \Omega_A r f(N, \phi, \theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN \quad (3.24)$$

und

$$\langle (R_1 - \langle R_1 \rangle)^2 \rangle = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} N^2 \Omega_A^2 r f(N, \phi, \theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN. \quad (3.25)$$

r stellt hierbei die Gesamtzahl der Durchtrittsereignisse durch K_1 pro Fläche pro Zeit dar. $f(N, \phi, \theta)$ bezeichnet die Dichtefunktion der Größen- und Winkelverteilung mit

$$\int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} f(N, \phi, \theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN = 1. \quad (3.26)$$

Die geometrische Selbstabschätzung

Die Gleichungen (3.24) und (3.25) gelten auch für jeden Teilbereich von V_D bezüglich $\boldsymbol{\omega}$. Außerdem gelten sie unter der Voraussetzung geradliniger Teilchenbewegung unabhängig von der Vertikalposition der Kontrollfläche K_1 .

Für ein Oberflächensegment $\Delta \mathbf{y} = (\Delta y)^2$ der Kontrollfläche K_2 im Abstand L_z zu K_1 soll $\Delta y \ll L_z$ gelten. Bei zunächst isolierter Betrachtung, also ohne Berücksichtigung der Abschätzung durch umgebende Oberflächen, erhält diese Fläche aus dem Winkelbereich $d\boldsymbol{\omega}$ um die Richtung $\boldsymbol{\omega}$ ausschließlich Material, welches aus einem Bereich der Größe $\frac{L_z \, d\theta}{\cos^2 \theta} L_z \tan \theta \, d\phi$ von K_1 stammt (vgl. Abbildung 3.11).

Von dem durch diese Fläche transportierten Material gelangt jedoch nur ein Teil zum betrachteten Oberflächensegment $\Delta \mathbf{y}$. Im in Abbildung 3.12 gezeigten zweidimensionalen Fall handelt es sich hierbei um Teilchen aus dem Winkelbereich $\frac{\Delta y \cos(\theta - \alpha) \cos \theta}{L_z}$. In 3D entspricht dies dem Raumwinkel $\frac{\Delta y \cos(\theta - \alpha) \cos \theta}{L_z} \frac{\Delta y \cos \theta}{L_z} \sin \theta$.

Durch Multiplikation dieses Winkelbereiches mit dem durch $d\boldsymbol{\omega}$ abgedeckten Flächenbereich aus K_1 und mit der Dichtefunktion des Teilcheneinfalls $f(N, \phi, \theta)$, Division durch

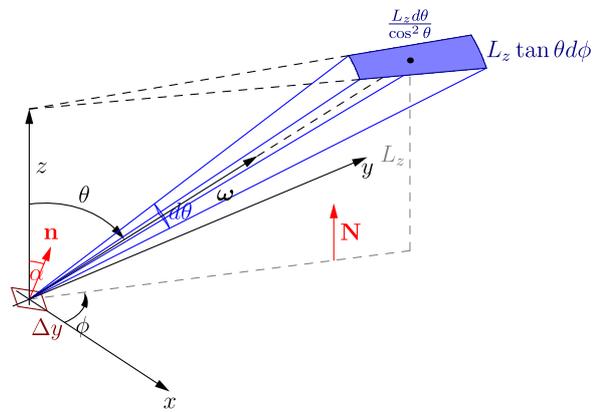


Abbildung 3.11: Geometrie der Deposition ohne Abschattung in 2+1 Dimensionen

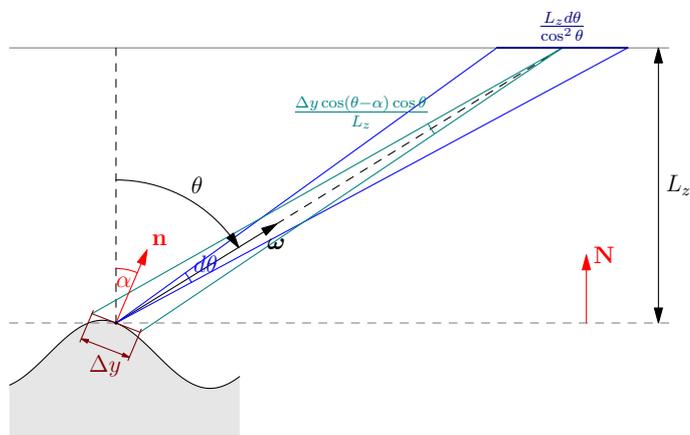


Abbildung 3.12: Geometrie der Deposition ohne Abschattung in 1+1 Dimensionen

3. Methoden

$\Delta \mathbf{y}$ und Integration über den gesamten Halbraum über \mathbf{x} ergibt sich die lokale Materialflussrate durch die Kontrollfläche K_2 unter Vernachlässigung der Abschattung für deren Mittelwert und Varianz analog zu Gleichung (3.24) und (3.25) gilt:

$$\langle R_2 \rangle = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} N \Omega_A r f(N, \phi, \theta) \frac{\cos(\theta - \alpha)}{\cos \theta} \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN \quad (3.27)$$

und

$$\langle (R_2 - \langle R_2 \rangle)^2 \rangle = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} N^2 \Omega_A^2 r f(N, \phi, \theta) \frac{\cos(\theta - \alpha)}{\cos \theta} \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN, \quad (3.28)$$

was sich auch in vektorieller Form formulieren lässt als

$$\langle R_2 \rangle = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} N \Omega_A r f(N, \phi, \theta) \frac{\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\omega}}{\mathbf{N} \cdot \boldsymbol{\omega}} \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN \quad (3.29)$$

und

$$\langle (R_2 - \langle R_2 \rangle)^2 \rangle = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} N^2 \Omega_A^2 r f(N, \phi, \theta) \frac{\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\omega}}{\mathbf{N} \cdot \boldsymbol{\omega}} \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN. \quad (3.30)$$

Der geometrischen Selbstabschattung der Oberfläche kann nun dadurch Rechnung getragen werden, dass nicht über den gesamten Halbraum integriert wird, sondern nur bis zum lokalen Horizont, welcher durch $l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)$ beschrieben wird. Ausgehend von den Oberflächenpunkten

$$\mathbf{P}_x = \begin{pmatrix} x_x \\ y_x \\ h(\mathbf{x}) \end{pmatrix}, \mathbf{P}_y = \begin{pmatrix} x_y \\ y_y \\ h(\mathbf{y}) \end{pmatrix} \quad (3.31)$$

lässt sich der Richtungseinheitsvektor von \mathbf{P}_x in Richtung \mathbf{P}_y in Kugelkoordinaten angeben:

$$\mathbf{D}_{xy} = \frac{\mathbf{P}_y - \mathbf{P}_x}{|\mathbf{P}_y - \mathbf{P}_x|} = (1, \theta_D, \phi_D). \quad (3.32)$$

Damit lässt sich der Horizont definieren als

$$l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi) = \min(\theta_D \forall \mathbf{D} \text{ mit } \phi_D = \phi). \quad (3.33)$$

Anders ausgedrückt „sieht“ der Oberflächenpunkt \mathbf{x} den Depositionsstrom nur bis zu diesem Winkel und der darunter liegende Winkelbereich wird durch die umgebenden Oberflächenstrukturen verdeckt.

Folglich gilt für die eigentliche Depositionsrates unter Berücksichtigung der Abschattung

$$R(\mathbf{x}, \{h\}, t) = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} N \Omega_A n(N, \phi, \theta) \frac{\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\omega}}{\mathbf{N} \cdot \boldsymbol{\omega}} \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN \quad (3.34)$$

mit dem Mittelwert

$$\langle R(\mathbf{x}, \{h\}, t) \rangle = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} N \Omega_A r f(N, \phi, \theta) \frac{\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\omega}}{\mathbf{N} \cdot \boldsymbol{\omega}} \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN \quad (3.35)$$

und der Varianz

$$\langle (R(\mathbf{x}, \{h\}, t) - \langle R \rangle)^2 \rangle = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} N^2 \Omega_A^2 r f(N, \phi, \theta) \frac{\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\omega}}{\mathbf{N} \cdot \boldsymbol{\omega}} \sin \theta \, d\theta \, d\phi \, dN. \quad (3.36)$$

Die Depositionsrates $R(\mathbf{x}, \{h\}, t)$ entspricht der Wachstumsrate der tatsächlichen Oberfläche. Die Transformation in das globale Koordinatensystem zur Berechnung der nominalen Wachstumsrate $\frac{\partial h}{\partial t}$ erfolgt mit Hilfe des von KARDAR, PARISI und ZHANG entwickelten Ansatzes, welcher in Abschnitt 2.3.2 beschrieben wurde. Der reine Depositionsvorgang wird also durch die Differentialgleichung

$$\frac{\partial h}{\partial t} = R \sqrt{1 + (\nabla h)^2} \quad (3.37)$$

beschrieben.

Vereinfachte Abschattungsmodelle

Besteht der Depositionsstrom ausschließlich aus Teilchen einer einheitlichen Größe N_x , vereinfacht sich die Dichtefunktion zu $f(N, \phi, \theta) = \delta(N - N_x) P(\phi, \theta)$. $P(\phi, \theta)$ beschreibt in diesem Fall die Winkelverteilung des Depositionsstroms. Gleichung (3.35) und (3.36) vereinfachen sich damit zu

$$\langle R_x(\mathbf{x}, \{h\}, t) \rangle = N_x \Omega_A r \int_0^{2\pi} \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} P(\phi, \theta) \frac{\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\omega}}{\mathbf{N} \cdot \boldsymbol{\omega}} \sin \theta \, d\theta \, d\phi \quad (3.38)$$

und

$$\langle (R_x(\mathbf{x}, \{h\}, t) - \langle R_x \rangle)^2 \rangle = N_x^2 \Omega_A^2 r \int_0^{2\pi} \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} P(\phi, \theta) \frac{\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\omega}}{\mathbf{N} \cdot \boldsymbol{\omega}} \sin \theta \, d\theta \, d\phi. \quad (3.39)$$

Das Integral in Gleichung (3.38) und (3.39) wird auch als *Exposition* bezeichnet und mit $\Omega(\mathbf{x}, \{h\})$ abgekürzt. Somit lässt sich formulieren:

$$\langle R_x(\mathbf{x}, \{h\}, t) \rangle = r N_x \Omega_A \Omega(\mathbf{x}, \{h\}) \quad (3.40)$$

3. Methoden

und

$$\langle (R_x(\mathbf{x}, \{h\}, t) - \langle R_x \rangle)^2 \rangle = r N_x^2 \Omega_A^2 \Omega(\mathbf{x}, \{h\}) \quad (3.41)$$

Eine weitere Vereinfachung der Depositionsberechnung stellt das Modell von KARUNASIRI BRUINSMA und RUDNICK [Kar89] dar (siehe Abschnitt 2.3.5). In diesem Modell wird die Exposition $\Omega(\mathbf{x}, \{h\})$ als unverteilter Teil des Halbraums über \mathbf{x} definiert und der Einfluss der Orientierung der wachsenden Oberfläche wird vernachlässigt ($\mathbf{n} = \mathbf{N}$). Analog zu Gleichung (3.38) und (3.39) ergibt sich damit:

$$\langle R_{\text{KBR}}(\mathbf{x}, \{h\}, t) \rangle = N_x \Omega_A r \int_0^{2\pi} \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} P(\phi, \theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \quad (3.42)$$

und

$$\langle (R_{\text{KBR}}(\mathbf{x}, \{h\}, t) - \langle R_{\text{KBR}} \rangle)^2 \rangle = N_x^2 \Omega_A^2 r \int_0^{2\pi} \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} P(\phi, \theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi. \quad (3.43)$$

Diese Formulierung lässt sich numerisch bedeutend einfacher handhaben, da der Integrand keine Ortsabhängigkeiten enthält. Allerdings verletzt dieses vereinfachte Modell die Kontinuität des Materialflusses durch die Kontrollflächen K_1 und K_2 wie in Anhang A anhand eines einfachen Beispiels demonstriert wird.

3.5.4. Materialtransport auf der Oberfläche

Neben dem eigentlichen Depositionsprozess tritt beim Schichtwachstum wie in Abschnitt 2.3.2 beschrieben immer auch Materialtransport an der Oberfläche auf. Wäre dies nicht der Fall, würde die unkorrelierte Deposition in Verbindung mit dem auftretenden lateralen Wachstum an geneigten Oberflächenpartien schnell zur Entstehung von Hohlräumen führen und es entstünde keine massive Schicht – insbesondere auch unter der zusätzlich destabilisierenden Wirkung der Abschattung.

Die im Allgemeinen hierbei möglichen Transportmechanismen wurden in Abschnitt 2.3.2 genannt. Die im speziellen Fall der PECVD-Abscheidung von Kohlenwasserstoffschichten potentiell relevanten Prozesse und die Möglichkeit, diese in der Kontinuumsbeschreibung in Gleichung (3.21) darzustellen, werden im Folgenden erläutert.

Evaporations/Kondensations-Prozesse und impulsinduzierter Hangabtrieb

Tritt während des Schichtwachstums Desorption deponierter Teilchen auf, lässt sich der aus der Wechselwirkung zwischen Evaporation und Kondensation und ihre von der lokalen Oberflächenkrümmung abhängigen Wahrscheinlichkeiten resultierende Netto-Materialtransport durch den aus dem lokalen EW-Modell bekannten Transportterm der Form $\nabla^2 h$

beschreiben. Tritt infolge des Impulses deponierter Teilchen ein aus Richtung des Depositionsstroms hangabwärts gerichteter Materialtransport auf, entspricht dies gleichermaßen einem Transportterm vom EW-Typ.

Oberflächendiffusion

Oberflächendiffusion auf der wachsenden Schicht infolge eines krümmungsabhängigen chemischen Potentials lässt sich durch einen Transportterm der Form $\nabla^4 h$ beschreiben [Mul57]. Darüber hinaus legt die durch die Abschattung lokal unterschiedliche Depositionsrate nahe, dass ein weiterer Diffusionsstrom existiert, welcher von den Gradienten der Depositionsrate getrieben ist. Dieser könnte durch einen Term der Form $\nabla^2 \langle R \rangle$ modelliert werden. Die Motivation für einen solchen zusätzlichen Diffusionsterm ist angelehnt an die Begründung des $\nabla^2(\nabla h)^2$ -Terms in [Rai01].

Weitere mögliche Transportmechanismen wurden im Rahmen dieser Arbeit nicht untersucht, ihre mögliche Bedeutung wird aber im Abschnitt 5.1 diskutiert. Die beschriebenen Mechanismen lassen sich zu einem Gesamt-Transportterm der Form

$$T[\mathbf{x}, \{h\}, t] = \nu \nabla^2 h - \kappa \nabla^4 h + \lambda_2 \nabla^2 \langle R \rangle \quad (3.44)$$

zusammenfassen. Wird das Depositionsmodell aus Gleichung (3.37) durch diesen Transportterm ergänzt, ergibt sich ein Kontinuumsmodell der Form

$$\frac{\partial h}{\partial t} = T[\mathbf{x}, \{h\}, t] + R \sqrt{1 + (\nabla h)^2} \quad (3.45)$$

mit welchem die Entwicklung der Oberflächenform im Schichtwachstumsprozess unter Berücksichtigung der nichtlokalen Abschattung näherungsweise beschrieben werden kann.

3.5.5. Lösung der Wachstumsgleichung

Die Lösung der Wachstumsgleichung erfolgt wie bei lokalen Modellen (vgl. Abschnitt 2.3.6) mit Hilfe der Methode der Finiten Differenzen. Hierzu wird $h(\mathbf{x}, t)$ in einem begrenzten Bereich $x, y \in [0, L]$ räumlich in $N \times N$ Gitterpunkte diskretisiert und die räumlichen Differentialoperatoren durch Differenzenquotienten angenähert. Die zeitliche Diskretisierung mit Hilfe des Euler-Ansatzes:

$$h_{ij}(t_{n+1}) = h_{ij}(t_n) + \Delta t Q(\{h\}(t_n)), \quad (3.46)$$

wobei Q die diskretisierte rechte Seite der Wachstumsgleichung darstellt, erlaubt darauf aufbauend die Berechnung der zeitlichen Entwicklung der diskreten Oberflächenform $h_{ij}(t)$ ausgehend von der Anfangstopographie $h_{ij}^{(a)} = h_{ij}(t_0)$.

3. Methoden

Die Diskretisierung des stochastischen Terms erfolgt nach dem in Abschnitt 2.3.6 dargestellten Verfahren. Zur Erzeugung der notwendigen Pseudozufallszahlen wird ein *Mersenne Twister* Algorithmus (MT19937) [Mat98] verwendet.

Randbedingungen

Die Simulationen in dieser Arbeit wurden unter periodischen Randbedingungen durchgeführt. Hierdurch wird vermieden, dass die Randzonen des Simulationsgebietes ein anderes Wachstumsverhalten zeigen als die Mitte. Aufgrund der nichtlokalen Natur der Wachstumsgleichung wäre hiervon nicht nur den unmittelbaren Randbereich, sondern eine wesentlich breitere Randzone betroffen.

Das Wachstum auf experimentell gemessenen Ausgangstopographien lässt sich in diesem Fall jedoch nur dann realistisch simulieren, wenn die Anfangsbedingungen vorher *periodisiert* werden, die Ausgangstopographie also so modifiziert wird, dass sie über die periodischen Ränder hinweg keine unrealistischen Sprünge in den Höhenwerten aufweist, wie es bei unveränderter Verwendung gemessener Topographien der Fall wäre.

Der hierfür gewählte Ansatz überblendet die äußeren 10 Prozent der Topographiedaten mit der jeweiligen periodischen Fortsetzung. Hierdurch entsprechen die Randbereiche nicht mehr der ursprünglichen Struktur, jedoch werden Artefakte durch die Sprünge im Höhenwert an den Rändern vermieden. Ein alternativer Ansatz besteht in der Anwendung von Verfahren, welche in der Computergrafik für die Erzeugung nahtlos anreihbarer Texturen entwickelt wurden [Pop93, Bon97]. Da diese Verfahren jedoch ausschließlich mit dem Ziel einer optischen Ähnlichkeit der periodischen Struktur mit dem nichtperiodischen Original entwickelt werden, ist nicht sichergestellt, dass die hiermit erzeugten periodischen Strukturen auch bezüglich des Schichtwachstums gleichwertig mit der Originalstruktur sind [Jul84, Ber88]. Bei dem gewählten Ansatz ist dies zumindest für den inneren Bereich des Simulationsgebietes der Fall und Abweichungen des Wachstums im Randbereich können anhand der Strukturentwicklung relativ leicht identifiziert werden.

Numerische Berechnung des Depositionsterms

Die Schwierigkeit bei der Simulation des Schichtwachstums anhand eines nichtlokalen Kontinuumsmodells, wie es durch Gleichung (3.45) beschrieben wird, liegt in der Berechnung der Abschattung. Während ein lokales Wachstumsmodell für die Simulation mittels Finite-Differenzen-Methode für jeden Punkt des Gitters nur die Berechnung der Differenzenquotienten zur Approximation der Ableitungen benötigt, erfordert die Abschattung eine Bestimmung des Horizonts für jeden Gitterpunkt. Im 1+1-dimensionalen Fall besteht diese in der Kenntnis der zwei Grenzwinkel und die Differenz dieser beiden Winkel ist im KBR-Ansatz proportional zur lokalen Depositionsrate. In 2+1 Dimensionen ist jedoch die Kenntnis der gesamten Horizontlinie $l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)$ für jeden Punkt \mathbf{x}_{ij} der diskretisierten Oberfläche erforderlich.

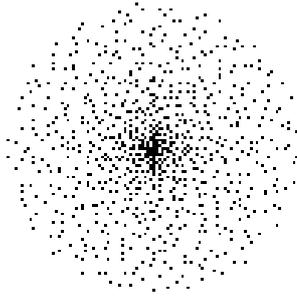


Abbildung 3.13: Anordnung der Abtastpunkte für die Expositionsrechnung bei einem maximalen Radius $r_c = 52d$

Das Problem der Horizontberechnung ähnelt der bei der Berechnung des Strahlungstransports in der Thermodynamik und zur Beleuchtungsberechnung in der Computergrafik [Gor84] auftretenden Formfaktor-Berechnung. Die Horizontberechnung entspricht der Sichtbarkeitsberechnung des Plasmas vom jeweiligen Oberflächenpunkt aus gesehen. Zur genauen und zuverlässigen Bestimmung der Horizontform an der Stelle \mathbf{x} müssten alle Oberflächenpunkte $\mathbf{y}_{ij} \neq \mathbf{x}$ auf die Einheitskugel um \mathbf{x} projiziert werden (siehe Gleichung (3.33)). Um den numerischen Aufwand zu reduzieren wird von folgenden Annahmen ausgegangen:

1. Der Einfluss eines Oberflächenpunktes auf die Horizontform nimmt mit wachsendem Abstand im Mittel ab. Dies resultiert aus der Tatsache, dass die selbe Höhendifferenz mit wachsendem Abstand einer immer geringeren Differenz im Winkel θ entspricht.
2. Oberflächenpunkte jenseits eines Abstands r_c sind von vernachlässigbarer Bedeutung für den Horizontverlauf. Damit dies der Fall ist, muss r_c deutlich oberhalb der lateralen Korrelationslänge $\xi_{||}$ liegen [Zha99].
3. für $r < \xi_{||}$ weist die Korrelationsfunktion einen ansteigenden Verlauf auf. Das heißt, nahe beieinanderliegende Oberflächenpunkte weichen in ihrer Höhe weniger voneinander ab als weit auseinanderliegende Punkte.

In Anlehnung an die Technik der *Monte-Carlo-Integration* [Met49, Fic91] wird die Horizontform anhand einer unregelmäßig verteilten Auswahl von Oberflächenpunkten abgeschätzt. Diese Punkte werden auf Basis der genannten Annahmen ausgewählt: Alle Punkte liegen innerhalb des gewählten Grenzabstands r_c und Ihre Dichte nimmt mit wachsender Entfernung von \mathbf{x} ab. Diese Punkteverteilung kann als gewichtete Abtastung (engl.: *importance sampling*) analog zur Monte-Carlo-Integration [Kah53, Has70] interpretiert werden. Die durchschnittliche Bedeutung eines Oberflächenpunktes für die Abschätzung ist umgekehrt proportional zum Abstand r so dass eine entsprechende Verteilung der Abtastpunkte angestrebt werden sollte.

Die Punktauswahl wird mit Hilfe einer zweidimensionalen HALTON-Sequenz [Hal60] erzeugt. Abbildung 3.13 zeigt exemplarisch eine solche Punktauswahl.

3. Methoden

Die eigentliche Horizontfunktion wird über Gleichung (3.33) diskret für eine Anzahl von Sektoren n_ϕ in ϕ -Richtung bestimmt.

Ausgehend hiervon lässt sich für die Exposition mit Hilfe des Normaleneinheitsvektors

$$\mathbf{n}(\mathbf{x}) = \frac{\mathbf{n}_u}{|\mathbf{n}_u|} = \frac{\left(-\frac{\partial h}{\partial x}, -\frac{\partial h}{\partial y}, 1\right)^T}{\sqrt{1 + \left(\frac{\partial h}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial h}{\partial y}\right)^2}} \quad (3.47)$$

und des Richtungsvektors des Teilcheneinfalls

$$\boldsymbol{\omega} = \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \phi \\ \sin \theta \sin \phi \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad (3.48)$$

formulieren:

$$\begin{aligned} \Omega(\mathbf{x}, \{h\}) &= \int_0^{2\pi} \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} P(\phi, \theta) \frac{\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\omega}}{\mathbf{N} \cdot \boldsymbol{\omega}} \sin \theta \, d\theta \, d\phi \\ &= \frac{1}{|\mathbf{n}_u|} \left[\int_0^{2\pi} \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} P(\phi, \theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi - \right. \\ &\quad \left. \frac{\partial h}{\partial x} \int_0^{2\pi} \cos \phi \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} P(\phi, \theta) \frac{\sin^2 \theta}{\cos \theta} \, d\theta \, d\phi - \right. \\ &\quad \left. \frac{\partial h}{\partial y} \int_0^{2\pi} \sin \phi \int_0^{l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)} P(\phi, \theta) \frac{\sin^2 \theta}{\cos \theta} \, d\theta \, d\phi \right]. \end{aligned} \quad (3.49)$$

Durch diese Umformung wird es möglich, für einfache Formen von $P(\phi, \theta)$ die Integration in θ -Richtung analytisch durchzuführen. Die Integration in ϕ -Richtung erfolgt numerisch mit der bei Bestimmung der Horizontfunktion verwendeten Diskretisierung.

Das Verfahren für die Berechnung des Horizonts in Sektoren auf Basis der diskretisierten Horizontfunktion entspricht einem modifizierten Tiefenpuffer (engl.: *Z-buffer*) [Cat74]. Von entscheidender Bedeutung für die Effizienz der Berechnung ist die gewichtete Monte-Carlo-Abtastung der Umgebung. Diese Technik bewirkt gegenüber der vollständigen Berücksichtigung aller diskreten Oberflächenpunkte eine erhebliche Beschleunigung der Berechnung und ermöglicht damit erst die Simulation längerer Schichtwachstumsvorgänge in 2+1 Dimensionen.

Durch das beschriebene numerische Verfahren lässt sich die Exposition $\Omega(\mathbf{x}, \{h\})$ und damit die Depositionsrate $R(\mathbf{x}, \{h\}, t)$ des vereinfachten Modells aus Gleichung (3.38) und (3.39) bestimmen. Beim KBR-Modell (Gleichung (3.42) und (3.43)) lässt sich dieses Verfahren für einfache Formen von $P(\phi, \theta)$ bereits ohne weitere Umformung des Integrals entsprechend Gleichung (3.49) anwenden.

Parallelisierung des Simulation

Durch die Festlegung des Grenzabstands r_c bei der Horizontberechnung reduziert sich der Aufwand für die Horizontberechnung von $\mathcal{O}(N^2)$ pro Gitterpunkt auf einen konstanten Wert in Bezug auf die Anzahl der Punkte des Simulationsgitters. Durch die Monte-Carlo-Abtastung wird dieser weiter reduziert. Trotzdem ist die Anwendung des skizzierten Verfahrens im Vergleich zu lokalen Wachstumsmodellen mit erheblichem Aufwand verbunden.

Aus diesem Grund wurden die Berechnungen im Rahmen dieser Arbeit programmiertechnisch in mehrere Bearbeitungsstränge aufgeteilt (engl.: *multithreading*). Die Aufteilung erfolgt durch Unterteilung des Simulationsgebietes in mehrere Bereiche. Aufgrund der nichtlokalen Natur der Abschattung ist nach jedem Zeitschritt eine Synchronisation der Daten aus verschiedenen Bearbeitungssträngen notwendig, was auf symmetrischen Multiprozessorsystemen mit nur geringen Geschwindigkeitseinbußen verbunden ist, da dort alle Recheneinheiten einen gemeinsamen Arbeitsspeicher nutzen und die Synchronisation der Daten keine zusätzliche Rechenleistung erfordert. Bei einer Nutzung von Cluster-Computern führt der notwendige umfangreiche Datenaustausch jedoch zu erheblichen Geschwindigkeitseinbußen und die Simulationsgeschwindigkeit ist in diesem Fall nicht durch die Rechenkapazität, sondern durch die Kommunikationsbandbreite zwischen den Einheiten des Clusters begrenzt.

3. Methoden

4. Ergebnisse

4.1. Schichtwachstumsexperimente

4.1.1. Schichtdickenreihen

Zur Untersuchung der Topographieentwicklung wurden zwei Versuchsreihen durchgeführt, bei denen jeweils eine Reihe von Beschichtungsversuchen mit unterschiedlicher Dauer bei sonst gleichen Prozessbedingungen durchgeführt wurden.

Tabelle 4.1 zeigt die Prozessparameter der beiden Versuchsreihen. Die Beschichtung erfolgte wie in Abschnitt 3.1 beschrieben in einer vollständig isolierten Kammerkonfiguration mit einer Keramikscheibe als Substratträger auf der Elektrode und einer Kunststoffisolierung der Gegenelektrode. Als Substrate dienten bei geringen Schichtdicken unterhalb von $35\ \mu\text{m}$ Silizium-Einkristall-Wafer (p-dotiert) und bei größeren Schichtdicken Floatglas-Proben von 4 mm Dicke. Beide Substratarten weisen eine Ausgangsrauigkeit auf, welche unterhalb der Detektionsgrenze des verwendeten Rasterkraftmikroskopes von etwa $w = 0.8\ \text{nm}$ liegt.

Abbildung 4.1 zeigt die bei den durchgeführten Versuchen gemessenen Schichtdicken über der Dauer der Beschichtung. Die auf den Silizium-Proben abgeschiedenen Schichten zeigen einen linearen Anstieg der Schichtdicke mit der Beschichtungsdauer bei sehr geringer Abweichung der Einzelwerte von der linearen Charakteristik. Die Wachstumsraten bei den auf Glassubstraten abgeschiedenen Schichten weisen aufgrund der größeren Substratdicke und des hierdurch veränderten elektrischen Feldes etwas höhere Werte auf. Die dickste abgeschiedene Schicht aus Versuchsreihe B konnte nicht vermessen werden und ihre Dicke wurde deshalb aus den Daten der nächstdünnere Schicht extrapoliert.

Die beschichteten Proben wurden mittels Rasterkraftmikroskop vermessen. Hierbei wurden Messfeldgrößen von $4.84\ \mu\text{m} \times 4.84\ \mu\text{m}$ sowie $9.68\ \mu\text{m} \times 9.68\ \mu\text{m}$ verwendet und die

Versuchsreihe	Fluss Ar sccm	Fluss Toluol sccm	HF-Leistung W
A	17	17	120
B	12	12	200

Tabelle 4.1: Versuchsreihen zur Untersuchung des Wachstumsverhaltens

4. Ergebnisse

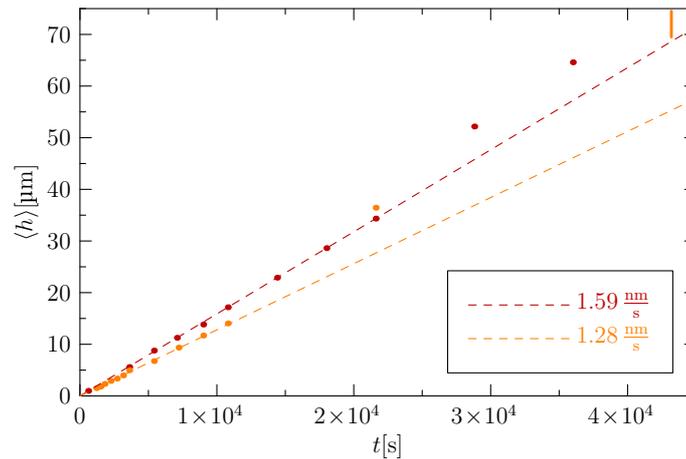


Abbildung 4.1: Schichtdickenentwicklung der Versuchsreihen A (dunkelrot) und B (orange) und aus den Daten für Schichtdicken unterhalb von $35 \mu\text{m}$ gemittelte Schichtwachstumsraten (gestrichelt)

Messung wurde jeweils an sechs unterschiedlichen Stellen durchgeführt. Die im Beschichtungsprozess durch Verschmutzungen insbesondere bei größeren Schichtdicken auftretenden Störungen, welche das Strukturwachstum beeinflussen, wurden dabei bewusst aussortiert, um das ungestörte Wachstum analysieren zu können.

Abbildung 4.2 zeigt eine Auswahl von Topographien der Versuchsreihe B. Entsprechend der in Abschnitt 3.4.2 beschriebenen Methode wurde aus den Topographien die Rauigkeit bestimmt, wobei hierfür nur eine Fläche von $4.5 \mu\text{m} \times 4.5 \mu\text{m}$ in der Mitte des Messfeldes verwendet wurde, um die Beeinflussung durch die im Randbereich sehr starken Nichtlinearitäten des Messsystems (deutlich erkennbar in Abbildung 4.2a) zu reduzieren. Abbildung 4.3 zeigt in Rot und Orange für die Versuchsreihen A und B die Rauigkeiten über der Schichtdicke in doppelt logarithmischer Darstellung. Da die Ausdehnung der Oberflächenstrukturen für große Schichtdicken die Größe des kleinen Messfeldes erreichen (siehe Abbildung 4.2f) sind für Schichtdicken oberhalb von $25 \mu\text{m}$ zusätzlich in Schwarz und Braun die Ergebnisse der Analyse auf Basis des größeren Messfeldes gezeigt. Durch Anpassung eines Potenzgesetzes entsprechend Gleichung (2.5) ergeben sich die in Tabelle 4.2 genannten Exponenten – β_l steht für den Wert unter Berücksichtigung des größeren Messfeldes für Schichtdicken $> 25 \mu\text{m}$. Für die dünnsten untersuchten Schichten bewegt sich die Rauigkeit im Bereich der Genauigkeit des verwendeten Rasterkraftmikroskopes (welche bereits oben bei der Substratrauhigkeit thematisiert wurde). Im Bereich von Schichtdicken unterhalb von $2 \mu\text{m}$ ist also der Einfluss von Unzulänglichkeiten des Messverfahrens (Messrauschen und Sichtfeldverformung) auf die Messwerte nicht zu vernachlässigen. Die Tatsache, dass die jeweils ersten Datenpunkte der Messreihen deutlich oberhalb des angepassten Potenzgesetzes liegen könnte Ihre Ursache in diesen Fehlern haben.

Abbildung 4.4 und 4.5 zeigen die aus den rasterkraftmikroskopischen Daten bestimmten Verläufe der Korrelationsfunktionen – jeweils gemittelt über die sechs durchgeführten Messungen. Die Korrelationsfunktionen zeigen insbesondere bei größeren Schichtdicken den in

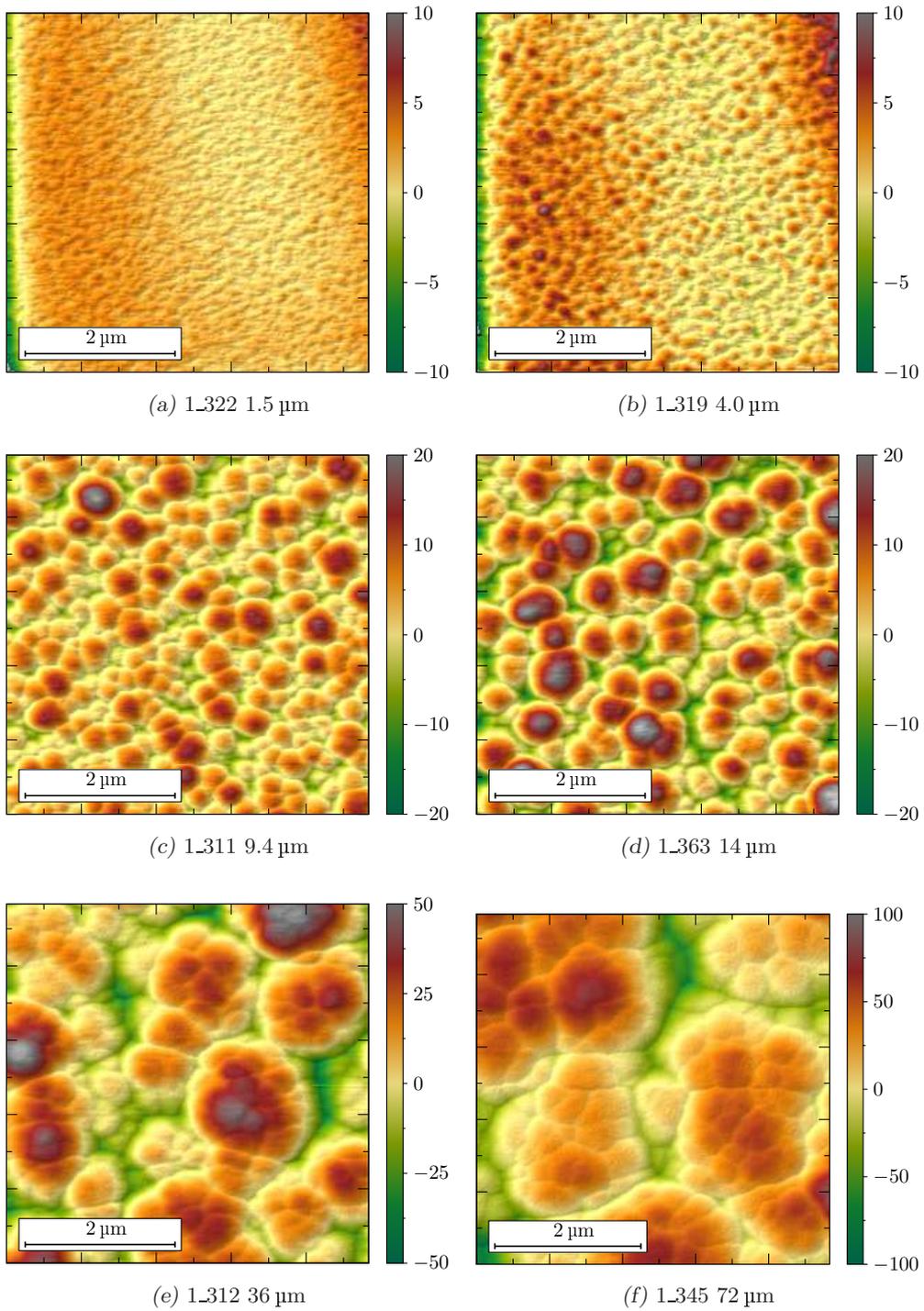


Abbildung 4.2: Schattierte Topographiedarstellungen von Rasterkraftmikroskop-Messungen der Reihe B (Höhenwerte in nm)

4. Ergebnisse

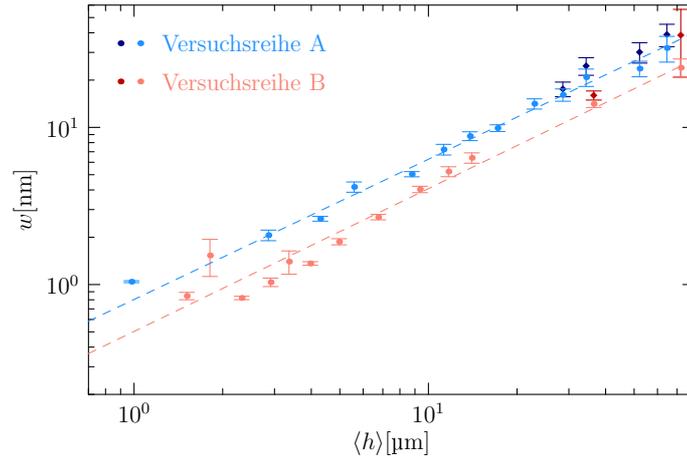


Abbildung 4.3: Rauigkeitsentwicklung der Oberflächen mit wachsender Schichtdicke auf Basis der Rasterkraftmikroskop-Messungen. Die jeweils für große Schichtdicken zusätzlich gezeigten Datenpunkte in dunkleren Farben basieren auf Auswertung der Messungen mit großem Messfeld. Anpassungen eines Potenzgesetzes gestrichelt.

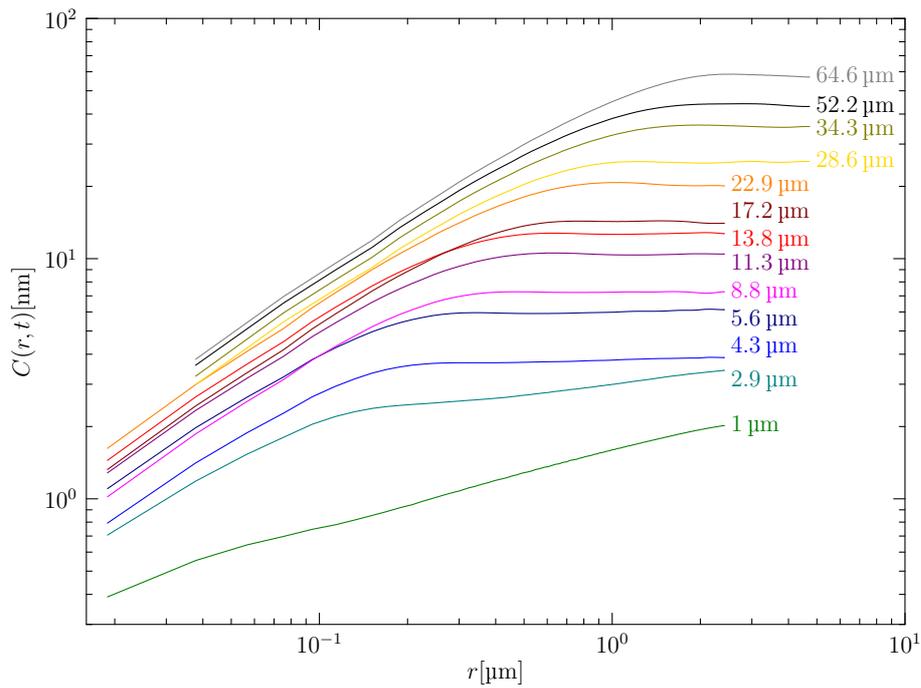


Abbildung 4.4: Verläufe der Korrelationsfunktion aus den Rasterkraftmikroskop-Messungen der Versuchsreihe A mit hohem Gasfluss und niedrige HF-Leistung (vgl. Tabelle 4.1). Die angegebenen Zahlenwerte geben die Dicke der jeweiligen Schicht wieder.

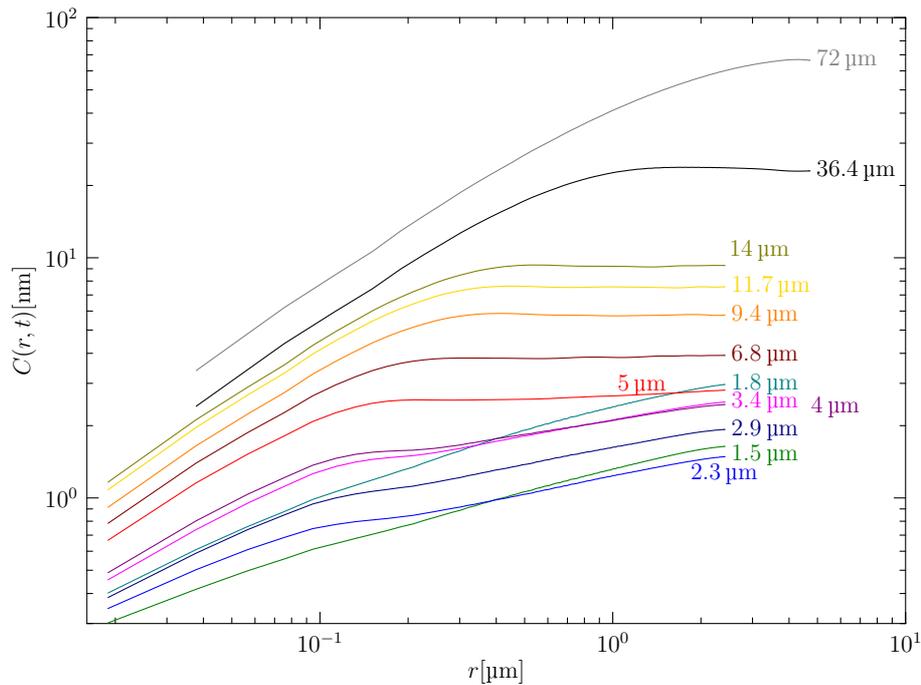


Abbildung 4.5: Wie Abbildung 4.4, jedoch für Versuchsreihe B mit niedrigem Gasfluss und hoher HF-Leistung

Abschnitt 3.4.3 beschriebenen charakteristischen Verlauf. Aus dem Übergang von ansteigendem zu konstantem Verlauf lässt sich die Korrelationslänge bestimmen. Abbildung 4.6 zeigt die Entwicklung der Korrelationslänge $\xi_{||}$ mit der Schichtdicke in doppelt logarithmischer Darstellung. Wie bei der Rauigkeitsentwicklung in Abbildung 4.3 wurden hier für Schichtdicken $> 25 \mu\text{m}$ beide Messfeldgrößen ausgewertet. Die Anpassung eines Potenzgesetzes entsprechend Gleichung (2.6) ergibt die in Tabelle 4.2 gezeigten Werte für den Exponenten ζ .

Aus dem Verlauf von $C(r)$ lässt sich außerdem entsprechend Gleichung (3.6) der Rauigkeitsexponent α bestimmen – die Entwicklung der hierbei ermittelten Werte ist in Abbildung 4.7 gezeigt. Deutlicher als bei der Rauigkeitsentwicklung und beim lateralen Wachstum zeigt sich hier ein Übergang von einem langsamen Anstieg der Werte zu einem konstanten Bereich mit $\alpha \approx 0.8$ bei etwa 5 bis 8 μm .

Abbildung 4.8 und 4.9 zeigen die Leistungsdichtespektren aus den Versuchsreihen A und B. Die hieraus ermittelte Entwicklung der dominanten Wellenlänge λ (siehe Abschnitt 3.4.4) ist in Abbildung 4.10 dargestellt. Diese entspricht weitgehend der Entwicklung der Korrelationslänge aus Abbildung 4.6.

4. Ergebnisse

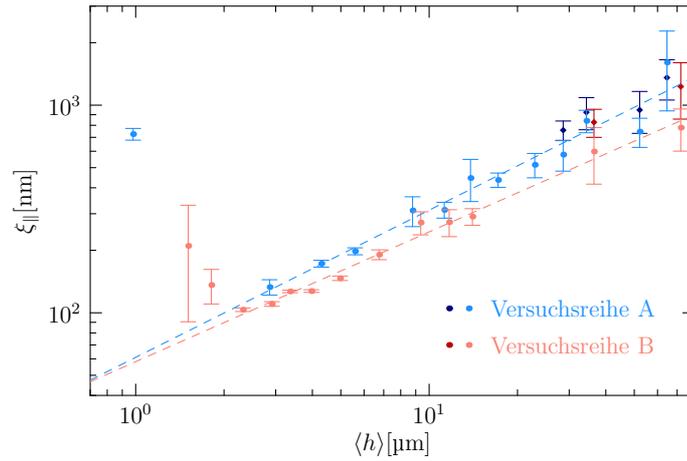


Abbildung 4.6: Entwicklung der Korrelationslänge, Darstellung wie in Abbildung 4.3.

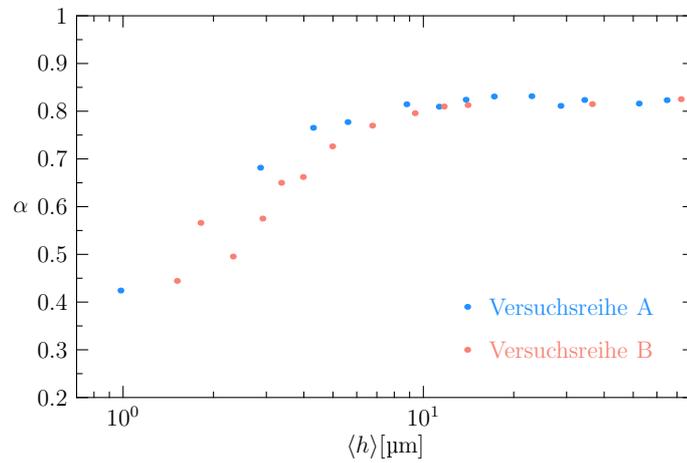


Abbildung 4.7: Entwicklung des aus den Korrelationsfunktionen bestimmten Rauigkeits-exponenten α mit der Schichtdicke im Experiment

Versuchsreihe	β	β_l	ζ	ζ_l	ζ'	ζ'_l
A	0.892	0.96	0.709	0.738	0.746	0.91
B	0.909	0.994	0.625	0.751	0.691	1.02

Tabelle 4.2: Ermittelte mittlere Werte für den vertikalen Wachstumsexponenten β und den lateralen Wachstumsexponenten ζ der Versuchsreihen A und B unter Nutzung der selben Messfeldgröße für alle Schichtdicken (β , ζ) sowie mit Wechsel auf ein größeres Messfeld für Schichtdicken $> 25 \mu\text{m}$ (β_l , ζ_l). ζ' und ζ'_l bezeichnen die auf Basis der Leistungsdichtespektren bestimmten lateralen Exponenten.

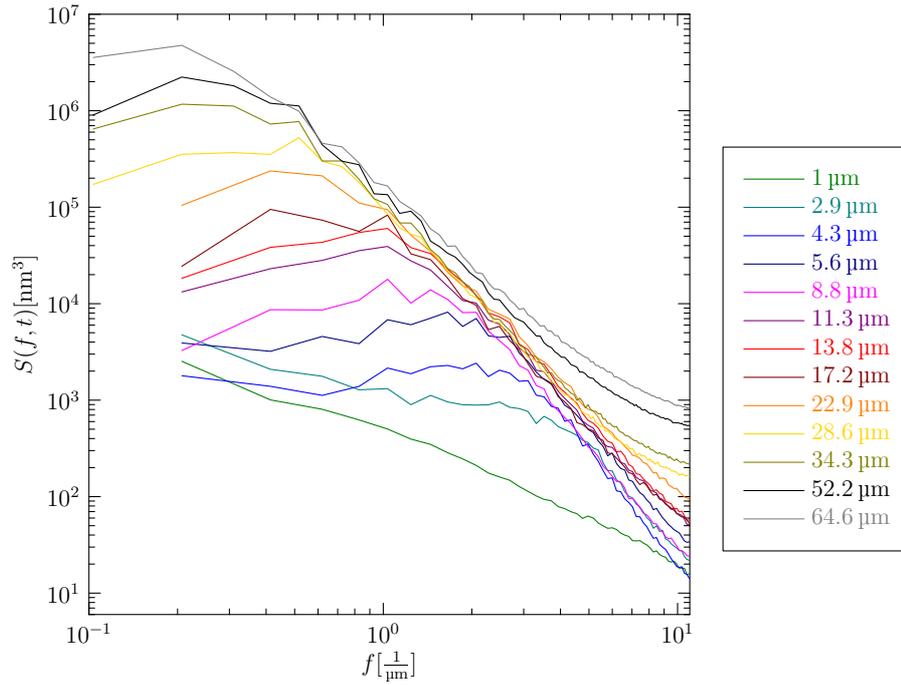


Abbildung 4.8: Leistungsdichtespektren aus den Rasterkraftmikroskop-Messungen der Versuchsreihe A

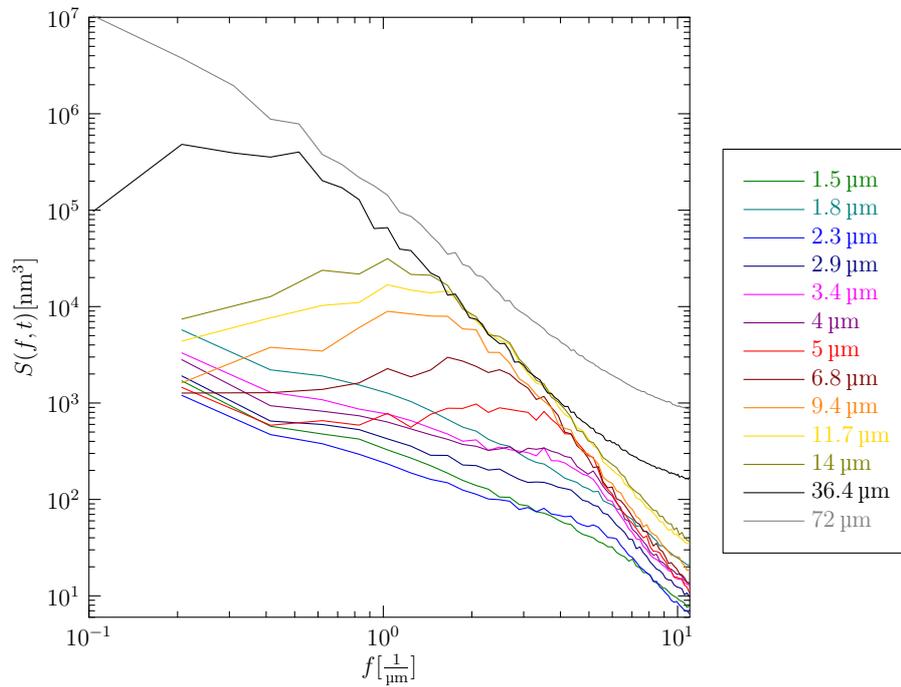


Abbildung 4.9: Leistungsdichtespektren aus den Rasterkraftmikroskop-Messungen der Versuchsreihe B

4. Ergebnisse

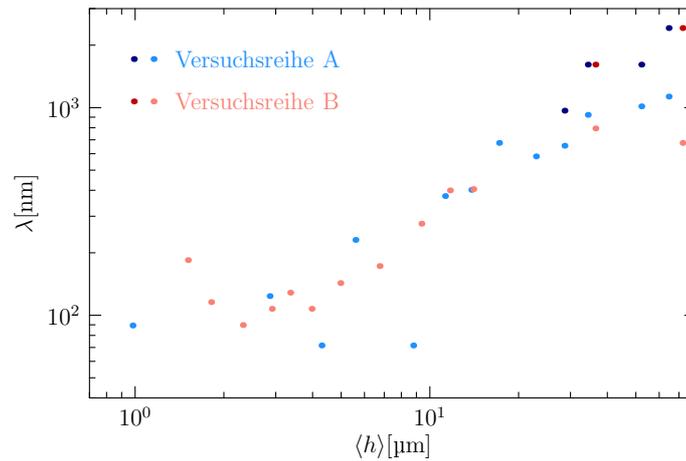


Abbildung 4.10: Entwicklung der aus den Leistungsdichtespektren bestimmten dominanten Wellenlänge

4.1.2. Einfluss der Substrattemperatur

Durch Kühlung der Elektrode wurde der Einfluss der Substrattemperatur auf das Schichtwachstum bei sonst gleichen Abscheidebedingungen (entsprechend Versuchsreihe B) untersucht. Die angegebenen Temperaturen entsprechen der Regeltemperatur des Kühlaggregates. Die eigentliche Substrattemperatur bei der Deposition liegt aufgrund des Energieeintrags aus dem Plasma und durch die endliche Wärmeleitung der Elektrode deutlich höher. Abbildung 4.11 zeigt die aus der gemessenen Schichtdicke und der Prozessdauer (für alle Versuche 90 Minuten) bestimmte Wachstumsrate. Mit Ausnahme des Versuches bei 5°C nimmt die Wachstumsrate streng monoton mit steigender Temperatur ab. Die Ergebnisse für 5°C stammen aus der Versuchsreihe B, welche in größerem zeitlichen Abstand von den übrigen Beschichtungen der Temperaturreihe durchgeführt wurde und bei welcher bedingt durch dazwischen liegende Umbauten der Beschichtungsanlage möglicherweise etwas andere Depositionsbedingungen vorlagen als bei den übrigen Versuchen. Weiterhin liegt die für diesen Versuch bestimmte Wachstumsrate geringfügig unterhalb der mittleren Rate der gesamten Versuchsreihe B, was darauf hindeutet, dass die bestimmte Rate – möglicherweise aufgrund des Fehlers bei der Schichtdickenmessung – zu gering ist.

Abbildung 4.12 zeigt die aus der Temperaturreihe ermittelten Werte für Schichtdicke, Rauigkeit und Korrelationslänge. Die Messwerte deuten an, dass die Rauigkeit gegenüber dem Potenzgesetz-Verlauf der Versuchsreihe B mit reduzierter Temperatur leicht ansteigt während die laterale Korrelationslänge abnimmt. Dies bedeutet, dass eine bei niedrigen Temperaturen abgeschiedene Schicht eine höhere Rauigkeit und eine geringere laterale Korrelationslänge und damit ein anderes Aspektverhältnis der Strukturen aufweist als eine bei höheren Temperaturen abgeschiedene Schicht der selben Dicke.

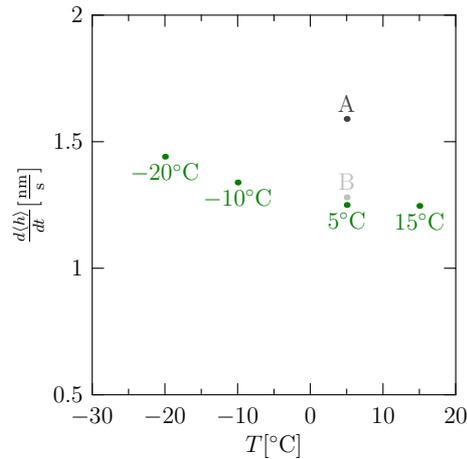


Abbildung 4.11: Die Wachstumsrate $\frac{d\langle h \rangle}{dt}$ für verschiedene Substrattemperaturen während der Deposition. Zum Vergleich in grauer Farbe die gemittelten Wachstumsraten der Versuchsreihen A und B (vgl. Abbildung 4.1).

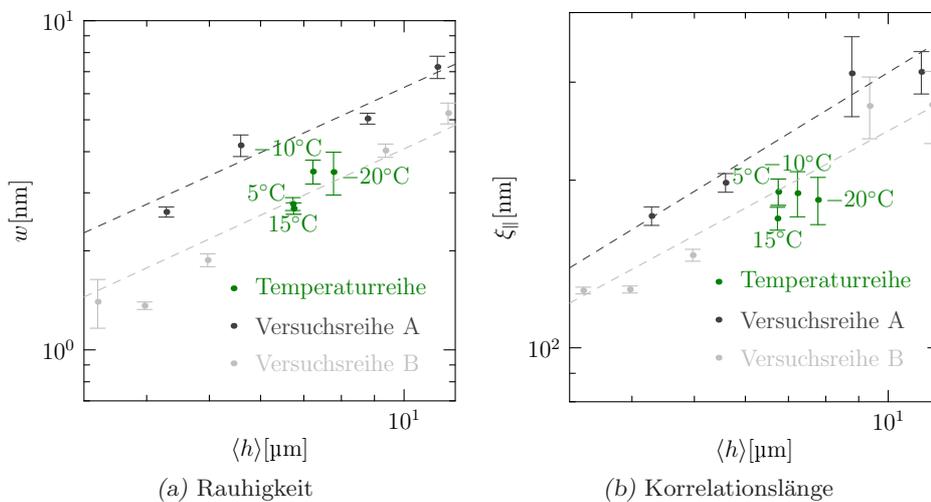


Abbildung 4.12: Die Unterschiede im Wachstum bei verschiedenen Substrattemperaturen, jedoch sonst gleichen Depositionsbedingungen und gleicher Beschichtungsdauer. Im Vergleich die Versuchsreihen A (dunkelgrau) und B (hellgrau) sowie die daran angepassten Potenzgesetze (gestrichelt).

4. Ergebnisse

Prozess	Leistung W	Fluss Ar sccm	Fluss Toluol sccm	Druck	Schichtdicke μm	Härte HV
1_270	120	17	17	p^+	5.6	835
1_301	200	17	17	p^+	6.7	1138
1_302	120	12	12	p^-	4.6	927
1_303	200	12	12	p^-	5.0	1323
1_332	200	9	9	p^{--}	3.8	1499
1_333	80	22	22	p^{++}	5.0	625
1_450	200	22	22	p^{++}	7.7	986
1_451	80	9	9	p^{--}	3.6	767
1_452	50	22	22	p^{++}	4.6	–
1_455	50	9	9	p^{--}	2.8	–

Tabelle 4.3: Durchgeführte Versuche zum Einfluss der Prozessparameter auf das Schichtwachstum

4.1.3. Einfluss der Prozessparameter

Um die Abscheidebedingungen zu beeinflussen bestehen neben der Steuerung der Substrattemperatur im Wesentlichen drei Möglichkeiten:

Die Änderung der Kammergeometrie hat einen recht weitgehenden Einfluss auf die Deposition. Insbesondere durch Änderung des Flächenverhältnisses der Elektroden lassen sich die Depositionsbedingungen steuern. Jedoch lässt sich dieser Parameter in der Praxis nur relativ grob und diskontinuierlich beeinflussen.

Die Änderung der eingekoppelten Hochfrequenzleistung P_V : hierdurch kann der Ionisationsgrad des Plasmas und damit die Plasmachemie beeinflusst werden. Daneben bewirkt eine Änderung der Leistung eine Veränderung des Potentialabfalls im Dunkelraum an der Substratelektrode.

Die Änderung des Gasdruckes in der Kammer p : Eine Veränderung des Gasdruckes in der Beschichtungskammer beeinflusst das Stoßverhalten der Ionen und Neutralteilchen im Plasma und damit indirekt die Plasmachemie. Daneben stellt der Druck die bestimmende Größe für die Höhe des Dunkelraums über dem Substrat dar.

Die durch diese Parameter definierten Potentialverhältnisse in der Beschichtungskammer können in Form der Eigenvorspannung (engl.: *self bias voltage*) V_{sb} auch direkt gemessen werden. Allerdings gestaltet sich diese Spannungsmessung im verwendeten isolierten Anlagenaufbau als schwierig und ungenau, so dass auf eine Messung verzichtet wurde.

Der Einfluss der Prozessparameter wurde deshalb durch Variation von Hochfrequenzleistung P_V und Kammerdruck p untersucht. Die hierfür durchgeführten Versuche sind in Tabelle 4.3 aufgelistet. Da auch die Druckmessung durch die elektrische Isolation der Plasmakammer erschwert wird – ein an der Kammerwand montierte Druckmessgerät muss vom

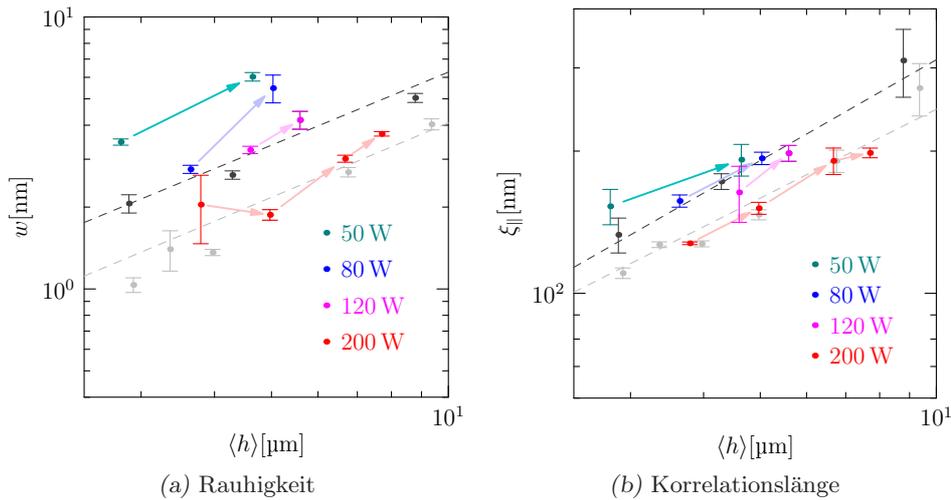


Abbildung 4.13: Einfluss einer Erhöhung des Kammerdrucks auf die Strukturentwicklung bei jeweils konstanter HF-Leistung und sonst gleichen Depositionsbedingungen und gleicher Beschichtungsdauer. Die Steigerung des Drucks ist durch die Pfeile verdeutlicht. Im Vergleich die Versuchsreihen A (dunkelgrau) und B (hellgrau) sowie die daran angepassten Potenzgesetze (gestrichelt).

Plasma isoliert werden, was nicht ohne Behinderung des Gasflusses möglich ist – wurde auf eine Angabe von Zahlenwerten für den Druck verzichtet. Die qualitativen Druckangaben (p^{--} bis p^{++}) ergeben sich aus den Gasflüssen. Die Prozessdauer ist bei dieser Versuchsreihe wie schon bei der Temperaturreihe (Abschnitt 4.1.2) konstant gehalten (60 Minuten) so dass sich aus den Unterschieden in der Schichtdicke direkt auf die Schichtwachstumsrate schließen lässt.

In Abbildung 4.13 und 4.14 ist dargestellt, wie die Variation der Prozessparameter die Strukturentwicklung beeinflusst. Abbildung 4.13a zeigt zunächst, wie sich eine Erhöhung des Kammerdrucks bei konstanter Leistung auf die Rauigkeitsentwicklung auswirkt. Steigender Prozessdruck bewirkt einen Anstieg der Rauigkeit und der Schichtdicke in einem ähnlichen Maß wie bei einer entsprechend verlängerten Depositionsdauer – im Diagramm also parallel zur Wachstumskurve der Schichtdickenreihen. Das laterale Wachstum verhält sich wie in Abbildung 4.13b zu sehen ähnlich, wobei die Rauigkeit bei Drucksteigerung tendenziell eher stärker zunimmt als bei den Schichtdickenreihen während die Korrelationslänge eher schwächer ansteigt.

Die Auswirkung einer Erhöhung der in das Plasma eingekoppelten HF-Leistung bei konstantem Kammerdruck ist in Abbildung 4.14 dargestellt. Die Wachstumsrate und damit die Schichtdicke steigt durch die höhere HF-Leistung an. Die Rauigkeit nimmt währenddessen jedoch deutlich ab, wie in Abbildung 4.14a zu sehen ist. Das laterale Wachstum verändert sich bei Steigerung der Leistung weniger eindeutig, wie in Abbildung 4.14b zu erkennen ist

4. Ergebnisse

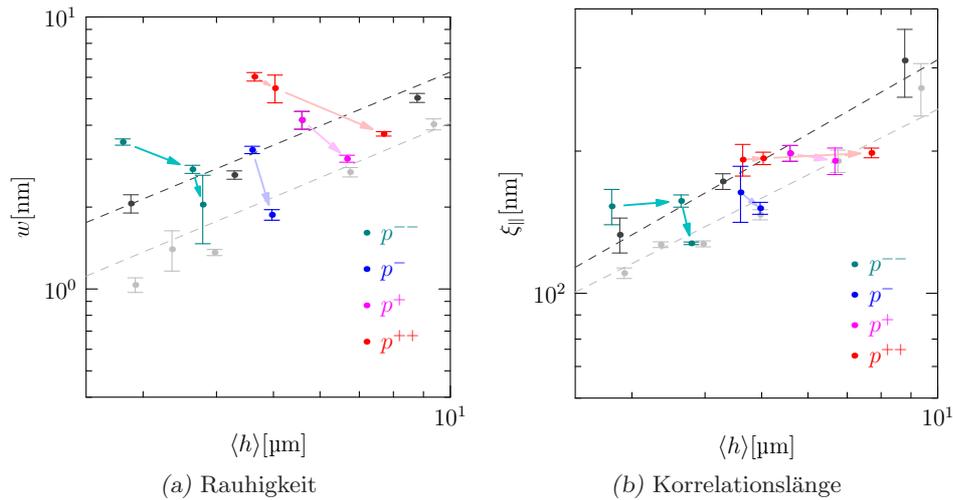


Abbildung 4.14: Einfluss der Erhöhung der HF-Leistung auf die Strukturentwicklung bei jeweils konstantem Druck. Darstellung wie in Abbildung 4.13.

Gas	Druck Pa	Wachstumsrate $\frac{\text{nm}}{\text{s}}$
Toluol	1.6/2.5	1.28/1.59
Azetylen	1.7	0.61
Methan	1.2	0.13
TMS	1.6	0.70

Tabelle 4.4: Wachstumsraten von Schichten auf Basis verschiedener Kohlenwasserstoffe

Dass sich die Variation der Abscheidebedingungen nicht nur auf Wachstumsrate und Topographieentwicklung auswirkt, sondern auch auf die mechanischen Eigenschaften der Schicht, zeigen die in Tabelle 4.3 angegebenen Härtewerte, welche mittels Nanoindentation bestimmt wurden. Durch einen höheren Kammerdruck entstehen Schichten geringerer Härte während durch eine Steigerung der Leistung härtere Schichten abgeschieden werden.

4.1.4. Vergleich mit anderen Prozessgasen

Zum Vergleich wurden Schichten auf Basis anderer Kohlenwasserstoffe hergestellt. Hierfür verwendet wurden Methan (CH_4), Azetylen (C_2H_2) und Tetramethylsilan (TMS, $\text{C}_4\text{H}_{12}\text{Si}$) – letzteres spielt insbesondere als Ausgangsstoff für Haftvermittlerschichten bei der PECVD-Beschichtung eine große Rolle.

Die mit diesen Kohlenwasserstoffen erreichbaren Schichtwachstumsraten liegen unterhalb derer auf Basis von Toluol. Insbesondere aus dem Methanplasma wachsen die Schichten sehr langsam. Tabelle 4.4 zeigt die in den Experimenten erreichten Wachstumsraten. Die Raten sind jedoch wie bei Toluol (siehe Abschnitt 4.1.3) abhängig von den Deposi-

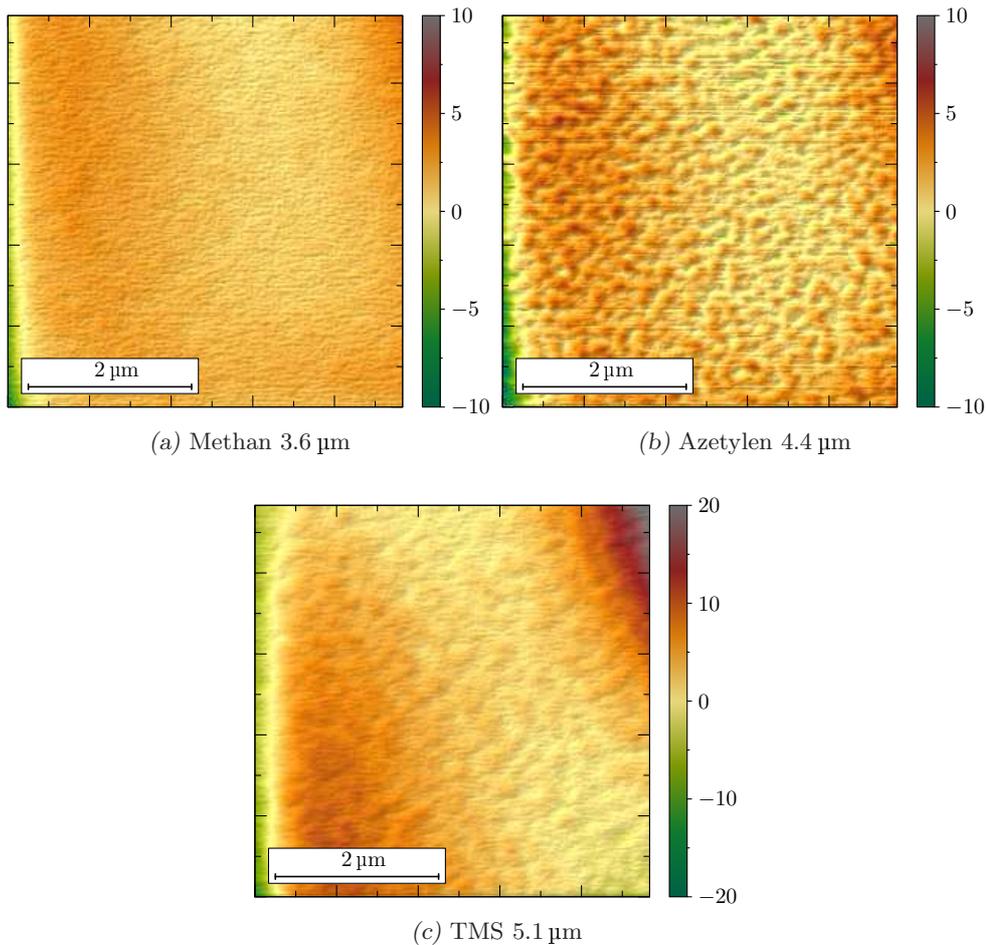


Abbildung 4.15: Schattierte Topographiedarstellungen von Rasterkraftmikroskop-Messungen von Schichten aus verschiedenen Kohlenwasserstoffen (Höhenwerte in nm)

tionsbedingungen, insbesondere vom Kammerdruck, welcher sich bei den durchgeführten Experimenten deutlich unterscheidet.

Abbildung 4.15 zeigt Topographien dieser Schichten, abgeschieden wie die Reihen A und B aus Abschnitt 4.1.1 auf glattem Substrat. Bei gleicher Schichtdicke weisen diese eine deutlich schwächere Oberflächenstruktur als Schichten auf Toluolbasis auf. In Abbildung 4.16 werden die hieraus bestimmten Rauigkeiten der Rauigkeitsentwicklung Toluol-basierender Schichten aus Abbildung 4.3 gegenübergestellt.

Eine Bestimmung der Korrelationslänge war aufgrund der nur sehr schwach ausgeprägten Oberflächenstruktur nicht möglich.

4. Ergebnisse

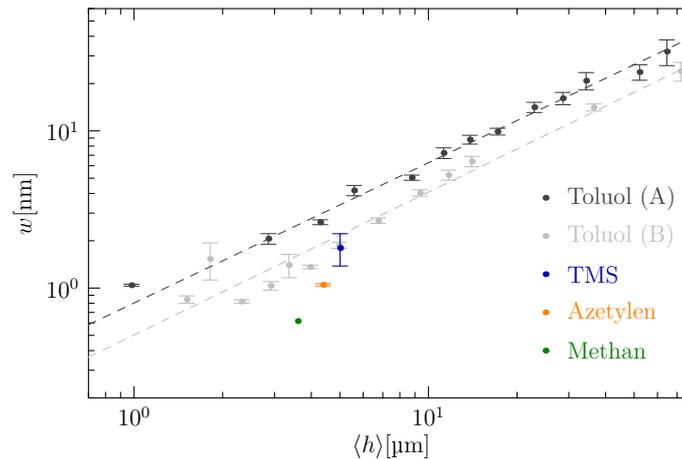


Abbildung 4.16: Schichtrauhigkeit bei anderen Prozessgasen im Vergleich zu Toluol

4.1.5. Beschichtungsversuche auf strukturierten Substraten

Neben Experimenten zur Beschichtung von glatten Substraten wurde auch das Schichtwachstum auf strukturierten Oberflächen untersucht. Hierzu dienten zum einen mechanisch bearbeitete Stahlproben (100Cr6) und Aluminiumproben mit einer statistischen Oberflächenstruktur, deren Beschichtung deutlich näher an üblichen technologischen Anwendungen der Schichten liegt. Zum anderen wurden Silizium-Substrate mit einer geometrisch klar definierten Strukturierung verwendet.

mechanisch polierte Metallsubstrate

Die mit einer Diamantsuspension polierten Oberflächen zeichnen sich durch eine charakteristische Oberflächenstruktur aus (siehe Abbildung 4.17). Die Diamantpartikel erzeugen beim Poliervorgang mikroskopische Riefen von etwa 100 nm Breite. In den meisten Fällen weisen diese keine ausgeprägte Vorzugsrichtung auf. Die jeweils am stärksten ausgeprägten Riefen erzeugen ein Muster, welches man aufgrund der zufälligen Ausrichtung als *statisch anisotrop* bezeichnen kann.

Die Rauigkeit der verwendeten Substrate liegt bei $w = 2.4 \pm 0.6$ nm (gemessen wie bei den Schichten über eine Fläche von $4.5 \mu\text{m} \times 4.5 \mu\text{m}$).

Die Strukturentwicklung beim Schichtwachstum unterscheidet sich vom Fall glatter Anfangsbedingungen. Wie in Abbildung 4.19 zu sehen liegen die Werte der Rauigkeitsentwicklung oberhalb derer bei glattem Substrat. Für größere Schichtdicken nähern sich die Rauigkeitswerte einander an, der Einfluss der Rauigkeit des Substrates auf die Rauigkeit der Schicht nimmt also mit wachsender Schichtdicke ab. Die Rauigkeit bleibt auf den polierten Substraten jedoch selbst für die größten untersuchten Schichtdicken um den Faktor 2 bis 3 oberhalb der Referenzreihe auf glattem Substrat.

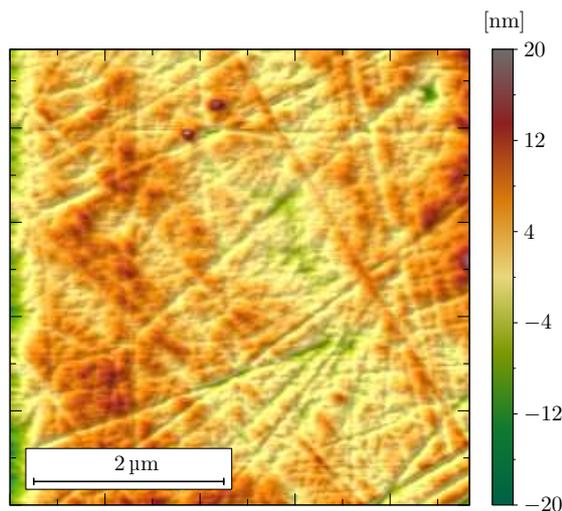


Abbildung 4.17: Rasterkraftmikroskopische Aufnahme eines polierten Metallsubstrates

Die Entwicklung der Korrelationslänge in Abbildung 4.20 ähnelt der Rauheitsentwicklung. Da jedoch die Substratoberfläche in Abbildung 4.17 keine ausgeprägte Korrelationslänge aufweist, lässt sich für dünne Schichten die Korrelationslänge nur unzuverlässig bestimmen. Aus diesem Grund weisen die ermittelten Werte eine relativ große Streuung auf.

Bei Schichten auf Basis der anderen untersuchten Kohlenwasserstoffe, welche auf glattem Substrat eine sehr schwach ausgeprägte Strukturentwicklung zeigen, lässt sich auf mechanisch poliertem Substrat eine deutliche Wechselwirkung mit der Substratstruktur erkennen. Wie in Abbildung 4.21 zu sehen überwachsen Schichten auf Basis von Azetylen und TMS die Substratstruktur ähnlich wie bei Toluol kappenförmig. Das Schichtwachstum im Methanprozess ist hingegen bei den betrachteten Schichtdicken unterhalb von $3\ \mu\text{m}$ von einer deutlichen Einebnung feiner Substratstrukturen geprägt ohne dass eine ausgeprägte Kappenbildung erkennbar ist.

Eine genauere Betrachtung mit Hilfe der Leistungsdichtespektren in Abbildung 4.22 zeigt, dass die methanbasierte Schicht im Vergleich zum unbeschichteten Substrat eine deutliche Reduktion der hochfrequenten Komponenten der Oberflächenstruktur zeigt während die langwelligen Strukturanteile mit wachsender Schichtdicke klar erkennbar verstärkt werden, wenngleich dies bei den untersuchten Schichten in der Topographiedarstellung kaum erkennbar ist. Die Azetylen- und TMS-Schichten unterscheiden sich in den Spektren nur geringfügig von denen auf Toluol-Basis. Die Rauigkeit der Schicht auf TMS-Basis liegt wie schon auf glattem Substrat (Abbildung 4.16) leicht über dem Wert der aus Azetylen abgeschiedenen Schicht.

4. Ergebnisse

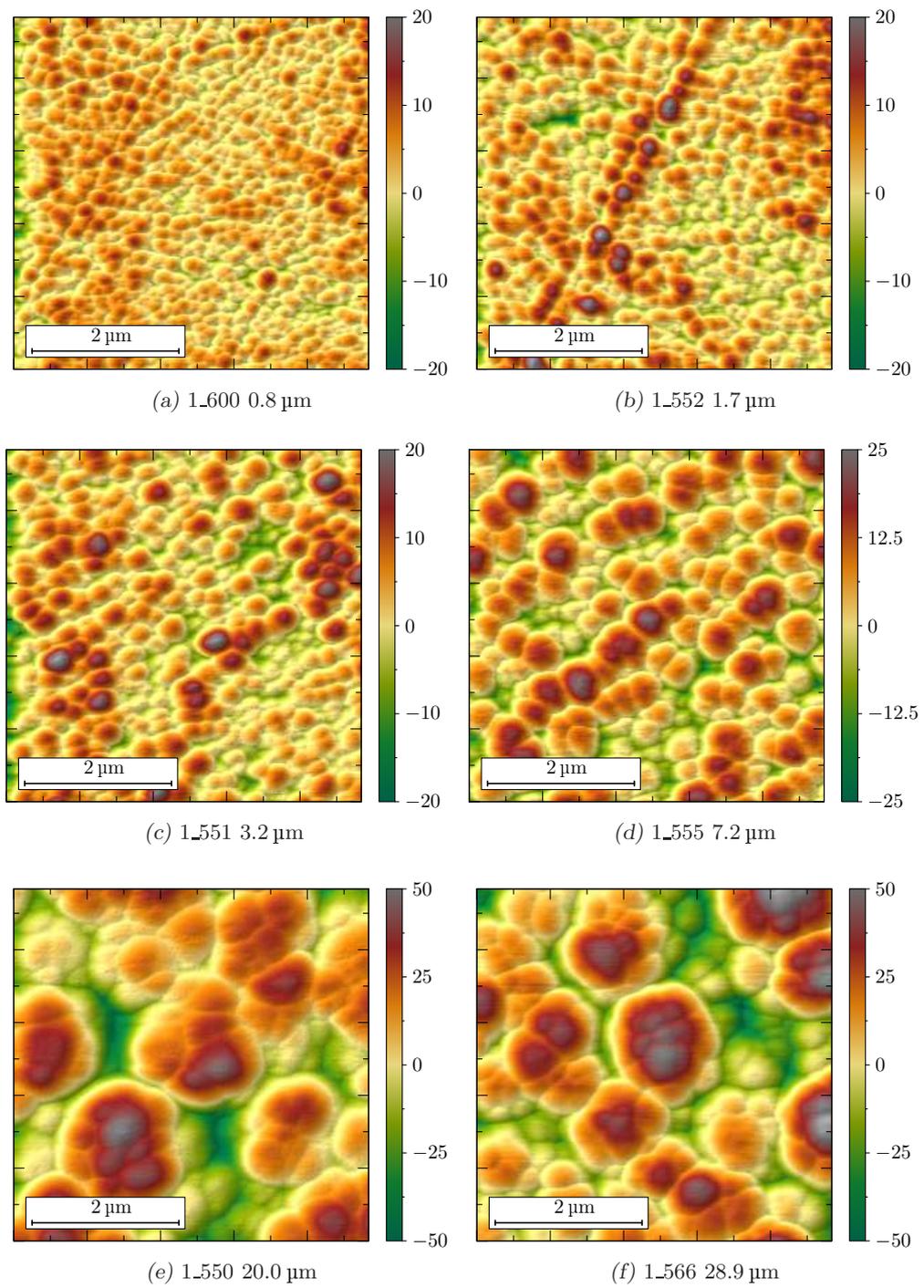


Abbildung 4.18: Schattierte Topographiedarstellungen von Rasterkraftmikroskop-Messungen von Schichten auf polierten Metall-Substraten (Höhenwerte in nm)

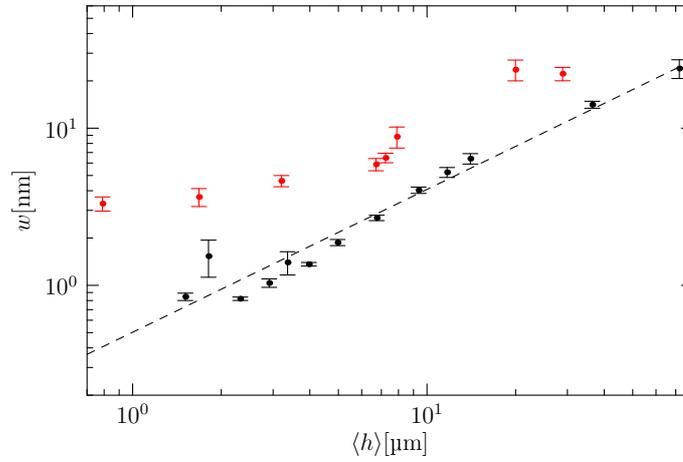


Abbildung 4.19: Rauigkeitsentwicklung der auf polierten Metallsubstraten abgeschiedenen Schichten (in rot). In schwarz die Versuchsreihe mit identischen Prozessparametern auf glattem Substrat.

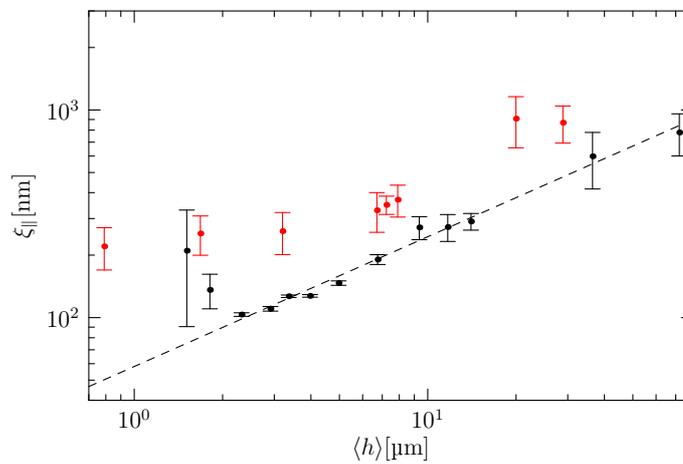


Abbildung 4.20: Entwicklung der Korrelationslänge auf polierten Metallsubstraten, Darstellung wie in Abbildung 4.19.

4. Ergebnisse

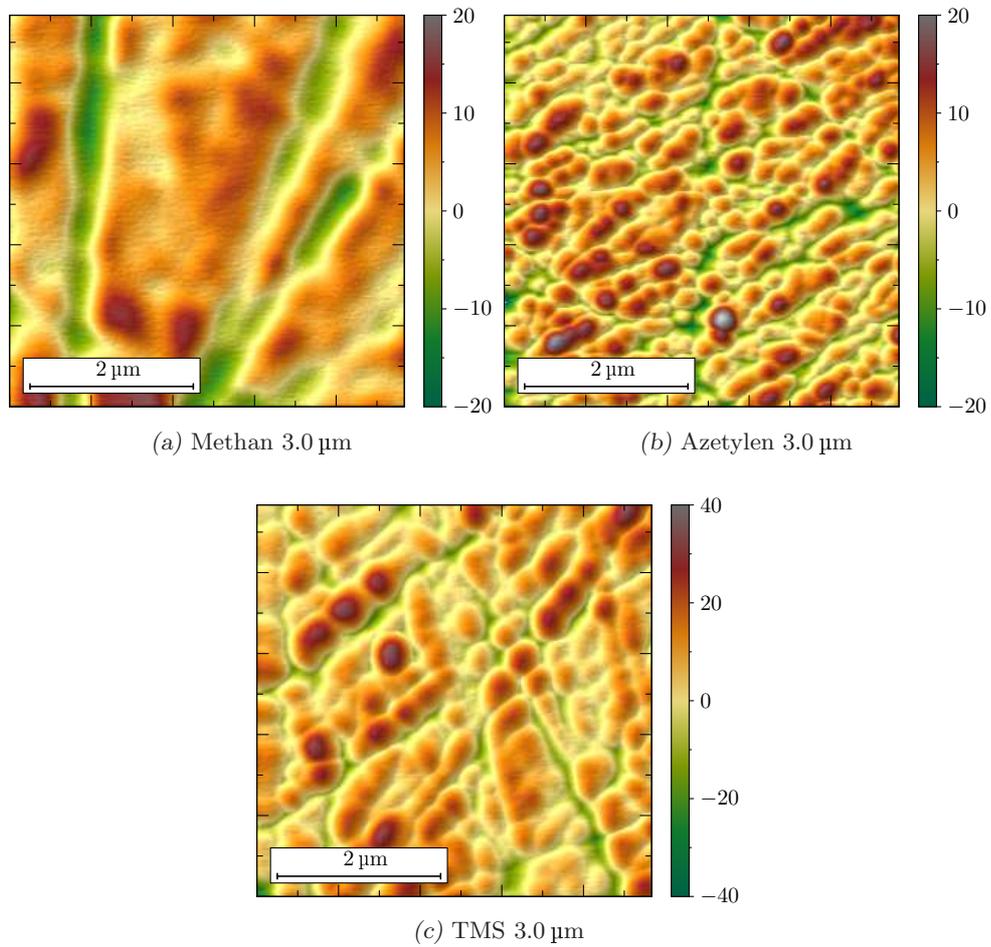


Abbildung 4.21: Schattierte Topographiedarstellungen von Rasterkraftmikroskop-Messungen von Schichten aus verschiedenen Kohlenwasserstoffen auf strukturierten Substraten (Höhenwerte in nm)

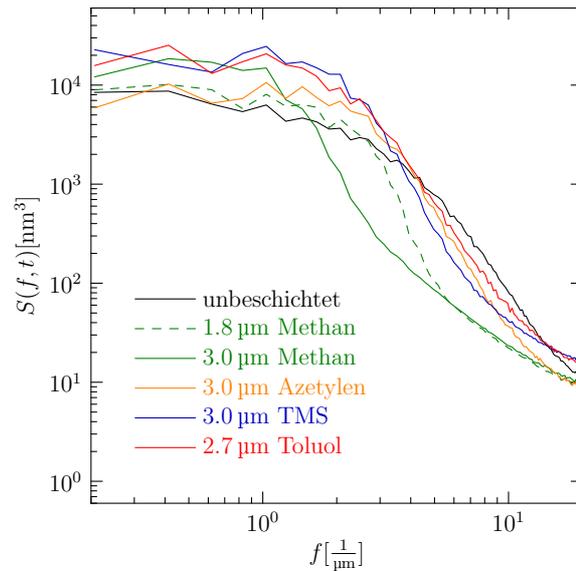


Abbildung 4.22: Leistungsdichtespektren von Schichten auf Basis verschiedener Kohlenwasserstoffe, abgeschieden auf mechanisch polierten Substraten

strukturierte Silizium-Substrate

Um neben dem Wachstum auf poliertem Substrat mit einer zufälligen Struktur auch das Wachstum auf einer klar definierten Substratstruktur untersuchen zu können, wurden lithographisch strukturierte Substrate aus einkristallinem Silizium verwendet. Die Strukturierung erfolgt hierbei dadurch, dass die Oberfläche des Siliziums in einer Dicke von 10 nm oxidiert wird, anschließend mit einem Fotolack durch Belichtung und anschließende Entwicklung selektiv abgedeckt und das Siliziumoxid durch einen Ätzprozess an den nicht abgedeckten Stellen entfernt wird. Als Maske dient hierbei ein lithographisches Testmuster, welches für die hier durchgeführten Versuche geeignete gerade Stufen enthält. Die Stufen weisen entsprechend der Oxidschicht eine Höhe von etwa 10 nm auf. Dicke schwankt jedoch über die Fläche des Si-Wafers deutlich und liegt somit bei einigen der verwendeten Proben deutlich unterhalb der Nominaldicke.

Abbildung 4.23 zeigt die Oberflächentopographien der auf diesen Stufen abgeschiedenen Schichten. Durch die Kompensation der Sichtfeldkrümmung (vgl. Abschnitt 3.4.1), welche ohne besondere Berücksichtigung der Substratstufe erfolgt, sind die Plateaus oberhalb und unterhalb der Stufe dabei leicht geneigt. Zu erkennen ist, dass es wie bei den Beschichtungsversuchen auf unstrukturiertem Silizium zur Ausbildung von kappenförmigen Strukturen kommt, welche an der Substratkante deutlich ausgeprägter wachsen als auf den benachbarten Plateauflächen.

Um dieses Wachstum an der Substratkante weiter zu quantifizieren wurde der Verlauf des Oberflächenprofils entlang der Kantenkontur gemittelt. Das resultierende gemittelte Profil ist weitgehend unabhängig von den individuellen und zufälligen Aspekten der Oberflächentopographie in Form der einzelnen Kappen und charakterisiert das Wachstum über der

4. Ergebnisse

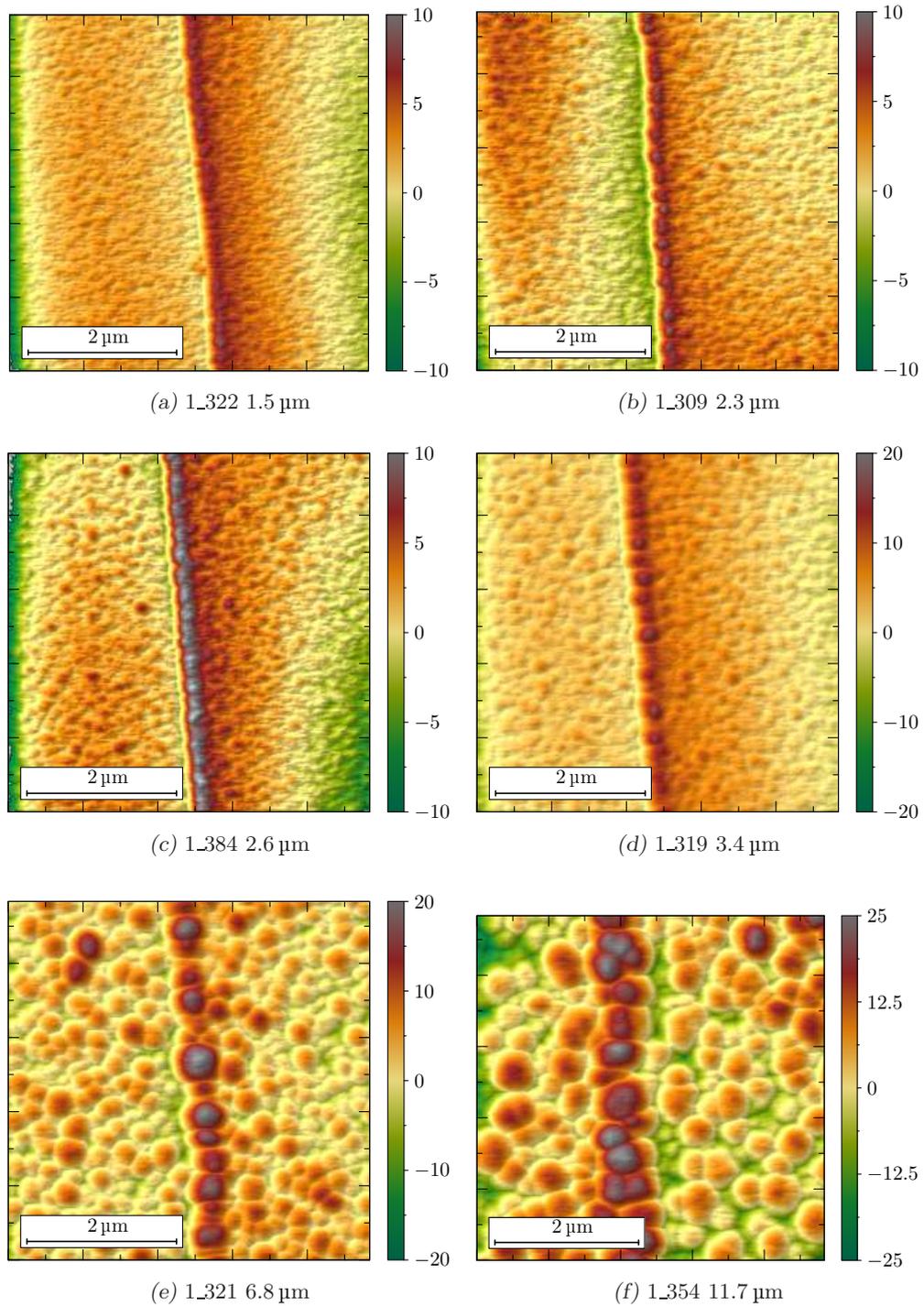


Abbildung 4.23: Schattierte Topographiedarstellungen von Rasterkraftmikroskop-Messungen von Schichten auf Substratstufen (Höhenwerte in nm). Die Substratstufe steigt mit Ausnahme von Abbildung 4.23f von links nach rechts an. Die dargestellte Orientierung entspricht der Messrichtung.

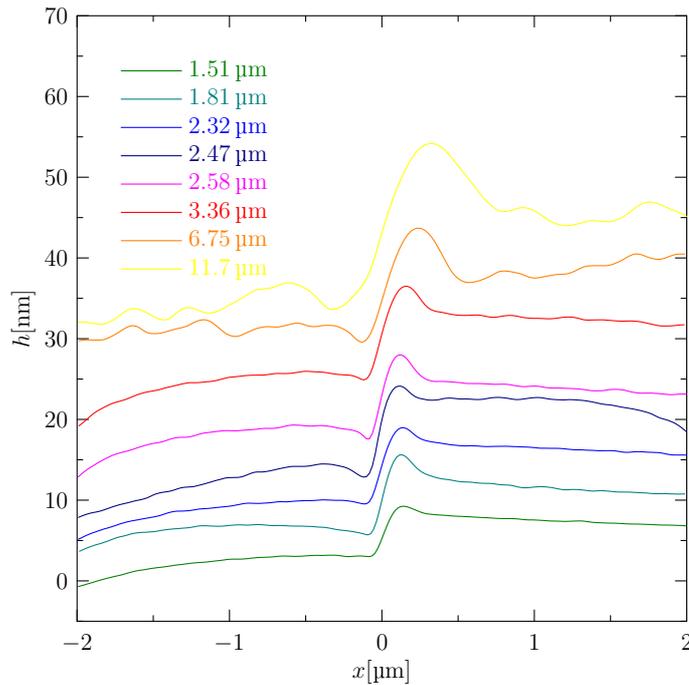


Abbildung 4.24: Entlang einer Substratstufe gemitteltes Oberflächenprofil auf Basis von Rasterkraftmikroskop-Messungen für verschiedene Schichtdicken

Stufe unabhängig hiervon. Abbildung 4.24 zeigt die gemittelten Profilverläufe. Die Verläufe sind zur besseren Sichtbarkeit jeweils um einen festen Betrag vertikal verschoben, welcher jedoch nicht in Zusammenhang mit der jeweiligen Schichtdicke steht.

Diese Verläufe zeigen in Übereinstimmung mit der Beobachtung eines ausgeprägten Kappenwachstums entlang der Kante eine deutliche Überhöhung des Oberflächenprofils. Die entsprechende Vertiefung unterhalb der Kante ist wesentlich schwächer ausgeprägt und kann sehr gut durch die Anordnung der Kappen an der Kante und der damit verbundenen durchgehenden Rille zwischen den Kappen, welche parallel zur Substratkante verläuft, erklärt werden. Die regelmäßige Anordnung der Kappenstrukturen geht mit wachsendem Abstand von der Substratstufe sehr schnell in eine unregelmäßige Anordnung über.

4.2. Simulationen

Auf Grundlage des in Abschnitt 3.5 beschriebenen Wachstumsmodells wurden Simulationen des Schichtwachstums durchgeführt. Für eine gute Vergleichbarkeit mit den experimentellen Ergebnissen wurde die Simulationsfeldgröße in Anlehnung an die rasterkraftmikroskopischen Messungen gewählt. Simulationstests unter Verwendung lokaler Wachstumsmodelle mit Zeitschrittweiten Δt zwischen 0.5 s und 4 s zeigten ein stabiles Wachstumsverhalten mit der aus der Literatur für diese Modelle bekannten Charakteristik. Da in die Abschattungsberechnung nur die Form der Oberfläche $h(\mathbf{x}, t)$, nicht jedoch de-

4. Ergebnisse

ren räumliche Ableitungen eingehen, ist zu vermuten, dass dies weitgehend auch für das Wachstumsmodell mit Abschattung gilt. Aus diesem Grund wurde für die folgenden Simulationen ein $\Delta t = 1$ s festgesetzt. Als Größe des Simulationsfeldes wurde in Anlehnung an die rasterkraftmikroskopischen Messungen $2.42 \mu\text{m}$ oder $4.84 \mu\text{m}$ gewählt was mit einer Diskretisierung von 256×256 und 512×512 Punkten einer Schrittweite der räumlichen Diskretisierung $d = 9.5$ nm entspricht.

4.2.1. Grundlegende Simulation der Abschattung

Da bezüglich der Größenverteilung der Teilchen im Depositionsstrom keine experimentellen Daten vorliegen, wird zunächst von einem Depositionsstrom ausgegangen, welcher ausschließlich aus neutralem und ionisiertem Toluol besteht. In diesem Fall kann das vereinfachte Abschattungsmodell aus Abschnitt 3.5.3 verwendet werden mit $N_x = N_{\text{Toluol}} = 92.14$ u. Die Bestimmung des spezifischen Volumens Ω_A erfolgt auf Basis der Dichte des Schichtmaterials. Die Dichte wurde mit Hilfe von zwei verschiedenen Methoden bestimmt:

Mittels Pyknometer: Hierbei wird durch vergleichende Wägung eines flüssigkeitsgefüllten Kolbens mit definiertem Volumen einmal ohne und einmal mit einer Probe des Schichtmaterials die Dichte ermittelt. Als Probe wurde delaminiertes Schichtmaterial aus einer Vielzahl unterschiedlicher Beschichtungsprozesse verwendet. Die Dichte wurde mit dieser Methode mit $\rho_{py} = 3.0 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ bestimmt. Aufgrund der geringen Menge vorhandenen Schichtmaterials war nur eine Messung möglich.

Mittels Wägung: Sechs Siliziumproben mit genau definierten Abmessungen ($10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$) wurden vor und nach der Beschichtung mit einer Schichtdicke von $9.36 \mu\text{m}$ gewogen. Aus der Gewichts Differenz und dem bekannten Volumen der Schicht wurde die Dichte mit einem Ergebnis von $\rho_w = 1.61 \pm 0.19 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ ermittelt. Die Messung der Schichtdicke erfolgte anhand einer Referenzprobe und nicht individuell an allen Einzelproben. Die Streuung der Schichtdicke über die Proben geht somit in das Messergebnis ein. Der Fehler bei der Schichtdickenmessung von etwa $\pm 0.1 \mu\text{m}$ hat im Vergleich zur Streuung der tatsächlichen Schichtdicke der Einzelproben einen vernachlässigbaren Einfluss auf das Ergebnis.

Die in der Literatur für die Dichte von a-C:H-Schichten angegebenen Werte liegen zum Vergleich hierzu im Bereich von 0.9 bis $2.2 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ [Rob92]. Für mittels PECVD-Verfahren auf Benzol-Basis abgeschiedene Schichten werden Werte von 1.5 bis $1.8 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ angegeben [Bub83].

Der große Unterschied in den ermittelten Dichtewerten deutet auf große systematische Fehler bei den verwendeten Messverfahren hin. Für die folgenden Wachstumssimulationen wurde der Wert ρ_w verwendet, da hierfür eine Abschätzung der zufälligen Abweichungen möglich war, die Depositionsbedingungen der untersuchten Schicht denen der Wachstumsexperimente entsprechen und der Wert gut mit den aus der Literatur bekannten Daten übereinstimmt.

In die Simulation geht neben der Dichte der Schicht auch die in den Experimenten bestimmte Wachstumsrate ein. Hierfür wurde generell die Rate der Versuchsreihe B (niedriger Druck und hohe HF-Leistung, vgl. Tabelle 4.1) von $1.28 \frac{\text{nm}}{\text{s}}$ verwendet. Entsprechend wird für weitere Vergleiche mit den Experimenten auch nur noch diese Versuchsreihe berücksichtigt.

Das Wachstumsmodell enthält in der vereinfachten Form (mit einer Depositionsrate entsprechend Gleichung (3.40) und (3.41)) als freie Parameter die Winkelverteilung des Depositionsstroms und die Intensität des Transportterms. Für die Winkelverteilung liegen ebenso wie für die Größenverteilung keine experimentellen Daten vor. Aus theoretischer Sicht sind drei sehr einfache Modelle für Winkelverteilungen denkbar:

Eine Verteilung ohne Abschattung: Trifft der Depositionsstrom ausschließlich mit relativ steilem Einfallswinkel auf die Oberfläche tritt keine Abschattung auf. Das Verhalten des Systems ist in diesem Fall unabhängig von der genauen Richtungsverteilung innerhalb dieses engen Winkelbereiches. Der maximale Einfallswinkel hängt wie in Gleichung (2.12) beschrieben von der Oberflächentopographie ab. Nur im Grenzfall von $P_o(\theta, \phi) = \delta(\theta)$ liegt für beliebige überhangfreie Topographien keine Abschattung vor.

Eine Verteilung, welche aus isotroper Teilchenbewegung im Plasma resultiert: In diesem Fall gilt $P_c(\theta, \phi) = \frac{\cos \theta}{\pi}$.

Eine isotrope Winkelverteilung des Depositionsstroms: $P_u(\theta, \phi) = \frac{1}{2\pi}$. Dieser Ansatz für die Winkelverteilung ist nicht einfach physikalisch zu motivieren, er entspricht jedoch wie in Abschnitt 2.3.5 beschrieben im Grenzfall einer ebenen Oberfläche dem ursprünglichen KBR-Modell. Aufgrund der weiten Verbreitung des KBR-Modells in bisherigen Untersuchungen zum Schichtwachstum unter Abschattung wurde diese Winkelverteilung hier ebenfalls untersucht. Eine solche Verteilung gewichtet gegenüber der isotropen Teilchenbewegung die flachen Einfallrichtungen stärker.

Anhand einer einfachen Stufengeometrie wurde die korrekte Implementierung der Abschattungsberechnung des Wachstumsmodells für die verschiedenen Winkelverteilungen überprüft. Die in Abbildung 4.25 gezeigte Geometrie repräsentiert in Kombination mit periodischen Randbedingungen ein rechtwinkliges Muster von Gräben und quadratischen Plateaus. Die Größe des Simulationsfelds besträgt $4.84 \mu\text{m}$. Aufgrund der scharfen Kante und der einfachen Form des Plateaus stellt diese Geometrie einen geeigneten Test dar, um die Zuverlässigkeit der Abschattungsberechnung zu überprüfen. Für den Grenzabstand r_c der Abschattungsberechnung wurden $3.95 \mu\text{m}$ gewählt, wodurch sichergestellt ist, dass für jeden Punkt der Oberfläche der Horizont zuverlässig bestimmt wird.

Abbildung 4.26 zeigt die räumliche Verteilung der normierten Depositionsrate über dieser Geometrie für das vereinfachte Standardmodell (Gleichung (3.40) und (3.41)) sowie für das KBR-Modell (Gleichung (3.42) und (3.43)) jeweils mit einer konstanten und einer $\cos \theta$ Winkelverteilung. In Abbildung 4.27 ist hieraus zusätzlich der Verlauf der Depositionsrate über die Seitenkante der Geometrie dargestellt. Die Verteilungen zeigen wie zu erwarten

4. Ergebnisse

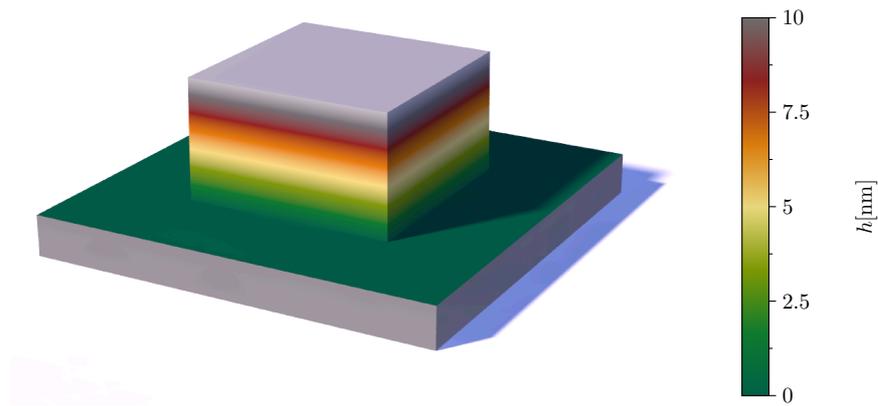


Abbildung 4.25: Dreidimensionale Darstellung der Testgeometrie A für die Konvergenzuntersuchungen

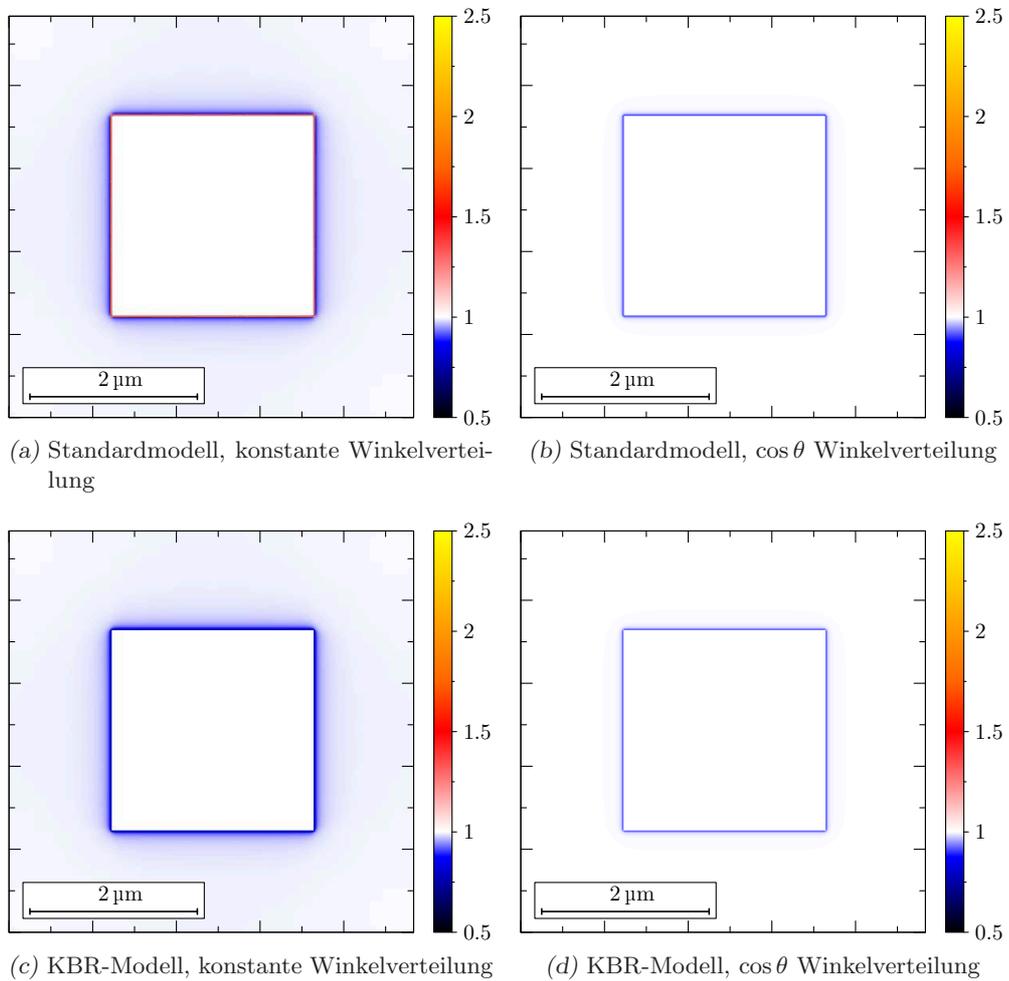


Abbildung 4.26: Räumliche Verteilung der normierten Depositionsrate über der Testgeometrie A für verschiedene Modellvarianten und Winkelverteilungen

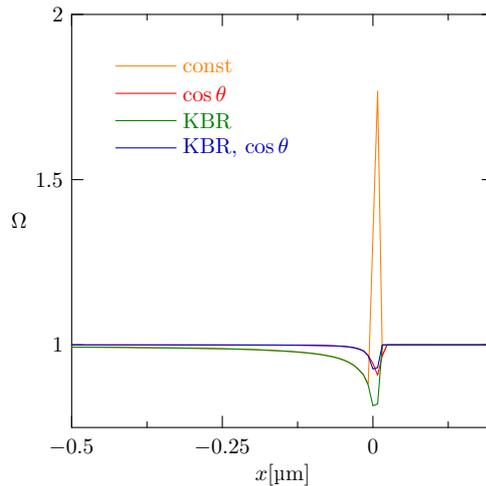


Abbildung 4.27: Eindimensionaler Verlauf der in Abbildung 4.26 in der zweidimensionalen Aufsicht dargestellten normierten Depositionsrates vom linken Rand bis zur Mitte der Geometrie für die verschiedenen Modellvarianten und Winkelverteilungen

ein Minimum der Exposition direkt unterhalb der Plateaukante. Das Standardmodell zeigt darüber hinaus bei der konstanten Winkelverteilung eine markante Überhöhung entlang der Kante, wo die Oberfläche eine starke Neigung aufweist. Beim KBR-Modell fehlt diese Überhöhung, da hierbei die Orientierung der Oberfläche nicht in die Berechnung der Deposition eingeht.

4.2.2. Konvergenz der Abschattungsrechnung

Die in Abschnitt 3.5.5 beschriebene Methode zur Abschattungsrechnung beinhaltet verschiedene Parameter, welche unter Abwägung von Aufwand und Genauigkeit der Berechnung gewählt werden müssen:

Der Grenzabstand r_c der Abschattungsrechnung: Der Aufwand der Abschattungsrechnung steigt bei gleicher Dichte der Abtastpunkte quadratisch mit r_c .

Die Dichte der Abtastpunkte: Hierbei verhält sich der Aufwand proportional zur Zahl der Abtastpunkte.

Die Anzahl der Sektoren für die Horizontberechnung und die Integration scheint vordergründig keinen bedeutenden Einfluss auf die Geschwindigkeit der Abschattungsrechnung zu haben. Da jedoch Abtastpunkte nahe einer Sektorengrenze, deren zugehörige Gitterelemente sich über beide Sektoren erstrecken, in beiden Sektoren in die Horizontberechnung eingehen, steigt der numerische Aufwand mit der Anzahl der Sektoren leicht.

4. Ergebnisse

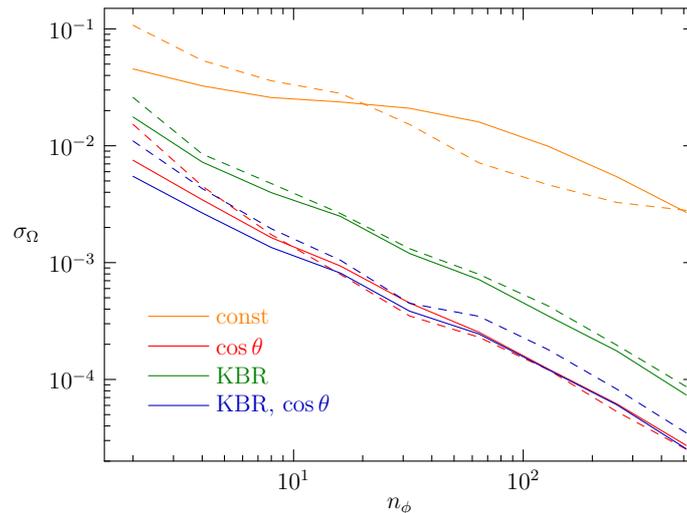


Abbildung 4.28: Standardabweichung der berechneten Exposition Ω in Abhängigkeit von der Sektorenanzahl n_{ϕ} für verschiedene Modellvarianten und Winkelverteilungen. Die gestrichelten Linien zeigen die Ergebnisse für die Geometrie A, die durchgezogenen Linien für die Geometrie B. Übrige Parameter: $n > 780000$ und $r_c = 4.7 \mu\text{m}$, Referenz mit $n_{\phi} = 4096$.

Die Konvergenzuntersuchungen wurden sowohl an der in Abbildung 4.25 gezeigten Testgeometrie (Geometrie A) als auch an einer für das Schichtwachstum typischen unregelmäßigen Kappenstruktur durchgeführt (Geometrie B). Als Referenz für die Fehlerermittlung dienten Abschattungsberechnungen mit $r_c = 4.7 \mu\text{m}$ und einer sehr hohen Dichte von Abtastpunkten ($n > 780000$). Aufgrund des Verfahrens zur Auswahl der Abtastpunkte (siehe Abschnitt 3.5.5) wäre für eine garantierte Berücksichtigung aller Gitterpunkte unterhalb des Grenzabstands ein sehr großer Aufwand notwendig. Die als Referenz verwendete Auswahl enthält nur einzelne Lücken (insgesamt einige hundert Gitterpunkte) was einer vollständigen Abtastung hinreichend nahe kommt.

Abbildung 4.28 zeigt die Standardabweichung der Exposition von einer Referenzrechnung für verschiedene Sektorenanzahlen n_{ϕ} . Als Referenz diente eine Berechnung mit $n_{\phi} = 4096$. Eine größere Anzahl von Sektoren ermöglicht eine genauere Bestimmung des Horizontverlaufs, eine Steigerung ist jedoch spätestens dann nicht mehr sinnvoll, wenn die Breite der Sektoren für alle Abstände geringer ist als der mittlere Abstand der Abtastpunkte. Eine zu große Anzahl von Sektoren führt auch möglicherweise zu verstärkt auftretenden Alias-Effekten.

Für die folgenden weiteren Untersuchungen zur Konvergenz wie auch für die durchgeführten Wachstumssimulationen wurde eine Sektorenanzahl von $n_{\phi} = 32$ gewählt. In Abbildung 4.29 ist die Entwicklung der Standardabweichung mit wachsender Zahl der Abtastpunkte dargestellt ($r_c = 4.7 \mu\text{m}$ wie zuvor). Abbildung 4.30 zeigt die entsprechenden Ergebnisse für verschiedene Grenzabstände r_c (bei wiederum fast vollständiger Abdeckung innerhalb dieses Radius und $n_{\phi} = 32$). Zu erkennen ist, dass alle Modellvarianten ein ähnliches Konvergenzverhalten zeigen, wobei die Größe des Fehlers beim Standardmodell mit kon-

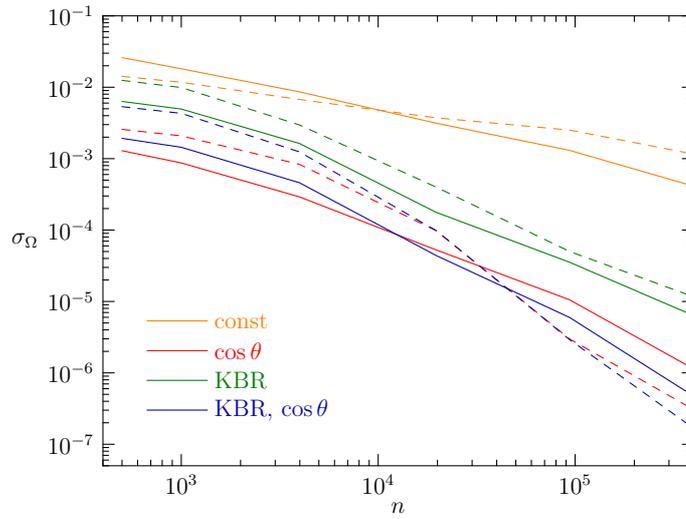


Abbildung 4.29: Wie Abbildung 4.28, jedoch in Abhängigkeit von der Anzahl der Abtastpunkte n . Übrige Parameter: $r_c = 4.7 \mu\text{m}$ und $n_\phi = 32$.

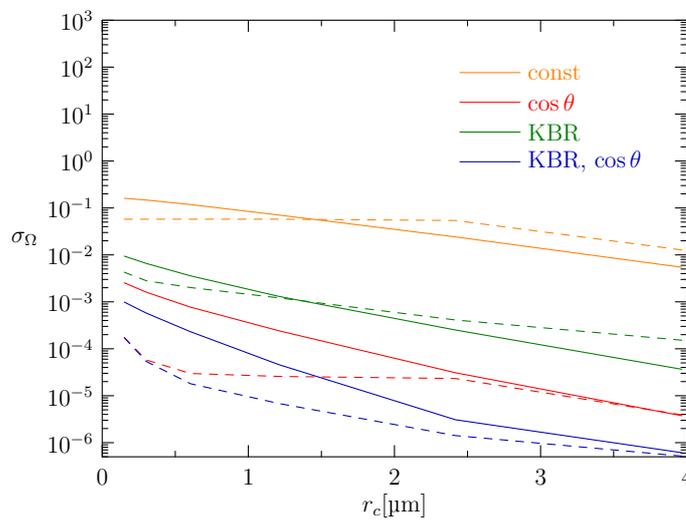


Abbildung 4.30: Wie Abbildung 4.28, jedoch in Abhängigkeit vom Grenzabstand r_c .

4. Ergebnisse

stanter Winkelverteilung am größten ist. Für Testgeometrie A zeigt Abbildung 4.30 in einigen Fällen ein Plateau im Verlauf der Abweichung, welches mit der Breite der Gräben in Zusammenhang steht.

4.2.3. Parameterstudien für die Winkelverteilung und den Transportterm

Für die folgenden Parameterstudien wurden die drei in Abschnitt 4.2.1 genannten elementaren Winkelverteilungen mit wechselnden Anteilen zu einer kombinierten Winkelverteilung überlagert:

$$P(\theta, \phi) = f_o P_o(\theta, \phi) + f_c P_c(\theta, \phi) + f_u P_u(\theta, \phi) \quad (4.1)$$

wobei für f_o , f_c und f_u gelten muss: $f_o + f_c + f_u = 1$.

Für den Transportterm kommen in Abhängigkeit vom dominierenden Transportmechanismus die in Abschnitt 3.5.4 genannten Varianten in Frage (siehe Gleichung (3.44)). Sowohl die prinzipielle Natur des Materialtransports als auch die Transportintensitäten lassen sich ohne genauere Kenntnis der Oberflächenchemie während des Depositionsprozesses nicht zuverlässig abschätzen. Der Parameterbereich für die Transportintensitäten lässt sich jedoch grob dadurch eingrenzen, dass bestimmte Mindestwerte notwendig sind, damit sich ein stabiles Wachstum einstellt.

Um zu quantifizieren, wie gut eine Simulation mit den gewählten Parametern die experimentellen Beobachtungen widerspiegelt, wird zunächst die Rauigkeit w_{ref} der simulierten Oberflächentopographie bei einer Referenzschichtdicke h_{ref} bestimmt und mit der aus den experimentellen Ergebnissen über das angepasste Potenzgesetz für diese Schichtdicke bekannten Rauigkeit $w_{ref}^{(exp)}$ verglichen. Gleichermaßen wird bei der Korrelationslänge verfahren.

Bei der Wahl der Referenzschichtdicke h_{ref} war zum einen von Bedeutung, dass eine große Schichtdicke in der Simulation viel Rechenzeit erfordert – sowohl aufgrund der Anzahl der Zeitschritte als auch aufgrund der Tatsache, dass die laterale Ausdehnung der Oberflächenstrukturen mit wachsender Schichtdicke ansteigt und somit ein großes Simulationsfeld erforderlich ist, um das Wachstum realistisch abbilden zu können. Zum anderen sollte die Strukturentwicklung nach der anfängliche Phase der Kappenenstehung infolge der Instabilität durch Abschattung das experimentell beobachtete stabile Wachstumsverhalten erreicht haben.

Unter Abwägung dieser Ziele wurde eine Referenzschichtdicke $h_{ref} = 12.7 \mu\text{m}$ gewählt. Die Rauigkeiten und Korrelationslängen, welche sich aus den beiden experimentellen Schichtdickenreihen mit den angepassten Potenzgesetzen (siehe Abschnitt 4.1.1) für diese Schichtdicke ergeben, sind in Tabelle 4.5 angegeben.

Die nun folgenden Wachstumsberechnungen wurden auf einem Simulationsfeld von $2.42 \mu\text{m}$ Größe mit glatten Anfangsbedingungen durchgeführt. Die Abschattungsberechnung erfolgte mit einem Grenzabstand $r_c = 1.21 \mu\text{m}$, was etwa dem vierfachen der in Tabelle

Versuchsreihe	w_{ref} nm	ξ_{ref} nm
A	7.7	370
B	5.1	285

Tabelle 4.5: Aus den Schichtdickenreihen (A: hoher Druck und niedrige Leistung, B: niedriger Druck und hohe Leistung – siehe auch Tabelle 4.1) über das angepasste Potenzgesetz ermittelte Rauigkeit und Korrelationslänge bei der Referenzschichtdicke $h_{ref} = 12.7 \mu\text{m}$

4.5 angegebenen Korrelationslänge für die Referenzschichtdicke ξ_{ref} der Versuchsreihe B entspricht. Die Werte der übrigen numerischen Parameter der Abschattungsberechnung lauten $n_\phi = 32$ und $n \approx 2000$.

Durch die Kombination der drei elementaren Verteilungen entsprechend Gleichung (4.1) wird ein Parameterraum in Form eines Dreiecks aufgespannt, weshalb für die folgenden Darstellungen der Simulationsergebnisse die Form eines Dreiecksdiagramms gewählt wurde. Diese Diagramme in Abbildung 4.31 und 4.32 zeigen am oberen Ende des Dreiecks die Ergebnisse mit einer Winkelverteilung ohne Abschattung ($f_o = 1$). Die untere linke Ecke gibt eine konstante Winkelverteilung wieder ($f_u = 1$) während die untere rechte Ecke für eine reine $\cos\theta$ Verteilung steht ($f_c = 1$). Innerhalb des Dreiecks liegende Punkte entsprechen der Nebenbedingung $f_o + f_c + f_u = 1$. Dieser Bereich wurde systematisch durch Simulationsrechnungen abgedeckt.

Die verschiedenen Transportterme wurden dabei zunächst nur einzeln untersucht. Die Simulationen wurden also jeweils mit einem $\nabla^2 h$ -Transportterm zur Beschreibung von Evaporations-Kondensations-Dynamiken oder Hangabtrieb, einem $\nabla^4 h$ -Term zur Beschreibung von krümmungsinduzierter Oberflächendiffusion oder einem $\nabla^2 \langle R \rangle$ -Term für Oberflächendiffusion infolge der lokal unterschiedlichen Depositionsrate durchgeführt (vgl. Abschnitt 3.5.4), nicht jedoch mit einer Kombination mehrerer dieser Terme.

Die Ergebnisse sind jeweils für eine ausgewählte Transportintensität in Abbildung 4.31 und 4.32 wiedergegeben. Die vollständigen Ergebnisse für alle untersuchten Transportintensitäten befinden sich im Anhang B. Farblich dargestellt sind jeweils die Rauigkeit und die Korrelationslänge bei der Referenzschichtdicke für alle untersuchten Kombinationen der elementaren Winkelverteilungen. Führte die Simulation für die gewählten Parameter zu einem Anstieg der Rauigkeit über $w = 100 \text{ nm}$ so wurde die Simulation abgebrochen und pauschal ein Wert von $w_{ref} > 100 \text{ nm}$ als Ergebnis angesetzt. Eine Bestimmung der Korrelationslänge entfiel in diesem Fall (graue Punkte).

Die Spitze des Dreiecks zeigt das Systemverhalten ohne Abschattung, also das Verhalten des entsprechenden lokalen Modells. Für den $\nabla^2 h$ -Transport ($\nu > 0$) und den $\nabla^4 h$ -Transport ($\kappa > 0$) ist hier ein selbststaffines Wachstum entsprechend dem bekannten Verhalten der lokalen Modelle zu beobachten, welches zu einer vergleichsweise sehr geringen Rauigkeit bei der Referenzschichtdicke führt. Der $\nabla^2 \langle R \rangle$ -Term bewirkt in diesem Fall allerdings

4. Ergebnisse

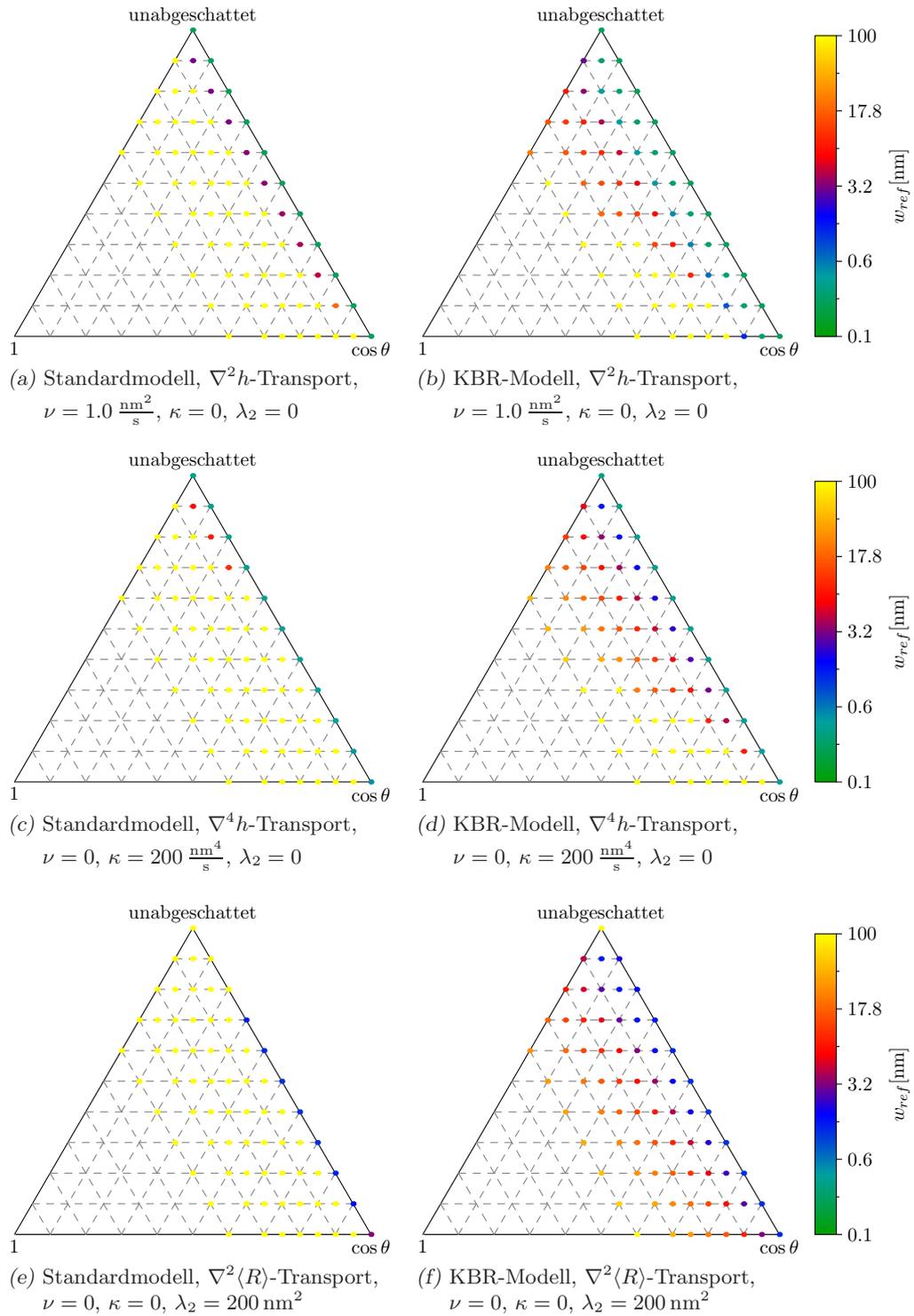


Abbildung 4.31: Einfluss der Winkelverteilung des Depositionsstroms auf die Rauigkeit bei der Referenzschichtdicke w_{ref} für verschiedene Modellvarianten und Transportterme

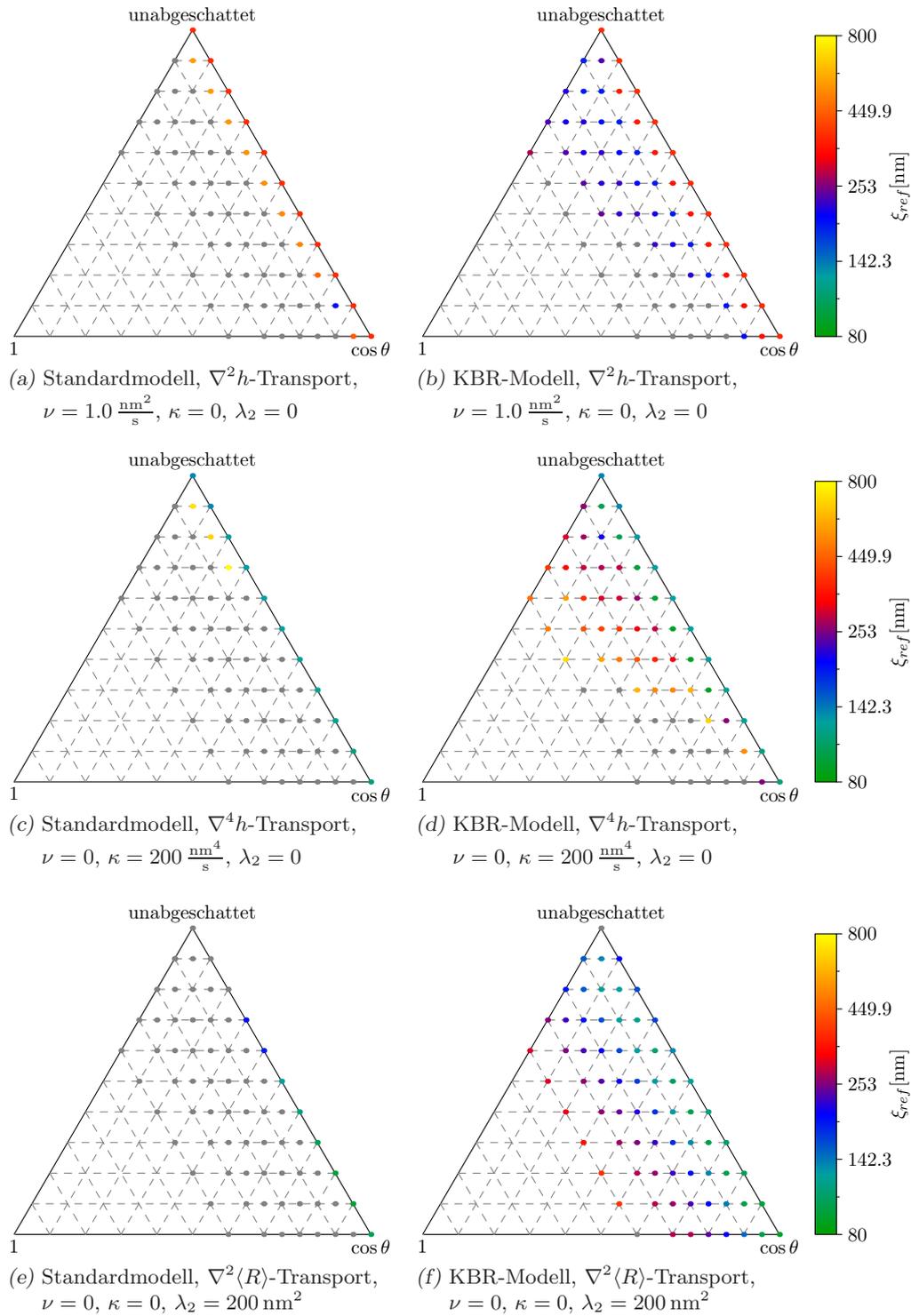


Abbildung 4.32: Einfluss der Winkelverteilung des Depositionstroms auf die Korrelationslänge bei der Referenzschichtdicke ξ_{ref} für verschiedene Modellvarianten und Transportterme

4. Ergebnisse

keinen Materialtransport, da $\nabla\langle R \rangle = 0$ wodurch für $\nu = 0, \kappa = 0, \lambda_2 > 0$ instabiles Wachstum zu beobachten ist.

$\cos \theta$ Verteilung

Wird ausgehend von einer Verteilung ohne Abschattung schrittweise ein Anteil $\cos \theta$ verteilter Deposition hinzugefügt (in den Diagrammen eine Bewegung entlang der rechten oberen Kante von der Spitze zur rechten unteren Ecke), zeigt sich bei beiden Modellvarianten (Standard- und KBR-Modell) für die $\nabla^2 h$ - und $\nabla^4 h$ -Transportterme (Abbildung 4.31a bis 4.31d sowie 4.32a bis 4.32d) in großen Teilen der untersuchten Wertebereiche für κ und ν kein bedeutender Unterschied in der Strukturentwicklung. Beim Standardmodell mit $\kappa = 200 \frac{\text{nm}^4}{\text{s}}$ (Abbildung 4.31c und 4.32c) ergibt sich beispielsweise eine Veränderung von $w_{ref} = 0.33 \text{ nm}$ zu $w_{ref} = 0.46 \text{ nm}$ und $\xi_{ref} = 138 \text{ nm}$ zu $\xi_{ref} = 115 \text{ nm}$. Bei doppelter Transportintensität sind diese Unterschiede noch geringer. Lediglich bei sehr schwachen Transporttermen ($\nu \leq 0.25 \frac{\text{nm}^2}{\text{s}}$ und $\kappa \leq 100 \frac{\text{nm}^4}{\text{s}}$, Diagramme hierzu im Anhang) dominiert ab einem bestimmten Anteil $\cos \theta$ verteilter Deposition die destabilisierende Wirkung der Abschattung über die stabilisierende Wirkung des Transportterms, jedoch ist hier ein abrupter Übergang von niedrigen Werten für w_{ref} zu instabilem Wachstum zu beobachten. Für den $\nabla^2\langle R \rangle$ -Transport ($\lambda_2 > 0$) stellt sich erst mit eintretender Abschattung eine stabile Strukturentwicklung ein, beim KBR-Modell (Abbildung 4.31f und 4.32f) bei deutlich geringerem $\cos \theta$ Anteil als beim Standardmodell (Abbildung 4.31e und 4.32e) – ansonsten verhält sich das System in diesem Fall ähnlich wie bei den übrigen Transporttermen.

Durch eine $\cos \theta$ verteilte Deposition wird also in keinem Fall ein Wachstumsverhalten erreicht, welches in Bezug auf die Rauigkeit und die Korrelationslänge bei der Referenzschichtdicke dem experimentell beobachtetem Wachstum entspricht. Die Strukturentwicklung bleibt im Bereich der geringen Rauigkeiten lokaler Modelle oder zeigt im Falle sehr geringer Transportintensitäten oder bei $\nabla^2\langle R \rangle$ -Transport in Kombination mit niedrigem $\cos \theta$ Anteil und damit geringen lokalen Unterschieden in der Depositionsrate eine vollständig instabile Entwicklung.

Konstante Verteilung

Ein Depositionsanteil mit konstanter Winkelverteilung ($f_u > 0$) führt bei allen Modellvarianten und Transporttermen zu einer Zunahme der Abschattungswirkung und damit zu einem Anstieg von w_{ref} .

Die Ursache hierfür liegt in den im Vergleich zur $\cos \theta$ Verteilung stärker gewichteten flachen Einfallswinkeln (vgl. Abschnitt 4.2.1).

Beim Standardmodell mit $\nabla^4 h$ - oder $\nabla^2\langle R \rangle$ -Transport (Abbildung 4.31c und 4.31e) dominiert die destabilisierende Wirkung der Abschattung das Wachstum bereits bei einem sehr kleinen Anteil konstant verteilter Deposition, die Rauigkeit bei der Referenzschichtdicke

steigt also in den Diagrammen bereits in geringem Abstand von der rechten oberen Seite stark an. Der $\nabla^2 h$ -Transportterm (Abbildung 4.31a) bewirkt einen langsameren Übergang in den instabilen Bereich als die übrigen Transportterme. Ein ähnlich allmählicher Übergang ist für alle untersuchten Transportvarianten beim KBR-Modell zu beobachten. Mit steigender Transportintensität verschiebt sich dieser Übergang bei beiden Modellvarianten zu größeren f_u (siehe Abbildungen im Anhang). In allen Fällen ändert sich das Wachstumsverhalten nur langsam, wenn bei einem bestimmten Anteil konstant verteilter Deposition der $\cos \theta$ Anteil variiert wird (entsprechend einer Bewegung in den Diagrammen parallel zur rechten oberen Seite).

Die beste Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation bezüglich sowohl w_{ref} als auch ξ_{ref} zeigt das KBR-Modell mit $\nabla^4 h$ -Transport (Abbildung 4.31d und 4.32d). Mit den beiden anderen Transporttermen ergibt sich beim KBR-Modell bei übereinstimmender Rauigkeit bei der Referenzschichtdicke ein zu geringes laterales Wachstum während die entsprechenden Varianten des Standardmodells bei passender Rauigkeit w_{ref} das laterale Wachstum überschätzen. Dies gilt allerdings zunächst erst einmal nur für die getrennte Betrachtung der einzelnen Transportterme.

4.2.4. Die zeitliche Entwicklung der Oberflächenstruktur

Die bisher dargestellten Ergebnisse beschreiben ausschließlich die Oberflächenstruktur bei der gewählten Referenzschichtdicke, nicht jedoch deren zeitliche Entwicklung. Für eine Untersuchung der Strukturentwicklung über den gesamten in den Experimenten untersuchten Schichtdickenbereich wurde beispielhaft der Fall gleicher Anteile nicht abgeschatteter und $\cos \theta$ verteilter Deposition ($f_o = f_c$) gewählt. Wie bereits in der vorangegangenen Analyse der Parameterstudien zur Winkelverteilung dargestellt, hat die Variation vom Verhältnis dieser beiden Anteile bei jeweils gleichem Anteil konstant verteilter Deposition f_u – dies entspricht in den Dreiecksdiagrammen einer Bewegung parallel zur rechten oberen Seite – für alle untersuchten Modellvarianten und Transportterme nur eine geringe Auswirkung auf die Rauigkeit und die Korrelationslänge bei der Referenzschichtdicke. Daraus lässt sich schließen, dass eine Variation des Anteils konstant verteilter Deposition f_u unter der genannten Bedingung $f_o = f_c$ (in den Dreiecksdiagrammen entspricht dies einer Bewegung entlang der Diagonale von unten links zur Mitte der rechten oberen Seite) ein recht gutes Bild des Wachstumsverhaltens liefert, welches dem Verhalten für leicht abweichende Verhältnisse $\frac{f_o}{f_c}$ ähneln dürfte.

Parameterstudien zur zeitliche Entwicklung mit $f_o = f_c$

Unter der beschriebenen Vorgabe gleicher Anteile nicht abgeschatteter und $\cos \theta$ verteilter Deposition ($f_o = f_c$) wurde unter Variation des konstanten Anteils f_u für alle in Abbildung 4.31 und 4.32 dargestellten Modellvarianten und Transportterme sowie im Falle des Standardmodells für die jeweils doppelten Transportintensitäten eine Parameterkombination $f_o/f_c/f_u$ ermittelt, welche zu einer guten Übereinstimmung mit dem Experiment bezüglich

4. Ergebnisse

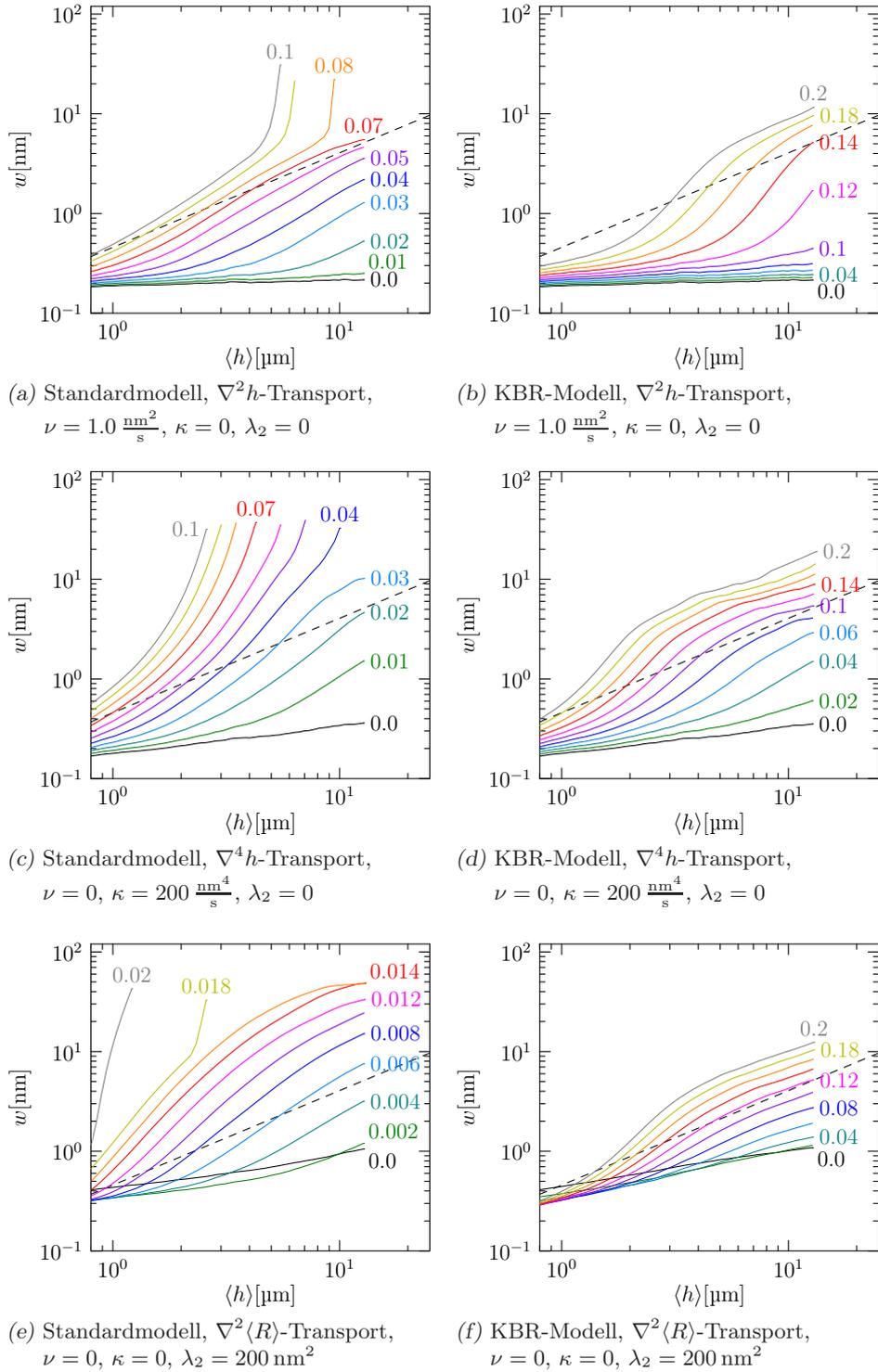


Abbildung 4.33: Rauigkeitsentwicklung bei gleichem Anteil nicht abgeschatteter und $\cos \theta$ verteilter Deposition ($f_o = f_c$) für verschiedene jeweils angegebene konstante Anteile f_u . Im Vergleich gestrichelt das an die experimentellen Ergebnisse angepasste Potenzgesetz.

Modell	ν $\frac{\text{nm}^2}{\text{s}}$	κ $\frac{\text{nm}^4}{\text{s}}$	λ_2 nm^2	f_u
Standard	1.0	0	0	0.065
Standard	2.0	0	0	0.11
Standard	0.0	200	0	0.021
Standard	0.0	400	0	0.025
Standard	0.0	0	200	0.0049
Standard	0.0	0	400	0.005
KBR	1.0	0	0	0.14
KBR	0.0	200	0	0.09
KBR	0.0	0	200	0.12

Tabelle 4.6: Bei gleichen Anteile nicht abgeschatteter und $\cos \theta$ verteilter Deposition ($f_o = f_c$) angepasste Werte für den konstanten Anteil f_u auf deren Basis die Langzeitsimulationen durchgeführt wurden

w_{ref} führt. Die exakte Übereinstimmung bei den Rauheitswerten soll hierbei nicht das Ziel sein, weshalb die Anpassung nur grob erfolgt. Abbildung 4.33 zeigt exemplarisch für die in Abbildung 4.31 und 4.32 dargestellten Transportparameter die Rauheitsentwicklungen der hierfür durchgeführten Reihe von Simulationsrechnungen.

Die Rauheitsverläufe lassen erkennen, dass anders als bei einer Steigerung des $\cos \theta$ Anteils ohne eine konstante Komponente in der Deposition ($f_u = 0$), bei welcher für geringe Transportintensitäten bei einem kritischen Anteil f_c ein abrupter Übergang von Wachstum entsprechend lokaler Modelle zu instabilem Wachstum stattfindet und bei welcher mit den in Abbildung 4.31 und 4.32 dargestellten Transportintensitäten die Rauigkeit deutlich unterhalb der Werte aus den Experimenten bleibt, ein Bereich stabilen Wachstums mit starkem Anstieg der Rauigkeit mit einer Wachstumscharakteristik existiert, welche der in den Experimenten beobachteten ähnelt.

Langzeitsimulationen

In Tabelle 4.6 sind die auf die dargestellte Art angepassten Werte für f_u für die untersuchten Modellvarianten dargestellt. Auf Basis dieser Werte für den konstanten Anteil wurden bei gleichen Anteilen nicht abgeschatteter und $\cos \theta$ verteilter Deposition längere Simulationen bis zu einer Schichtdicke von $73.5 \mu\text{m}$ durchgeführt. Das Simulationsfeld wurde auf eine Kantenlänge von $4.84 \mu\text{m}$ bei gleicher Auflösung des Simulationsgitters vergrößert. Ebenso wurde der Grenzabstand der Abschattungsberechnung auf $r_c = 2.42 \mu\text{m}$ und damit die Anzahl der Abtastpunkte auf $n \approx 4000$ vergrößert (siehe 4.2.2).

Abbildung 4.34 zeigt links die Rauheitsentwicklung für die verschiedenen Modellvarianten. Während der Anfangsphase variiert das Wachstum abhängig vom Transportterm deutlich. Ab einer Schichtdicke von etwa 10 bis $15 \mu\text{m}$ ist ein Übergang zu einem stabilen Wachstum mit Werten des Wachstumsexponenten β (vgl. Abschnitt 2.3.2) nahe 1.0

4. Ergebnisse

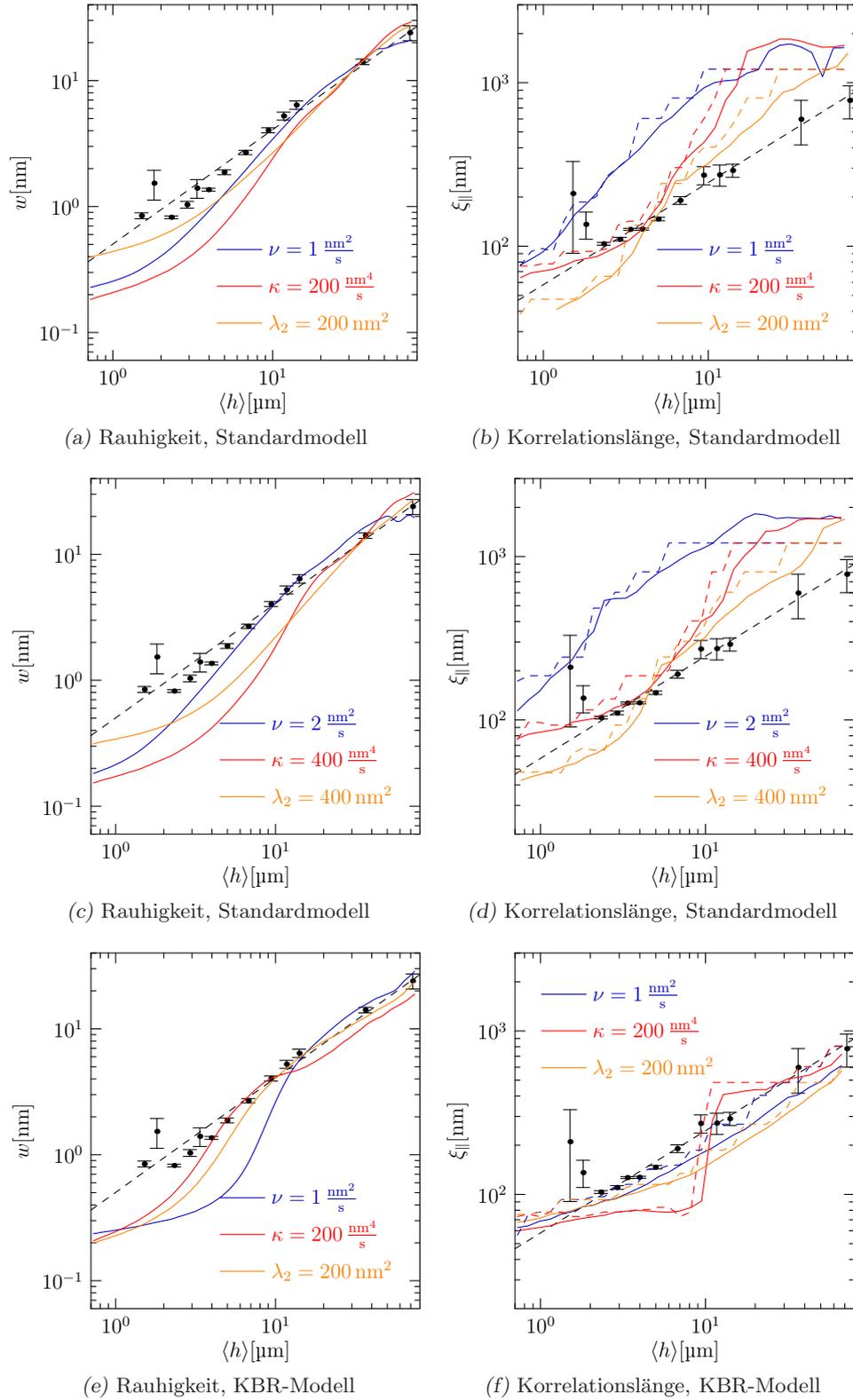


Abbildung 4.34: Rauigkeitsentwicklung und Entwicklung der Korrelationslänge in den Langzeitsimulationen mit angepasstem konstanten Anteil des Depositionsstroms f_u . Im Vergleich dazu in schwarz die Daten aus dem Experiment (Reihe B) mit angepasstem Potenzgesetz. Die gestrichelten Verläufe bei der Korrelationslänge zeigen die aus den Spektren ermittelten Werte für die dominante Wellenlänge λ .

zu beobachten. Die erkennbaren Abweichungen bei den Rauheitswerten ließen sich mit einer genaueren Anpassung des Parameters f_u weitgehend eliminieren.

Die Variation der Transportintensität (siehe Abbildung 4.34a und 4.34c im Vergleich) zeigt nur geringe Auswirkungen auf die Rauheitsentwicklung. Der Anstieg der Rauheit im stabilen Bereich ist nahezu identisch (siehe Tabelle 4.7). Es kann jedoch beobachtet werden, dass die Unterschiede zwischen den Transporttermen in der Anfangsphase des Wachstums mit wachsender Transportintensität zunehmen.

In Abbildung 4.34 ist auf der rechten Seite die Entwicklung der Korrelationslänge zu sehen. Die Analyse der Korrelationsfunktionen zeigt für die laterale Strukturentwicklung wesentlich deutlichere Unterschiede zwischen den verschiedenen Modellvarianten als dies bei der Rauheitsentwicklung der Fall ist, was zum erheblichen Teil daran liegt, dass die Anpassung der Modellparameter anhand der Rauheitsentwicklung erfolgte. In Abbildung 4.34b steigen die Verläufe der Korrelationslängenentwicklung wesentlich schneller an als die experimentellen Werte. Dies bedeutet, dass beim Standardmodell ein starkes laterales Wachstum auftritt, welches mit vergrößerter Transportintensität noch zunimmt (Abbildung 4.34d im Vergleich zu Abbildung 4.34b). Das Abflachen der Kurven im oberen Bereich ab einer Schichtdicke von etwa $20\ \mu\text{m}$ zeigt, dass das Wachstum hier durch die zu geringe Größe des Simulationsfeldes begrenzt wird. Entsprechend sind die ermittelten Daten zur Rauheitsentwicklung auch nur bis zu dieser Schichtdicke zuverlässig. Von den drei untersuchten Transportmechanismen zeigt sich beim $\nabla^2 h$ -Transportterm (blaue Verläufe) das stärkste laterale Wachstum während der $\nabla^2 \langle R \rangle$ -Term (depositionsratenabhängige Oberflächendiffusion, Verläufe in orange) zu einem vergleichsweise moderaten Wachstum führt. Dabei spielen natürlich auch die jeweils individuell angepassten Winkelverteilungen eine Rolle – die angepassten Werte für f_u (vgl. Tabelle 4.6) entsprechen genau dieser Reihenfolge, so dass ein großes f_u , also ein großer konstant verteilter Anteil der Deposition mit einem starken lateralen Wachstum in Verbindung steht worauf auch bereits die Parameterstudien zur Winkelverteilung hindeuten (siehe Abbildung 4.32).

Beim KBR-Modell hingegen stimmt das Skalenverhalten des lateralen Wachstums zumindest im Bereich größerer Schichtdicken sehr gut mit dem Experiment überein, es bleibt aber was die lateralen Strukturgrößen betrifft deutlich unterhalb der experimentell ermittelten Werte (etwa um den Faktor zwei). Mit dem $\nabla^4 h$ -Transportterm ($\kappa > 0$, rote Kurve in Abbildung 4.34f) kann eine Besonderheit beobachtet werden: Bei einer Schichtdicke von etwa $10\ \mu\text{m}$ kommt es bei der lateralen Strukturentwicklung zu einer Diskontinuität. Nachdem sich zuerst Kappenstrukturen einer Größe von etwa $100\ \text{nm}$ gebildet haben entstehen dazu überlagert neue langwellige Strukturen, welche mit wachsender Schichtdicke vertikal und lateral wachsen. Die primären Kappenstrukturen bleiben dabei erhalten und unterteilen bei größeren Schichtdicken die langwelligeren Strukturen – ihre eigene Größe ändert sich hierbei jedoch nicht wesentlich (siehe Abbildung 4.36d). In der Entwicklung der Korrelationslänge zeigt sich dies in Form eines Sprungs bei einer Schichtdicke von etwa $10\ \mu\text{m}$ (rote Kurve in Abbildung 4.34f). Abbildung 4.36c und die Entwicklung der Korrelationslänge in Abbildung 4.34b deuten darauf hin, dass ein ähnlicher Übergang in der Strukturentwicklung auch beim Standardmodell im Ansatz vorhanden sein könnte, jedoch im untersuchten Schichtdicken- und Strukturgrößenbereich nicht eindeutig beobachtet werden kann.

4. Ergebnisse

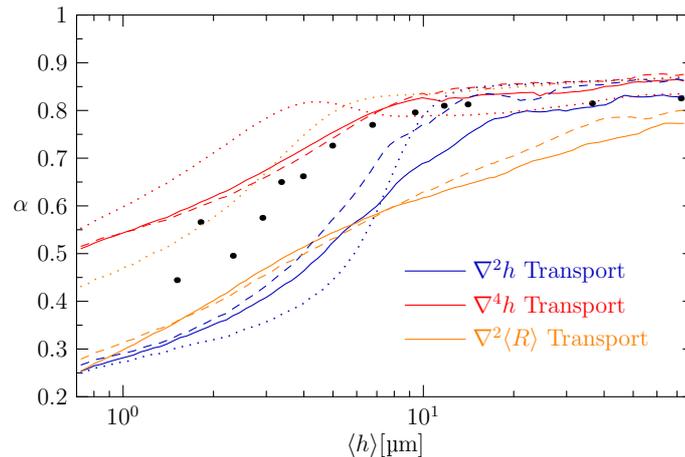


Abbildung 4.35: Entwicklung des aus den Korrelationsfunktionen bestimmten Rauigkeitsexponenten α (vgl. Abschnitt 2.3.2) mit der Schichtdicke in den Langzeitsimulationen. Gestrichelt jeweils die doppelten Transportintensitäten, gepunktet die Ergebnisse zum KBR-Modell. Die großen schwarzen Punkte zeigen im Vergleich die experimentellen Ergebnisse (siehe Abschnitt 4.1.1).

Die Entwicklung des Rauigkeitsexponenten α (vgl. Abschnitt 2.3.2) zeigt Abbildung 4.35. Die Verläufe ähneln der im Experiment beobachteten Entwicklung, variieren jedoch im Verlauf des Anstiegs. Der stabile Wert bei großen Schichtdicken liegt mit etwa 0.86 bei den meisten durchgeführten Simulationen geringfügig höher als im Experiment. Dabei ist außerdem im Bereich großer Schichtdicken ein weiterer Anstieg von 0.85 auf 0.87 zu beobachten. Lediglich die Varianten KBR-Modell mit $\nabla^4 h$ -Transport und Standardmodell mit $\nabla^2 \langle R \rangle$ -Transport bleiben in den α -Werten deutlich unterhalb hiervon – im letzteren Fall steigt der Wert bis 50 μm Schichtdicke kontinuierlich an und es ist kein stabiles Niveau für große Schichtdicken erkennbar.

Wie aus Abbildung 4.36 deutlich wird, zeigt das Wachstum beim KBR-Modell im untersuchten Schichtdickenbereich bei den übrigen Transporttermen keine Untergliederung der Kappenstrukturen – diese tritt jedoch beim Standardmodell in allen Varianten auf. Ansonsten ist auch aus Abbildung 4.36 deutlich zu erkennen, dass das Standardmodell mit den hier gewählten Parametern das laterale Wachstum deutlich überschätzt.

Einfluss des Rauschterms

In Abschnitt 4.2.1 wurde eine einheitlichen Teilchengröße (die von Toluol) für den Depositionsstrom angenommen. Diese Annahme bildet die Grundlage des stochastischen Terms der Wachstumsgleichung. Um abzuschätzen in wie weit Abweichungen von dieser Voraussetzung Einfluss auf das Wachstumsverhalten haben, wurde die angenommene Teilchengröße über einen großen Bereich variiert. Die tatsächlichen Auswirkungen unterschiedlicher Teilchengrößen im Depositionsstrom wären zwar deutlich komplexer (vgl. Gleichung (3.34)) – jedoch dürfte diese rudimentäre Untersuchung eine brauchbare Abschätzung für die

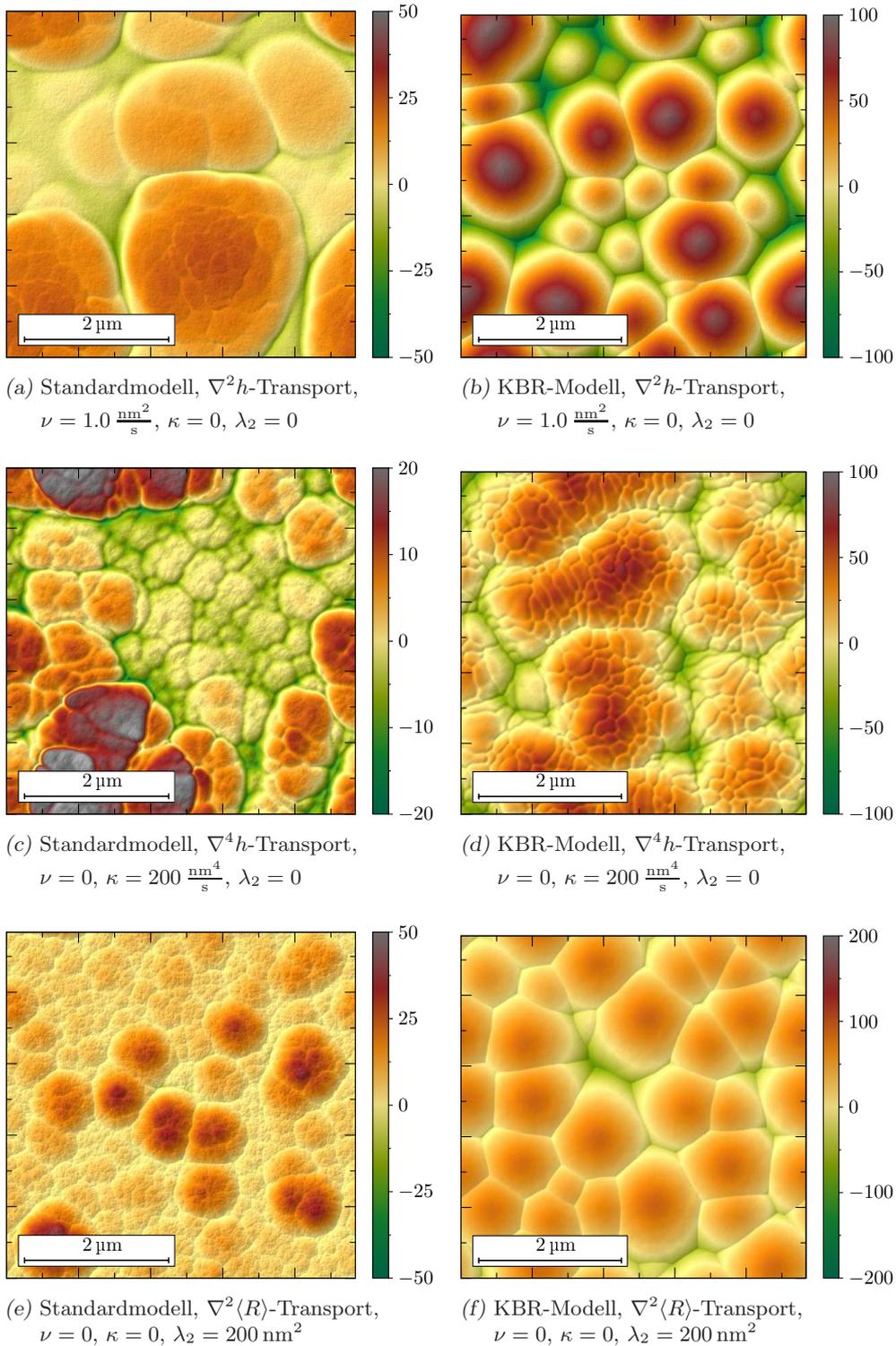


Abbildung 4.36: Schattierte Topographiedarstellungen von Oberflächen aus den Langzeitsimulationen (Höhenwerte in nm). Beim Standard-Modell ist die Oberflächenstruktur bei 20 μm Schichtdicke dargestellt, beim KBR-Modell bei Simulationseende (73.5 μm).

Modell	Transport	β	ζ	ζ'
Standard	$\nu = 1 \frac{\text{nm}^2}{\text{s}}$	1.00	0.97	1.08
Standard	$\nu = 2 \frac{\text{nm}^2}{\text{s}}$	0.97	0.62	0.69
Standard	$\kappa = 100 \frac{\text{nm}^4}{\text{s}}$	1.27	1.25	1.73
Standard	$\kappa = 200 \frac{\text{nm}^4}{\text{s}}$	1.31	1.23	1.92
Standard	$\lambda_2 = 100 \text{ nm}^2$	1.27	0.84	1.05
Standard	$\lambda_2 = 200 \text{ nm}^2$	1.34	0.85	1.10
KBR	$\nu = 1 \frac{\text{nm}^2}{\text{s}}$	0.95	0.73	0.76
KBR	$\kappa = 100 \frac{\text{nm}^4}{\text{s}}$	0.84	0.48	0.65
KBR	$\lambda_2 = 100 \text{ nm}^2$	0.79	0.79	0.76

Tabelle 4.7: Aus den Ergebnissen der Langzeitsimulationen bestimmte Exponenten β und ζ . Die Werte wurden jeweils in dem Schichtdickenbereich ermittelt, in welchem ein gleichmäßiges Wachstum auftritt, also nach der anfänglichen Einlaufphase und beim Standardmodell vor Eintritt der Sättigung durch das begrenzte Simulationsfeld. Die Bestimmung des lateralen Exponenten erfolgte auf Basis der Korrelationsfunktionen (ζ) sowie auf Grundlage der Leistungsdichtespektren (ζ').

grundsätzliche Wirkung einer solchen Abweichung darstellen.

Abbildung 4.37 zeigt die Rauigkeitsentwicklungen in der Anfangsphase für die verschiedenen Modellvarianten mit der Teilchengröße von Toluol (was der Anfangsphase von Abbildung 4.34 entspricht) und jeweils um den Faktor 4, 16, $\frac{1}{4}$ und $\frac{1}{16}$ variierten Teilchengrößen.

Beim KBR-Modell nehmen die anfänglich deutlichen Unterschiede durch die verschiedenen Rauschamplituden für alle Transportterme schnell ab und die Rauigkeitsverläufe deuten darauf hin, dass der Einfluss der angenommenen Teilchengröße auf das Wachstum für größere Schichtdicken nur gering ist.

Beim Standardmodell nehmen die Unterschiede mit wachsender Schichtdicke nur geringfügig ab und scheinen im Wesentlichen zu einer Parallelverschiebung der Rauigkeitskurven zu führen. Die Wirkung der Variation der Teilchengröße auf die Rauigkeitsentwicklung ähnelt damit dem Einfluss des konstant verteilten Anteils der Deposition (vgl. Abbildung 4.33).

4.2.5. Einfluss der Ausgangstopographie

mechanisch polierte Metallsubstrate

Um die Strukturentwicklung beim simulierten Wachstum mit nicht glatten Anfangsbedingungen, wie sie auf mechanisch bearbeiteten Substraten vorliegen, mit den experimentellen Untersuchungen vergleichen zu können, wurde als Anfangsbedingung für die im Folgen-

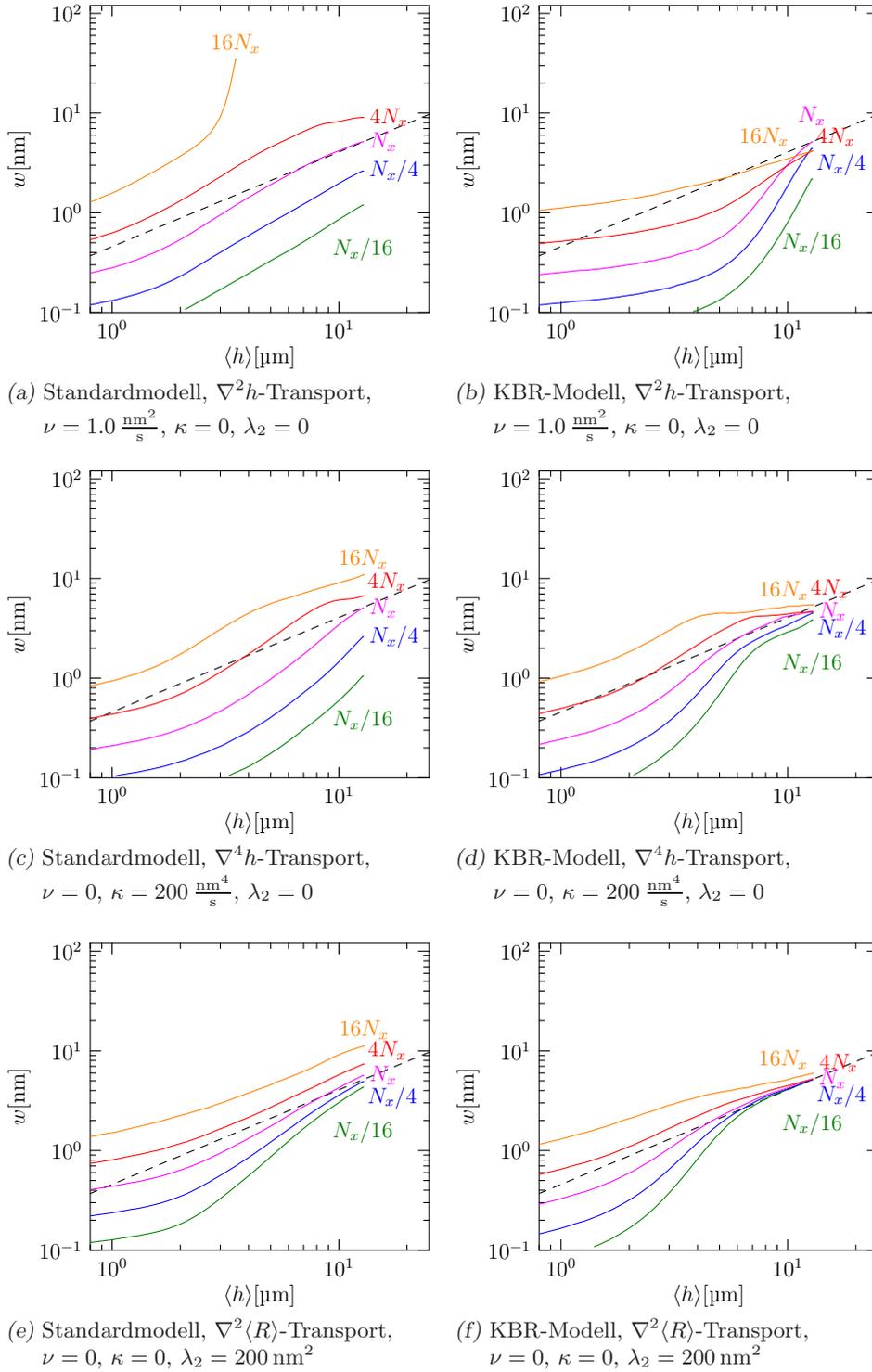


Abbildung 4.37: Rauigkeitsentwicklung unter Variation der angenommenen Partikelgröße des Depositionstroms und damit unterschiedlichen Rauschamplituden. Die Winkelverteilung entspricht der aus den Langzeitsimulationen (siehe Tabelle 4.6).

4. Ergebnisse

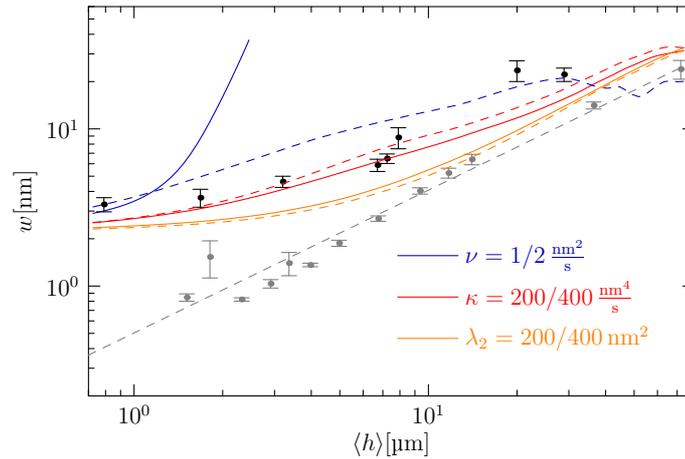


Abbildung 4.38: Rauigkeitsentwicklung aus den Langzeitsimulationen mit Anfangsbedingungen basierend auf der rasterkraftmikroskopischen Messung eines polierten Substrates für das Standardmodell. Gestrichelt jeweils die doppelten Transportintensitäten. Die schwarzen Punkte zeigen die entsprechenden experimentellen Ergebnisse, die grauen Punkte und die grau gestrichelte Gerade zum Vergleich die Experimente auf glattem Substrat (vgl. Abbildung 4.3).

den dargestellten Simulationen eine mittels Rasterkraftmikroskop vermessene Substrat-topographie verwendet (siehe Abbildung 4.17), welche mit Hilfe des in Abschnitt 3.5.5 skizzierten Verfahrens periodisiert wurde. Dabei zeigt insbesondere die Betrachtung der Anfangsphase des Wachstums durch die Wechselwirkung des Schichtwachstumsprozesses mit der Substratstruktur gegenüber den Untersuchungen auf glattem Substrat zusätzliche Aspekte der Strukturentwicklung.

Abbildung 4.38 und 4.39 zeigen die Rauigkeitsentwicklung bei den mit den selben Parametern wie im Fall glatter Anfangsbedingungen durchgeführten Simulationen. Wie im Experiment liegt die Rauigkeit in der Anfangsphase oberhalb der Entwicklung mit glatten Anfangsbedingungen, nähert sich jedoch mit zunehmender Schichtdicke deren Verlauf an. Beim Standardmodell mit $\nabla^2 h$ -Transport ist ab einer Schichtdicke von etwa $25 \mu\text{m}$ eine Begrenzung des Rauigkeitsanstiegs durch das zu kleine Simulationsfeld zu erkennen (gestrichelt blauer Verlauf in Abbildung 4.38).

Bei der Betrachtung des lateralen Wachstums ist zu beachten, dass die Struktur des polierten Substrates keine ausgeprägte Korrelationslänge aufweist. Insbesondere in der Anfangsphase des Wachstums kann deshalb das laterale Wachstum über die Analyse der Korrelationsfunktion nur sehr unzuverlässig bestimmt werden – die in den Abbildungen 4.40a und 4.40c gezeigten Verläufe sollten deshalb mit großer Vorsicht interpretiert werden. Sie zeigen, dass das laterale Wachstum wie bereits auf glattem Substrat (vgl. Abbildung 4.34) vom Standardmodell überschätzt wird und schon bei geringen Schichtdicken (bei $\nabla^2 h$ -Transport schon bei weniger als $10 \mu\text{m}$) die Größe des Simulationsfeldes das Wachstum begrenzt während beim KBR-Modell die Strukturgrößen unterhalb der experimentellen Werte bleiben.

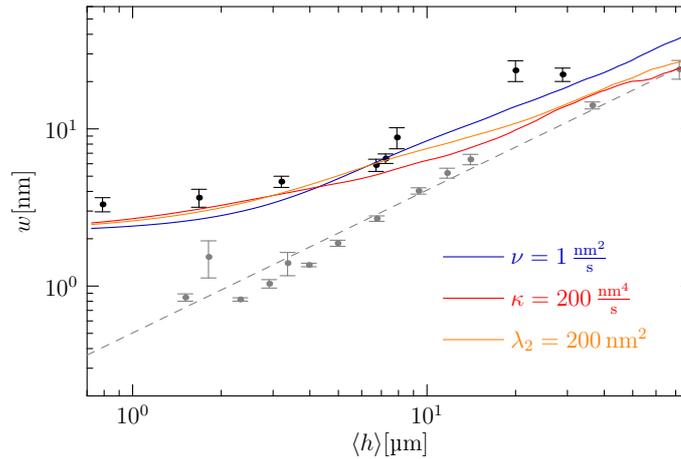


Abbildung 4.39: wie Abbildung 4.38, jedoch für das KBR-Modell

Aufschlussreicher als die Verläufe der Korrelationslänge sind die Bilder der Topographien im Anhang B.2 bei Schichtdicken von $1.7 \mu\text{m}$ und $7 \mu\text{m}$ im Vergleich mit den rasterkraftmikroskopischen Aufnahmen der experimentell produzierten Schichten (Abbildung 4.18c und 4.18d). Während im Experiment bei einer Schichtdicke von $1.7 \mu\text{m}$ bereits eine ausgeprägte Kappenstruktur der Schicht zu beobachten ist und die Substratstruktur im Wesentlichen nur noch durch die Anordnung der Kappen entlang der Vorsprünge in der Substrattopographie zu erkennen ist, zeigen die Simulationen des KBR-Modells lediglich ersten Ansätze von Kappenbildung. Beim Standardmodell fällt besonders eine starke Differenzierung des Wachstums auf. An ausgeprägten Spitzen der Substratopographie, in Abbildung 4.17 beispielsweise links mittig am oberen Rand, kommt es zu einem wesentlich ausgeprägteren Wachstum als in weniger stark strukturierten Bereichen. Im Vergleich der verschiedenen untersuchten Transportterme zeigt sowohl beim KBR- als auch beim Standardmodell die Simulation mit $\nabla^2\langle R \rangle$ -Transport die beste Übereinstimmung mit dem Experiment. Um die Bedeutung der Abschattung während der Anfangsphase des Wachstums auf strukturierten Substrat einschätzen zu können wurden im Vergleich auch Simulationen ohne Abschattung durchgeführt, bei denen die Strukturentwicklung ausschließlich durch den Transport- und den KPZ-Term gesteuert wird. Abbildung B.14 zeigt diese Ergebnisse. Der $\nabla^2\langle R \rangle$ -Term fehlt in dieser Darstellung, da er nur bei durch die Abschattung lokal differenzierter Depositionsrates Bedeutung erlangt.

strukturierte Silizium-Substrate

Abbildung 4.41 zeigt analog zu den experimentellen Ergebnissen (Abbildung 4.24) das gemittelte Oberflächenprofil über einer Substratstufe für verschiedene Schichtdicken und Modellvarianten. Als Substratstruktur diente hier eine geometrisch exakte Stufe von 10 nm Höhe.

Zu erkennen ist ein sehr deutlicher Unterschied zwischen den Ergebnissen mit dem KBR-Modell und dem Standardmodell. Weitgehend unabhängig vom verwendeten Transport-

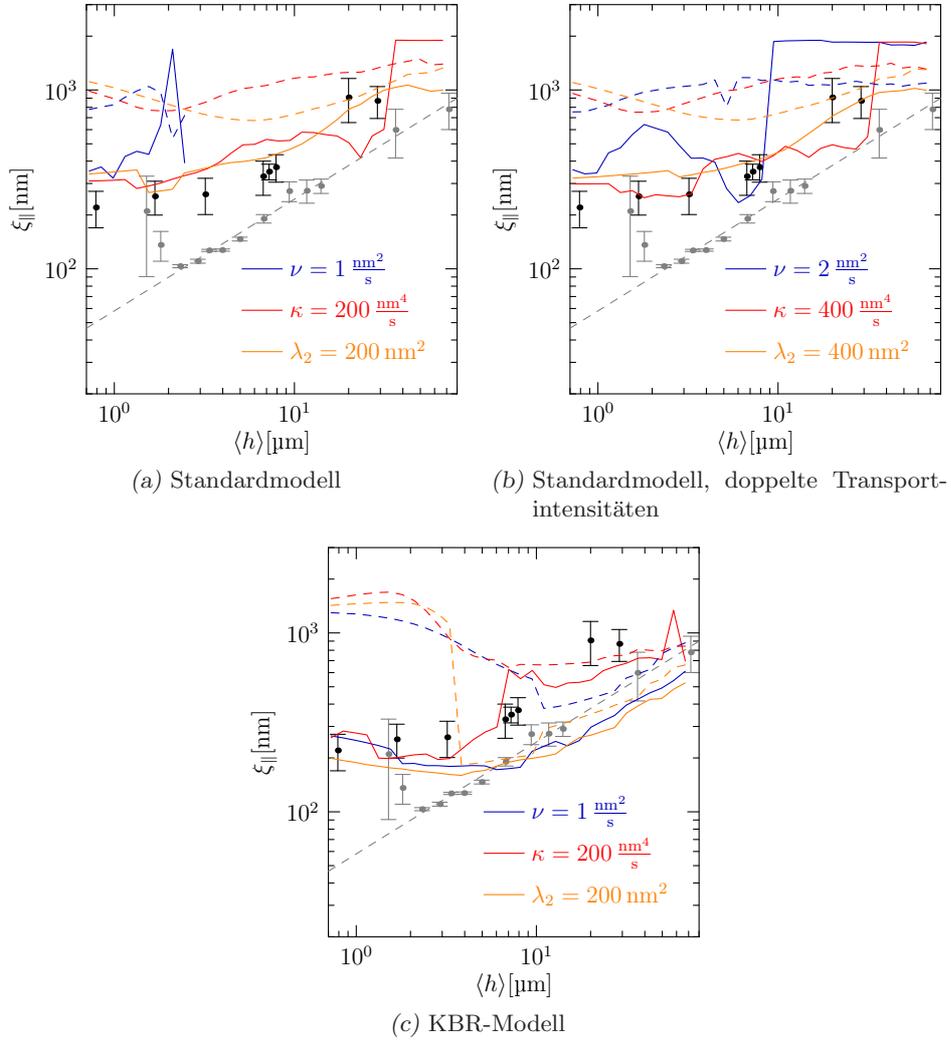
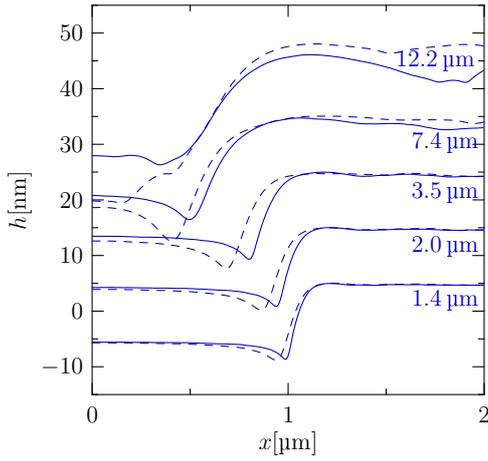
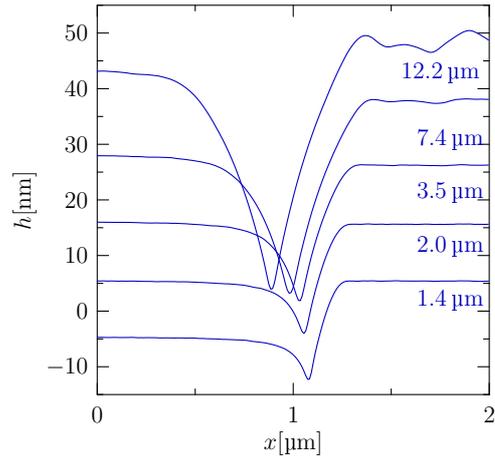


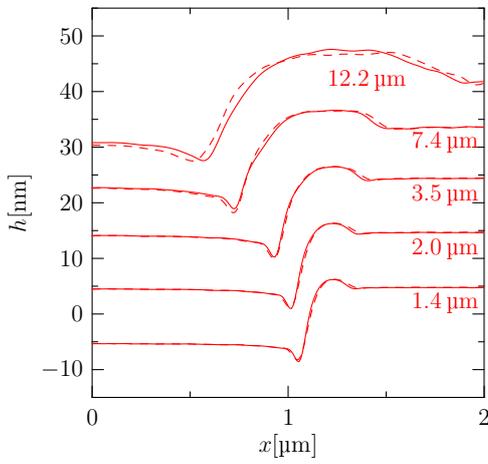
Abbildung 4.40: Entwicklung der Korrelationslänge aus den Langzeitsimulationen mit Anfangsbedingungen basierend auf einer rasterkraftmikroskopischen Messung eines polierten Substrates. Die gestrichelten Verläufe zeigen die Entwicklung der aus den Spektren ermittelten dominanten Wellenlänge. In grau und schwarz die experimentellen Ergebnisse wie in Abbildung 4.38



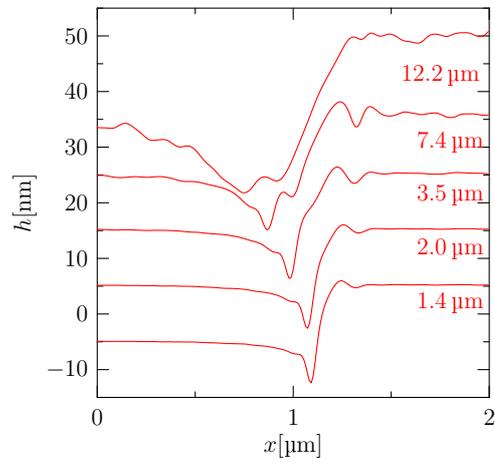
(a) Standardmodell, $\nabla^2 h$ -Transport,
 $\nu = 1.0 \frac{\text{nm}^2}{\text{s}}$, $\kappa = 0$, $\lambda_2 = 0$



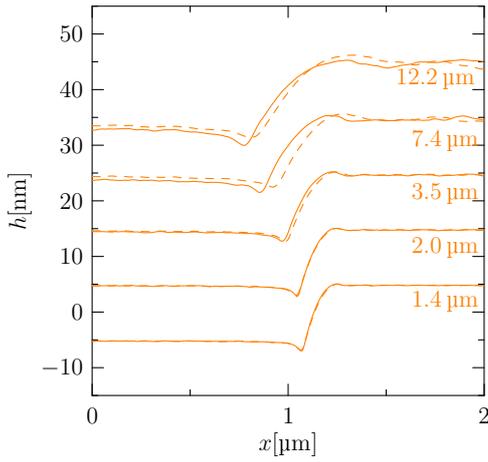
(b) KBR-Modell, $\nabla^2 h$ -Transport,
 $\nu = 1.0 \frac{\text{nm}^2}{\text{s}}$, $\kappa = 0$, $\lambda_2 = 0$



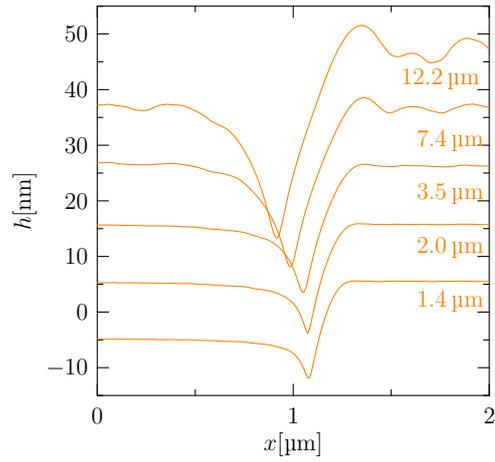
(c) Standardmodell, $\nabla^4 h$ -Transport,
 $\nu = 0$, $\kappa = 200 \frac{\text{nm}^4}{\text{s}}$, $\lambda_2 = 0$



(d) KBR-Modell, $\nabla^4 h$ -Transport,
 $\nu = 0$, $\kappa = 200 \frac{\text{nm}^4}{\text{s}}$, $\lambda_2 = 0$



(e) Standardmodell, $\nabla^2 \langle R \rangle$ -Transport,
 $\nu = 0$, $\kappa = 0$, $\lambda_2 = 200 \text{ nm}^2$



(f) KBR-Modell, $\nabla^2 \langle R \rangle$ -Transport,
 $\nu = 0$, $\kappa = 0$, $\lambda_2 = 200 \text{ nm}^2$

Abbildung 4.41: Gemittelte Oberflächenprofile aus der Simulation des Schichtwachstums über einer Substratstufe von 10 nm Höhe. Beim Standardmodell gestrichelt jeweils für die doppelte Transportintensität

4. Ergebnisse

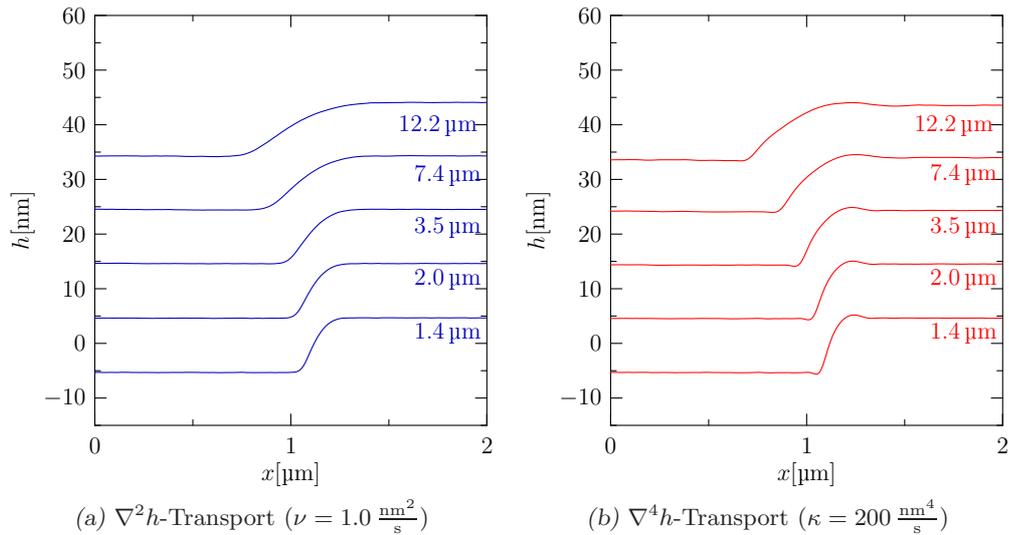


Abbildung 4.42: Profilentwicklung über einer Substratstufe bei Simulation ohne Abschattung

term bildet sich beim KBR-Modell unterhalb der Substratstufe eine tiefe Rille im Oberflächenprofil, welche mit wachsender Schichtdicke immer tiefer wird. Oberhalb der Substratstufe bildet sich erst bei sehr großen Schichtdicken eine leichte Überhöhung. Im Gegensatz hierzu entsteht beim Standardmodell nur eine wesentlich schwächere Vertiefung unterhalb der Stufe während oberhalb bei den Transporttermen auf Diffusionsbasis eine klar erkennbare, wenn auch im Vergleich zum Experiment sehr schwach ausgeprägte Überhöhung zu beobachten ist. Der Einfluss einer veränderten Transportintensität scheint nur von geringer Bedeutung zu sein.

Auch hierbei lohnt der Vergleich mit Simulationen ohne Berücksichtigung der Abschattung, deren Ergebnisse in Abbildung 4.42 gezeigt sind. Während mit dem $\nabla^2 h$ -Transportterm lediglich eine allmähliche Glättung der Substratstufe zu beobachten ist bewirkt der $\nabla^4 h$ -Term hier eine leichte Überhöhung der oberen Kante sowie eine entsprechende Vertiefung unterhalb.

5. Diskussion

Thema dieser Arbeit ist das Wachstum diamantähnlicher Kohlenwasserstoffschichten auf Basis von Toluol mittels plasmaunterstützter chemischer Gasphasenabscheidung. Die hierbei stattfindende Entwicklung der Oberflächenstruktur wurde mit Hilfe rasterkraftmikroskopischer Messungen analysiert. Außerdem wurde auf Basis von Kontinuums-Wachstumsmodellen versucht, die experimentell beobachtete Wachstumscharakteristik im Rahmen numerischer Simulationen zu reproduzieren. Im Folgenden soll nun diskutiert werden, welche Erkenntnisse sich aus den Ergebnissen in Bezug auf den Wachstumsprozess ergeben.

5.1. Abschattung als dominierender Effekt beim Schichtwachstum

Von experimenteller Seite zeigen zunächst die in Abschnitt 4.1 dargestellten Ergebnisse der rasterkraftmikroskopischen Messungen und ihre Analyse ein über fast den gesamten untersuchten Schichtdickenbereich von etwa 2 bis 70 μm stabiles Strukturwachstum mit Exponenten $\beta \approx 0.95$ und $\zeta \approx 0.7$ (vgl. Tabelle 4.2). Dieses Wachstum lässt sich nicht durch lokale Wachstumsmodelle beschreiben, bei welchen die Rauigkeitsentwicklung nach oben durch die Statistik des Depositionsrauschens auf einen Exponenten $\beta \leq 0.5$ begrenzt ist. Lokale Modelle mit transient instabilem Verhalten wie das KURAMOTO-SIVASHINSKY-Modell und seine Varianten (vgl. Abschnitt 2.3.3) zeigen zwar einen vorübergehend stärkeren Anstieg der Rauigkeit, jedoch stimmt dies nicht mit dem im Experiment beobachteten und über einen großen Schichtdickenbereich stabilen Wachstum mit hohem β überein.

Untersuchungen zum Schichtwachstum unter PECVD-Bedingungen aus der Literatur zeigen teilweise ein ähnliches Wachstumsverhalten, gelegentlich aber auch deutlich abweichende, insbesondere teils deutlich geringere Werte für β und ζ (vgl. Abbildung 2.4). Die meisten dieser Arbeiten decken jedoch nur einen Schichtdickenbereich bis zu einigen Mikrometern Schichtdicke ab. Es ist somit sehr gut möglich, dass die dort untersuchten Wachstumsvorgänge bei größeren Schichtdicken ein abweichendes Skalenverhalten zeigen. In den wenigen Untersuchungen, welche bei mit den hier gezeigten Ergebnissen vergleichbaren Schichtdicken durchgeführt wurden, zeigt sich eine mit den hier untersuchten Schichten vergleichbare unterteilte blumenkohlartige Kappenstruktur [Let81, Dum02].

Die Tatsache, dass das Wachstum auch bei großen Schichtdicken und Strukturen mit Ausdehnungen im Mikrometer-Bereich mit gegenüber dem Beginn des Wachstums unverändert

5. Diskussion

hohen Werten für β und ζ erfolgt, deutet darauf hin, dass der dominierende Materialtransportmechanismus auch über relativ große Distanzen bis zu mehreren Mikrometern wirksam ist.

Von den in Abschnitt 2.3.4 genannten nichtlokalen Effekten lassen sich Wechselwirkungen innerhalb der wachsenden Schicht relativ zuverlässig ausschließen:

Volumendiffusion: Die Struktur von diamantähnlichem Kohlenstoff als Netzwerk kovalent gebundener Kohlenstoffatome mit Anteilen von Wasserstoff ermöglicht bei den während der Abscheidung vorliegenden Temperaturen keinen nennenswerten Materialtransport durch Diffusion der Kohlenstoffatome im Netzwerk. Die in der amorphen Kohlenstoffmatrix vorliegenden Lücken erlauben die Diffusion von Fremdatomen. Untersuchungen für Inertgase [Cam02] zeigen jedoch, dass die Diffusionsraten mit wachsender Größe der Fremdatome stark abnehmen. Hinzu kommt, dass reaktive Kohlenwasserstofffragmente des Depositionstroms bei der Diffusion auch mit der a-C:H-Matrix reagieren könnten, wodurch die Diffusion zusätzlich gehemmt würde.

Gegen einen erheblichen Materialtransport durch Volumendiffusion spricht ebenfalls, dass die Oberflächenstruktur der Schichten nach dem Abschluss der Deposition stabil und auch während längerer Lagerung bei mit den Depositionsbedingungen vergleichbaren Temperaturen unverändert bleibt.

Viskoses Fließen: Das Argument der Langzeitstabilität der Oberflächenstruktur spricht gleichermaßen gegen einen Materialtransport durch viskoses Fließen. Träte viskoser Materialtransport bei der Deposition auf, müsste dieser auch nach Abschluss der Deposition zu einer Veränderung der Oberflächenstruktur, insbesondere aber auch zu einer Relaxation der Eigenspannungen führen, was jedoch nicht der Fall ist. Die meisten Untersuchungen zu viskosem Verhalten anderer amorpher Feststoffe zeigen, dass bei Temperaturen weit unterhalb der Glasübergangstemperatur viskoses Verhalten vernachlässigbar ist [Dor02]. Bei diamantähnlichen amorphen Kohlenstoffschichten konnte bislang kein Glasübergang festgestellt werden. Ein solcher ist allenfalls in dem Temperaturbereich vorhanden, wo auch die Zersetzung eintritt (200 bis 500°C). Möglich wäre Materialtransport durch viskoses Fließen dennoch, falls dieser durch Ionenbeschuss induziert wird [May01, Umb01], was jedoch bis jetzt bei amorphem Kohlenstoff noch nicht beobachtet wurde.

Hinzu kommt, dass sowohl Volumendiffusion als auch viskoses Fließen eine stabilisierende Wirkung auf die Topographieentwicklung hätten, für die Erklärung des beobachteten Wachstumsverhaltens jedoch nur destabilisierende nichtlokale Wechselwirkungen in Frage kommen. Die genannten Transportmechanismen könnten also wenn überhaupt ausschließlich als stabilisierende Effekte zusätzlich wirksam sein.

Eigenspannungsinduzierte Instabilitäten: Da diamantähnliche Kohlenstoffschichten erhebliche Druckeigenspannungen bis zu einigen GPa aufweisen, käme eine durch Eigenspannungen induzierte Instabilität im Prinzip als Ursache für das beobachtete Wachstum in Frage. Durch die Eigenspannungen werden die langwelligen Moden der Oberflächenstruktur destabilisiert während die kurzwelligen Moden stabil bleiben. In [Rai01] schätzen RAIBLE, LINZ und HÄNGGI die kritische Wellenlänge für

den Übergang zwischen diesen beiden Bereichen für amorphe metallische Schichten der Zusammensetzung $\text{Zr}_{65}\text{Al}_{7.5}\text{Cu}_{27.5}$ ab. Mit diesem Ansatz kann zwar im vorliegenden Fall eine derartige Instabilität nicht ausgeschlossen werden, jedoch liefern die experimentellen Ergebnisse ein starkes Indiz dafür, dass Eigenspannungen nicht maßgeblich für die beobachtete Strukturentwicklung verantwortlich sind. Wie aus Abbildung 4.13 und 4.14 ersichtlich ist, zeigen bei geringer Hochfrequenzleistung abgeschiedene Schichten ein früheres Strukturwachstum, was auf einen stärkeren destabilisierenden Mechanismus hindeutet. Gleichzeitig weisen bei geringer Leistung abgeschiedene Schichten geringere Härten und Elastizitätsmoduln und deutlich geringere Eigenspannungen auf, was – falls Eigenspannungen für die Destabilisierung des Wachstums verantwortlich wären – entgegen der Beobachtung zu einer schwächeren Destabilisierung führen müsste.

Was als Erklärung für das beobachtete Wachstum bleibt, ist der Materialtransport im Raum über der wachsenden Schicht. Beide in Abschnitt 2.3.4 hierzu vorgestellten Mechanismen destabilisieren das Wachstum und kommen grundsätzlich auch bei der PECVD-Abscheidung als Ursache für das beobachtete Skalenverhalten in Frage.

Bei der hier behandelten Niederdruck-PECVD-Technik kann jedoch davon ausgegangen werden, dass der ballistische Transport die Strukturentwicklung der Oberfläche dominiert. Ausgehend von Daten für den Atomdurchmesser d_A von Argon [Bon64] lässt sich für den relevanten Druckbereich von $p = 1 \dots 10$ Pa eine mittlere freie Weglänge von

$$l_m = \frac{k_B T}{\sqrt{2} \pi d_A^2 p} \quad (5.1)$$

mit einem Wert von l_m im Millimeter-Bereich abschätzen. Auch wenn sich diese Abschätzung nicht ohne weiteres auf die für die Schichtabscheidung verwendeten Argon-Toluol-Gemische übertragen lässt, zeigen die experimentellen Beobachtungen, dass sich die freie Weglänge in diesem Fall nur geringfügig von der im reinen Argon-Plasma unterscheidet. Die Oberflächenstrukturen, welche während des Schichtwachstums entstehen, haben im Vergleich eine Ausdehnung von wenigen Mikrometern, so dass Diffusionsprozesse zwar beim großräumigen Materialtransport im Plasmavolumen eine Rolle spielen, auf der Größenskala der Oberflächenstrukturen jedoch vernachlässigbar sind.

Diese Gründe deuten darauf hin, dass geometrischer Abschattung für das beobachtete Wachstumsverhalten verantwortlich ist – ein Phänomen, welches im Bereich der thermischen Niederdruck-CVD-Technik seit langem bekannt ist [Isl91, Sin93, Dro01] und welches ähnlich bereits in einer Reihe von Arbeiten zu Schichtwachstum unter Niederdruck-PECVD-Bedingungen vermutet wird [Col94, Kar02, Dal05].

5.2. Methodik der Modellierung von Abschattung

Die Modellierung von Schichtwachstum unter Abschattung stellt im Vergleich zu Wachstumsvorgängen mit ausschließlich lokalem Materialtransport, welche auf Basis der bekannten EW-, KPZ- und MH-Modelle modelliert werden können (vgl. Abschnitt 2.3.2), eine zusätzliche Schwierigkeit dar.

Für die Simulation von Schichtwachstumsvorgängen unter solchen Bedingungen kommen deshalb bisher hauptsächlich diskrete Monte-Carlo-Modelle zum Einsatz. Lediglich einige grundsätzliche Untersuchungen zur Abschattung wurden anhand von Kontinuumsbeschreibungen hauptsächlich in 1+1 Dimensionen durchgeführt.

Bei einem Großteil der in der Literatur dokumentierten Untersuchungen auf Basis von Kontinuumsmodellen kommt das vereinfachte Abschattungsmodell von KARUNASIRI, BRUNSMAN und RUDNICK zum Einsatz. Hierbei wird die lokale Orientierung der Oberfläche bei der Berechnung der Abschattung vernachlässigt. Wie in [Bal89] dargelegt, kann diese Vereinfachung einen starken Einfluss auf das Systemverhalten ausüben, was durch die hier durchgeführten Simulationen bestätigt wird. Für die hier verwendete Methode der Abschattungsberechnung in 2+1 Dimensionen besteht im Aufwand der Berechnung allerdings kein bedeutender Unterschied zwischen KBR- und Standardmodell. Ermöglicht wird dies durch die Umformung in Gleichung (3.49), wodurch die Orientierung der Oberfläche von der Abschattungsberechnung separiert wird.

Durch die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Simulationen konnte demonstriert werden, dass sich das entwickelte Verfahren zur Berechnung der Abschattung zur Simulation von Schichtwachstumsvorgängen in der Praxis anwenden lässt. Der zusätzliche Aufwand gegenüber der Finite-Differenzen-Formulierung eines lokalen Modells ist erheblich. Die Simulationszeiten auf einem achtfach Intel Xeon System mit 2.66 GHz Taktfrequenz lagen bei den Langzeitsimulationen aus Abschnitt 4.2.4 mit einem für diese Beschichtungsdauer sehr knapp dimensionierten Simulationsfeld von $4.84\ \mu\text{m}$ Größe und 512×512 Gitterpunkten bei etwa einer Woche. Wie in Abschnitt 3.5.5 dargestellt erfordert die nichtlokale Natur des Wachstumsmodells bei der Parallelisierung der Berechnung einen im Vergleich zu lokalen Wachstumsmodellen deutlich umfangreicheren Datenaustausch zwischen den Recheneinheiten. Dies hat zur Folge, dass massive Parallelisierung, wie sie auch bei vielen anderen Simulationstechniken zum Einsatz kommt, hier nicht zu einer insgesamt schnelleren Berechnung führen würde. Der Einfluss der numerischen Parameter auf die Genauigkeit der Abschattungsberechnung wurde in Abschnitt 4.2.2 anhand von zwei Referenztopographien detailliert untersucht. Die Ergebnisse zeigen eine Konvergenz des Berechnungsverfahrens in Bezug auf diese Parameter. Die Beurteilung hiervon sollte allerdings mit Vorsicht erfolgen, da der Fehler nicht im Vergleich zur exakten analytischen Lösung sondern im Vergleich zu einer ebenfalls genäherten Berechnung bestimmt wurde.

Statt der gewählten Methode der gleichmäßigen Diskretisierung des Horizonts in Sektoren wäre auch ein Vorgehen möglich, bei welchem die Oberflächenpunkte direkt zur Ermittlung der Horizontlinie verwendet werden. Allerdings ist eine diskretisierte Horizontlinie zur numerischen Integration in jedem Fall erforderlich.

5.3. Wachstumsverhalten des Modells im Vergleich mit den Experimenten und der Literatur

Auch grundsätzlich andere Ansätze zur Lösung der nichtlokalen Wachstumsgleichung wären denkbar, dürften jedoch nur begrenzt Vorteile gegenüber der hier gewählten Methode bieten. Eine Lösung der Gleichung im Fourier-Raum (vgl. Abschnitt 3.5.5) wäre für die Berechnung der Abschattung nicht vorteilhaft, da die Sichtbarkeitsberechnung auf Basis der geometrischen Zusammenhänge als Kern der Abschattungsberechnung im Fourier-Raum nicht vereinfacht wird. Ein chancenreicher Ansatz bestünde hingegen in der direkten Monte-Carlo-Integration des Expositionsterms. Hierdurch ließen sich die Vorteile diskreter Monte-Carlo-Methoden für die Abschattungsberechnung mit den Vorteilen eines Kontinuumsmodells für das Schichtwachstum selbst verbinden.

Insbesondere für den Fall, dass neben Materialtransport vom Plasma auf die Oberfläche auch ballistischer Materialtransport von Oberfläche zu Oberfläche eine Rolle spielt – auf diese Möglichkeit wird im Folgenden noch näher eingegangen – ließe sich dessen Berechnung mit Hilfe eines solchen Ansatzes vermutlich effizienter gestalten als mit der hier gewählten Methode. Zwar ist auch hiermit die Erfassung von indirektem Materialtransport möglich, jedoch nimmt der Aufwand mit jedem weiteren berücksichtigten Oberflächenkontakt der Partikel zu.

5.3. Wachstumsverhalten des Modells im Vergleich mit den Experimenten und der Literatur

Nachdem in den vorangegangenen Abschnitten der Diskussion erläutert wurde, warum geometrische Abschattung vermutlich eine wichtige Rolle bei der PECVD-Abscheidung von amorphen Kohlenwasserstoffschichten spielt und wie sich dieses Phänomen in einem Kontinuumsmodell des Wachstums berücksichtigen lässt, soll nun auf Basis der durchgeführten Simulationen die Frage geklärt werden, in wie weit das verwendete Modell in der Lage ist, das im Experiment beobachtete Wachstumsverhalten hinreichend gut zu erklären.

Des Weiteren sollen mögliche Schlüsse diskutiert werden, welche sich aus den Ergebnissen über die Vorgänge beim Schichtwachstum ziehen lassen.

5.3.1. Zur Strukturentwicklung

Die auf Basis des entwickelten Wachstumsmodells durchgeführten Simulation zeigen bei der Rauheitsentwicklung eine sehr gute Übereinstimmung mit den Experimenten. Anhand der Parameterstudien zur Rauheitsentwicklung (Abbildung 4.33) lässt sich außerdem feststellen, dass das beobachtete Skalenverhalten bei dem verwendeten Modell über einen größeren Parameterbereich beobachtet werden kann – eine Beobachtung, welche mit einer Reihe von theoretischen Untersuchungen aus der Literatur übereinstimmt, welche ein langfristig stabiles Wachstum mit $\beta \approx 1$ prognostizieren [Kar89, Rol91, Yao92]. Weder im Experiment noch in den Simulationen sind Anzeichen dafür zu erkennen, dass diese

5. Diskussion

beobachtete Wachstumstendenz bei noch größeren Schichtdicken absehbar endet. Die in den Simulationen teilweise beobachtete Sättigung kann eindeutig auf die unzureichende Größe des Simulationsgitters zurückgeführt werden.

Kappenbildung und -wachstum

Bei der umfassenden Betrachtung der Strukturentwicklung im Experiment zeigt sich – wenn man über die Rauigkeit als einzige Kenngröße hinaus geht – als prägendes Merkmal die Bildung von Kappenformen, welche ab etwa 15 μm Schichtdicke eine Unterstrukturierung in kleinere Kappen aufweisen. Abbildung 4.2 zeigt diese Entwicklung. Die beobachtete Strukturentwicklung deutet darauf hin, dass sich mit weiter wachsender Schichtdicke durch diese Unterstrukturierung der Kappen eine selbstaffine Oberflächenstruktur ausbilden wird.

Diese Kappenbildung gibt das Wachstumsmodell in einigen Modellvarianten insbesondere in der späteren Phase des Wachstums recht gut wieder. Die mit Hilfe des Modells von KARDAR, PARISI und ZHANG (vgl. Abschnitt 2.3.2) bei geeigneter Parameterwahl erzeugbaren differenzierten Kappenstrukturen sind hiermit durch das vollkommen andere räumliche Skalenverhalten ($\alpha = 0.38$ in 2+1 Dimensionen) nicht zu vergleichen. Neben den bereits genannten Argumenten auf Basis der Rauigkeitsentwicklung liegt hierin ein weiteres Indiz für die Wirkung eines nichtlokalen Prozesses – keines der bekannten lokalen Modelle entwickelt eine derartige unterteilte Kappenstruktur.

In Bezug auf das laterale Wachstum zeigen sich jedoch in den Simulationen deutliche Abweichungen vom Experiment. Das Standardmodell überschätzt das laterale Wachstum teils deutlich. Eine Variation der Transportintensität beeinflusst die Strukturentwicklung nur schwach, die verschiedenen Transportmechanismen bewirken jedoch erhebliche Unterschiede sowohl im Skalenverhalten, in den absoluten Strukturgrößen als auch im Erscheinungsbild der Kappenstrukturen. Das schnelle laterale Wachstum erzeugt außerdem sehr große Gradienten in der Oberflächentopographie. In Kombination mit einem schwachen Transportterm käme es vermutlich zur Bildung von Hohlräumen und Poren in der Schicht, was aber durch die im Modell gewählte 2+1-dimensionale Oberflächenrepräsentation nicht abgebildet werden kann. Die Instabilität für die Simulation mit $\nu = 1 \frac{\text{nm}^2}{\text{s}}$ auf strukturiertem Substrat (Abbildung 4.38) kann möglicherweise auf dieses Phänomen zurückgeführt werden. Die Bildung von Poren wird in vielen diskreten Modellen zum Wachstum unter Abschattung beobachtet, spielt jedoch im Experiment in diesem Fall mit großer Wahrscheinlichkeit keine Rolle, da die beobachteten Gradienten in der Oberflächentopographie sehr gering bleiben und sich im Schichtmaterial beispielsweise mit elektronenmikroskopischen Untersuchungen an mittels fokussierten Ionenstrahlen präparierten Profilen keine Poren nachweisen lassen.

Bezeichnenderweise unterschätzt das KBR-Modell im Gegensatz zum Standardmodell das laterale Wachstum, wenngleich hierbei am Ende des untersuchten Schichtdickenbereiches unabhängig vom gewählten Transportterm auch in Bezug auf das laterale Wachstum eine sehr gute Übereinstimmung des Skalenverhaltens mit dem Experiment beobachtet werden

5.3. Wachstumsverhalten des Modells im Vergleich mit den Experimenten und der Literatur

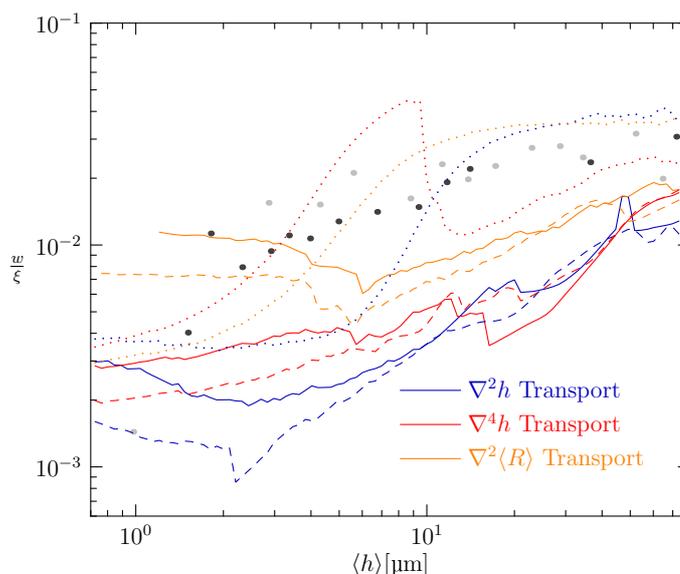


Abbildung 5.1: Entwicklung des Verhältnisses $\frac{w}{\xi}$ (Aspektverhältnis) mit der Schichtdicke im Experiment (graue Punkte) und in den Simulationen der verschiedenen Modellvarianten (durchgezogene Linien: Standardmodell, gestrichelt: doppelte Transportintensitäten, gepunktet: KBR-Modell)

kann. Trotz der deutlichen Abweichungen beim Standardmodell hinsichtlich des lateralen Wachstums zeigt sich auch hier für große Schichtdicken eine stabile Entwicklung – wenngleich mit deutlich höheren Werten für ζ als im Experiment und beim KBR-Modell (siehe Tabelle 4.7). Die deutlichen Unterschiede zwischen Standardmodell und KBR-Modell können recht anschaulich dadurch erklärt werden, dass das Standardmodell durch die Berücksichtigung der Oberflächenorientierung bei konstant verteilter Deposition an stark geneigten Teilen der Oberflächentopographie hohe Depositionsraten erzeugt (klar erkennbar in Abbildung 4.27). Hierdurch wird das laterale Wachstum verstärkt, sobald ein konstant verteilter Anteil der Deposition vorhanden ist.

Das gleichmäßige Wachstum in vertikale und laterale Richtung mit konstanten Expo-

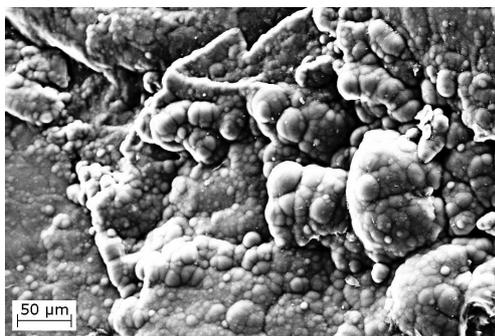


Abbildung 5.2: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme einer Schicht von etwa 200 μm Dicke

5. Diskussion

nenen bedeutet, dass auch das Verhältnis beider Größen, welches dem Aspektverhältnis der Oberflächenstrukturen entspricht, einer solchen Entwicklung folgt. Wie Abbildung 5.1 zeigt, nimmt das Aspektverhältnis mit wachsender Schichtdicke zu – im Experiment im beobachteten Schichtdickenbereich von etwa 0.01 auf 0.03, die Strukturen werden also steiler, was letztendlich darauf hindeutet, dass sich die beobachtete Wachstumscharakteristik mit wachsender Schichtdicke nicht beliebig fortsetzen kann. Abbildung 5.2 zeigt jedoch, dass sich das Kappenwachstum auch bei größeren Schichtdicken und deutlich größeren Kappen ähnlich fortsetzt. Durch die mit wachsenden Strukturgrößen zunehmende Bedeutung von diffusivem im Vergleich zu ballistischem Materialtransport auf der Größenskala der Kappenstrukturen könnte es jedoch zu einer allmählichen Änderung der Wachstumsmechanismen im Verlauf des weiteren Wachstums kommen.

Die durchgeführten Versuchsreihen A und B mit unterschiedlichen Prozessparametern (Druck und HF-Leistung, vgl. Abschnitt 4.1.3) zeigen, dass sich der grundsätzliche Charakter der Strukturentwicklung bei Variation der Rahmenbedingungen kaum ändert, sondern dass sich lediglich der Beginn des charakteristischen Wachstums zu einer anderen Schichtdicke verschiebt. Die Gleichmäßigkeit, mit der auch eine weiterreichende Variation von Prozessdruck und HF-Leistung die Struktur der produzierten Schichten beeinflusst (Abbildung 4.13 und 4.14), deutet darauf hin, dass diese Beobachtung über den gesamten untersuchten Druck- und Leistungsbereich (ungefähr 0.5 bis 2.5 Pa Gesamtdruck, 50 bis 200 W HF-Leistung) Gültigkeit besitzt wenngleich sich das Aspektverhältnis bei geringerer HF-Leistung deutlich zu rauheren Oberflächen mit vergleichsweise geringen lateralen Strukturgrößen verschiebt. Eine zuverlässige Überprüfung dieser Vermutung wäre mit Hilfe zusätzlicher Schichtdickenreihen möglich.

Der Einfluss der Substratstruktur

Eine mögliche Ursache für die Abweichungen bei den lateralen Strukturgrößen liegt in den in den Simulationen verwendeten perfekt glatten Anfangsbedingungen. Die im Experiment verwendeten Substrate weisen ohne Zweifel eine Struktur auf, welche durch den Plasmareinigungsschritt vor Beginn der Beschichtung möglicherweise auch noch modifiziert wird. Für die Rauigkeit des Substrates kann auf Basis der rasterkraftmikroskopischen Messungen eine Obergrenze angegeben werden, eine Aussage über die vorliegenden lateralen Strukturgrößen ist jedoch auf Basis der Messungen nicht möglich. Entsprechend könnte die Substratstruktur auf die Anfangsphase des Wachstums bei sehr geringen Strukturgrößen einen erheblichen Einfluss haben.

Von diesem Problem weniger betroffen sind die Untersuchungen zum Wachstum auf stärker strukturierten mechanisch bearbeiteten Substraten. Auch hierbei zeigt sich jedoch, dass die Modelle mit den verwendeten Ansätzen für Materialtransport und Winkelverteilung das Wachstum zwar im Groben in Bezug auf das Skalenverhalten und den grundsätzlichen Effekt der Kappenbildung korrekt wiedergeben, im Detail jedoch noch erhebliche Abweichungen zu beobachten sind. Beim Wachstum auf einem strukturierten Substrat zeigt sich ein allmählicher Übergang von der Substratstruktur zu der bereits auf glattem Substrat beobachteten Wachstumsstruktur.

Die empirische Analyse des Wachstums während der Anfangsphase zeigt, dass im Experiment die Kappenbildung fast unmittelbar einsetzt und bereits bei unter $1\ \mu\text{m}$ Schichtdicke deutlich erkennbare Kappen zu sehen sind während im Vergleich hierzu in der Simulation in dieser Anfangsphase modell- und transporttermübergreifend dem Materialtransport in Kombination mit dem aus dem KPZ-Term resultierenden lateralen Wachstum eine erheblich stärkere Bedeutung zukommt. Der Vergleich mit den Simulationen ohne Abschattung, deren Ergebnisse in der Anfangsphase (Abbildung B.14) den Resultaten mit Abschattung während der ersten Mikrometer stark ähneln, bestätigt diese Beobachtung. Die Tatsache, dass die Kappenbildung in diesem Fall im Experiment sehr viel früher und sehr viel deutlicher zu beobachten ist als in den Simulationen, deutet darauf hin, dass die verwendeten Werte für die Transportterme zu hoch angesetzt sind.

Die Ergebnisse zum Wachstum über einer Substratstufe bestätigen auf den ersten Blick die These eines zu starken Materialtransportterms, da der Verlauf des Oberflächenprofils über der Stufe sich in den Simulationen deutlich breiter entwickelt als im Experiment. Die Variation der Transportintensität zeigt jedoch nur geringen Einfluss auf das Oberflächenprofil, was wiederum gegen diese Hypothese spricht. In jedem Fall führt eine deutlich geringere Transportintensität beim hier verwendeten Modellansatz jedoch nicht zu einem stabilen Wachstum.

5.3.2. Die lokalen Transportmechanismen

Die Frage, welcher der Transportprozesse, welche durch die verwendeten Transportterme modelliert werden, im untersuchten Wachstumsprozess den bedeutendsten Einfluss ausübt, kann durch die Ergebnisse der Simulationen nicht geklärt werden. Bei lokalen Wachstumsmodellen kann – falls beide Terme vorhanden sind – von einer Dominanz des $\nabla^2 h$ -Terms über den $\nabla^4 h$ -Term für das asymptotische Verhalten ausgegangen werden. Dieses Erkenntnis basiert auf der relativ größeren Bedeutung des $\nabla^2 h$ -Terms für langwellige Komponenten der Oberflächenstruktur, welche sich direkt aus der Formulierung der Transportterme im Frequenzbereich ergibt (vgl. Gleichung (2.9)) ergibt. Sie dürfte also gleichermaßen für das Wachstum unter Abschattung gelten. Der untersuchte Schichtdicken- und Strukturgrößenbereich ist jedoch weit vom asymptotischen Grenzfall entfernt, so dass abhängig von ihrer relativen Bedeutung beide Terme eine Bedeutung für das konkrete Wachstumsverhalten haben können.

Die in den experimentellen Untersuchungen festgestellte Abnahme der Rauigkeit mit höherer HF-Leistung bei sonst gleichen Bedingungen (vgl. Abbildung 4.14) deutet auf eine mögliche Bedeutung von induzierten Hangabtriebsströmen und somit des $\nabla^2 h$ -Terms hin. Die höhere Leistung bewirkt einen stärkeren Ionenbeschuss und somit einen potentiell stärkeren Transportterm und damit ein verzögertes Rauigkeitswachstum. Hierfür wären jedoch ebenfalls andere Erklärungen möglich wie beispielsweise eine durch die geänderten Depositionsbedingungen veränderte Winkelverteilung des Depositionstroms. Eine sichere Aussage zur Bedeutung der verschiedenen Transportterme dürfte ohne genauere Kenntnis der Oberflächenchemie kaum möglich sein.

Lokale Instabilitäten

Neben lokalen Prozessen der Relaxation und der destabilisierenden Wirkung der Abschattung besteht auch die Möglichkeit, dass zusätzlich lokale Instabilitäten, welche beim KS-Modell (vgl. Abschnitt 2.3.3) zur Kappenbildung und zu einem vorübergehend starken Rauheitsanstieg führen, im hier betrachteten Wachstumsprozess eine Rolle spielen. Eine verbreitete Erklärung der Instabilität im KS-Modell stellt der Materialabtrag durch Sputtern dar – ein Effekt, welcher auch im hier betrachteten Schichtwachstumsprozess von Bedeutung sein könnte.

Jedoch wäre die Auswirkung einer lokalen Instabilität vorübergehender Natur so dass sich aus dem beobachteten Wachstumsverhalten schließen lässt, dass eine lokale Instabilität – falls vorhanden – ohne prägenden Einfluss auf das Wachstum sein dürfte.

5.3.3. Kritische Überlegungen zum Konzept der Korrelationslänge

Etablierte lokale Wachstumsmodelle zeigen ausgehend von glatten Anfangsbedingungen generell ein Wachstumsverhalten mit einer klar begrenzten lateralen Korrelation. Bis zu einer Distanz $\xi_{||}$ – der lateralen Korrelationslänge – weisen Oberflächenpunkte in ihrer Höhe einen klaren Bezug zueinander auf während die Oberflächenstrukturen über diese Distanz hinaus keine Korrelation aufweisen. Dieses gilt gleichermaßen für einfaches selbst-affines Wachstum wie für Modelle mit lokalen Instabilitäten und Kappenbildung.

Beim hier behandelten Wachstum mit Materialtransportprozessen von großer Reichweite kann hiervon nicht automatisch ausgegangen werden. Während bei lokalen Modellen die laterale Korrelation ausschließlich durch die lokalen Transportmechanismen gesteuert wird, ermöglichen nichtlokale Transportvorgänge eine direkte langreichweitige Kommunikation zwischen Oberflächenpunkten.

Beim Wachstum auf glattem Substrat zeigen jedoch sowohl die experimentellen Ergebnisse als auch die Simulationen eine ähnlich klare Grenze der lateralen Korrelationen wie bei lokalen Modellen. Es fällt jedoch auf, dass beim Standardmodell die mittleren Abstände zwischen den Kappen und die Kappengrößen deutlich voneinander abweichen – ein Phänomen, welches bei lokalen Wachstumsmodellen nicht beobachtet wird, für das Wachstum unter dem Einfluss nichtlokaler Abschattung jedoch bekannt ist [Pel06]. Insbesondere in der Anfangsphase des Wachstums mit dem Standardmodell und $\nabla^2 h$ - und $\nabla^4 h$ -Transport sind die entstehenden Kappen zunächst relativ klein und weit voneinander entfernt. Die Abschattung zeigt in diesem Fall auch über Distanzen eine Wirkung, welche weit über die Größe der einzelnen Kappen hinaus gehen. Auf die naheliegende Reduktion des Grenzabstands r_c für die Abschattungsberechnung in der Anfangsphase des Wachstums wurde deshalb in den durchgeführten Simulationen verzichtet.

5.3.4. Die Bedeutung der Winkelverteilung

Die zunächst durchgeführten Parameterstudien zeigen, dass der Winkelverteilung des Depositionsstroms eine entscheidende Bedeutung für das Wachstumsverhalten der Modelle zukommt. Wird – wie oft für CVD-Prozesse üblich – von einer $\cos\theta$ Verteilung ausgegangen, so zeigt sich unter den gegebenen Rahmenbedingungen gegenüber dem Modell ohne Abschattung kein erheblicher Unterschied im Wachstumsverhalten. Die Rauigkeitsentwicklung bleibt weit unter den im Experiment beobachteten Werten. Der Grund hierfür liegt darin, dass bei den hier betrachteten schwach strukturierten Schichttopographien nur sehr flach einfallende Teilchen des Depositionsstroms der Abschattung unterliegen und diese bei einer $\cos\theta$ Verteilung nur einen sehr geringen Anteil am gesamten Depositionsstrom ausmachen. In vielen in der Literatur behandelten Fällen wird jedoch das Verhalten deutlich stärker strukturierter Oberflächen untersucht, bei denen die Bedeutung von Abschattung auch bei einer solchen Winkelverteilung deutlich größer ist.

Ein erheblicher Teil der in der Literatur dokumentierten Wachstumsuntersuchungen arbeitet auf Basis des KBR-Modells, welches den Einfluss der lokalen Oberflächenorientierung vernachlässigt. Die Auswirkung dieser Vereinfachung auf das Wachstumsverhalten des Modells wurde hier detailliert untersucht, indem alle Simulationen sowohl für das Standardmodell als auch mit dem KBR-Ansatz durchgeführt wurden. Das KBR-Modell in seiner ursprünglichen Form [Kar89] verwendet eine konstante Winkelverteilung des Depositionsstroms und zeigt ähnlich wie das physikalisch realistischere Standardmodell auf glattem Substrat eine frühes Einsetzen der Abschattungswirkung und eine starke Destabilisierung, vergleichbar mit dem Verhalten des Standardmodells mit ebenfalls konstanter Winkelverteilung. Mit beiden Modellvarianten führt dies zu einem wesentlich schnelleren Rauigkeitsanstieg als im Experiment.

Weiterführende Überlegungen zur Winkelverteilung des Depositionsstroms

Eine weitgehende Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen ergibt sich auf Basis der Parameterstudien aus Abschnitt 4.2.3 erst bei einer anteiligen Kombination der verschiedenen elementaren Winkelverteilungen. Der genaue Bereich der Übereinstimmung mit dem Experiment hängt von der Art und Intensität des Transportterms ab, liegt aber beim Standardmodell immer im Bereich sehr kleiner Anteile eines konstant verteilten Depositionsstroms. Wie auch aus den in Abbildung 4.33 dargestellten Simulationsreihen deutlich wird, erklärt also eine reine $\cos\theta$ Verteilung das beobachtete Wachstum nicht. Bereits ein sehr geringer Anteil f_u reicht jedoch aus, um ungeachtet der genauen Werte für f_o und f_c ein entsprechendes Wachstum zu bewirken.

Auch ein geringer Anteil f_u kann physikalisch nur schwer erklärt werden. Die $\cos\theta$ Verteilung lässt sich wie in Abschnitt 2.3.5 gezeigt als Ergebnis einer isotropen Teilchenbewegung in der Beschichtungskammer motivieren. Sie wäre das plausible Resultat der Kollisionen der neutralen Gasmoleküle in der Kammer. Durch die im Plasma und in der Randschicht auftretenden Stöße mit Elektronen und Ionen kann diese Winkelverteilung erheblich mo-

difiziert werden, über die genaue Form der resultierenden Verteilung lässt sich jedoch ohne ein detailliertes Modell der Stoßvorgänge wenig sagen. Eine Winkelverteilung, bei welcher den sehr flachen Einfallrichtungen eine große Bedeutung zukommt lässt sich durch Stöße mit Elektronen und Ionen jedoch kaum plausibel erklären.

5.3.5. Die mögliche Bedeutung von Reemission

Die schwer plausibel erklärbare Winkelverteilung, welche für eine Übereinstimmung des Modellverhaltens mit dem Experiment erforderlich ist und die Abweichungen, welche sowohl das Standardmodell noch das einfachere KBR-Modell mit einer solchen Verteilung im Wachstumsverhalten im Vergleich zum Experiment zeigen, legen nahe, dass in der Modellbeschreibung wichtige Aspekte des Wachstums noch nicht ausreichend berücksichtigt sind.

Ein möglicher derartiger Aspekt wäre die Reemission von Materie von der Substratoberfläche. Diese könnte ihre Ursache in der Sputterwirkung der Ionen aus dem Plasma haben oder in Form thermischer Desorption auftreten. Entscheidend für den Einfluss von Reemission auf das Schichtwachstum ist der resultierende Materialtransport von Oberfläche zu Oberfläche. Während bei dem hier behandelten Wachstumsvorgang in jedem Fall ein Großteil der reemittierten Materie zurück ins Plasma gelangt, können mit flachem Winkel reemittierte Teilchen ohne weitere Kollisionen wieder auf die Oberfläche gelangen. Hierdurch gelangt zusätzliches Material an Stellen, an welchen durch die Abschattung die lokale Depositionsrate verringert ist. Andererseits unterliegen die reemittierten Teilchen aber ebenfalls der Abschattung so dass sich eine komplexe Wechselwirkung zwischen dem Materialfluss durch Reemission und der Oberflächenstruktur ergibt. Eine realistische Berücksichtigung hiervon erfordert neben der numerisch aufwendigen Simulation (vgl. Abschnitt 5.2) jedoch detaillierte Informationen über die Natur der auftretenden Reemissionsvorgänge, insbesondere zur Winkelverteilung der reemittierten Teilchen. Theoretische Untersuchungen zum Thema Reemission aus der Literatur [Kar09] behandeln die grundsätzliche Wirkung dieses Phänomens. Quantitative Untersuchungen unter PECVD-Bedingungen über das Skalenverhalten hinaus sind hierzu bis jetzt noch nicht durchgeführt worden.

Auf Grundlage der Literatur und der skizzierten Überlegungen zur Wirkung von Reemission kann vermutet werden, dass die Auswirkungen von Reemission auf das Wachstumsverhalten eng mit den Auswirkungen einer Variation der Winkelverteilung des Depositionsstroms und der Berücksichtigung oder Vernachlässigung der Oberflächenorientierung im Modell verbunden sind. Es wäre also sehr plausibel, dass Reemission die bestehenden Abweichungen zwischen dem hier untersuchten Wachstumsmodell und den Experimenten erklären kann. Gewissheit hierzu würden erst weitere Simulationen auf Grundlage eines entsprechend erweiterten Modells bieten.

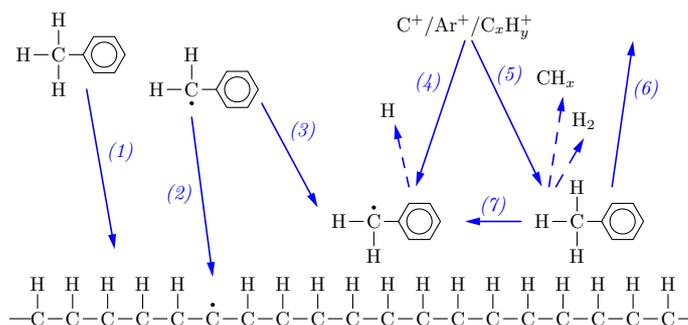


Abbildung 5.3: Mögliche Oberflächenreaktionen bei der PECVD-Abscheidung von a-C:H auf Toluol-Basis zusätzlich zu den in Abbildung 2.5 dargestellten Reaktionen

5.3.6. Die Bedeutung lose gebundener Kohlenwasserstoffe an der Oberfläche

Wie bereits bei der Diskussion der möglichen destabilisierenden Effekte in Abschnitt 5.1 angedeutet kommt der Chemie der wachsenden Oberfläche im Depositionsprozess eine große Bedeutung zu. Diese ist auch für die Thematik der Reemission entscheidend. Die chemischen Eigenschaften von Toluol sowie der vermutlich im Plasma entstehender neutraler Kohlenwasserstofffragmente lassen deren lose Anbindung an der Oberfläche plausibel erscheinen. Wie in verschiedenen Arbeiten zu diamantähnlichem Kohlenstoff dargestellt [Lif90, Rob02], bildet sich dessen Struktur, insbesondere die für die Anwendung bedeutenden Diamantbindungen, erst durch den Ionenbeschuss der Oberfläche, was die Existenz einer chemisch vom übrigen Schichtmaterial abweichenden, mehr oder weniger lose gebundenen Schicht an der Oberfläche nahelegt.

Untersuchungen an Benzol-Plasmen unter etwas anderen Depositionsbedingungen auf Basis der optischen Emissionen [Koi89] zeigen eine erhöhte Konzentration kleiner Kohlenwasserstofffragmente in der Nähe der Substratelektrode. Während im Plasmavolumen aromatische Spezies vorherrschen – ein Phänomen, welches wie in Abschnitt 2.6 dargelegt auf Toluol-Plasmen übertragbar ist – sinkt deren Konzentration nahe der Elektrode, während verstärkt optische Emissionen angeregter C und CH-Fragmente beobachtet werden. Obwohl als Erklärung auch ein unterschiedliches Emissionsverhalten in der Randschicht im Vergleich zum Plasmavolumen in Frage kommt, besteht die Möglichkeit, dass dieser Konzentrationsanstieg von der Zerlegung lose gebundener Kohlenwasserstoffe an der Oberfläche durch den Ionenbeschuss herrührt.

Das ungefähre Bild, welches sich mit dem dargestellten Szenario von der Oberfläche der wachsenden Schicht ergibt, ist in Abbildung 5.3 skizziert. Bei den dargestellten Reaktionen handelt es sich um:

- (1) Adsorption aromatischer Moleküle an der Schichtoberfläche über van der Waal'sche Wechselwirkungen.
- (2) Anbindung aromatischer Kohlenwasserstoffradikale an freien Bindungen an der Ober-

5. Diskussion

fläche. Dies entspricht Reaktion (4) in Abbildung 2.5.

- (3) Adsorption aromatischer Radikale an der Oberfläche.
- (4) Erzeugung freier Bindungen an lose gebundenen Kohlenwasserstoffen durch Ionenbeschuss.
- (5) Erzeugung kovalenter C-C-Bindungen zwischen lose gebundenen Kohlenwasserstoffen oder zwischen diesen und der wachsenden Schicht durch Ionenbeschuss unter Freisetzung von Wasserstoff oder kleineren Kohlenwasserstofffragmenten.
- (6) Wiederablösung adsorbierter aromatischer Moleküle und Radikale von der Oberfläche – entweder spontan oder durch den Aufprall anderer Teilchen.
- (7) Diffusion aromatischer Moleküle an der Schichtoberfläche.

Trifft dieses Bild zu, bestünde in (7) eine plausible Erklärung für Materialtransport durch Diffusion und die hierfür im Modell angesetzten Materialtransportterme. Die Reaktionen (1) und (6) in Kombination würden, da ihre Wahrscheinlichkeit von der lokalen Krümmung der Oberfläche abhängt, einen $\nabla^2 h$ -Transportterm motivieren können. Beides wäre auch bei den unter PECVD-Bedingungen vorliegenden niedrigen Temperaturen möglich. Gleiches gilt für die angesprochenen Reemissionsvorgänge.

Für eine präzise Modellierung dieses Szenarios müsste jedoch die Dicke der lose gebundenen Schicht oder die Konzentration von lose gebundenen Kohlenwasserstoffen an der Oberfläche bilanziert werden. Das hier verwendete Modell vernachlässigt dies und legt die Annahme zugrunde, dass die Teilchen des Depositionsstroms direkt in die wachsende Schicht eingebaut werden (siehe Abschnitt 3.5.3).

6. Ausblick

Während dargelegt werden konnte, dass nichtlokale Abschattung die beim hier untersuchten Schichtwachstumsprozess beobachtete Strukturentwicklung erklären kann und für das Wachstum von entscheidender Bedeutung ist, bleiben die physikalischen und chemischen Details des Wachstumsvorgangs vorerst im Unklaren. Ein wichtiger Schritt zur Klärung dieser Details wäre eine genauere Analyse des Plasmas mit Hilfe geeigneter Messtechnik. Während zur Chemie von Methan- und Azetylenplasmen bereits viele Untersuchungen durchgeführt wurden, sind die Erkenntnisse über die Vorgänge in Plasmen aromatischer Kohlenwasserstoffe sehr begrenzt. Um die offenen Fragen zu den Vorgängen an der wachsenden Schichtoberfläche zu klären, welche sich einer direkten experimentellen Beobachtung weitgehend entziehen, wäre außerdem die Simulation dieser Vorgänge mit Hilfe molekulardynamischer Methoden sinnvoll. Auch wenn die räumlichen und zeitlichen Dimensionen, welche hiermit erfasst werden können, sehr begrenzt sind, würde ein solcher Ansatz wertvolle Informationen zu den diskutierten Elementarprozessen an der Oberfläche liefern.

Auf Basis der hiermit gewonnenen Informationen ließe sich das entwickelte Wachstumsmodell erweitern, um Reemission, lose anhaftende Kohlenwasserstoffe und eventuell weitere relevante Phänomene zu berücksichtigen. Auch wenn ein solches Modell möglicherweise die Strukturentwicklung deutlich präziser beschreiben könnte, als das einfachere hier vorgestellte Modell, wäre sein praktischer Nutzen für die Vorhersage der Strukturentwicklung einer Schicht noch begrenzt. Das für eine solche praktische Anwendung fehlende Element wäre der Bezug zwischen den Prozessparametern der Beschichtungstechnik und den Eigenschaften des Plasmas. Um diesen herzustellen wäre zusätzlich ein Modell der physikalischen und chemischen Vorgänge im Plasma zu entwickeln – eine Aufgabe, welche aufgrund der Komplexität der Vorgänge im Plasma und der bis heute nur lückenhaften Verständnis nicht einfach zu lösen sein dürfte.

Wie in Abschnitt 2.4 angedeutet zeigen viele mittels PECVD-Verfahren, aber auch anderweitig abgeschiedenen Schichten ein Wachstumsverhalten, welches nicht durch etablierte lokale Wachstumsmodelle erklärt werden kann. Die Vermutung liegt nahe, dass in diesen Fällen nichtlokale Wechselwirkungen eine Rolle spielen. Die hier gewonnenen Grundlagenkenntnisse zum Wachstum unter Abschattung sowie das entwickelte Simulationsverfahren könnten in vielen dieser Fälle zu einem besseren Verständnis der Strukturentwicklung beitragen.

Daneben könnte der verwendete Ansatz zur Berechnung der Abschattung auch in anderen Bereichen Verwendung finden. Ballistischer Materialtransport in Verbindung mit Abschattungsphänomenen tritt bei einer Vielzahl von Wachstumsvorgängen auf – beispielsweise

6. *Ausblick*

auch auf deutlich makroskopischerer Ebene wie bei Sprühbeschichtungsvorgängen oder bei der Vereisung von Flugzeugen oder Hochspannungsleitungen in gefrierendem Regen oder Nebel.

7. Zusammenfassung

Diamantähnlichen Kohlenwasserstoffschichten auf Toluol-Basis zeigen während des Wachstums eine für aus der Gasphase abgeschiedene amorphe Schichten ungewöhnliche Entwicklung der Oberflächenstruktur. Die Tatsache, dass mit der verwendeten PECVD-Beschichtungstechnik auch sehr dicke Schichten dieses Materials sauber abgeschieden werden können, ermöglicht es, dieses Wachstum über einen sehr großen Schichtdickenbereich zu untersuchen.

Die dabei beobachtete Entwicklung der Oberfläche zeigt die Entstehung markanter Kappenformen, deren Wachstum durch keines der für Schichtwachstumsprozesse etablierten lokalen Kontinuums-Wachstumsmodelle erklärt werden kann. Die Selbstabschattung der Oberflächenstruktur gegenüber einem Depositionsstrom mit breiter Winkelverteilung stellt jedoch wie bereits in verschiedenen anderen Arbeiten zur PECVD-Beschichtung vermutet eine plausible Erklärung für das beobachtete Wachstum dar.

Um die Wirkung der Selbstabschattung unter den vorliegenden Depositionsbedingungen zu untersuchen, wurde dieses Phänomen in ein Kontinuumsmodell integriert und im Rahmen einer Simulation auf Basis von Finiten Differenzen in 2+1 Dimensionen implementiert. Es konnte demonstriert werden, dass die numerisch aufwändige Simulation der Abschattung im Rahmen eines Kontinuumsmodells mit praktikablem Aufwand durchführbar ist und anhand von Parameterstudien wurde das Wachstumsverhalten unter Abschattung in Abhängigkeit von der Winkelverteilung des Depositionsstroms, dessen Partikelgröße und den Materialtransportmechanismen an der Oberfläche untersucht. Zusätzlich zu den etablierten Mechanismen des Materialtransports wird hierbei ein Transportterm berücksichtigt, welcher Oberflächendiffusion in Folge der durch die Abschattung lokal unterschiedlichen Depositionsrate modelliert.

Das in den Simulationen beobachtete Wachstumsverhalten zeigt bei geeigneter Wahl der Parameter einen schnellen, jedoch stabilen Anstieg der Rauigkeit mit gleichzeitigem lateralem Wachstum der entstehenden Kappenstrukturen. Deutlich wurde durch die Untersuchungen auch, dass das in vielen Arbeiten zum Wachstum unter Abschattung verwendete vereinfachte Modell von KARUNASIRI, BRUINSMA und RUDNICK eine im Detail deutlich andere Wachstumscharakteristik aufweist, wenngleich die generelle Tendenz zur Kappenbildung und starkem aber stabilem Rauigkeitsanstieg auch mit diesem vereinfachten Ansatz beobachtet werden kann.

Insgesamt zeigen die durchgeführten Simulationen, dass sich mit dem verwendeten Modell das im Experiment beobachtete Wachstum in seiner allgemeinen Tendenz gut beschreiben lässt. Allerdings deuten die beobachteten Unterschiede wie auch die angepassten Parame-

7. Zusammenfassung

ter der Winkelverteilung, welche für die PECVD-Abscheidung wenig plausibel sind, darauf hin, dass das Modell das tatsächliche Wachstum nur stark vereinfacht wiedergibt und Vorgänge von erheblichem Einfluss auf das Wachstumsverhalten noch nicht hinreichend genau abgebildet werden. Als möglicherweise bedeutendes Phänomen konnte das Vorhandensein lose gebundener Kohlenwasserstoffe an der Oberfläche der wachsenden Schicht identifiziert werden.

A. Beispiel zur Deposition mit Abschattung in 1+1 Dimensionen

Die Berechnung der Depositionsratesoll hier beispielhaft über den Verlauf eines rechtwinkligen Dreiecksgrabens in 1+1 Dimensionen beschrieben werden. Abbildung A.1 zeigt die betrachtete Geometrie. Ausgehend von dem in Abschnitt 3.5.3 beschriebenen vereinfachten Modell für die Deposition mit einer einheitlichen Partikelgröße wird hier nur der deterministische Fall betrachtet.

Für die Materialtransportrate durch die Kontrollfläche K_1 gilt somit

$$R_1(x) = N_x \Omega_A r \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} P(\theta) d\theta, \quad (\text{A.1})$$

wobei hier ohne Einschränkung der Allgemeinheit $N_x \Omega_A r = 1$ angenommen wird so dass sich eine konstante mittlere Flussrate $R_1 = 1$ ergibt.

Für die Depositionsratesoll dann allgemein

$$R(x) = \int_{\theta_1}^{\theta_2} P(\theta) \frac{\cos(\theta - \alpha)}{\cos \theta} d\theta, \quad (\text{A.2})$$

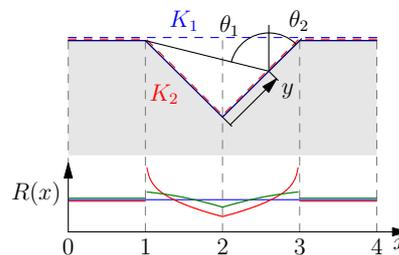


Abbildung A.1: Qualitativer Verlauf von Depositionsratesoll R und Materialfluss durch die Kontrollfläche K_1 R_1 am Beispiel eines Grabens mit rechtwinkligem Dreiecksprofil

A. Beispiel zur Deposition mit Abschattung in 1+1 Dimensionen

wobei α den Winkel zwischen Oberflächennormale und Vertikale beschreibt, also:

$$\alpha = \begin{cases} 0 & \text{für } x \leq 1 \text{ oder } x \geq 3 \\ \frac{\pi}{4} & \text{für } 1 < x < 2 \\ -\frac{\pi}{4} & \text{für } 2 < x < 3 \end{cases} \quad (\text{A.3})$$

Für die Bereiche $x = [0, 1]$ sowie $x = [3, 4]$ ist die somit die Materialtransportrate R_1 durch K_1 mit der Depositionsrate R identisch und es gilt für die bereichsweise transportierten Materialmengen

$$M_1^{(A)} = \int_0^1 R_1(x) dx = M^{(A)} = \int_0^1 R(x) dx = 1, \quad (\text{A.4})$$

$$M_1^{(D)} = \int_3^4 R_1(x) dx = M^{(D)} = \int_3^4 R(x) dx = 1. \quad (\text{A.5})$$

für den Bereich des Grabens gilt aus Symmetriegründen $R(x) = R(4 - x)$. Aufgrund der geneigten Oberfläche muss hier zur Berechnung der Wachstumsrate in Vertikalrichtung aus der Depositionsrate bzw. der Wachstumsrate in lokale Normalenrichtung der KPZ-Term mit berücksichtigt werden (vgl. Gleichung (3.37)). Hierfür gilt: $\sqrt{1 + (\nabla h)^2} = \sqrt{2} \forall x \in [1, 3]$ Aus Gründen der Kontinuität muss für die transportierten Materialmengen gelten

$$M_1^{(B)} = \int_1^2 R_1(x) dx = M^{(B)} = \int_1^2 \sqrt{2}R(x) dx = 1, \quad (\text{A.6})$$

$$M_1^{(C)} = \int_2^3 R_1(x) dx = M^{(C)} = \int_2^3 \sqrt{2}R(x) dx = 1. \quad (\text{A.7})$$

Die Winkel θ_1 und θ_2 ergeben sich aus der Geometrie in Abbildung A.1 und es gilt für $x = [2, 3]$:

$$R^{(C)}(y) = \int_{-\frac{\pi}{4} - \arctan \frac{y}{\sqrt{2}}}^{\frac{\pi}{4}} P(\theta) \frac{\cos(\theta + \frac{\pi}{4})}{\cos \theta} d\theta \quad (\text{A.8})$$

und somit

$$R^{(C)}(x) = \int_{-\frac{\pi}{4} - \arctan(x-2)}^{\frac{\pi}{4}} P(\theta) \frac{\cos(\theta + \frac{\pi}{4})}{\cos \theta} d\theta. \quad (\text{A.9})$$

$R^{(B)}(x)$ ergibt sich hieraus durch die Symmetrie. Der Gesamtverlauf von $R(x)$ ist in Abbildung A.1 qualitativ für $P(\theta) = \frac{1}{\pi}$ (rot) und $P(\theta) = \frac{\cos \theta}{2}$ (grün) gezeigt. Die Depositionsrate

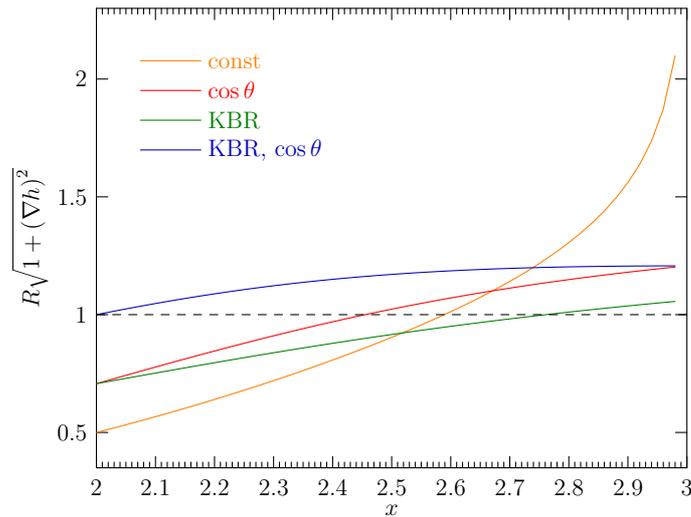


Abbildung A.2: Verlauf der Wachstumsrate im Bereich $x = [2, 3]$ für die verschiedenen Modellvarianten und Winkelverteilungen

aus Gleichung (A.9) erfüllt in beiden Fällen die Kontinuitätsbedingung in Gleichung (A.6). Dies lässt sich nicht nur für die beiden Beispiele, sondern auch für andere Richtungsverteilungen zeigen.

Abbildung A.2 zeigt noch einmal quantitativ den Verlauf der Wachstumsrate für die beiden exemplarisch behandelten Winkelverteilungen im Vergleich zum KBR-Modell (siehe Abschnitt 3.5.3). Es ist deutlich zu erkennen, dass beim KBR-Ansatz die Kontinuität des Materialflusses verletzt wird.

A. Beispiel zur Deposition mit Abschattung in 1+1 Dimensionen

B. Zusammenstellung der Simulationsergebnisse

B.1. Parameterstudien zur Richtungsverteilung des Depositionstroms

B.1. Parameterstudien zur Richtungsverteilung des Depositionsstroms

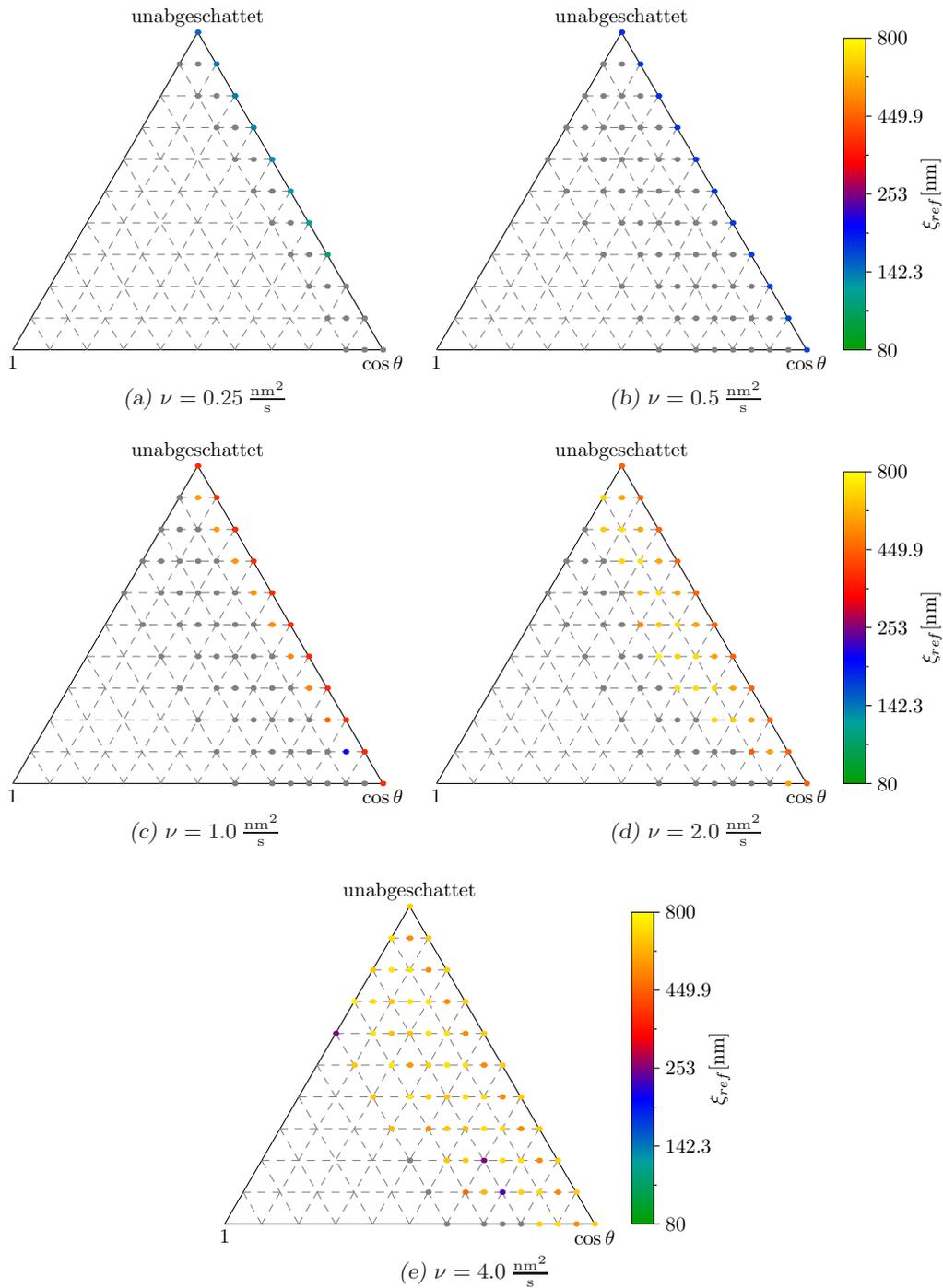


Abbildung B.2: Korrelationslängen bei der Referenzschichtdicke aus Simulationen mittels Standardmodell für verschiedene Winkelverteilungen mit ausschließlich ∇^2 -Materialtransport unter Variation der Transportintensität ν

B. Zusammenstellung der Simulationsergebnisse

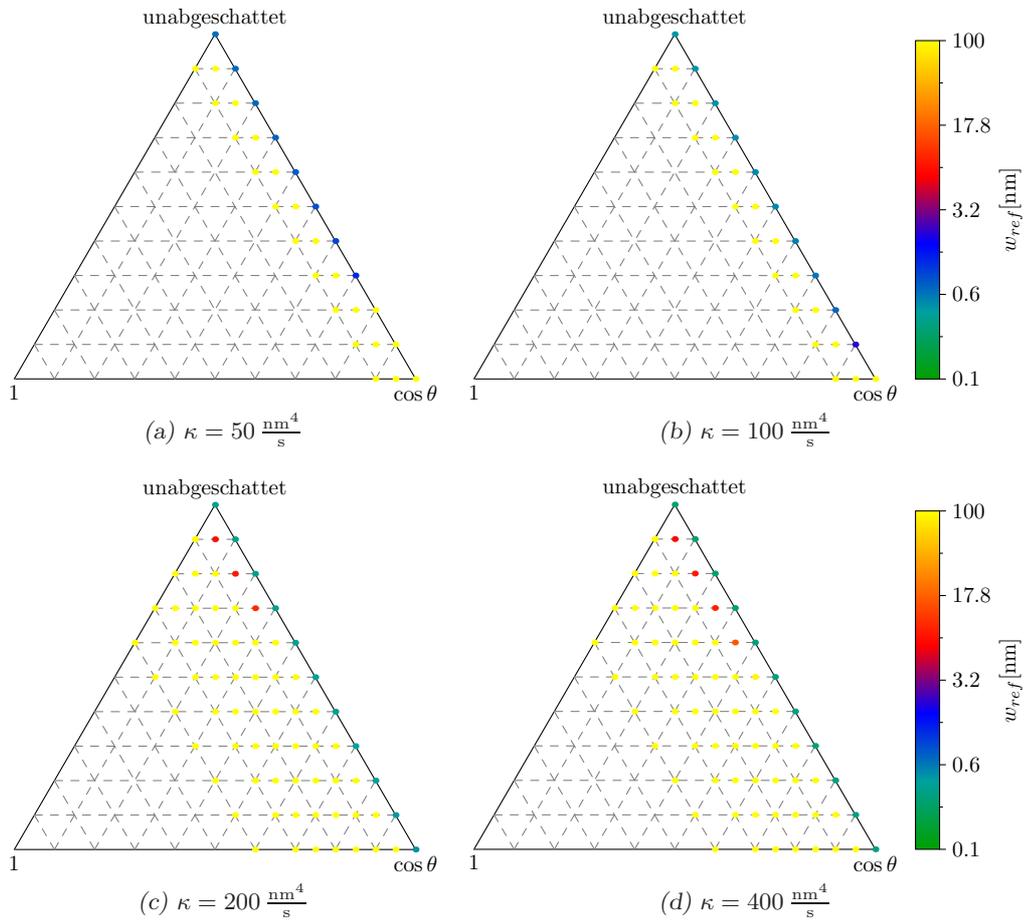


Abbildung B.3: Rauigkeiten bei der Referenzschichtdicke aus Simulationen mittels Standardmodell für verschiedene Winkelverteilungen mit ausschließlich ∇^4 -Materialtransport unter Variation der Transportintensität κ

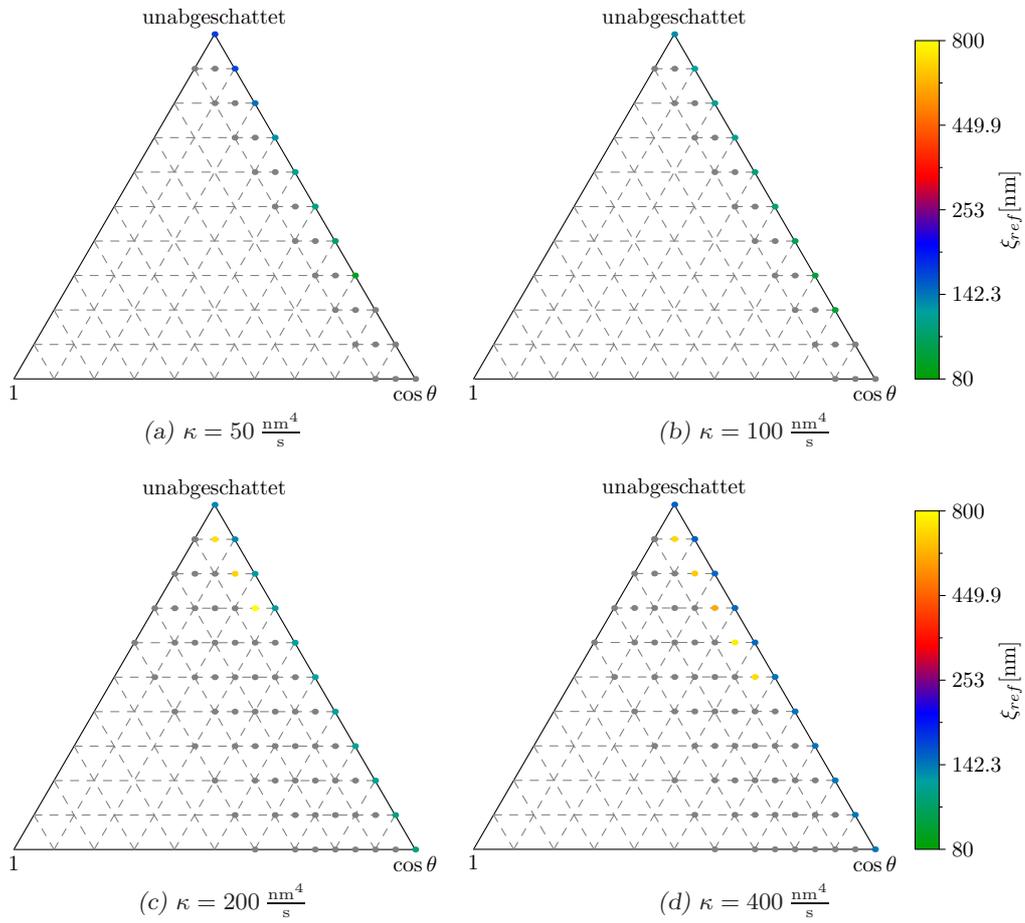


Abbildung B.4: Korrelationslängen bei der Referenzschichtdicke aus Simulationen mittels Standardmodell für verschiedene Winkelverteilungen mit ausschließlich ∇^4 -Materialtransport unter Variation der Transportintensität κ

B. Zusammenstellung der Simulationsergebnisse

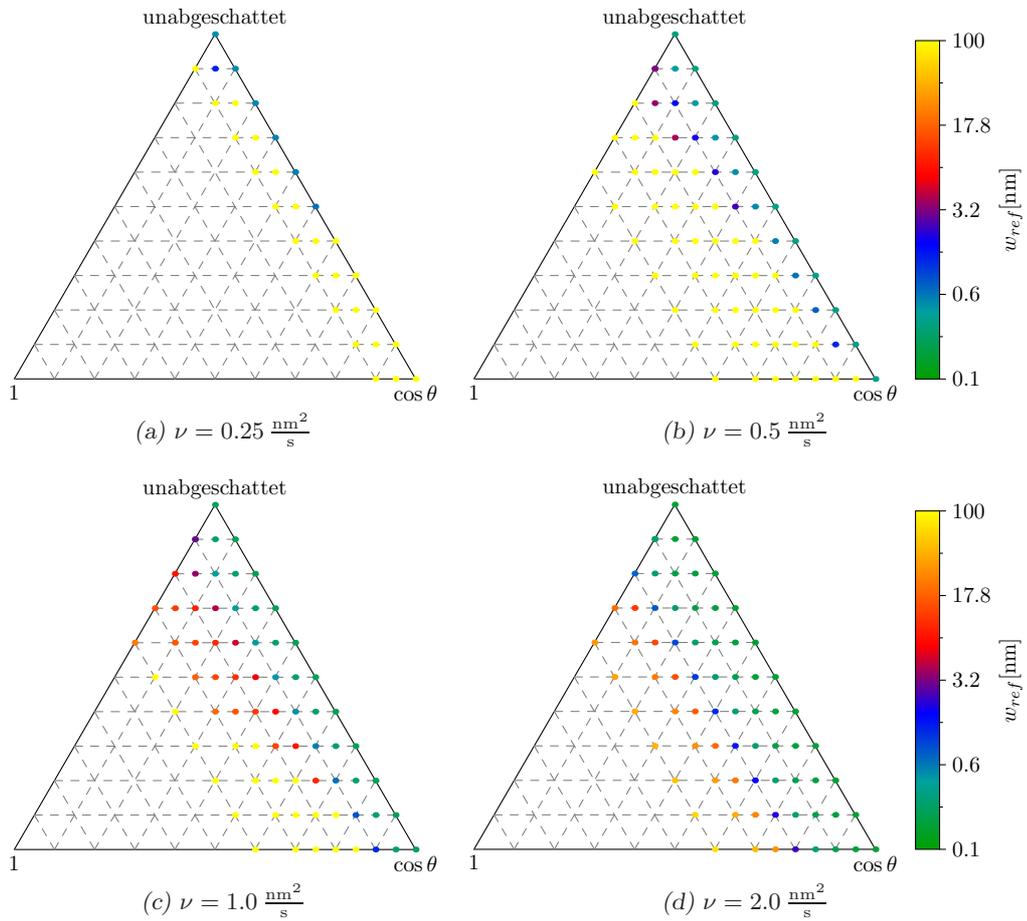


Abbildung B.5: Rauigkeiten bei der Referenzschichtdicke aus Simulationen mittels KBR-Modell für verschiedene Winkelverteilungen mit ausschließlich ∇^2 -Materialtransport unter Variation der Transportintensität ν

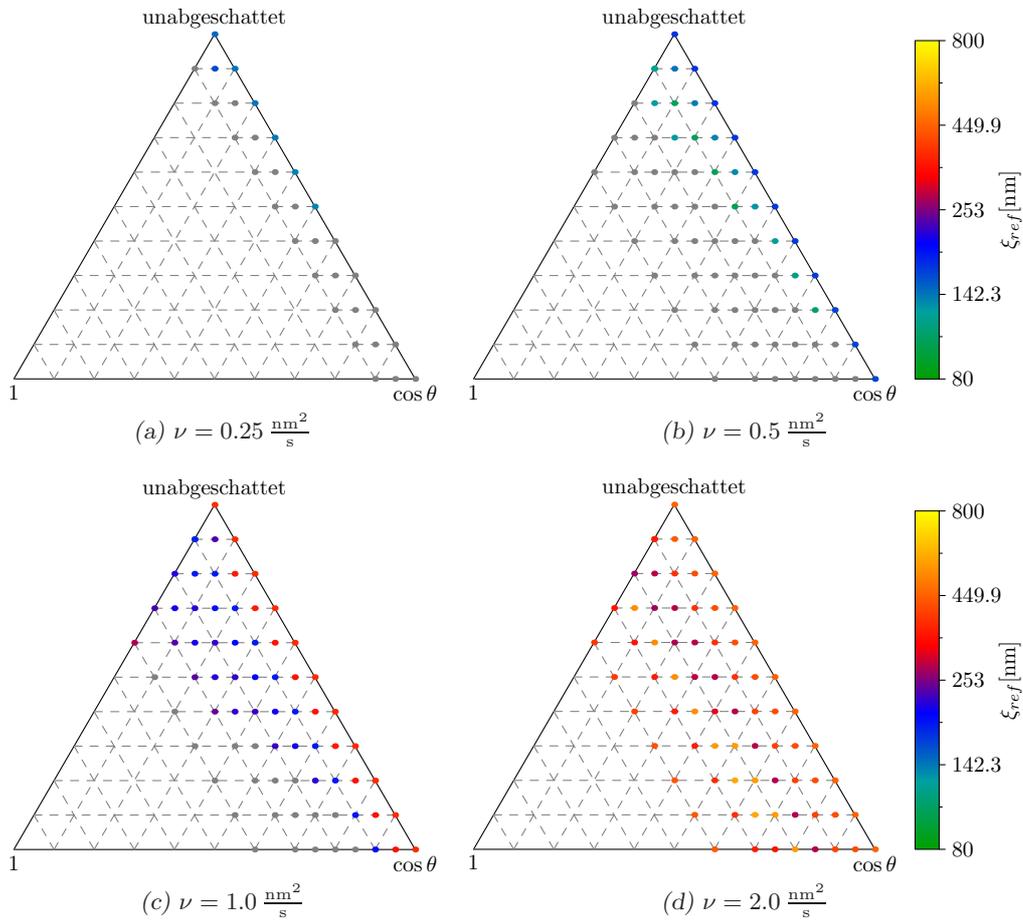


Abbildung B.6: Rauigkeiten bei der Referenzschichtdicke aus Simulationen mittels KBR-Modell für verschiedene Winkelverteilungen mit ausschließlich ∇^2 -Materialtransport unter Variation der Transportintensität ν

B. Zusammenstellung der Simulationsergebnisse

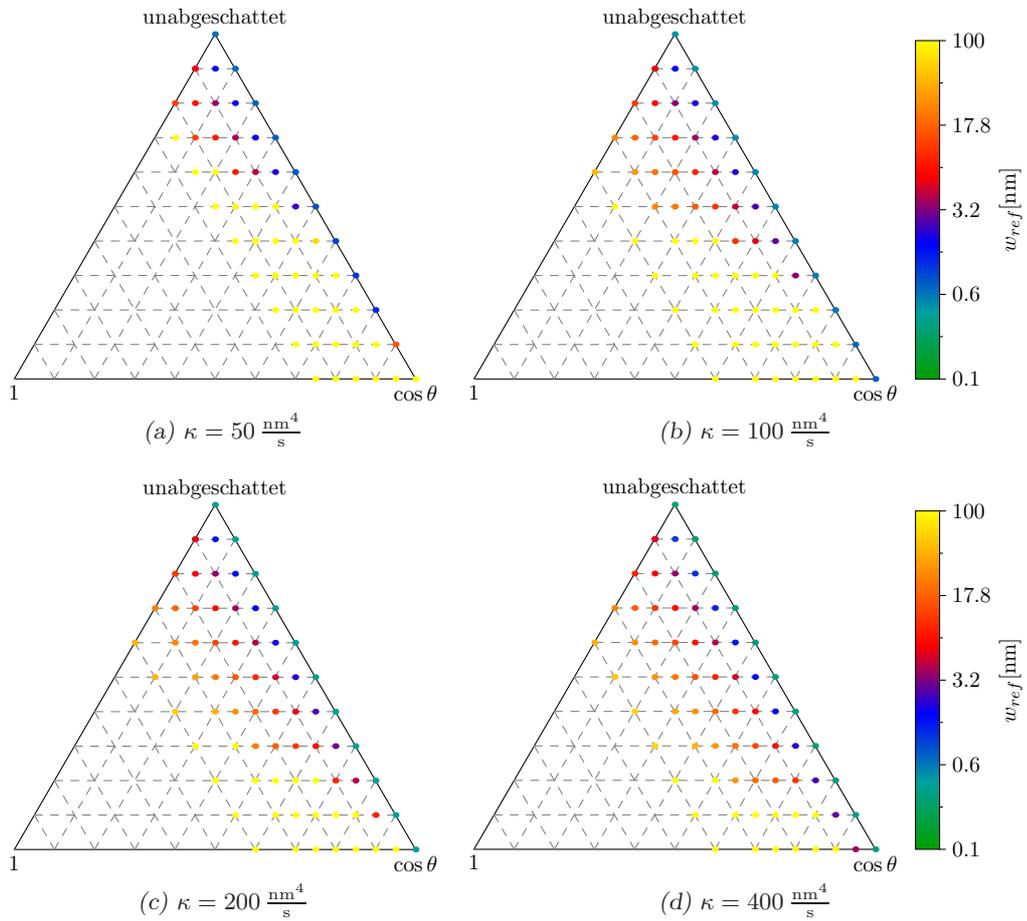


Abbildung B.7: Rauigkeiten bei der Referenzschichtdicke aus Simulationen mittels KBR-Modell für verschiedene Winkelverteilungen mit ausschließlich ∇^4 -Materialtransport unter Variation der Transportintensität κ

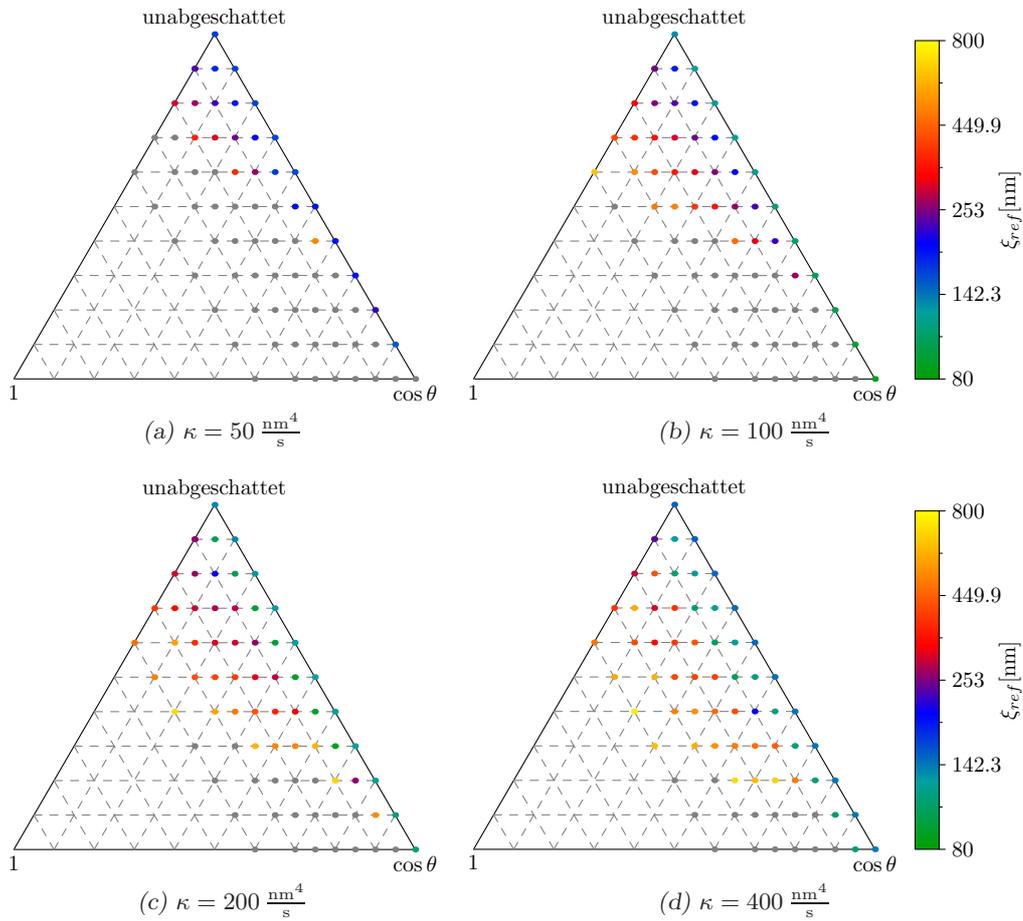


Abbildung B.8: Korrelationslängen bei der Referenzschichtdicke aus Simulationen mittels KBR-Modell für verschiedene Winkelverteilungen mit ausschließlich ∇^4 -Materialtransport unter Variation der Transportintensität κ

B. Zusammenstellung der Simulationsergebnisse

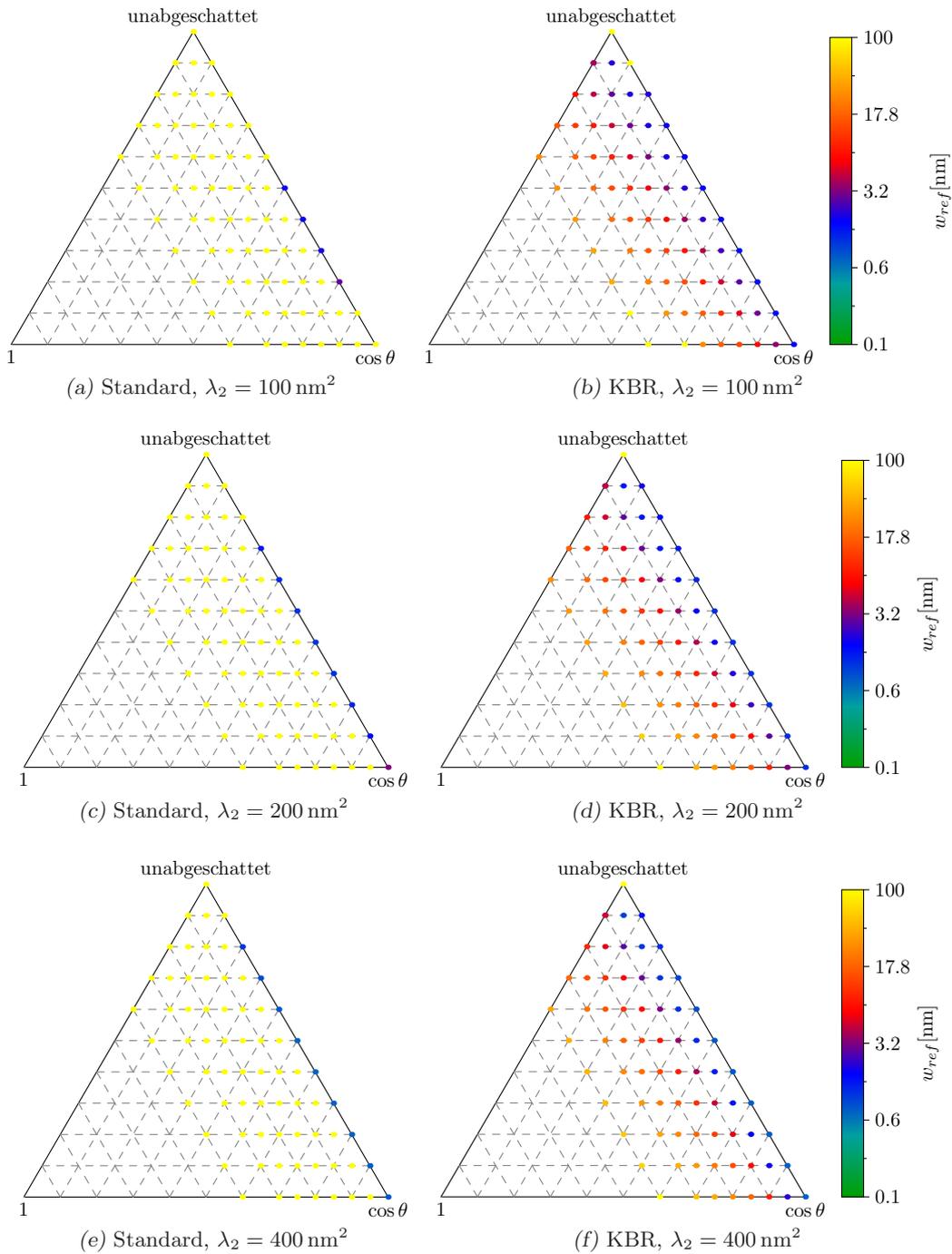


Abbildung B.9: Rauigkeiten bei der Referenzschichtdicke aus Simulationen für verschiedene Winkelverteilungen mit ausschließlich $\nabla^2\langle R \rangle$ -Materialtransport durch Diffusion aufgrund lokal unterschiedlicher Depositionsrates unter Variation der Transportintensität λ_2

B.1. Parameterstudien zur Richtungsverteilung des Depositionsstroms

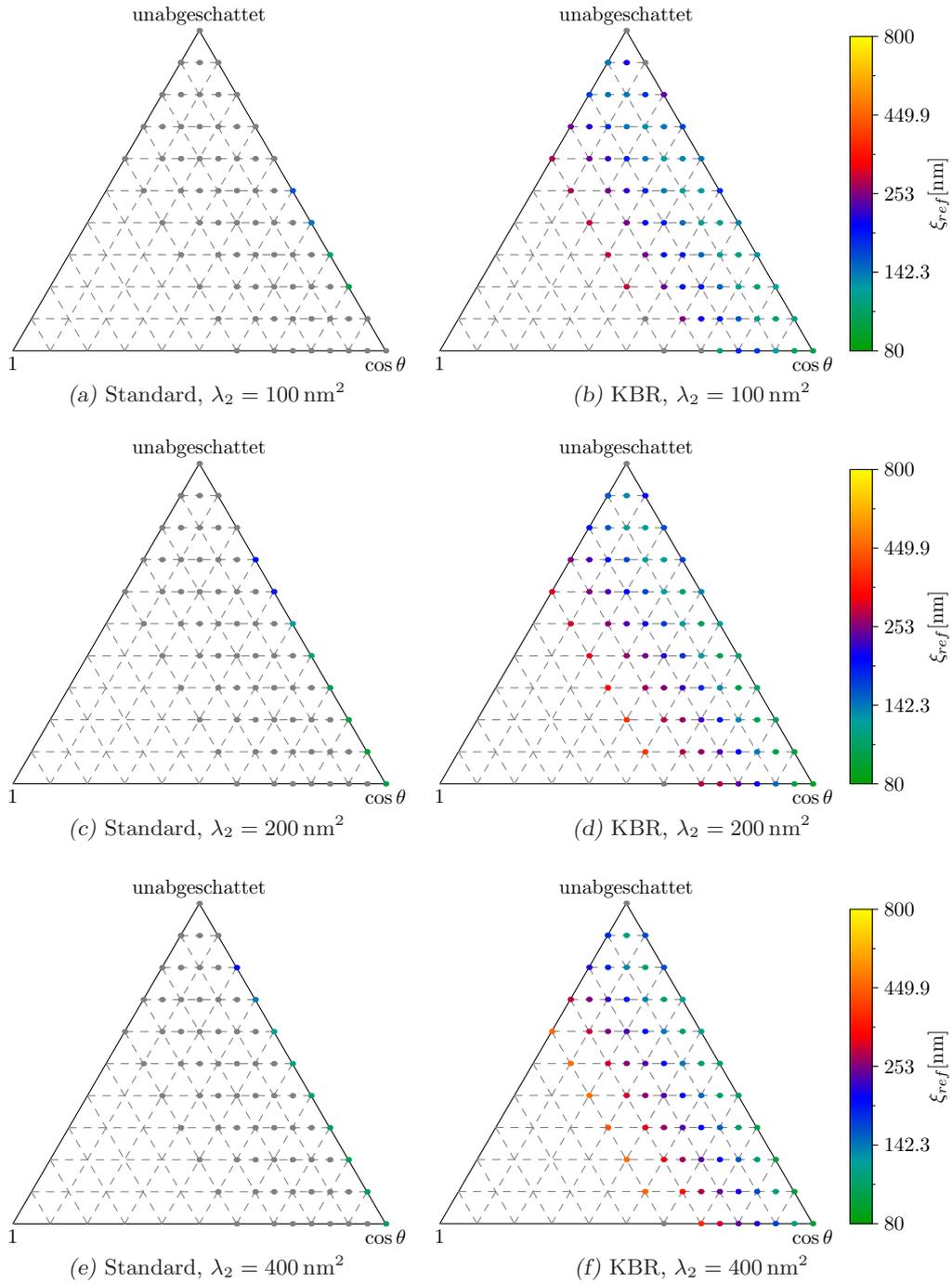


Abbildung B.10: Korrelationslängen bei der Referenzschichtdicke aus Simulationen für verschiedene Winkelverteilungen mit ausschließlich $\nabla^2\langle R \rangle$ -Materialtransport durch Diffusion aufgrund lokal unterschiedlicher Depositionsrates unter Variation der Transportintensität λ_2

B.2. Topographiedarstellungen zum Wachstum auf strukturierten Substraten

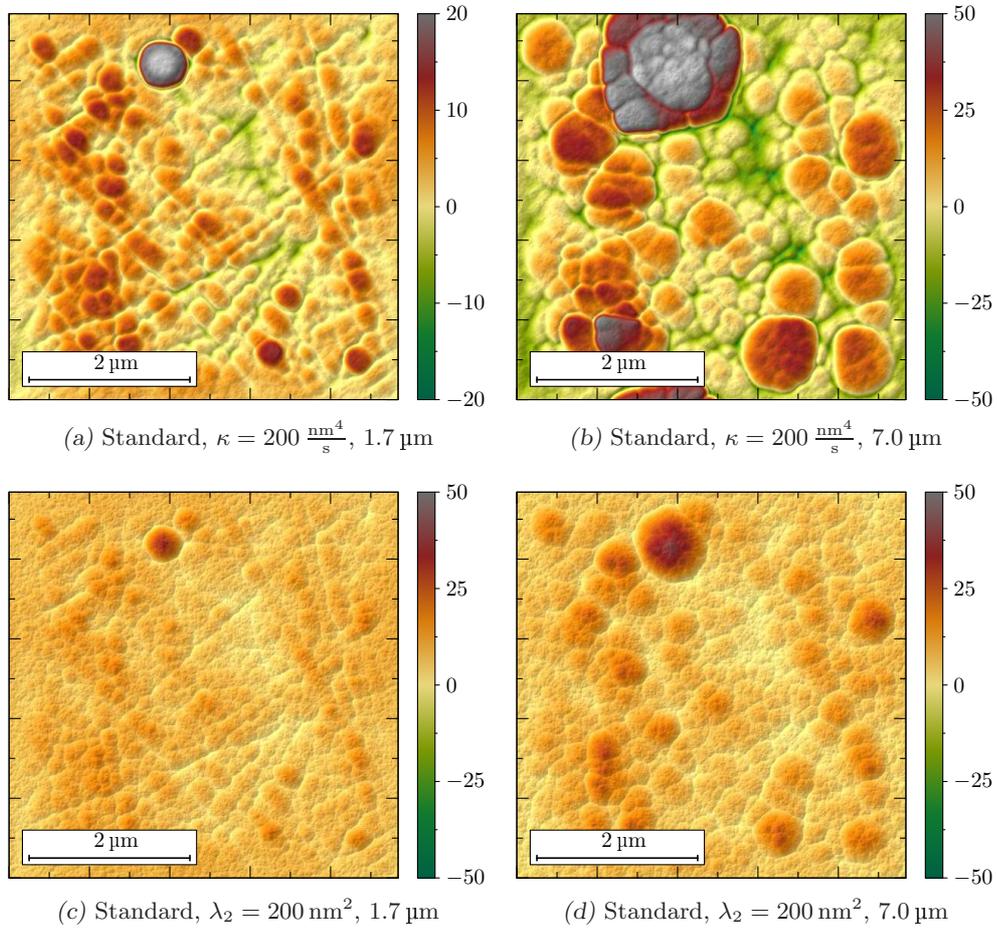


Abbildung B.11: Schattierte Topographiedarstellungen von Oberflächen aus Simulationen auf strukturierten Substraten bei $1.7 \mu\text{m}$ und $7.0 \mu\text{m}$ Schichtdicke, Standardmodell (Höhenwerte in nm)

B.2. Topographiedarstellungen zum Wachstum auf strukturierten Substraten

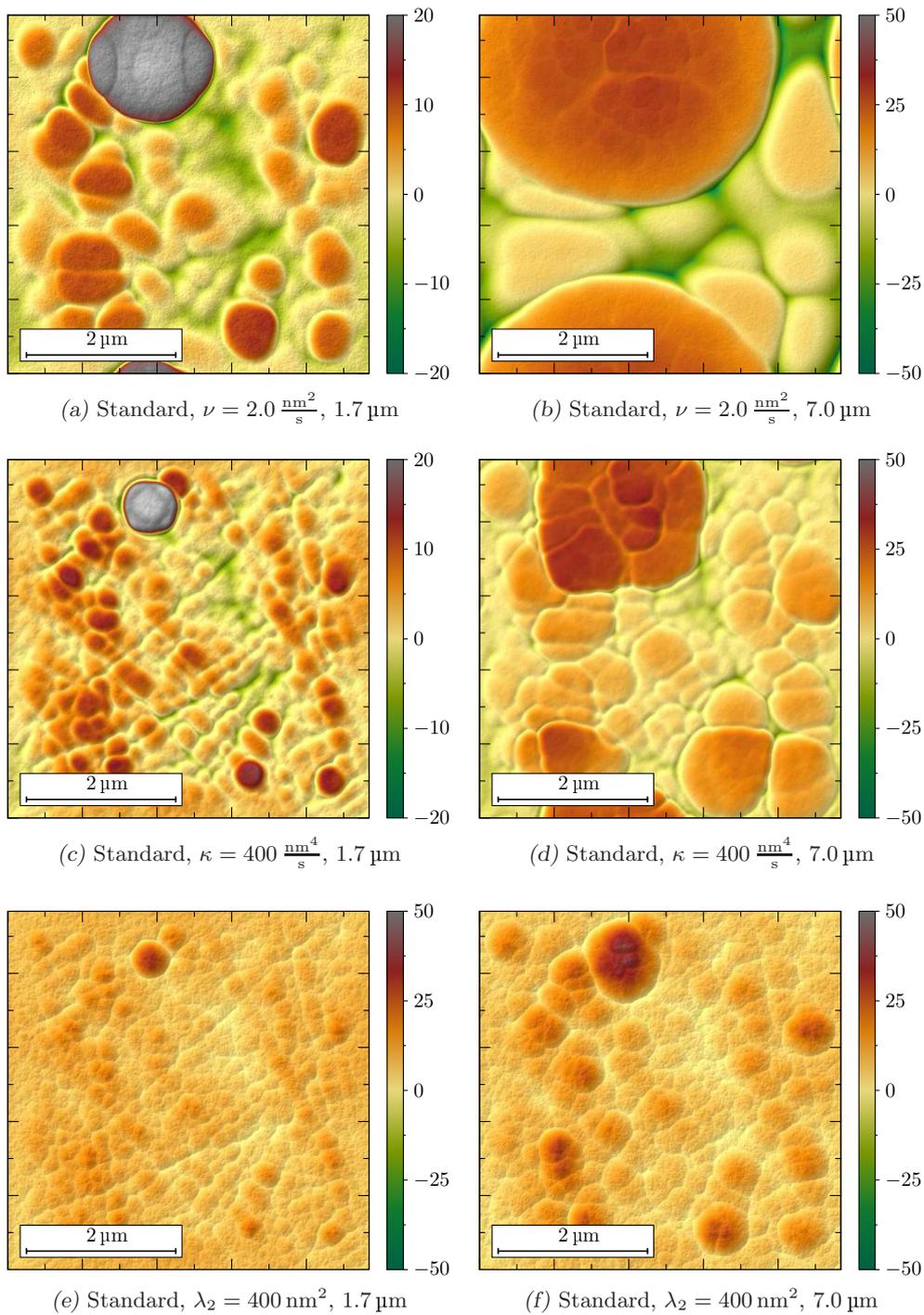


Abbildung B.12: Schattierte Topographiedarstellungen von Oberflächen aus Simulationen auf strukturierten Substraten bei $1.7 \mu\text{m}$ und $7.0 \mu\text{m}$ Schichtdicke, Standardmodell, doppelte Transportintensitäten (Höhenwerte in nm)

B. Zusammenstellung der Simulationsergebnisse

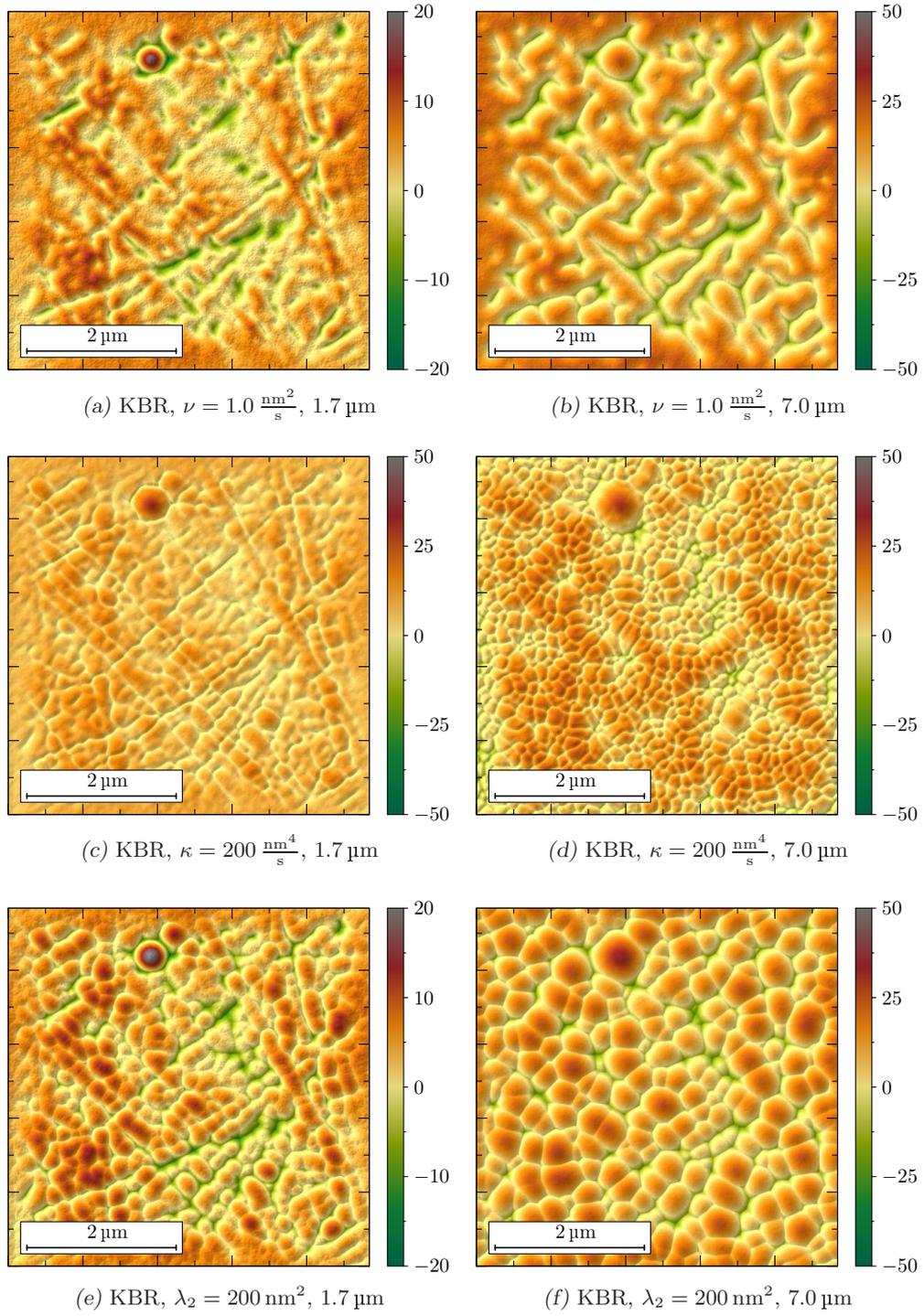


Abbildung B.13: Schattierte Topographiedarstellungen von Oberflächen aus Simulationen auf strukturierten Substraten bei $1.7 \mu\text{m}$ und $7.0 \mu\text{m}$ Schichtdicke, KBR-Modell (Höhenwerte in nm)

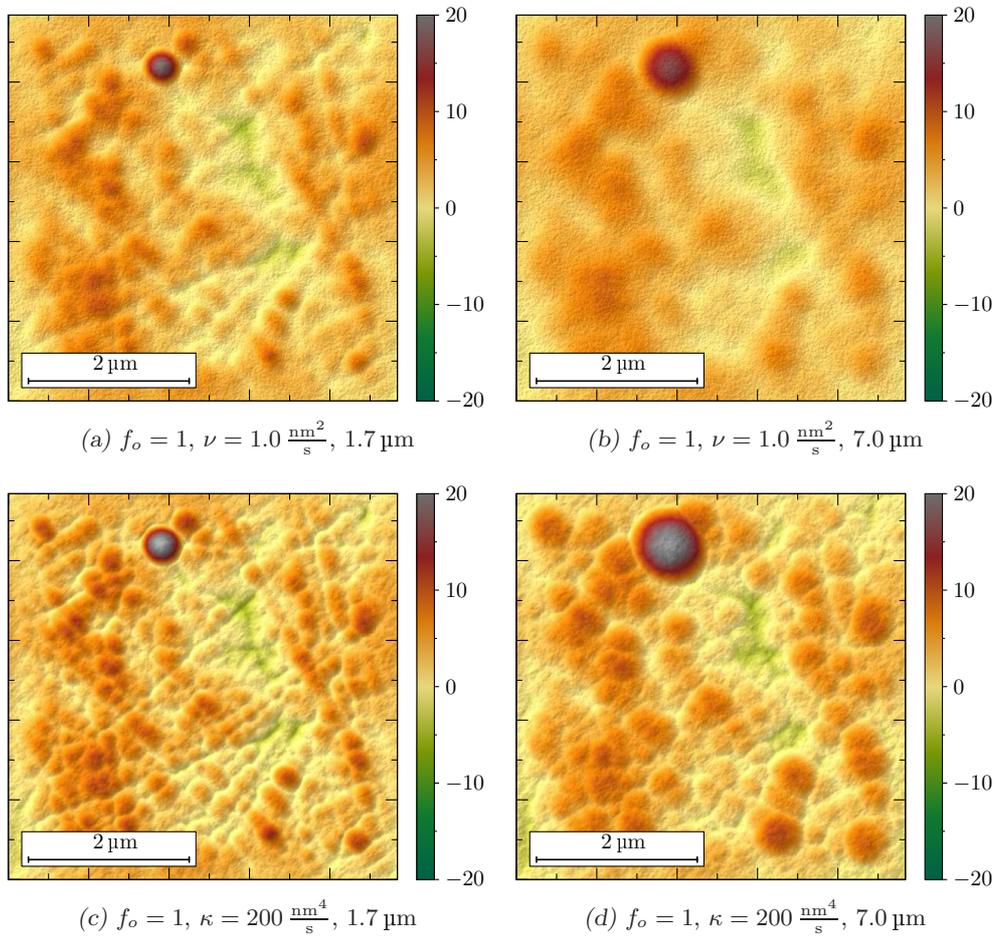


Abbildung B.14: Schattierte Topographiedarstellungen von Oberflächen aus Simulationen auf strukturierten Substraten bei $1.7 \mu\text{m}$ und $7.0 \mu\text{m}$ Schichtdicke, nur Transportterm, ohne Abschattung (Höhenwerte in nm)

B. Zusammenstellung der Simulationsergebnisse

Abkürzungsverzeichnis

Angegeben sind neben der Definition der Abkürzung jeweils die Seiten, auf denen die Abkürzung eingeführt wird

a-C:H	wasserstoffhaltiger amorpher Kohlenstoff	25
CVD	chemische Gasphasenabscheidung (engl.: chemical vapor deposition)	10
DLA	diffusionsbegrenzte Aggregation (engl.: diffusion limited aggregation)	12
DLC	diamantähnlicher Kohlenstoff (engl.: diamond like carbon)	25
EW	EDWARDS-WILKINSON-Modell oder der entsprechende Transportterm ($\nabla^2 h$)	13
KBR	Modell von KARUNASIRI, BRUINSMA und RUDNICK zur Modellierung des Schichtwachstums unter Abschattung	19
KPZ	KARDAR-PARISI-ZHANG-Gleichung oder deren nichtlinearer Term ($(\nabla h)^2$)	13
KS	KURAMOTO-SIVASHINSKY-Modell	15
MH	MULLINS-HERRING-Modell oder der entsprechende Transportterm ($\nabla^4 h$)	13
PECVD	plasmaunterstützte chemische Gasphasenabscheidung (engl.: plasma enhanced chemical vapor deposition)	10, 23
PVD	physikalische Gasphasenabscheidung (engl.: physical vapor deposition)	10
RD	statistische Deposition (engl.: random deposition)	12

Symbolverzeichnis

Neben der Erklärung des Symbols sind jeweils die Seiten angegeben, auf denen es eingeführt wird

$C(r)$	Höhendifferenz-Korrelationsfunktion der Oberflächenstruktur (engl.: height-height correlation function)	36
$H(k)$	FOURIER-Transformation des Oberflächenprofils einer Schicht	37
K_1	Kontrollfläche zur Modellierung der Deposition oberhalb des höchsten Punktes des Schichtprofils parallel zu x-y-Ebene	43
K_2	Kontrollfläche zur Modellierung der Deposition direkt oberhalb des Schichtprofils	43
L	Größe des in der Messung mittels Rasterkraftmikroskop oder in der Simulation betrachteten quadratischen Ausschnitts der Schichtoberfläche	21
N	Im Zusammenhang mit der Diskretisierung des Oberflächenprofils: Anzahl der Gitterpunkte je Koordinatenrichtung für die bei der Simulation verwendete räumliche Diskretisierung. Im Zusammenhang mit der Modellierung des Depositionsstroms: Teilchengröße der deponierten Moleküle	21, 42
N_x	angenommene einheitliche Teilchengröße des Depositionsstroms	47
$P(\phi, \theta)$	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Richtungsverteilung des Depositionsstroms	20
P_c	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion einer Winkelverteilung der Deposition, welche aus einer isotropen Teilchenbewegung resultiert	82
P_o	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion einer Winkelverteilung der Deposition, welche auf Einfallrichtungen nahe der Senkrechten beschränkt ist und somit nicht zu Abschattung führt	82
$P_t(\phi, \theta)$	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Teilchenrichtungen über der wachsenden Schicht	20
P_u	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion einer isotropen Winkelverteilung der Deposition	82
$R(\mathbf{x}, \{h\}, t)$	Depositionsrate unter Berücksichtigung von Abschattung	47
$R_1(\mathbf{x}, t)$	Materialflussrate durch die Kontrollfläche K_1	44
$R_2(\mathbf{x}, t)$	Materialflussrate durch die Kontrollfläche K_2 unter Vernachlässigung der Abschattung	46

$R_{\text{KBR}}(\mathbf{x}, \{h\}, t)$	Depositionsrates unter Berücksichtigung von Abschattung, aber unter Vernachlässigung der Oberflächenorientierung entsprechend dem KBR-Modell	48
$S(k)$	Aus der FOURIER-Transformation des Oberflächenprofils bestimmtes Leistungsdichtespektrum (engl.: power spectral density)	39
V	Teilchenvolumen bei der Deposition	42
Δt	Zeitschritt bei der Simulation	22
$\Omega(\mathbf{x}, \{h\})$	Exposition oder normierte Depositionsrates	47
Ω_A	spezifisches Volumen des Schichtmaterials	42
α	Rauhigkeitsexponent der Oberflächenstruktur	14, 36
β	Wachstumsexponent der Rauheitsentwicklung entsprechend $w \sim t^\beta$	14
ω	Richtungsvektor des Teilcheneinfalls bei der Deposition in Polarkoordinaten	43
$\eta(\mathbf{x}, t)$	stochastischer Term zur Beschreibung von räumlich und zeitlich unkorreliertem Depositionsrauschen	12, 22
$\frac{\lambda}{2}$	Vorfaktor des KARDAR-PARISI-ZHANG-Terms $((\nabla h)^2)$ im Wachstumsmodell	13
κ	Vorfaktor des MULLINS-HERRING-Terms $(\nabla^4 h)$ im Wachstumsmodell	14
λ_2	Vorfaktor des Transportterms zur Modellierung der durch lokale Unterschiede in der Depositionsrates induzierten Oberflächendiffusion	49
$\langle h \rangle$	räumlicher Mittelwert der Profildfunktion der Schichtoberfläche (entspricht der Schichtdicke)	12
\mathbf{x}	zweidimensionale Position auf der Schichtoberfläche	12
ν	Vorfaktor des EDWARDS-WILKINSON-Terms $(\nabla^2 h)$ im Wachstumsmodell	13
θ	Neigung des Teilcheneinfalls bei der Deposition (entspricht dem Winkel zwischen der Vertikalen und dem Einfallsvektor)	18
$\xi_{\parallel}(t)$	laterale Korrelationslänge der Schichtoberfläche	14, 36
ζ	Exponent des lateralen Wachstums entsprechend $\xi_{\parallel}(t) \sim t^\zeta$	14
d	Schrittweite der bei der Simulation verwendeten räumlichen Diskretisierung	21
$f(N, \phi, \theta)$	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Richtungs- und Größenverteilung der Deposition	44
f_c	Anteil $\cos\theta$ verteilter Deposition im verwendeten Dreikomponenten-Modell für die Richtungsverteilung der Deposition	82
f_o	Anteil nicht abgeschatteter Deposition im verwendeten Dreikomponenten-Modell für die Richtungsverteilung der Deposition	82
f_u	Anteil isotrop verteilter Deposition im verwendeten Dreikomponenten-Modell für die Richtungsverteilung der Deposition	82

$h(\mathbf{x}, t)$	zweidimensionale Profilkfunktion der Schichtoberfläche	12
$h^{(a)}(\mathbf{x})$	Topographie des Substrates als Anfangsbedingung des Schichtwachstums	20
$l(\mathbf{x}, \{h\}, \phi)$	durch das Oberflächenprofil gegebene Horizontform an der Stelle \mathbf{x}	46
n	Gesamtzahl der Abtastpunkte zur Horizontbestimmung	80
n_ϕ	Anzahl der Sektoren zur Horizontbestimmung	80
r	Zahl der Durchtrittseignisse durch K_1 pro Fläche pro Zeit	44
r_c	Grenzabstand außerhalb dessen Oberflächenpunkte zur Beschleunigung der Berechnung nicht mehr zur Horizontbestimmung berücksichtigt werden	51, 80
t	Zeit seit Beginn der Deposition	12
$w(t)$	Quadratische Rauigkeitsbreite der Schichtoberfläche (engl.: RMS roughness)	14, 35
z	dynamischer Exponent der Oberflächenstruktur, $z = \frac{1}{\zeta}$	14

Literaturverzeichnis

- [Ais71] AISENBERG, S. und R. CHABOT: *Ion-Beam Deposition of Thin Films of Diamondlike Carbon*. J. Appl. Phys., 42(7):2953, 1971. doi: 10.1063/1.1660654.
- [Ald59] ALDER, B. J. und T. E. WAINWRIGHT: *Studies in Molecular Dynamics. I. General Method*. J. Chem. Phys., 31(2):459, 1959. doi: 10.1063/1.1730376.
- [All87] ALLEN, M. P. und D. J. TILDESLEY: *Computer Simulation of Liquids*. Oxford University Press, 1987.
- [Ama92] AMAR, J. G. und F. FAMILY: *Universal scaling function and amplitude ratios in surface growth*. Phys. Rev. A, 45(6):R3373, 1992. doi: 10.1103/PhysRevA.45.R3373.
- [And83] ANDERSON, M. P., D. J. SROLOVITZ, G. S. GREEST und P. S. SAHNI: *Computer simulation of grain growth?I. Kinetics*. Acta Metallurgica, 32(5):783–791, 1983. doi: 10.1016/0001-6160(84)90151-2.
- [Ant96] ANTAL, T. und Z. RÁCZ: *Dynamic scaling of the width distribution in Edwards-Wilkinson type models of interface dynamics*. Phys. Rev. E, 54(3):2256–2260, 1996. doi: 10.1103/PhysRevE.54.2256.
- [Ark25] ARKEL, A. E. VAN und J. H. DE BOER: *Darstellung von reinem Titanium-, Zirkonium-, Hafnium- und Thoriummetall*. Z. Anorg. Allg. Chem., 148(1):345–350, 1925. doi: 10.1002/zaac.19251480133.
- [Asa72] ASARO, R. J. und W. A. TILLER: *Interface morphology development during stress corrosion cracking: Part I. Via surface diffusion*. Metall. Trans., 3(7):1789–1796, 1972. doi: 10.1007/BF02642562.
- [Aul56] AULT, N. N.: *Characteristics of Refractory Oxide Coatings Produced by Flame-Spraying*. J. Am. Ceram. Soc., 40(3):69–74, 1956. doi: 10.1111/j.1151-2916.1957.tb12578.x.
- [Bak87] BAK, P., C. TANG und K. WIESENFELD: *Self-Organized criticality: an Explanation of 1/f Noise*. Phys. Rev. Lett., 59(4), 1987. doi: 10.1103/PhysRevLett.59.381.
- [Bal89] BALES, G. S. und A. ZANGWILL: *Growth dynamics of sputter deposition*. Phys. Rev. Lett., 63(6):692, 1989. doi: 10.1103/PhysRevLett.63.692.
- [Bal90] BALES, G. S., R. BRUINSMA, E. A. EKLUND, R. P. U. KARUNASIRI, J. RUDNICK und A. ZANGWILL: *Growth and Erosion of Thin Solid Films*. Science, 249(4966):264–268, 1990. doi: 10.1126/science.249.4966.264.

- [Bal91] BALES, G. S. und A. ZANGWILL: *Macroscopic model for columnar growth of amorphous films by sputter deposition*. J. Vac. Sci. Technol. A, 9(1):145–149, 1991. doi: 10.1116/1.577116.
- [Bal08] BALONIAK, TIM und A. VON KEUDELL: *Anomalous Roughness Scaling of Well-Ordered Amorphous Fluorocarbon Films Deposited from an Octafluorocyclobutane Plasma*. Plasma Processes Polym., 5(7):653–660, 2008. doi: 10.1002/ppap.200800025.
- [Bar95] BARABÁSI, A.-L. und H. E. STANLEY: *Fractal Concepts in Surface Growth*. Cambridge University Press, 1995.
- [Bat97] BATTAILE, C. C., D. J. SROLOVITZ und J. E. BUTLER: *A kinetic Monte Carlo method for the atomic-scale simulation of chemical vapor deposition: Application to diamond*. J. Appl. Phys., 82(12):6293, 1997. doi: 10.1063/1.366532.
- [Bat02] BATTAILE, C. C. und D. J. SROLOVITZ: *Kinetic Monte Carlo Simulation of Chemical Vapor Deposition*. Annual Review of Materials Research, 32:297–319, 2002. doi: 10.1146/annurev.matsci.32.012102.110247.
- [Bee66] BEELER, J. R.: *Displacement Spikes in Cubic Metals. I. α -Iron, Copper, and Tungsten*. Phys. Rev., 150(2):470–487, 1966. doi: 10.1103/PhysRev.150.470.
- [Bel95] BELLAC, D. LE, G. A. NIKLASSON und C. G. GRANQVIST: *Scaling of Surface Roughness in Obliquely Sputtered Chromium Films*. Europhys. Lett., 32:155–159, 1995. doi: 10.1209/0295-5075/32/2/011.
- [Ben84] BENSIMON, D., B. SHRAIMAN und S. LIANG: *On the ballistic model of aggregation*. Phys. Lett. A, 102(5–6):238–240, 1984. doi: 10.1016/0375-9601(84)90701-1.
- [Ber88] BERGEN, J. R. und E. H. ADELSON: *Early vision and texture perception*. Nature, 333(6171):363–364, 1988. doi: 10.1038/333363a0.
- [Bic48] BICKLEY, W. G.: *Finite Difference Formulae for the Square Lattice*. Q. J. Mech. Appl. Math., 1(1):35–42, 1948. doi: 10.1093/qjmam/1.1.35.
- [Bie00] BIEDERMAN, H.: *Organic films prepared by polymer sputtering*. J. Vac. Sci. Technol. A, 18(4):1642–1648, 2000. doi: 10.1116/1.582399.
- [Bil84] BILKADI, Z.: *Bitumen - A History*. Saudi Aramco World, Seiten 2–9, 1984.
- [Bin82] BINNIG, G., H. ROHRER, CH. GERBER und E. WEIBEL: *Surface Studies by Scanning Tunneling Microscopy*. Phys. Rev. Lett., 49(1):57–61, 1982. doi: 10.1103/PhysRevLett.49.57.
- [Bin86] BINNIG, G., C. F. QUATE und CH. GERBER: *Atomic Force Microscope*. Phys. Rev. Lett., 56(9):930–933, 1986. doi: 10.1103/PhysRevLett.56.930.
- [Blo74] BLOCHER, J. M.: *Structure/property/process relationships in chemical vapor deposition CVD*. J. Vac. Sci. Technol., 11(4):680–686, 1974. doi: 10.1116/1.1312735.

- [Bog95] BOGAERTS, A., M. VAN STRAATEN und R. GIJBELS: *Monte Carlo simulation of an analytical glow discharge: motion of electrons, ions and fast neutrals in the cathode dark space*. Spectrochim. Acta B, 50(2):179–196, 1995. doi: 10.1016/0584-8547(94)00117-E.
- [Bon64] BONDI, A.: *van der Waals Volumes and Radii*. J. Phys. Chem., 68(3):441–451, 1964. doi: 10.1021/j100785a001.
- [Bon97] BONET, J. S. DE: *Multiresolution sampling procedure for analysis and synthesis of texture images*. In: *Proceedings of the 24th annual conference on Computer graphics and interactive techniques*, Seiten 361–368. ACM Press/Addison-Wesley Publishing Co., 1997. doi: 10.1145/258734.258882.
- [Bor07] BORRÁS, A., A. YANGUAS-GIL, A. BARRANCO, J. COTRINO und A. R. GONZÁLEZ-ELIPE: *Relationship between scaling behavior and porosity of plasma-deposited TiO₂ thin films*. Phys. Rev. B, 76(23):235303, 2007. doi: 10.1103/PhysRevB.76.235303.
- [Box58] BOX, G. E. P. und M. E. MULLER: *A note on the generation of random normal deviates*. Ann. Math. Stat., 29(2):610–611, 1958. doi: 10.1214/aoms/1177706645.
- [Boy88] BOYER, L. L. und G. S. PAWLEY: *Molecular dynamics of clusters of particles interacting with pairwise forces using a massively parallel computer*. J. Comput. Phys., 78(2):405–423, 1988. doi: 10.1016/0021-9991(88)90057-5.
- [Bra88] BRADLEY, R. M. und J. M. E. HARPER: *Theory of ripple topography induced by ion bombardment*. J. Vac. Sci. Technol. A, 6(4):2390–2395, 1988. doi: 10.1116/1.575561.
- [Bra01] BRAY, K. R. und G. N. PARSONS: *Surface transport kinetics in low-temperature silicon deposition determined from topography evolution*. Phys. Rev. B, 65(3):035311, 2001. doi: 10.1103/PhysRevB.65.035311.
- [Bre90] BRENNER, D. W.: *Empirical potential for hydrocarbons for use in simulating the chemical vapor deposition of diamond films*. Phys. Rev. B, 42(15):9458–9471, 1990. doi: 10.1103/PhysRevB.42.9458.
- [Bry77] BRYANT, W. A.: *The fundamentals of chemical vapour deposition*. J. Mater. Sci., 12(7):1285–1306, 1977. doi: 10.1007/BF00540843.
- [Bub83] BUBENZER, A., B. DISCHLER, G. BRANDT und P. KOIDL: *rf-plasma deposited amorphous hydrogenated hard carbon thin films: Preparation, properties, and applications*. J. Appl. Phys., 54(8):4590, 1983. doi: 10.1063/1.332613.
- [Buc07] BUCKWAR, E. und R. WINKLER: *Improved linear multi-step methods for stochastic ordinary differential equations*. J. Comput. Appl. Math., 205(2):912–922, 2007. doi: 10.1016/j.cam.2006.03.038.
- [Bui08] BUIJNSTERS, J. G. und L. VÁZQUEZ: *Surface morphology stabilization by chemical sputtering in carbon nitride film growth*. J. Phys. D: Appl. Phys., 41(1):012006, 2008. doi: 10.1088/0022-3727/41/1/012006.

- [Bur96] BURRAGE, K. und P. M. BURRAGE: *High strong order explicit Runge-Kutta methods for stochastic ordinary differential equations*. Appl. Numer. Math., 22(1-3):81-101, 1996. doi: 10.1016/S0168-9274(96)00027-X.
- [But63] BUTLER, H. S. und G. S. KINO: *Plasma Sheath Formation by Radio-Frequency Fields*. Phys. Fluids, 6(9):1346-1355, 1963. doi: 10.1063/1.1706905.
- [But96] BUTCHER, J. C.: *A history of Runge-Kutta methods*. Appl. Numer. Math., 20(3):247-260, 1996. doi: 10.1016/0168-9274(95)00108-5.
- [Cam02] CAMARGO, S. S., J. C. DAMASCENO und W. BEYER: *Inert gas diffusion in DLC-Si films*. Diamond Relat. Mater., 11(3-6):1091-1094, 2002. doi: 10.1016/S0925-9635(01)00603-3.
- [Car99] CARTER, G.: *The effects of surface ripples on sputtering erosion rates and secondary ion emission yields*. J. Appl. Phys., 85(1):455-459, 1999. doi: 10.1063/1.369408.
- [Cas05] CASIRAGHI, C., F. PIAZZA, A. C. FERRARI, D. GRAMBOLE und J. ROBERTSON: *Bonding in hydrogenated diamond-like carbon by Raman spectroscopy*. Diamond Relat. Mater., 14(3-7):1098-1102, 2005. doi: 10.1016/j.diamond.2004.10.030.
- [Cat74] CATMULL, E. E.: *A subdivision algorithm for computer display of curved surfaces*. Doktorarbeit, University of Utah, 1974.
- [Cha80] CHAPMAN, B.: *Glow Discharge Processes: Sputtering and Plasma Etching*. John Wiley & Sons, 1980.
- [Col94] COLLINS, G. W., S. A. LETTS, E. M. FEARON, R. L. MCEACHERN und T. P. BERNAT: *Surface Roughness Scaling of Plasma Polymer Films*. Phys. Rev. Lett., 73(5):708-711, 1994. doi: 10.1103/PhysRevLett.73.708.
- [Coo65] COOLEY, J. W. und J. W. TUKEY: *An algorithm for the machine calculation of complex Fourier series*. Math. Computat., 19:297-301, 1965. doi: 10.2307/2F2003354.
- [Cot99] COTE, D. R., S. V. NGUYEN, A. K. STAMPER, D. S. ARMBRUST, D. TOBBEN, G. Y. LEE und R. A. CONTI: *Plasma-assisted chemical vapor deposition of dielectric thin films for ULSI semiconductor circuits*. IBM J. Res. Dev., 43(1-2):5-38, 1999. doi: 10.1147/rd.431.0005.
- [Cue04] CUERNO, R. und L. VÁZQUEZ: *Universality issues in surface kinetic roughening of thin solid films*. In: KORUTCHEVA, E. und R. CUERNO (Herausgeber): *Advances in Condensed Matter and Statistical Physics*, Seiten 237-259. Nova Science Publishers, 2004.
- [Dal05] DALAKOS, G.T., J.P. PLAWSKY und P.D. PERSANS: *Topographic evolution during deposition of plasma-deposited hydrogenated silicon on glass*. Phys. Rev. B, 72(20):205305, 2005. doi: 10.1103/PhysRevB.72.205305.

- [Deu79] DEUTSCH, H. und S. KLAGGE: *Zur Glimmentladungspolymerisation des Benzols-Vergleich gemessener mit berechneten Wachstumsraten polymerer Filme aus der Ne-Benzol-Entladung*. Beiträge aus der Plasmaphysik, 19(1):49–57, 1979. doi: 10.1002/ctpp.19790190105.
- [Dor02] DOREMUS, R. H.: *Viscosity of silica*. J. Appl. Phys., 92(12):7619, 2002. doi: 10.1063/1.1515132.
- [Doy97] DOYLE, J. R.: *Chemical kinetics in low pressure acetylene radio frequency glow discharges*. J. Appl. Phys., 82(10):4763, 1997. doi: 10.1063/1.366333.
- [Dro99] DROTAR, J. T., T.-M. LU, G.-C. WANG und Y.-P. ZHAO: *Numerical analysis of the noisy Kuramoto-Sivashinsky equation in 2+1 dimensions*. Phys. Rev. E, 59(1):177–185, 1999. doi: 10.1103/PhysRevE.59.177.
- [Dro00a] DROTAR, J. T., Y.-P. ZHAO, T.-M. LU und G.-C. WANG: *Mechanisms for plasma and reactive ion etch-front roughening*. Phys. Rev. B, 61(4):3012–3021, 2000. doi: 10.1103/PhysRevB.61.3012.
- [Dro00b] DROTAR, J. T., Y.-P. ZHAO, T.-M. LU und G.-C. WANG: *Surface roughening in shadowing growth and etching in 2+1 dimensions*. Phys. Rev. B, 62(3):2118–2125, 2000. doi: 10.1103/PhysRevB.62.2118.
- [Dro01] DROTAR, J. T., Y.-P. ZHAO, T.-M. LU und G.-C. WANG: *Surface roughening in low-pressure chemical vapor deposition*. Phys. Rev. B, 64(12):125411, 2001. doi: 10.1103/PhysRevB.64.125411.
- [Dum02] DUMAY, B., E. FINOT, M. THEOBALD, O. LEGAIE, P. BACLET, J. DURAND und J. P. GOUDONNET: *Atomic force microscopy investigation of a-C:H films prepared by plasma enhanced chemical vapor deposition for inertial confinement fusion experiments*. J. Vac. Sci. Technol. A, 20(2):366–374, 2002. doi: 10.1116/1.1446444.
- [Dü03] DÜRR, A. C., F. SCHREIBER, K. A. RITLEY, V. KRUPPA, J. KRUG, H. DOSCH und B. STRUTH: *Rapid Roughening in Thin Film Growth of an Organic Semiconductor (Diindenoperylene)*. Phys. Rev. Lett., 90(1):016104, 2003. doi: 10.1103/PhysRevLett.90.016104.
- [Eck62] ECKERT, H. U.: *Diffusion Theory of the Electrodeless Ring Discharge*. J. Appl. Phys., 33(9):2780, 1962. doi: 10.1063/1.1702549.
- [Edw82] EDWARDS, S. F. und D. R. WILKINSON: *Spontaneous Interparticle Percolation*. Proc. Roy. Soc. Lon. A, 381(1780):33–51, 1982. doi: 10.1098/rspa.1982.0057.
- [Elu91] ELUÈRE, C. und D. RAUB: *Investigations on the gold coating technology of the great dish from Varna*, Kapitel 13–30. Picard, Paris, 1991.
- [Erd00] ERDEMIR, A., O. L. ERYILMAZ, I. B. NILUFER und G. R. FENSKE: *Effect of source gas chemistry on tribological performance of diamond-like carbon films*. Diamond Relat. Mater., 9(3–6):632–637, 2000. doi: 10.1016/S0925-9635(99)00361-1.

- [Fam85] FAMILY, F. und T. VICSEK: *Scaling of the active zone in the Eden process on percolation networks and the ballistic deposition model*. J. Phys. A: Math. Gen., 18:L75–L81, 1985. doi: 10.1088/0305-4470/18/2/005.
- [Fam86] FAMILY, F.: *Scaling of rough surfaces: effects of surface diffusion*. J. Phys. A: Math. Gen., 19(8):L441–L446, 1986. doi: 10.1088/0305-4470/19/8/006.
- [Fed01] FEDOSENKO, G., A. SCHWABEDISSEN, D. KORZEC und J. ENGEMANN: *Diamond-like carbon film deposition by a 13.56 MHz hollow cathode RF-RF system using different precursor gases*. Surf. Coat. Technol., 142–144:693–697, 2001. doi: 10.1016/S0257-8972(01)01104-5.
- [Fic91] FICHTHORN, K. A. und W. H. WEINBERG: *Theoretical foundations of dynamical Monte Carlo simulations*. J. Chem. Phys., 95(2):1090–1096, 1991. doi: 10.1063/1.461138.
- [Fou22] FOURIER, J. B. J.: *Théorie analytique de la chaleur*. Chez Firmin Didot, 1822.
- [Gal07] GALLEGO, R., M. CASTRO und J. M. LOPEZ: *Pseudospectral versus finite-difference schemes in the numerical integration of stochastic models of surface growth*. Phys. Rev. E, 76(5):051121, 2007. doi: 10.1103/PhysRevE.76.051121.
- [Gia01] GIACOMETTI, A. und M. ROSSI: *Pseudospectral approach to inverse problems in interface dynamics*. Phys. Rev. E, 63(4):046102, 2001. doi: 10.1103/PhysRevE.63.046102.
- [Gia02] GIADA, L., A. GIACOMETTI und M. ROSSI: *Pseudospectral method for the Kardar-Parisi-Zhang equation*. Phys. Rev. E, 65(3):036134, 2002. doi: 10.1103/PhysRevE.65.036134.
- [Goo60] GOODMAN, J.: *The formation of thin polymer films in the gas discharge*. J. Polym. Sci., 44(144):551–552, 1960. doi: 10.1002/pol.1960.1204414428.
- [Gor84] GORAL, C. M., K. E. TORRANCE, D. P. GREENBERG und B. BATTAILE: *Modeling the interaction of light between diffuse surfaces*. Computer Graphics, 18(3):213–222, 1984. doi: 10.1145/964965.808601.
- [Gri90] GRILL, A., B. S. MEYERSON und V. V. PATEL: *Diamondlike carbon films by rf plasma-assisted chemical vapor deposition from acetylene*. IBM J. Res. Dev., 34(6):849, 1990. doi: 10.1147/rd.346.0849.
- [Gri93] GRINFELD, M. A.: *The Stress Driven Instability in Elastic Crystals: Mathematical Models and Physical Manifestations*. J. Nonlinear Sci., 3(1):35–83, 1993. doi: 10.1007/BF02429859.
- [Hab92] HABERLAND, H., M. KARRAIS, M. MALL und Y. THURNER: *Thin films from energetic cluster impact: A feasibility study*. J. Vac. Sci. Technol. A, 10(5):3266–3271, 1992. doi: 10.1116/1.577853.

- [Hai07] HAINSWORTH, S. V. und N. J. UHURE: *Diamond like carbon coatings for tribology: production techniques, characterisation methods and applications*. International Materials Reviews, 52(3):153–174, 2007. doi: 10.1179/174328007X160272.
- [Hal60] HALTON, J. H.: *On the efficiency of certain quasi-random sequences of points in evaluating multi-dimensional integrals*. Numerische Mathematik, 2(1):84–90, 1960. doi: 10.1007/BF01386213.
- [Har97] HARRIS, S. J., A. M. WEINER und W.-J. MENG: *Tribology of metal-containing diamond-like carbon coatings*. Wear, 211(2):208–217, 1997. doi: 10.1016/S0043-1648(97)00107-5.
- [Har06] HARLIN, P., P. CARLSSON, U. BEXELL und M. OLSSON: *Influence of surface roughness of PVD coatings on tribological performance in sliding contacts*. Surf. Coat. Technol., 201(7):4253–4259, 2006. doi: 10.1016/j.surfcoat.2006.08.103.
- [Has70] HASTINGS, W. K.: *Monte Carlo Sampling Methods Using Markov Chains and Their Applications*. Biometrika, 57(1):97–109, 1970. doi: 10.1093/biomet/57.1.97.
- [Haw07] HAWKEYE, M. M. und M. J. BRETT: *Glancing angle deposition: Fabrication, properties, and applications of micro- and nanostructured thin films*. J. Vac. Sci. Technol. A, 25(5):1317–1335, 2007. doi: 10.1116/1.2764082.
- [He92] HE, Y.-L., H.-N. YANG, T.-M. LU und G.-C. WANG: *Measurements of dynamic scaling from epitaxial growth front: Fe film on Fe(001)*. Phys. Rev. Lett., 69(26):3770–3773, 1992. doi: 10.1103/PhysRevLett.69.3770.
- [Hei58] HEISEN, A.: *Über die Bildung dünner Kohleschichten in einer in Benzolatmosphäre brennenden Glimmentladung*. Ann. Phys., 457(1–2):23–35, 1958. doi: 10.1002/andp.19584570104.
- [Hei84] HEIDEMAN, M., D. JOHNSON und C. BURRUS: *Gauss and the history of the fast fourier transform*. IEEE Acoust. Speech Signal Process. Mag., 1(4):14–21, 1984. doi: 10.1109/MASSP.1984.1162257.
- [Her50] HERRING, C.: *Effect of Change of Scale on Sintering Phenomena*. J. Appl. Phys., 21(4):301–303, 1950. doi: 10.1063/1.1699658.
- [Her92] HERRASTI, P., P. OCÓN, L. VÁZQUEZ, R. C. SALVAREZZA, J. M. VARA und A. J. ARVIA: *Scanning-tunneling-microscopy study on the growth mode of vapor-deposited gold films*. Phys. Rev. A, 45(10):7440–7447, 1992. doi: 10.1103/PhysRevA.45.7440.
- [Hop92] HOPWOOD, J.: *Review of inductively coupled plasmas for plasma processing*. Plasma Sources Sci. Technol., 1(2):109–116, 1992. doi: 10.1088/0963-0252/1/2/006.
- [Hop99] HOPF, C., K. LETOURNEUR, W. JACOB, T. SCHWARZ-SELINGER und A. VON KEUDELL: *Surface loss probabilities of the dominant neutral precursors for film*

- growth in methane and acetylene discharges.* Appl. Phys. Lett., 74(25):3800, 1999. doi: 10.1063/1.124184.
- [Hop00] HOPF, C., T. SCHWARZ-SELINGER, W. JACOB und A. VON KEUDELL: *Surface loss probabilities of hydrocarbon radicals on amorphous hydrogenated carbon film surfaces.* J. Appl. Phys., 87(6):2719, 2000. doi: 10.1063/1.372246.
- [Isl91] ISLAMRAJA, M. M., M. A. CAPPELLI, J. P. MCVITTIE und K. C. SARASWAT: *A 3-dimensional model for low-pressure chemical-vapor-deposition step coverage in trenches and circular vias.* J. Appl. Phys., 70(11):7137, 1991. doi: 10.1063/1.349797.
- [Jan85] JANSEN, F., M. MACHONKIN, S. KAPLAN und S. HARK: *The effects of hydrogenation on the properties of ion beam sputter deposited amorphous carbon.* J. Vac. Sci. Technol. A, 3(3):605, 1985. doi: 10.1116/1.572960.
- [Jia89] JIANG, X., J. W. ZOU, K. REICHELDT und P. GRÜNBERG: *The study of mechanical properties of a-C:H films by Brillouin scattering and ultral load indentation.* J. Appl. Phys., 66(10):4729, 1989. doi: 10.1063/1.343833.
- [Joa87] JOAG, P. S., A. V. LIMAYE und R. E. AMRITKAR: *Scaling and shadowing effects in ballistic aggregation.* Phys. Rev. A, 36(7):3395–3398, 1987. doi: 10.1103/PhysRevA.36.3395.
- [Jon53] JONES, F. L.: *Electrical discharges.* Rep. Prog. Phys., 16(1):216–265, 1953. doi: 10.1088/0034-4885/16/1/306.
- [Jul84] JULESZ, B.: *A brief outline of the texton theory of human vision.* Trends in Neurosciences, 7(2):41–45, 1984. doi: 10.1016/S0166-2236(84)80275-1.
- [Kah53] KAHN, H. und A. MARSHALL: *Methods of Reducing Sample Size in Monte Carlo Computations.* J. Oper. Res. Soc. Am., 1(5):263–278, 1953. doi: 10.1287/opre.1.5.263.
- [Kah92] KAHANDA, G. L. M. K. S., X.-Q. ZOU, R. FARRELL und P.-Z. WONG: *Columnar growth and kinetic roughening in electrochemical deposition.* Phys. Rev. Lett., 68(25):3741–3744, 1992. doi: 10.1103/PhysRevLett.68.3741.
- [Kan88] KANAZAWA, S., M. KOGOMA, T. MORIWAKI und S. OKAZAKI: *Stable glow plasma at atmospheric pressure.* J. Phys. D: Appl. Phys., 21(5):838–840, 1988. doi: 10.1088/0022-3727/21/5/028.
- [Kap03] KAPLAN, S. und A. DILKS: *The structure of plasma-polymerized toluene: A solid-state ¹³C-NMR study of isotopically labeled polymers.* J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem., 21(6):1819–1829, 2003. doi: 10.1002/pol.1983.170210622.
- [Kar86] KARDAR, M., G. PARISI und Y.-C. ZHANG: *Dynamic Scaling of Growing Interfaces.* Phys. Rev. Lett., 56(9):889–892, 1986. doi: 10.1103/PhysRevLett.56.889.

- [Kar89] KARUNASIRI, R. P. U., R. BRUINSMA und J. RUDNICK: *Thin-Film Growth and the Shadow Instability*. Phys. Rev. Lett., 62(7):788–791, 1989. doi: 10.1103/PhysRevLett.62.788.
- [Kar96] KARDAR, M.: *Dynamic Scaling Phenomena in Growth Processes*. Physica B, 221(1):60–64, 1996. doi: 10.1016/0921-4526(95)00905-1.
- [Kar02] KARABACAK, T., Y.-P. ZHAO, G.-C. WANG und T.-M. LU: *Growth front roughening in silicon nitride films by plasma-enhanced chemical vapor deposition*. Phys. Rev. B, 66(7):075329, 2002. doi: 10.1103/PhysRevB.66.075329.
- [Kar09] KARABACAK, T., H. GUCLU und M. YUKSEL: *Network behavior in thin film growth dynamics*. Phys. Rev. B, 79(19):195418, 2009. doi: 10.1103/PhysRevB.79.195418.
- [Kel93] KELLER, D. J. und F. S. FRANKE: *Envelope reconstruction of probe microscope images*. Surf. Sci., 294(3):409–419, 1993. doi: 10.1016/0039-6028(93)90126-5.
- [Ker86] KERTESZ, J. und T. VICSEK: *Diffusion-limited aggregation and regular patterns: fluctuations versus anisotropy*. J. Phys. A: Math. Gen., 19(5):L257–L262, 1986. doi: 10.1088/0305-4470/19/5/008.
- [Kes85] KESSLER, D. A., J. KOPLIK und H. LEVINE: *Geometrical models of interface evolution. III. Theory of dendritic growth*. Phys. Rev. A, 31(3):1712–1717, 1985. doi: 10.1103/PhysRevA.31.1712.
- [Kim03] KIM, J. und C. LEE: *Dependence of the Physical Properties DLC Films by PECVD on the Ar Gas Addition*. J. Korean Phys. Soc., 42(3):956–960, 2003.
- [Kli89] KLINE, L. E., W. D. PARTLOW und W. E. BIES: *Electron and chemical kinetics in methane rf glow-discharge deposition plasmas*. J. Appl. Phys., 65(1):70, 1989. doi: 10.1063/1.343378.
- [Kni91] KNIGHT, J. C., T. F. PAGE und H. W. CHANDLER: *Thermal instability of the microstructure and surface mechanical properties of hydrogenated amorphous carbon films*. Surf. Coat. Technol., 49(1–3):519–529, 1991. doi: 10.1016/0257-8972(91)90111-9.
- [Koe70] KOENIG, H. R. und L. I. MAISSEL: *Application of RF discharges to sputtering*. IBM J. Res. Dev., 14(2):168–171, 1970. doi: 10.1147/rd.142.0168.
- [Koi89] KOIDL, P., C. WILD, B. DISCHLER, J. WAGNER und M. RAMSTEINER: *Plasma deposition, properties and structure of amorphous hydrogenated carbon films*. Mater. Sci. Forum, 52–53:41–70, 1989. doi: 10.4028/www.scientific.net/MSF.52-53.41.
- [Kou04] KOUTSOSPYROS, A., S.-M. YIN, C. CHRISTODOULATOS und K. BECKER: *Destruction of hydrocarbons in non-thermal, ambient-pressure, capillary discharge plasmas*. Int. J. Mass Spectrom., 233(1–3):305–315, 2004. doi: 10.1016/j.ijms.2003.12.033.

- [Kru89] KRUG, J. und PAUL MEAKIN: *Microstructure and surface scaling in ballistic deposition at oblique incidence*. Phys. Rev. A, 40(4):2064–2077, 1989. doi: 10.1103/PhysRevA.40.2064.
- [Kur76] KURAMOTO, Y. und T. TSUZUKI: *Persistent Propagation of Concentration Waves in Dissipative Media Far from Thermal Equilibrium*. Prog. Theor. Phys., 55(2):356–369, 1976. doi: 10.1143/PTP.55.356.
- [Kus85] KUSHNER, M. J.: *Distribution of ion energies incident on electrodes in capacitively coupled rf discharges*. J. Appl. Phys., 58(11):4024, 1985. doi: 10.1063/1.335580.
- [Kö51] KÖNIG, H. und G. HELWIG: *Über dünne aus Kohlenwasserstoffen durch Elektronen- oder Ionenbeschuß gebildete Schichten*. Z. Phys. A, 129(5):491–503, 1951. doi: 10.1007/BF01330048.
- [Lee94] LEE, K.-R., Y.-J. BAIK, K. Y. EUN und S. HAN: *Precursor gas effect on the structure and properties of diamond-like carbon films*. Diamond Relat. Mater., 3(10):1230–1234, 1994. doi: 10.1016/0925-9635(94)90126-0.
- [Lee08] LEE, I. J., S. YUN, S.-M. LEE und J.-Y. KIM: *Growth mechanisms of vapor-born polymer films*. Phys. Rev. B, 78(11):115427, 2008. doi: 10.1103/PhysRevB.78.115427.
- [Let81] LETTS, S. A., D. W. MYERS und L. A. WITT: *Ultrasmooth plasma polymerized coatings for laser fusion targets*. J. Vac. Sci. Technol., 19(3):739, 1981. doi: 10.1116/1.571142.
- [Lib05] LIBBRECHT, K. G.: *The physics of snow crystals*. Rep. Prog. Phys., 68:855–895, 2005. doi: 10.1088/0034-4885/68/4/R03.
- [Lif90] LIFSHITZ, Y., J. W. RABALAIS, S. R. KASI und W. ECKSTEIN: *Subplantation model for film growth from hyperthermal species*. Phys. Rev. B, 41(15):10468, 1990. doi: 10.1103/PhysRevB.41.10468.
- [Loc91] LOCHER, R., C. WILD und P. KOIDL: *Direct ion-beam deposition of amorphous hydrogenated carbon films*. Surf. Coat. Technol., 47(1–3):426–432, 1991. doi: 10.1016/0257-8972(91)90308-J.
- [Log96] LOGOTHETIDIS, S.: *Hydrogen-free amorphous carbon films approaching diamond prepared by magnetron sputtering*. Appl. Phys. Lett., 69(2):158, 1996. doi: 10.1063/1.116906.
- [Maj96] MAJANIEMI, S., T. ALA-NISSILA und J. KRUG: *Kinetic roughening of surfaces: Derivation, solution, and application of linear growth equations*. Phys. Rev. B, 53(12):8071–8082, 1996. doi: 10.1103/PhysRevB.53.8071.
- [Man63] MANDELBROT, B.: *The variation of certain speculative prices*. J. Bus. Univ. Chicago, 36(4):394–419, 1963. doi: 10.1086/294632.

- [Man65] MANDELBROT, B.: *Self-similar error clusters in communications systems and the concept of conditional stationarity*. IEEE Trans. Commun. Technol., 13(1):71–90, 1965. doi: 10.1109/TCOM.1965.1089090.
- [Man67] MANDELBROT, B.: *How long is the coast of Britain? Statistical self-similarity and fractional dimension*. Science, 156(3775):636–638, 1967. doi: 10.1126/science.156.3775.636.
- [Man91] MANENSCHIJN, A. und W. J. GOEDHEER: *Angular ion and neutral energy distribution in a collisional rf sheath*. J. Appl. Phys., 69(5):2923, 1991. doi: 10.1063/1.348602.
- [Mar95] MARKIEWICZ, P. und M. C. GOH: *Atomic force microscope tip deconvolution using calibration arrays*. Rev. Sci. Instrum., 66(5):3186–3190, 1995. doi: 10.1063/1.1145549.
- [Mar00] MARSAGLI, G. und W. W. TSANG: *The Ziggurat Method for Generating Random Variables*. J. Stat. Softw., 5(8):1–7, 2000.
- [Mat84] MATSUSHITA, M., M. SANO, Y. HAYAKAWA, H. HONJO und Y. SAWADA: *Fractal Structures of Zinc Metal Leaves Grown by Electrodeposition*. Phys. Rev. Lett., 53(3):286–289, 1984. doi: 10.1103/PhysRevLett.53.286.
- [Mat98] MATSUMOTO, M. und T. NISHIMURA: *Mersenne twister: a 623-dimensionally equidistributed uniform pseudo-random number generator*. ACM Trans. Model. Comput. Simul., 8(1):3–30, 1998. doi: 10.1145/272991.272995.
- [Mat02] MATHERON, G. und J. SERRA: *The Birth of Mathematical Morphology*. In: H. TALBOT und R. BEARE (Herausgeber): *Proceedings of the VIth International Symposium on Mathematical Morphology (ISMM)*, 2002.
- [May99] MAYR, S. G., M. MOSKE und K. SAMWER: *Identification of key parameters by comparing experimental and simulated growth of vapor-deposited amorphous $Zr_{65}Al_{7.5}Cu_{27.5}$ films*. Phys. Rev. B, 60(24):16950, 1999. doi: 10.1103/PhysRevB.60.16950.
- [May01] MAYR, S. G. und R. S. AVERBACK: *Surface Smoothing of Rough Amorphous Films by Irradiation-Induced Viscous Flow*. Phys. Rev. Lett., 87(19):196106, 2001. doi: 10.1103/PhysRevLett.87.196106.
- [McK73] MCKAY, G. M.: *Behavior and Ecology of the Asiatic Elephant in Southeastern Ceylon*. Smithsonian Contributions to Zoology, 125, 1973.
- [Mea83] MEAKIN, P.: *Diffusion-controlled cluster formation in 2-6-dimensional space*. Phys. Rev. A, 27(3):1495–1507, 1983. doi: 10.1103/PhysRevA.27.1495.
- [Mea86] MEAKIN, P., P. RAMANLAL, L. M. SANDER und R. C. BALL: *Ballistic deposition on surfaces*. Phys. Rev. A, 34(6):5091–5103, 1986. doi: 10.1103/PhysRevA.34.5091.

- [Mea92] MEAKIN, P. und J. KRUG: *Three-dimensional ballistic deposition at oblique incidence*. Phys. Rev. A, 46(6):3390–3399, 1992. doi: 10.1103/PhysRevA.46.3390.
- [Mea98] MEAKIN, P.: *Fractals, Scaling and Growth Far from Equilibrium*. Cambridge University Press, 1998.
- [Met49] METROPOLIS, N. und S. ULAM: *The Monte Carlo Method*. J. Am. Stat. Assoc., 44(247):335–341, 1949. doi: 10.2307/2280232.
- [Mit91] MITURA, S., Z. HAŚ und V. GOROKHOVSKY: *The system for depositing hard diamond-like films onto complex-shaped machine elements in an r.f. arc plasma*. Surf. Coat. Technol., 47(1–3):106–112, 1991. doi: 10.1016/0257-8972(91)90273-Y.
- [Mol99] MOLCHANOV, I.: *Diffusion-limited aggregation with jumps and flights*. J. Stat. Comput. Sim., 64(4):357–381, 1999. doi: 10.1080/00949659908811985.
- [Moo94] MOOREY, P. R. S.: *Ancient Mesopotamian Materials and Industries: The Archaeological Evidence*. Oxford University Press, 1994.
- [Mos98] MOSELER, M.: *Stochastische Differentialgleichungen zur Beschreibung des Schichtwachstums durch die Deposition energiereicher Cluster*. Doktorarbeit, Universität Freiburg, 1998.
- [Mos00] MOSELER, M., O. RATTUNDE, J. NORDIEK und H. HABERLAND: *On the origin of surface smoothing by energetic cluster impact: Molecular dynamics simulation and mesoscopic modeling*. Nucl. Instr. and Meth. B, 164–165:522–536, 2000. doi: 10.1016/S0168-583X(99)01081-2.
- [Mos05] MOSELER, M., P. GUMBSCH, C. CASIRAGHI, A. C. FERRARI und J. ROBERTSON: *The Ultrasoothness of Diamond-like Carbon Surfaces*. Science, 309(5740):1545–1548, 2005. doi: 10.1126/science.1114577.
- [Mul57] MULLINS, W. W.: *Theory of Thermal Grooving*. J. Appl. Phys., 28(3):333–339, 1957. doi: 10.1063/1.1722742.
- [Mul59] MULLINS, W. W.: *Flattening of a Nearly Plane Solid Surface due to Capillarity*. J. Appl. Phys., 30(1):77–83, 1959. doi: 10.1063/1.1734979.
- [Mul63] MULLINS, W. W. und R. F. SEKERKA: *Morphological Stability of a Particle Growing by Diffusion or Heat Flow*. J. Appl. Phys., 34(2):323–329, 1963. doi: 10.1063/1.1702607.
- [Mul64] MULLINS, W. W. und R. F. SEKERKA: *Stability of a Planar Interface During Solidification of a Dilute Binary Alloy*. J. Appl. Phys., 35(2):444, 1964. doi: 10.1063/1.1713333.
- [Mun06] MUNOZ-GARCÍA, J., R. CUERNO und M. CASTRO: *Short-range stationary patterns and long-range disorder in an evolution equation for one-dimensional interfaces*. Phys. Rev. E, 74:050103, 2006. doi: 10.1103/PhysRevE.74.050103.

- [Mur10] MURAKAMI, Y., S. HORIGUCHI und S. HAMAGUCHI: *Molecular dynamics simulation of the formation of sp^3 hybridized bonds in hydrogenated diamondlike carbon deposition processes*. Phys. Rev. E, 81(4):041602, 2010. doi: 10.1103/PhysRevE.81.041602.
- [Mö93] MÖLLER, W.: *Plasma and surface modeling of the deposition of hydrogenated carbon films from low-pressure methane plasmas*. Appl. Phys. A, 56(6):527–546, 1993. doi: 10.1007/BF00331402.
- [Nad84] NADLER, M. P., T. M. DONOVAN und A. K. GREEN: *Thermal annealing study of carbon films formed by the plasma decomposition of hydrocarbons*. Thin Solid Films, 116(1–3):241–247, 1984. doi: 10.1016/0040-6090(84)90441-3.
- [Nak05] NAKAMURA, Y., YOSHIMASA YAMAGUCHI, S. HIRAYAMA und YOSHIHISA WATANABE: *IR Absorption and Raman Spectra of As-Deposited and Annealed Hydrogenated Amorphous Carbon Films by Plasma Decomposition of Toluene*. J. Am. Ceram. Soc., 74(11):2932–2933, 2005. doi: 10.1111/j.1151-2916.1991.tb06867.x.
- [Ney07] NEYTS, E., A. BOGAERTS und M. C. M. VAN DE SANDEN: *Reaction mechanisms and thin a-C:H film growth from low energy hydrocarbon radicals*. J. Phys.: Conf. Ser., 86:012020, 2007. doi: 10.1088/1742-6596/86/1/012020.
- [Nir87] NIR, D.: *Intrinsic stress in diamond-like carbon films and its dependence on deposition parameters*. Thin Solid Films, 146(1):27–43, 1987. doi: 10.1016/0040-6090(87)90337-3.
- [Oha04] OHANA, T., M. SUZUKI, T. NAKAMURA, A. TANAKA und Y. KOGA: *Tribological properties of DLC films deposited on steel substrate with various surface roughness*. Diamond Relat. Mater., 13(11–12):2211–2215, 2004. doi: 10.1016/j.diamond.2004.06.037.
- [Oje00] OJEDA, F., R. CUERNO, R. SALVAREZZA und L. VÁZQUEZ: *Dynamics of Rough Interfaces in Chemical Vapor Deposition: Experiments and a Model for Silica Films*. Phys. Rev. Lett., 84(14):3125–3128, 2000. doi: 10.1103/PhysRevLett.84.3125.
- [Oli06] OLIVEIRA, T. J., K. DECHOUM, J. A. REDINZ und F. D. A. A. REIS: *Universal and nonuniversal features in the crossover from linear to nonlinear interface growth*. Phys. Rev. E, 74(1):011604, 2006. doi: 10.1103/PhysRevE.74.011604.
- [Par84] PARISI, G. und Y.-C. ZHANG: *Eden Model in Many Dimensions*. Phys. Rev. Lett., 53(19):1791–1794, 1984. doi: 10.1103/PhysRevLett.53.1791.
- [Pas08] PASTEWKA, L., P. POU, R. PEREZ, P. GUMBSCH und M. MOSELER: *Describing bond-breaking processes by reactive potentials Importance of an environment-dependent interaction range*. Phys. Rev. B, 78:161402, 2008. doi: 10.1103/PhysRevB.78.161402.

- [Pel71] PELTENBURG, E.: *Some Early Developments of Vitreous Materials*. World Archaeology, 3(6–12), 1971.
- [Pel06] PELLICCIONE, M., T. KARABACAK, C. GAIRE, G.-C. WANG und T.-M. LU: *Mound formation in surface growth under shadowing*. Phys. Rev. B, 74:125420, 2006. doi: 10.1103/PhysRevB.74.125420.
- [Pen98a] PENG, X. L. und T. W. CLYNE: *Mechanical stability of DLC films on metallic substrates: Part I Film structure and residual stress levels*. Thin Solid Films, 312(1–2):207–218, 1998. doi: 10.1016/S0040-6090(97)00588-9.
- [Pen98b] PENG, X. L. und T. W. CLYNE: *Residual stress and debonding of DLC films on metallic substrates*. Diamond Relat. Mater., 7(7):944–950, 1998. doi: 10.1016/S0925-9635(97)00331-2.
- [Pet07] PETER, S., K. GRAUPNER, D. GRAMBOLE und F. RICHTER: *Comparative experimental analysis of the a-C:H deposition processes using CH₄ and C₂H₂ as precursors*. J. Appl. Phys., 102(5):053304, 2007. doi: 10.1063/1.2777643.
- [Pet10] PETER, S., M. GÜNTHER, D. HAUSCHILD, D. GRAMBOLE und F. RICHTER: *Mid-frequency deposition of a-C:H films using five different precursors*. Vacuum, 84(7):958–961, 2010. doi: 10.1016/j.vacuum.2010.01.023.
- [Pin91] PINCHES, M. R. S., D. J. TILDESLEY und W. SMITH: *Large Scale Molecular Dynamics on Parallel Computers using the Link-cell Algorithm*. Mol. Simul., 6(1–3):51–87, 1991. doi: 10.1080/08927029108022139.
- [Pli87] PLISCHKE, M., Z. RÁCZ und D. LIU: *Time-reversal invariance and universality of two-dimensional growth models*. Phys. Rev. B, 35(7):3485–3495, 1987. doi: 10.1103/PhysRevB.35.3485.
- [Pli95a] PLIMPTON, S.: *Computational limits of classical molecular dynamics simulations*. Comput. Mater. Sci., 4(4):361–364, 1995. doi: 10.1016/0927-0256(95)00037-1.
- [Pli95b] PLIMPTON, S.: *Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics*. J. Comput. Phys., 117(1):1–19, 1995. doi: 10.1006/jcph.1995.1039.
- [Pop93] POPAT, K. und R. W. PICARD: *Novel cluster-based probability model for texture synthesis, classification, and compression*. In: *Proc. SPIE Visual Communications*, Seiten 756–768, 1993. doi: 10.1117/12.157992.
- [Rai00] RAIBLE, M., S. J. LINZ und P. HÄNGGI: *Amorphous thin film growth: Minimal deposition equation*. Phys. Rev. E, 62(2):1691–1705, 2000. doi: 10.1103/PhysRevE.62.1691.
- [Rai01] RAIBLE, M., S. J. LINZ und P. HÄNGGI: *Amorphous thin film growth: Effects of density inhomogeneities*. Phys. Rev. E, 64(3):031506, 2001. doi: 10.1103/PhysRevE.64.031506.
- [Rap96] RAPAPORT, D. C.: *The Art of Molecular Dynamics Simulation*. Cambridge University Press, 1996.

- [Rap06] RAPAPORT, D. C.: *Multibillion-atom molecular dynamics simulation: Design considerations for vector-parallel processing*. Comput. Phys. Commun., 174(7):521–529, 2006. doi: 10.1016/j.cpc.2005.11.008.
- [Rei79] REINBERG, A. R.: *Plasma Deposition of Inorganic Thin Films*. Annu. Rev. Mater. Sci., 9:341–372, 1979. doi: 10.1146/annurev.ms.09.080179.002013.
- [Rei97] REINKER, B., M. MOSKE und K. SAMWER: *Kinetic roughening of amorphous $Zr_{65}Al_{7.5}Cu_{27.5}$ films investigated in situ with scanning tunneling microscopy*. Phys. Rev. B, 56(15):9887–9893, 1997. doi: 10.1103/PhysRevB.56.9887.
- [Ric11] RICHARDSON, L. F.: *The approximate arithmetical solution by finite differences of physical problems involving differential equations, with an application to the stresses in a masonry dam*. Phil. Trans. R. Soc. A, 210:307–357, 1911. doi: 10.1098/rsta.1911.0009.
- [Rob92] ROBERTSON, J.: *Properties of diamond-like carbon*. Surf. Coat. Technol., 50(3):185–203, 1992. doi: 10.1016/0257-8972(92)90001-Q.
- [Rob02] ROBERTSON, J.: *Diamond-like amorphous carbon*. Mater. Sci. Eng. R, 37(4–6):129–281, 2002. doi: 10.1016/S0927-796X(02)00005-0.
- [Rob05] ROBERTSON, J.: *Mechanism of sp^3 bond formation in the growth of diamond-like carbon*. Diamond Relat. Mater., 14(3–7):942–948, 2005. doi: 10.1016/j.diamond.2004.11.028.
- [Rol90] ROLLEFSON, G. O.: *The Uses of Plaster at Neolithic 'Ain Ghazal, Jordan*. Archeomaterials, 40:33–54, 1990.
- [Rol91] ROLAND, C. und H. GUO: *Interface growth with a shadow instability*. Phys. Rev. Lett., 66(16):2104–2107, 1991. doi: 10.1103/PhysRevLett.66.2104.
- [Ros00] ROST, M.: *Growth enhanced surface diffusion and elastic instability on amorphous solids*, 2000. <http://arxiv.org/abs/cond-mat/0004194>.
- [Rub03] RUBIO, J. E., M. JARAIZ, I. MARTIN-BRAGADO, J. M. HERNANDEZ-MANGAS, J. BARBOLLA und G. H. GILMER: *Atomistic Monte Carlo simulations of three-dimensional polycrystalline thin films*. J. Appl. Phys., 94(1):163, 2003. doi: 10.1063/1.1577814.
- [Rö74] RÖDELSPERGER, K., W. KRÜGER und A. SCHARMANN: *Angular distribution of copper atoms sputtered with energetic ions*. Z. Phys. A, 269(1):83–88, 1974. doi: 10.1007/BF01668873.
- [Saw86] SAWADA, Y., A. DOUGHERTY und J. P. GOLLUB: *Dendritic and Fractal Patterns in Electrolytic Metal Deposits*. Phys. Rev. Lett., 56(12):1260–1263, 1986. doi: 10.1103/PhysRevLett.56.1260.
- [Saw95] SAWADA, Y., S. OGAWA und M. KOGOMA: *Synthesis of plasma-polymerized tetraethoxysilane and hexamethyldisiloxane films prepared by atmospheric pressure glow discharge*. J. Phys. D: Appl. Phys., 28(8):1661–1669, 1995. doi: 10.1088/0022-3727/28/8/015.

- [Sch55] SCHMELLENMEIER, H. *Z. Phys. Chem.*, 205:349, 1955.
- [Sha11] SHAHA, K. P., Y. T. PEI, D. MARTINEZ-MARTINEZ und J. TH. M. DE HOSSON: *Influence of Surface Roughness on the Transfer Film Formation and Frictional Behavior of TiC/a-C Nanocomposite Coatings*. *Tribol. Lett.*, 41:97–101, 2011. doi: 10.1007/s11249-010-9691-4.
- [Sig73] SIGMUND, P.: *A mechanism of surface micro-roughening by ion bombardment*. *J. Mater. Sci.*, 8(11):1545–1553, 1973. doi: 10.1007/BF00754888.
- [Sil97] SILVA, T. J. DA und J. G. MOREIRA: *Kinetic roughening on rough substrates*. *Phys. Rev. E*, 56(4):4880–4883, 1997. doi: 10.1103/PhysRevE.56.4880.
- [Sin93] SINGH, V. K. und E. S. G. SHAQFEH: *Effect of surface re-emission on the surface roughness of film growth in low pressure chemical vapor deposition*. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 11(3):557, 1993. doi: 10.1116/1.578772.
- [Siv77] SIVASHINSKY, G. I.: *Nonlinear analysis of hydrodynamic instability in laminar flames. I - Derivation of basic equations*. *Acta Astronaut.*, 4(11–12):1177–1206, 1977. doi: 10.1016/0094-5765(77)90096-0.
- [Sne92] SNEPPEN, KIM, J. KRUG, C. JAYAPRAKASH, T. BOHR und MOGENS H. JENSEN: *Dynamic scaling and crossover analysis for the Kuramoto-Sivashinsky equation*. *Phys. Rev. A*, 46(12):R7351, 1992. doi: 10.1103/PhysRevA.46.R7351.
- [Sro89] SROLOVITZ, D. J.: *On the stability of surfaces of stressed solids*. *Acta Metall.*, 37(2):621–625, 1989. doi: 10.1016/0001-6160(89)90246-0.
- [Ste61] STEIN, R. P. und F. C. HURLBUT: *Angular Distribution of Sputtered Potassium Atoms*. *Phys. Rev.*, 123(3):790–796, 1961. doi: 10.1103/PhysRev.123.790.
- [Sun89] SUN, T., H. GUO und M. GRANT: *Dynamics of driven interfaces with a conservation law*. *Phys. Rev. A*, 40(11):6763–6766, 1989. doi: 10.1103/PhysRevA.40.6763.
- [Sun00] SUN, Z., C.H. LIN, Y.L. LEE, J.R. SHI, B.K. TAY und X. SHI: *Effects on the deposition and mechanical properties of diamond-like carbon film using different inert gases in methane plasma*. *Thin Solid Films*, 377–378:198–202, 2000. doi: 10.1016/S0040-6090(00)01427-9.
- [Tan97] TANENBAUM, D. M., A. L. LARACUENTE und A. GALLAGHER: *Surface roughening during plasma-enhanced chemical-vapor deposition of hydrogenated amorphous silicon on crystal silicon substrates*. *Phys. Rev. B*, 56(7):4243–4250, 1997. doi: 10.1103/PhysRevB.56.4243.
- [Tho83] THORNTON, J. A.: *Plasma-Assisted Deposition Processes: Theory, Mechanisms and Applications*. *Thin Solid Films*, 107(1):3–19, 1983. doi: 10.1016/0040-6090(83)90003-2.

- [Tho88] THOMPSON, B. E., H. H. SAWIN und D. A. FISHER: *Monte Carlo simulation of ion transport through rf glow-discharge sheaths*. J. Appl. Phys., 63(7):2241, 1988. doi: 10.1063/1.341062.
- [Tri01] TRIVEDI, R., H. MIYAHARA, P. MAZUMDER, E. SIMSEK und S. N. TEWARI: *Directional solidification microstructures in diffusive and convective regimes*. J. Cryst. Growth, 222(1–2):365–379, 2001. doi: 10.1016/S0022-0248(00)00761-2.
- [Tsu77] TSUKIZOE, T., T. NAKAI und N. OHMAE: *Ion-beam plating using mass-analyzed ions*. J. Appl. Phys., 48(11):4770, 1977. doi: 10.1063/1.323492.
- [Tur10] TURKIN, A. A., Y. T. PEI, K. P. SHAHA, C. Q. CHEN, D. I. VAINSHTEIN und J. TH. M. DE HOSSON: *On the evolution of film roughness during magnetron sputtering deposition*. J. Appl. Phys., 108(9):094330, 2010. doi: 10.1063/1.3506681.
- [Uen05] UENO, K., H. SAKAGUCHI und M. OKAMURA: *Renormalization-group and numerical analysis of a noisy Kuramoto-Sivashinsky equation in 1+1 dimensions*. Phys. Rev. E, 71(4):046138, 2005. doi: 10.1103/PhysRevE.71.046138.
- [Uhl98] UHLMANN, S., T. FRAUENHEIM und Y. LIFSHITZ: *Molecular-Dynamics Study of the Fundamental Processes Involved in Subplantation of Diamondlike Carbon*. Phys. Rev. Lett., 81(3):641–644, 1998. doi: 10.1103/PhysRevLett.81.641.
- [Umb01] UMBACH, C. C., R. L. HEADRICK und K.-C. CHANG: *Spontaneous Nanoscale Corrugation of Ion-Eroded SiO₂: The Role of Ion-Irradiation-Enhanced Viscous Flow*. Phys. Rev. Lett., 87(24):246104, 2001. doi: 10.1103/PhysRevLett.87.246104.
- [Vas77] VASILE, M. J. und G. SMOLINSKY: *The chemistry of radiofrequency discharges: Acetylene and mixtures of acetylene with helium, argon and xenon*. Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys., 24(1):11–23, 1977. doi: 10.1016/0020-7381(77)83002-7.
- [Vil96] VILLARRUBIA, J. S.: *Scanned probe microscope tip characterization without calibrated tip characterizers*. J. Vac. Sci. Technol. B, 14(2):1518–1521, 1996. doi: 10.1116/1.589130.
- [Vil97] VILLARRUBIA, J. S.: *Algorithms for Scanned Probe Microscope Image Simulation, Surface Reconstruction, and Tip Estimation*. J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol., 102(425):425–454, 1997.
- [Wan09] WANK, M. A., R. A. C. M. M. VAN SWAAIJ und M. C. M. VAN DE SANDEN: *On the surface roughness development of hydrogenated amorphous silicon deposited at low growth rates*. Appl. Phys. Lett., 95(2):021503, 2009. doi: 10.1063/1.3179151.
- [War95] WARREN, J. A. und W. J. BOETTINGER: *Prediction of dendritic growth and microsegregation patterns in a binary alloy using the phase-field method*. Acta Metall. Mater., 43(2):689–703, 1995. doi: 10.1016/0956-7151(94)00285-P.

- [Wes76] WESTWOOD, W.: *Glow discharge sputtering*. Prog. Surf. Sci., 7(2):71–111, 1976. doi: 10.1016/0079-6816(76)90002-2.
- [Wit81] WITTEN, JR., T. A. und L. M. SANDER: *Diffusion-Limited Aggregation, a Kinetic Critical Phenomenon*. Phys. Rev. Lett., 47(19):1400–1403, 1981. doi: 10.1103/PhysRevLett.47.1400.
- [Wol90] WOLF, D. E. und J. VILLAIN: *Growth with Surface Diffusion*. Europhys. Lett., 13:389–394, 1990. doi: 10.1209/0295-5075/13/5/002.
- [Wu99] WU, W.-J. und M.-H. HON: *Thermal stability of diamond-like carbon films with added silicon*. Surf. Coat. Technol., 111(2–3):134–140, 1999. doi: 10.1016/S0257-8972(98)00719-1.
- [Wuc88] WUCHER, A. und W. REUTER: *Angular distribution of particles sputtered from metals and alloys*. J. Vac. Sci. Technol. A, 6(4):2316–2318, 1988. doi: 10.1116/1.575582.
- [Yao92] YAO, J. H., C. ROLAND und H. GUO: *Interfacial dynamics with long-range screening*. Phys. Rev. A, 45(6):3903–3912, 1992. doi: 10.1103/PhysRevA.45.3903.
- [Yao93] YAO, J. H. und H. GUO: *Shadowing instability in three dimensions*. Phys. Rev. E, 47(2):1007–1011, 1993. doi: 10.1103/PhysRevE.47.1007.
- [Yu02] YU, J. und J. G. AMAR: *Dynamical scaling behavior in two-dimensional ballistic deposition with shadowing*. Phys. Rev. E, 66(2):021603, 2002. doi: 10.1103/PhysRevE.66.021603.
- [Zha99] ZHAO, Y.-P., J. T. DROTAR, G.-C. WANG und T.-M. LU: *Roughening in Plasma Etch Fronts of Si(100)*. Phys. Rev. Lett., 82(24):4882–4885, 1999. doi: 10.1103/PhysRevLett.82.4882.
- [Zha00] ZHAO, Y.-P., J. B. FORTIN, G. BONVALLET, G.-C. WANG und T.-M. LU: *Kinetic Roughening in Polymer Film Growth by Vapor Deposition*. Phys. Rev. Lett., 85(15):3229–3232, 2000. doi: 10.1103/PhysRevLett.85.3229.
- [Zho98] ZHOU, S. J., D. L. PRESTON, P. S. LOMDAHL und D. M. BEAZLEY: *Large-Scale Molecular Dynamics Simulations of Dislocation Intersection in Copper*. Science, 279(5356):1525–1527, 1998. doi: 10.1126/science.279.5356.1525.
- [Zor06] ZORBA, S., Y. SHAPIR und Y. GAO: *Fractal-mound growth of pentacene thin films*. Phys. Rev. B, 74(24):245410, 2006. doi: 10.1103/PhysRevB.74.245410.