

УДК 539.216:519.876.5

МОДЕЛИРОВАНИЕ ОСАЖДЕНИЯ ПЛЕНОК В УСЛОВИЯХ СУЩЕСТВЕННОЙ ПОВЕРХНОСТНОЙ ДИФФУЗИИ

И.Г. Марченко

ННЦ «Харьковский физико-технический институт», ул. Академическая 1, г. Харьков 61108, Украина

E-mail: march@vl.kharkov.ua

Поступила в редакцию 28 января 2005 г.

В работе методом молекулярной динамики изучены процессы формирования микроструктуры тонких пленок ниобия при температуре 800К. Проведено сравнение полученных результатов с имеющимися результатами моделирования низкотемпературного атомного осаждения. Показано, что повышение температуры осаждения приводит к уменьшению вероятности зарождения микротрещин и увеличению размеров формирующихся наноблоков.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: пленки, вакуумное осаждение, моделирование, ниобий, метод молекулярной динамики, поверхностная термическая диффузия, наноструктура.

Вакуумное осаждение является одним из важных технологических процессов модификации поверхностных свойств материалов. Однако, несмотря на многочисленные экспериментальные и теоретические исследования, физические механизмы формирования микроструктуры осаждаемых пленок до конца не выяснены. В проведенных ранее работах методами компьютерного моделирования были исследованы особенности формирования наноструктуры пленок ниобия при низкотемпературном атомном осаждении [1-3]. Результатом этих работ явилось формирование представлений о физических механизмах развития микроструктуры осаждаемых пленок. Было показано, что основным механизмом образования как пористости, так и блочной структуры и микро-напряжений является неустойчивость гладкой поверхности пленки при атомном осаждении. Из-за эффекта “атомного затенения”, заключающегося в том, что траектория осаждаемых частиц искривляется в силовом поле атомов, образующих поверхность, амплитуда возникающих флуктуаций высоты неровностей поверхности пленки нарастает. Вследствие этого эффекта возникают микротрещины. При дальнейшем росте глубины микротрещин возникают вакансионные кластеры, дислокации и дислокационные петли. Коррелированное залегание вакансионных комплексов и дислокаций под микротрещинами определяет наноструктуру осаждаемых пленок и приводит к возникновению больших внутренних микронапряжений, имеющих существенную анизотропию. Образовавшиеся дефекты определяют физико-механические свойства осажденных пленок. Повышение температуры способствует поверхностной миграции атомов, что приводит к сглаживанию возникающих флуктуаций высоты поверхности осаждаемой пленки. Вследствие этого должны изменяться параметры образующейся микроструктуры.

Целью данной работы было изучение роли термической диффузии поверхностных атомов в процессах образования наноструктуры пленок ниобия.

МЕТОДИКА МОДЕЛИРОВАНИЯ

Компьютерное моделирование атомно-ионного осаждения тонких пленок ниобия проводилось методом молекулярной динамики с использованием программы DYMOD [4]. Методика вычислений подробно рассмотрена в работах [1-3]. Взаимодействие атомов описывалось моделью погруженного атома [5]. При расчетах межатомного взаимодействия использовали атомную электронную плотность и функцию внедрения в электронный газ, предложенные Джонсоном [6]. Расчетная ячейка представляла собой прямоугольный параллелепипед с размерами 4,63; 4,67 и 13,8 нм соответственно по осям X, Y и Z. Ось X имела кристаллографическое направление [100], ось Y - [011], ось Z - [01 $\bar{1}$]. Вдоль направлений X и Y использовались периодические граничные условия. Рост пленки происходил в направлении оси Z. Осаждаемые атомы случайным образом равномерно распределялись в плоскости параллельной плоскости осаждения. Время осаждения одного монослоя $t_{\text{моно}}$ составляло 0,142 нс. Температура пленки поддерживалась постоянной при помощи алгоритма коррекции атомных скоростей [7]. В качестве величины характеризующей шероховатость пленки, использовались среднеквадратичные отклонения поверхностных атомов от среднего значения координаты Z поверхностных атомов:

$$\langle (Z^s - \langle Z^s \rangle)^2 \rangle = \frac{1}{N_s} \sum_i (Z_i^s - \frac{1}{N_s} \sum_j Z_j^s)^2, \quad (1)$$

где N_s – количество поверхностных атомов. Суммирование проводилось по поверхностным атомам s, которые определялись путем анализа распределения электронной плотности в микрокристаллите с помощью алгоритма, описанного в работе [1].

Упорядочение микроструктуры пленки при вакуумном осаждении происходит в основном за счет поверхностной диффузии атомов, так как энергия активации диффузии адатомов существенно ниже энергии актива-

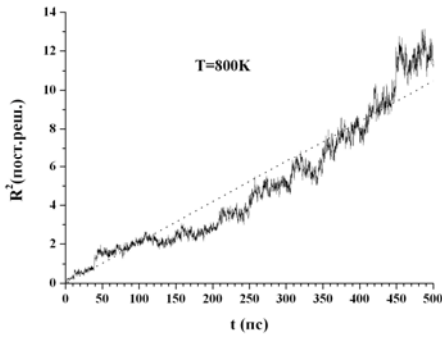


Рис. 1 Среднеквадратичное смещение атома от исходной точки на плоскости

пает диффузионных скачков. Таким образом, при температурах $T=800\text{ K}$ и $T=300\text{ K}$ реализуются различные условия осаждения. Вследствие этого для исследования роли поверхностной диффузии в процессах структурообразования термическое осаждение пленки проводилось на подложку из ниобия при температуре 800 K .

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Проведенные расчеты атомного осаждения пленок ниобия при температуре подложки 800 K , показали, что

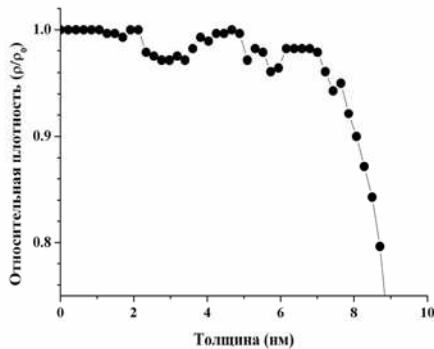


Рис. 2. Изменение плотности материала по толщине пленки. Время осаждения – $40t_{\text{mono}}$.

увеличение подвижности атомов привело к изменению микроструктуры и характеристик осажденных пленок. На рис. 2 показано изменение плотности пленки по толщине. Средняя плотность осажденной пленки составила $0,98\rho_0$, где ρ_0 – плотность массивного ниобия. При осаждении ниобия при $T=300\text{ K}$ плотность пленки составляла $0,95\rho_0$ [2]. Таким образом, увеличение температуры подложки привело к увеличению плотности осаждаемых пленок. Наблюдаемое изменение плотности связано с изменением микрорельефа пленки. На рис. 3 круглыми маркерами приведено изменение шероховатости пленки со временем осаждения t при температуре 800 K . Треугольными маркерами показаны значения шероховатости для температуры 300 K [2]. Видно, что до $t=8t_{\text{mono}}$ рост шероховатости, как при температуре подложки $T=300\text{ K}$, так и при $T=800\text{ K}$, имеет одинаковый характер и связан со случайными флуктуациями падающего потока атомов. В интервале от $t=8t_{\text{mono}}$ до $t=25t_{\text{mono}}$ при низкотемпературном осаждении наблюдается дальнейший рост шероховатости поверхности, обусловленный развитием микротрещин на поверхности растущей пленки. В то же время, при $T=800\text{ K}$ в данном временном интервале шероховатость пленки практически не изменяется. При $t>25t_{\text{mono}}$ шероховатость пленки в случае высокотемпературного осаждения начинает возрастать. Скорость ее роста практически такая же, как для случая низкотемпературного осаждения

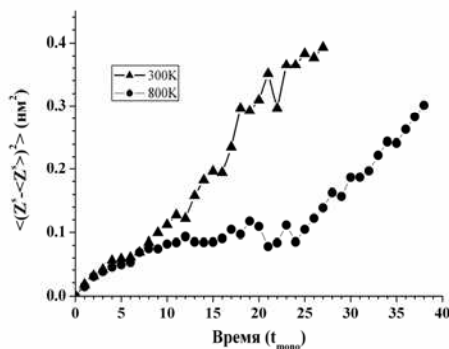


Рис. 3. Среднеквадратичные отклонения координаты Z поверхностных атомов $\langle (Z^i - \langle Z^i \rangle)^2 \rangle$ от времени.

в интервале от $t=8t_{\text{mono}}$ до $t=25t_{\text{mono}}$. Для понимания происходящих процессов обратимся к рис. 4, где приведен вид поверхности растущей пленки в различные моменты времени. Рис. 4а соответствует временам $t=8t_{\text{mono}}$, а 4б – $t=25t_{\text{mono}}$. Как следует из рисунков, структура поверхности в обоих случаях сходна. В то же время, на рис. 4в, соответствующему времени осаждения $t=42t_{\text{mono}}$ характер поверхности существенно отличается от предыдущих. Видно, что на поверхности пленки образовалась микротрещина. Анализ компьютерной анимации показал, что рост шероховатости пленки в интервале $t=8t_{\text{mono}} - 25t_{\text{mono}}$ связан с возникновением и развитием микротрещины. В отличие от низкотемпературного осаждения при $T=800\text{ K}$ для возникновения зародыша микротрещины потребовался некоторый интервал времени $\Delta t=17t_{\text{mono}}$, необходимый для возникновения случайной флуктуации неровности пленки. Образовавшийся зародыш микротрещины в дальнейшем растет в результате эффекта “атомного затенения”. Таким обра-

зом, при температурах $T=800\text{ K}$ и $T=300\text{ K}$ реализуются различные условия осаждения. Вследствие этого для исследования роли поверхностной диффузии в процессах структурообразования термическое осаждение пленки проводилось на подложку из ниобия при температуре 800 K .

заметно, что до $t=8t_{\text{mono}}$ рост шероховатости, как при температуре подложки $T=300\text{ K}$, так и при $T=800\text{ K}$, имеет одинаковый характер и связан со случайными флуктуациями падающего потока атомов. В интервале от $t=8t_{\text{mono}}$ до $t=25t_{\text{mono}}$ при низкотемпературном осаждении наблюдается дальнейший рост шероховатости поверхности, обусловленный развитием микротрещин на поверхности растущей пленки. В то же время, при $T=800\text{ K}$ в данном временном интервале шероховатость пленки практически не изменяется. При $t>25t_{\text{mono}}$ шероховатость пленки в случае высокотемпературного осаждения начинает возрастать. Скорость ее роста практически такая же, как для случая низкотемпературного осаждения

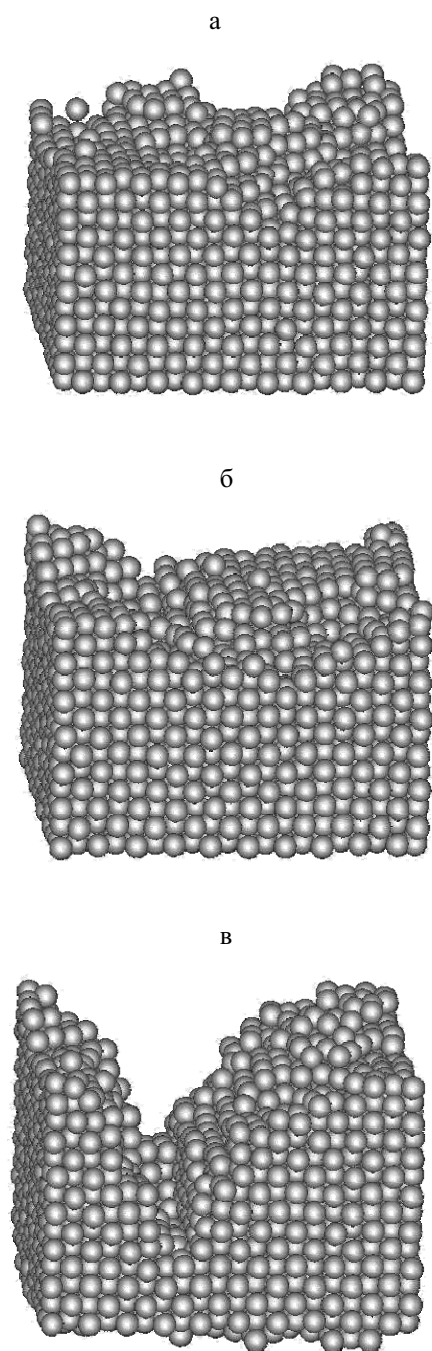


Рис. 4. Изменение структуры поверхности пленки ниобия со временем осаждения.

а) $t=8t_{\text{моно}}$, б) $t=25t_{\text{моно}}$, в) $t=42t_{\text{моно}}$.

ния”. Таким образом, увеличение температуры осаждения приводит к уменьшению вероятности образования микротрещин.

Сравнивая результаты расчетов осаждения пленок ниобия при $T=800$ К и $T=300$ К [2], можно отметить, что плотность микротрещин при более высокой температуре меньше, чем при низкой. Так, в случае низкотемпературного осаждения на поверхности пленки образовалось две микротрещины, а при $T=800$ К – только одна.

Кривизна поверхности при высокой температуре меньше, чем при низкой. При $T=800$ К, как и в случае низкотемпературного осаждения, основным механизмом, способствующим росту микротрещин, является эффект “атомного затенение” более глубоких участков поверхности, при котором изменяется траектория осаждаемых атомов в силовом поле атомов, образующих поверхность. Процессы диффузии способствуют сглаживанию возникающих флуктуаций высоты. Конкуренция этих процессов приводит к изменению параметров микроструктуры пленок.

При интерпретации результатов компьютерного моделирования и сравнения их с экспериментальными данными следует учитывать тот факт, что размеры микрокристаллита недостаточны для количественного описания изменения поверхностной плотности микротрещин с температурой. Для получения количественных характеристик блочной структуры необходимо проведение ряда расчетов с большими размерами расчетной ячейки. В то же время, не вызывает сомнения факт увеличения расстояния между блоками с повышением температуры.

Таким образом, качественная картина процессов на поверхности при атомном осаждении выглядит так: с одной стороны неустойчивость атомарно гладкой формы поверхности приводит к развитию микротрещин, являющихся источником вакансионной пористости и дислокаций, с другой стороны увеличение поверхностной подвижности адатомов приводит к нивелированию этих процессов и уменьшению количества возникающих микротрещин. Конкуренция этих процессов определяет микроструктуру осаждаемой пленки.

ВЫВОДЫ

В работе методами компьютерного моделирования исследован процесс атомного осаждения пленок ниобия при такой температуре, когда поверхностная диффузия значительна. Показано, что повышение температуры приводит к росту плотности пленки и уменьшению ее шероховатости. Образующаяся структура микротрещин имеет меньшую плотность, чем в случае низкотемпературного осаждения. Физический механизм образования наноструктуры пленок при высокотемпературном осаждении имеет ту же природу, что и в случае низких температур, и связан с неустойчивостью формы поверхности при атомном осаждении вследствие эффекта “атомного затенения”. Увеличение подвижности атомов приводит к нивелированию этого процесса и как следствие - к увеличению размера блочной наноструктуры.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Марченко И.Г., Марченко И.И., Неклюдов И.М. Определение атомной структуры поверхности тонких пленок в методе молекулярной динамики // Вопр. атом. науки и техники. Сер. ФРП и РМ. -2004. -№3 (85). -С.26-30.
2. Марченко И.Г., Марченко И.И., Неклюдов И.М. Компьютерное моделирование вакуумного осаждения пленок ниобия // Вестн. Харьк. ун-та. Сер. “Ядра, частицы, поля”. -2004. - №628. -Вып.2 (24). -С.93-98.
3. Марченко И.Г., Чишкала А.В., Неклюдов И.М. Математическое моделирование ионного уплотнения пленок ниобия // Вестн. Харьк. ун-та. Сер. Ядра, частицы, поля. -2004. - №642. -Вып.3 (25). -С.53-58.
4. Ганн В.В., Марченко И.Г. Комплекс программ "ДИМОД" для динамического моделирования дефектов в металлах и сплавах. -Харьков, 1987. -10с. - (Препринт / ХФТИ АН УССР: №87-24).

5. Baskes M.I. Modified embedded-atom potentials for cubic materials and impurities //Phys. Rev. B. -1992. -V. 46. - №5. - P.2727-2742.
6. Johnson R.A., Oh D.J. Analytic embedded atom method model for bcc metals // J. Mater. Res.- 1989.- V.4. - №5. - P.1195-1201.
7. Luedtke W.D., Landman Uzi. Molecular-dynamics studies of the growth modes and structure of amorphous silicon films via atom deposition //Phys. Rev. B. - 1989. - V.40. - №17. - P.11733-11745.

COMPUTER SIMULATION OF FILMS DEPOSITION UNDER SUFFICIENT SURFACE DIFFUSION

I.G. Marchenko

National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"

1, Akademicheskaya St., 61108 Kharkov, Ukraine

E-mail: March@vl.kharkov.ua

The processes of microstructure formation of thin niobium films at temperature 800K were investigated by molecular dynamics method. The obtained results compared with those at low temperature deposition. It is shown that temperature increasing lead to decreasing of microcracks arise probability and increasing of nanoblocs size.

KEY WORDS: films, vacuum deposition, computer simulation, niobium, molecular dynamics method, surface thermal diffusion, nanostructure.