

УДК 004.94

Чу Чонг Шы

Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет "ЛЭТИ" им. В. И. Ульянова (Ленина)

Компьютерное моделирование процессов роста тонких пленок при термическом вакуумном напылении

Рассмотрены различные механизмы процесса роста тонких пленок на атомном уровне с учетом различных факторов при термическом вакуумном напылении. Продемонстрировано влияние этих факторов на качество получаемых пленок. При промежуточном механизме процесса роста тонких пленок для определения номера частицы применен метод Монте-Карло, для определения направления движения выбранной частицы – квазиньютоновский решетчатый метод. Проанализирован процесс фрактального роста с учетом всех факторов. Рассмотрены возможности управления процессом роста тонких пленок.

Компьютерное моделирование, рост тонких пленок, термическое вакуумное напыление, метод Монте-Карло, парный взаимный потенциал Леннарда-Джонса, фрактальная структура

Роль компьютерного моделирования при решении задач в области микро- и нанотехнологии постоянно растет. Повышение качества пленок важно для применения в различных производственных областях. Моделирование процессов получения пленок высокого качества современными методами, выявление особенностей процесса и управляемых параметров является весьма актуальной и интересной задачей [1]–[4].

В настоящей статье описано исследование процесса роста тонких пленок при термическом вакуумном напылении (ТВН) компьютерным моделированием при разных условиях конденсации, температуры и состоянии поверхности подложки.

Процесс ТВН удобно разделить на четыре этапа [5]: парообразование вещества, перенос частиц от испарителя к подложкам, конденсация и рост пленок.

Авторы [6] для выявления факторов, влияющих на качество получаемых пленок с помощью компьютерного моделирования, провели анализ процессов, протекающих на первом и втором этапах при условии, что частицы конденсируются на подложке без отражения от нее.

В зависимости от сил взаимодействия между испаряемыми частицами и испаряемой частицей и частицей на подложке выделяют три режима роста пленки [5]: островковый (кластерный) (Фольмера–Вебера), послойный (Франка–Ван-дер-Мерве) и промежуточный (Странского–Крастаного). В настоящей статье рассмотрены модели роста пленки в послойном и промежуточном режимах.

Алгоритм роста пленки в послойном режиме кратко изложим следующим образом (в двумерном представлении алгоритм проиллюстрирован на рис. 1). Примем, что частицы (на рис. 1 обозначены цифрами) имеют форму цилиндра с радиусом R_0 и высотой $2R_0$. Условимся, что частицы осаждаются по нормали к подложке и адсорбируются на уже имеющийся слой частиц (наслаиваются). Взаимодействием между осаждающимися частицами пренебрегаем. В рамках рассмотренной модели на процесс осаждения влияет непостоянная плотность частиц уже осажденных на поверхность подложки (рис. 2, нормировка координат описана далее). Модель, построенная с учетом этого фактора, отличается от случая использования расчетной формулы относительной толщины пленки (идеальная модель) [6]. На рис. 2 представлен результат компьютерного моделирования для пленок из разных материалов (на рис. 2, а радиус частиц R_0 в два раза больше, чем радиус на рис. 2, б). Как следует из рис. 2, этот параметр существенно влияет на локальные изменения толщины пленки.



Рис. 1

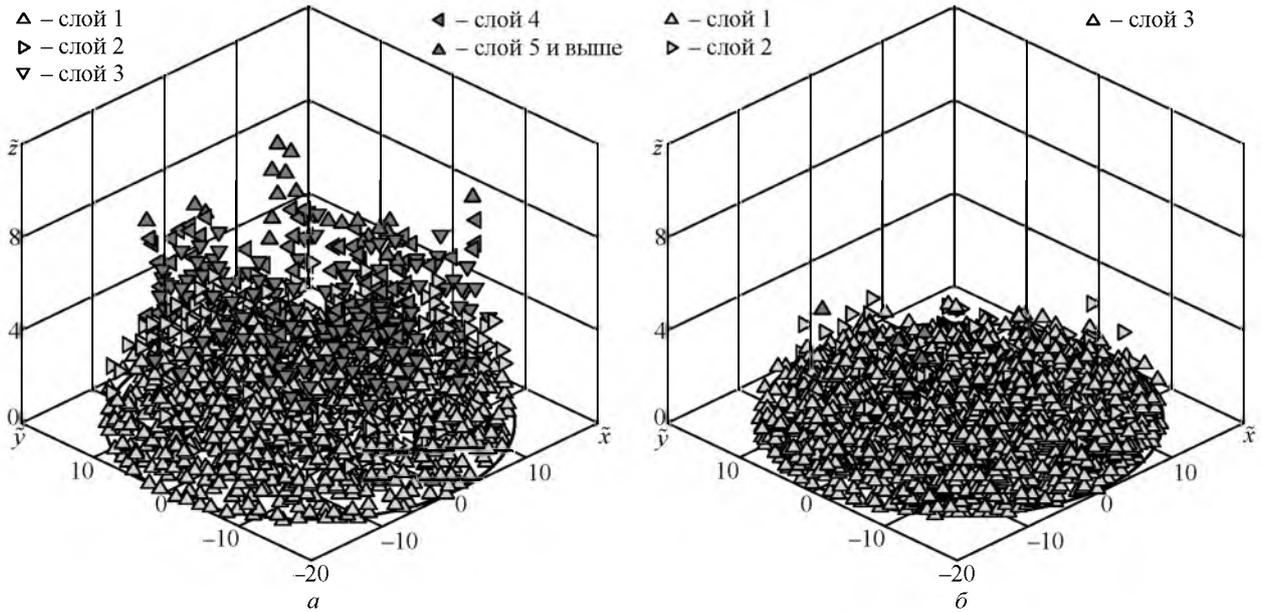


Рис. 2

При моделировании процесса роста пленки по промежуточному режиму выбор частиц, оседающих на подложку, производится методом Монте-Карло. Выбранные частицы вначале опускаются по нормали к подложке. Вблизи подложки движение определяется квазиньютоновским методом, определяющим оптимальную траекторию частицы на основе минимума потенциальной энергии системы.

Основным допущением в данной модели является учет взаимодействия между частицами на основе парного потенциала Леннарда-Джонса (ППЛД) [7], [8]. Согласно этой модели между частицами имеется два вида взаимодействия (рис. 3): на малых расстояниях преобладает сильное взаимодействие, отталкивающее частицы, на больших – слабое взаимодействие, приводящее к взаимному притяжению. В результате потенциал взаимодействия описывается следующей зависимостью:

$$U_{ij} = 4\varepsilon_0 \left[(r_0/r)^{12} - (r_0/r)^6 \right], \quad (1)$$

где ε_0 – глубина потенциальной ямы; r_0 – расстояние между центрами частиц, соответствующее нулевому значению ППЛД; r – расстояние между цен-

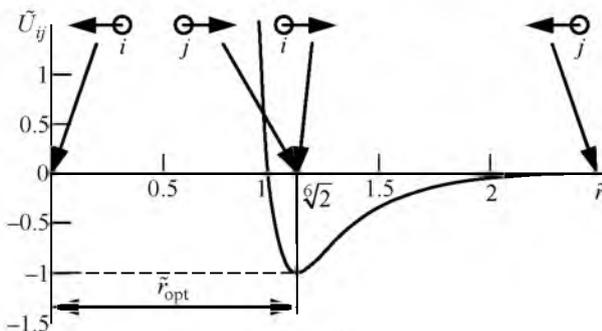


Рис. 3

трами частиц. Значения ε_0 и r_0 являются характеристиками атомов соответствующего вещества.

Введя нормированные величины $\tilde{U}_{ij} = U_{ij}/\varepsilon_0$ и $\tilde{r} = r/r_0$, получим вид ППЛД, представленный на рис. 3. Потенциальная яма характеризуется расстоянием $\tilde{r}_{opt} = \sqrt[6]{2}$. На расстояниях $\tilde{r} < \tilde{r}_{opt}$ $F = -d\tilde{U}/d\tilde{r} > 0$ и частицы отталкиваются, при $\tilde{r} > \tilde{r}_{opt}$ $F < 0$ – частицы притягиваются.

На всех рисунках, отображающих результаты экспериментов, размеры нормированы на оптимальное расстояние r_{opt} (рис. 3). Частицы различных типов на этих рисунках различаются по расстоянию до подложки, при переходе к следующему слою возрастающему на $(\sqrt{2}/2)r_{opt}$.

Упрощенный алгоритм моделирования процесса осаждения частиц в промежуточном режиме включает следующие итерации:

1. Выбор шага n решетки, на которой моделируется движение частиц (в экспериментах, результаты которых представлены в настоящей статье, шаг выбран равным $0.1r_{opt}$).

2. Выбор частиц случайным образом (методом Монте-Карло). Выбранные частицы последовательно выпускаются на подложку, находя себе место, определяемое по квазиньютоновскому механизму на основе минимума потенциальной энергии взаимодействия частиц.

3. Падающие частицы занимают оптимальное положение в одном из 26 возможных узлов

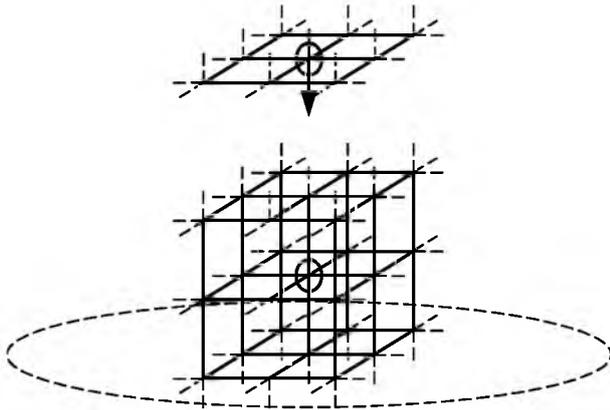


Рис. 4

решетки, окружающих частицу (8 в "нулевом" слое, в котором находится сама частица, по 9 узлов выше и ниже "нулевого" слоя, рис. 4), не занятых ранее осевшими частицами.

4. Для частицы задается максимальное количество попыток выбора оптимального положения и возможных перемещений.

5. Этапы 2–4 продолжаютя до тех пор, пока все частицы не осядут на подложку.

Для увеличения точности моделирования реального процесса роста пленки следует полнее учитывать различные условия и факторы, влияющие на качество пленки. В представленных далее компьютерных экспериментах сделана попытка учесть в алгоритме влияние на качество осаждаемой пленки начальных структур, осаждаемых на подложку, уровня взаимодействия между частицами, структуры подложки, различия напыляемых материалов и температуры подложки.

Компьютерный эксперимент 1. Анализ влияния начальных (аморфных) структур, сформиро-

ванных на подложке на первых этапах роста пленки, на последующие структуры.

В рассматриваемом эксперименте принимаются следующие допущения:

- поверхность подложки идеально гладкая;
- потенциал взаимодействия между подложкой и напыляемыми частицами, определяемый расстоянием от частиц до подложки \tilde{r} , существенно превышает связь между напыляемыми частицами;
- структура подложки не учитывается.

В условиях первого эксперимента нормированный потенциал взаимодействия частиц с подложкой определяется интегрированием ППД частицы с отдельными участками мишени. Выполнив интегрирование в пределах подложки, получим:

$$\tilde{U}_{\text{св}}(\tilde{r}) = 4\pi k \left[\frac{1}{(45\tilde{r}^9)} - \frac{1}{(6\tilde{r}^3)} \right], \quad (2)$$

где k – нормирующий коэффициент, аналогичный ε_0 в (1).

На рис. 5–8 отражены результаты компьютерного моделирования процесса формирования пленки в четырех следующих друг за другом моментах времени, характеризующихся увеличением вовлеченных в процесс частиц. Эксперимент проводился при связи между испаряемыми частицами, существенно меньшей связи между испаряемой частицей и подложкой (в (2) принято значение $k = 10$, при котором соотношение потенциалов связи подложки с частицами и между частицами превышает 20). Частицы, достигшие подложки, фиксируются на ней, а новые непрерывно осаждаются. На первом этапе (рис. 5) на подложку осаждалось 100 частиц, которые на последующих этапах вы-

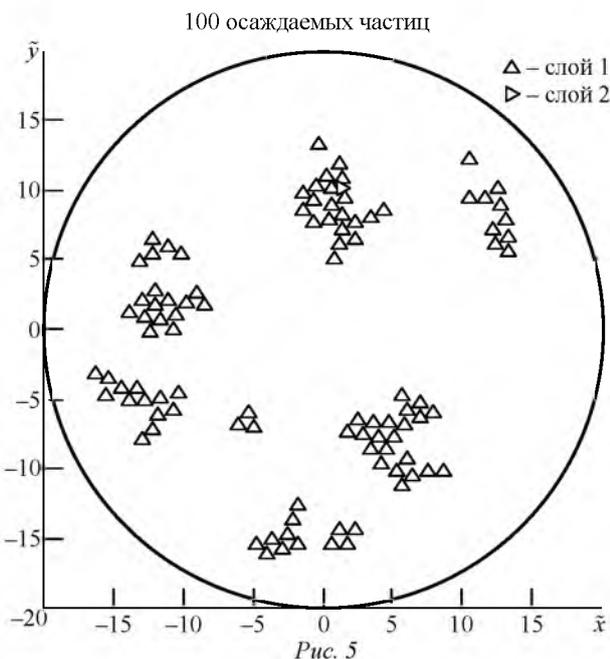


Рис. 5

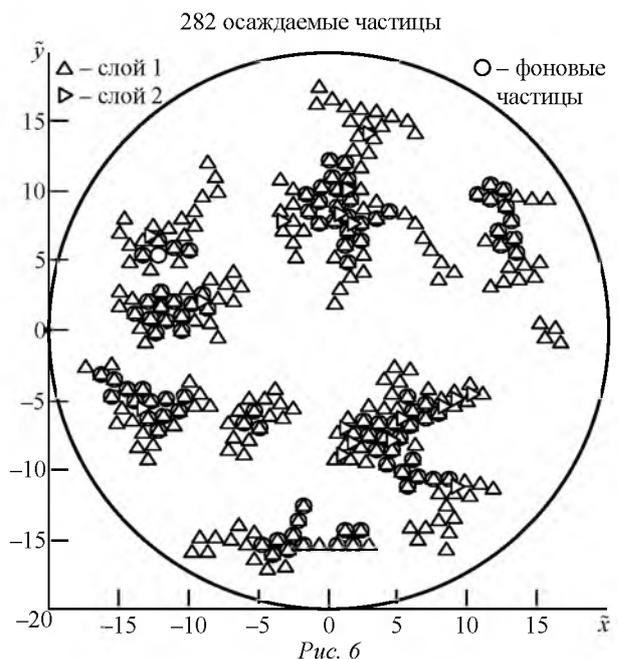
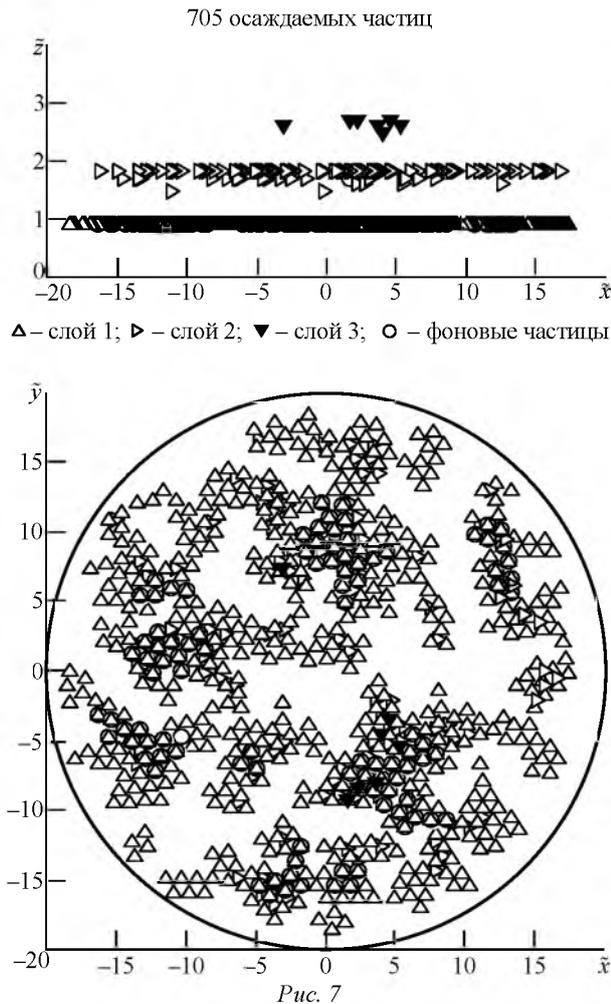


Рис. 6



полняли роль фоновых. В эксперименте оценивалось влияние структуры пленки из ранее осажденных частиц на условие осаждения последующих.

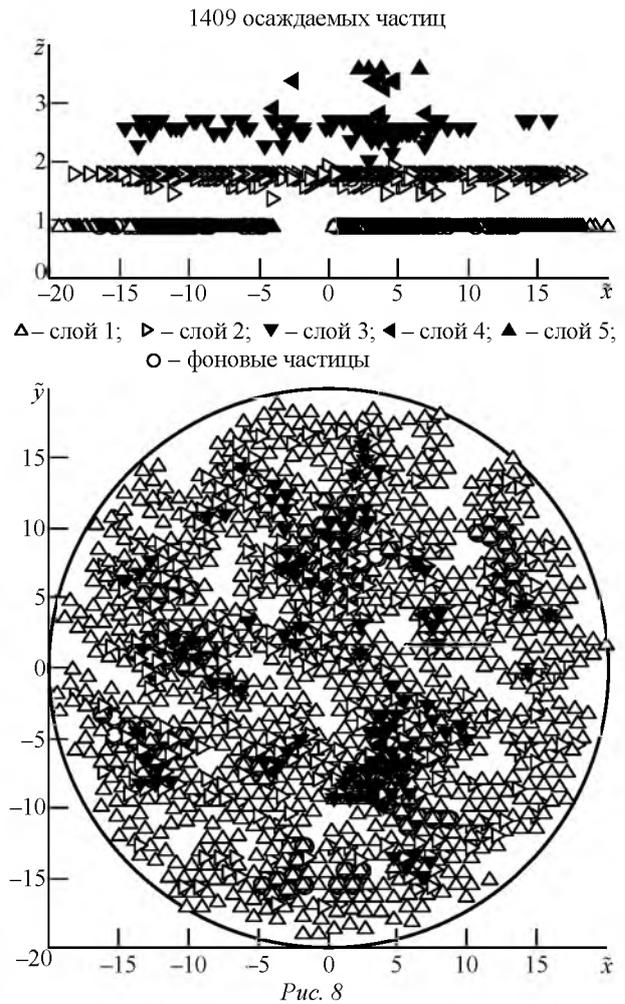
Выводы первого компьютерного эксперимента:

1. Формирование пленки происходит в послонном режиме, что соответствует механизму Франка–Ван-дер-Мерве [9]. Повышенная дефектность осажденной пленки наблюдается по периметру и в верхнем слое. Причиной этого является несбалансированное положение частиц и динамический рост дефектов на уже имеющихся дефектах.

2. Осажденные частицы располагаются на оптимальном или близком к нему расстоянии друг от друга.

3. На начальном этапе при малой толщине пленки ориентация и расположение ранее конденсированных частиц определяют направления роста последующей структуры, в результате чего образуются кластеры частиц. При сближении границ кластеров на расстояние $3r_{opt}$ и менее между ними возникает борьба за захват вновь осаждаемых частиц с последующим укрупнением кластеров.

Корректность проведенного моделирования подтверждает расположение частиц и кластеров согласно пп. 2 и 3.



Компьютерный эксперимент 2. Анализ взаимодействия между испаряемыми частицами и испаряемой частицы с подложкой. Потенциал взаимодействия между частицами и подложкой уменьшен в 100 раз по сравнению с первым экспериментом ($k = 0.1$ в (2)). Графически результаты эксперимента представлены на рис. 9 и 10.

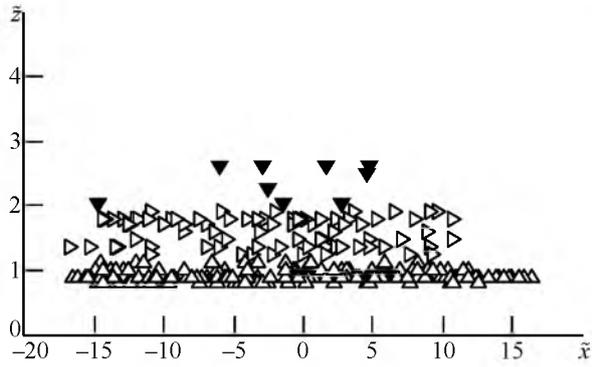
Совместный анализ результатов экспериментов 1 и 2 приводит к следующим выводам:

1. С возрастанием связи между частицами относительно связи между частицами и подложкой возрастает интенсивность формирования кластеров частиц, форма которых стремится к сферической.

2. Процесс осаждения частиц сохраняет свой характер, описанный в выводе 2 по первому эксперименту.

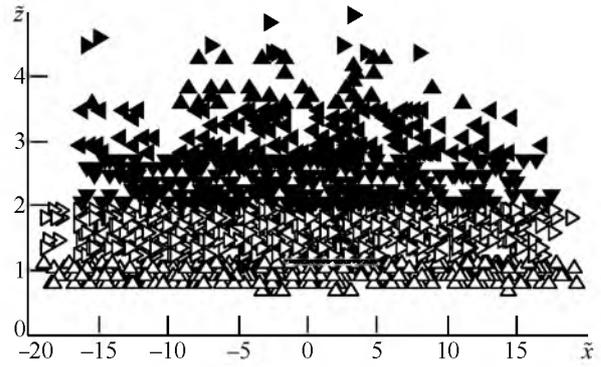
Компьютерный эксперимент 3. Анализ влияния идеальной кристаллической структуры подложки на рост тонкой пленки, кристаллическая структура которой близка к структуре подложки. В данном эксперименте под идеальной структурой подложки подразумевается объемно-центрированная структура с размерами ячейки $\tilde{x}_0 = \tilde{y}_0 =$

282 осаждаемые частицы



▲ – слой 1; ▸ – слой 2; ▼ – слой 3

1409 осаждаемых частиц



▲ – слой 1; ▸ – слой 2; ▼ – слой 3; ◀ – слой 4; ▲ – слой 5; ▹ – слой 6

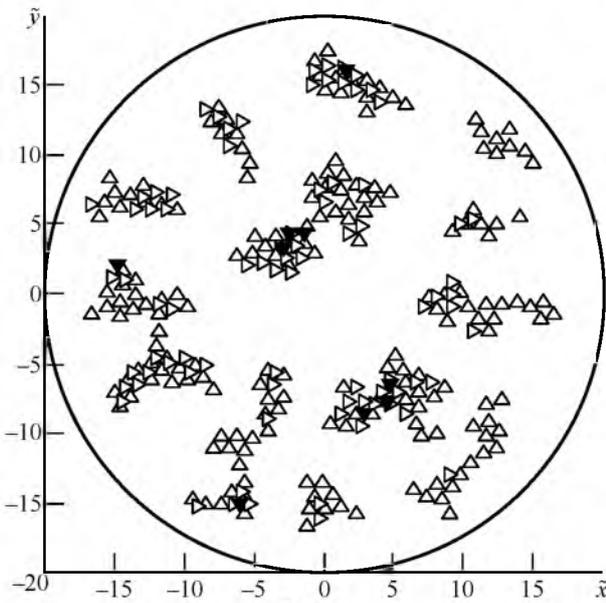


Рис. 9

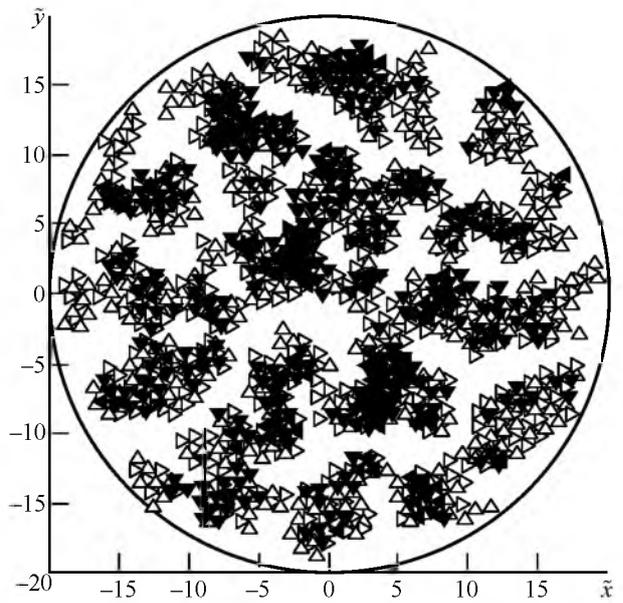
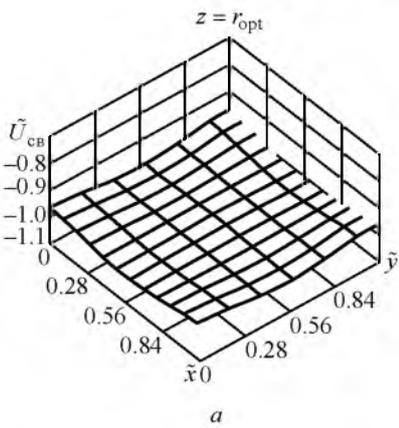


Рис. 10



а

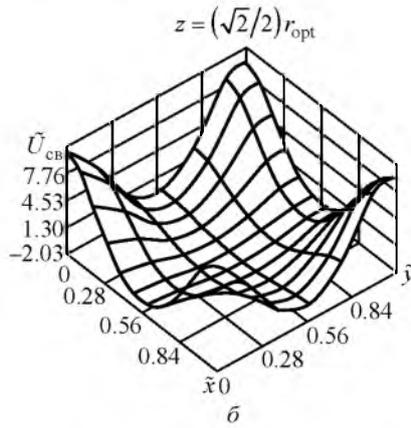
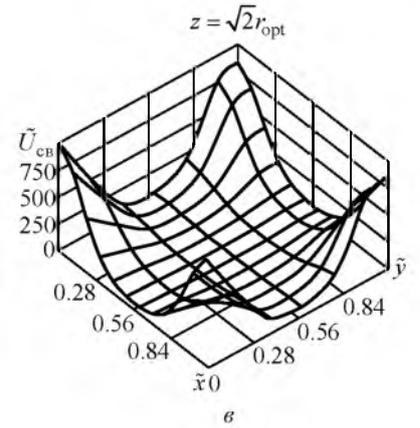
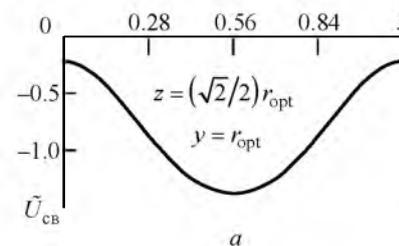


Рис. 11



в



а

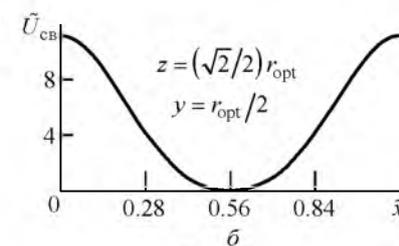
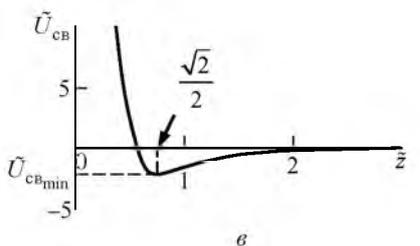


Рис. 12



в

$= \bar{z}_0 = r_{\text{opt}} = \sqrt[3]{2}$ и кристаллографическими углами $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$. Процесс носит характер эпитаксии. Глубина потенциальной ямы подложки принята $\varepsilon_{0\text{подл}} = 1$ (см. рис. 3).

На рис. 11 представлены поверхности потенциала первой частицы $\bar{U}_{\text{св}}$ на разных расстояниях до поверхности подложки. Из приведенных диаграмм следует, что при расстоянии $z = (\sqrt{2}/2)r_{\text{opt}}$ потенциал связи в точке $x_0/2 = y_0/2$ достигает минимума $\bar{U}_{\text{свmin}} = -2.03$. Точка с таким значением потенциала является равновесной, в которой частица разместится с наибольшей вероятностью.

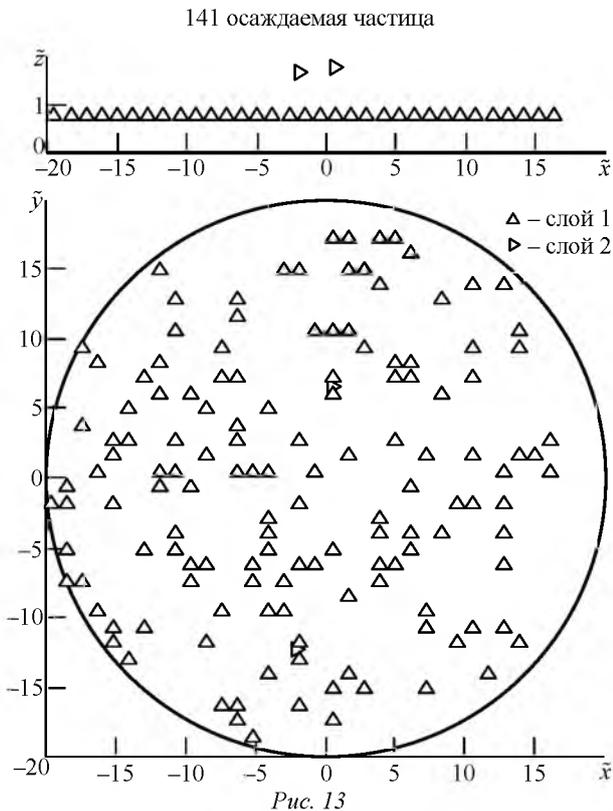
Сечения поверхности потенциала (рис. 11, б) представлены на рис. 12, а, б. Из них следует, что минимум потенциала расположен в точке

$$\bar{x} = \bar{y} = 0.56 = x_0/2 = y_0/2.$$

Учитывая минимум потенциала при $\bar{z} = \sqrt{2}/2$ (рис. 12, в) получим координаты наиболее вероятного расположения первой частицы относительно подложки.

На рис. 13–16 показан результат описанного компьютерного эксперимента в разные моменты времени, различающиеся количеством осажденных частиц.

Выводы третьего компьютерного эксперимента:



1. Структура кластеров в тонкой пленке формируется под управлением потенциального барьера поверхности, который оказывает существенно большее воздействие, чем связь между частицами.

2. Процесс осаждения частиц сохраняет свой характер, описанный в выводе 2 по первому эксперименту.

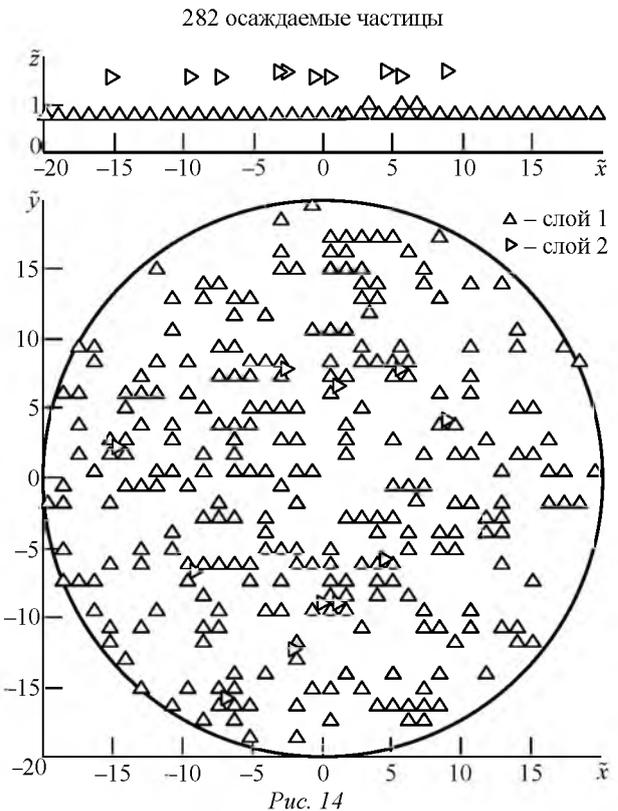
3. Как следует из рис. 12, в, оптимальное расстояние между двумя слоями $r \approx (\sqrt{2}/2)r_{\text{opt}}$.

Компьютерный эксперимент 4. Анализ влияния идеальной кристаллической структуры подложки на рост тонкой пленки, кристаллическая структура которой существенно отличается от структуры подложки. В зависимости от вида испаряемых частиц и материала подложки процесс осаждения может носить различный характер. Далее приведен результат компьютерного эксперимента (рис. 17–19), в котором параметры кристаллической решетки пленки в 2 раза превышают аналогичные параметры для подложки, использованные в эксперименте 3. Потенциал связи в данной структуре в соответствии с [7], [8] определяется по (1) с вводом параметров

$$r_0 = (r_{0\text{подл}} + r_{0\text{пл}})/2 \text{ и } \varepsilon_0 = \sqrt{\varepsilon_{0\text{подл}} \varepsilon_{0\text{пл}}}.$$

Выводы четвертого компьютерного эксперимента:

1. При разнице в параметрах кристаллических решеток пленки и подложки процесс осаждения



705 осаждаемых частиц

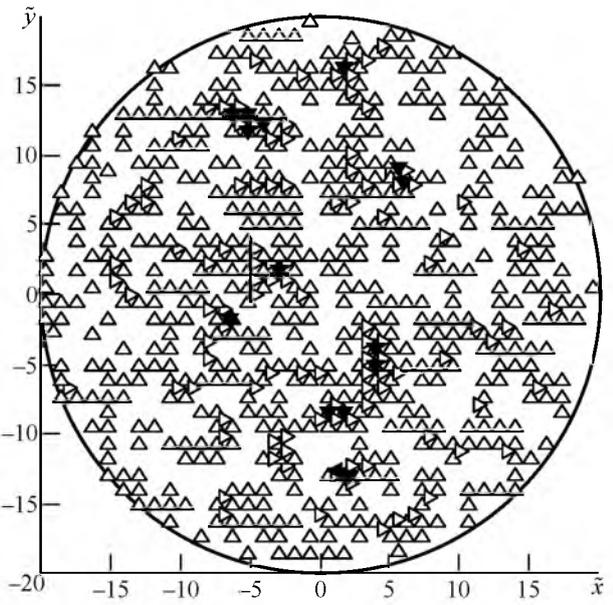
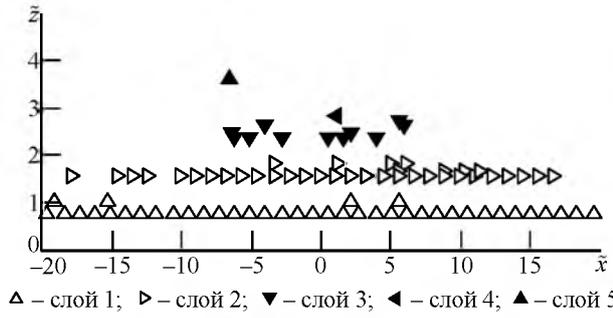


Рис. 15

1409 осаждаемых частиц

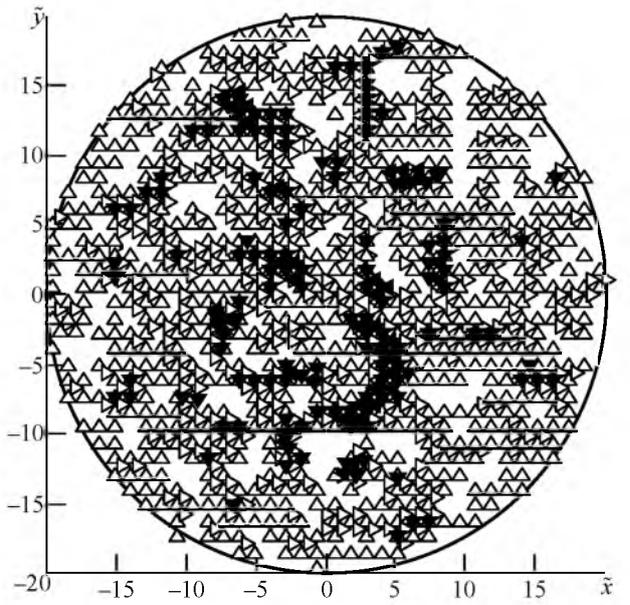
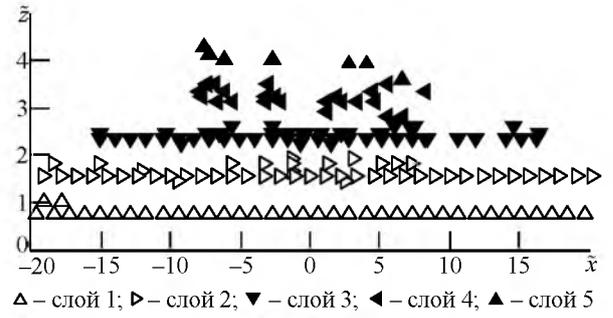


Рис. 16

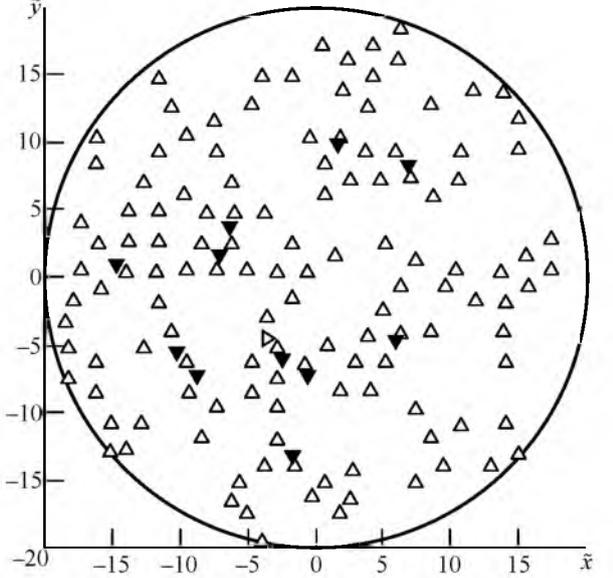
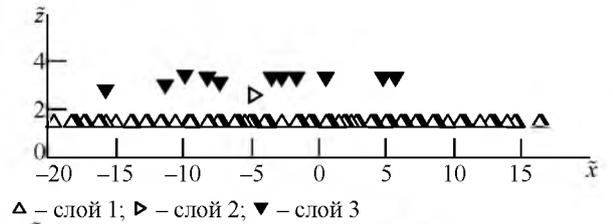


Рис. 17

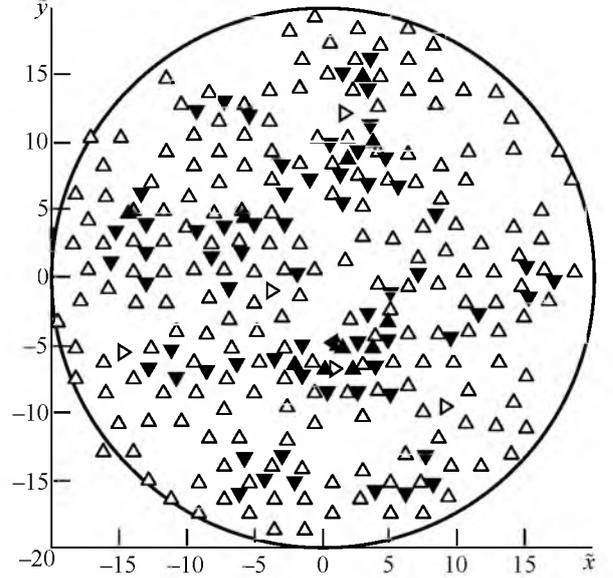
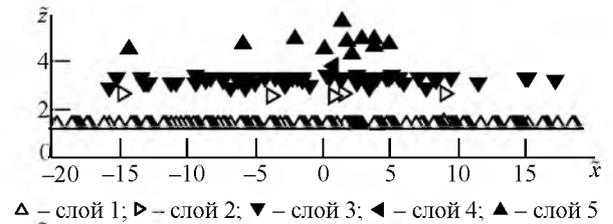
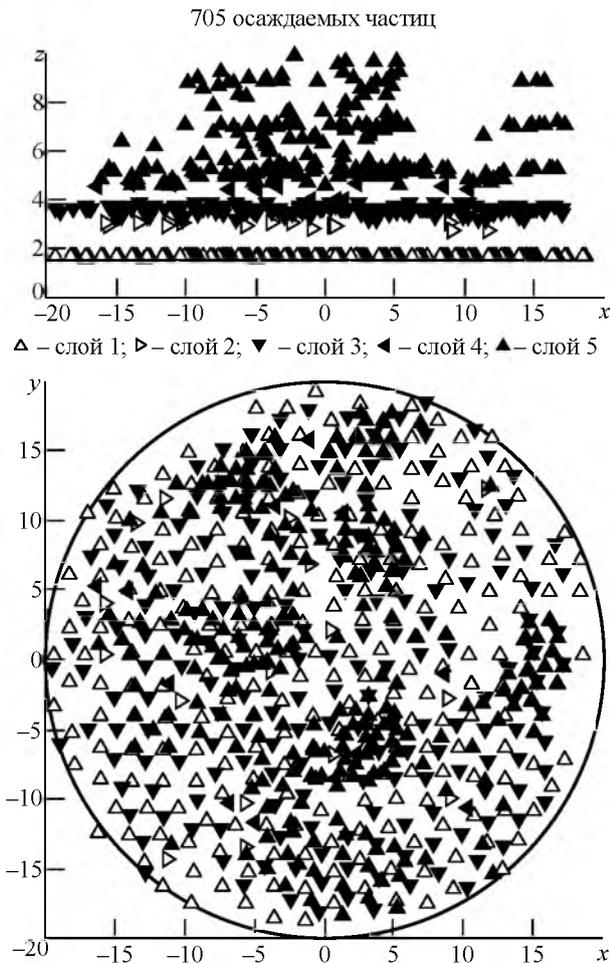


Рис. 18



не является эпитаксиальным. В процессе осаждения возникает значительно больше дефектов, чем при эпитаксиальном процессе (ср. рис. 16 и 19). В эксперименте обнаружено, что время нахождения оптимального положения осаждаемых частиц при неравенстве параметров решеток существенно больше.

2. На границе пленки и подложки возникает переходная структура.

Компьютерный эксперимент 5. Анализ влияния теплового шума на процесс роста тонких пленок и число дефектов структуры. Рассматривается нагрев подложки со спадом температуры от центра анализируемой зоны к периферии.

На рис. 20 показан результат компьютерного моделирования для подложки с неизвестной структурой (аналогично эксперименту 1). Рис. 20, *a* получен в отсутствие теплового шума. Энергия теплового шума для рис. 20, *б* приблизительно в 100 раз меньше глубины потенциальной ямы ε_0 для осаждаемых частиц (см. рис. 4).

На рис. 21 показан результат моделирования для подложки с известной кристаллической структурой

(аналогично эксперименту № 3). Рис. 21, *a* получен в отсутствие теплового шума. Энергия теплового шума для рис. 21, *б* примерно равна глубине потенциальной ямы ε_0 для осаждаемых частиц.

Выводы пятого компьютерного эксперимента:

1. С ростом теплового шума размер кластеров при неизвестной структуре подложки уменьшается, а при известной – увеличивается. В первом случае тепловой шум препятствует процессу кластеризации. Во втором случае этот шум снижает потенциальный барьер подложки, что способствует кластеризации. Следовательно, размером кластеров можно управлять, изменяя температуру процесса осаждения.

2. Чувствительность к тепловому шуму в модели с известной структурой подложки меньше, чем в модели с неизвестной структурой. При анализе процесса роста тонких пленок отмечено, что эта чувствительность возрастает при увеличении площади пленки.

3. С ростом температуры подвижность осаждаемых частиц увеличивается. Это приводит к уменьшению времени формирования кластеров и к росту количества дефектов. Степень влияния шума зависит от соотношения энергии шума и потенциальной ямы осаждаемых частиц.

В результате моделирования процесса формирования пленки на подложке выяснено, что осаждение частиц характеризуется конкуренцией процессов взаимодействия частиц между собой, а также с подложкой. Осажденная пленка представляет собой совокупность кластеров, структура которых определяется соотношением параметров кристаллических решеток пленки и подложки. Форма кластеров зависит от соотношения энергий взаимодействия между частицами пленки и частиц пленки с подложкой. Размер кластеров может регулироваться с помощью теплового воздействия на подложку в процессе осаждения. Процесс осаждения сопровождается возникновением дефектов пленки, количество которых возрастает при наличии теплового воздействия, а также по мере роста отличия параметров кристаллических решеток пленки и подложки.

Кроме факторов, рассмотренных в компьютерных экспериментах и влияющих в данной модели на качество пленки, существуют и другие, пока еще не учтенные в компьютерном моделировании факторы, например: интенсивность по-

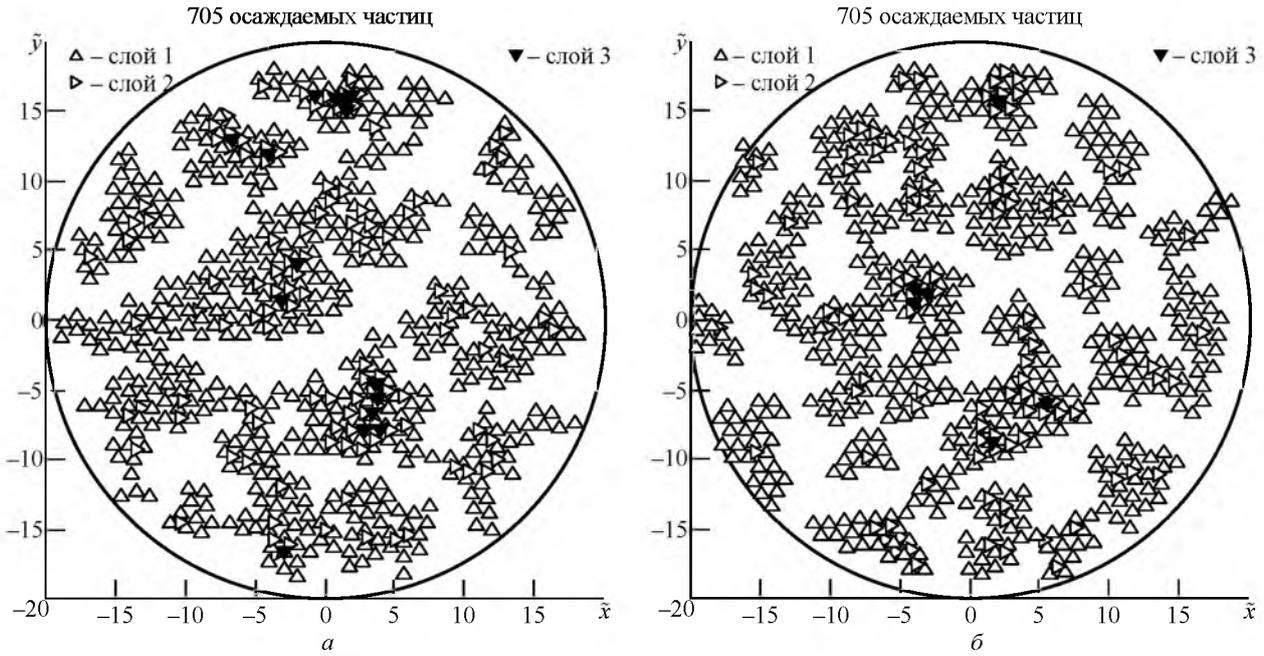


Рис. 20

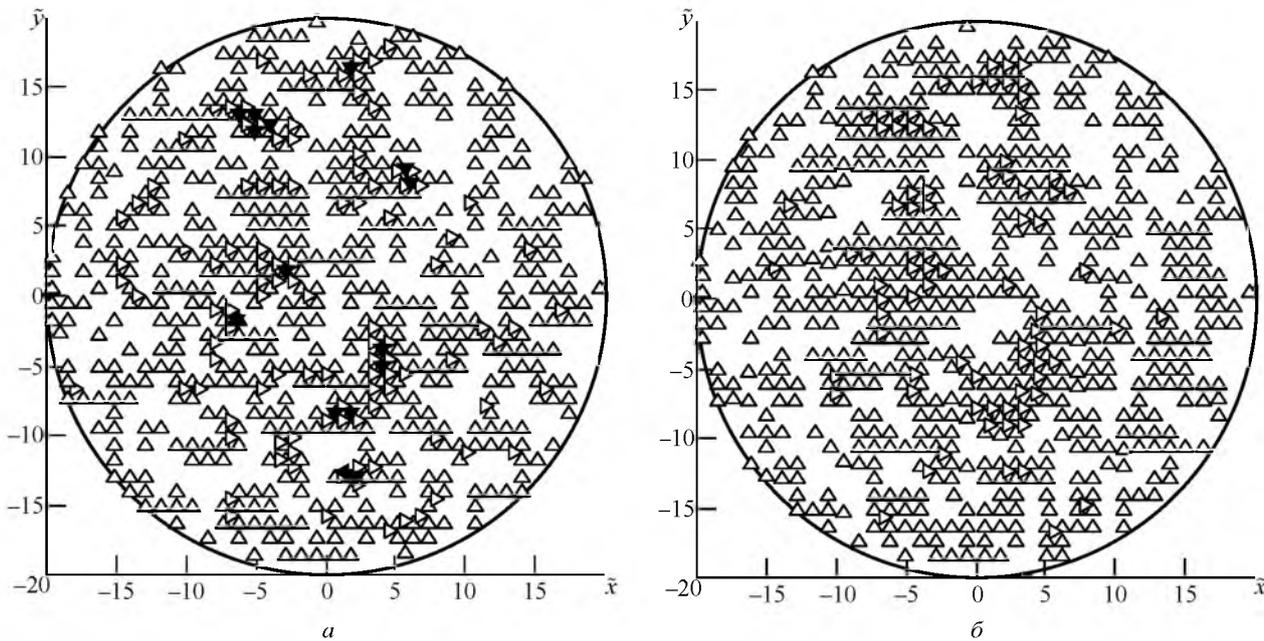
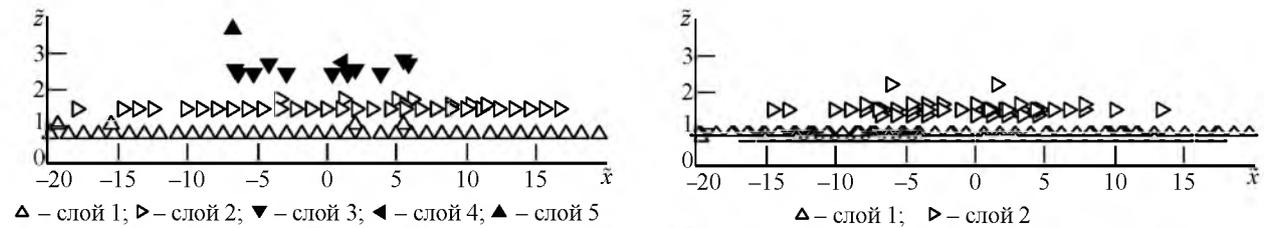


Рис. 21

тока частиц, степень активности перемещения частиц (энергия частиц) и др. Совершенствование модели [10] с целью учета указанных параметров и повышения сложности решаемых задач может быть выполнено известными методами. Оптимизация

процесса получения качественных пленок может базироваться на результате компьютерного моделирования, который позволяет учесть влияние всех отмеченных ранее факторов и оценить ожидаемую структуру формируемой пленки.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Физико-химические процессы синтеза наноразмерных объектов / В. А. Жабрев, В. Т. Калинин, В. И. Марголин и др. СПб.: Элмор, 2012. 328 с.
2. Компьютерное моделирование процессов синтеза наноразмерных плёнок / В. И. Марголин, Л. Ю. Аммон, Д. А. Бабичев, В. С. Фантиков, Чу Чонг Шы // Изв. Академии инженерных наук им. А. М. Прохорова. 2015. № 1. С. 7–13.
3. Modeling Processes of Nanoparticle Synthesis and Analyzing the Results via SEM / V. A. Zhabrev, V. I. Margolin, V. A. Tupik, Chu Trong Su // Bul. of the Russian Academy of Sciences. Physics. 2015. Vol. 79, № 11. P. 1498–1500.
4. Simulating the Aggregation of Nanoparticles on a Substrate Surface upon Vacuum Deposition / V. A. Zhabrev, V. I. Margolin, V. A. Tupik, Chu Trong Su // J. of Surface Investigation, X-Ray, Synchrotron and Neutron Techniques. 2015. Vol. 9, № 5. P. 877–879.
5. Марголин В. И., Жабрев В. А., Турик В. А. Физические основы микроэлектроники : учеб. для студ. высш. учеб. заведений. М.: Академия, 2008. 400 с.
6. Чу Чонг Шы, Бабичев Д. А. Моделирование процессов массопереноса при термическом вакуумном напылении тонких плёнок // Сб. докл. 67-й науч.-техн. конф. профессорско-преподавательского состава Электротехнического университета "ЛЭТИ", Санкт-Петербург, 27 янв.–3 февр. 2014 г. СПб.: Изд-во СПбГЭТУ "ЛЭТИ", 2014. С. 29–33.
7. Rieth M. Nano-Engineering in Science and Technology: An Introduction to the World of Nano-Design // Series on the Foundations of Natural Science and Technology. New Jersey: World Scientific, 2003. Vol. 6. 163 p.
8. Ибрагимов И. М., Ковшов А. Н., Назаров Ю. Ф. Основы компьютерного моделирования наносистем. СПб.: Лань, 2010. 376 с.
9. Введение в физику поверхности / К. Оура, В. Г. Лифшиц, А. А. Саранин и др. М.: Наука, 2006. 490 с.
10. Свид. о гос. регистр. программы для ЭВМ RU 2015610052. Компьютерное моделирование процесса роста тонких плёнок в потенциальном поле (Рост тонких плёнок) / В. И., Марголин, Чу Чонг Шы. Опубл. 20.02.2015.

Chu Trong Su
Saint Petersburg Electrotechnical University "LETI"

Computer Simulation of the Thin Film's Growth Process during Thermal Vacuum Evaporation

The various thin film growth mechanisms during thermal vacuum evaporation at atomic level are considered under different condition. Which factors and how influence on the quality of obtained thin films was demonstrated. The thin film's growth process in intermediately (Stranski-Krastanov) mode was simulated based on Monte Carlo method for determination of active particles' number, and quasi-Newtonian lattice method for determination of optimal direction of particles' motion. On this model in any given conditions the fractal growth process was analyzed. The phenomenon (opportunity) of the control and management of the growth process of thin films was considered.

Computer Simulation, Thin Film's Growth, Thermal Vacuum Evaporation, Monte Carlo Method, Lennard-Jones Potential, Fractal Structure

Статья поступила в редакцию 28 ноября 2015 г.