

НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ИОННОЕ УПЛОТНЕНИЕ ПЛЕНОК НИОБИЯ

И.Г. Марченко, И.М. Неклюдов

Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт», г. Харьков, Украина

Методом молекулярной динамики исследованы физические механизмы низкотемпературного ионного уплотнения; показано, что оно происходит благодаря двум физическим механизмам. Первый механизм связан со сглаживанием поверхностного рельефа пленки во время ионной бомбардировки. Это приводит к уменьшению количества «микротрещин», под которыми располагаются поры. Второй механизм ионного уплотнения определяется повышением плотности пленок в результате вбивания и последующей миграции к микропорам собственных междоузельных атомов.

Для улучшения свойств защитных и упрочняющих покрытий в последние годы широко применяют различные технологии ионного воздействия, позволяющие получать компактные покрытия с хорошей адгезией при низких температурах. Воздействию ионами на осаждаемые пленки, можно эффективно влиять на целый ряд их свойств, в частности, на плотность. Повышение плотности осаждаемых пленок под воздействием ионов при температурах ниже 0,3 температуры плавления известно как явление низкотемпературного ионного уплотнения. Экспериментально установлено, что ионная бомбардировка собственными ионами позволяет достигать плотности пленок равной плотности объемного материала [1]. Данные экспериментов также свидетельствуют, что ионное уплотнение сопровождается изменением размеров блоков и внутренних микронапряжений [2,3]. Для объяснения механизма ионного уплотнения и сопровождающих его эффектов необходимо понимание физических механизмов формирования структуры пленок под облучением.

Несмотря на проведенные экспериментальные работы, а также теоретические модели и компьютерные расчеты, физический механизм низкотемпературного ионного уплотнения до настоящего времени окончательно не установлен, как и не выявлена взаимосвязь ионного уплотнения с изменением микроструктуры пленок, в частности, с изменением блочной структуры.

Целью настоящей работы было изучение физических механизмов низкотемпературного ионного уплотнения металлических пленок методами математического моделирования.

МЕТОДИКА МОДЕЛИРОВАНИЯ

Компьютерное моделирование атомно-ионного осаждения тонких пленок ниобия производилось методом молекулярной динамики с использованием программы DYNAMOD [4]. Расчетная ячейка представляла собой прямоугольный параллелепипед с размерами 4.63, 4.67 и 13.8 нм соответственно по осям X, Y и Z. Оси имели следующие кристаллографические направления: ось X - [100], ось Y - [01-1], ось Z

- [011]. Вдоль направлений X и Y применялись периодические граничные условия. Рост кристаллита происходил в направлении оси Z. Атомно-ионный поток осаждался на пленку, предварительно полученную термическим осаждением [5]. Пленка представляла собой 24 монослоя, осажденных на плотно упакованную плоскость типа {110}. Осаждение пленки проводилось при температуре 300 К. При атомно-ионном осаждении температура расчетного микрокристаллита поддерживалась постоянной при помощи алгоритма коррекции атомных скоростей [6]. Корректировались скорости всех атомов за исключением атомов четырех последних нанесенных монослоев. Взаимодействие атомов описывалось в приближении погруженного атома [7]. Энергия кристаллита рассчитывалась как сумма парных взаимодействий и энергии «внедрения»:

$$E = \sum_i F_i(\rho_i) + \frac{1}{2} \sum_{j \neq i} \varphi_{ij}(R_{ij}), \quad (1)$$

где φ_{ij} – потенциал парного взаимодействия; $F_i(\rho_i)$ – энергия, необходимая для внедрения атома типа i в электронный газ в точке i с электронной плотностью ρ_i . Электронная плотность находилась как

$$\rho_i = \sum_{j \neq i} \rho_j^0(R_{ji}), \quad (2)$$

где $\rho_j^0(R_{ji})$ – электронная плотность от атома типа j на расстоянии R_{ji} в точке i . Функции, описывающие парное межатомное взаимодействие, атомную электронную плотность и функцию внедрения в электронный газ, взяты из работы Джонсона [8]. На малых межатомных расстояниях взаимодействие описывалось потенциалом Хартри-Фока в аппроксимации Мольера [9].

Осаждаемые атомы случайным образом равномерно распределялись в плоскости, параллельной плоскости осаждения. Время осаждения одного монослоя $t_{\text{моно}}$ составляло 0,142 нс. Термически осаждаемые атомы имели энергию 0.2 эВ, характерную для вакуумного осаждения, и импульс, направленный перпендикулярно плоскости осаждения. Ионный поток в компьютерном моделировании имел следующие характеристики: энергия ионов 200 эВ,

количество ионов 10% от общего количества упавших атомов. При этих параметрах в экспериментах наблюдалась максимальная плотность осажденных пленок ниобия.

Анализ атомной структуры пленки и определение поверхностных атомов производились при помощи алгоритма, описанного в работе [10].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 заполненными маркерами показано изменение плотности пленки после осаждения 12 монослоев ниобия из атомно-ионного потока.

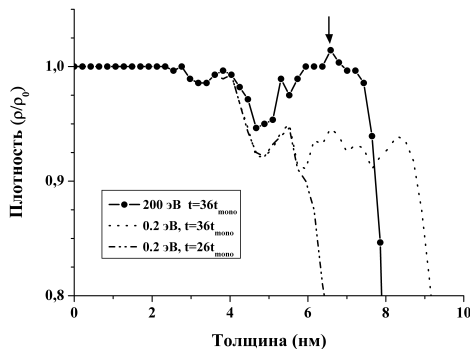


Рис. 1. Изменение пленки по глубине при атомно-ионном осаждении.

Пунктиром для сравнения нанесены данные изменения плотности по глубине термически осажденной пленки при $t=26t_{\text{моно}}$ и $t=36t_{\text{моно}}$.

Данные получены в ходе компьютерного эксперимента по осаждению атомно-ионного потока на пленку, предварительно сформированную путем термического осаждения. Как следует из рисунка, вновь осаждаемые слои достигают плотности массивного материала. Пунктирными линиями показаны значения плотности термически осажденной пленки в момент начала атомно-ионного осаждения и при дальнейшем термическом осаждении без участия ионов. Нужно отметить, что при ионно-атомном осаждении увеличивается плотность не только вновь образуемых слоев, но так же наблюдается изменение плотности в глубине пленки. Обращает на себя внимание факт появления в пленке плотности, превышающей плотность массивного материала (на рисунке отмечено стрелкой). Это связано с появлением в пленке собственных междоузельных атомов, которые образуются при передаче атомам твердого тела кинетической энергии большей, чем пороговая энергия смещения. В результате этого процесса создаются пары Френкеля. При низких энергиях ионов вакансии образуются, как правило, на поверхности пленки. Возникающие в объеме растущей пленки междоузельные атомы мигрируют и могут либо выходить на границу растущей пленки, либо залечивать вакансионные кластеры, образовавшиеся в объеме формирующегося покрытия. Таким образом, одним из механизмов ионного уплотнения при низких энергиях является «залечивание» вакансионных

кластеров собственными междоузельными атомами, образующимися в результате ионного облучения.

Вместе с тем ионное воздействие не сводится только к баллистическому уплотнению. На рис. 2 изображено изменение шероховатости пленки как при ее нанесении термическим способом, так и после атомно-ионного осаждения.

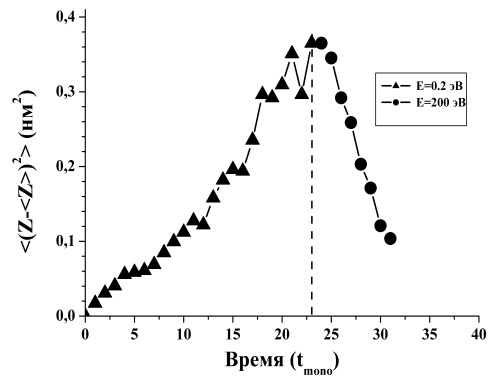


Рис. 2. Изменение величины $\langle (Z - \langle Z \rangle)^2 \rangle$, характеризующей шероховатость поверхности со временем осаждения. После термического осаждения пленки (отмечено на рисунке треугольными маркерами) осуществлялось атомно-ионное осаждение. Единица время $t_{\text{моно}}$ соответствует полному заполнению одного монослоя кристаллита

Шероховатость поверхности характеризовали величиной $\langle (Z - \langle Z \rangle)^2 \rangle$, где усреднение проводилось по всем поверхностным атомам. Для отбора атомов поверхности использовался алгоритм из работы [10]. При термическом осаждении шероховатость растет со временем. Как было показано в работе [5], эта шероховатость связана с возникновением и развитием на поверхности растущей пленки «микротрещин», при росте которых под ними образуется область, обогащенная вакансионными кластерами. Ионное облучение увеличивает подвижность поверхностных атомов, что приводит к блокированию механизма образования «микротрещин» на поверхности растущей пленки. После начала ионной бомбардировки шероховатость пленки начинает резко падать (см. рис. 2). Таким образом, вторым механизмом повышения плотности пленок при ионной бомбардировке является подавление механизма образования «микротрещин». Вследствие этого повышение плотности должно сопровождаться увеличением размеров блочной структуры. Как следует из анализа работ [2,3], такая корреляция действительно наблюдается при атомно-ионном осаждении.

ВЫВОДЫ

В работе исследован эффект низкотемпературного ионного уплотнения и связанное с ним изменение микроструктуры пленок ниобия. Показано, что ионное воздействие влияет на рельеф растущей пленки. Установлено, что при ионной бомбардировке собственными ионами с энергией 200 эВ плотность образующейся пленки повышается и достига-

ет плотности массивного материала. Эти данные хорошо совпадают с экспериментальными результатами, полученными методом атомно-ионного осаждения.

Показано, что низкотемпературное ионное уплотнение происходит благодаря двум физическим механизмам. Первым механизмом является вбивание собственных междоузельных атомов в объем растущей пленки. Вторым механизмом связан с блокированием развития «микротрещин» на поверхности растущей пленки вследствие повышения подвижности атомов в приповерхностном слое.

Работа выполнена в рамках Программы проведения фундаментальных исследований по атомной науке и технике ННЦ ХФТИ.

1.

2. ЛИТЕРАТУРА

1.И.В. Алексеев, Л.В. Булатова, Н.П. Дикий и др. Исследование параметров микро- и субструктуры толстых покрытий, полученных вакуумной конденсацией высокоплотных атомных и атомно-ионных потоков // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «ФРП и РМ»*. 1987, в. 1 (2), с. 73–90.

2.С.Н. Слепцов, И.Г. Марченко, Л.В. Булатова, А.Н. Слепцов, Ю.И. Поляков. Структурное состояние толстых конденсатов ниобия, осажденных из собственных атомно-ионных потоков // *Вопросы атомной и техники. Серия «ФРП и РМ»*. 1993, в. 1(60), с. 62–69.

3.С.Н. Слепцов, И.Г. Марченко, А.Н. Слепцов. Тонкая структура конденсатов ниобия, сформирован-

ных из ионно-атомных потоков в атмосфере гелия // *Физика и химия обработки материалов*. 1994, №4-5, с. 94–100.

4.В.В. Ганн, И.Г. Марченко. *Комплекс программ "ДИМОД" для динамического моделирования дефектов в металлах и сплавах*: Препринт №87-24. Харьков: ХФТИ АН УССР, 1987, 10 с.

5.И.Г. Марченко, И.И. Марченко, И.М. Неклюдов. Компьютерное моделирование вакуумного осаждения пленок ниобия // *Вестник Харьковского университета. Сер. Ядра, частицы, поля*. 2004, № 628, в. 2 (24), с. 93–98.

6.W.D. Luedtke, Uzi. Landman. Molecular-dynamics studies of the growth modes and structure of amorphous silicon films via atom deposition // *Phys. Rev. B*. 1989, v.40, N 17, p. 11733–11745.

7.M.I. Baskes. Modified embedded-atom potentials for cubic materials and impurities // *Phys. Rev. B*. 1992, v. 46, N 5, p. 2727–2742.

8.R.A. Johnson, D.J. Oh. Analytic embedded atom method model for bcc metals // *J. Mater. Res*. 1989, v. 4, N5, p. 1195–1201.

9.К. Лейман. *Взаимодействие излучения с твердым телом и образование элементарных дефектов*. М.: «Атомиздат», 1979, 296 с.

10.И.Г. Марченко, И.И. Марченко, И.М. Неклюдов. Определение атомной структуры поверхности тонких пленок в методе молекулярной динамики // *Вопросы атомной и техники. Серия «ФРП и РМ (85)»*. 2004, №3, с. 26–30.

НИЗКОТЕМПЕРАТУРНЕ ІОННЕ УЩІЛЬНЕННЯ ПЛІВОК НІОБІЯ

І.Г. Марченко, І.М. Неклюдов

3.

4. Методом молекулярної динаміки вивчені фізичні механізми низькотемпературного іонного ущільнення. Показано, що іонне ущільнення відбувається завдяки двом фізичним механізмам. Перший механізм пов'язаний із згладжуванням рельєфу поверхні при іонному бомбардуванні. Це призводить до зменшення кількості «мікротріщин», під якими розташовуються пори. Другий механізм іонного ущільнення визначається підвищенням густини плівок за рахунок вбивання і наступній міграції міжвузельних атомів до мікропор.

5.

6.

7.

LOW TEMPERATURE ION DENSIFICATION OF NIOBIUM FILMS

I.G. Marchenko, I.M. Neklyudov

The paper is about the physical mechanism of low temperature ion densification of the films performed by the method of molecular dynamics. The investigation shows that the ion densification occurs due to two physical mechanisms. The first mechanism is related with the film smoothing under ion bombarding. It leads to decreasing the quantity of “microcracks” below which pores take place. The second mechanism is the ion densification of films at the expense of knocking-in of interstitial atoms and its further migration to micro voids.

8.