

**А. С. КУЦЕНКО**, д-р техн. наук, профессор НТУ «ХПИ»;  
**И. И. МАРЧЕНКО**, ассистент НТУ «ХПИ»

### КОМПЬЮТЕРНАЯ МОДЕЛЬ ПРОЦЕССА НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОГО ОСАЖДЕНИЯ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК ИЗ АТОМНО-ИОННЫХ ПОТОКОВ

Разработан алгоритм моделирования формирования металлических тонких плёнок при низких температурах. При помощи данного алгоритма были проведены тестовые расчеты осаждения тонкой пленки меди. Полученные результаты моделирования находятся в согласии с имеющимися экспериментальными данными.

**Ключевые слова:** математическое моделирование, молекулярная динамика, вычислительный алгоритм.

Розроблено алгоритм моделювання формування металевих тонких плівок при низьких температурах. За допомогою даного алгоритму були проведені тестові розрахунки осадження тонкої плівки міді. Отримані результати моделювання знаходяться у згоді з наявними експериментальними даними.

**Ключові слова:** математичне моделювання, молекулярна динаміка, обчислювальний алгоритм.

The simulation algorithm of the formation of metallic thin films at low temperatures was proposed. Using this algorithm test simulations of copper thin film deposition were made. The obtained simulation results are in agreement with the available experimental data.

**Keywords:** mathematical modeling, molecular dynamics, calculation algorithm.

**Введение.** В настоящее время для исследования эффектов, происходящих при осаждении наноразмерных плёнок, широкое распространение получил метод молекулярной динамики (МД) [1–2]. При помощи этого метода удается получить подробное описание наноструктуры получаемого материала при высоких температурах образца. Однако в областях температур ниже Дебаевских важную роль начинают играть квантовые эффекты, что не дает возможности применить классический метод МД при температурах образца ниже 300К.

В работе [3] был сформулирован метод молекулярной динамики с цветным шумом, который позволяет адекватно моделировать процесс осаждения металлических пленок при низких температурах. Однако, в этой работе не был описан вычислительный алгоритм. Поэтому целью данной работы являлась разработка вычислительного алгоритма моделирования процесса формирования металлических тонких плёнок при низких температурах.

**Алгоритм моделирования процесса низкотемпературного осаждения металлических пленок.** На начальном этапе моделирования задаются

параметры осаждаемого материала, температура образца  $T$  и интенсивность потока осаждаемых частиц  $\mu$ , устанавливаются линейные размеры  $(x_s, y_s, z_s)$  моделируемой ячейки. На рис. 1 изображено ее схематическое изображение.

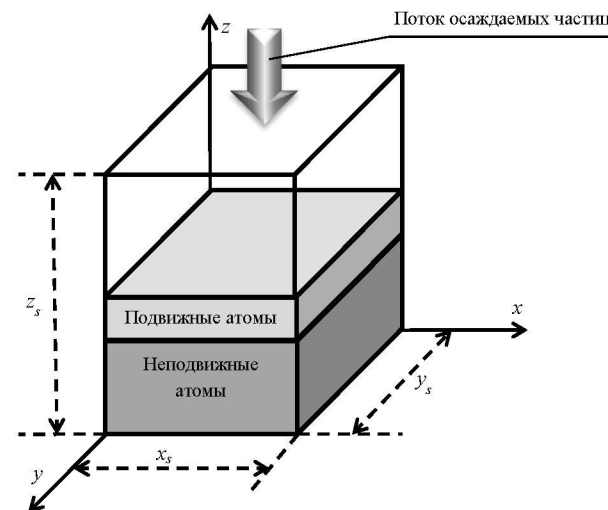


Рис. 1 Схематическое изображение расчетной ячейки

В предложенном алгоритме для пространственной координаты  $x$  вводятся периодические граничные условия следующим образом:

$$x = \begin{cases} x - x_s, & \text{если } x > x_s \\ x_s - x, & \text{если } x < 0 \end{cases}, \quad |x| < 2 \cdot x_s. \quad (1)$$

Аналогично вводятся граничные условия для  $y$ .

По координате  $z$  вводятся жесткие граничные условия,  $z \geq 0$ . Для обеспечения жестких условий формируется подложка из 5 слоев атомов с фиксированными координатами. Для того чтобы граничные условия не влияли на процесс осаждения пленок, в расчетную ячейку вводится 10 слоев подвижных атомов (рис. 1). Для расчета координат атомов в зависимости от вида кристаллической решетки моделируемого материала определяются геометрические координаты  $i$ -х атомов  $\mathbf{x}_0^{(i)}$  ( $i = 1..N$ ) при помощи векторов трансляции  $(r_x, r_y, r_z)$  [4]. Для всех подвижных атомов  $i$  задаются начальные случайные силы по формуле [3]

$$\Xi_0^{(i)} = \sqrt{2M\Gamma kT\lambda} \mathbf{R}_{norm}^{(i)}, \quad (2)$$

где верхний индекс обозначает номер атома,  $M$  – атомарная масса атома,  $\Gamma$  – коэффициент диссипации,  $k$  – постоянная Больцмана,  $\mathbf{R}_{norm}^{(i)}$  – вектор случайных стандартных нормально-распределенных чисел, который находится при помощи метода Бокса — Мюллера [5]. Параметр  $\lambda$  определяется по формуле  $\lambda = kT / (\hbar\sqrt{e-2})$ , где  $\hbar$  – постоянная Планка.

В начальный момент времени  $t$  так же задается временной шаг моделирования  $\Delta t$ . Временной шаг выбирается таким образом, чтобы невязка в законе сохранения энергии на каждом шаге не превышала некоторой наперед заданной величины  $\Delta E_{tot}$ , соответствующей точности численного интегрирования уравнений движения [2].

В течение заданного временного интервала  $\tau$  производятся расчеты уравнений движения всей системы до достижения термического равновесия при помощи метода Верле [6]. Для этого для каждого времени  $t + \Delta t / 2$  вычисляется вектор скоростей атомов по формуле

$$\mathbf{V}_{t+\Delta t/2}^{(i)} = \left( \mathbf{V}_{t-\Delta t/2}^{(i)} + \frac{(\mathbf{F}_t^{(i)} + \Xi_t^{(i)})}{M} \Delta t \right) (1 - \Gamma), \quad (3)$$

где индекс внизу обозначает значение величины в соответствующий момент времени,  $\mathbf{F}_t^{(i)}$  – сила, действующая на  $i$ -й атом со стороны атомов окружения в момент времени  $t$ .  $\Xi_t^{(i)}$  определяет вектор случайной силы, который вычисляется по формуле

$$\Xi_t^{(i)} = \Xi_{t-\Delta t}^{(i)} (1 - \lambda \Delta t) + \lambda \sqrt{2M\Gamma kT \Delta t} \mathbf{R}_{norm}. \quad (4)$$

Поскольку в данной работе рассматривается осаждение металлов, то для расчета  $\mathbf{F}_t^{(i)}$  может быть использован метод внедренного атома (embedded atom) [7], в соответствии с которым:

$$\mathbf{F}_t^{(i)} = - \sum_{j \neq i} \left( \left[ \frac{\partial f(\rho_t^{(i)})}{\partial \rho_t^{(i)}} \frac{\partial \psi(r_t^{(ij)})}{\partial r_t^{(ij)}} + \frac{\partial f(\rho_t^{(j)})}{\partial \rho_t^{(j)}} \frac{\partial \psi(r_t^{(ij)})}{\partial r_t^{(ij)}} + \frac{\partial \phi(r_t^{(ij)})}{\partial r_t^{(ij)}} \right] \times \frac{\mathbf{x}_t^{(i)} - \mathbf{x}_t^{(j)}}{r_t^{(ij)}} \right), \quad (5)$$

где  $f(\rho_t^{(i)})$  – функция внедрения, зависящая от электронной плотности  $\rho_t^{(i)}$  атома  $i$  в момент времени  $t$ ,  $\psi(r_t^{(ij)})$  – распределение электронной плотности вокруг отдельного атома,  $\phi(r_t^{(ij)})$  – потенциал парного взаимодействия,  $r_t^{(ij)}$  – расстояние между атомами  $i$  и  $j$ ,  $\mathbf{x}_t^{(i)}$  – вектор координат  $i$ -го атома. Функции  $f$ ,  $\psi$ ,  $\phi$  и их производные задаются в зависимости от конкретного материала [7].

Для нахождения  $\mathbf{F}_t^{(i)}$  вначале вычисляется электронная плотность для каждого атома по формуле

$$\rho_t^{(i)} = \sum_{j \neq i} \psi(r_t^{(ij)}). \quad (6)$$

После нахождения вектора скоростей всех атомов по соотношению (3), вычисляются их координаты в следующий момент времени  $t + \Delta t$ :

$$\mathbf{x}_{t+\Delta t}^{(i)} = \mathbf{x}_t^{(i)} + \mathbf{V}_{t+\Delta t/2}^{(i)} \Delta t. \quad (7)$$

По завершению вычисления скоростей время моделирования  $t$  увеличивается на временной шаг  $\Delta t$  и вычисления повторяются снова.

После процедуры термализации в расчетную ячейку вводятся новые атомы или ионы заданной энергии, падающие на поверхность (рис. 1). Их координаты задаются случайным образом в плоскости осаждения с помощью генератора случайных чисел. Расстояние атомов от поверхности выбирается таким образом, чтобы падающий атом находился на расстоянии большем, чем радиус действия потенциала от самой высокой точки микрокристаллита.

При моделировании предполагалось, что время появления новых атомов может быть описано Пуассоновским потоком [8]. Как следствие, временной интервал между появлениями новых частиц вычисляется по следующей формуле:

$$\tau = -\frac{1}{\mu} \ln(R), \quad (8)$$

где  $R$  – равномерно распределенное от 0 до 1 случайное число,  $\mu$  – интенсивность потока частиц

Процесс моделирования завершается по достижению заданного времени  $t_{stop}$ . Результате выполнения приведенного алгоритма будут векторы, описывающие положение и скорости всех атомов расчетной ячейки на последнем временном шаге.

На рис. 2 приведена блок-схема предложенного алгоритма.

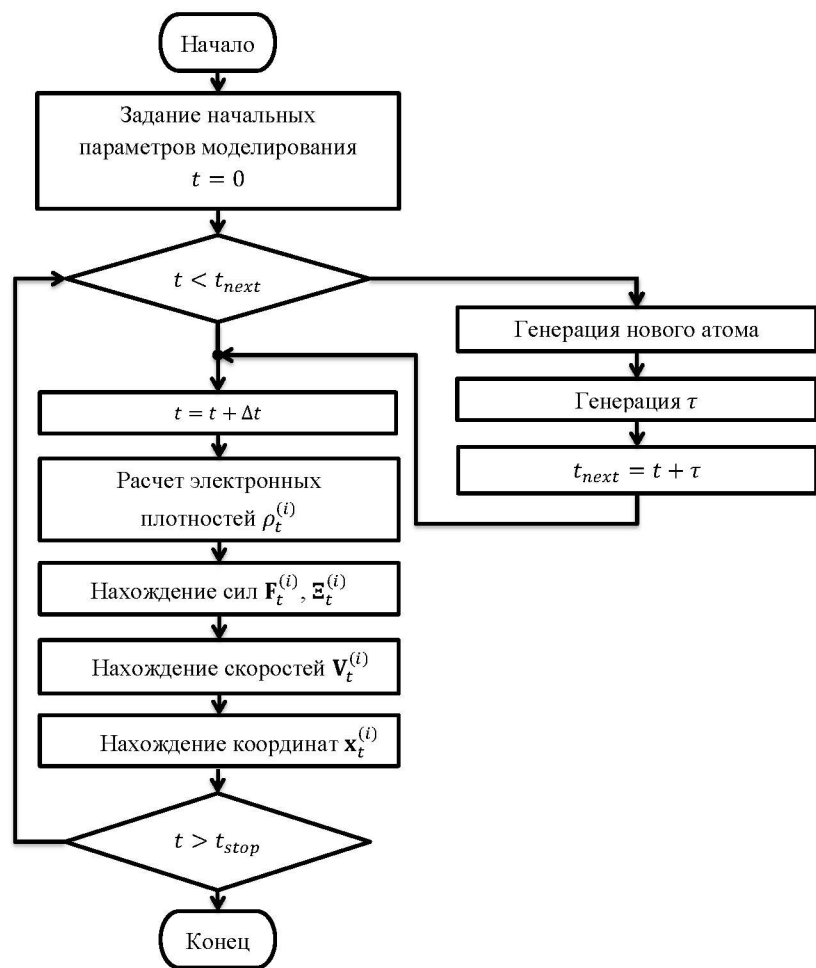


Рис. 2 Блок-схема алгоритма моделирования процесса низкотемпературного осаждения металлических пленок

**Результаты компьютерного моделирования.** При помощи разработанного алгоритма был промоделирован процесс гомоэпитаксиального осаждения тонкой плёнки меди на плоскость  $(111)$ . На рис. 3 приведены срезы плоскости  $(\bar{1}10)$  пленки меди для различных времен осаждения, полученные путем компьютерного эксперимента. Как видно из рисунка, гладкая поверхность является неустойчивой. В результате развития морфологической неустойчивости с течением времени шероховатость

увеличивается. Внутри пленки образуются вакансионные комплексы, что приводит к уменьшению плотности материала. Полученные результаты согласуются с имеющимися экспериментальными данными, приведенными в работе [9].

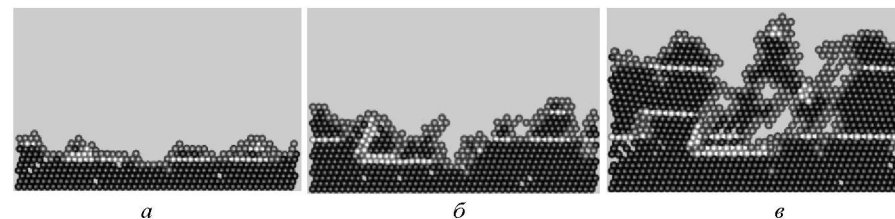


Рис. 3 Результаты моделирования тонкой пленки меди для различных времен.  $T = 300\text{K}$ . Темный цвет – атомы меди внутри материала, серый – поверхностные атомы, светлый – дефекты упаковки; а – время осаждение 10 монослоев; б – 20 монослоев; в – 30 монослоев.

**Выводы.** В работе разработан алгоритм моделирования формирования металлических тонких плёнок при низких температурах. Были проведены тестовые расчеты осаждения тонкой пленки меди. Результаты моделирования находятся в согласии с имеющимися экспериментальными данными. Полученные в этой работе результаты могут быть использованы для прогнозирования структуры каталитических материалов с большой удельной площадью поверхности.

**Список литературы:** 1. Haile J. M. Molecular Dynamics Simulation: Elementary Methods / J. M. Haile. - Chichester : Wiley, 1992. - 489 p. 2. Allen M. P. The Art of Molecular Dynamics Simulation / M. P. Allen, D. J. D. C. Rapaport. - Cambridge: Cambridge University Press, 1996. - 564 p. 3. Марченко И. Г. Молекулярная динамика с квантовой статистикой для исследования динамических свойств металлов / И. Г. Марченко, И. И. Марченко // Вестник ХНУ. - 2010. - № 933 : Сер. «Ядра, частицы, поля». Вып. 4 (48). - С. 41 - 48. 4. Шаскольская М. П. Кристаллография: Учеб. пособие для вузов. - 2-е изд. / М. П. Шаскольская. - М: Высш. Шк., 1984. - 376 с. 5. Box G. E. P. A note on the generation of normal random deviates / G. E. P. Box, M. E. Muller. - Ann. Math.Stat. - 1958. - Vol. 29. - 610-611 P. 6. Verlet L. Computer «Experiments» on Classical Fluids. I. Thermodynamical Properties of Lennard-Jones Molecules / L. Verlet // Phys.Rev. - 1967. - Vol. 159. - P. 98-103. 7. Daw M. S. Embedded-atom method: derivation and application to impurities, surfaces and other defects in metals / M. S. Daw, M. J. Baskes // Phys. Rev. B. - 1984. - Vol. 29. - P. 6443-6453. 8. Бусленко, Н. П. Метод статистических испытаний (Монте-Карло) и его реализация на цифровых вычислительных машинах : монография / Н. П. Бусленко, Ю. А. Шрейдер. - М. : Физматгиз, 1961. - 226 с. 9. Fowler D. E. Structure and dynamics of the Cu (001) surface investigated by medium-energy ion scattering / D. E. Fowler, J. V. Barth // Phys. Rev. - 1995. - Vol. B52. - P. 2117-2124.

Надійшла до редколегії 12.12.2012