## RUGOSIDAD Y CINETICA SUPERFICIAL EN LA FORMACION DE MICROSTRUCTURAS EN PELICULAS DELGADAS

Sun M. Paik, Sihong Kim, <u>Ivan K. Schuller</u>, Physics Department B-019, University of California, SanDiego, La Jolla, CA 92093

R. Ramírez, Facultad de Física, Universidad Católica, Santiago, Chile

ABSTRACT. Formation of columnar structures in a thin film grown by direct deposition was studied using full molecular dynamics simulation. The effects of substrate temperature, beam energy and surface roughness was investigated. Small surface perturbation evolve into columnar structure with orientations exhibiting the empirical tangent relationship.

La formación de microestructuras en películas delgadas es una técnica importante y un problema de investigación básica que ha recibido mucha atención recientemente. La deposición de películas delgadas sobre substratos mantenidos a bajas temperaturas bajo el punto de fusión del sólido ocurre en condiciones altamente fuera de equilibrio, en contraste con la solidificación de sólidos cerca del equilibrio. Como consequencia de esto un exceso de volumen se observa generalmente en películas delgadas depositadas por evaporación.<sup>1,2</sup>

Las propiedades físicas de películas delgadas están fuertemente influenciadas por este tipo de microestructuras, las que producen efectos de anisotropía en las propiedades eléctricas y magnéticas,<sup>3</sup> amplificación de la adsorbción de gases,<sup>4</sup> efectos ópticos,<sup>5</sup> retardo de la cristalización epitaxial,<sup>6</sup> etc.

Para altas ratas de deposición (típicamente  $10^2 - 5 \times 10^3 \text{Å/seg.}$ ), estudios experimentales han mostrado tres regiones de temperatura diferentes (referidas como "zona I, II y III") en las cuales se forman microestruturas morfológicamente distintas.

En la zona I bajo  $0.3T_m$  (donde  $T_m$  es la temperatura de fusión del cristal) la microestructura es porosa y contiene muchos vacíos interconectados alrededor de una estructura de columnas. Se ha encontrado que la formación de estructuras de columnas es insensible a la naturaleza de las interacciones atómicas, al ordenamiento atómico (cristalino o amorfo) y a la presencia de impurezas. La estructura de columnas se observa más pronunciadamente en una deposición oblícua con columnas que están generalmente inclinadas hacia la perpendicular al plano de substrato en un ángulo  $\beta$ , el cual es menor que el ángulo de incidencia  $\alpha$ . Estos ángulos están relacionados entre sí por la llamada "regla de la tangente":

$$\tan \beta = \frac{1}{2} \tan \alpha,\tag{1}$$

la cual fué encontrada en películas cristalinas de Al por Nieuwenhuizen y Haanstra.<sup>8</sup>

Varios modelos <sup>2,9-13</sup> han sido propuestos para estudiar el crecimiento en columnas. Por ejemplo, cálculos en modelos fenomenológicos predicen que perturbaciones mayores que una longitud de onda crítica pueden crecer y llevar a

una estructura de columnas a temperaturas de sustrato muy bajas. Simulaciones numéricas anteriores <sup>2,9</sup> emplearon ya sea un mecanismo de congelamiento (las partículas incidentes se paran en la posición de impacto sin permitir ninguna relajación) o un mecanismo de templado en el cual se introduce una gran fuerza disipativa artificial que reduce la mobilidad de las partículas en la superficie. Aunque estas simulaciones proveen un demostración instructiva del mecanismo de auto-sombra, no es posible estudiar el rol de los parámetros dinámicos tales como la temperatura del substrato, el cual es uno de los factores más importantes en el crecimiento de columnas. La densidad de la película obtenida por esta simulaciones es mucho menor que que aquellas encontradas experimentalmente. Aún más se han obtenido en general estructuras amorfas, lo que no es el caso en películas delgadas metálicas monoatómicas. Por este motivo es deseable realizar una simulación dinámica completa a fin de entender la formación de las microestructuras dentro de un modelo microscópico bien definido.

En este trabajo, simulamos la formación de estructuras en columnas en una película delgada cristalina usando las técnicas de simulación de la dinámica molecular. En este tipo de simulaciones, una vez que se tiene el potencial interatómico, no se hace ninguna suposición con respecto al mecanismo de crecimiento. La finalidad de este trabajo es investigar el efecto de una pequeña perturbación sobre la estructura de columnas, la cual es estudiada bajo varias condicones de crecimiento, que incluyen el ángulo incidente, la energía del haz, la temperatura del substrato y las irregularidades de la superficie. Encontramos que pequeñas perturbaciones lleva a la formación de estructuras de columnas. Las columnas, producidas por las incidencia oblícua, están inclinadas hacia la dirección perpendicular al plano del substrato en un ángulo menor que el haz incidente. La estructura de columnas es observada sólo a bajas temperaturas del substrato, menores que  $0.3T_m$ . Sin embargo, esta estructura es observada sobre un amplio rango de energías del haz (entre  $0.2T_m$  y  $2T_m$ ), aunque el grosor de las columnas crece con la energía del haz.

Estudiamos un sistema de dos dimensiones con átomos que interactúan via un potencial de Lennard-Jones:  $-4\varepsilon[(\sigma/r)^6-(\sigma/r)^{12}]$ , truncado en  $r=|r_i-r_j|=2.5\sigma$ . El substrato consiste de tres capas móviles de cincuenta átomos cada una sobre un substrato rígido. Inicialmente los átomos del substrato se colocan en posiciones cristalinas exactas, y entonces se asignan velocidades de acuerdo a una distribución de Maxwell-Boltzmann.

Las condiciones de borde periódicas usuales no son apropiadas para este tipo de simulación, especialmente con valores grandes α, ya que al crecer las columnas inclinadas, pueden eventualmente cruzar el borde. Empleamos, por lo tanto, condiciones de borde dinámico en el cual un frente de crecimiento fuera del borde crece a la misma velocidad que el frente más cercano dentro del borde. Mientras el crecimiento del frente avanza, la localización del borde se mueve dinámicamente de acuerdo al comportamiento del crecimiento, mientras que el tamaño del sistema se mantiene a volumen constante.

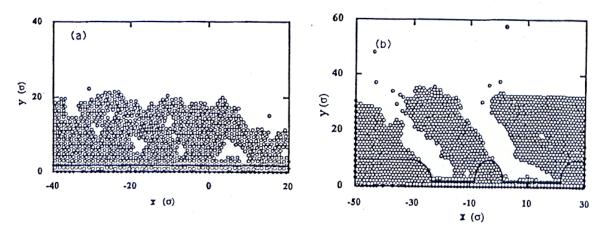
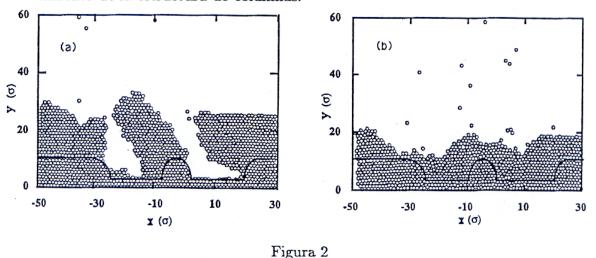


Figura 1

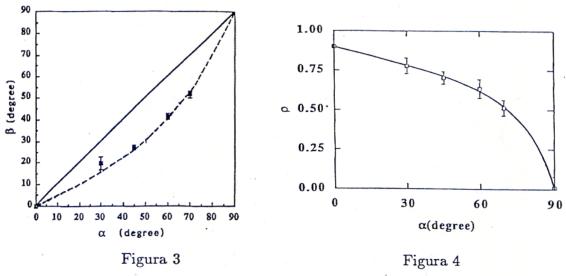
La Figura 1 muestra el crecimiento de una película de dos dimensiones a una temperatura de substrato  $T_s = 0.1$  (comparada con  $T_m = 0.68$  para un cristal L-J<sup>15</sup>), (a) sobre una superficie plana y (b) sobre un substrato con pequeñas perturbaciones (marcadas con línea sólida) para un ángulo de incidencia  $\alpha=60^{\circ}$  y una energía del haz  $T_b = 0.6$ . El tamaño de la perturbación de la superficie (alrededor de 10 átomos en altura y espesor) fué elegido de la escala de longitudes típicas de las fluctuaciones en la superficie encontradas en otras simulaciones con sistemas L-J. 10,15 Al contrario de las simulaciones de mobilidad superficial 2,9-10, el crecimiento sobre una superficie plana (Fig. 1-a), a esta temperatura, no muestra un desarrollo de estructuras en columnas. 16 Sin embargo cuando la perturbación superficial está presente (Fig. 1-b), se aprecia claramente el desarrollo de esta estructura. Se encontró que esta estructura es insensible a la forma geómetrica de los escalones, sin embargo su tamaño y distancia relativa afectan la estructura. Estos resultados muestran que pequeñas irregularidades en la superficie causadas por impurezas, nucleación u otros factores dinámicos pueden son importantes para el crecimiento de la estructura de columnas.



El efecto de la temperatura del substrato se ilustra en la Figura 2. A una temperatura  $T_s=0.2$  y con una energía del haz igual  $T_b=0.6$ , la estructura de

la película (Fig. 2-a) se parece al resultado a bajas temperaturas, con  $T_s = 0.1$  y  $T_b = 0.6$  (Fig. 1-b). A temperaturas más altas  $T_s = 0.3$  (Fig. 2-b), no hay evidencia de formación de columnas. La temperatura de transición está ( $\simeq 0.25$ ) está en buen acuerdo con la temperatura de transición de la zona I a la zona II encontrada en experimentos  $^7$  y en la teoría fenomenológica.  $^{11}$ 

La formación de columnas es insensible a la energía de haz, sin embargo, en general el espesor de las columnas crece con la energía del haz.



La Fig. 3 muestra el promedio del ángulo de las columnas como función del haz incidente. La línea sólida representa la regla de la tangente y la linea punteada la relación  $\beta = \alpha$ . La orientación de la columnas sigue la regla de la tangente con pequeñas discrepancias para  $\alpha = 30^{\circ}$  y  $\alpha = 60^{\circ}$ .

La densidad de la película se muestra en la Figura 4, como función del haz incidente. Los resultados se obtienen tomando la razón entre el área de la columna central y el área de un vacío, suponiendo que las columnas están distribuídas uniformente en el sistema. La densidad de la película decrece monotómicamente con  $\alpha$  creciente, en acuerdo con observaciones experimentales.<sup>17</sup>. El espesor del vacío es proporcional a  $A \tan \beta$ , donde A es la altura del escalon y espesor de la columna que es del orden de la escala de longitud de difusión. Usando la regla de la tangente, la densidad de la película como función de  $\alpha$  se puede escribir como

$$\rho = \frac{\rho_o}{1 + a \tan \alpha},\tag{2}$$

donde  $\rho_o$  es la densidad de la película para  $\alpha=0^o$  y la constante a es proporcional a la razón de la altura del escalon a la longitud de difusión superficial. Los resultados numéricos (cuadrados abiertos) calzan bien con la ecuación (2) (línea sólida en la Figura 4 con a=0.26 y  $\rho_o=0.9$ ). Este resultado está en acuerdo general con simulaciones anteriores.<sup>2</sup>

## Referencias

- J.R. Lloyd, S. Nakahara, J. Vac. Sci. Tech. 2, 239(1965), S. Nakahara, Thin Solid Films, 45, 421(1977); ibib. 64, 149(1979).
- H.J. Leamy, A.G. Dirks, J.Phys. D: Appl. Phys. 10, L95 (1977). H.J. Leamy, G.H. Gilmer, A.G Dirks, Current Topics in Material Science, Ed. E. Kaldis, Vol. 6, 312(1980).
- B.A. Orlowski, W.E. Spicer, A.D. Baser, Thin Solid Films, 45, 31(1976); K. Okamoto, T. Hashimoto, K. Hara, E. Tatsumoto, J. Phys. Soc. Japan, 31, 1374(1971); C.-J. Youn, K. Jungling, W.W. Grannemann, J. Vac. Sci. Technol. A2, 2472(1988).
- 4. W. Ma, R.M. Anderson, Appl. Phys. Lett. 25, 101(1974)
- H. König, G. Helwig, Optik, 6, 111(1950); T.M. Donovan, W.E. Spicer, J.M. Bennet, E.J. Ashley, Phys. Rev. B2, 397(1970); F.L. Galeener, Phys. Rev. Lett. 27, 1716(1971).
- J.C. Bean, H.J. Leamy, T.T. Sheng, J.S. Williams, G.K. Celler, Appl. Phys. Lett., 33, 227(1978)
- 7. A. Movchan, A.V. Demchishin, Phys. Met. Metalogr. 28, 83(1969)
- 8. J.M. Nieuwenhuizen, H.B. Haanstra, Phillips Tech. Rev. 27, 87(1966)
- 9. D. Henderson, M.H. Brodsky, P. Chaudhari, Appl. Phys. Lett. 25, 641(1974)
- 10. A.H. Müller, J. Appl. Phys. 58, 2573(1985)
- 11. A. Mazor, B.G. Bukiet, D.J. Srolovitz, Phys. Rev. Lett. **60**, 424(1988)
- 12. C. Tang, S. Alexander, R. Bruinsma, Phys. Rev. Lett. 64, 772(1990)
- G.S. Bales, Phys. Rev. Lett. 63, 692(1989); R.P.U. Karunasiri, R. Bruinsma,
  J. Rudnick, Phys. Rev. Lett. 62, 788(1989).
- Para un compendio de sistemas epitaxiales, ver por ejemplo, E. Grünbaum, in "Epitaxial Growth", J.W. Mathews ed. Academic Press, New York, 1975, p.611.
- M. Schneider, A. Rahman, I.K. Schuller, Phys. Rev. Lett. 55, 604(1985),
  Phys. Rev. B36, 1340(1987), S.M. Paik, S. Das Sarma, Phys. Rev. B39, 1224(1989).
- 16. Sin embargo, fluctuaciones dinámicas del frente de crecimiento puede llevar a una estructura de columnas posteriormente.
- N.G. Nakhodkin, A.I. Shaldervan, Thin Solid Films 10, 109(1972), D.K. Pandya, A.C. Rastogi, K.L. Chopra, J. Appl. Phys. 46, 2966(1975)