

NANOMÉRETŰ, IONBOMBÁZÁS-INDUKÁLT VÁLTOZÁSOK VIZSGÁLATA ATOMISZTIKUS SZIMULÁCIÓKKAL

Süle Péter

MTA–MFA, Felületfizikai Osztály

Nanoméretű felületi struktúrák mérnöki szintű pontossággal való kialakítása a felületfizika és az anyagtudományok napjaink legnagyobb kihívásai közé tartozik. A hagyományos litográfiai eljárások már csak nagy nehézségek árán alkalmazhatók a 100 nm alatti mérettartományban [1]. A legújabb kutatások elsősorban az úgynevezett önszerveződő rendszerek sajátosságait kihasználva igyekeznek nanopöttyök rendezett tömbjeit előállítani. Az utóbbi években próbálkozások történtek kisenergiás ionbombázás hatására bekövetkező felületi morfológia változások kihasználására is [1, 2].

Az ionmegmunkálás már széles körben használatos módszer az alap- és alkalmazott kutatásban, illetve technológiai szinten is. Alacsonyenergiás nemesgázionokkal (pl. 1 keV Ar⁺) mintavékonyítás vagy simítás érhető el. Bizonyos fémek vagy félvezetők felületén jellegzetes periodikus struktúrák alakíthatók ki, mint például felületi hullámok vagy nanopöttyök és nanolyukak [2, 3].

Azonban ezeknek a folyamatoknak az atomisztikus szintű megértése még hiányos [3, 4]. A molekuladinamikai (MD) szimulációk lehetővé teszik az ionindukált folyamatok időbeli fejlődésének követését. A módszer teljesítőképességét csak két feltétel korlátozza. Egyrészt pontos többtest-kölcsönhatási potenciálokra van szükség, másrészt komoly időbeli korlátok lépnek fel. Az MD-szimulációk jellegzetesen ps időskálán lezajló folyamatok vizsgálatára használhatók, és csak néhány esetben kivitelezhetők a ms vagy ns hosszúságú folyamatok szimulációi. Ugyan napjaink szuperszámítógépein magas párhuzamosítási szint mellett már elérhető akár μ s tartamú szimulációk is, de ezek napi szintű alkalmazása nagyméretű rendszereken meglehetősen drága módszer lenne. Ennek ellenére a módszert – fontossága miatt – széles körben alkalmazzák mind biofizikai, mind anyagtudományi kutatásokban. A legjelentősebb eredményeket eddig például a fehérjék (enzimek) dinamikai vizsgálatában érték el. Valós időtartamú szimulációk elérése egyelőre még várat magára. Áthidaló megoldásként Monte-Carlo-módszerrel kombinálva vagy például az úgynevezett hipertermikus módszerrel lehet gyorsítást elérni az algoritmusok sebességében [5].

Az MD-módszer lényege röviden abban áll, hogy egy mikrokanonikus sokaság részecskéinek mozgása leírható klasszikus potenciálokkal jellemzett potenciáltérben. A rendszer időfejlődése a newtoni mozgásegyenletek megoldásán keresztül követhető. Állandó részecskeszám (N), nyomás (P) és hőmérséklet mellett (T) végzett szimuláció esetén periodikus határfelületek, presztosztát, illetve termosztát alkalmazása is szükséges (a nyomás és hőmérséklet állandó értéken való tartásához szükséges algoritmusok) [6]. A módszer *a priori* abban a tekintetben, hogy a különböző atomi transzportfolyamatok leírásához nem

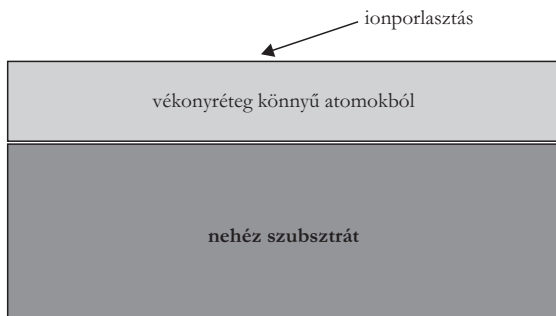
használ előzetes ismereteket, ha megfelelő pontosságú kölcsönhatási potenciál áll rendelkezésre, illetve megfelelően nagy méretű szimulációs cellát vettünk figyelembe. A módszer nem él előzetes feltevésekkel például az atomi diffúzió mechanizmusára nézve. Más eljárások, mint például a kinetikus Monte-Carlo-szimulációk, előfeltevéseket igényelnek, például meg kell adni bemenő paraméterként a különböző diffúziós gátak nagyságát [5].

Az anyagtudományi alkalmazások a 90-es évektől jelentek meg, illetve terjedtek el. Sikeresen használják rétegnövesztés, kristálynövekedés, feszültségrelaxáció vagy például fázisátalakulások tanulmányozására [4, 7]. Mozgó részecskék becsapódásának hatására bekövetkező felületi durvulás, porlódás, illetve az anyag belsejében előálló változások vizsgálatára is intenzíven alkalmazott módszer, mivel az utóbbi két évtizedben pontos többtest-potenciálok kerültek kifejlesztésre. Ezek lehetővé teszik a fizikailag megalapozott atomisztikus szintű modellezést, illetve a kísérleti módszerek által nem vagy csak kevés esetben vizsgálható folyamatok „láthatóvá” tételét [8].

Saját kutatásaink elsősorban az ionbombázás által indukált határfelületi keveredés, illetve felületi durvulás vizsgálatára korlátozódnak [8]. Alapvető követelmény vékonyrétegek növesztésekor többretegű rendszerekben a határfelületi durvulás, illetve keveredés elkerülése. A Cu/Co-rendszerben például – amely széles körben használt mágneses multiréteg (pl. mágneses tárolók, merevlemez esetén) – már az egyébként gyengén keveredő Cu/Co határfelület is rontja a magnetoelektronikai sajátosságokat [7]. Sajnos e nemkívánatos folyamatok mechanizmusa nem kielégítően ismert. Így a legtöbb esetben az éles határfelületek előállítása gyakorlati tapasztalaton (receptúrákon) alapul. Nincs koherens magyarázat, amely leírná például az ionmegmunkálás hatására bekövetkező morfológia változásokat, illetve atomi transzportfolyamatokat. Reményeink szerint az MD-szimulációk hozzájárulhatnak az új atomisztikus szintű modellek kidolgozásához, és pontosabb leírást tesznek lehetővé, mint a rendelkezésre álló fenomenologikus modellek [4].

A tömeganoizotrópia szerepe a keveredésben és felületi durvulásban

A gyakorlatban gyakran előforduló eset, hogy az anyagpárok például egy kettős vékonyrétegben különböző atomi tömegű anyagokból vannak összeállítva (*1. ábra*). Ha például Al-ot növesztünk Pt (111) felületére, tipikusan egy ilyen tömeganoizotróp-rendszert állítunk elő. Vizsgálataink azt mutatják, hogy az ilyen rendszerek eltérően viselkednek az olyan rendszerektől, amelyekben a tömegarány 1:1-hez közelít (pl. Ti/Co stb.).



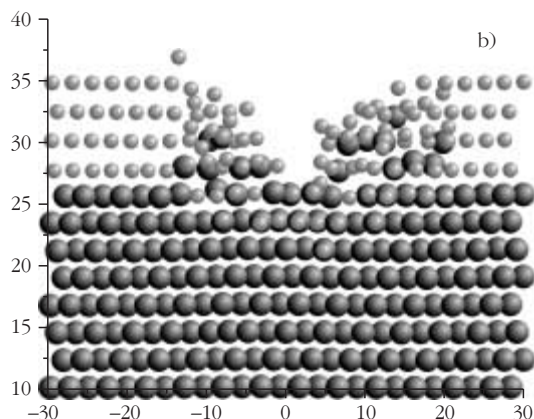
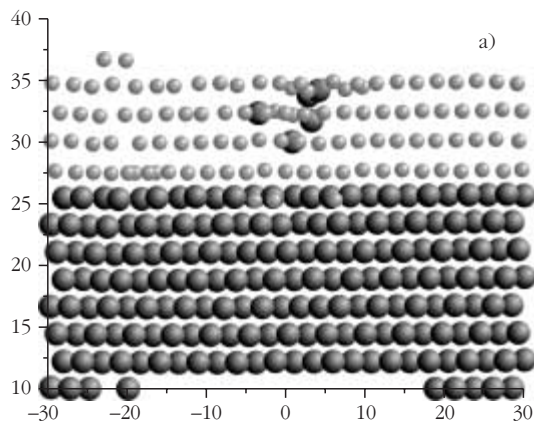
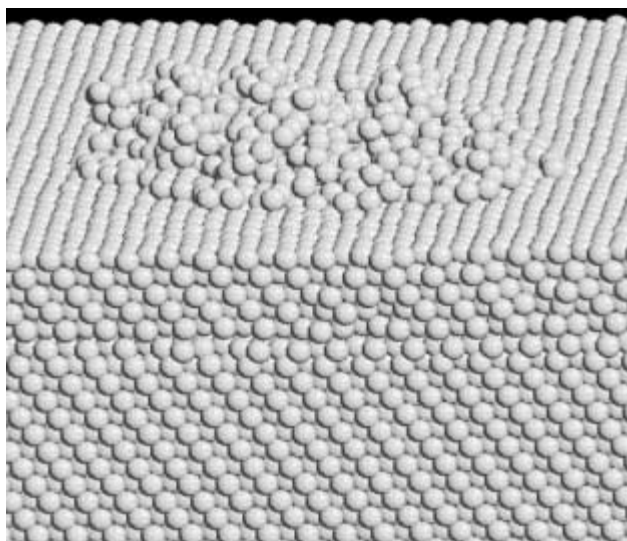
1. ábra. Egy tipikus tömeganisotróp biréteg, amely egy könnyű vékony felső rétegből és egy nehéz szubsztrátumból áll. Az ionporlasztás felülről történik, általában közel érintőleges szögbeesés mellett.

Ezt az eltérő viselkedést a legtöbb esetben kémiai okokkal magyarázzák. Számításaink azonban azt mutatják, hogy az eltérő viselkedés jól leírható egyszerűen csak a tömegarány függvényében. Továbbá nem találtunk függést a kémiai tulajdonságoktól, mint például az AB keresztpotenciáltól (keveredési hőtől) egy tetszőleges fém-fém AB binér rendszerben. Így arra az eredményre jutottunk, hogy az ionindukált határfelületi keveredés nem függ a kémiai tulajdonságoktól, és annak mértékét elsősorban az atomi tömegarány függvényében előálló ballisztika (az ütköző és szabadon mozgó részecskék dinamikája) határozza meg.

Továbbá a felületi durvulás tömegaránytól való függését találtuk még Ti/Pt-ban és Al/Pt-ban. Ez az alábbi ábrákon látható [9, 10]. A 2. ábrán ismételt (nagy dózisú) ionbombázással Ti/Pt-ban nanolyuk keletkezett. A kontrollszimulációban „elhangoltuk” a természetes tömegarányt közel 1:1 arányra, és a felső, a) ábrán ábrázoltuk az így kapott szimuláció eredményét. Látható, hogy határfelületi keveredés és felületi durvulás sem történik ez utóbbi esetben.

Hasonló a helyzet tiszta anyagok bombázásakor is, amelyekben néhány ion becsapódása nem eredményez jelentős morfológiai változást. A 3. ábrán Al/Pt birétegről készült számítógépes grafika látható 6 keV Xe⁺-ionbombázás után. Ebben az esetben a Pt-szubsztrát hatása külön-

3. ábra. Al/Pt felülete 6 keV-os ionbombázás után.



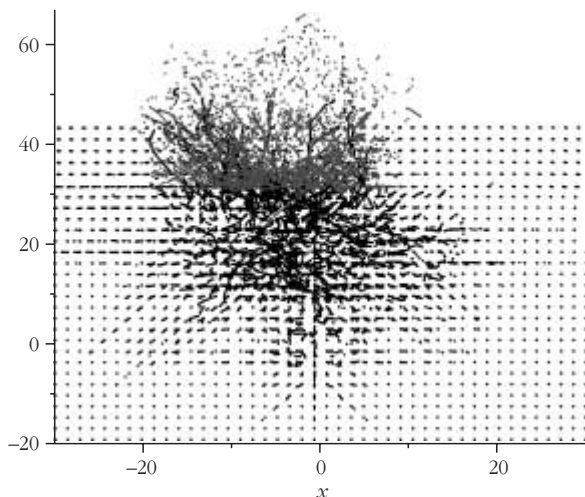
2. ábra. Ismételt, 1 keV-os energiájú Ar⁺-ionnal történő bombázás eredménye érintőleges szögbeesés mellett ($\theta = 80^\circ$) Ti/Pt-ban keresztmetszeti ábrázolással. A felső ábrán (a) a tömegarány 1:1-re hangolt, míg az alsón (b) a természetes arányt (1/4) használtuk. A világosabb a Ti-atomokat, míg a sötétebb gömbök a szubsztrátatomokat (Pt) jelölik.

nösen szembeszökő. Tiszta Al-hoz képest a szabad (111) felületre kilökődött Al-atomok (adatatomok) száma két nagyságrenddel nagyobb.

Az egyik esetben az ionindukált felületi durvulás (nanolyuk képződése), míg a másik esetben az inverz folyamat, a nanosziget fejlődése (adatomszám növekedése) mutat erős korrelációt a tömeganisotrópiával. A felületi durvulás „előjelét” (növekedés vagy lyukképződés) a keveredett határfelületi fázis sűrűsége fogja meghatározni. Látható, hogy a felületen és a határfelületen játszódó ionindukált transzportfolyamatok között erős csatolás van [9]. Megállapítható tehát, hogy a tömegarány megfelelő megválasztásával beállítható a kívánt szintű morfológiai változás ionbombázás során. A szimulációs eredmények kísérleti igazolása azonban még hátra van.

A tömegeffektus értelmezése

Az ionbombázáskor bekövetkező atomi transzport gyors kaszkádszerű folyamatok kialakulásával jár. Ez a kaszkádperiódus rendkívül rövid, rendszerint 0,3 ps alatt lezajló ballisztikus folyamat. Vizsgálataink azt mutatják, hogy a kaszkád élettartama biréteges anyagokban tömegarányfüggő. Tömeganisotróp-rendszerekben egy relatíve hosszú és stabil olvadákalapot alakul ki,



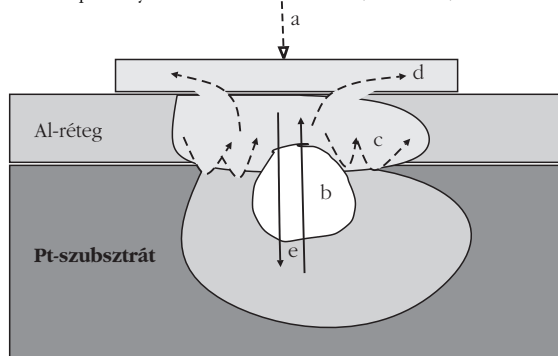
4. ábra. Kaszkádfolyamat Al/Pt birétegben 6 keV-os Ar^+ -ionbombázás után néhány ps elteltével. Mélység irányú keresztmetszeti kép, amelyben a gyorsan mozgó részecskék keresztmetszeti pozícióit ábrázoltuk. A világosabb pontok az Al-atomokat, a sötétebbek a Pt-részecskéket jelölik.

amelynek élettartama akár 5–10 ps is lehet. A 4. ábra ilyen kaszkádszerű olvadékalapot kétdimenziós metszetét mutatja Al/Pt-rendszer esetén 6 keV-os energiájú ionbombázás hatására.

Látható, hogy a kaszkád két részre bomlik. Az interfész alatti részben csak Pt forró atomok találhatók, míg a könnyű Al-részecskék csak a határfelület fölött láthatók, ugyanis a könnyű Al-részecskék visszaverődnek a nehéz Pt-atomokról. Ez a szóródási folyamat a felelős aztán a felületi durvulásért és a tapasztalt tömegeffektusért. Az 5. ábrán vázolt egyszerűsített modellel értelmezhető a folyamat.

Látható, hogy birétegfilmekben az ionporlasztás (bombázás) egy sajátos szórási jelenséggel párosul. Egy erősen anizotróp kaszkád alakul ki, amelyben a „forró” könnyű részecskék mintegy bezárnak a felső rétegekbe. Ezáltal egy nagy energiasűrűségű zóna alakul ki, amelyben a lokális hőmérséklet bőven meghaladhatja az olvadásponti értéket. Kvázi plazmajellegű állapot alakulhat ki, amelynek következtében gyors részecskék lökődnek ki a felszínre (adatombok) és szigetnövekedés állhat elő. Gyakori esemény még a növekedés és a kráteresedés együttes

5. ábra. A határfelületen történő visszaverődési (szóródási) folyamat értelmezési sémája tömeganizotróp birétegekben. a) becsapódó ion, b) átmenetileg képződő vakanciafürt, c) a határfelületről visszaverődő könnyű (pl. Al) atomok, d) a felületre kilöködő atomok, e) az ellenáramú atomi transzportfolyamat a felület és a tömb (szubsztrát) között.



jelenléte, versengése. E folyamatok eredőjeként alakul ki a végleges morfológia. Közben a határfelület féligáteresztő diffúziós gátként viselkedik. Csak a nehéz részecskék mozoghatnak a felület irányába, míg a könnyű atomok visszaverődnek a határfelületen. Ezzel a határfelületi keveredés átmenetileg aszimmetrikussá válik. A plazma kihűlésével azonban a könnyű atomok is elkezdnek keveredni a bulk (szubsztrát) irányába (hideg keveredés), és egy amorf határfelületi fázis alakul ki. A visszaverődési folyamatban a határfelület fontosságát bizonyítja az, hogy az AlPt-ötvetben nem tapasztaltunk hasonló folyamatokat, csak a szokványos rövid kaszkádszerű fázist. Attól függően, hogy mennyire erős a visszaverődési folyamat, akár robbanásszerű porlasztással járó folyamat is előállhat. Ebben az esetben egy krátereszerű képződmény marad a felületen.

A tömeganizotrópia eddig nem ismert vagy nem kellőképpen hangsúlyozott ionindukált transzportfolyamatokat eredményez. Érdemes felsorolni az irodalomban eddig ismert ionindukált felületi durvulási mechanizmusokat [8]. Ezek közül az első hipertermikus részecskék véletlenszerű porlasztásán alapul (legáltalánosabb mechanizmus). A második mechanizmus már csak viszonylag nagyobb ionenergiákon (>1 keV) jelentkezik abban az esetben, ha a kialakuló lokális olvadék kapcsolatba kerül a felszínnel. Ilyenkor számottevő mennyiségű olvadék fröccsenhet ki a szabad felszínre. Ez történhet robbanásszerű hevességgel is, ami kráterképződéshez vezet. Ez utóbbi esetben a porlasztott atomok száma nagy, míg az előző esetben a felszínre ballisztikus gyorsasággal (10^4 m/s) kilöködő olvadék nagy része a tömb (bulk) kihűlésekor injektálódik a felszínről az anyag belsejébe. Nagyenergiás ionbombázáskor (>20 keV) atomi fürtök koherens elmozdulása is bekövetkezhet. Az általunk feltárt tömeganizotrópián alapuló durvulás nem sorolható be egyetlen eddig ismert mechanizmus közé sem, bár felmutatja azok jegyeit (pl. kráterképződés, olvadék kifröccsenés stb.). Reményeink szerint ez az új felismerés hozzájárulhat a mikroelektronikai ipar számára kedvezőbb tulajdonságú vékonyrétegek előállításához.

Irodalom

1. S. FACSÓ, T. DEKORSY, C. KOERDT, C. TRAPPE, A. VOGT – Science 285 (1999) 1551
2. U. VALBUSA, C. BORAGNO, F. BAUTIER DE MONGEOT – J. Phys. Condens. Matter 14 (2002) 8153
3. T. MICHELY, J. KRUG: *Islands, Mounds and Atoms* – Springer, 2004.
4. A.-L. BARABÁSI, H.E. STANLEY: *Fractal Concepts in Surface Growth* – Cambridge, 1995.
5. F. MONTALENTI, A.F. VOTER – Phys. Rev. B64 (2001) 081401-1
6. M.P. ALLEN, D.J. TILDESLEY: *Computer Simulation of Liquids* – Clarendon Press, Oxford, 1989.
7. H.N.G. WADLEY, X. ZHOU, R.A. JOHNSON, M. NEUROCK – Prog. in Mater. Science 46 (2001) 329
8. R.S. AVERBACK, T. DIAZ DE LA RUBIA – Solid State Phys. 51 (1998) 281
9. P. SÜLE, M. MENYHÁRD, K. NORDLUND: *Nucl. Instrum., Cooperative mixing induced surface roughening in bilayer metals: a possible novel surface damage mechanism* – Meth. in Phys Res. B222 (2004) 525, *What is the real driving force of ion beam mixing?* – ibid. B226 (2004) 517
10. P. SÜLE, M. MENYHÁRD: *Strong mass effect on ion beam mixing in metal bilayers: a ballistic picture* – Phys. Rev. B71 (2005) 113413
P. SÜLE: *Substrate induced enhancement of atomic layer growth on Al(111): the effect of the mass anisotropy* – Surf. Science 585 (2005) 170–176, további info: www.mfa.kfki.hu/~sule