

FELÜLETGEOMETRIA NUMERIKUS VIZSGÁLATA VÉKONYFILM BEVONATI RÉTEGEKRE

NUMERICAL EXAMINATION OF SURFACE GEOMETRY FOR THIN FILM COATINGS

Vadászné Bognár Gabriella, Prof. Dr., Miskolci Egyetem, Gép- és Terméktervezési Tanszék

ABSTRACT

In the coating processes it is important to predict the properties of the coated surface or to obtain a thin film with the desired properties. The aim of this paper is to get numerical results on the surface morphology and the roughness of the thin film.

1. BEVEZETÉS

A fizika és az anyagtudományok egyik nagy kihívása az interfészek növekedésének és felületi morfológiájának megértése, mind a természetben, mind a technológiai alkalmazásokban lejátszódó folyamatokban. A statisztikus fizika egy nemrégiben kifejlesztett igen aktív kutatási területe a felszíni növekedési folyamatok megértése [1]. A kutatók számára kihívást jelent a nanostruktúrált anyagok szerkezete és tulajdonságai közötti kapcsolat feltárása, a nano-léptékű szerkezetek tudatos, tervezett módon történő kialakítása. A bevonatolási eljárások ipari felhasználási lehetősége, hogy előírt tulajdonságokkal rendelkező vékony rétegeket alakítsanak ki szilárd hordozón [7]. A filmek előállításához különböző rétegeképzési technikák használatosak, mint pl. IBS, MBE, CVD, PVD.

A felületi evolúció dinamikájában mind a felületi durvulási, mind a simulási mechanizmusok vetélkedése figyelhető meg, például a molekulásugaras epitaxia (MBE) és a vákuumporlasztás (PVD) során. Az MBE során gyenge részecskenyalábot irányítanak a mintadarabra, így gyakorlatilag atomi rétegenként építhető fel a vékonyréteg és finoman szabályozható az összetétel. A vákuumporlasztás esetén a forrásból nem termikus hatásra lépnek ki a részecskék, hanem plazmát hoznak létre. Ez a folyamat alacsonyabb hőmérsékleten is végbe mehet. A két eljárás során a részecskék lerakódását és a

kialakuló felületi mintázatok kisimulását felületi diffúzió határozza meg [2-6]. A növekvő felületen önhasználó struktúrák figyelhetők meg, ugyanakkor a periodikus minták növekedése instabil. Valójában az amorf vékonyrétegek növekedési folyamatai attraktív rendszerben értelmezhetőek. Az amorf szerkezetek térben izotróp jelleget mutatnak hosszú távú strukturális sorrend hiányában. Az amorf vékonyrétegek kísérleti vizsgálatait, melyet elektronsugaras porlasztással hoztak létre bucca jellegű szerkezetek kialakulását mutatják mezoszkopikus hosszúságban [7-8]. A durvaszemcsés kontinuum modellek sztochasztikus növekedési egyenletei az atomi méretű növekedési eljárások bonyolultságát jelzik [1].

Nem-egyensúlyi fizikai problémákban a nemlineáris dinamika és mintázatképződés már több évtizede magára vonta a kutatók figyelmét fizikai, kémiai és biológiai folyamatokban játszott szerepe miatt. Azonban csak nemrég vált világossá, hogy hasonló jelenségek döntő szerepet játszanak nanoszkopikus folyamatokban. Míg a makro- és mikroszkopikus szinten nagy előny a folyamatok ellenőrzése speciális eszközökkel és készülékekkel, addig nano méretekben az ilyen eszközök hiányoznak, vagy használatuk megfizethetetlenül drága [5]. Ezért spontán a mintázatképződés és az önszerveződések megfigyelése különlegesen ígéretes e folyamatok ellenőrzésében.

A technológiai eljárásokban több szempontból jelentős a felületek bevonásánál az olyan anyagok alkalmazása, amelyek rendezett szerkezetű felületi rétegeket képesek kialakítani. Vékony filmek nanostruktúráltása olyan beavatkozás, amellyel előírt szerkezetű felületbevonatokat indukálhatunk, vagy ellenőrizhetjük a már meglévő lerakódások mintázatát. A nanoszerkezetek mérete és alakja kialakulhat spontán a belső feszültség hatására,

vagy külső feszültség alkalmazásával. A jelenlegi kutatások célja, hogy megértsük a felületi instabilitások fizikai okát és előre jelezzük azok időbeli alakulását.

A dolgozat célja, hogy fizikai modellalkotás után numerikus szimulációval előállítsuk a bevonó eljárás során kapott felületi struktúrát az anyagi és fizikai paraméterek függvényében és meghatározzuk a felületi érdesség időbeni változását néhány speciálisan választott esetre.

2. AZ ALKALMAZOTT MODELL

A matematikai megközelítésben nagyon fontos, hogy a paraméterek bizonytalanságát a modellbe beépítsük. A bizonytalanságok fő forrásai nehezen megjósolhatók. Ilyenek például az atomi szintű elasztikus egymásra hatások és a felületi állapotváltozások. A szabálytalan felületek jellemzését leíró parciális differenciálegyenletekhez szabad peremfeltételek járulnak. A parciális differenciálegyenletek megoldása analitikusan nem, vagy csak rendkívül ritkán állíthatók elő, az alkalmazott numerikus algoritmusok pedig általában nem stabilak, ezért variációs módszereket szükséges alkalmazni. A jelenséget leíró meghatározó egyenletek rendszerint erősen nemlineáris differenciálegyenletek.

A felület bevonó eljárásokban a kiinduló állapotban az alaplap egy majdnem teljesen síkfelület és az eljárás során a gőz részecske sugarakban érkező részecskék merőlegesek a felületre és a lerakóeljárás jellemzője a lerakódás fluxusa. A felületre érkező részecskék különböző felületi diffúziós folyamatokom mennek keresztül amíg eléri a végleges helyzetükbe. Ezen részecskékből épül fel a növekedő felületi réteg bizonyos idő elteltével. A felületi réteget jellemző magasság vagy morfológia a $H(t, x, y)$, mely függ a t időtől és a helykoordinátáktól. A felületi struktúra fejlődését a felületre éppen érkező részecskék és a felületre már kondenzált részecskék határozzák meg. Az időben és térben lejátszódó folyamatot különböző mechanizmusok egymásra hatása határozza meg, mint a durvulás, a simulás és az alakképződés. A felület durvulásának vizsgálatához a $h(t, x, y) = H(t, x, y) - Ft$ magasságprofilt vizsgáljuk, ahol F az átlagos lerakódás mértéke és h kielégít egy $h_t = G(\nabla h)$ típusú egyenletet valamely a lerakóeljárás

beállítási paramétereitől és az anyag-paraméterektől függő G funkcionállal.

A fő cél, hogy olyan determinisztikus egyenleteket állapítsunk meg, amelyek megoldásai a fizikai jelenséget megfelelően jellemzik, és amelyekből a kezdeti feltétellel nyert eredmények nagy valószínűséggel érvényesek maradnak hosszú idő eltelte után is. Az egyenletek néha kiegészülnek még sztochasztikus tagokkal is, amelyek hőmérsékleti vagy műszeres zajokat reprezentálják. Ebben a dolgozatban a zaj hatásaival nem foglalkozunk.

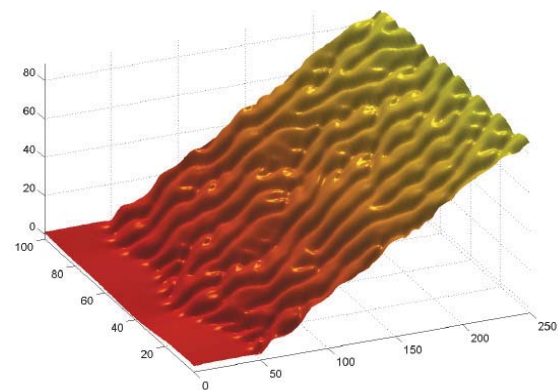
A dolgozatban a t időben lejátszódó folyamatokat egy-dimenzióban az x helykoordinátával elemezzük. A felületi magasságot az elméleti síkfelülettől a $h(x, t)$ magasságfüggvény jellemzi.

Speciálisan a Kuramoto-Sivashinsky (KS) egyenlet a determinisztikus dinamikus rendszer mintapéldája, amely a fizikai jelenség komplex térbeli és időbeli kaotikus viselkedését írja le. Ennek általános alakja

$$h_t = -h_{xx} - h_{xxx} + (h_x)^2, \quad (1)$$

ahol az indexek az x , ill. a t változó szerinti deriváltat jelölik. Az (1) típusú egyenlettel a láng front terjedését, a plazma ion hullámok mozgását és kémiai fázis turbulenciát modellezik [2]. Az (1) egyenletnek egy módosított alakját alkalmazzák az amorf vékony filmrétegek és a felszín durvulási folyamatainak modellezésére, ahol a jobboldalon szereplő nemlineáris tag helyett egy másik nemlineáris tag jelenik meg:

$$h_t = -h_{xx} - h_{xxx} - r(h_x)_{xx}^2. \quad (2)$$



1. ábra A (3) egyenlet $h(t, x)$ megoldása $r = 0,01$ esetén

A (2) egyenlet az ún. 'conserved' Kuramoto-Sivashinsky (CKS) egyenlet [9, 10], ahol az r anyagi és fizikai paramétereiből számítandó. Vizsgálataink során a (KS) és a (CKS) egyenletek egyesített változatát alkalmazzuk:

$$h_t = -h_{xx} - h_{xxx} + (h_x)^2 - r(h_x)_{xx}, \quad (3)$$

amellyel vékonyrétegek durvulása jellemezhető.

A vékony filmek fizikai viselkedésének, a növekedési folyamatoknak és a mikrostruktúrák fejlődésének jellemzésére a hasonlósági módszer alkalmazható [11]; ebben a dolgozatban a megoldások vizsgálatához a numerikus szimulációt vizsgáljuk. Ezek az eredmények nyújtanak segítséget abban, hogy magyarázatot adjunk a kísérletekben megfigyelt jelenségekre és validáljuk a matematikai modellt. Így követni tudjuk a feszültségi hatásokat a fizikai jelenségek megértésében. Az egydimenziós CKS egyenlet megoldását

$$h(0,x) = 0,01 \cos \frac{x}{16} \left(1 + \sin \frac{x}{16} \right) \quad (4)$$

periodikus peremfeltétel mellett térben Fourier spektrál kollokációs módszerrel, időben negyedrendű Runge-Kutta módszerrel exponenciális idődifferencia sémájú idő diskretizációval határoztuk meg

$x \in [0, 32\pi]$, $t \in [0, 250]$, $N = 256$, $\Delta t = 1/100$ (lásd 1. ábra).

A súrlódás, kopás és kenés folyamatai működő műszaki felületek között mennek végbe az adott környezetben, tehát három dimenzióban. A felületek mikrogeometriai jellemzésére a napi gyakorlatban általában kétdimenziós metszetprofil vizsgálnak. A felületek struktúrájának, mikro-topográfiájának ismerete a minőség és a működés kapcsolatának elemzésére, a gyártmányok tribológiai viselkedésének elemzésére irányul.

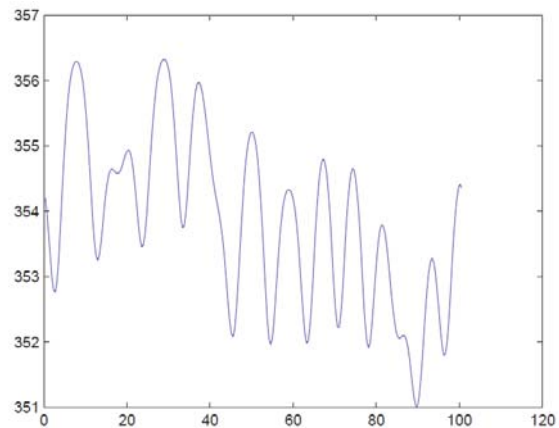
A filmfelület (3) egyenlet szerinti időbeli és térbeli fejlődését szemléltetik a 2-4. ábrák a felület struktúrájának keresztmetszeteire $t = 1000$ időpillanatban r különböző értékeire.

Az érdekesség időbeli változását az átlagos magasságtól való eltéréssel a $w(t)$ függvényvel szemléltetjük

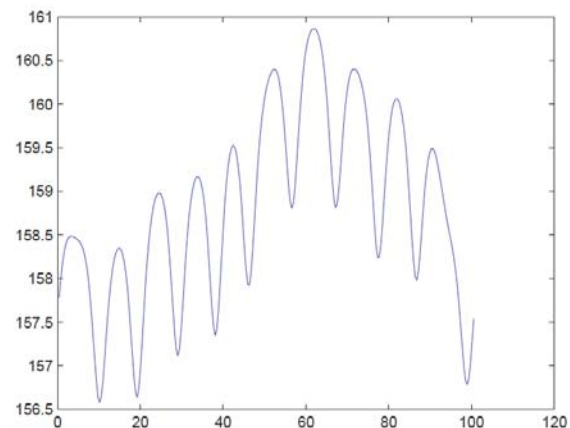
$$w^2(t) = \frac{1}{L} \int_0^L [h(x,t) - \bar{h}(t)]^2 dx,$$

ahol $\bar{h}(t)$ a átlagmagassággfüggvény a

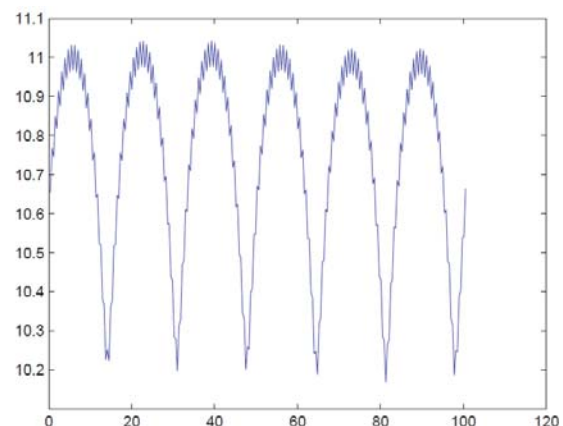
$$\bar{h}(t) = \frac{1}{L} \int_0^L h(x,t) dx$$



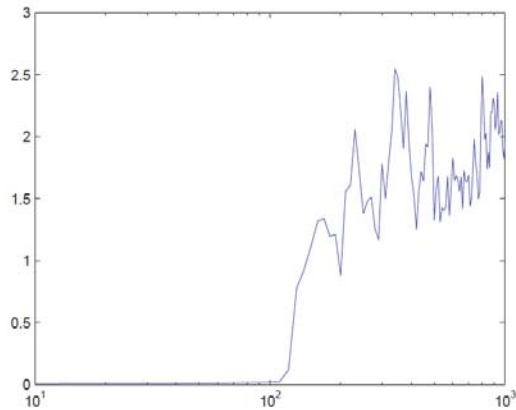
2. ábra. Magasság profil, ha $t = 1000$ és $r = 0,01$



3. ábra. Magasság profil, ha $t = 1000$ és $r = 0,5$

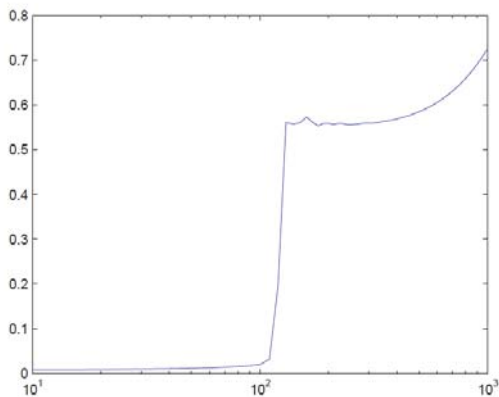


4. ábra. Magasság profil, ha $t = 1000$ and $r = 10$



5. ábra. A $w(t)$ görbe, ha $t=1000$ és $r=0,01$

Megfigyelhető az 5. ábra alapján, hogy a felület durvulása csak kb. 120 időegység után kezdődik meg. Ez az idő a kiinduló felület minőségétől függ. Ha a (4) peremfeltételben az egyenlőség jobb oldalán szereplő 0,01 amplitúdó megnő 1 értékre, akkor ez a felületi érdesedés kb. 50 időegység múlva kezdődik el. Megállapítható, hogy minél simább a kiinduló felület annál később jelenik meg a felületi topográfia durvulása. A $w(t)$ görbék alakját a (3) egyenletben szereplő anyagi és fizikai paramétereket egyesítő r együttható is jelentősen befolyásolja (lásd 6. ábra).



6. ábra. A $w(t)$ görbe, ha $t=1000$ és $r=1$

KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

A cikkben ismertetett kutató munka az EFOP-3.6.1-16-2016-00011 jelű „Fiatalodó és Megújuló Egyetem – Innovatív Tudásváros – a Miskolci Egyetem intelligens szakosodást szolgáló intézményi fejlesztése” projekt részeként – a Széchenyi 2020 keretében – az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg.

FELHASZNÁLT IRODALOM

- [1] Krug, Joachim: *Origins of scale invariance in growth processes*, Taylor & Francis, London, 2008.
- [2] D. E. Wolf, J. Villain: Growth with Surface Diffusion, *Europhys. Lett.* 13 (1990) 389-394.
- [3] S. Das Sarma, P. Tamborenea: A new universality class of kinetic growth: One-dimensional molecular beam epitaxy, *Phys. Rev. Lett.* 66 (1991), 325-328.
- [4] Z.-W. Lai, S. Das Sarma: Kinetic growth with surface relaxation: Continuum versus atomistic models, *Phys. Rev. Lett.* 66 (1991), 2348-2351.
- [5] M. Siegert, M. Plischke: Solid-on solid models of molecular beam epitaxy, *Phys. Rev. E* 50 (1994), 917-931.
- [6] B. Reinker, M. Moske, K. Samwer: Kinetic roughening of amorphous Zr65Al17.5Cu27.5 films investigated *in situ* with scanning tunneling microscopy, *Phys. Rev. B* 56 (1997), 9887-9894.
- [7] Cross, M.C., Hohenberg, P.C.: Pattern Formation Outside of Equilibrium, *Reviews of Modern Physics*, 65 (1993), 851-1112.
- [8] Cuerno, R., Munoz-Garcia, J., Gago, R., Vazquez, L.: Universal non-equilibrium phenomena at submicrometric surfaces and interfaces, *Eur. Phys. J. Special Topics* 146 (2007) 427-441.
- [9] Frisch, T., Verga, A.: Effect of step stiffness and diffusion anisotropy on the meandering of a growing vicinal surface, *Physical Review Letters PRL* 96 (2009) 166104
- [10] Pierre-Luis, O., Danker, G., Chang, J., Kassner, K., Misbah, C.: Nonlinear dynamics of vicinal surfaces, *J. Crystal Growth* 275 (2005) 56-64.
- [11] Hriczó, K.: Hasonlósági transzformáció alkalmazása nem-newtoni közeg áramlásában, *Fiatal Műszakiak Tudományos Ülészaka XX. Kolozsvár 2015.03.19-03.20. p. 171.*