

مجله فیزیک کاربردی دانشگاه الزهرا (س)

شماره ۲، بهار و تابستان ۱۳۹۱

تأثیر دمای زیرلایه بر شبیه سازی رشد نانو ذرات به کمک الگوریتم متروپولیس

محبوبه عبدالهی^۱

رضا ثابت داریانی^۲

تاریخ دریافت: ۱۳۹۰/۹/۲۰

تاریخ تصویب: ۱۳۹۱/۲/۲

چکیده

در این مقاله، مرحله هسته بندی و رشد حجمی نانوذرات لایه نشانی شده با استفاده از روش مونت کارلو را شبیه سازی نمودیم. در این مرحله، اثر تغییرات یکی از مهمترین پارامترهای رشد یعنی دمای زیرلایه را برای نانو ساختارها با استفاده از الگوریتم متروپولیس بررسی کردیم. نتایج حاکی از آن است که با افزایش دمای زیرلایه، از تعداد جزایر کاسته شده و در نتیجه اندازه جزایر افزایش می یابد، و در ماهای بالاتر پدیده بهم پیوستن جزایر نیز مشاهده می شود. در دمای ۴۰۰ کلوین، به دلیل وجود پدیده پخش سطحی و

^۱ دانشجوی کارشناسی ارشد فیزیک، دانشگاه الزهرا (س)

^۲ استاد فیزیک، دانشگاه الزهرا (س)، dariani@alzahra.ac.ir

تحرك پذیری ذرات، رشد ذرات به صورت ساختارهای ستونی باریک و جدا از هم دیده می شود.

واژه های کلیدی: هسته بندی، اثر دما، الگوریتم متروپولیس، نانو ذرات.

۱. مقدمه

شبیه سازی رایانه ای از رشد لایه نازک حائز اهمیت است و به دلیل اینکه درک بهتری از فرایند رشد فراهم می آورد، می تواند جایگزین حل تحلیلی معادلات نظری شود. پارامترهایی در شبیه سازی مورد مطالعه قرار می گیرند که بررسی آنها از طریق آزمایش پیچیده است [1].

وقتی که اتم های بخار به سطح زیرلایه می رسند، با یک تابع انرژی پتانسیل مواجه می شوند که از انرژی اضافی نوارهای آزاد اتم ها روی سطح ناشی می شود. پتانسیل ضعیفی در فاصله کوچکی از سطح وجود دارد و اتم های فرودی^۱ که در این پتانسیل می نشینند، در حالت جذب فیزیکی هستند و آزادی نسبی برای حرکت در طول سطح را دارند. اتم هایی که می خواهند به سطح نزدیکتر شوند باید این سد پتانسیل را بگذرانند. سپس وارد ترازهای مقید شیمیایی شده و مکان ثابتی روی سطح خواهند گرفت. وقتی ذرات به زیرلایه می رسند، ابتدا حالت جذب فیزیکی را اشغال می کنند و در طول سطح پخش می شوند و اگر انرژی کافی برای گذر از سد پتانسیل را داشته باشند با زیرلایه پیوند برقرار کرده و روی سطح ثابت می شوند [2-4]. احتمال گذر از سد به انرژی ذرات در سطح و به اندازه سد پتانسیل که خود به جنس زیرلایه، فیلم و هندسه مکانی بستگی دارد وابسته است. برای هر ترکیبی از سطح - فیلم - و دما احتمال بسیار کوچکی وجود دارد که ذرات دوباره از سطح تبخیر شوند.

¹ Adatoms

وقتی ذرات روی زیرلایه پخش می شوند، در حالت جذب فیزیکی به سوی هم جذب می شوند تا به صورت هستکی^۱ در آیند که شامل تعداد کمی از اتم ها می باشد. این هستک نسبت بزرگی از سطح به حجم دارند و در نتیجه احتمال زیادی برای دوباره تبخیر شدن آنها وجود دارد. با بزرگ شدن اندازه هستک ها احتمال دوباره تبخیر شدنشان کاهش یافته به طوری که در یک اندازه بحرانی، هستک ها بیشتر روی سطح جمع می شوند.

در واقع اولین مرحله رشد فیلم با حرکت ذرات روی سطح و تشکیل هستک ها انجام می گیرد که در حال بزرگتر شدن از مقدار بحرانی هستند. زمانی که سطح با هستک های فوق بحرانی پوشیده می شود، بسیاری از ذرات روی سطح باقی می مانند، چگالیده شده و ایجاد لایه نازک می کنند. رشد ادامه پیدا می کند در حالی که هستک ها برای پوشش بقیه سطح زیرلایه توسعه پیدا می کنند. تدریجاً هستک ها شروع به تماس با یکدیگر می کنند و مرحله بهم پیوستن جزایر^۲ روی فیلم شروع می شود.

۲. شرح مدل

مدل شبیه سازی ما شامل شبکه مکعبی به ابعاد $100 \times 100 \times 100$ با شرایط مرزی تناوبی می باشد. هر ذره فرودی مکعبی شکل و در ابعاد یک نقطه شبکه بوده و وارد شدن ذرات فرودی به نقاطی از شبکه که قبلاً توسط ذره ای اشغال شده اند، ممنوع می باشد [5-6]. در هر مرحله^۳، یک ذره از نقطه ای که بصورت تصادفی در صفحه ای در ارتفاع h بالاتر از سطح زیرلایه و موازی با آن انتخاب می شود. عددی که به h اختصاص می دهیم در واقع به بیشینه بعد Z بستگی دارد، به این معنی که در نهایت بلندترین ستون ما ارتفاعی بیش از h نمی تواند داشته باشد. در مرحله انباشت مسیر حرکت ذره قبل از رسیدن به ساختار، مسیری مستقیم تحت زاویه α نسبت به نرمال سطح می باشد. در واقع α زاویه فرود ذرات نسبت به نرمال سطح است. در هر بار اجرای برنامه زاویه فرود ذرات را به صورت دستی

¹ Nuclei

² Coalescence

³ Step

اعمال می نماییم. الگوریتم رشد به نحوی نوشته شده است که متناسب با نشست ذرات در هر زاویه فرود، ساختار متمایزی پدید خواهد آمد.

بعد از قرار گرفتن ذره فرودی روی سطح زیرلایه، ذره شروع به پخش^۱ به اولین همسایگی اشغال نشده نقطه فرود می کند. مرحله پخش تا زمانی تکرار می شود که تعداد پرش ها^۲ (χ) به تعدادی برسد که توسط معادله 1 محاسبه می شود [7].

در مرحله هسته بندی^۳، ذرات تصادفی روی سطح زیرلایه خلق گردیده (نقطه ای در صفحه $x-y$) و شروع به پخش روی سطح زیرلایه می کند. در مرحله پخش ذرات مجازند به تعداد χ گام، به اولین همسایگی اشغال نشده خود گام بزنند. در رابطه زیر a ثابت شبکه و d طول پخش و χ تعداد گام های مجاز برای ذره است [7-8].

$$\chi = \frac{2a}{\sqrt{3}} d \quad (1)$$

البته اگر ذره در حال پخش قبل از رسیدن به گام χ ام به ذره دیگری برخورد کند، به یکدیگر متصل شده و در جای خود ثابت می شوند و تشکیل یک جزیره^۴ دو ذره ای را می دهند. این امکان نیز وجود دارد که ذره در حال پخش به یک جزیره در حال رشد برسد که باز هم در جای خود ثابت شده و جزئی از جزیره بشود. در غیر این صورت ذره پس از پایان χ گام ایستاده و تبدیل به یک تک ذره^۵ می گردد [7]. بعد از توقف یک ذره، ذره دیگری خلق شده و طی این روند جزایر دو بعدی با اندازه های مختلف تشکیل می شوند که کاملاً تصادفی روی سطح زیرلایه پخش شده اند. بعضی از این جزایر در حین رشد به جزایر دیگر چسبیده و جزایر بزرگتری را تشکیل می دهند.

با اتصال هر ذره به سطح زیرلایه، زیرلایه بیشتر غیر یکنواخت شده و در نتیجه باعث کشیده شدن ذرات بعدی به سمت تک ذره ای ها یا جزیره های در حال رشد می گردد. به این ترتیب ذرات در مرحله پخش روی سطح زیرلایه نقاط اشغال نشده خود را یکسان درک نکرده و احتمال پرش به هر کدام از همسایه ها را متفاوت می یابند. این احتمال ها با

¹ Diffusion

² Jumps

³ Nucleation

⁴ Island

⁵ Monomer

توجه به پتانسیل برهم کنش بین ذرات در حال پخش با ذراتی که قبلاً روی زیرلایه ساکن شده اند، تعیین می گردد.

احتمال پرش ذره در حال پخش از نقطه λ_m به همسایه اشغال نشده λ_m به صورت زیر محاسبه می شود [۸]:

$$P_{i \rightarrow j} = \frac{\exp(L_j)}{\sum_j \exp(L_j)} \quad (2)$$

که در آن λ_m پتانسیل برهم کنش بین ذره واقع در نقطه λ_m با ذرات ساکن شده روی سطح است. \sum_j جمع روی تمام نقاط مجاز، همسایه های اول اشغال شده در نقطه λ_m است.

۳. رشد حجمی

وقتی پوشش سطح زیرلایه در مرحله هسته بندی به میزانی برسد که در شروع برنامه مشخص شده است، مرحله هسته بندی خاتمه یافته و رشد ستون ها با انباشت ذرات آغاز می گردد. پوشش سطح به صورت نسبت تعداد خانه های پر به کل خانه ها در واقع نسبت پرشدگی سطح زیر لایه در پایان مرحله هسته بندی تعریف می شود. ذرات روی صفحه ای موازی صفحه $x-y$ که در ارتفاع h خانه بالاتر از بلندترین ستون در حال رشد قرار دارد، روی مسیری مستقیم که با نرمال سطح زاویه α می سازد فرود می آیند. به عبارتی فرود ذرات یک فرود بالستیک تحت زاویه مایل است که اجازه معلق بودن^۱ هم به ذرات می دهد. بعد از نشست ذرات بر بام ستون ها، پخش سطحی آغاز می گردد؛ یعنی ذره شروع به گام زدن به اولین همسایگی خالی خود می کند. تعداد این گام ها تا قبل از ساکن شدن، عدد تصادفی بین ۰ تا χ است. بعد از تمام شدن این گام ها ذره ساکن شده و ذره دیگری خلق شده و به سمت زیرلایه گسیل می شود. مرحله انباشت و پخش سطحی تا زمانی ادامه می یابد که ارتفاع ستون ها به میزان دلخواهی برسد که در ابتدای برنامه تعریف کردیم [7].

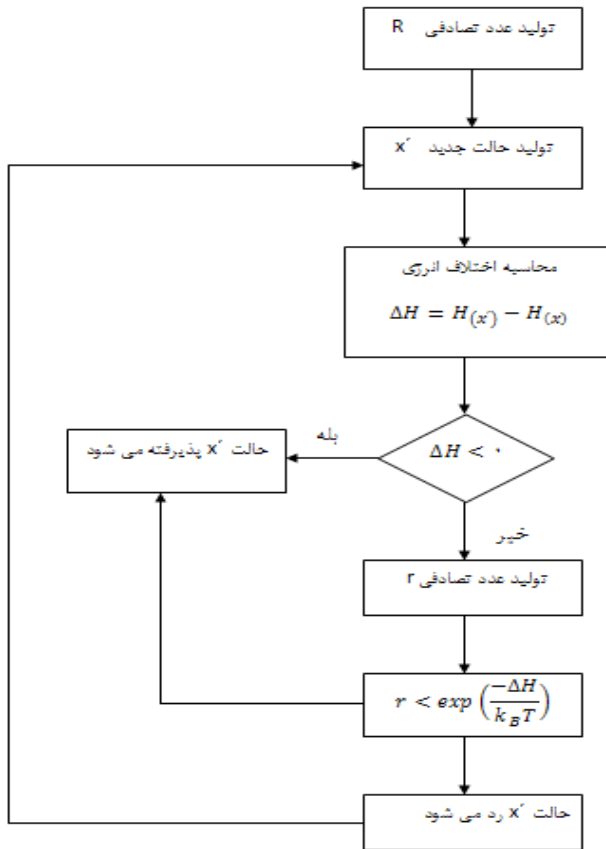
¹ Overhang

۴. بررسی تاثیر دمای زیرلایه در حضور پتانسیل لنارد - جونز

ابتدا مختصاتی تصادفی به ذره نسبت می دهیم. در این مرحله ذره انرژی پتانسیلی را احساس می کند که در برنامه با پتانسیل لنارد - جونز در نظر گرفتیم. در برنامه یک عدد تصادفی در بازه $[-1,1]$ تولید می شود که بوسیله آن ذره جابه جا می گردد. در این مرحله، ذره را جابه جا می کنیم و مجدداً پتانسیل لنارد-جونز را محاسبه می کنیم تا ذره به کمینه انرژی برسد.

در این گام اختلاف مقدار انرژی ذره در جایگاه دوم را از مقدار انرژی که ذره در جایگاه اول داشته است محاسبه می کنیم و چنانچه انرژی کمینه شود این جایگاه را برای ذره می پذیریم. به منظور ایجاد آنسامبل درستی از حالت ها، یک حلقه مارکوف^۱ از حالت ها می سازیم به طوری که هر حالت فقط از حالت قبلی ایجاد می شود. با استفاده از تابع متروپولیس، می توانیم یک حلقه مارکوف از حالت ها را ایجاد کنیم که توزیع درستی از آنسامبل کانونی داشته باشد. شکل (1) فلوجارت برنامه را نشان می دهد:

¹ Markov



شکل ۱: فلوجارت متروپلیس.

که در این شکل، H هامیلتونی دستگاه است و $\Delta H = H(x') - H(x)$. هامیلتونی مورد استفاده در مونت کارلو فقط شامل انرژی پیکربندی است، حتی اگر شامل بخش انرژی جنبشی شود. وقتی که عامل بولتزمن نرمالیزه می شود تا مقدار کامل احتمال را بیان کند، این بخش از بین می رود [۹].

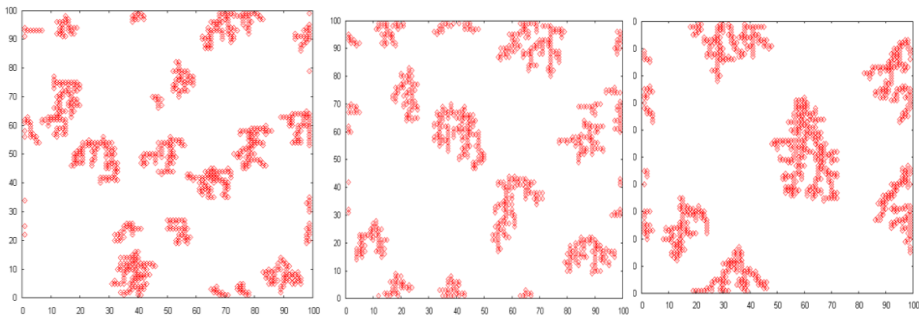
برای بررسی روند شکل گیری و رشد جزایر و همچنین نحوه تغییرات بوجود آمده در ابعاد و توزیع جزایر در مرحله هسته بندی و رشد حجمی، بررسی پارامتر دما لازم به نظر می رسد.

۵. بحث و بررسی

۵-۱. اثر تغییرات دما بر ریخت‌شناسی جزایر و تعداد جزایر در مرحله

هسته‌بندی

تحقیقات انجام شده در زمینه تاثیر افزایش دمای زیرلایه، بر رشد لایه نازک حاکی از آن است که این امر موجب پخش سطحی می‌گردد [10-12]. در این مقاله، به کمک الگوریتم متروپولیس و گام‌های تصادفی اثر دمای زیرلایه را اعمال نمودیم. ابعاد زیر لایه $100 \times 100 \times 100$ در نظر گرفته شده است. شکل ۲ ریخت‌شناسی جزایر در محدوده دمایی ۶۰۰-۴۰۰ کلوین و پوشش سطح ۰/۱ و طول پخش به ترتیب ۵۰۰، ۱۰۰۰ و ۲۰۰۰ را نشان می‌دهد.



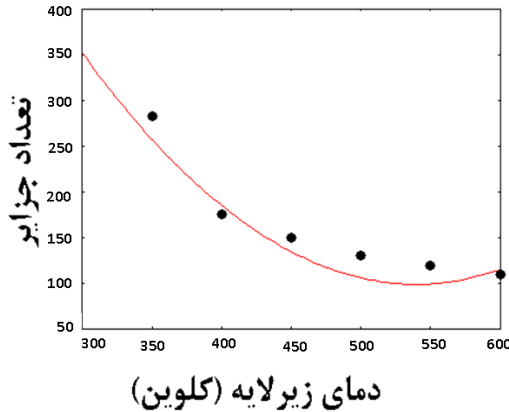
شکل ۲: ریخت‌شناسی جزایر در زیرلایه $100 \times 100 \times 100$ به ترتیب از چپ در دمای ۴۰۰، ۵۰۰ و ۶۰۰ کلوین و پوشش سطح ۰/۱.

این شکل نشان می‌دهد که با افزایش دما و به دنبال آن، افزایش طول پخش سطحی تعداد جزایر کاهش یافته و اندازه جزایر بزرگتر شده است. در دمای ۶۰۰ کلوین مشاهده می‌شود که تعداد جزایر به طور چشمگیری کاهش یافته است و اندازه جزایر نیز بزرگتر از دمای ۵۰۰ کلوین است. نتایج به دست آمده را با مقاله ژانگ^۱ مقایسه می‌نمایم [۱۱]. در مقاله ژانگ، برای ذرات مس، مشاهده می‌شود که با افزایش دمای زیرلایه یا کاهش آهنگ لایه نشانی، پخش کافی و مناسب صورت می‌گیرد و به آسانی جزایری (بیشتر از سه اتم) را

¹ P. F. Zhang

تشکیل می دهد و با بالا رفتن دما یا پایین آمدن آهنگ لایه نشانی، جزایر تشکیل شده بزرگتر می شوند و تعداد آنها کاهش می یابد [10-12]. تفاوت این پژوهش با مقاله ژانگ در وارد کردن پارامتر دمای زیرلایه به کمک الگوریتم متروپولیس است. در اینجا ما فراتر از نتایج به دست آمده در مقاله مذکور تأثیر دما را در مرحله رشد حجمی نیز بررسی می کنیم.

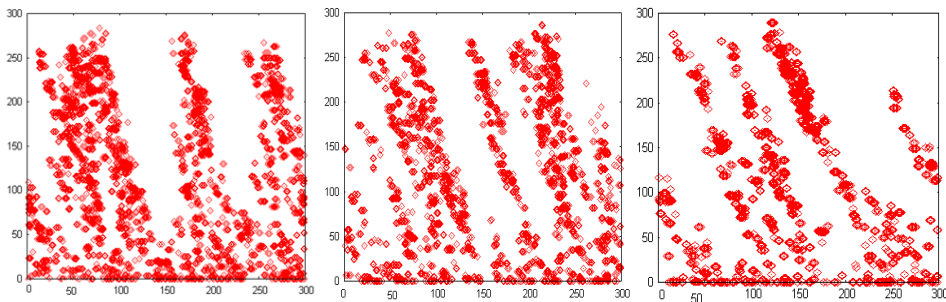
شکل ۳ منحنی تغییرات تعداد جزایر در پوشش سطح ۰/۱ را نسبت به تغییرات دمای زیرلایه در محدوده دمایی ۳۵۰-۶۰۰ نشان می دهد. برای شمارش تعداد جزایر از الگوریتم هوشن-کوپلمن استفاده شده است که در آن جزایر شماره گذاری می شوند [13]. همان طور که در منحنی دیده می شود با افزایش دمای زیرلایه، تعداد جزایر روند نزولی دارد. اما در دماهای بالا، اندازه جزیره بزرگ می شود و بنابراین تعداد جزایر کاهش پیدا می کند که در مقاله آقای ژانگ نیز چنین روند نتایج، مشابه مقاله ما گزارش گردیده است [12].



شکل ۳: منحنی تغییرات تعداد جزایر در زیرلایه $100 \times 100 \times 100$ نسبت به تغییرات دمای زیرلایه در پوشش سطح ۰/۵.

۲-۵. بررسی اثر دمای زیرلایه در مرحله رشد حجمی

در دمای ۴۰۰ کلوین، دو پدیده پخش سطحی و سایه اندازی^۱ با هم در حال رقابت هستند. پدید غالب، پدیده سایه اندازی است زیرا ستون های مایل در حال رشد بر ستون های مجاور خود، سایه می افکنند. در نتیجه ستون های زیرین، ذرات فرودی کمتری را دریافت می کنند. این امر موجب می شود ساختار متخلخل و به صورت ستون های باریک رشد کند. در اینجا زیرلایه در ابعاد $300 \times 300 \times 300$ در نظر گرفته شده است. شکل ۴ برش عرضی از ساختار سه بعدی در پوشش سطح $0/5$ و زاویه فرود ذرات $75^\circ - 85^\circ$ در دمای ۴۰۰ کلوین و طول پخش ۵۰۰ را نشان می دهد.



شکل ۴: برش عرضی از رشد سه بعدی ساختار در زیرلایه $300 \times 300 \times 300$ به ترتیب از چپ 75° ، 80° و 85° در دمای ۴۰۰ کلوین، پوشش سطح $0/5$ و طول پخش ۵۰۰.

شکل ۴ رشد ساختار ستونی را نشان می دهد که در آن ستون ها جدا از هم قرار گرفته اند. همانطور که مشاهده می شود، پدیده سایه اندازی منجر به توقف رشد بعضی از ستون ها نسبت به ستون های دیگر شده است.

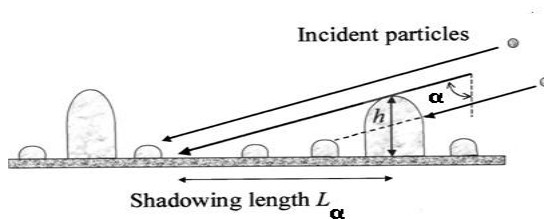
۳-۵. تاثیر زاویه فرود بر طول سایه اندازی و ارتفاع بلندترین ستون

در دمای ۴۰۰ کلوین، تحرک پایین ذرات می تواند منجر به خود سایه اندازی شود که باعث ایجاد میکروساختار با ریخت شناسی ستونی باریک می شود. بنابراین اثر سایه اندازی

^۱ Shadowing

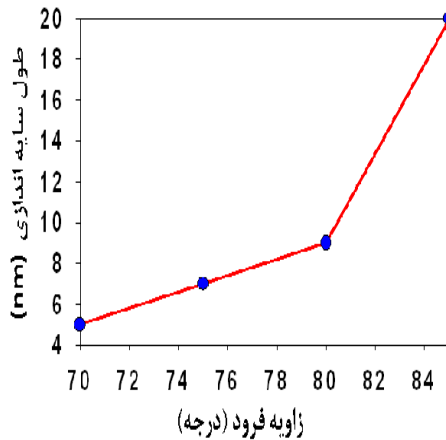
بدون شک بخش مهمی را در رشد بلورهای ستونی در فیلم های نازک تشکیل می دهد [14]. تعریف طول سایه اندازی به ارتفاع ستون رشد یافته و زاویه مایل فرود ذرات بستگی دارد. اگر زاویه فرود ذرات را α فرض کنیم و h ارتفاع ستون باشد، طول سایه اندازی از رابطه ۳ به دست می آید [15]. شکل ۵، شمائی از تعریف طول سایه اندازی را نشان می دهد.

$$L_{\alpha} = h \tan \alpha \quad (3)$$



شکل ۵: شمائی از تعریف طول سایه اندازی L_{α} [15].

شکل ۶، نمودار تغییرات طول سایه اندازی نسبت به تغییرات زاویه فرود ذرات در دمای ۴۰۰ کلوین را نشان می دهد. در رشد ستونی مایل، هنگامی که زاویه فرود ذرات را افزایش می دهیم آنچه مشاهده می کنیم این است که ستون های بلندتر بر ستون های کوتاه تر سایه انداخته و مانع از رشد آنها می شوند. نتایج حاکی از این است که با افزایش زاویه فرود ذرات، طول سایه اندازی نیز افزایش می یابد. در نمودار، بیشینه طول سایه اندازی در زاویه 85° دیده می شود. برای بدست آوردن طول سایه اندازی در این پژوهش، ما به کمک نرم افزار gnuplot چندین برش عرضی از ساختار رشد یافته را در زاویه فرود خاص مشاهده نموده و بلندترین ستونی را که در ساختار دیده می شد در نظر گرفته ایم و با توجه به اینکه ارتفاع این ستون، منجر به افت ارتفاع ستون های دیگر می شود که در محدوده سایه این ستون خاص قرار گرفته اند، طول سایه اندازی را محاسبه نموده ایم. برای هر کدام از زوایای فرود، این عمل را در ۲۰ برش عرضی تکرار نموده و مقدار میانگین را در نمودار قرار داده ایم.



شکل ۶: منحنی تغییرات طول سایه اندازه‌ای نسبت به تغییرات زاویه فرود در زیرلایه $300 \times 300 \times 300$ و دمای 400 کلوین، پوشش سطح 0.5 .

۶. نتیجه گیری

به کمک الگوریتم متروپولیس و گام های تصادفی، مرحله هسته بندی و رشد حجمی تابعی از دمای زیرلایه را شبیه سازی و بررسی نمودیم. نتایج نشان می دهد که با افزایش دمای زیرلایه، تحرک پذیری ذرات افزایش می یابد و پدیده پخش سطحی نمایان می شود و همین امر موجب به هم پیوستن جزایر کوچکتر و تشکیل جزایری با اندازه بزرگتر می گردد. به دنبال افزایش اندازه جزایر، از تعداد جزایر تشکیل شده کاسته می شود. در مرحله رشد حجمی ساختار، پدیده سایه اندازه‌ای تاثیر خود را نشان می دهد و ساختارها به صورت متخلخل و ستون های جدا از هم رشد می کنند. در فرود مایل ذرات، نتایج نشان می دهد که با افزایش زاویه فرود ذرات نسبت به نرمال بر سطح زیرلایه، طول سایه اندازه‌ای افزایش می یابد.

۷. منابع

- [1] H. Savaloni and M. Gholipour Shahraki, "A computer model for the growth of thin films in a structure zone model", *Nanotechnology* 15 (2004) 311-319.
- [2] L. I. Maissel and R. Glang, "Handbook of thin film technology", McGraw-Hill, 1983.
- [3] L. Abelmann and C. Lodder, "Oblique evaporation and surface diffusion", *Thin Solid Films* 305 (1997) 1-21.
- [4] P. Ball, "Designing the molecular world", Princeton University Press, 1994.
- [5] T. Karabacak, G. C. Wang, and T. M. Lu, "Enhanced layer coverage of thin films by oblique angle deposition", *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* 859E (2005) JJ9.5.1-JJ9.5.6.
- [6] T. Karabacak, G. C. Wang, and T. M. Lu, "Physical self-assembly and the nucleation of three-dimensional nanostructures by oblique angle deposition", *J. Vac. Sci. Technol. A* 22 (2004) 1778-1784.
- [7] S. Khadivian Azar, M. Abdollahi, and R. S. Dariani, "Simulation of nanostructures growth with oblique angle deposition by Monte Carlo method", *Proceeding of the Annual Physics Conference of Iran, Urmia University* (2011) 2415-2418.
- [8] M. Abdollahi and R. S. Dariani, "Effect of temperature variation on thin layer growth by Monte Carlo simulation method", *Proceeding of the 4th International Conference on Nanostructures, Kish Island* (2012) 1624-1625.
- [9] S. Ozawa, Y. Sasajima, and D. W. Heermann, "Monte Carlo simulation of film growth", *Thin Solid Films* 272 (1996) 172-183.
- [10] P. F. Zhang, X. P. Zheng, and D. He, "Kinetic Monte Carlo simulation of thin film growth", *Science in China* 46(6) (2003) 600-618.

[11] P. F. Zhang, X. P. Zheng, S. P. Wu, and D. Y. He, "Kinetic Monte Carlo simulation of Cu films growth", *Vacuum* 72(4) (2004) 405-410.

[12] X. P. Zheng, P. F. Zhang, D. He, J. Lu, and M. Jantal, "A computer simulation of nucleation and growth of thin films", *Computational Materials Science* 47(4) (2004) 442-451.

[13] J. Hoshen and R. Kopelman, Percolation and cluster distribution. I. cluster multiple labeling technique and critical concentration algorithm*, *Physical Review B*, 4(8) (1976) 3438-3445.

[14] H. Savaloni, "Molecular dynamic simulation model for the growth of thin films in the structure zone model", *Journal of Sciences Islamic Azad University (JSIAU)* 17(63) (2007) 20-41.

[15] T. Karabacak, G. C. Wang and T. M. Lu, "Quasi-periodic nanostructure grown by oblique angle deposition", *J. Appl. Phys.* 94(12) (2003) 7723-7728.