

## محاسبه مونت کارلوی توزیع ضخامت لایه‌های فلزی تهیه شده به روش لایه‌نشانی لیزرپالسی

محمد رضا رشیدیان وزیری<sup>۱\*</sup>، افضل مصطفوی حسینی<sup>۲</sup>، علی هاشمی زاده<sup>۲</sup>

<sup>۱</sup> پژوهشگاه لیزر و اپتیک، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، تهران، ایران

<sup>۲</sup> گروه فیزیک، دانشگاه پیام نور، مرکز پرند

### چکیده

در این کار توزیع ضخامت لایه‌های فلزی در روش لایه‌نشانی لیزر پالسی با محاسبات مونت کارلو مدل‌سازی شده است. نشان داده شده است که به علت بالا بودن انرژی یون‌های برخوردکننده به سطح لایه در این روش، نقش یون‌های کندوپاش شده از سطح در شکل‌گیری توزیع ضخامت لایه‌ها با اهمیت خواهد بود. نتایج بیانگر احتمال شکل‌گیری حفره در مرکز لایه‌های رشد یافته به علت حجم بالای کندوپاش است. علاوه بر این با کاهش وزن اتمی ماده مورد استفاده برای لایه‌نشانی، احتمال شکل‌گیری این حفره‌ها در توزیع ضخامت بیش‌تر خواهد بود.

## Monte Carlo calculation of the thickness profiles of the metal films prepared by pulsed laser deposition technique

M.R. Rashidian Vaziri<sup>\*1</sup>, A. Mostafavi Hoseini<sup>2</sup>, A. Hasheimizadeh<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Laser and optics research school, NSTRI, Tehran, Iran

<sup>2</sup> Physics department, Payame noor university, Parand branch

(\*Corresponding author)

### Abstract

*In this work, thickness profiles of metal films prepared by pulsed laser deposition technique are modeled using the Monte Carlo calculations. It is shown that due to the energetic nature of the impacting ions on the film surface, the sputtered ions play a dominant role in determining the thickness profiles of the prepared films. Results predict the possibility of dip formation at the center of the grown films due to the high rate of sputtering. Furthermore, it is shown that the possibility of dip formation is higher for materials with lower atomic weights.*

### مقدمه

رساندن یون‌ها در اثر برخورد با مولکول‌های گاز در طی مسافت هدف- زیرلایه روش ساده دیگری جهت رفع این مشکل است. با توجه به طبیعت گاوسی لیزر مورد استفاده برای کندوسوز لیزری و لذا تمرکز بیشتر یون‌های جدا شده در امتداد خط عمود بر سطح ماده هدف، انتظار به دست آوردن لایه‌هایی در این روش که ضخامت بیش‌تری در مرکز داشته و کناره‌های آن‌ها نازک‌تر باشند چندان دور از ذهن نیست. نشان داده شده است که به طور معمول در صورت استفاده از گاز پس‌زمینه در این روش، توزیع ضخامت لایه به شکل  $\cos(\theta)$  خواهد بود که زاویه  $\theta$  نسبت به خط عمود بر مرکز لایه اندازه‌گیری می‌شود [۲]. علی‌رغم این انتظار، تاکنون

لایه‌نشانی لیزر پالسی کاربردهای فراوانی در تهیه لایه‌های نازک و ضخیم با خواصی متفاوت از لایه‌های تهیه شده با سایر روش‌های لایه‌نشانی تبخیر فیزیکی دارد [۱]. با وجود کاربرد گسترده، یکی از مشکلات اصلی این روش، غیریکنواختی ضخامت لایه‌های به دست آمده از طریق آن است که حاصل تمرکز یون‌های کندوسوز شده در جهت عمود بر سطح ماده هدف می‌باشد. علاوه بر کاربرد روش‌هایی نظیر دوران زیرلایه و جاروب نمودن سطح ماده هدف توسط باریکه‌ی لیزری، استفاده از گاز پس‌زمینه و به تعادل گرمایی

و  $k$  ثابت بولتزمن است. توزیع یون‌ها در فضای مکان و انرژی به روش وازنی - نیومن انجام می‌پذیرد [۷]. اطلاعات مربوط به انرژی و سرعت یون‌ها از مرجع [۱] استخراج شده‌اند. با توجه به آنکه در حضور گاز پس‌زمینه توسعه و گسترش توده یون‌ها توسط اندرکنش یون‌ها با اتم‌های گاز کنترل می‌شود، در مرحله اول تنها سطح مقطع‌های برهم‌کنش یون با اتم‌های گاز در نظر گرفته شده است. در مرحله دوم، توده یون‌های گسترده شده در اثر برخوردها، وارد لایه شده و در اثر برهم‌کنش با الکترون‌های آزاد، فونون‌ها و یون‌ها متوقف می‌شوند. برای مشاهده الگوریتم مورد استفاده در محاسبه پارامترهای جنبشی یون‌ها پس از برخورد با اتم‌های گاز پس‌زمینه و ماده در حال رشد می‌توان به مرجع [۲] مراجعه کرد. با تغییر فشار گاز پس‌زمینه بین ۵۰ تا ۱۵۰ میلی‌تور با گام‌های ۱۰ تایی، پارامترهای مرتبط با رشد لایه نظیر انرژی جنبشی یون‌ها پیش از برخورد به سطح، نرخ کندوپاش، توزیع شعاعی یون‌های رسیده به سطح و اتم‌های کندوپاش شده از سطح تعیین شده‌اند. شبیه‌سازی‌ها برای فلزهای آلومینیوم، تیتانیوم، آهن و کبالت تکرار شده‌اند. با بررسی اطلاعات به دست آمده و تحلیل آماری دقیق، توزیع ضخامت لایه‌ها در هر فشار به دست آمده است.

### نتایج

شکل ۱ تعداد میانگین یون‌های عبورکرده از فاصله هدف - زیرلایه  $N_T(r)$  را برحسب فاصله شعاعی از مرکز زیرلایه نشان می‌دهد. با افزایش فشار گاز پس‌زمینه مقادیر  $N_T(r)$  کاهش می‌یابند. پهن شدن پروفایل  $N_T(r)$  با افزایش فشار نشان‌دهنده پهن شدن توده پلاسمایی کندوسوز شده در گاز پس‌زمینه و رسیدن یون‌ها به تعادل گرمایی است [۲ و ۳]. کاهش مقادیر  $N_T(r)$  با افزایش فشار گاز پس‌زمینه نشان‌دهنده اهمیت بیشتر برخوردها در این بازه است. اگر مسافت آزاد میانگین بین یون‌ها و اتم‌های گاز پس‌زمینه را  $\lambda_A$  بنامیم، می‌توان نشان داد [۸]:

$$\lambda_A \propto kT(\sqrt{2} m_g^{0.9} P)$$

گزارش‌های متعددی مبنی بر رشد لایه‌هایی که ضخامت آن‌ها توزیعی متفاوت از این حالت داشته باشند ارائه شده‌اند. در بیش‌تر این گزارش‌ها به وجود حفره در مرکز لایه‌های آماده شده اشاره شده است [۳-۵].

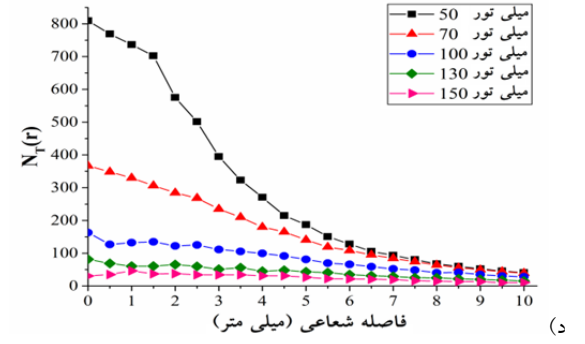
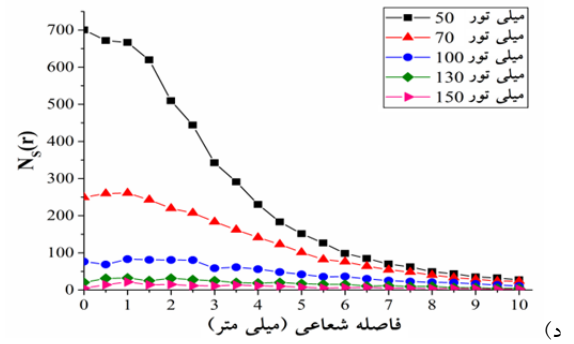
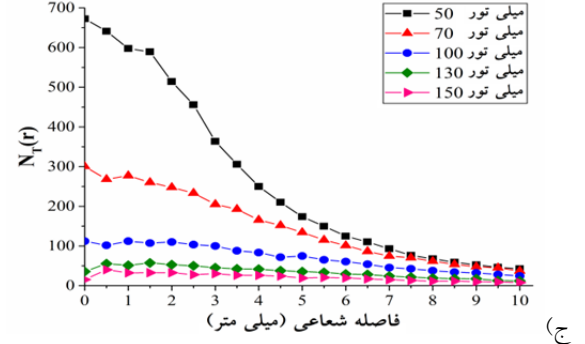
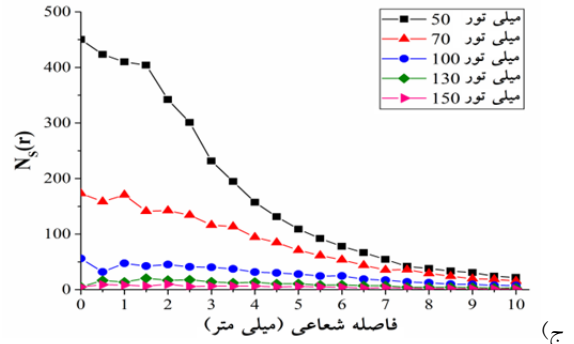
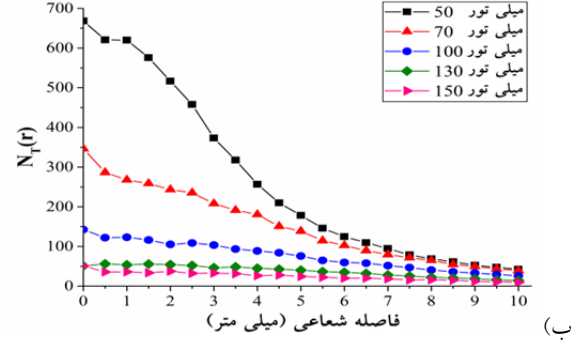
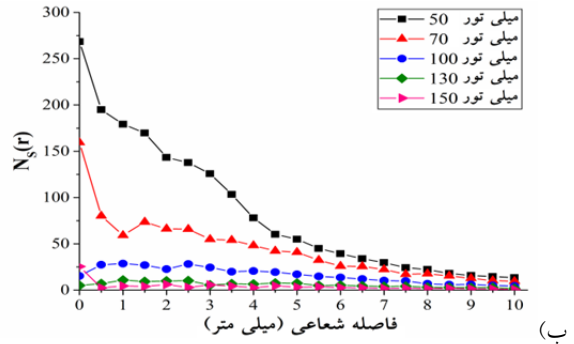
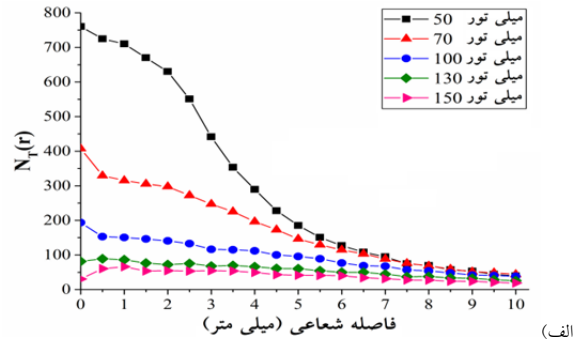
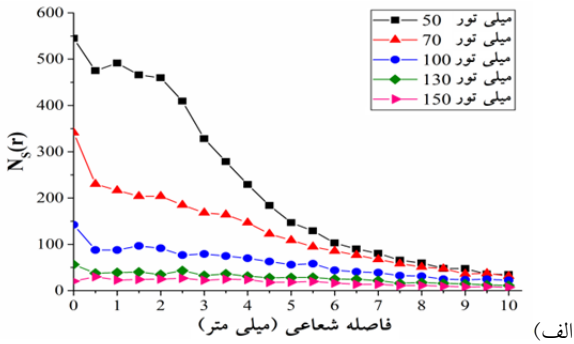
مدلی برپایه محاسبات مونت‌کارلوی دینامیک یون‌های کندوسوز شده برای شبیه‌سازی رشد لایه‌ها به روش لایه‌نشانی لیزرپالسی ارائه شده است [۲]. محاسبات این مدل برای یافتن فاصله بهینه هدف تا زیرلایه و انتخاب نوع و فشار گاز پس‌زمینه موردنیاز برای رشد لایه‌ها به این روش مورد استفاده قرار گرفته است [۳ و ۶]. محاسبات انجام شده توسط این مدل نشان‌دهنده شکل‌گیری حفره در مرکز برخی لایه‌های رشدیافته به این روش است. نشان داده شده است که علت شکل‌گیری این حفره‌ها انرژی بالای یون‌های رسیده به سطح لایه در حال رشد است [۳]. شکل‌گیری این حفره‌ها مستلزم مقایسه دقیق تعداد یون‌های رسیده به سطح لایه در حال رشد و تعداد یون‌های کندوپاش شده از سطح آن در بخش‌های مختلف است. برای مواد مختلف، که انرژی بستگی‌های متفاوتی دارند، شرایط مقایسه این دو دسته از یون‌ها متفاوت بوده و نیاز به تحقیق و کار بیش‌تری دارد. در این کار با استفاده از مدل مونت‌کارلوی ذکر شده، شبیه‌سازی رشد لایه‌های فلزی آلومینیوم، تیتانیوم، آهن و کبالت در گاز پس‌زمینه زنون به انجام رسیده است. با محاسبه و ترسیم نیم‌رخ ضخامتی لایه‌های رشد یافته نشان داده شده است که شکل‌گیری حفره در مرکز لایه‌ها به وضوح وابسته به جرم اتمی ماده مورد استفاده برای لایه‌نشانی است.

### مدل شبیه‌سازی مونت کارلو

در این مدل فرض می‌شود که پس از خاتمه پالس لیزری، توده کنده شده یون‌ها در جهت عمود بر سطح هدف و در موقعیت لکه‌ی لیزری شکل می‌گیرد. با فرض آنکه اندازه لکه‌ی لیزری یک میلی‌متر باشد، توزیع مکانی گاوسی از تعداد  $10^5$  یون با توزیع انرژی ماکسول بولتزمنی جابه‌جا شده زیر تولید می‌شود:

$$f(v_z) = Bv_z^3 \exp\left(\frac{-m(v_z - v_0)^2}{2kT}\right)$$

در این رابطه  $B$  ثابت به‌هنگارسازی،  $V_z$  سرعت یون‌ها،  $V_0$  سرعت جابه‌جایی،  $T$  دمای پلازما،  $m$  جرم اتمی یون‌های کندوسوز شده



شکل ۲. تعداد میانگین یون‌های کندوپاش شده از فاصله هدف-زیرلایه برحسب فاصله شعاعی از مرکز زیرلایه. برای الف) آلومینیوم (ب) تیتانیوم (ج) آهن و د) کبالت. فاصله شعاعی از مرکز زیرلایه نشان داده شده است. بایستی خاطر نشان ساخت که انرژی بالای یونها به هنگام برخورد به سطح، می‌تواند باعث کندوپاش تعداد زیادی یون از سطح لایه در حال رشد شود. همانطور که در شکل ۲ مشخص است، تعداد این یونها به خصوص در مرکز لایه که انرژی یونهای برخوردی بیش‌تر است،

شکل ۱. تعداد میانگین یون‌های عبور کرده از فاصله هدف-زیرلایه برحسب فاصله شعاعی از مرکز زیرلایه. برای الف) آلومینیوم (ب) تیتانیوم (ج) آهن و د) کبالت. در این رابطه  $P$  و  $m_g$  به ترتیب فشار و جرم اتمی گاز پس زمینه هستند. مطابق با این رابطه با افزایش فشار، مسافت آزاد میانگین کاهش یافته و اثرات برخوردی در تعیین پارامترهای جنبشی یونها نقش مؤثرتری ایفا می‌کنند.

در شکل ۲ تعداد میانگین یون‌های کندوپاش شده  $N_S(r)$  برحسب

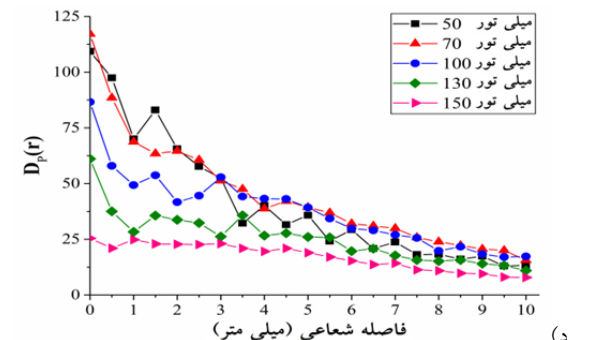
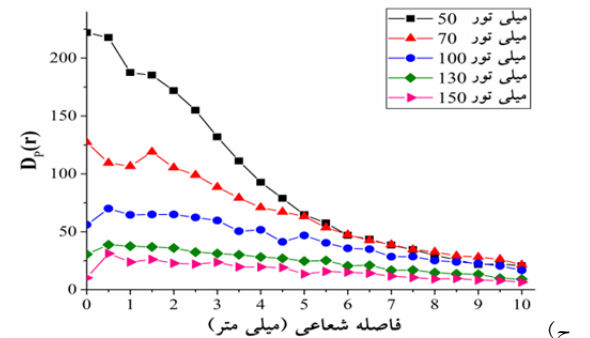
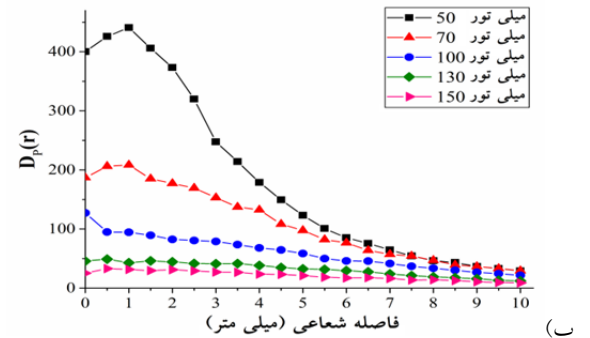
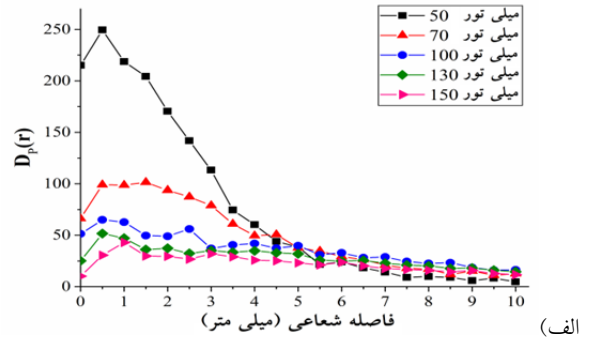
میانگین یون‌های کندوپاش شده در شکل ۲ در مرکز بیش‌تر از کناره‌هاست، نیم‌رخ شبه‌گاوسی یون‌های عبورکرده در شکل ۱ دستخوش تغییر می‌شود. وزن اتمی فلزات نشان داده شده در بخش‌های الف) تا د) شکل‌های ۱ تا ۳ به صورت افزایشی است (Co=۵۸/۹۳، Fe=۵۵/۸۴، Ti=۴۷/۹، Al=۲۶/۹۸) همانطور که در شکل ۳ مشخص است، برای سبک‌ترین فلز، آلومینیوم، شکل‌گیری حفره در مرکز لایه ( $r=0$ ) به ازای تمامی فشارها قابل مشاهده است. در واقع حفره‌ها با دوران به اندازه  $2\pi$  نیم‌رخ‌های شکل ۳ به دست خواهند آمد. برای تیتانیوم در فشارهای پائین‌تر این حفره‌ها شکل خواهند گرفت. برای فلزات سنگین‌تر حفره‌ای در مرکز لایه شکل نخواهد گرفت.

### نتیجه‌گیری

مدل‌سازی رشد لایه‌های فلزی در این کار نشان‌دهنده وابستگی احتمال شکل‌گیری حفره در مرکز لایه‌های رشدیافته به روش لایه‌نشانی لیزر پالسی به وزن اتمی فلز مورد استفاده است. احتمال شکل‌گیری این حفره‌ها در مواد با وزن اتمی پائین‌تر بیش‌تر خواهد بود. اطلاعات بیش‌تری را می‌توان با استفاده از مدل استفاده شده در این کار برای انرژی و زاویه یون‌های برخوردی و کندوپاش شده به دست آورد [۹].

### مرجع‌ها

- [1] Eason, Robert. *Pulsed laser deposition of thin films: applications-led growth of functional materials*. John Wiley & Sons, 2007.
- [2] M.R. Rashidian Vaziri et al., "Microscopic description of the thermalization process during pulsed laser deposition of aluminium in the presence of argon background gas." *Journal of Physics D: Applied Physics* 43.42 (2010): 425205.
- [3] M.R. Rashidian Vaziri et al., "Monte Carlo simulation of the subsurface growth mode during pulsed laser deposition." *Journal of Applied Physics* 110.4 (2011): 043304.
- [4] T.C. Droubay et al., "Non-stoichiometric material transfer in the pulsed laser deposition of LaAlO<sub>3</sub>." *Applied Physics Letters*, 97 (12): 124105 97.PNNL-SA-73524 (2010).
- [5] S. K. Hau et al. "Intrinsic resputtering in pulsed-laser deposition of lead-zirconate-titanate thin films." *Applied physics letters* 66.2 (1995): 245-247.
- [6] M.R. Rashidian Vaziri et al., "Optical and structural properties of copper nanostructured thin films prepared by pulsed laser deposition." *Optik-International Journal for Light and Electron Optics* 126.14 (2015): 1348-1351.
- [7] J. LV. Lewandowski, "Numerical loading of a Maxwellian probability distribution function." *Canadian journal of physics* 81.8 (2003): 989-996.
- [8] A. Tselev et al., "Features of the film-growth conditions by cross-beam pulsed-laser deposition." *Applied Physics A* 69.3 (1999): 353-358.
- [9] M.R. Rashidian Vaziri, A. mostafavi, S.A. Hashemizadeh, *Journal of Physics D: Applied Physics, Under revision*.



شکل ۳. توزیع ضخامت لایه‌های الف) آلومینیوم ب) تیتانیوم ج) آهن و د) کبالت برحسب فاصله شعاعی از مرکز زیرلایه.

افزون‌تر است. پروفایل ضخامت  $D_p(r)$  با کسر تعداد میانگین یون‌های کندوپاش شده از تعداد میانگین یون‌های عبورکرده از فاصله هدف- زیرلایه به دست می‌آید [۳]. در شکل ۳ مقادیر  $D_p(r)$  رسم شده‌اند. در واقع شکل ۴ از کسر نمودن نقطه به نقطه داده‌های شکل ۲ از داده‌های شکل ۱ به دست می‌آید. به دلیل آنکه تعداد