

**SIMULAREA PROCESELOR DE CREȘTERE
A STRATURILOR NANOMETRICE DE $Zn_{1-x}Mg_xO$
FOLOSIND METODA MONTE-CARLO**

Meiling YAO

Introducere. Straturile nanometrice de oxizi, precum ZnMgO, au fost studiate pe larg datorită perspectivelor largi de aplicare în domeniul THz și în optoelectronică [1]. Morfologia straturilor nanometrice are un impact semnificativ asupra proprietăților lor fizice și depinde de creșterea acestora la scară atomică. La dimensiuni atomare, creșterea straturilor nanometrice este un proces complex de neechilibru, fiind practic imposibilă stabilirea traiectoriilor mișcării fiecărei particule ce va forma structura. Metoda Kinetice Monte-Carlo [2] permite simularea evoluției morfologiei suprafeței pe întreaga durată de creștere a nanostructurii. Simularea numerică reflectă procesul de creștere a

straturilor nanometrice în diferite condiții de proces, precum și reflectă influența diferitelor modificări ale parametrilor (temperatură, timp) asupra straturilor nanometrice. Astfel este necesară precizarea condițiilor optime de creștere a structurilor reale ca rezultat al simulărilor numerice, existând și perspectiva prezicerii proprietăților acestora. Studiul fizicii proceselor de creștere a straturilor nanometrice de $Zn_{1-x}Mg_xO$ prin intermediul simulării numerice Monte-Carlo cercetând influența temperaturii, timpului de depunere și a compoziției x asupra formării nanostructurilor menționate, a fost efectuat pentru dimensiunea substratului 100×100 poziții.

Metode, rezultate și interpretări pentru simularea procesului de creștere este metoda Monte-Carlo cu considerarea particularităților menționate *infra*. Procesul de formare a nanostratului poate fi considerat ca fiind constituit din următoarele procese: 1) incidența atomilor depuși; 2) difuzia adatomului pe suprafață; 3) evaporarea adatomilor. Aceste procese în ratele corespunzătoare de depunere, de evaporare și de difuzie a atomilor de pe suprafață [3]. Rata de depunere este $\nu_d = FN^2$, unde F este numărul de monostraturi depuse pe unitate de timp (ML/s), N este numărul de puncte de rețea de pe suprafață. Odată ce atomul incident este adsorbit de suprafață, acesta devine un adatom. Există vibrația termică a atomului de pe suprafața substratului, adatomurile vor difuza în toate direcțiile pe suprafața substratului. Această difuzie a adatomilor este limitată de condițiile din jur. În general, rata de difuzie a unui atom adsorbit poate fi exprimată ca [4]: $\nu_h = \nu_0 \exp(-E_{ijkl} / k_B T)$, unde T este temperatura substratului, k_B – constanta Boltzmann;

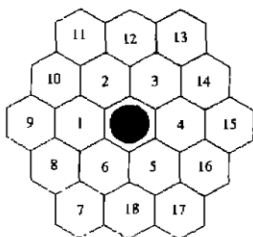


Fig.1. Rețeaua substratului [3] din simetria cristalină a materialului

E_{ijkl} – bariera de potențial pe care trebuie să o depășească adatomii atunci când difuzează de la locul cu coordonatele (i, j) în cel cu coordonatele (k, l) ; ν_0 – rata de vibrație a atomilor de substrat ($\nu_0 = 2kBT/h$).

Bariera potențială E_{ijkl} poate fi exprimată [5]: $E_{ijkl} = E_s + \Delta E_{ijkl}$, unde E_s este energia de interacțiune dintre adatomii și substrat; $\Delta E_{ijkl} = E_{kl} - E_{ij}$, E_{ij} și E_{kl} sunt energiile interacțiunii dintre adatomii și atomii din jur cu coordonatele (i, j) și (k, l) . E_{ij} poate fi exprimată:

$E_{ij} = \sum_{k=1}^m V_{ij}^k$, unde V_{ij}^k este potențialul de interacțiune dintre adatom și atomul k , iar m este numărul de atomi apropiați din jurul adatomului.

$$\nu_h = \sum_{i=1}^m \nu_h^i$$

În procesul de difuzie, din cauza vibrației atomilor de suprafață, adatomii se pot reîntoarce în faza gazoasă, având loc evaporarea. Rata de evaporare este [5]: $\nu_e = \nu_{e0} \exp(-E_y^e / kBT)$, unde ν_{e0} este o constantă, E_y^e – bariera potențială pe care atomul trebuie să o depășească.

Considerând că există trei procese, probabilitatea fiecărui P poate fi exprimată ca: $P_i = \nu_i / \sum \nu_i$ $i = d, h, e$. Numărul aleatoriu r este generat. Dacă $r < P_d$, are loc procesul de depunere. Dacă $P_d < r < P_d + P_h$, are loc procesul de difuzie. Dacă $P_d + P_h < r < 1$, are loc procesul de evaporare.

Energia potențială dintre atomii de Zn și O se calculează folosind potențialul Morse: $V = V_0 [\exp(-2a(r_k - r_0)) - 2 \exp(-a(r_k - r_0))]$, unde α , r_0 sunt constante, V_0 – energia de interacțiune dintre cele mai apropiate particule; r_k – distanța dintre adatom și atomul k cel mai apropiat. Datele din simulare iau în considerație rezultatele experimentale din [6].

Tabelul 1

Valorile V_0 pentru cele mai apropiate particule în nanostructuri de ZnO [6]

Atomi	Zn-Zn	Zn-O	O-O
V_0 (kcal/mol)	47,2436	124,8335	60,14336

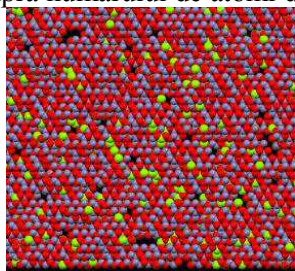
În cazul atomilor de Mg și O, se folosește potențialul Buckingham (Tab. 2): $V_{ij}(r_{ij}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_i Z_j e^2}{r_{ij}} + A_{ij} \exp(-r_{ij} / \rho) - C_{ij} / r_{ij}^6$, unde Z_i și Z_j sunt sarcinile specifice, e – sarcina elementară, r_{ij} este distanța de interacțiune dintre atomii i și j ; iar A_{ij} și ρ se exclud reciproc parametrul de acțiune, C_{ij} – constanta van der Waals.

Tabelul 2

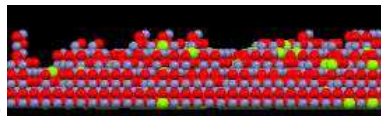
Parametrii folosiți pentru simulare (+ reprezintă Mg, – reprezintă O) [7]

$a+ = 1,161 \text{ \AA}$ $b+ = 1,161 \text{ \AA}$ $c+ = 2(\text{kcal} / \text{mol} \text{ \AA}^6)^{1/2}$	$A+- = 1152,0eV$ $\rho+- = 1152,0eV$
$a- = 1,626 \text{ \AA}$ $b- = 0,085 \text{ \AA}$ $c- = 20(\text{kcal} / \text{mol} \text{ \AA}^6)^{1/2}$	$A-- = 22760,0eV$ $\rho-- = 0,149eV$ $C-- = 28,96eV \text{ \AA}^6$
$f_0 = 6,9511 \times 10^{-11} N$	Mg $q = +2e$ O $q = -2e$

Formarea nanostructurilor $Zn_{1-x}Mg_xO$ cu diferit conținut de magneziu de 0,05; 0,10; 0,15; 0,20 și 0,25 a fost simulată numeric pentru substratul cu dimensiunea de 100×100 poziții, morfologia structurii fiind prezentată în Figura 2, iar influența parametrilor fizici asupra numărului de atomi depuși în Figura 3.



(a)



(b)

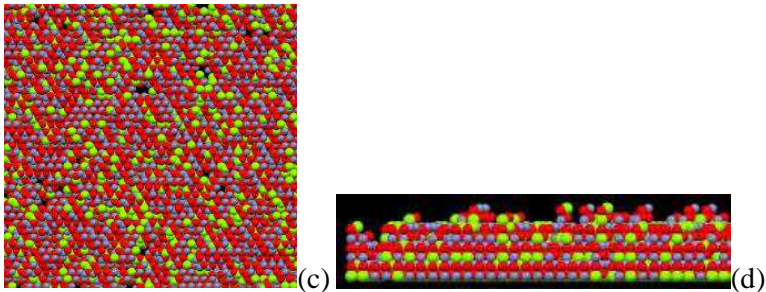


Fig.2. Morfologia suprafeței nanostructurilor de $Zn_{1-x}Mg_xO$ depuse timp $t=800$ s, $T=700$ K (a) $x=0,05$; (b) $x=0,05$; (c) $x=0,25$; (d) $x=0,25$ (vedere de sus (a, c) și în secțiune transversală (b, d))

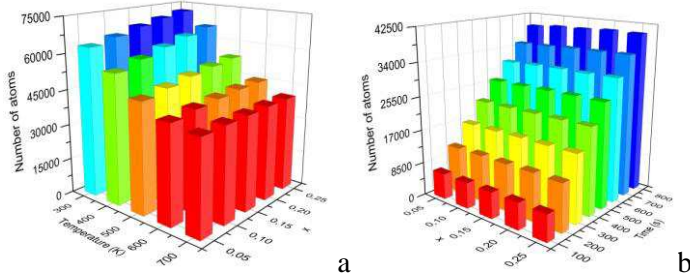


Fig.3. Diagrama schimbării numărului de atomi în funcție de concentrația de Mg și temperatură pentru nanostructurile de $Zn_{1-x}Mg_xO$ (timp de depunere 800 s) (a); Diagrama schimbării numărului de atomi în funcție de concentrația de Mg și timp pentru nanostructurile de $Zn_{1-x}Mg_xO$ (temperatura de depunere 700K) (b)

Concluzii. Studiarea simulării creșterii straturilor nanometrice de $ZnMgO$ cu timp de depunere (50-800 s), la temperaturi diferite (300-700K) și concentrație diferită a Mg (0,05-0,25), generează următoarele: în procesul creșterii straturilor nanometrice, când temperatura este constantă, creșterea timpului de depunere duce la mărirea numărului de atomi depuși; procesul de creștere a filmului necesită o temperatură adecvată pentru obținerea unui strat nanometric *pin-hole free*; pentru structuri $ZnMgO$ cu dimensiunea suprafeței 100×100 atomi este posibilă obținerea nanostructurilor *pin-hole free* (700K, 800s); în simularea proceselor pentru diferite valori ale lui x , atunci când $x = 0,15$, stratul

nanosubțire are o morfologie perfectă a suprafeței. Straturile nanometrice nu numai că formează ușor clustere mai mari, dar tind să crească și pe orizontală. Creșterea valorii de x în $Zn_{1-x}Mg_xO$ reduce defectele pin-hole.

Referințe:

1. SIRKELI, V.P., YILMAZOGLU, O., KÜPPERS, F., HARTNAGEL, H.L. 2.08 THz and 4.96 THz room-temperature quantum cascade lasers based on non-polar m-plane ZnMgO/ZnO. In: *Proceedings of the 43rd International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, IRMMW-THz 2018*, Nagoya, Japan, 2018, pp. 1-2.
2. AMAR, J.G. FAMILY, F. Critical cluster size: Island morphology and size distribution in submonolayer epitaxial growth. In: *MRS Proceedings, Fractal aspects of materials*. 1994, 367, p.149.
3. MURRY, S.D. BASKES, M.I. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals. In: *Physical Review B*, 1984, 29(12), pp. 6443-6453.
- A. VOTER, F. Classically exact overlayer dynamics: Diffusion of rhodium clusters on Rh(100). In: *Physical Review B*, 34(10), pp. 6819-6829.
4. DONALDR, W.B. Empirical potential for hydrocarbons for use in simulating the chemical vapor deposition of diamond films. In: *Physical Review B*, 1990, 42(15), pp. 9458-9471.
5. RAYMAND, D., ADRI, C.T. A reactive force field (ReaxFF) for zinc oxide. In: *Surface Science*, 2008, 602, pp. 1020-1031.
6. KAMIYA, T. Determination of interatomic potential by ab-initio periodic calculation for MgO. In: *Applied Physics*, 1996, 35, pp. 3688-3694.

Recomandat

Sergiu VATAVU, dr., conf. univ.