

УДК 539.216.2.

ИССЛЕДОВАНИЕ ФОРМИРОВАНИЯ МЕХАНИЧЕСКИХ НАПРЯЖЕНИЙ В ХОДЕ РОСТА ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ ПЛЕНКИ Cr МЕТОДОМ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ

© 2022 г. А. С. Бабушкин^а, *, А. Н. Куприянов^а

^аЯрославский филиал Физико-технологического института имени К.А. Валиева РАН,
Ярославль, 150007 Россия

*e-mail: artem.yf-fitian@mail.ru

Поступила в редакцию 11.02.2022 г.

После доработки 10.03.2022 г.

Принята к публикации 10.03.2022 г.

Приведены результаты моделирования осаждения поликристаллической пленки Cr методами молекулярной динамики. В модели атомы осаждали поверх полусферических монокристаллических островков из Cr, сформированных заранее и повернутых относительно друг друга, тем самым имитируя этап роста пленки, когда начинает происходить коалесценция зерен. Исследована зависимость шероховатости поверхности и механических напряжений от энергии осаждаемых атомов и скорости осаждения. Чем выше была энергия атомов и ниже скорость осаждения, тем больше атомов было способно спускаться по атомным ступеням, достраивать их и внедряться в межзеренную границу. В результате пленки, полученные осаждением атомов Cr с большей энергией, имели более ровную поверхность; сжимающие напряжения внутри них принимали большие значения. Снижение скорости осаждения также привело к увеличению сжимающих напряжений, но шероховатость поверхности практически не изменилась. Выявлено, что при остановке и последующем возобновлении осаждения происходит обратимое изменение напряжений, которое связано с перестройками атомов внутри межзеренной границы, а выход атомов на поверхность практически не происходит.

Ключевые слова: остаточные механические напряжения, рост поликристаллических пленок, хром, молекулярная динамика.

DOI: 10.31857/S102809602211005X

ВВЕДЕНИЕ

Тонкие металлические пленки имеют широкое применение в микро- и наноэлектромеханических системах [1, 2], устройствах хранения информации [3] и оптике [4]. Однако в процессе роста в пленке формируются остаточные механические напряжения, которые представляют существенную угрозу работоспособности устройств, так как могут приводить к растрескиванию и отслаиванию [5, 6], вздутию пленки [7], а также деформации элементов конструкции [8]. С другой стороны, в ряде случаев наличие напряжений может быть функциональным свойством. Например, управляемую деформацию пленок можно применять для самосборки трехмерных механических устройств для микроэлектроники [9–12]. Таким образом, управление напряжениями в пленках является актуальной задачей.

Большинство металлических пленок растут по механизму Вольмера–Вебера, в рамках которого различают три стадии. На начальном этапе на подложке формируются отдельные островки, на

границах которых возникают сжимающие напряжения. Эти напряжения связывают с Лапласовым давлением [13], а также влиянием поверхностных дефектов [14]. На втором этапе роста островки начинают соприкасаться и образовывать межзеренную границу, и в пленке возникают растягивающие напряжения. Разные авторы по-своему описывают этот процесс математически [15–17], но все они сходятся на том, что возникновение растягивающих напряжений связано с уменьшением поверхностной энергии в результате формирования межзеренной границы. На третьем этапе роста при низкой подвижности адатомов в пленке продолжают накапливаться растягивающие напряжения. Если же подвижность адатомов будет высокой, то растягивающие напряжения станут снижаться и постепенно произойдет переход к сжимающим напряжениям. Величина подвижности адатомов зависит как от материала, так и условий осаждения, например, температуры подложки. Природа возникновения сжимающих напряжений на этом этапе роста до сих пор является предметом обсуждения [18–21]. Сложность в

объяснению добавляет тот факт, что если прервать осаждение, часть этих напряжений релаксирует, но если его возобновить, напряжения возвращаются к прежнему значению и развиваются, как в случае непрерывного осаждения. В работе [16] возникновение сжимающих напряжений связывают со встраиванием адатомов в межзеренную границу. По мнению авторов, оно обусловлено тем, что растягивающие напряжения, возникшие в зернах на втором этапе роста, приводят к появлению в межзеренной границе дополнительного пространства для встраивания адатомов. Авторы работы [22] связывают возникновение сжимающих напряжений с попаданием адатомов между коалесцирующими атомными ступенями на поверхности пленки. Таким образом, частичная релаксация напряжений объяснена способностью адатомов выбираться из этих ловушек при прекращении осаждения. В работе [23] заявляют, что два упомянутых выше механизма играют незначительную роль, а сжимающие напряжения “наследуются” от первой стадии роста пленки. Уменьшение сжимающих напряжений после прекращения осаждения авторы объяснили процессом рекристаллизации, который приводит к изменению плотности межзеренных границ. Наиболее обобщенная модель, описывающая изменение напряжений на второй и третьей стадии роста пленки представлена в [24, 25]. Как и в работе [16], возникновение сжимающих напряжений объясняют проникновением адатомов в межзеренную границу. Но причину этого авторы видят в увеличении химического потенциала на поверхности зерен на величину $\delta\mu_s$, из-за того, что при осаждении поверхность приходит в неравновесное состояние. Возникающая разница между химическими потенциалами на поверхности пленки и в межзеренной границе $\Delta\mu$ становится движущей силой для адатомов; эта разница равна $\delta\mu_s + \sigma_i\Omega$, где σ_i – напряжения в приповерхностном атомном слое, Ω – объем, приходящийся на один атом. Знак “+” обусловлен тем, что сжимающие напряжения принято считать отрицательными. В ходе осаждения $\Delta\mu$ положительна, в результате чего происходит движение адатомов с поверхности в межзеренную границу и формирование сжимающих напряжений. При остановке осаждения химический потенциал на поверхности возвращается к равновесному значению, добавка $\delta\mu_s$ исчезает и, при наличии сжимающих напряжений, $\Delta\mu$ становится отрицательна, в результате чего часть атомов возвращается обратно на поверхность.

Для того чтобы изучить, какие процессы на самом деле приводят к формированию напряжений в пленке, необходима возможность наблюдать поведение отдельных атомов в ходе ее роста. К сожалению, возможности существующих экспериментальных методов исследования поверхности

in situ достаточно ограничены. Для решения этой задачи применяют метод молекулярной динамики. Моделирование осуществляют путем решения уравнений движения для получения положений всех атомов в модели как функций времени. Силы, действующие на каждый атом, определяются потенциалом межатомного взаимодействия, заданным пользователем.

Молекулярно-динамическому (МД) моделированию осаждения металлических пленок посвящено множество работ [24–37]. Одной из ключевых сложностей при МД исследовании осаждения пленок является моделирование кремниевой подложки, а точнее ее взаимодействия с осаждаемыми атомами. Дело в том, что достаточно сложно подобрать межатомный потенциал, корректно описывающий взаимодействие металлов с кремнием, и работ, в которых это удалось, не много [26, 27]. Поэтому в большинстве работ либо используют подложки из другого металла [28–34], либо из того же, что и осаждаемый материал [35–39]. Но лишь малая часть из них посвящена поликристаллическим пленкам. В работах [36, 37] продемонстрировано проникновение адатомов в межзеренную границу при осаждении пленок Ni, в которых в результате формировались сжимающие напряжения. В работе [39] представлены результаты обширного исследования зависимости процесса формирования напряжений во время роста поликристаллических пленок Fe и W от таких факторов как: форма, размер, ориентация исходных островков и энергия осаждаемых атомов. Также был изучен процесс релаксации сжимающих напряжений при остановке осаждения. В работе не обнаружили выход атомов из межзеренной границы обратно на поверхность, но заметили, что толщина межзеренной границы в приповерхностной области после прекращения осаждения уменьшается.

Целью настоящей работы было проведение МД моделирования осаждения поликристаллических пленок Sn, определение влияния энергии осаждаемых частиц, скорости осаждения и его временного прерывания на формирование механических напряжений, а также выявление процессов, обуславливающих это влияние. Тонкие пленки Sn имеют широкое применение в изготовлении масок для фотолитографии, тонкопленочных резисторов, обкладок тонкопленочных конденсаторов, а также в качестве адгезионных слоев [40]. Однако им характерны большие остаточные напряжения [41], что затрудняет их использование.

ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ

Моделирование было проведено с использованием свободного пакета для классической молекулярной динамики LAMMPS [42]. Визуализацию данных осуществляли с помощью открытого

программного обеспечения для анализа моделей на основе частиц OVITO [43]. Для расчетов взаимодействия между атомами Cr использовали модифицированную модель “погруженного атома” [44]. Шаг моделирования был равен 1 фс. Для имитации поликристаллической пленки Cr, находящейся на начальном этапе роста, были сформированы полусферические островки радиусом 2 нм (рис. 1а). Материал, ограниченный данными полусферами, представлял собой кристаллический Cr, у которого кристаллографическая плоскость (110) совпадала с горизонтальной плоскостью модели. Именно такой текстурой обладали пленки Cr, осажденные магнетронным методом, в экспериментальных работах [45]. Похожий подход использован в работе [39], там островки Fe в виде различных геометрических фигур располагали на подложке из того же материала после чего проводили осаждение. Однако осаждение атомов Cr поверх полусфер из Cr на подложке из Cr привело к формированию одного цельного монокристалла. Поэтому мы отказались от подложки, оставив только полусферические монокристаллические островки, пространство между которыми заполнили тонким слоем аморфной фазы (рис. 1б). Это позволило исключить при моделировании сквозной пролет осаждаемых атомов между островками. Три из четырех кристаллитов были повернуты относительно оси симметрии полусферы на углы -45° , 45° и 90° (рис. 1в), в результате чего при осаждении зерна не срастались, а формировалась межзеренная граница. Положение атомов нижнего слоя полусфер было зафиксировано. Пространство между зернами до уровня четырех атомных слоев было заполнено атомами Cr случайным образом. Положение атомов в нижнем слое этой группы также было зафиксировано, но только вдоль вертикальной оси, в результате чего после проведения процедуры минимизации свободной энергии они перестроились, сформировав начало межзеренной границы. Плотность заполнения этих четырех слоев во многом определяла значение исходных напряжений в пленке, о чем более подробно будет сказано ниже. На боковых гранях области моделирования были заданы периодические граничные условия. Это означает, что атомы левой боковой грани воздействуют на атомы правой боковой грани и наоборот, а атом, покинувший модель слева, снова появится в ней справа. В результате модель становится квазибесконечной в латеральном направлении. Перед проведением осаждения во всей модели задавали температуру 300 К и проводили процедуру релаксации (минимизации свободной энергии). При осаждении в трех атомных слоях над фиксированным нижним слоем был задан термостат 300 К для отвода тепла, возникающего при осаждении, так температура системы остается постоянной. Компоненты тензора на-

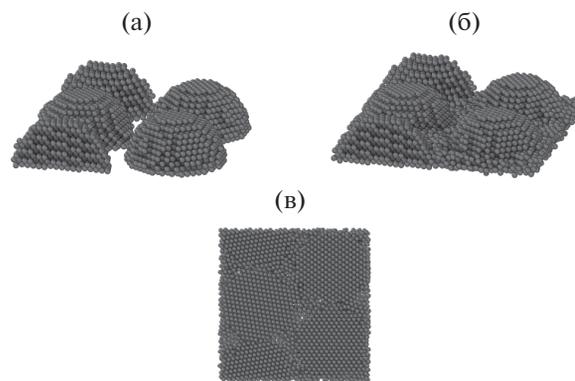


Рис. 1. Изображение модели до начала осаждения: полусферические островки до (а) и после формирования исходного тонкого слоя межзеренной границы (б), а также вид снизу (в).

пряжений определяли через кинетическую энергию и вириальное разложение [46]:

$$\sigma_{ij} = - \left(\sum_k^N m v_{ki} v_{kj} + \sum_k^{N'} r_{ki} f_{kj} \right) / V, \quad (1)$$

где i и j принимают значения x , y и z ; m — масса атома; V — объем, который занимают N атомов; v_{ki} и v_{kj} — компоненты скорости k -ого атома; r_{ki} и f_{kj} — компоненты радиус-вектора и силы, действующей на k -й атом соответственно. Суммирование второго члена выражения проводили по $N' > N$, так как в нем учтены также дополнительные “призрачные” атомы, которые возникают при добавлении периодических граничных условий и разбиении модели на субдомены для параллельных вычислений. Итоговое значение напряжений определяли как $(\sigma_{xx} + \sigma_{yy})/2$.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 представлены результаты моделирования осаждения Cr с энергиями 3, 10 и 15 эВ в течение 4 нс (4 млн шагов моделирования). Атомы Cr с упомянутыми значениями кинетической энергии по одному добавляли в модель на высоте 8 нм от образца каждые 0.5 пс, что равнялось периоду осаждения (500 шагов). Вектор начальной скорости атомов хрома был направлен вертикально вниз. Горизонтальные координаты точки появления атома были случайными. Чем выше была энергия осаждаемых атомов, тем более ровной была конечная поверхность пленки. После осаждения атомов с энергией 3 эВ шероховатость поверхности составляла 0.45 нм, в то время как при энергии 10 и 15 эВ шероховатость была равной 0.3 нм и 0.21 нм соответственно. В табл. 1 приведены значения времени заполнения атомных слоев в зависимости от энергии осаждаемых атомов Cr. Можно заметить, что при энергии осаждаемых

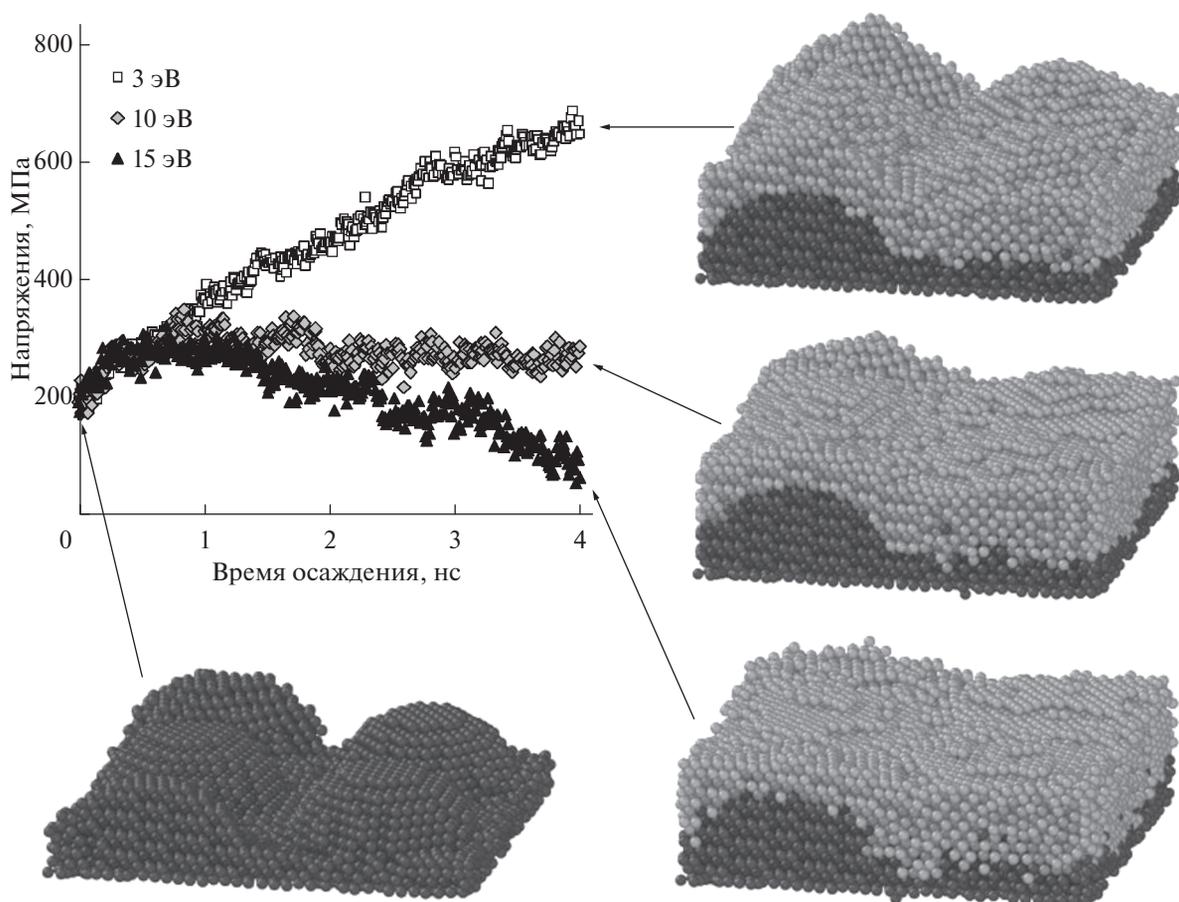


Рис. 2. Визуализация поверхности и изменение напряжений в пленке Sr в ходе осаждения атомов с энергиями 3, 10, 15 эВ и периодом осаждения 0.5 пс.

атомов 3 эВ слои заполняются примерно с равной скоростью, в то время как при больших энергиях слои, расположенные у подножия полусфер, заполняются быстрее последующих. Вероятно, это обусловлено тем, что атомы, осаждаемые с боль-

шей энергией, будучи на поверхности, обладали большей подвижностью, а также большей способностью преодолевать энергетический барьер Эрлиха–Швобеля на краю атомной ступени [47], так что осаждаемые атомы могли спускаться вниз, достраивать ступени и более плотно заполнять межзеренную границу. В результате при осаждении атомы Sr с энергией 3 эВ практически не меняли свое положение, формируя холмистый рельеф, а при больших энергиях – перераспределялись по поверхности, делая ее менее шероховатой.

Таблица 1. Времена заполнения атомных слоев в зависимости от энергии осаждаемых атомов Sr

Номер атомного слоя i	Энергия атомов Sr, эВ		
	3	10	15
	Время заполнения Δt_i , нс		
1	0.55	0.3	0.25
2	0.55	0.3	0.25
3	0.55	0.45	0.35
4	0.55	0.5	0.45
5	0.6	0.5	0.5
6	0.6	0.65	0.6
7	0.6	0.7	0.7
8	—	0.6	0.9

На рис. 3 точками показано распределение осаждаемых атомов по горизонтальным координатам после 1 млн шагов моделирования (1 нс). Атомы с энергией 3 эВ (рис. 3а) распределены достаточно равномерно, в то время как число атомов Sr с энергией 15 эВ (рис. 3б), оказавшихся в межзеренной границе, заметно превосходит таковое на поверхности зерен. Также было обнаружено, что при осаждении атомы с энергией 15 эВ проникают в межзеренную границу нижележащих слоев вплоть до самого нижнего слоя, в то время как атомы с энергией 3 эВ лежат на поверх-

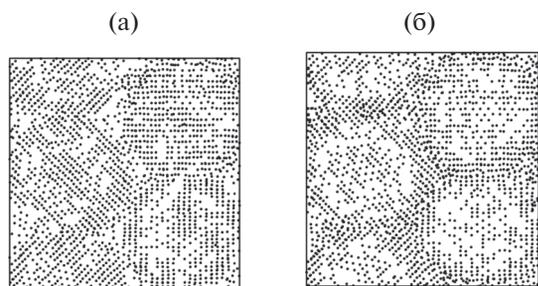


Рис. 3. Поверхностное распределение атомов, осажденных с энергиями 3 (а) и 15 эВ (б) после 1 млн шагов моделирования (1 нс).

ности исходной модели. По всей видимости, как и говорится в работах [16, 21, 24, 25], проникновение адатомов с поверхности в межзеренную границу приводит к формированию сжимающих напряжений, в результате чего примерно через 1 нс после начала процесса моделирования мы видим уменьшение суммарных растягивающих напряжений при осаждении атомов с энергией 15 эВ (рис. 2). При осаждении Сг с энергией 3 эВ этого не происходит, потому что в пленке продолжают нарастать растягивающие напряжения.

Изменение напряжений при разных скоростях осаждения атомов Сг с энергией 15 эВ представлено на рис. 4. Скорость осаждения варьировали путем изменения периода осаждения: 0.125, 0.5 и 2 пс. Таким образом, одно и то же количество атомов было осаждено за 1, 4 и 16 миллионов шагов моделирования соответственно. Как можно заметить, процесс формирования сжимающих напряжений немного сильнее выражен в пленках, осаждавшихся с большим интервалом между моментами появления новых атомов. Вероятно, это обусловлено тем, что чем больше был период осаждения, тем больше времени было у адатомов на перераспределение. В результате больше адатомов могло проникнуть в межзеренную границу, прежде чем завершится заполнение атомного слоя и их накроет другими атомами. Следует отметить, что на шероховатость поверхности скорость осаждения видимого эффекта не оказала.

На рис. 5 продемонстрировано влияние остановки осаждения на изменение напряжений в пленке. В ходе осаждения атомов Сг с энергией 15 эВ и периодом осаждения 0.5 пс был сделан перерыв в течение 1 млн шагов (1 нс). Прерывание осаждения привело к частичной релаксации сжимающих напряжений, формирующихся на третьем этапе роста пленки, в результате чего было обнаружено увеличение суммарных растягивающих напряжений. Но после возобновления осаждения напряжения возвращаются к прежнему уровню, как при непрерывном осаждении. На рис. 6 представлено изменение напряжений в

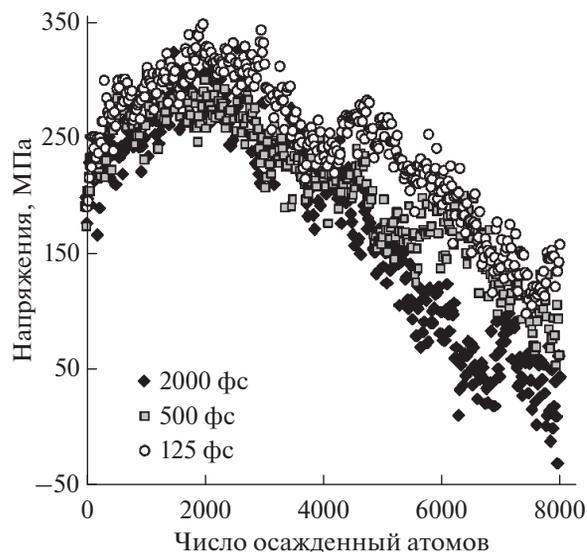


Рис. 4. Изменение напряжений в пленке Сг в ходе осаждения атомов с энергией 15 эВ и периодами осаждения 0.125, 0.5, 2 пс.

первые 10 пс после остановки (а) и первые 10 пс после возобновления (б) осаждения. Можно видеть, что скачкообразное изменение напряжений занимает хоть и малое, но детектируемое время.

Векторы перемещений атомов за время остановки осаждения показаны на рис. 7. Было обнаружено, что практически все смещения произошли в межзеренной границе, а не внутри зерен. Отметим, что большинство смещений были в латеральном направлении, а случаи выхода атомов из межзеренной границы на поверхность, подобные показанному на вставке, единичны. В работе [39] при моделировании осаждения также увидели, что остановка осаждения не приводит к выходу атомов на поверхность, но заметили, что во время остановки происходит сужение межзеренной границы в приповерхностной области. В настоящем исследовании при остановке осаждения Сг заметного изменения толщины межзеренной границы обнаружено не было. Это может быть обусловлено различием материалов или, что более вероятно, различием геометрии исходных моделей. Тем не менее, результаты говорят о том, что частичная релаксация сжимающих напряжений, скорее всего, обусловлена перестройкой атомов внутри межзеренной границы, это согласуется с литературными данными [39]. Перестройка атомов происходит в каждом завершеном атомном слое, но с избытком компенсируется формированием новых сжимающих напряжений в слое над ним. Этот процесс последовательно осуществляется по всей толщине пленки в ходе ее роста, но, по видимому, с некоторой задержкой, так как адатомы по пути с поверхности в межзеренную границу теряют часть энергии и их подвижность снижает-

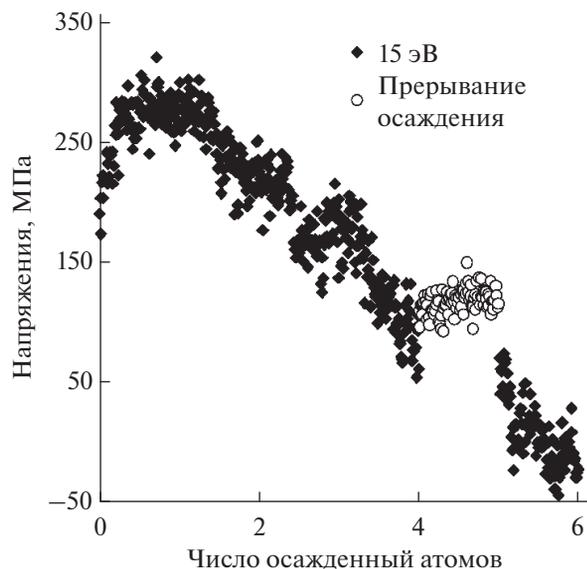


Рис. 5. Влияние прерывания осаждения на напряжения в пленке Sr при энергии осаждаемых атомов 15 эВ и периоде осаждения 0.5 пс.

ся. По той же причине практически не происходит выхода атомов обратно на поверхность. При возобновлении осаждения после перерыва адатомы снова начинают проникать в межзеренную границу, но так как за время остановки напряжения изменились на величину $\Delta\sigma$, разность химических потенциалов между поверхностью и межзеренной границей стала больше на величину $\Delta\sigma\Omega$, чем была до остановки. В результате проникновение адатомов в межзеренную границу происходит значительно быстрее вплоть до того момента, пока эта добавка к разнице химических потенциалов не станет равна нулю, и пока процесс не вернется к режиму, который был до остановки осаждения. Потому после возобновления осаждения на графике изменения напряжений видно быстрый возврат к состоянию, которое было до перерыва.

Как было упомянуто ранее, наиболее обобщенная модель формирования напряжений в поликристаллических пленках представлена в работе [24]. Напряжения в i -ом атомном слое пленки можно описать следующим выражением:

$$\sigma_i = \sigma_C + (\sigma_T - \sigma_C)\exp(-\Delta t_i/\tau), \quad (2)$$

где σ_T – растягивающие напряжения, возникающие при формировании нового участка межзеренной границы в i -ом слое; σ_C – максимальные сжимающие напряжения, которые могут в нем возникнуть в результате внедрения адатомов в межзеренную границу; Δt_i – время формирования i -го слоя; τ – кинетический параметр, зависящий от размера зерен L , параметра решетки a и эффективного коэффициента диффузии D :

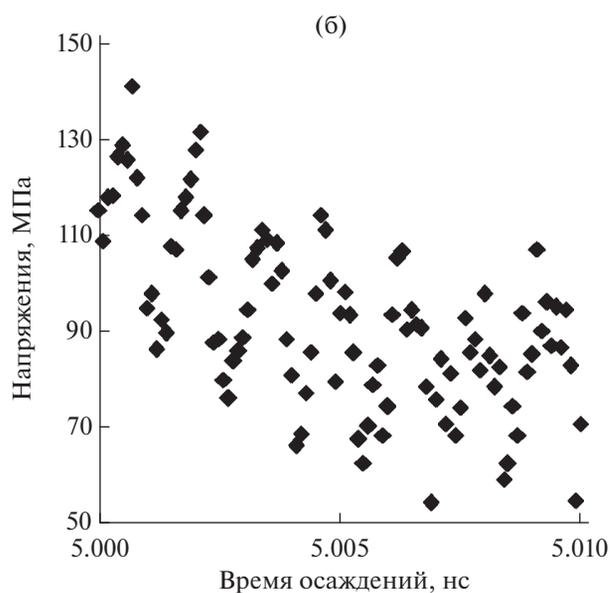
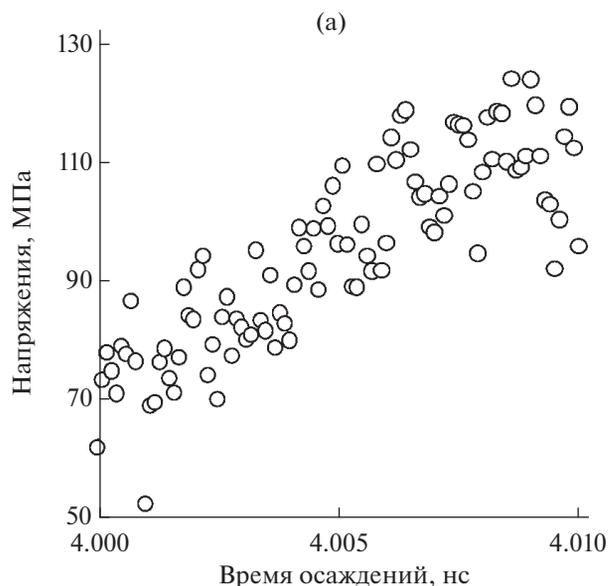


Рис. 6. Изменение напряжений в пленке Sr при осаждении атомов с энергией 15 эВ с прерыванием: в первые 10 пс после остановки (а) и первые 10 пс после возобновления (б) осаждения. Период осаждения 0.5 пс.

$$\tau = La/(\beta D). \quad (3)$$

Константу β определяют следующим образом:

$$\beta = 4C_s M_f \Omega / (kT), \quad (4)$$

где Ω – объем, приходящийся на один атом, M_f – двухосный модуль, C_s – отношение числа подвижных атомов к числу мест на террасе, прилегающей к межзеренной границе, k – постоянная Больцмана, T – температура.

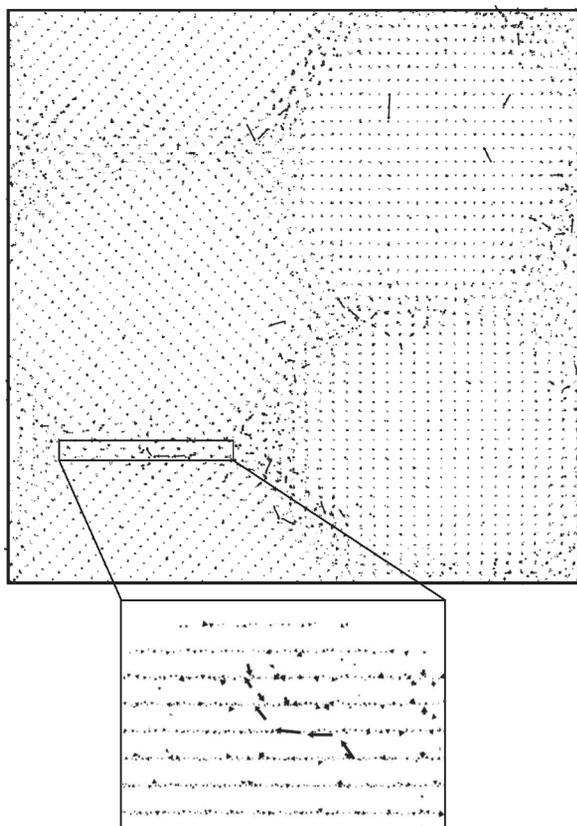


Рис. 7. Перемещение атомов за время остановки осаждения. Вставка показывает фронтальный вид выделенного участка. Стрелками указаны направления движения отдельных атомов Cr.

В итоге средние напряжения в пленке толщиной h , имеющей N заполненных атомных слоев, равны:

$$\langle \sigma \rangle = a \sum_i [\sigma_c + (\sigma_T - \sigma_c) \exp(-\Delta t_i / \tau)] / h. \quad (5)$$

На рис. 8 представлен график изменения напряжений в ходе роста пленок Cr, полученный в результате теоретических расчетов с помощью уравнения (5). Времена заполнения слоев Δt_i были взяты из результатов моделирования (табл. 1). Величины σ_c , σ_T и τ выступали в качестве уточняемых параметров, их подбирали методом наименьших квадратов по результатам, представленным на рис. 2. Величины $\sigma_c = -700$ МПа и $\sigma_T = 700$ МПа были общими для всех кривых. Наилучшему совпадению теоретических расчетов и результатов моделирования соответствовал параметр τ равный 15, 1.2 и 0.8 нс для 3 эВ, 10 эВ и 15 эВ соответственно. Из выражения (3) было ожидаемо обнаружить, что большим энергиям соответствуют меньшие значения τ , а следовательно, большая подвижность атомов. Графики, полученные в результате МД моделирования (рис. 2), качественно схожи с графиками, построенными на основе теоретических расчетов (рис. 8). Подобные зави-

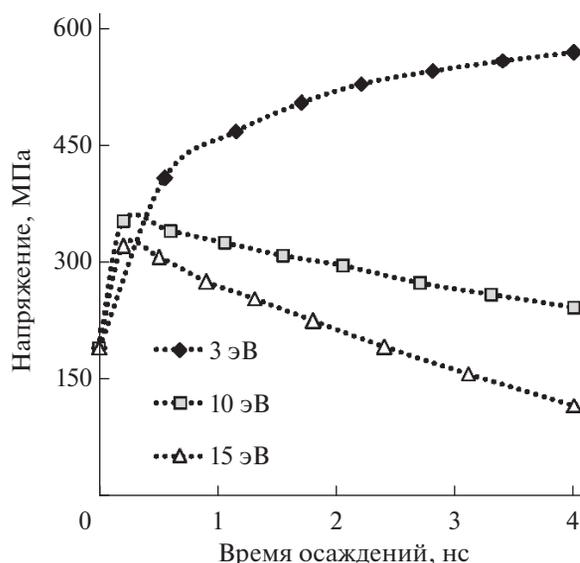


Рис. 8. Теоретические кривые изменения механических напряжений в ходе роста пленок Cr, рассчитанные на основе модели, представленной в работе [24].

симости изменения напряжений в ходе роста пленки от подвижности осаждаемых атомов весьма характерны для экспериментальных работ, посвященных осаждению металлических пленок [48, 49].

Представленный способ моделирования позволяет сформировать поликристаллические пленки с достаточно естественной межзеренной границей. Поведение шероховатости поверхности и остаточных напряжений в ходе осаждения качественно хорошо согласуется с теоретическими и экспериментальными данными. Одновременно с этим способ не требует моделирования кремниевой подложки. За счет этого, а также того, что значительная часть атомов пленки формируется еще до осаждения в виде исходных островков, время проведения расчетов существенно сокращается. Однако у приведенного нами метода формирования исходной пленки есть особенность. От того, сколько атомов будет сгенерировано на этапе заполнения первых слоев пространства между зернами до начала осаждения (рис. 16), существенно зависит величина исходных напряжений (рис. 9). Дело в том, что, несмотря на наличие этапа минимизации потенциальной энергии системы, атомы все равно остаются в напряженном состоянии. В приведенных выше расчетах число атомов в исходных слоях межзеренной границы было 1196. Оно равно числу атомов Cr в соответствующем объеме в ненапряженном монокристалле. Однако так как заполнение осуществлено случайным образом, мы получили небольшие растягивающие напряжения. Если число участвующих в осаждении атомов увеличивать, то

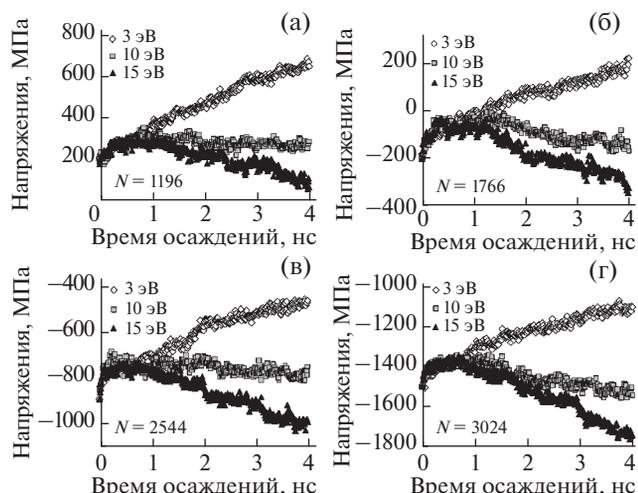


Рис. 9. Графики изменения напряжений в пленках Si в ходе осаждения атомов с энергиями 3, 10, 15 эВ в зависимости от числа атомов N , помещенных до осаждения в исходный тонкий слой межзеренной границы.

исходные напряжения будут все более сжимающими. Однако можно заметить, что различие значений исходных напряжений практически никак не влияет на дальнейший ход кривых. То есть динамика изменения напряжений в первую очередь зависит от условий осаждения, а влияние нижних слоев на последующие — минимально.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представлены результаты МД моделирования осаждения поликристаллической пленки Si. Способ моделирования позволяет сформировать поликристаллические пленки с достаточно естественной межзеренной границей. Изменение шероховатости поверхности и остаточных напряжений в ходе осаждения в зависимости от энергии осаждаемых атомов и скорости осаждения качественно достаточно хорошо согласуется с теоретическими и экспериментальными данными. Пленки, полученные осаждением атомов с большими энергиями, имели меньшую шероховатость поверхности и большие сжимающие напряжения. Снижение скорости осаждения также привело к увеличению сжимающих напряжений, но шероховатость поверхности практически не изменилась. Наблюдение за распределением осаждаемых атомов показало, что возникновение сжимающих напряжений обусловлено проникновением атомов с поверхности в межзеренную границу, что согласуется с представлениями о формировании напряжений, предложенными в работах [16, 21, 24, 25]. Рост энергии осаждаемых атомов и снижение скорости осаждения увеличивают способность осаждаемых атомов спускаться по атомным ступеням и достигать межзеренной

границы. Однако при исследовании перемещений атомов во время остановки осаждения выход атомов из межзеренной границы обратно на поверхность не был обнаружен, а релаксация сжимающих напряжений происходила за счет внутренней перестройки межзеренной границы. Быстрый возврат напряженного состояния после возобновления осаждения, вероятно, обусловлен временным усилением потока адатомов с поверхности в межзеренную границу, вызванный тем, что разность химических потенциалов между ними за время остановки выросла из-за частичной релаксации сжимающих напряжений.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена в рамках Государственного задания ФТИАН им. К.А. Валиева РАН Минобрнауки РФ по теме FFNN-2022-0017.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Varadan V.K., Vinoy K.J., Jose K.A.* RF MEMS and Their Applications, John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK, 2002.
<https://www.doi.org/10.1002/0470856602>
2. *Laconte J., Flandre D., Raskin J.P.* Micromachined Thin-Film Sensors for SOI-CMOS Co-Integration, Springer Science & Business Media, 2006.
<https://www.doi.org/10.1007/0-387-28843-0>
3. *Himpel F.J., Ortega J.E., Mankey G.J., Willis R.F.* // *Adv. Phys.* 1998. V. 47. P. 511.
<https://www.doi.org/10.1080/000187398243519>
4. *Cho J.-H., Keung M.D., Verellen N., Lagae L., Moshchalkov V.V., Van Dorpe P., Gracias D.H.* // *Small.* 2011. V. 7. P. 1943.
<https://www.doi.org/10.1002/sml.201100568>
5. *Xia Z.C., Hutchinson J.W.* // *J. Mech. Phys. Solids.* 2000. V. 48. P. 1107.
[https://www.doi.org/10.1016/S0022-5096\(99\)00081-2](https://www.doi.org/10.1016/S0022-5096(99)00081-2)
6. *Mizushima I., Tang P.T., Hansen H.N., Somers M.A.J.* // *Electrochim. Acta.* 2006. V. 51. № 27. P. 6128.
<https://www.doi.org/10.1016/j.electacta.2005.11.053>
7. *Moon M.W., Chung J.W., Lee K.R., Oh K.H., Wang R., Evans A.G.* // *Acta Mater.* 2002. V. 50. P. 1219.
[https://www.doi.org/10.1016/S1359-6454\(01\)00423-2](https://www.doi.org/10.1016/S1359-6454(01)00423-2)
8. *Dutta S., Imran M., Pal R., Jain K.K., Chatterjee R.* // *Microsyst. Technol.* 2011. V. 17. P. 1739.
<https://www.doi.org/10.1007/s00542-011-1360-5>
9. *Karnaushenko D., Kang T., Bandari V.K., Zhu F., Schmidt O.G.* // *Adv. Mater.* 2020. V. 32. P. 1902994.
<https://www.doi.org/10.1002/adma.201902994>
10. *Karnaushenko D.D., Karnaushenko D., Makarov D., Schmidt O.G.* // *NPG Asia Mater.* 2015. V. 7. P. e188.
<https://www.doi.org/10.1038/am.2015.53>
11. *Singh D., Kutbee A.T., Ghoneim M.T., Hussain A.M., Hussain M.M.* // *Adv. Mater. Technol.* 2018. V. 3. P. 1700192.
<https://www.doi.org/10.1002/admt.201700192>

12. *Weon D.-H., Jeon J.-H., Mohammadi S.* // *J. Vac. Sci. Technol. B.* 2007. V. 25. P. 264.
<https://www.doi.org/10.1116/1.2433984>
13. *Abermann R., Kramer R., Mäser J.* // *Thin Solid Films.* 1978. V. 52. P. 215.
[https://www.doi.org/10.1016/0040-6090\(78\)90140-2](https://www.doi.org/10.1016/0040-6090(78)90140-2)
14. *Friesen C., Thompson C.V.* // *Phys. Rev. Lett.* 2002. V. 89. P. 126103.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevLett.89.126103>
15. *Hoffman R.W.* // *Thin Solid Films.* 1976. V. 34. P. 185.
[https://www.doi.org/10.1016/0040-6090\(76\)90453-3](https://www.doi.org/10.1016/0040-6090(76)90453-3)
16. *Nix W.D., Clemens B.M.* // *J. Materials Res.* 1999. V. 14. P. 3467.
<https://www.doi.org/10.1557/JMR.1999.0468>
17. *Freund L.B., Chason E.* // *J. Appl. Phys.* 2001. V. 89. P. 4866.
<https://www.doi.org/10.1063/1.1359437>
18. *Abadias G. et al.* // *J. Vacuum Sc. Technol. A.* 2018. V. 36. P. 020801.
<https://www.doi.org/10.1116/1.5011790>
19. *Шугуров А.Р., Панин А.В.* // *ЖТФ.* 2020. Т. 90. № 12. С. 1971.
<https://www.doi.org/10.21883/JTF.2020.12.50417.38-20>
20. *Jamnik A. et al.* // *J. Appl. Phys.* 2020. V. 127. P. 045302.
<https://www.doi.org/10.1063/1.5130148>
21. *Jagtap P., Chason E.* // *Acta Materialia.* 2020. V. 193. P. 202.
<https://www.doi.org/10.1016/j.actamat.2020.04.013>
22. *Shull A.L., Spaepen F.* // *J. Appl. Phys.* 1996. V. 80. P. 6243.
<https://www.doi.org/10.1063/1.363701>
23. *Koch R., Hu D., Das A.K.* // *Phys. Rev. Lett.* 2005. V. 94. P. 146101.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.146101>
24. *Chason E.* // *Thin Solid Films.* 2012. V. 526. P. 1.
<https://www.doi.org/10.1016/j.tsf.2012.11.001>
25. *Chason E., Guduru P.R.* // *J. Appl. Phys.* 2016. V. 119. P. 191101.
<https://www.doi.org/10.1063/1.4949263>
26. *Zhang J., Liu C., Shu Y., Fan J.* // *Appl. Surf. Sci.* 2012. V. 261. P. 690.
<https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2012.08.082>
27. *Hwang S.F., Li Y.H., Hong Z.H.* // *Comput. Mater. Sci.* 2012. V. 56. P. 85.
<https://www.doi.org/10.1016/j.commatsci.2012.01.010>
28. *Luedtke W.D., Landman U.* // *Phys. Rev. B.* 1991. V. 44. P. 5970.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevB.44.5970>
29. *Levanov N., Stepanyuk V.S., Hergert W., Trushin O.S., Kokko K.* // *Surf. Sci.* 1998. V. 400. P. 54.
[https://www.doi.org/10.1016/S0039-6028\(97\)00841-8](https://www.doi.org/10.1016/S0039-6028(97)00841-8)
30. *Lee S.G., Chung Y.C.* // *Appl. Surf. Sci.* 2007. V. 253. P. 8896.
<https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2007.05.002>
31. *Cao Y.Z., Zhang J.J., Sun T., Yan Y.D., Yu F.L.* // *Appl. Surf. Sci.* 2010. V. 256. P. 5993.
<https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2010.03.107>
32. *Zientarski T., Chocyk D.* // *Appl. Surf. Sci.* 2014. V. 306. P. 56.
<https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2014.03.052>
33. *Li Q., Peng X., Peng T., Tang Q., Zhang X., Huang C.* // *Appl. Surf. Sci.* 2015. V. 357. P. 1823.
<https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2015.10.051>
34. *Hao H., Lau D.* // *Appl. Surf. Sci.* 2017. V. 422. P. 1139.
<https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2017.05.011>
35. *Chu C.J., Chen T.C.* // *Surf. Coatings Technol.* 2006. V. 201. P. 1796.
<https://www.doi.org/10.1016/j.surfcoat.2006.03.014>
36. *Pao C.W., Foiles S.M., Webb E.B., Srolovitz D.J., Floro J.A.* // *Phys. Rev. Lett.* 2007. V. 99. P. 036102.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevLett.99.036102>
37. *Pao C.W., Foiles S.M., Webb E.B., Srolovitz D.J., Floro J.A.* // *Phys. Rev. B.* 2009. V. 79. P. 224113.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.224113>
38. *Bin X. Jing, Liu Z.L., Yao K.L.* // *Appl. Surf. Sci.* 2012. V. 258. P. 2771.
<https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2011.10.130>
39. *Zhou X., Yu X., Jacobson D., Thompson G.B.* // *Appl. Surf. Sci.* 2019. V. 469. P. 537.
<https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2018.09.253>
40. *Wang J., Griffis D.P., Garcia R., Russell P.E.* // *Semi-cond. Sci. Technol.* 2003. V. 18. P. 199.
<https://www.doi.org/10.1088/0268-1242/18/4/302>
41. *Бабушкин А.С., Уваров И.В., Амиров И.И.* // *ЖТФ.* 2018. Т. 88. № 12. С. 1845.
<https://www.doi.org/10.21883/JTF.2018.12.46786.37-18>
42. *Plimpton S.* // *J. Comput. Phys.* 1995. V. 117. P. 1.
<https://www.doi.org/10.1006/jcph.1995.1039>
43. *Alexander S.* // *Modelling Simulation Mater. Sci. Engineer.* 2010. V. 18. P. 015012.
<https://www.doi.org/10.1088/0965-0393/18/1/015012>
44. *Choi W.M., Kim Y., Seol D., Lee B.J.* // *Comput. Mater. Sci.* 2017. V. 130. P. 121.
<https://www.doi.org/10.1016/j.commatsci.2017.01.002>
45. Труды ФТИАН. Т. 28: Квантовые компьютеры, микро- и нанoeлектроника: физика, технология, диагностика и моделирование / Ред. Махвиладзе Т.М. М.: Наука. 2019. С. 112.
46. *Thompson A.P., Plimpton S.J., Mattson W.* // *J. Chem. Phys.* 2009. V. 131. P. 154107.
<https://www.doi.org/10.1063/1.3245303>
47. *Rost M.J., Jacobse L., Koper M.T.M.* // *Nature Commun.* 2019. V. 10. P. 1.
<https://www.doi.org/10.1038/s41467-019-13188-0>
48. *Floro J.A., Hearne S.J., Hunter J.A., Kotula P., Chason E., Seel S.C., Thompson C.V.* // *J. Appl. Phys.* 2001. V. 89. P. 4886.
<https://www.doi.org/10.1063/1.1352563>
49. *Thurner G., Abermann R.* // *Thin Solid Films.* 1990. V. 192. P. 277.
[https://www.doi.org/10.1016/0040-6090\(90\)90072-L](https://www.doi.org/10.1016/0040-6090(90)90072-L)

A Molecular Dynamics Study on Mechanical Stress Formation during Polycrystalline Cr Film Growth

A. S. Babushkin¹, *, A. N. Kupriyanov¹

¹*Valiev Institute of Physics and Technology of Russian Academy of Sciences, Yaroslavl Branch, Yaroslavl, 150007 Russia*

**e-mail: artem.yf-ftian@mail.ru*

The results of molecular dynamics simulation of the polycrystalline Cr film deposition are presented. Atoms were deposited on top of hemispherical single-crystal Cr islands, preformed and rotated relative to each other, thus simulating the stage of film growth when grain coalescence begins to occur. The dependence of the surface roughness and mechanical stress on the energy of the deposited atoms and the deposition rate has been studied. The higher the energy of the atoms and the lower the deposition rate, the more atoms were able to descend the atomic steps, embed to them and insert into the grain boundary. As a result, films deposited with higher energies had a smoother surface and higher compressive stress. A decrease in the deposition rate also led to an increase in compressive stress, but the surface roughness remained almost unchanged. The study of the reversible change in stress upon stopping and resuming deposition showed that it is associated with the rearrangement of atoms inside the grain boundary, and there is almost no escape of atoms to the surface.

Keywords: residual mechanical stress, polycrystalline film growth, chromium, molecular dynamics.