



МГУ имени М.В. Ломоносова
Физический факультет

Моделирование процессов рекомбинации атомов O и N на поверхности SiO_2

Дмитровский Михаил,
группа 211М

Научный руководитель:
д. ф.-м. н. Воронина Е. Н.

Плазменная обработка поверхности

травление активация очистка

Области применения:

- микро- и нанoeлектроника
- производство оптических приборов
- медицина и биотехнологии
- авиационная и автомобильная промышленность

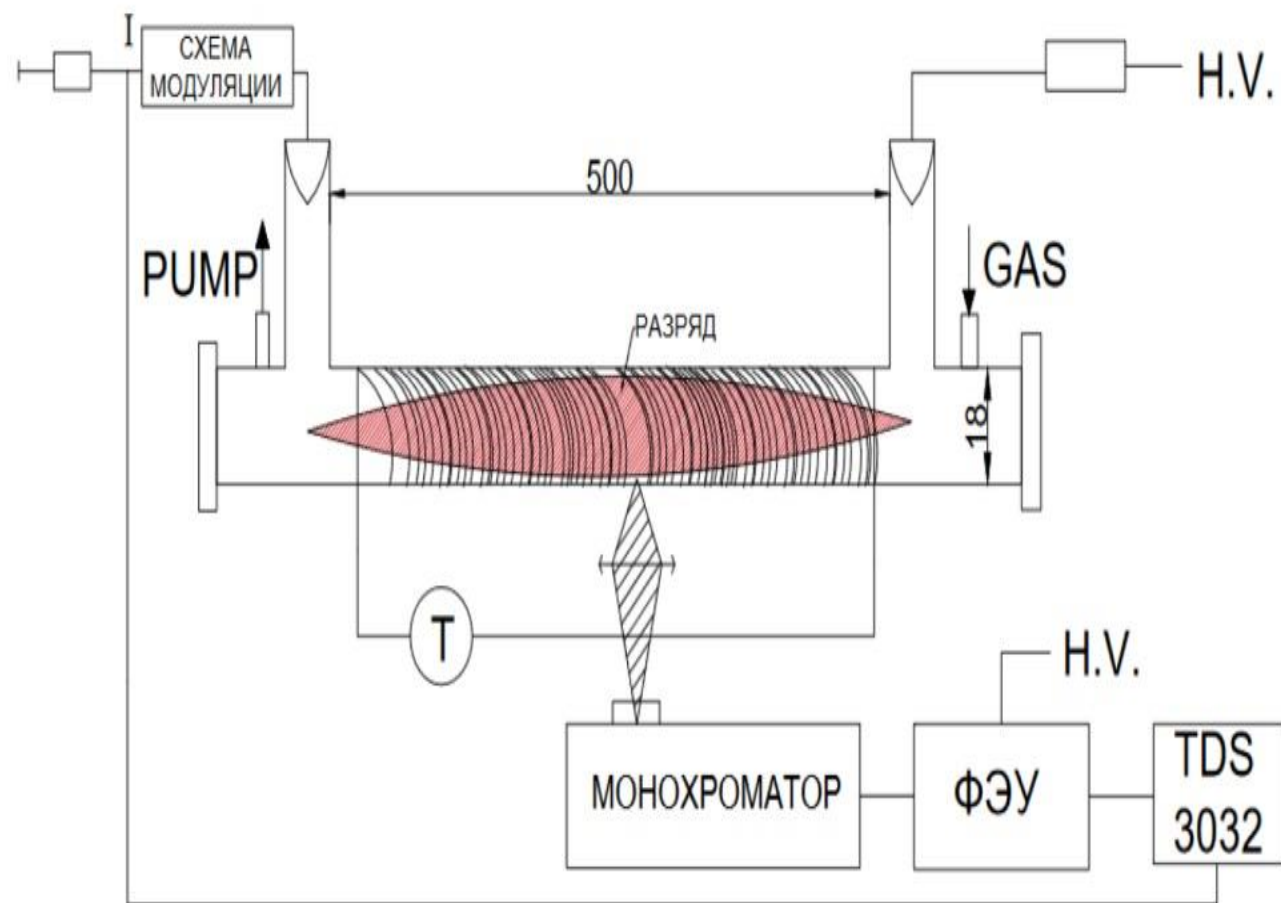


Схема экспериментальной установки

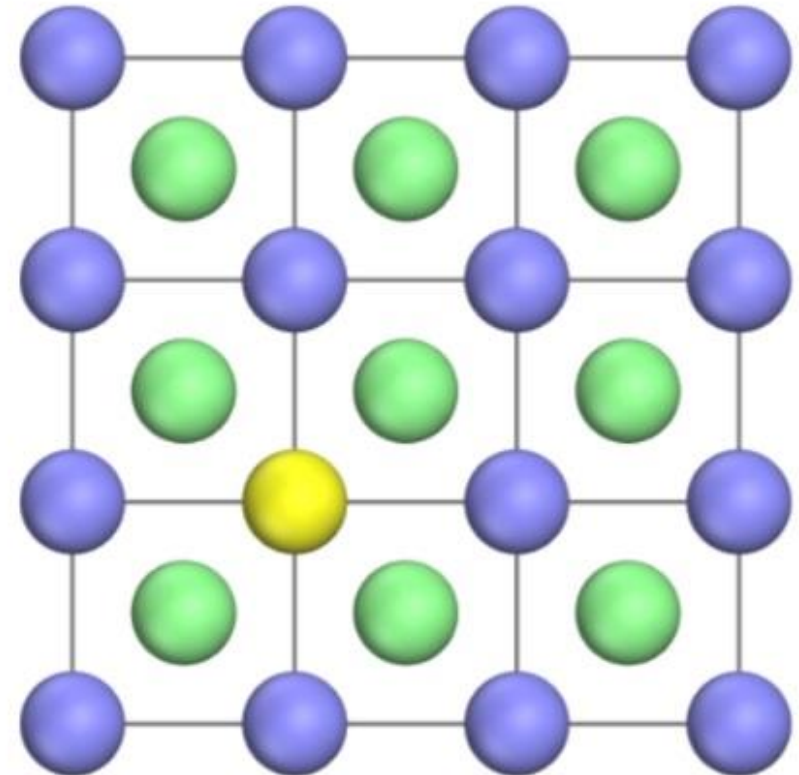
Кинетическая модель

основана на зависимости скорости реакции или скорости превращения веществ от условий её протекания (концентрации реагентов, температуры, давления и др.)

Для применения модели необходимо:

- *выявить основные процессы и установить механизмы их протекания*
- *определить значения основных параметров процессов:*
 - *константы скорости реакции*
 - *энергию активации*
 - *площадь и поверхностную концентрацию активных центров*

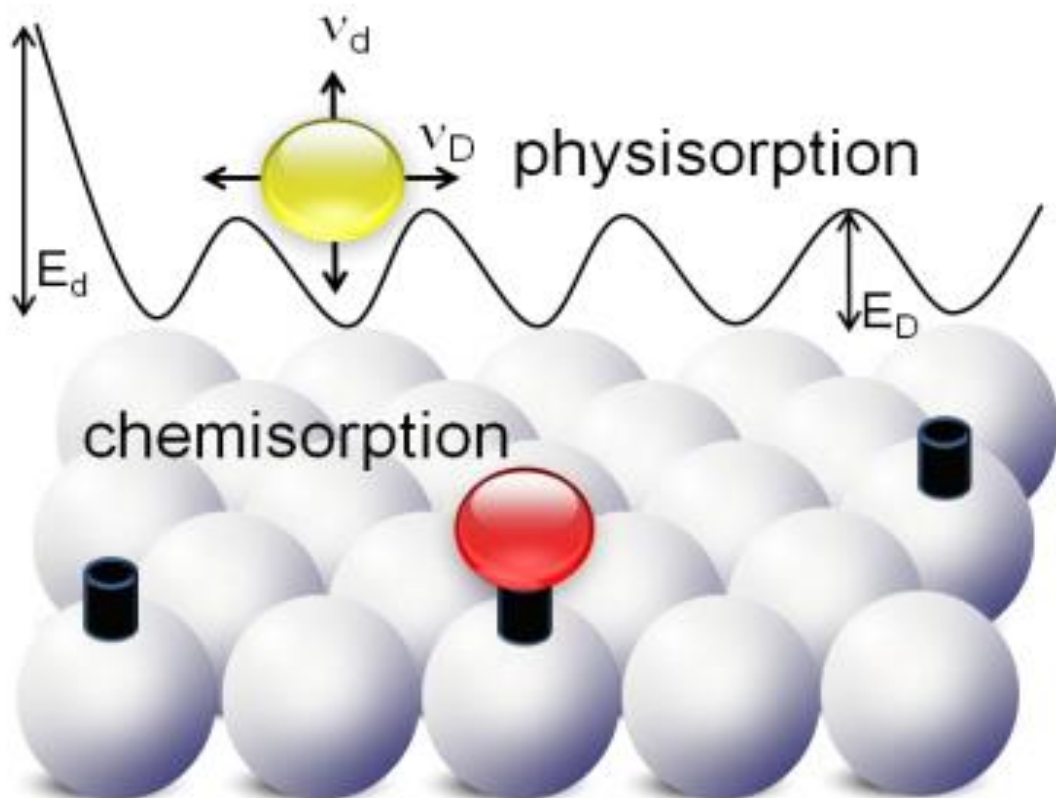
Структура поверхности в модели



Процессы на поверхности

Адсорбция

- Химическая
- Физическая



Рекомбинация

рекомбинация по механизму E-R

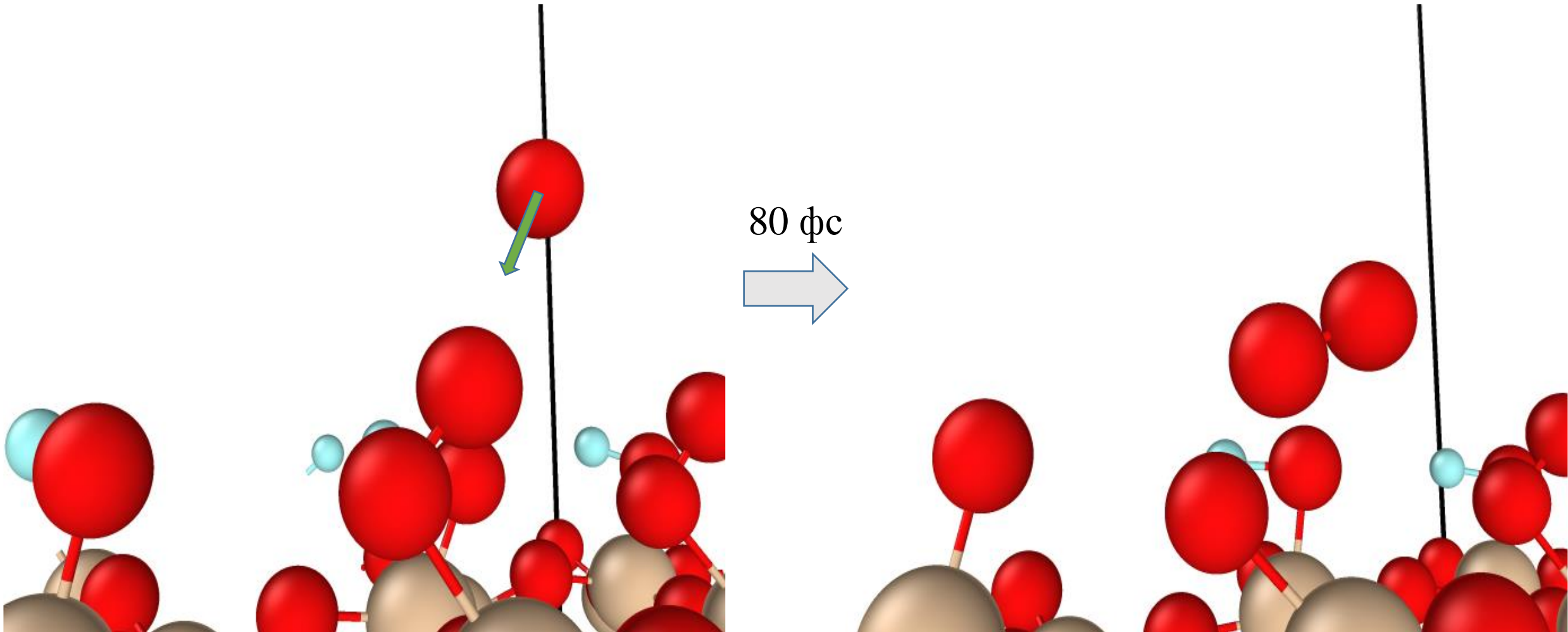
- $O_{chem} + O \rightarrow O_2$
- $O_{phys} + O \rightarrow O_2$

рекомбинация по механизму L-H

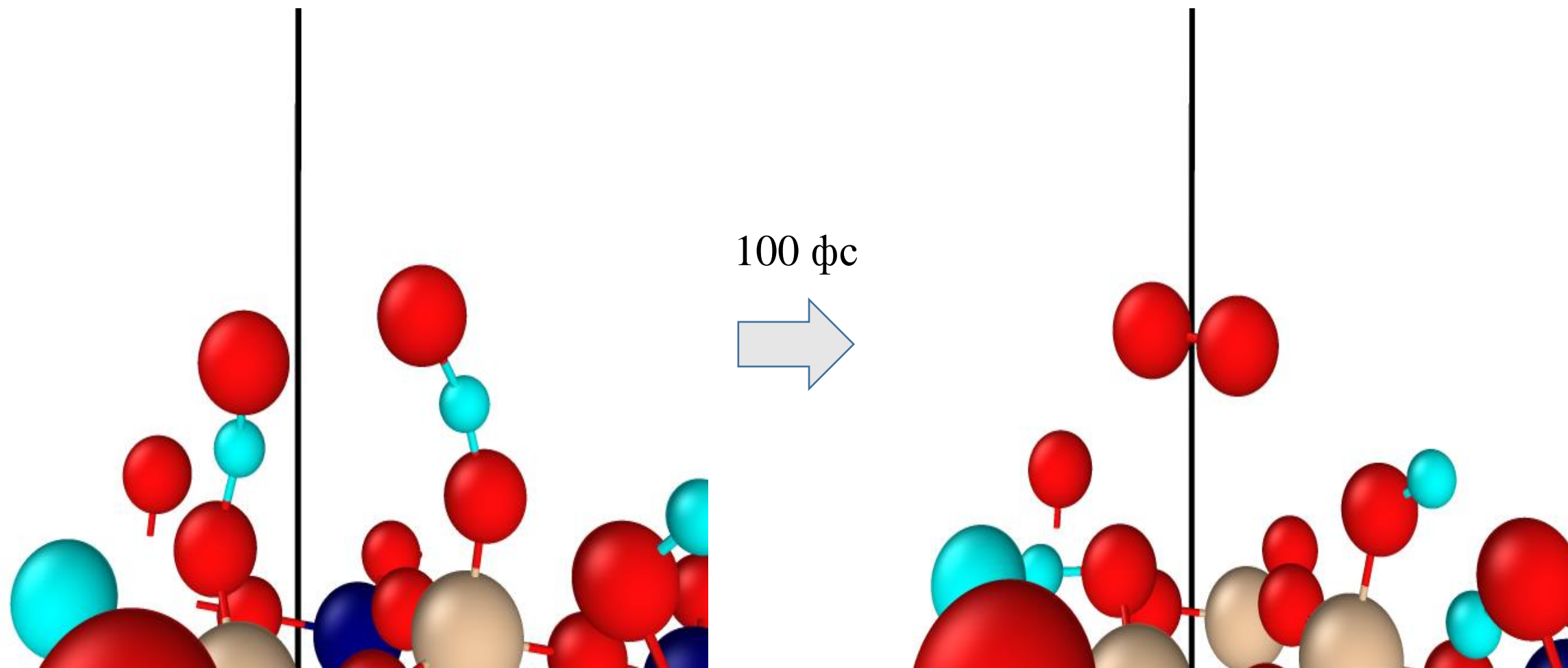
- $O_{phys} + O_{phys} \rightarrow O_2$
- $O_{chem} + O_{phys} \rightarrow O_2$

Процесс рекомбинации $O_{chem} + O \rightarrow O_2$

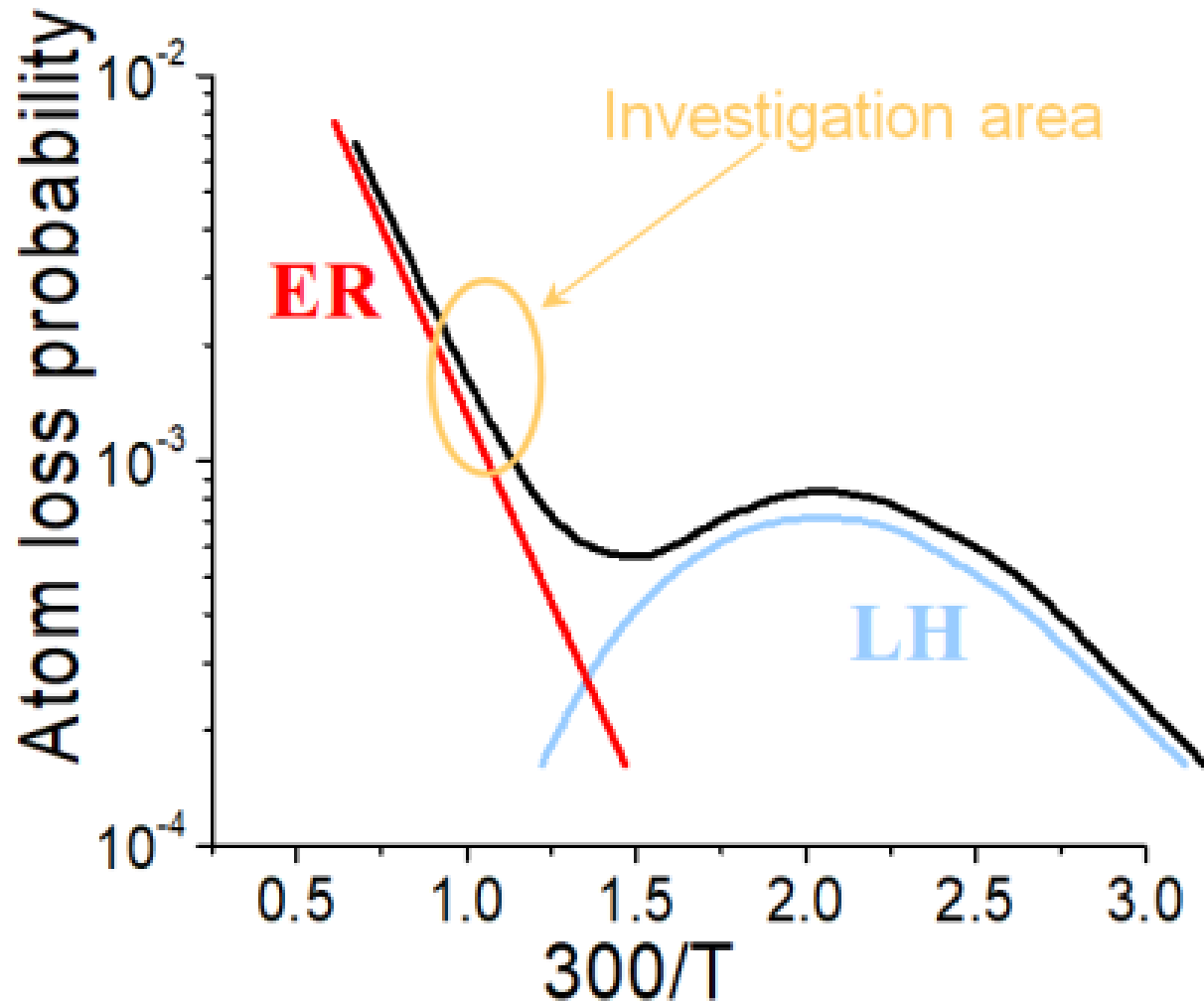
Рекомбинация на $Si-O-O$ группе и образование молекулы O_2



Процесс рекомбинации $O_{phys} + O_{phys} \rightarrow O_2$



Зависимость вероятности рекомбинации от температуры



Скорость реакции

$$r = k \cdot [O]$$

k – константа скорости

$[O]$ – концентрация

Закон Аррениуса

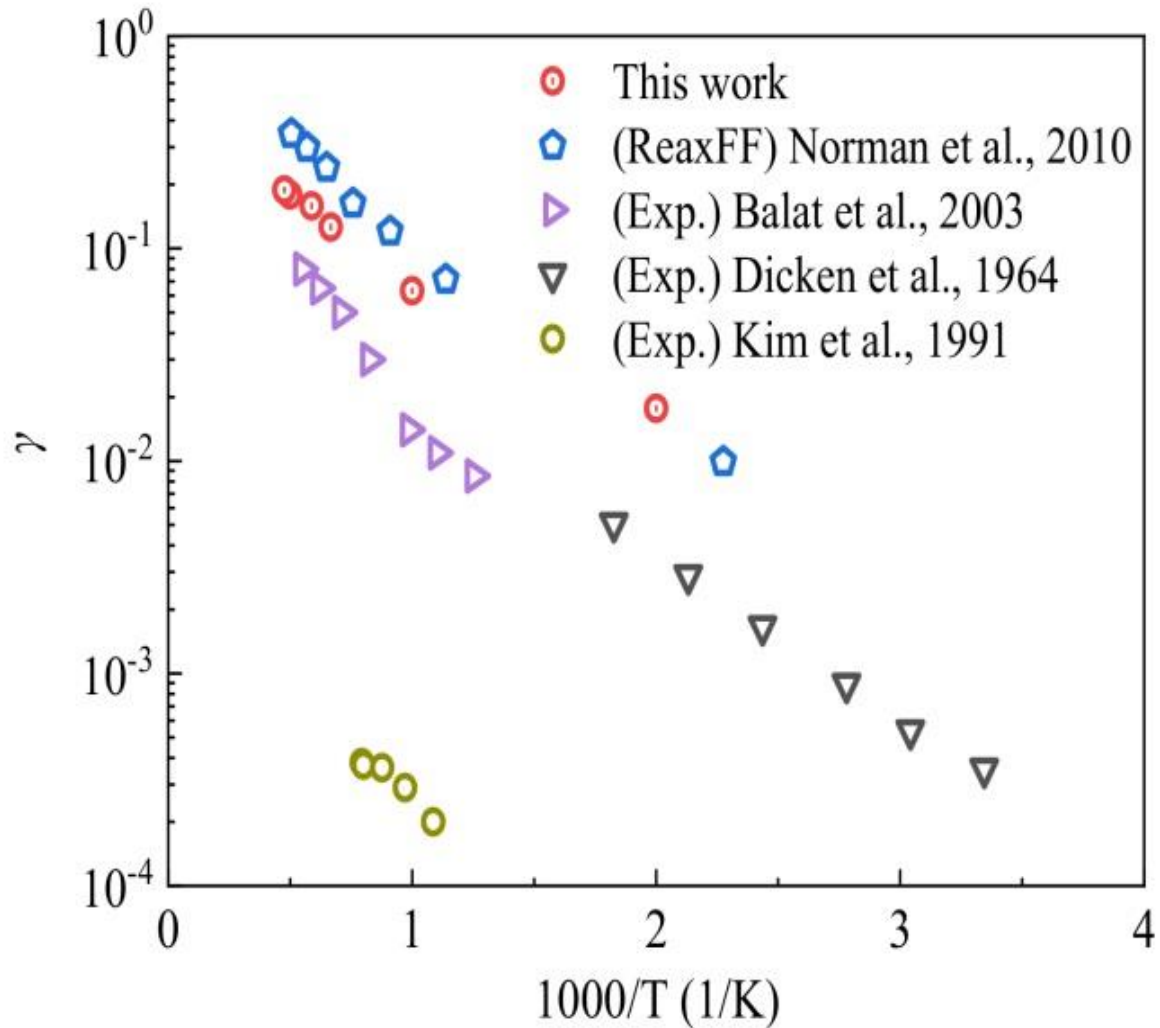
$$k \sim \nu_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

ν_0 – частотный фактор

E – энергия активации

Сравнение текущих данных о рекомбинации кислорода

Вероятность рекомбинации γ



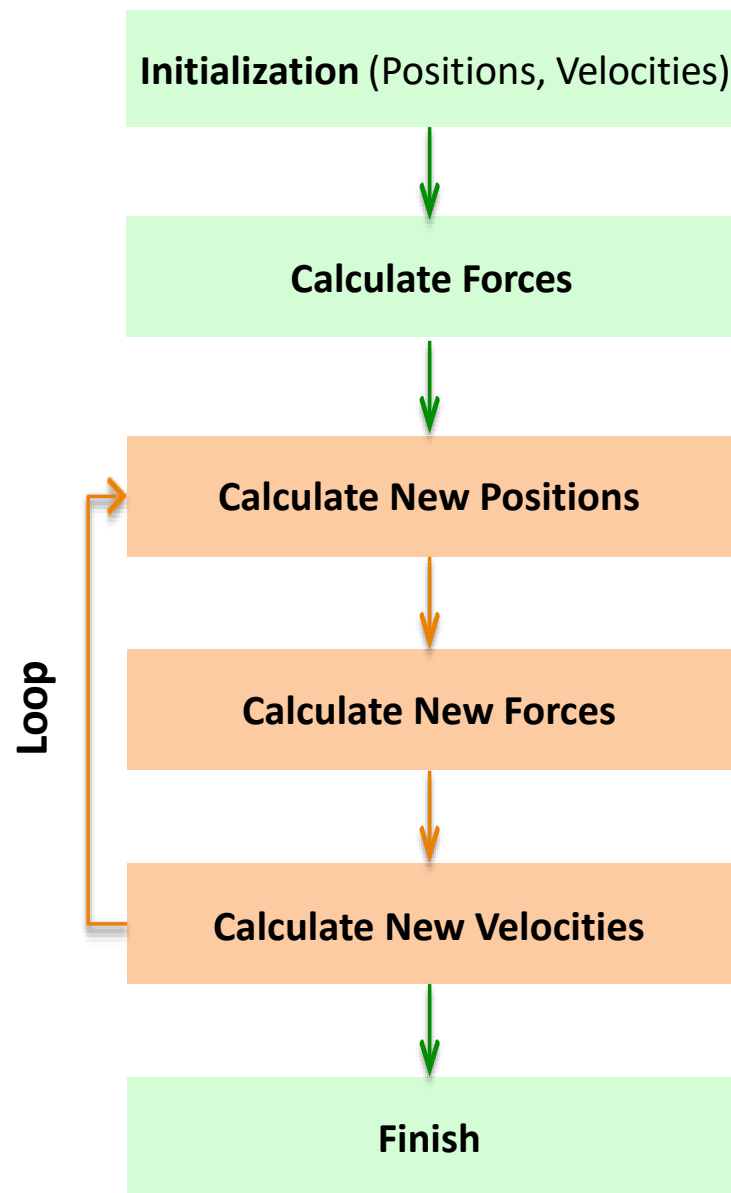
Источник	Энергия активации, эВ
<i>He L. et al. (2022)</i>	$0,134 \pm 0,008$
<i>Norman et al. (2010)</i>	$0,261 \pm 0,012$
<i>Balat et al. (2003)</i>	$0,296 \pm 0,019$
<i>Dicken et al. (1964)</i>	$0,153 \pm 0,040$
<i>Kim et al. (1991)</i>	$0,166 \pm 0,020$

Цель и задачи работы

- ❖ Цель: исследование рекомбинации атомов О и N на поверхности диоксида кремния с помощью методов компьютерного моделирования: метода молекулярной динамики (МД), квантовомеханического метода теории функционала плотности (DFT) и кинетического метода Монте-Карло (КМК)
- ❖ Задачи:
 - *выявление основных физико-химических процессов, происходящих при взаимодействии атомов с поверхностью*
 - *описание механизмов и оценка вероятности процессов рекомбинации*
 - *определение характера зависимости вероятности рекомбинации от температуры*
 - *разработка кинетической модели для описания взаимодействия на макроскопическом уровне и сопоставление полученных результатов с экспериментальными данными*

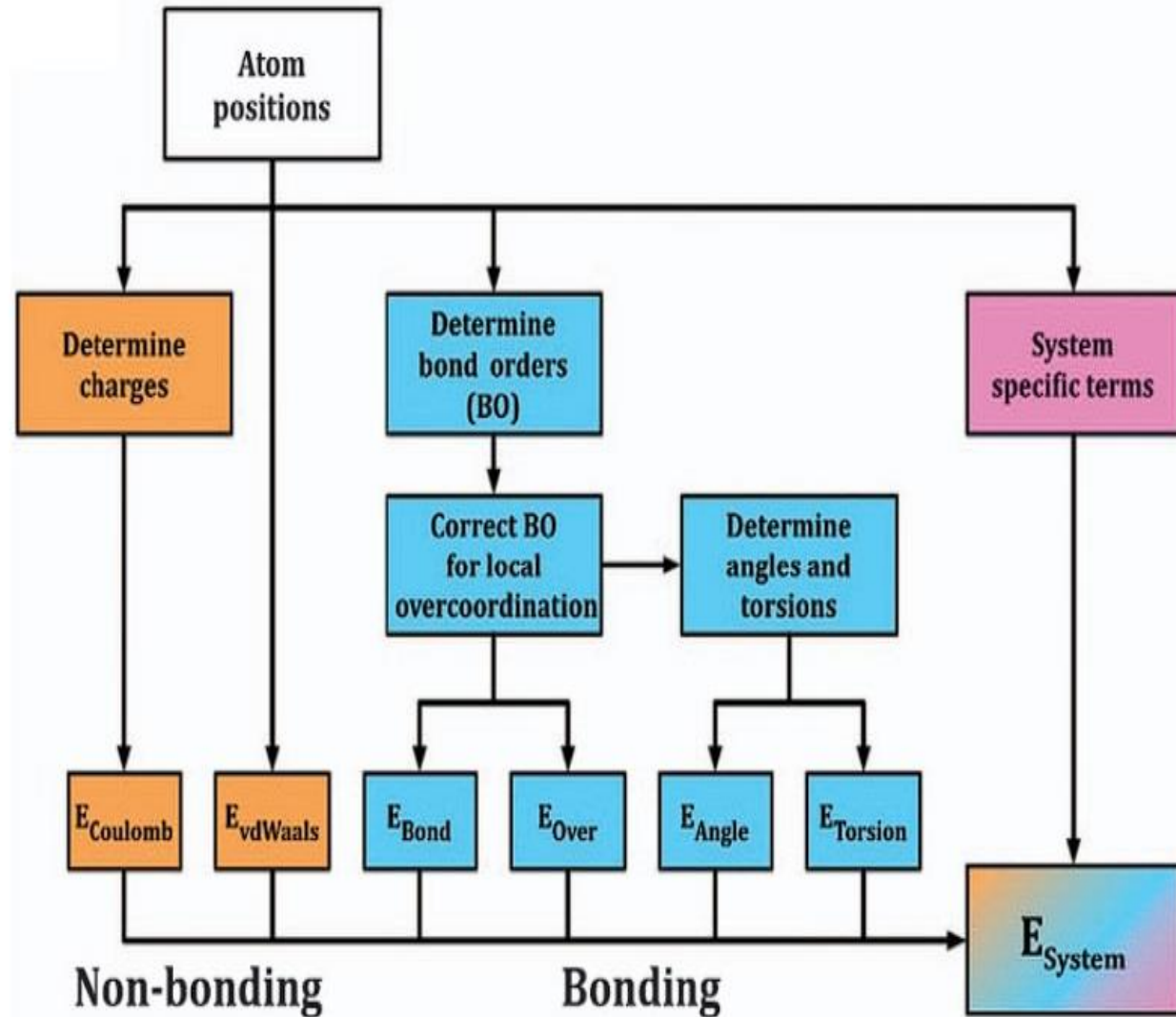
Метод молекулярной динамики

- Построение в фазовом пространстве траектории эволюции системы путём численного интегрирования уравнений движения
- Алгоритмы метода основаны на расчёте на каждом шаге сил взаимодействия, координат и скоростей частиц
- Используется для моделирования эволюции систем, содержащих $10^4 - 10^6$ частиц
- Моделирование на интервалах до 10-100 нс



Потенциал ReaxFF

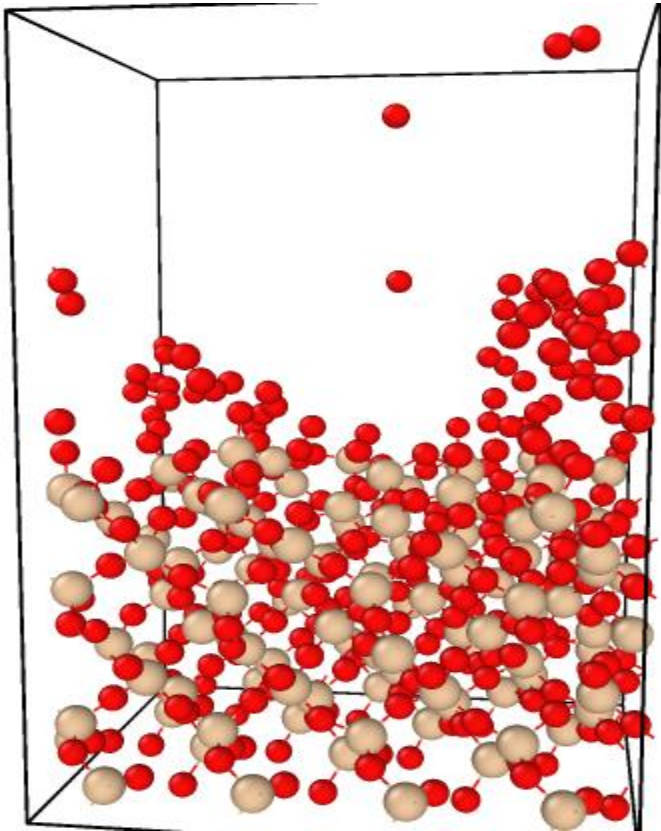
- ReaxFF - эмпирически определенный межатомный потенциал для расчета энергии системы в зависимости от положения атомов
- ReaxFF способен учитывать изменения в химических связях
- Моделирование химических реакций производится с учетом кратности связей, определяя эту величину из межатомных расстояний



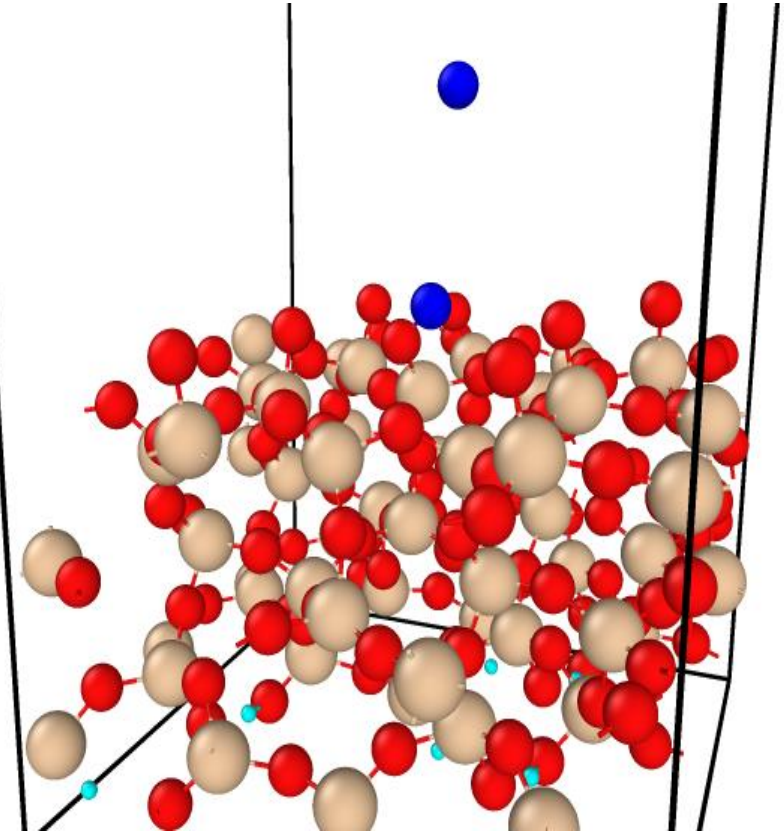
Методика МД-моделирования

$$\gamma = \frac{F_{recombining}}{F_{incident}}$$

Моделирование с накоплением у
поверхности

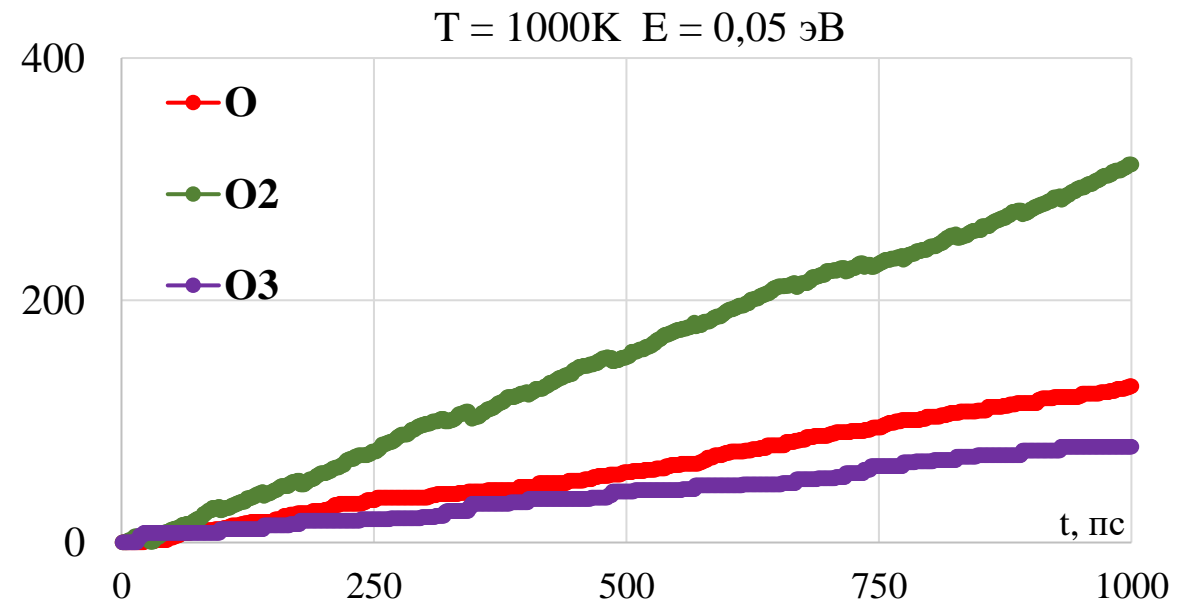
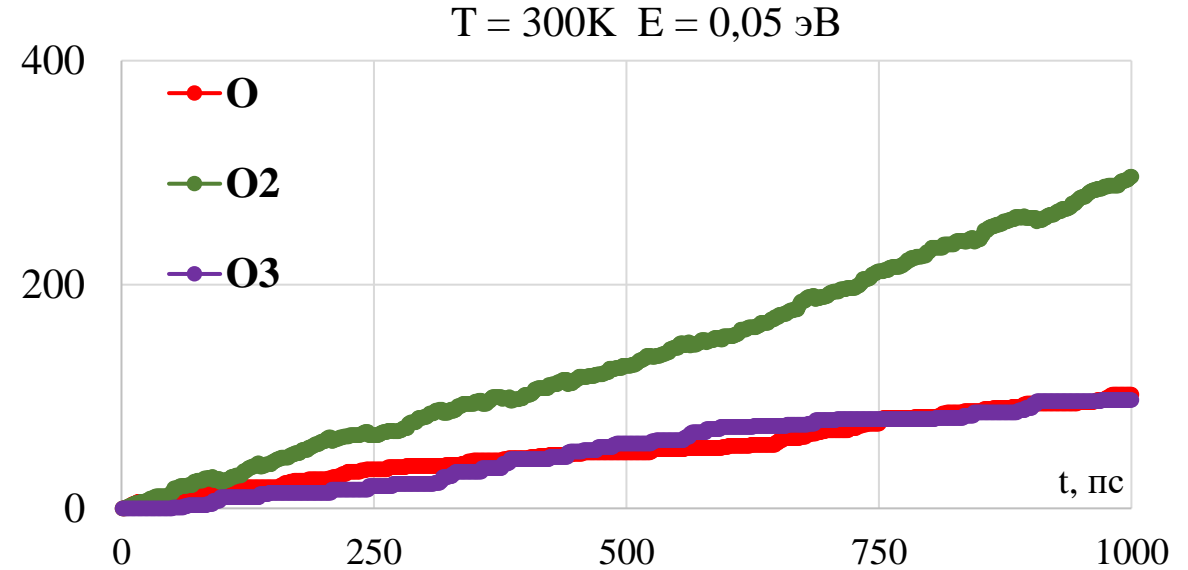
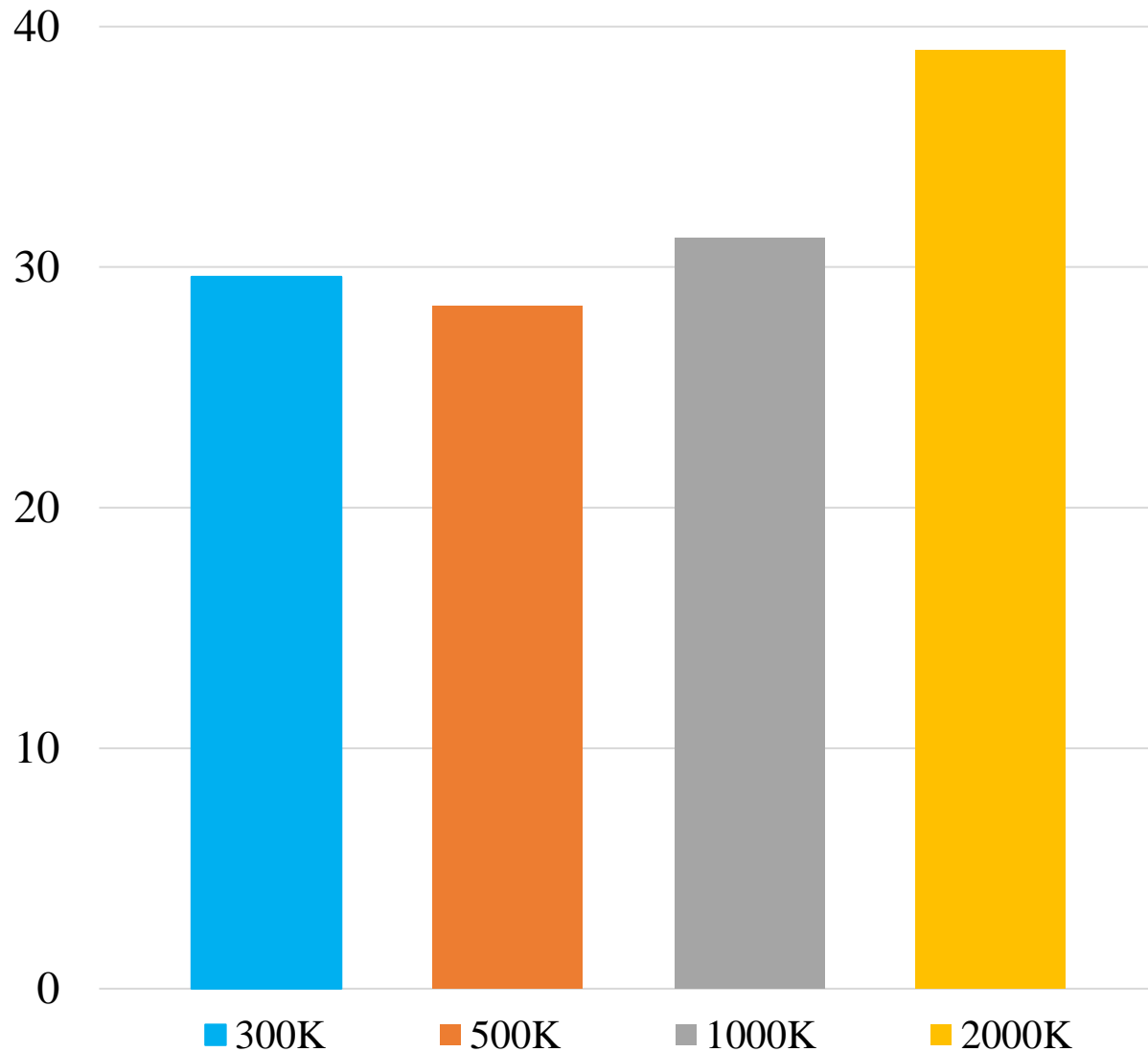


Моделирование без накопления



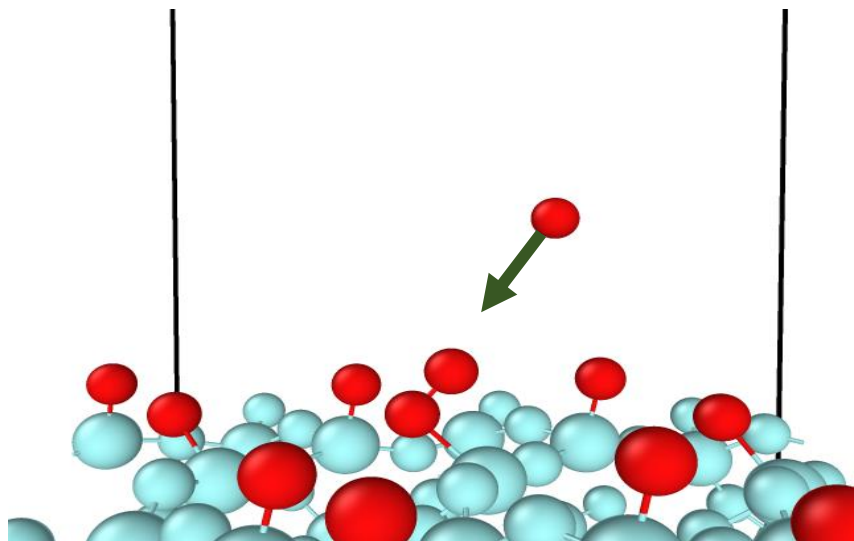
Моделирование с накоплением $\text{SiO}-\text{O}_{chem} + \text{O}$

Вероятность рекомбинации O_2 , %

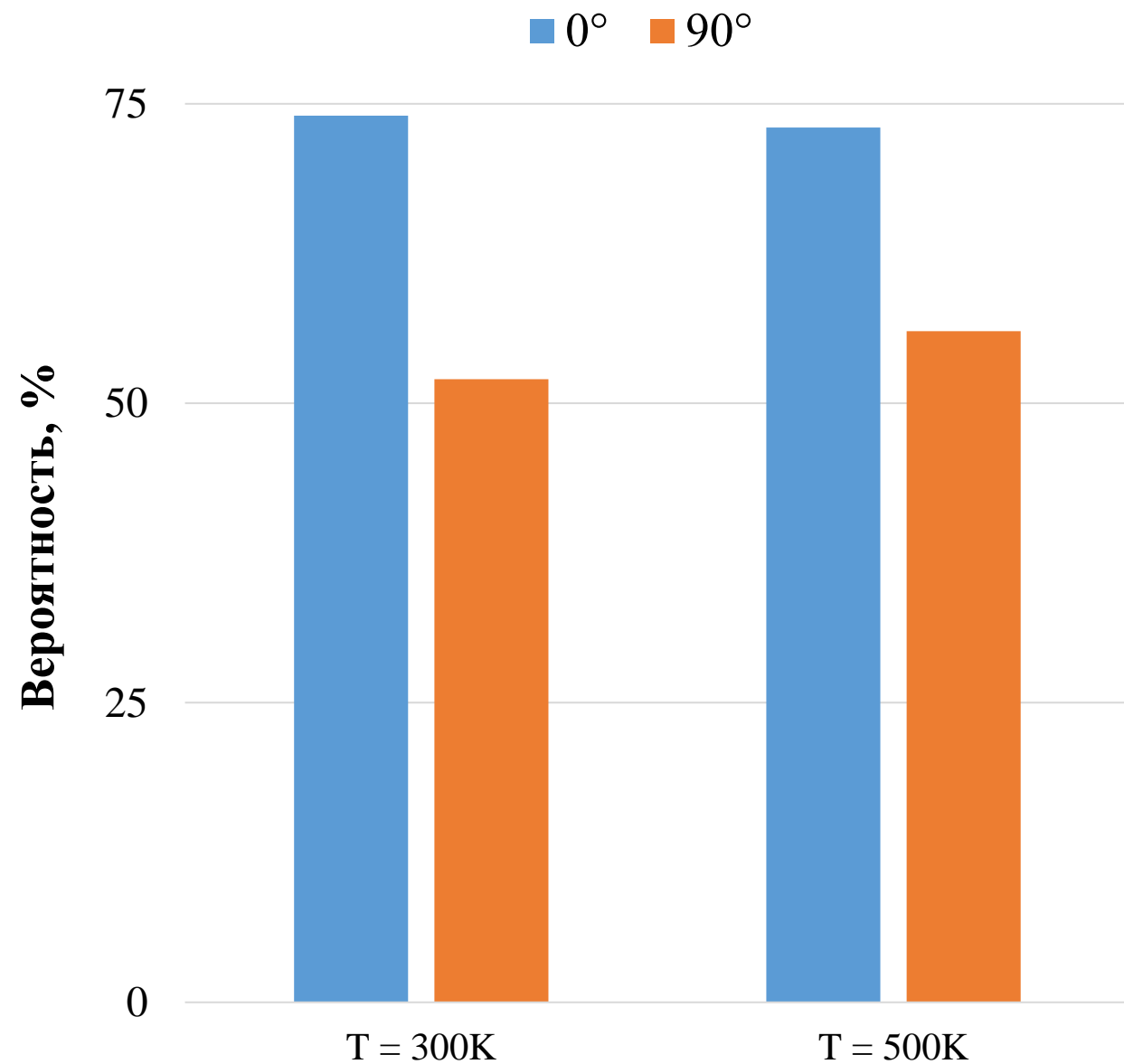
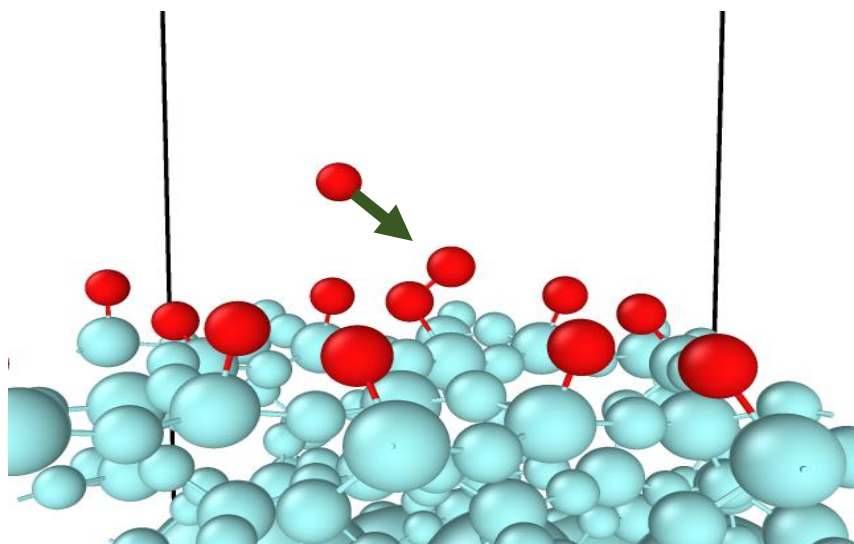


Вероятность рекомбинации при разных углах к O-O связи

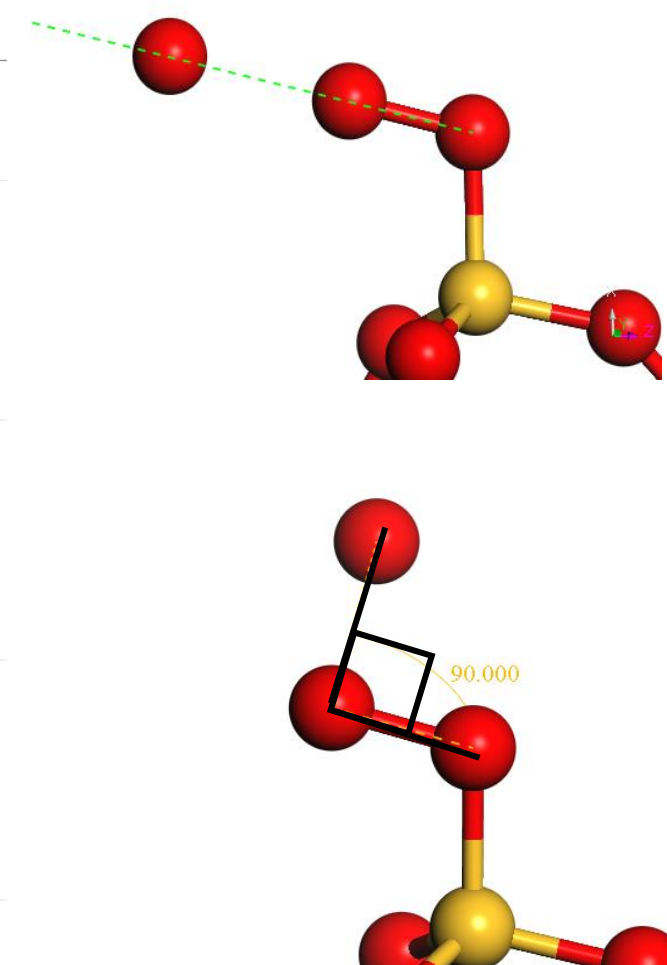
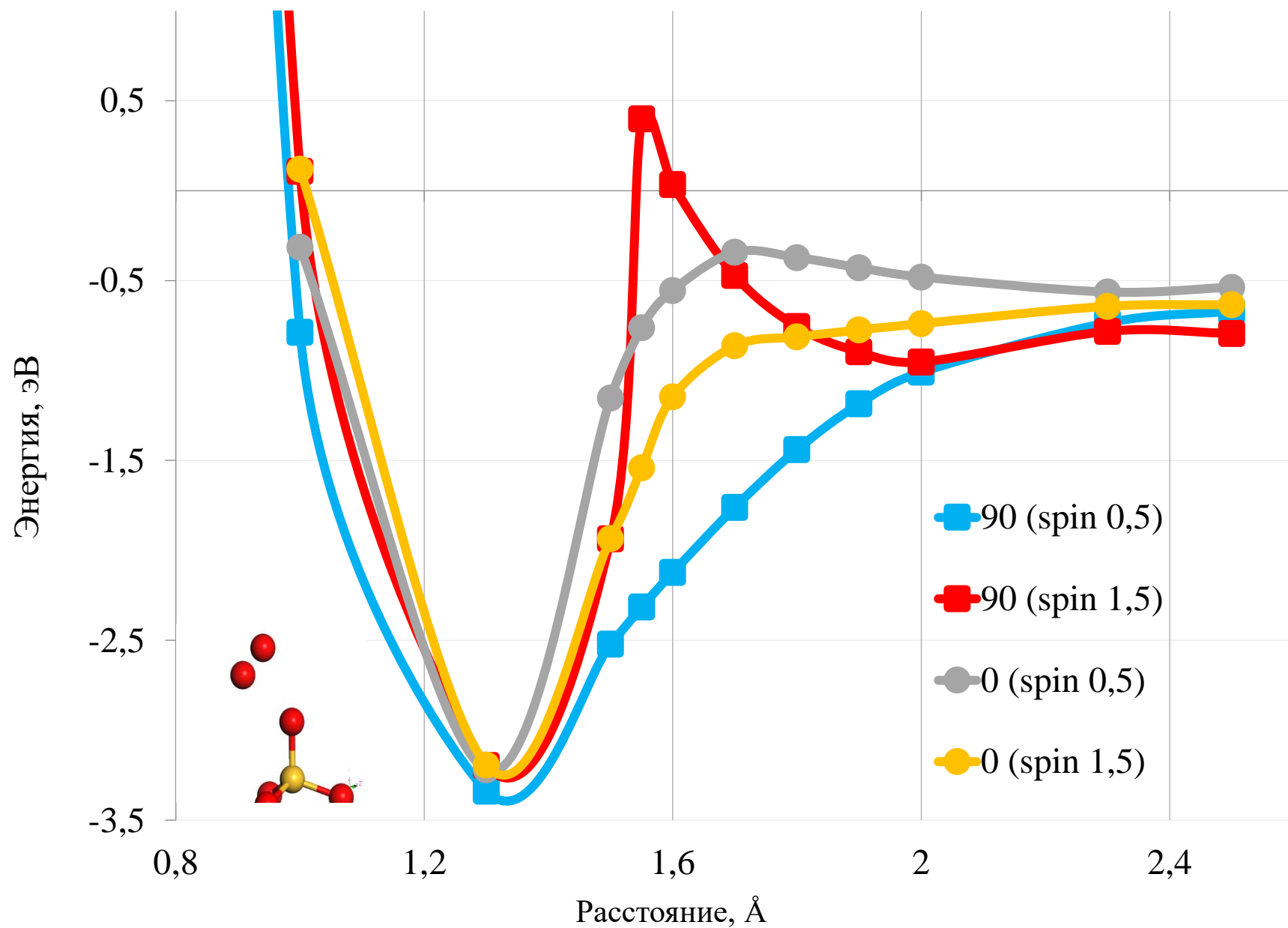
Атом движется вдоль O-O связи



Атом движется перпендикулярно O-O связи

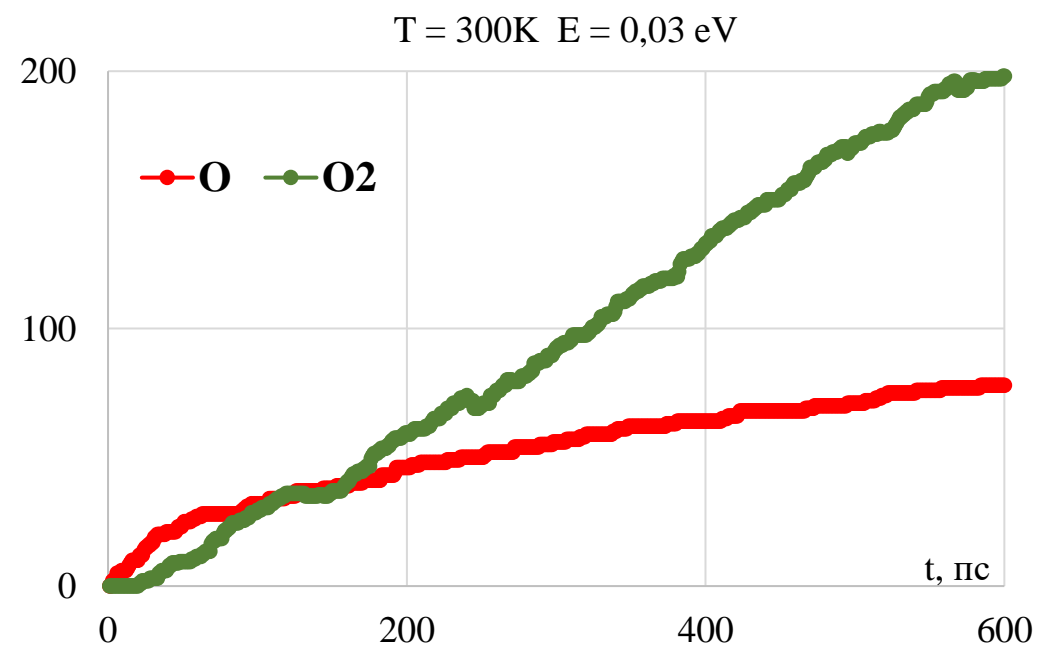
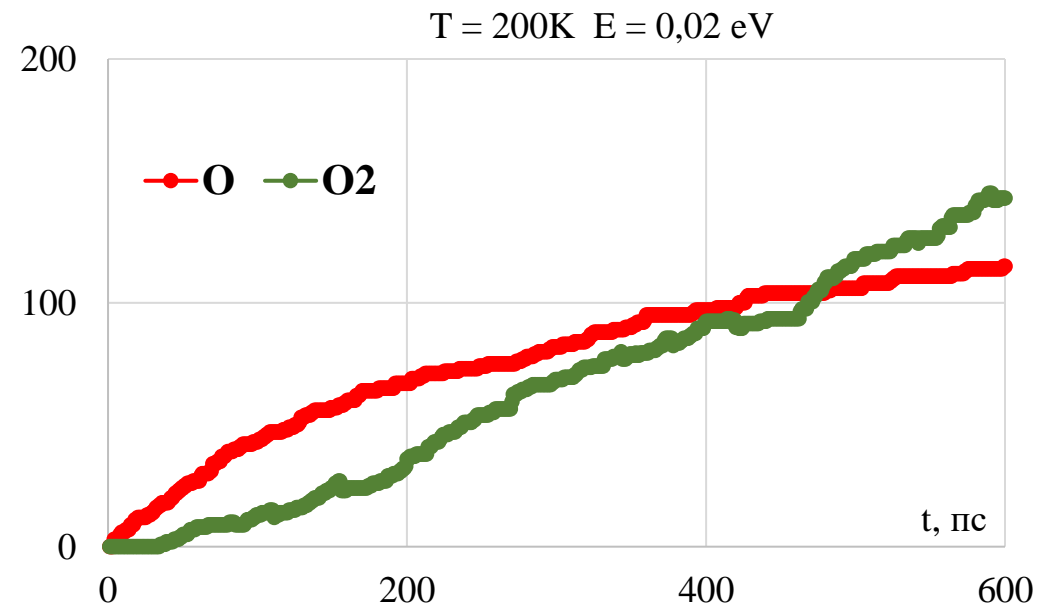
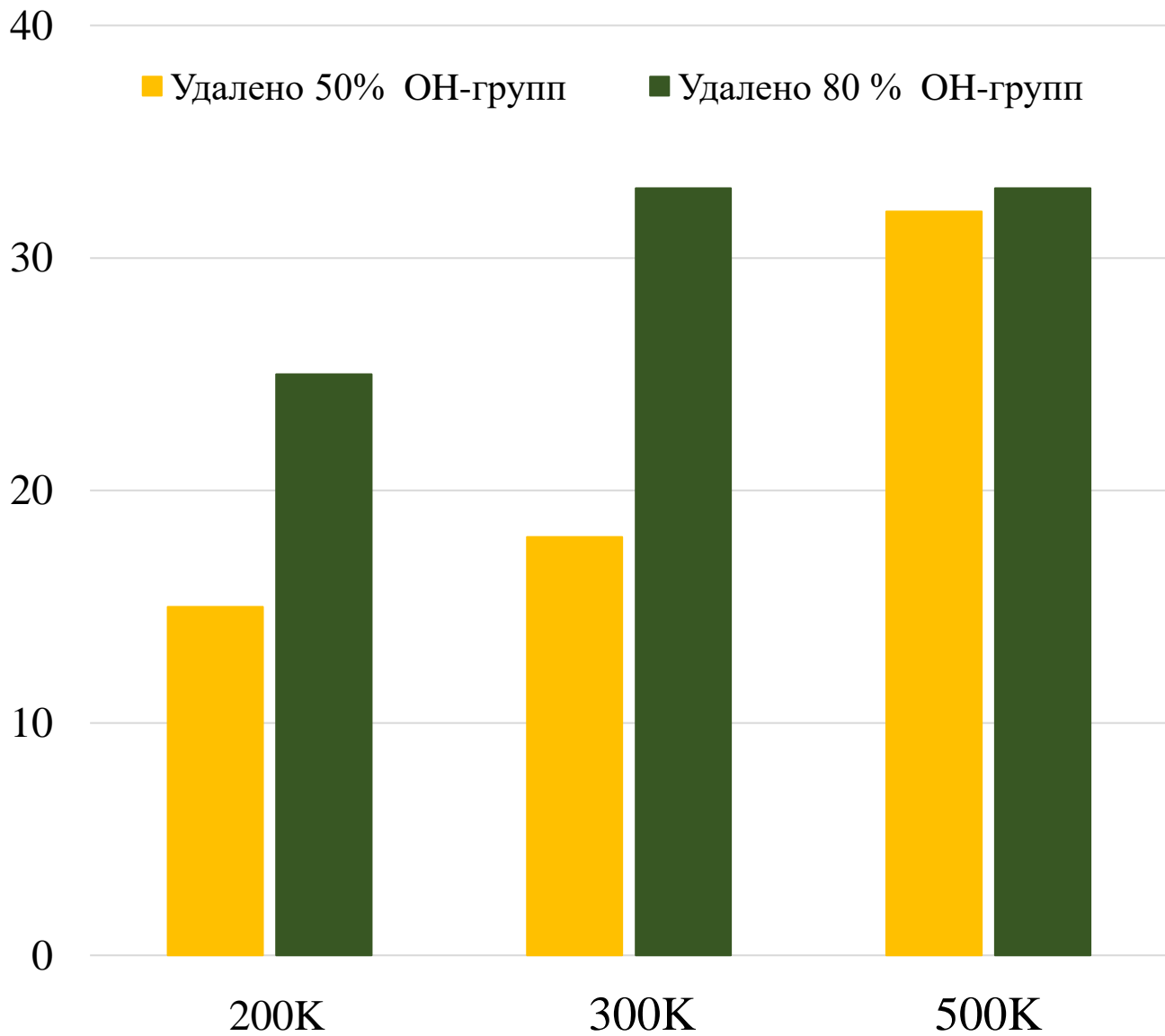


DFT расчёты Si-O-O + O



Моделирование с накоплением SiOH + O

Вероятность рекомбинации O₂, %

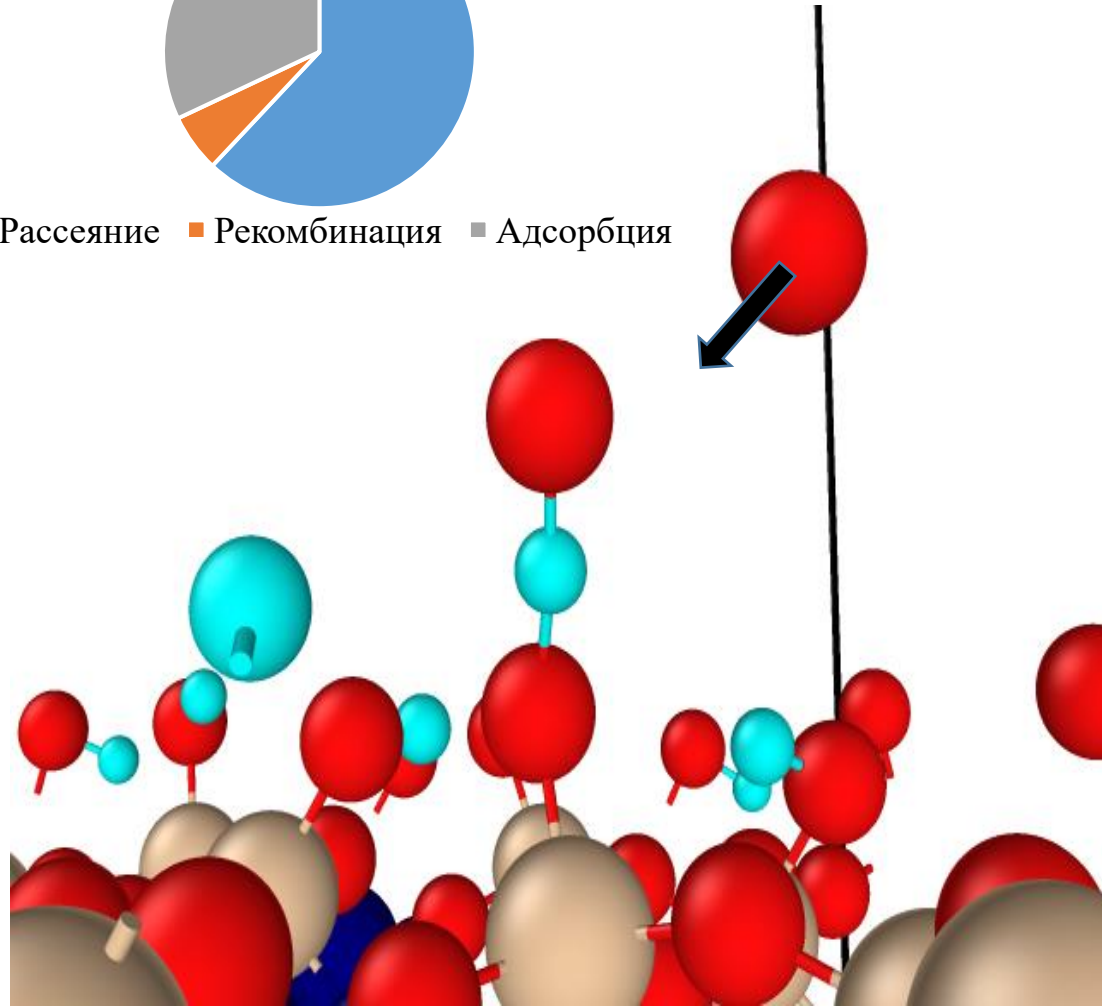


Процесс рекомбинации $O_{phys} + O \rightarrow O_2$

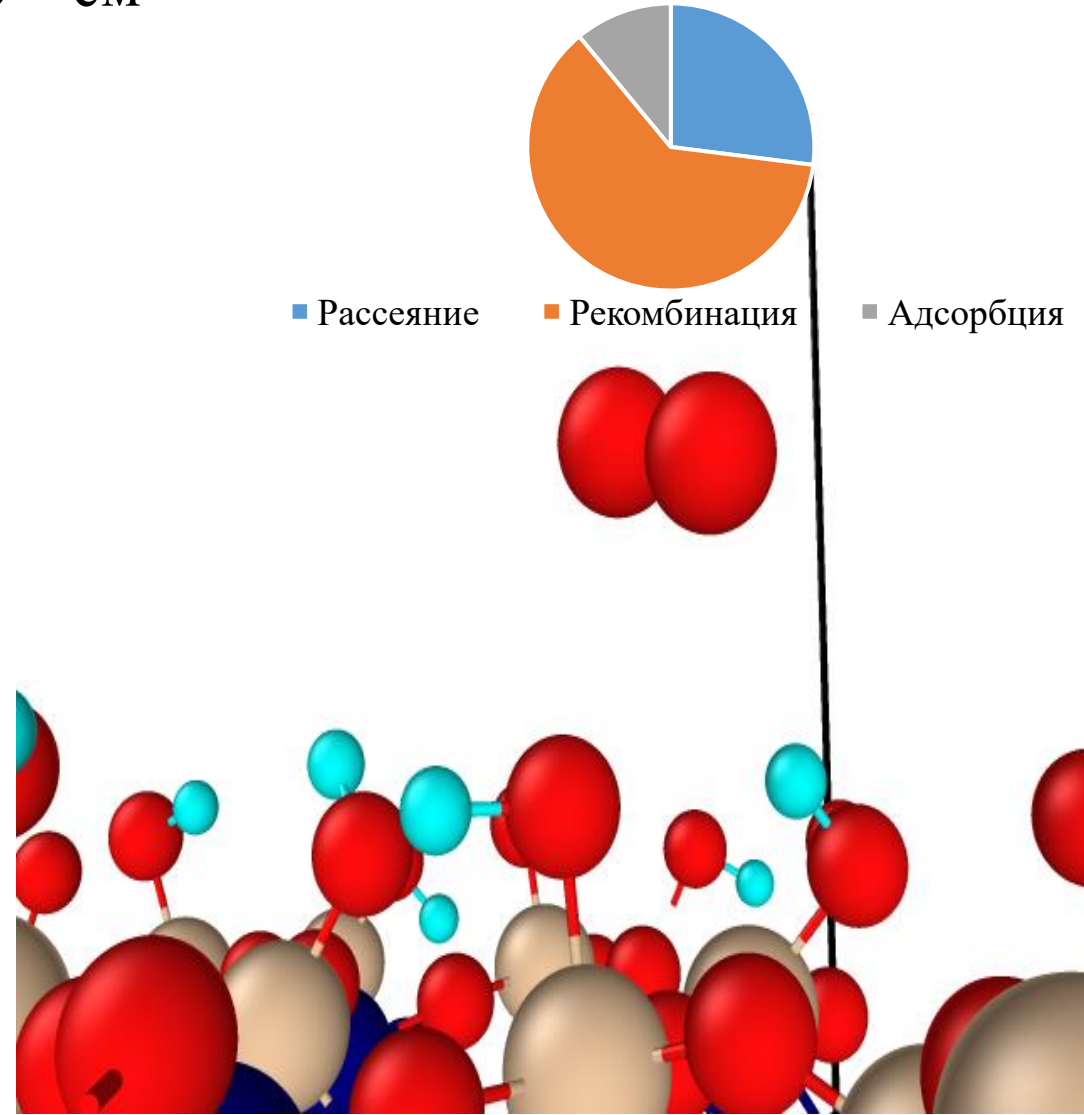
SiOH-O + O 100K 0,01 eV

$[Si-OH] = 5 * 10^{14} \text{ cm}^{-2}$

SiOH-O + O 300K 0,03 eV

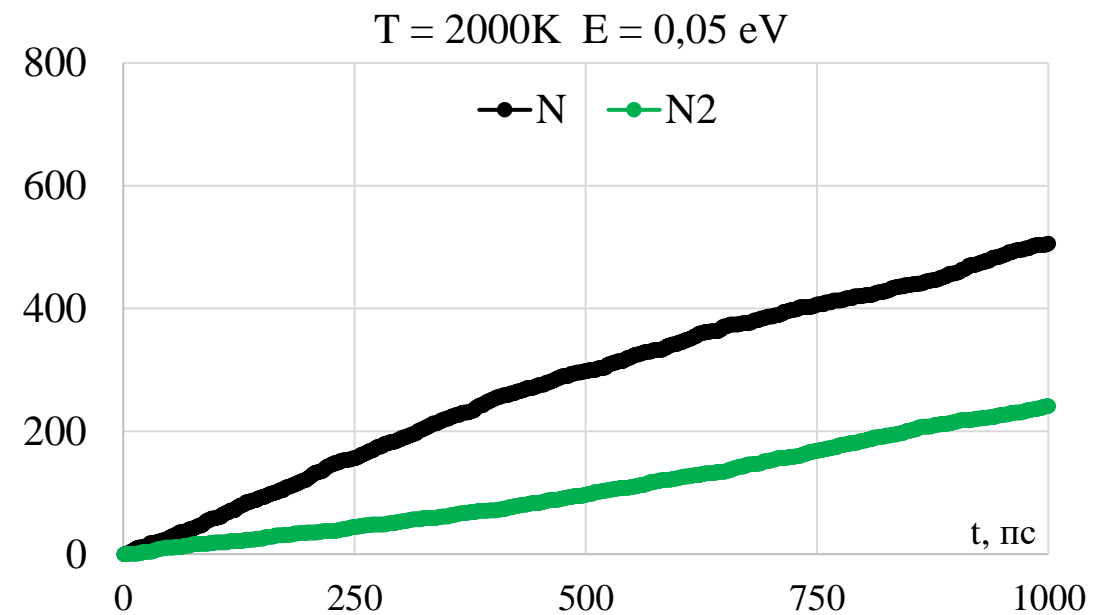
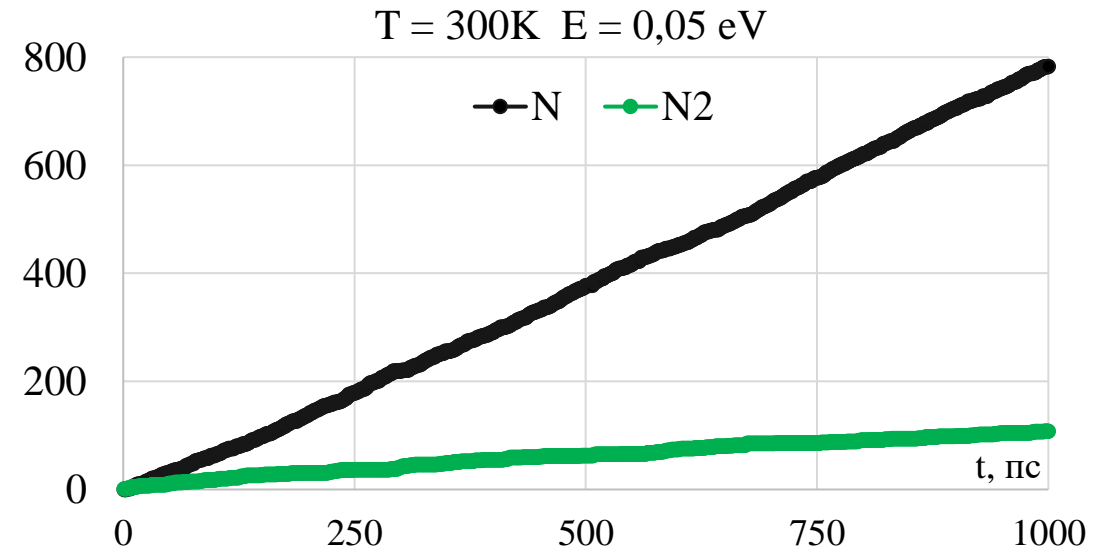
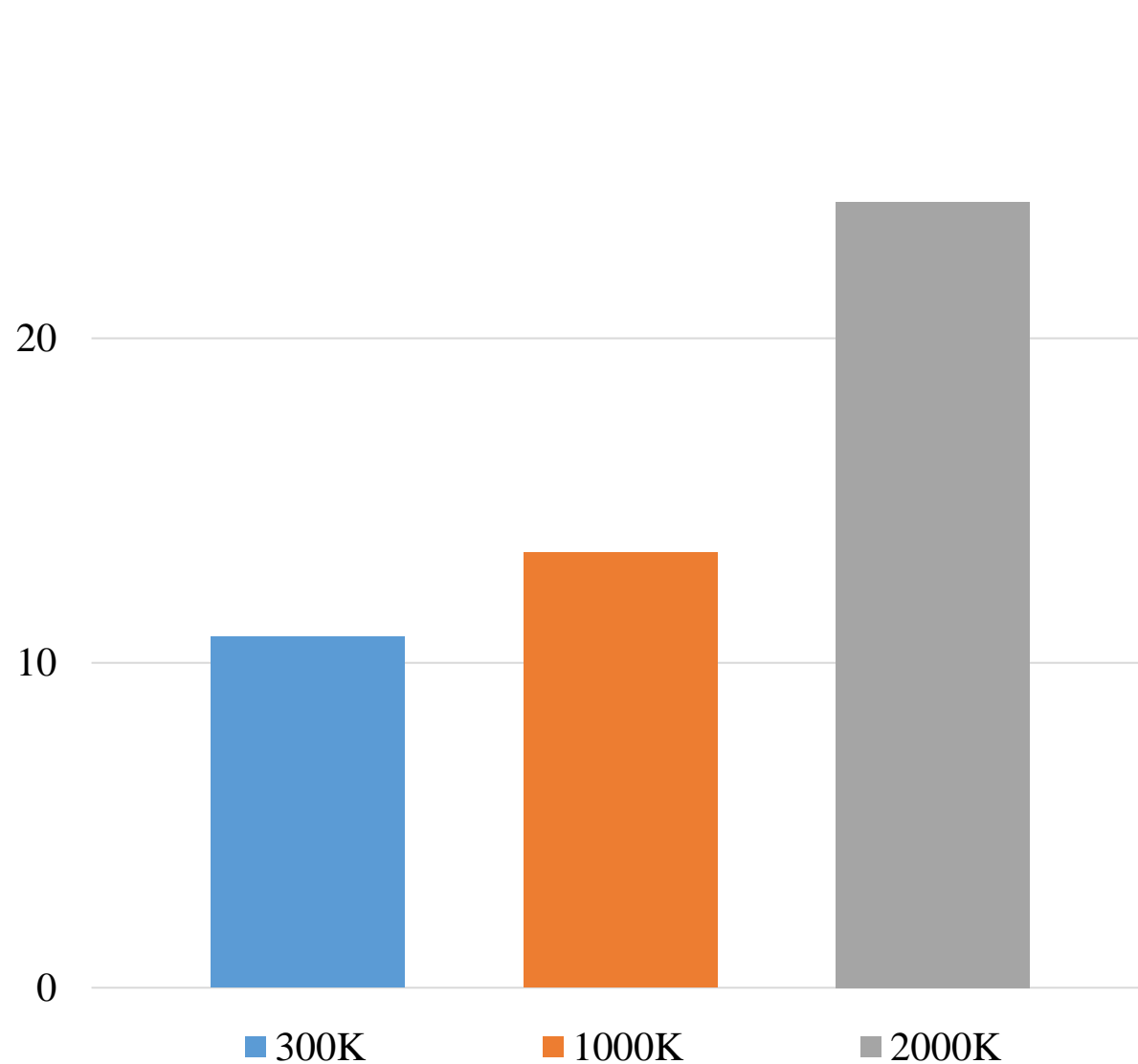


100 фс
→



Моделирование с накоплением SiO + N

Вероятность рекомбинации, %



Выводы

- Разработана методика проведения моделирования с учётом и без учёта эффекта накопления атомов у поверхности, а также создан алгоритм удаления атомов и молекул для предотвращения реакций в газовой фазе
- Вероятность рекомбинации атомов характеризуется схожей зависимостью от температуры поверхности при моделировании с накоплением и без накопления
- Силовое поле ReaxFF позволяет учитывать влияние направления движения и спинового состояния системы на вероятность рекомбинации, но делает это недостаточно точно
- Моделирование методом МД показало, что вероятность рекомбинации кислорода на поверхности SiO_2 при данной температуре выше, чем для азота