

УДК 532.6: 541.8

КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ РОСТА СУБМИКРОННЫХ ОСТРОВКОВЫХ ПЛЕНОК С УЧЕТОМ АТОМИСТИЧЕСКОЙ СТРУКТУРЫ ТВЕРДОЙ ПОВЕРХНОСТИ

А. Г. Бембель, В. М. Самсонов, М. Ю. Пушкар, М. В. Самсонов

Тверской государственный университет
Кафедра теоретической физики

Проведено сравнительное молекулярно-динамическое исследование закономерностей и механизмов эпитаксиального роста субмикронных леннард-джонсовских островковых пленок на континуальных подложках и атомистических поверхностях. Установлено, что переход от континуальной подложки к подложке с ГПУ структурой способствует дифференциации локальных островков, диаметр которых примерно в 5 раз меньше диаметра всего островка. Пространственное несоответствие между решетками подложки и растущей гетероструктуры приводит к более выраженной дифференциации локальных островков и увеличению их высоты.

Ключевые слова: молекулярно-динамическое исследование, островковые плёнки, гетероструктуры, автоэпитаксия

COMPUTER SIMULATION OF THE GROWTH OF SUBMICRON ISLAND FILMS TAKING INTO ACCOUNT THE ATOMISTIC STRUCTURE OF THE SOLID SURFACE

A. G. Bembel, V. M. Samsonov, M. Yu. Pushkar, M. V. Samsonov

Tver State University
Chair of Theoretical Physics

A comparative molecular-dynamics study of the regularities and mechanisms of epitaxial growth of submicron Lennard-Jones island films on continual substrates and atomistic surfaces is performed. It is established that the transition from continual substrate to a substrate with HCP lattice promotes the differentiation of local islands having diameters about 5 times smaller than the diameter of the whole island. The spatial mismatch between the substrate and growing heterostructure lattice (5%) results in the enhancement of differentiation and in the increase of the local island height. Similar effect is observed during the growth of Ge islands on the Si surface having lattice parameter 5% smaller than in Ge.

Keywords: molecular dynamics study, island films, heterostructures, autoepitaxy

Введение. В одной из наших предыдущих работ [1] были представлены результаты, отвечающие конденсационному росту субмикронных островковых пленок на континуальной твердой поверхности, силовое поле которой учитывается с помощью одночастичного потенциала, отвечающего потенциалу Леннард-Джонса, проинтегрированному по полупространству, занимаемому твердым телом. В [1] был сделан вывод, что механизм конденсационного роста леннард-джонсовских островковых пленок на континуальной твердой поверхности соответствует механизму Фольмера-Вебера, т.е. на подложке сразу формируются очень малые трехмерные кластеры, содержащие несколько атомов. В дальнейшем они увеличиваются в размере и сливаются, образуя неоднородную по толщине островковую пленку. Этот результат согласуется с существующими представлениями [2; 3], в соответствии с которыми механизм Франка и Ван-дер Мерве (последовательный рост) и механизм Странского-Крастанова (образование двумерного кристаллического прекурсора, на котором затем уже растет трехмерный зародыш) могут осуществляться только на кристаллических поверхностях. В соответствии с базовыми теоретическими представлениями [4], рост эпитаксиальной пленки возможен только в том случае, если кристаллическая структура подложки близка к кристаллической структуре, отвечающей островку. Поскольку вне силового поля твердой поверхности при кристаллизации леннард-джонсовских капель формируется плотноупакованная ГПУ-структура [5], то можно ожидать, что оптимальным условием роста эпитаксиальных леннард-джонсовских островковых пленок будет отвечать леннард-джонсовская подложка с ГПУ-структурой и малым пространственным несоответствием между соответствующими решетками. Вместе с тем, отмеченные выводы относятся только к макроскопическим по площади эпитаксиальным слоям. Особенности роста пленок малого размера, т.е. субмикронных пленок, диаметр которых отвечает 10нм, т.е. 0,01мкм, к настоящему времени не изучены. Учитывая отмеченное выше, нами была поставлена задача проведения сравнительного молекулярно-динамического исследования роста субмикронных пленок на континуальной подложке, а также поверхностях, отвечающих ГПУ-решетке. Алгоритм и разработанная нами компьютерная программа были описаны в [1].

Использование леннард-джонсовских систем в качестве объектов исследования обуславливается следующими соображениями. Во-первых, леннард-джонсовская модель является базовой, поскольку она достаточно хорошо апробирована, прежде всего на свободных кластерах, т.е. кластерах, не находящихся в силовом поле твердой поверхности [5; 6]. В связи с этим, целесообразно начинать исследование аналогичных систем на твердой поверхности ("supported clusters") именно с этой модели межатомного взаимодействия. Во-

вторых, как отмечает Терсофф [7], парные потенциалы, включая потенциал Леннард-Джонса, удовлетворительно описывает большинство свойств систем, характеризующихся плотной упаковкой атомов в твердом состоянии. К таким системам относятся в частности ряд металлов. Вывод сделанный Терсоффом подтверждается и нашими результатами, представленными в работе [5]. В третьих, низкотемпературные кластеры инертных газов, которым наиболее адекватен потенциал Леннард-Джонса, представляют самостоятельный интерес [8]. Разумеется, в дальнейшем мы планируем провести аналогичные исследования с использованием многочастичных потенциалов, более адекватных металлическим и полупроводниковым системам.

С практической точки зрения представляют интерес как условия, при которых формируется однородная по толщине и свойствам пленка, так и условия, при которых на твердой поверхности образуются наноразмерные гетероструктуры (островки). Применительно к полупроводниковым системам такие островки обладают свойствами квантовых точек.

Молекулярно-динамическое моделирование закономерностей и механизмов автоэпитаксиального роста субмикронных островковых пленок. На рис. 1 представлена начальная стадия роста островковой пленки из молекулярного пучка с приведенным диаметром сечения $D^* = D/a = 100$ (a – эффективный диаметр атомов пучка, являющийся одним из двух параметров потенциала Леннард-Джонса) на континуальной подложке при очень низкой приведенной температуре $T^* = kT/\varepsilon = 0.15$ (приведенная температура плавления леннард-джонсовских кристаллов равна 0.65 [9]). Здесь T – абсолютная температура, k – постоянная Больцмана, ε – энергетический параметр парного потенциала. Рис. 1 отвечает условиям автоэпитаксии, поскольку подложка S характеризуется теми же значениями параметров потенциала, что и растущая гетероструктура ($a_s = a$, $\varepsilon_s = \varepsilon$). Видно, что даже на начальном этапе роста образуются очень малые трехмерные кластеры (можно, в частности, обратить внимание на кластер из 4 атомов в левом нижнем углу рисунка). Таким образом, рост островковой пленки на континуальной поверхности отвечает механизму Фольмера-Вебера. Конечная конфигурация островковой пленки после релаксации («отжига») представлена на рис. 2. Примечательно что образуются два плотных нижних монослоя с двумерной ГПУ-структурой, т.е. островковая пленка характеризуется террасоподобной морфологией.

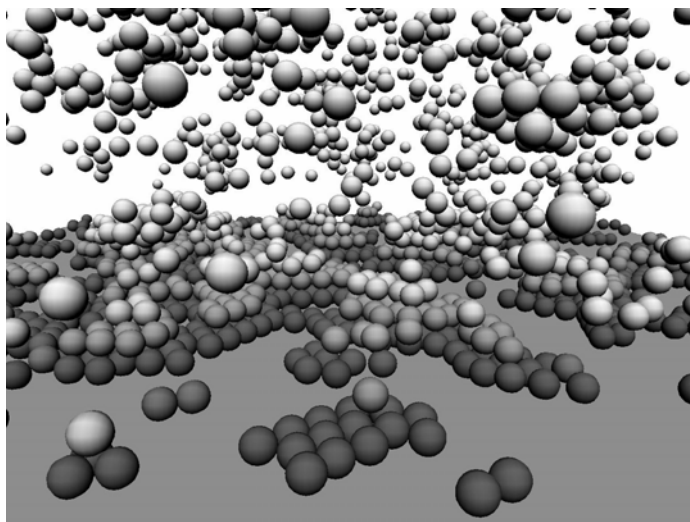


Рис. 1. Начальная стадия автоэпитаксии на континуальной леннард-джонксовской подложке ($T^* = 0.15$)

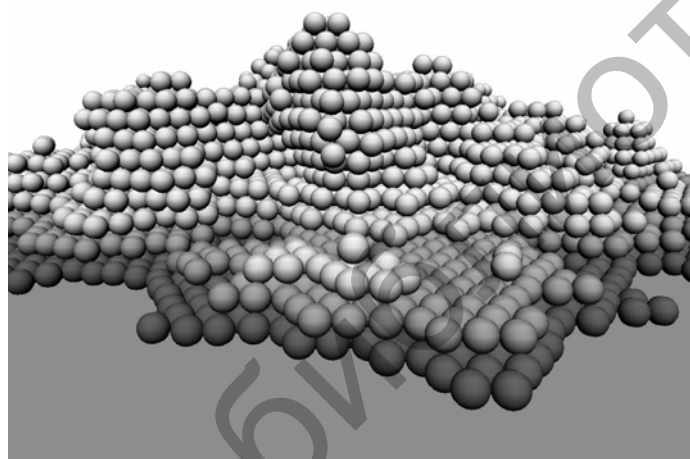


Рис. 2. Конечная конфигурация островковой пленки, сформировавшаяся в условиях автоэпитаксии

При переходе к атомистической подложке с ГПУ-структурой (рис. 3) в условиях автоэпитаксии начинает проявляться тенденция к формированию в пределах островковой пленки малых локальных островков, диаметр которых примерно в 5 раз меньше диаметра всего островка. При переходе к высокой температуре ($T^* = 0.5$) (напомним, что температуре плавления отвечает приведенная температура 0.65) на поверхности образуются отдельные трехмерные зародыши, но в целом

рост пленки происходит иначе: формируются двумерные островки, на которых затем образуется второй монослой. Затем на этих двумерных островках образуются пологие трехмерные островки. Вместе с тем, с самого начала роста и в процессе отжига проявляется тенденция к слиянию отдельных гетероструктур и формированию сплошного нижнего монослоя. Таким образом, в полной мере подтверждается отмеченная в [3] тенденция, сводящаяся к тому, что повышение температуры может изменить механизм роста, т.е. вызвать переход от механизма Фольмера-Вебера к механизму Странского-Крастанова.

Результаты моделирования гетероэпитаксии. Рис. 5 отвечает случаю, когда период решетки для ГПУ-подложки (грань [001]) на 5% меньше, чем период решетки растущей островковой пленки. Даже столь малое пространственное несоответствие решеток приводит к выраженной дифференциации локальных островков и увеличению их высоты, что подтверждается и сравнением распределений плотности по высоте растущего островка (рис. 6). Используя рис. 3 и 5 можно установить, что при автоэпитаксии (рис. 3) максимальная высота островков соответствует 11 монослоям, а при гетероэпитаксии – 14. Выбор величины пространственного несоответствия (5%) не случаен. Дело в том, что именно такое пространственное несоответствие характерно для решеток германия и кремния, и этим несоответствием объясняют [10] образование островков при эпитаксии германия на грани кремния [001].

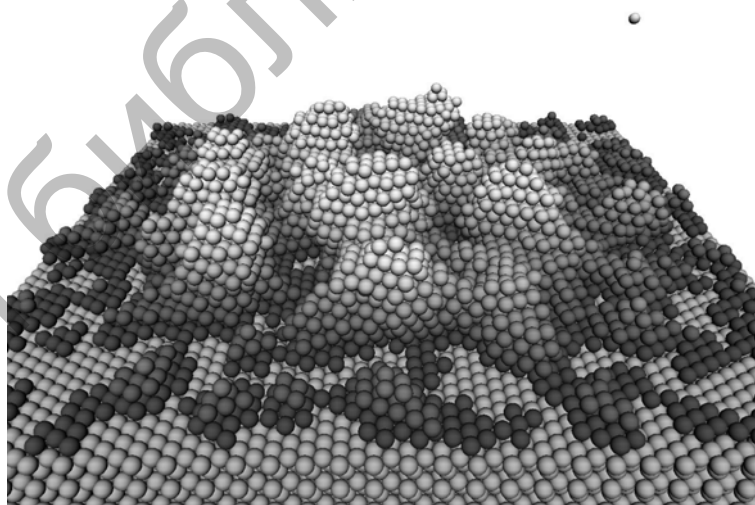


Рис. 3. Конечное состояние системы, отвечающей автоэпитаксии на атомистической поверхности с ГПУ-структурой при приведенной температуре ($T^* = 0.15$)

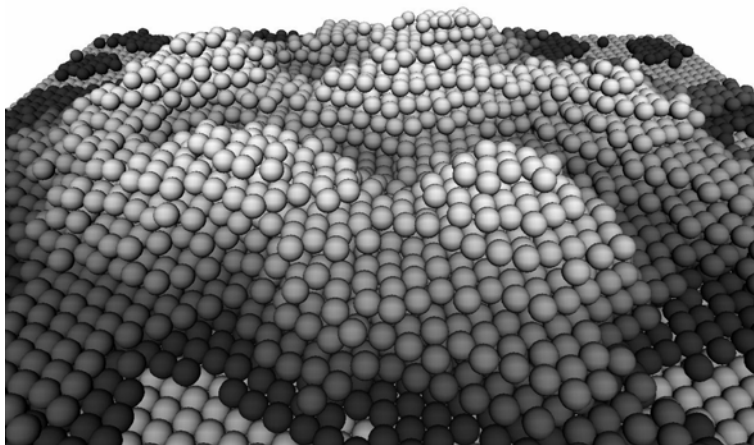


Рис. 4. Конечное состояние системы, отвечающей автоэпитаксии на атомистической поверхности с ГПУ структурой при высокой приведенной температуре ($T^* = 0.15$)

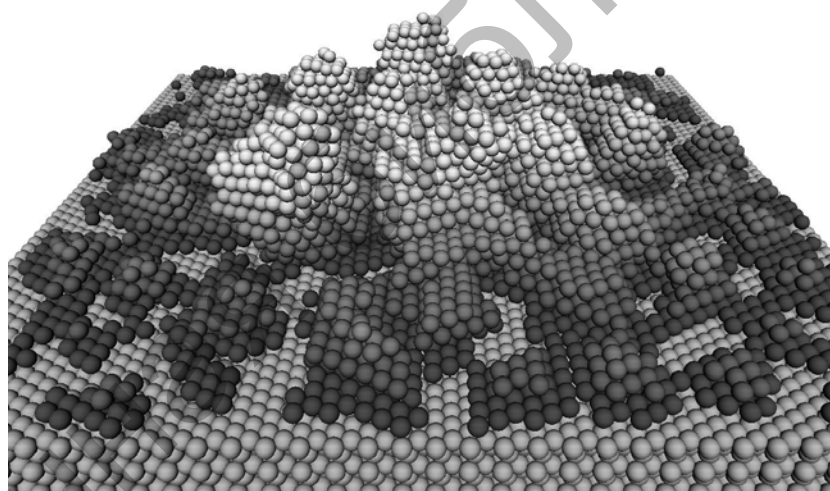


Рис. 5. Эпитаксиальная гетероструктура, сформировавшаяся на подложке, характеризующейся пространственным несоответствием (5%) с решеткой эпитаксиальной структуры ($T^* = 0.15$)

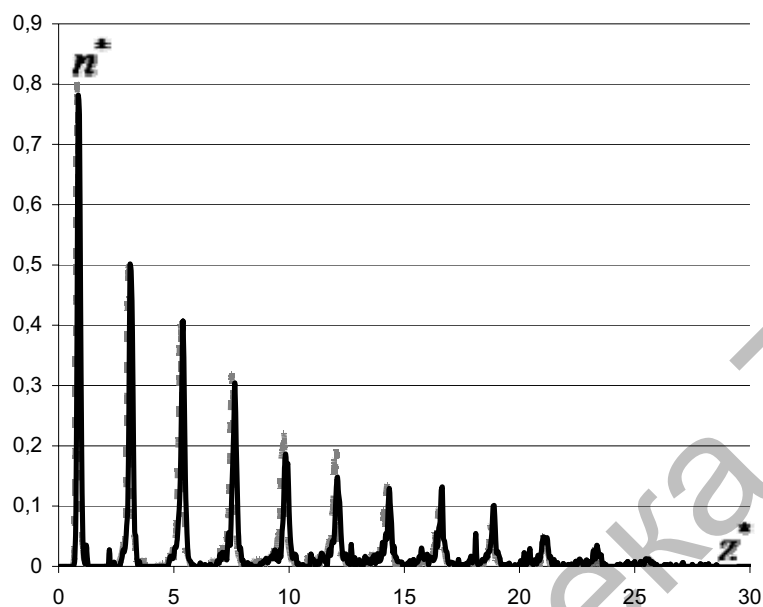


Рис. 6. Распределение приведенной локальной плотности $n^* = na^3$ (n – число атомов в расчете на единицу объема) в направлении, перпендикулярном подложке для гетероструктур, представленных на рис. 2 (штриховая линия) и рис. 3 (сплошная линия)

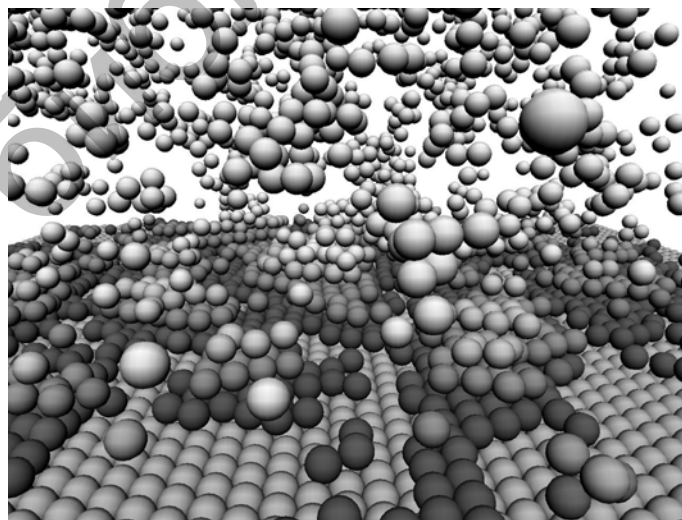


Рис. 7. Начальная стадия гетероэпитаксии при более высокой приведенной температуре ($T^* = 0.40$)

Поскольку период решетки кремния b_s меньше, чем период решетки b германия, эпитаксиальная пленка «вспучивается», т.е. образуются островки. Хотя эта точка зрения согласуется с тем, что при автоэпитаксии кремния островки не образуются, механизм роста германиевых островков до сих пор остается не вполне ясным. Полученные нами результаты подтверждают общепринятый механизм образования островков в условиях эпитаксии и показывают, что этот механизм не является специфическим для системы Ge/Si. Но, очевидно, в леннард-джонсовских системах этот механизм проявляется в гораздо меньшей степени, поскольку в системе Ge/Si атомы связаны химической (ковалентной) связью, характеризующейся гораздо большей энергией.

Рис. 7 соответствует начальной стадии гетероэпитаксии при более высокой температуре ($T^* = 0.4$). Видно, что в данном случае сначала образуются двумерные островки с ГПУ-структурой, на которых затем уже формируются локальные трехмерные островки. Иными словами, повышение температуры и в данном случае приводит к изменению механизма роста, т.е. переход к механизму Странского-Крастанова.

Результаты и выводы

1. При низкой температуре как на континуальной твердой поверхности, так и на поверхности с дискретной (атомистической) структурой автоэпитаксиальный рост леннард-джонсовских островковых пленок происходит по механизму Фольмера-Вебера;

2. Повышение температуры дискретной подложки до значения, близкого к температуре плавления, приводит к изменению механизма автоэпитаксиального роста островковых пленок: механизм Фольмера-Вебера сменяется механизмом Странского-Крастанова;

3. При переходе к случаю гетероэпитаксии (подложка характеризуется пространственным несоответствием решетки, равным 5%) наблюдается более выраженная дифференциация островков и увеличение их высоты. Эту закономерность можно рассматривать как слабое проявление того же эффекта, который характерен для гетероэпитаксиального роста германиевых островков на поверхности кремния;

4. В моделируемых нами системах при низкой температуре механизм роста можно квалифицировать как промежуточный между механизмами Фольмера-Вебера и Странского-Крастанова, поскольку стационарные островки, формирующиеся после завершения отжига, располагаются на плотном прекурсионном монослое;

5. При гетероэпитаксии, как и в случае автоэпитаксии, повышение температуры способствует переходу к механизму Странского-Крастанова.

Работа выполнена при поддержке Российского Фонда
Фундаментальных исследований (грант № 08-03-97511-р_центр_a).

Список литературы

1. Бембель А.Г., Самсонов В.М., Пушкарь М.Ю. Молекулярно-динамическое исследование закономерностей и механизмов конденсированного роста островковых пленок // Известия РАН Серия физическая. 2009. Т. 23. № 8. С. 1203 – 1205.
2. Иевлев В.М., Бугаков А.В., Трофимов В.И.. Рост и структура конденсированных пленок. Воронеж: Изд-во Воронежского государственного технического университета, 2000.
3. Дубровский В.Г.. Теория формирования эпитаксиальных наноструктур. Физматлит, 2009.
4. Чистяков Ю.Д., Райнова Ю.П. Физико-химические основы технологии микроэлектроники. М.: Металлургия, 1979.
5. Самсонов В.М., Харечкин С.С., Гафнер С.Л., Редель Л.В., Гафнер Ю.А. // Кристаллография. 2009. Т. 54. С. 530-536.
6. Polak W. Size dependence of freezing temperature and structure instability in simulated Lennard-Jones clusters // Eur. Phys. Journ. D. 2006. V. 40. P. 231-242.
7. Tersoff J. Empirical interatomic potential for silicon with improved elastic properties // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. P. 9902-9905.
8. Лахно В.Д. Кластеры в физике, химии и биологии. М.-Ижевск: Регулярная и хаотическая динамика. 2001. С. 14-15.
9. Самсонов В.М., Дронников В.В., Мальков О.А. Зависимость температуры плавления нанокристаллов от их размера // ЖФХ. 2004. Т. 78, №7. С. 1203-1207.
10. Medeiros-Ribeiro G., Bratkovski A.M., Kamins T.I., Ohlberg A.A., Williams R.S. Shape Transition of Germanium Nanocrystals on a Silicon (001) Surface from Pyramids to Domes // Science. 1998. V. 279. P. 353-355.

Об авторах:

БЕМБЕЛЬ Алексей Глебович – аспирант кафедры теоретической физики ТвГУ;

САМСОНОВ Владимир Михайлович – доктор физ.-мат. наук, профессор, заведующий кафедрой теоретической физики ТвГУ;

ПУШКАРЬ Михаил Юрьевич – старший научный сотрудник кафедры теоретической физики ТвГУ;

САМСОНОВ Максим Владимирович – магистрант факультета прикладной математики и кибернетики ТвГУ.