

УДК 532.6: 541.8

МОЛЕКУЛЯРНО – ДИНАМИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ЗАКОНОМЕРНОСТЕЙ И МЕХАНИЗМОВ КОНДЕНСАЦИОННОГО РОСТА ОСТРОВКОВЫХ ПЛЕНОК¹

А. Г. Бембель

Тверской государственный университет,
кафедра теоретической физики

На основе метода молекулярной динамики исследовались закономерности и механизмы эпитаксиального роста субмикронных островковых пленок, т.е. пленок диаметром порядка 0,01 мкм. Межатомное взаимодействие в моделированных системах описывалось потенциалом Леннарда-Джонса. Показано, что в рассматриваемых системах конденсационный рост островковых пленок осуществляется по механизму Фольмера-Вебера.

Постановка задачи. В работе [1] мой научный руководитель и аспирант М. Ю. Пушкарь ставили целью исследование возможности получения наноразмерных островков, в частности, пирамидоподобных нанокристаллов, на заранее заданном участке подложки, используя с этой целью узкофокусированный атомный пучок, диаметр которого соответствует поперечному размеру формирующейся гетероструктуры. Однако в современных установках для молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) используются атомные пучки макроскопического сечения. По этой причине и ряду иных соображений, связанных с перспективами развития нанoeлектроники, представляет интерес исследовать, как зависят закономерности и механизмы МЛЭ от диаметра атомного пучка, направленного на подложку. Как было установлено в [1], если атомный пучок имеет диаметр в диапазоне 1...10 нм, то на подложке будет формироваться единственная компактная гетероструктура, диаметр которой D приблизительно равен диаметру пучка d . Можно ожидать, что при увеличении диаметра пучка до некоторого характерного значения d_{ch} закономерности и механизмы образования гетероструктур должны существенно изменяться и, соответственно, при $d > d_{ch}$ они будут отвечать одному из известных механизмов роста пленок, макроскопических по своей площади. Однако как вопрос о правильности нашей гипотезы, так и о величине d_{ch} остается открытым. В данной работе отмеченные выше проблемы исследуются с использованием молекулярно-динамического моделирования эпитаксиальных процессов.

¹ Работа выполнена под руководством и при участии проф. В. М. Самсонова

В настоящее время выделяют три основных механизма (или вида) роста конденсированных пленок [2; 3]:

1. механизм Фольмера-Вебера, отвечающий образования на подложке дискретных зародышей, которые затем растут и срастаются в единую пленку;

2. механизм Франка и Ван дер Мерве, при котором рост начинается с образования двумерных зародышей (или сплошной пленки), на которых затем последовательно наращиваются монослои островков;

3. механизм Крастанова и Странского, отвечающий послойному росту, завершающемуся образованием двумерных кристаллов.

Считается [2], что, в отличие от первого, второй и третий механизмы реализуются только на поверхности кристаллов.

Поскольку поставленная нами задача исследования еще не рассматривалась другими авторами, то выбор леннард-джонсовских систем в качестве объектов исследования является вполне резонным. Леннард-джонсовская пленка может рассматриваться в качестве базовой модели, соответствующей, в некотором приближении, не только молекулярным системам, но и металлам с плотной упаковкой. Согласно Дж. Терсоффу [4], основная роль коллективного взаимодействия сводится к обеспечению стабильности более «рыхлой» структуры, отвечающей ковалентным системам. Вместе с тем, молекулярные пленки также представляют большой интерес как с фундаментальной, так и с прикладной точек зрения [5]. Это связано, в частности, с перспективами применения сэндвичевых структур в электронике. Компонентами таких структур могут быть не только полупроводниковые и металлические, но и молекулярные слои. Необходимо также отметить, что переход от парного потенциала к коллективному, например к потенциалу Терсоффа [4] увеличивает время счета на два порядка. По этой причине, моделирование роста островковых пленок субмикронного размера с использованием коллективных потенциалов представляется в ближайшей перспективе затруднительным.

Для формирования островковой пленки в условиях компьютерного молекулярно-динамического эксперимента нами использовалась та же программа, что и в [1], но, в отличии от указанных работ, приведенный диаметр пучка $d^* = d/a$ (a – эффективный диаметр атома) варьировался в широких пределах: от 10 до 50. В последнем случае при $a = 0,25$ нм (алюминий) этот приведенный диаметр будет отвечать диаметру пучка, приблизительно равному 0,1 мкм. Подложка в данной работе учитывалась в рамках континуальной модели, т.е. с помощью потенциала Леннард-Джонса, проинтегрированного по полупространству. Основными параметрами подложки являются: относительный атомный диаметр $a_s^* = a_s/a$, т.е.

отношение диаметра атома подложки a_s к диаметру атома a растущей гетероструктуры; относительный энергетический параметр $\varepsilon_s^* = \varepsilon_s / \varepsilon$ и приведенная плотность числа атомов в подложке $n_s^* = n_s / a_s^3$, которая близка к единице. Представленные в данной работе результаты отвечают случаю, когда $a_s^* = \varepsilon_s^* = 1$. Поскольку для германия и кремния значения параметров a и ε , пропорциональных тетраэдрическому ковалентному радиусу и энергии связи очень близки [6], то моделируемую нами систему можно рассматривать как леннард-джонсовский аналог системы Ge/Si, а также любой системы, отвечающей автоэпитаксии, в частности, автоэпитаксии металла.

Как и в условиях реальной эпитаксии, формирование гетероструктур происходило в два этапа: 1) активная стадия, отвечающая испусканию источником молекулярного пучка; 2) релаксация (отжиг). Для удобства визуализации процесса роста и релаксации получающихся островковых пленок была разработана специальная программа, позволяющая визуализировать наноструктуры на твердых поверхностях. Визуализация конечных (квазиравновесных) структур и анимация процессов роста позволяет сделать мотивированное заключение о механизме роста островковых пленок. Для изучения степени упорядоченности получающихся островковых пленок была разработана еще одна компьютерная программа, позволяющая находить распределение плотности по высоте островковой пленки.

Результаты и обсуждение. Как и следовало ожидать, при диаметрах пучка $d^* = 10 - 20$ на подложке формируется отдельный островок, что согласуется с результатами работ [1]: уже при диаметрах пучка $d^* = 20$ на подложке начинают одновременно формироваться островки меньшего размера, которые затем уже сливаются в единую островковую пленку (рис. 1). Для визуализации и анимации атомно-молекулярных конфигураций, полученных в условиях компьютерного эксперимента, автором была разработана оригинальная компьютерная программа. С помощью этой программы было установлено, что рост островковой пленки осуществляется по механизму Фольмера – Вебера. Наличие стадий образования трехмерных зародышей, их слияния и разрастания согласуется с общепринятыми представлениями теории эпитаксиального роста [3].

Для изучения степени позиционной упорядоченности в формирующихся гетероструктурах нами была разработана еще одна вспомогательная компьютерная программа для нахождения распределения локальной плотности по толщине формирующегося эпитаксиального слоя, т.е. для нахождения зависимости приведенной

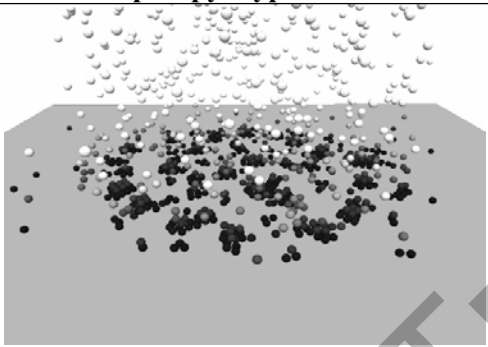
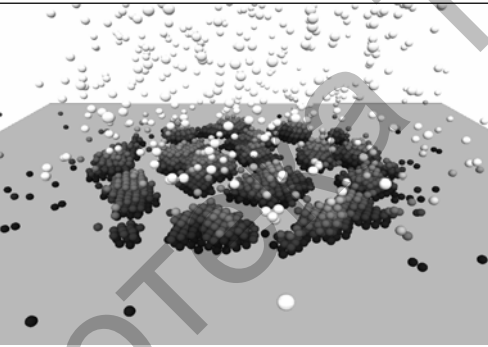
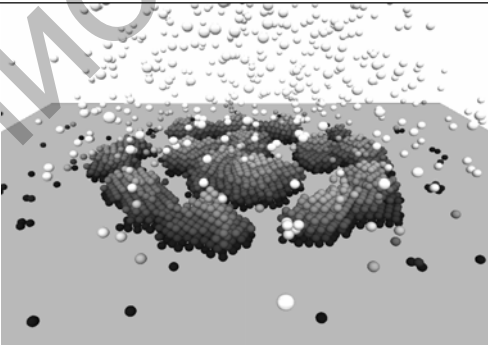
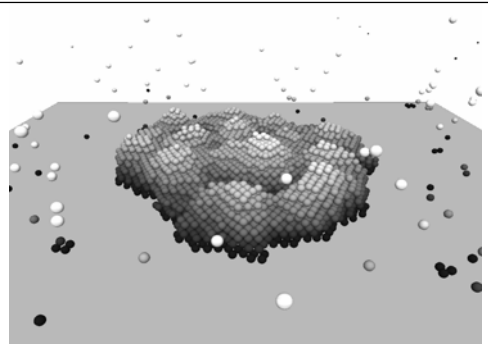
плотности числа атомов $n^* = na^3$ от приведенной координаты $z^* = z/a$, отвечающей направлению, перпендикулярному к подложке. Для нахождения локальной плотности область локализации гетероструктуры разбивалась на дискообразные слои заданной толщины Δz^* с последующим нахождением числа атомов в указанных слоях. Результаты, отвечающие значению $\Delta z^* = 0.1$, представлены на рис. 2.

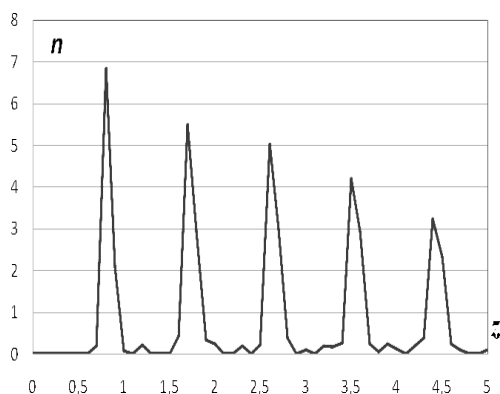
Из рисунка видно, что зависимость $n^*(z^*)$ характеризуется наличием четко выраженных максимумов и минимумов, которые отражают высокую степень позиционной упорядоченности в пленке, т.е. наличие четко дифференцированных монослоев, ориентация которых задается ориентацией подложки. Следует отметить, что величины максимумов на рис. 2 существенно превышают значения приведенной плотности, отвечающие массивной жидкой фазе ($n^* = 0.8$) и кристаллу ($n^* = 1-1.2$). Столь же высокие значения максимумов приведенной плотности получались также при теоретическом рассмотрении адсорбционных слоев на основе метода функционала атомной плотности [7].

Некоторые авторы [8] объясняют подобные результаты особой структурой тонких слоев. Однако даже в малых объемах плотность не может превышать в 5...7 раз приведенную плотность макроскопической материнской фазы, которая приблизительно равна единице. Нами установлено, что резкое возрастание максимальной плотности, т.е. плотности, отвечающей максимумам функции $n^*(z^*)$, по сравнению с плотностью массивной фазы является процедурным эффектом, причем величины максимумов существенно зависят от выбора шага Δz^* , возрастая с его уменьшением. Таким образом, для неоднородных систем локальная плотность теряет свою количественную однозначность, но сохраняет роль важной качественной структурной характеристики.

Оценка величины первого координационного числа в островковой пленке дала $\bar{z}_1^{\max} = 12$ и $\bar{z}_1 = 9$ для максимального и среднего значений соответственно. Это свидетельствует о том, что леннард-джонсовская островковая пленка характеризуется как плотной упаковкой атомов, так и наличием ряда дефектов, что подтверждается визуально конфигурацией, показанной на рис. 1.

Наличие плотной упаковки в леннард-джонсовских островках является, как уже отмечалось, следствием использования парной модели межатомного взаимодействия. Следует отметить, что, остановив рост островковой пленки до стадии слияния зародышей, можно получить массив очень малых кристаллических островков.

Номер шага	Вид на подложку с формирующейся гетероструктурой
14000	
35000	
49000	
150000	
<p>Рис. 1. Последовательные этапы формирования островковой пленки диаметром $d^* = 30$.</p>	



Р и с . 2. Распределение локальной плотности по толщине слоя

Отметим также, что варьирование параметров a_s^* и ε_s^* , а также приведенной температуры $T^* = kT/\varepsilon$ не приводило к изменению механизма роста пленок, т.е. всегда наблюдался механизм Фольмера-Вебера. Эти результаты согласуются с существующими представлениями теории роста конденсированных пленок [2].

В указанной монографии [2] отмечается, что рост по механизмам Франка – Ван дер Мерве и Крастанова – Странского может происходить только на кристаллических подложках. Нами же в данной работе рассматривались лишь континуальные подложки. Возможно, что переход к подложке с дискретной (атомной) структурой может привести к изменению механизма роста пленки.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 08-03-97511 p_центр_a).

Список литературы

1. Самсонов В. М., Пушкарь М. Ю. // Адгезия расплавов и пайка материалов. Киев: Наукова думка, 2006. Вып. 39. С. 3.
2. Иевлев В. М., Бугаков А. В., Трофимов В. И.. Рост и структура конденсированных пленок. Воронеж: Изд-во Воронежского государственного технического университета, 2000.
3. Хирс Дж. П., Моазед К. Л. // Физика тонких пленок. Т. 4, М.: Мир. 1970. С. 123.
4. Tersoff J. Empirical interatomic potential for silicon with improved elastic properties // Phys. Rev. B. 1988. V. 38, No.14. P. 9902.
5. Дэш Дж. Г. // Физика за рубежом. М.: Мир, 1987. С. 155.
6. Китель Ч. Введение в физику твердого тела. М.: Наука, 1973.
7. Зубков В. В. Применение метода функционала атомной плотности к исследованию структурных и термодинамических характеристик конденсированных пленок на поверхности твердого тела. Дисс... канд. физ.-мат. наук. Тверь, 2007.
8. Ustiniv E. A., Do D. D. // Applied Surface Science, 2005. V. 252. P. 548.