

УДК 539.216

©1994

СОЛИТОННАЯ МОДЕЛЬ МИГРАЦИИ ОСТРОВКОВ ПО ПОДЛОЖКЕ ПРИ РОСТЕ ТОНКИХ ПЛЕНОК

С.А.Кукушкин, А.В.Осипов

Предложен новый механизм скольжения кристаллического зародыша новой фазы по кристаллической поверхности. Этот механизм состоит в том, что при определенных размерах островка и параметре несоответствия решеток пленки и подложки на межфазной границе образуются дислокации несоответствия, движение которых под воздействием различных внешних сил приводит к перемещению островка. Построена качественная теория этого процесса и получены оценки основных характеристик движения данного типа.

Многочисленные экспериментальные исследования показывают, что на начальных стадиях конденсации кристаллических пленок на чужеродных кристаллических подложках зародыши новой фазы могут сравнительно быстро перемещаться по поверхности подложки [1-4]. Этот процесс является важным звеном в формировании структуры пленки [2,3]. Подобные перемещения происходят под действием различных внешних сил: соударения с быстрыми частицами потока, градиента температур, электрического и магнитных полей, увлечения движущимися ступенями и т.д. [3]. Что касается механизма миграции островков, то вплоть до настоящего времени использовались лишь две основные модели, описывающие перемещение островка [5]. В первой из них диффузия частиц происходит лишь по поверхности островка, причем частицы, прилегающие к поверхности раздела, остаются относительно нее неподвижными. Во второй островок считается скользящим по поверхности подложки.

Конкретных механизмов морфологического изменения островка и процесса скольжения было предложено достаточно много [3,6,7], однако, все они приводят к относительно низким значениям скорости миграции островков и коэффициенту их диффузии по сравнению с реально наблюдаемыми в отдельных случаях [2,4]. В моделях первого типа это связано с низкими значениями коэффициентов самодиффузии адатомов, которые не могут обеспечить достаточно быстрого перемещения островка. В моделях второго типа это вызвано большими величинами сил трения скольжения между островком и подложкой (т.е. высокой энергией активации скольжения), особенно при эпитаксиальном росте.

В настоящей работе предлагается принципиально иная модель движения ориентированно растущих островков по чужеродной подложке. Как известно, при определенных условиях на границе раздела

островок-подложка возникают дислокации несоответствия [8,9]. В том случае если вектор Бюргера лежит в плоскости скольжения, движение островка может обеспечиваться движением этих дислокаций. Описание данного механизма миграции островка и посвящена настоящая статья.

Такой механизм выглядит предпочтительнее обычного скольжения из-за того, что при движении дислокации в каждый момент времени почти все атомы островка остаются неподвижными относительно подложки, а двигается только очень маленькая группа атомов. Прохождение дислокации (волны сжатия или разрежения) из одного конца островка в другой равносильно перемещению островка на один период решетки подложки. Если скорость дислокации много меньше скорости звука в материале пленки, то потери энергии при ее движении очень малы, т.е. при таком типе перемещения практически нет трения о подложку. Ниже построена качественная модель предлагаемого механизма передвижения островка на основе теории нелинейных волн.

1. Образование движущихся дислокаций на межфазной границе раздела

Процесс конденсации тонких пленок из пара является типичным фазовым переходом первого рода газ — твердотело, протекающим через образование зародышей новой фазы [10]. Кристаллическая подложка может ориентировать растущие зародыши даже в том случае, если материалы пленки и подложки различны (гетероэпитаксиальный рост) [11].

Пусть подложка и островок являются монокристаллами с малым параметром несоответствия решеток $\varepsilon = (a - b)/b$, где a — параметр решетки подложки, b — пленки (в плоскости подложки). В расположении частиц островка присутствуют две противоположные тенденции. С одной стороны, частицы стремятся расположиться в минимумах потенциала подложки V , а с другой — образовать решетку с периодом b . Как будет показано ниже, результатом этих тенденций является образование при некотором критическом значении ε_c солитонов, которые делают возможным перемещение островка по подложке.

Следуя основным положениям классической теории пластического деформирования [8,9], будем моделировать островок одномерной цепочкой, состоящей из частиц массой m , связанных пружинами с жесткостью λ (m и λ пропорциональны высоте островка), а подложку — потенциальным рельефом

$$V(x) = (af/2\pi)(1 - \cos 2\pi x/a),$$

где x — координата вдоль подложки, f — константа, характеризующая силу, действующую на атомы со стороны подложки.

Введем переменную $y(x, t)$, равную отклонению частицы от соответствующего минимума потенциала подложки в момент времени t . Имея в виду непрерывное описание межфазной границы, а не дискретное, будем считать потенциал V слабым: $f \ll \lambda a$, что соответствует модели одноосного несоизмеримого кристалла [12]. Введем также частоту собственных колебаний решетки пленки $\omega = \sqrt{\lambda/m}$ и безразмерную величину $c = \sqrt{\lambda a/2\pi f}$, характеризующую отношение сил, действующих

на частицу со стороны других частиц цепочки и со стороны подложки. Очевидно, при слабом потенциале $c > 1$. Лагранжиан системы островок-подложка имеет вид

$$L = \int \left\{ \frac{m}{2} \left(\frac{\partial y}{\partial t} \right)^2 - af \left[\pi c^2 \left(\frac{\partial y}{\partial x} - \varepsilon \right)^2 + \frac{1}{2\pi} \left(1 - \cos \frac{2\pi y}{a} \right) \right] \right\} \frac{dx}{a}. \quad (1)$$

Варьируя L по $y(x, t)$, получим соответствующее уравнение движения

$$m \frac{\partial^2 y}{\partial t^2} = 2\pi a f c \frac{\partial^2 y}{\partial t^2} - f \sin \frac{2\pi y}{a}. \quad (2)$$

Решение уравнения (2) описывает поведение каждой частицы в цепочке и, следовательно, всего островка в целом. Введем новые безразмерные переменные $u = 2\pi y/a$, $n = x/a$, $\tau = \omega t$ и перепишем (2) в виде уравнения синус-Гордона

$$u_{\tau\tau} = u_{nn} - c^2 \sin u. \quad (3)$$

Впервые метод решения уравнения (3) был предложен в работе [13]. Этот метод заключается в следующем. Прежде всего, уравнение (3) записывается в виде

$$u_{XT} = \sin u,$$

где

$$X = (n + \tau)/2c, \quad T = (n - \tau)/2c.$$

Далее решается вспомогательное уравнение на собственные значения

$$\partial v_1 / \partial X + i\lambda v_1 = qv_2, \quad \partial v_2 / \partial X - i\lambda v_2 = -qv_1 \quad (4)$$

и находятся спектр λ , собственные функции $v_1(X)$, $v_2(X)$ и коэффициент отражения падающих волн для начального значения потенциала $q(X, 0) = -2^{-1} \partial u(X, 0) / \partial X$. Затем из соответствующих эволюционных уравнений на v_1 и v_2 находятся зависимости от времени нормировочных коэффициентов собственных функций и коэффициентов отражения. После этого решается обратная задача рассеяния, т.е. восстанавливается рассеивающий потенциал $q(X, T)$ по спектральным данным, из которого находится u

$$u(n, \tau) = -2 \int_{X_0}^{(n+\tau)/2c} q[X, (n - \tau)/2c] dX.$$

Расчеты показывают, что спектр уравнения (4) может иметь непрерывную и дискретную части [13]. Вклад в u , даваемый непрерывным спектром, стремится к нулю степенным образом. Дискретные собственные значения могут быть либо чисто мнимыми, либо могут образовывать пары, симметричные относительно мнимой оси. Решение уравнения (3), соответствующее простейшему спектру $\lambda = i\mu$, имеет вид

$$u(n, \tau) = 4 \operatorname{arctg} \exp \left(\pm \frac{n - n_* - v\tau}{c\sqrt{1 - v^2}} \right), \quad (5)$$

где $v = (4\mu^2 - 1)/(4\mu^2 + 1)$. Пара собственных значений $\lambda_1 = \mu_1 + i\mu_2$, $\lambda_2 = -\mu_1 + i\mu_2$ отвечает решению

$$u(n, \tau) = 4 \operatorname{arctg} \left\{ \frac{\mu_2 \sin \left[\frac{\mu_1}{\sqrt{\mu_1^2 + \mu_2^2}} \frac{\tau - \tau_* - v n}{c\sqrt{1 - v^2}} \right]}{\mu_1 \operatorname{ch} \left[\frac{\mu_2}{\sqrt{\mu_1^2 + \mu_2^2}} \frac{n - n_* - v \tau}{c\sqrt{1 - v^2}} \right]} \right\}, \quad (6)$$

где

$$v = [4(\mu_1^2 + \mu_2^2) - 1] / [4(\mu_1^2 + \mu_2^2) + 1].$$

Величины n_* и τ_* в (5), (6) определяются собственными функциями, соответствующими данному собственному значению или паре значений. Решения типа (5) называются солитонами и антисолитонами, решения типа (6) — двойными солитонами. Решение (6) с $\mu_1 = \omega/2$, $\mu_2 = \sqrt{1 - \omega^2}$ называют также бризером. В работе [13] показано, что для любого спектра при больших τ общее решение уравнения (3) распадается на отдельные солитоны (антисолитоны) и двойные солитоны. Их количество и скорости определяются дискретным спектром уравнения (4), зависящим от начального условия при $T = 0$. Многосолитонные решения, отвечающие сложному дискретному спектру, строятся, например, с помощью преобразований Бäckлунда. Исследование таких решений показывает, что столкновение солитонов происходит без потери энергии и что солитоны после столкновения ведут себя так же, как и до столкновения, за исключением появления временного сдвига. N -солитонное решение, в котором все N солитонов движутся влево с одинаковой скоростью v , имеет следующий вид

$$u(n) = \pi + 2am \frac{n + v\tau - n_0/2N}{kc\sqrt{1 - v^2}}, \quad (7)$$

где am — амплитуда Якоби с модулем k , который подчиняется уравнению $kK(k) = n_0/2Nc\sqrt{1 - v^2}$; K — эллиптический интеграл первого рода; n_0 — число периодов решетки, на которых размещается N солитонов, т.е. $u(n_0) = u(0) + 2\pi N$ (n_0 имеет смысл размера островка, N — целое число).

Энергия системы островков — подложка в данном случае равна

$$u = \frac{af}{\pi} \int_0^{n_0} \left[\frac{c^2 v^2}{4} (u')^2 + \frac{c^2}{4} (u' - 2\pi\epsilon)^2 + \frac{1}{2} (1 - \cos u) \right] dn. \quad (8)$$

Если отсчитывать энергию от положения, в котором солитонов нет, то подстановка (7) в (8) и учет малости ϵ дают

$$u = \frac{4afc}{\pi} N \left(\frac{e(k)}{k\sqrt{1 - v^2}} - \frac{\pi^2}{2} c\epsilon \right), \quad (9)$$

где E — полный эллиптический интеграл второго рода. Минимизация (9) по N позволяет найти количество солитонов, образующихся на междоузельной границе

$$N = n_0/2c\sqrt{1 - v^2} kK(k),$$

где k подчиняется уравнению

$$(1 - k^2) \frac{K}{E} \left(\frac{K}{E} - 1 \right) = \frac{\pi^2 K}{2 E} c \varepsilon \sqrt{1 - v^2} - 1. \quad (10)$$

Поскольку левая часть уравнения (10) достигает минимума, равного нулю при $k = 1$, то для существования решения необходимо выполнение условия

$$\varepsilon > \varepsilon_c / \sqrt{1 - v^2},$$

где

$$\varepsilon_c = 2/\pi^2 c = (2/\pi)^{3/2} \sqrt{f/\lambda a}$$

— критическое значение параметра несоответствия решеток, при котором в принципе возможно образование солитонов на межфазной границе.

2. Миграция островков, содержащих дислокации несоответствия

Заметим, что если островок имеет высоту h , то λ и m будут представлять собой суммы жесткостей пружин и масс частиц, находящихся друг над другом, т.е. $\lambda = \lambda_0 h/d$, $m = m_0 h/d$, где d — параметр решетки материала пленки в вертикальном направлении, m_0 — масса атома пленки, $\lambda_0 = m_0 \omega^2$. Поэтому условие образования солитона в бесконечно длинном островке (что соответствует $v = 0$, $k = 1$) высотой h переписывается в виде

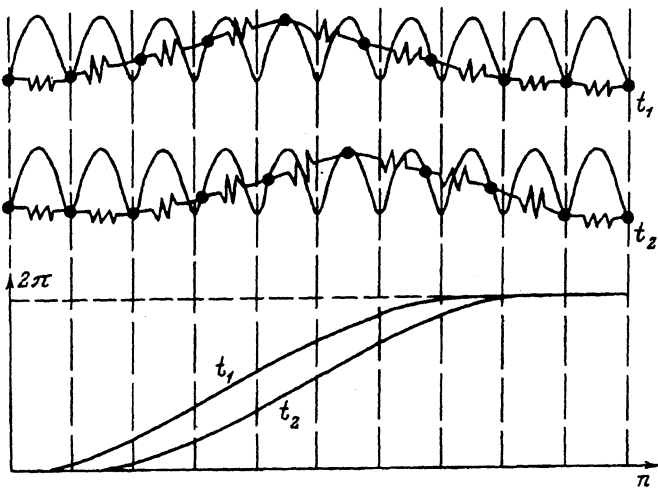
$$h > h_c = \left(\frac{2}{\pi} \right)^3 \frac{f}{m_0 \omega^2 a} \frac{d}{\varepsilon^2}. \quad (11)$$

Когда высота островка пропорциональна его радиусу r , условие (11) равносильно условию $r > r_c$. Если оно выполнено, то, как показано в предыдущем разделе, действие различных сил может привести к появлению солитонов, или волн разрежения частиц (если параметр решетки подложки a меньше параметра решетки пленки b , т.е. $\varepsilon < 0$, то образуются антисолитоны или волны сжатия). Следует отметить, что источники и механизмы введения дислокаций несоответствия решеток в межфазную границу могут быть различными [14]. Кроме того, могут образоваться двойные солитоны (6), влияние которых на движение островка несущественно из-за их колебательной природы и поэтому ниже рассматриваться не будет. Скорости солитонов зависят от $u(X, T = 0)$, т.е. от $y(a\omega t, t)$, которая определяется внешними силами, действующими на островок. В простейшем случае, когда равномерное действие внешних сил приводит к одинаковой скорости v всех солитонов, координата середины островка изменяется по следующему закону

$$x(t) = \frac{a}{\pi} \arctan \frac{v\omega t}{kc\sqrt{1 - v^2}}. \quad (12)$$

Количество солитонов, образующихся на границе островка длиной L с подложкой, равно

$$N = \frac{L/a}{2ckK(k)}, \quad (13)$$



Схематическое изображение процесса движения островка, содержащего один солитон.

Перемещение солитона (волны разрежения) вправо вызывает перемещение влево небольшой группы атомов, составляющих солитон; остальные атомы неподвижны. Результатом прохода солитона является перемещение островка на один период решетки.

где модуль эллиптической функции k определяется из уравнения (10) (N — целое).

Из (12), (13) следует, что островок преодолевает расстояние, равное параметру решетки a за время $t_0 = 2\omega^{-1}c\sqrt{v^{-2}-1}$; $kK = \sqrt{v^{-2}-1}L/a\omega N$. Следовательно, средняя скорость островка равна

$$v_0 = a^2\omega N v / L\sqrt{1-v^2}. \quad (14)$$

Для того, чтобы островок длины $L = 10^3 a$ имел скорость $v_0 = 10^{-5}$ m/s при скорости звука $\omega a = 10^3$ m/s и всего лишь одним солитоне $N = 1$, скорость солитона v должна быть равна 10^{-5} . Поэтому для всех реальных случаев можно использовать приближение $v \ll 1$. Кинетическая энергия островка равна

$$E_k = N \left[\frac{m\omega^2 a^2}{\sqrt{1-v^2}} - m\omega^2 a^2 \right] \approx Nm \frac{(v\omega)^2}{2} \approx M \frac{L}{aN} \frac{v_0^2}{2}, \quad (15)$$

где $M = mL/a$ — масса островка. Следовательно, скольжение по подложке островка массы M и длиной L , содержащего N солитонов, происходит аналогично движению без трения тела массы $M_{\text{eff}} = ML/aN$ (величина L/aN имеет смысл среднего расстояния между солитонами, выраженного в периодах решетки a).

Если солитоны имеют различные скорости v_1, v_2, \dots, v_N , то выражение (14) принимает вид

$$v_0 = (a^2\omega/h) \sum_{k=1}^N v_k, \quad (16)$$

а скольжение островка происходит аналогично движению без трения тела с эффективной массой

$$M_{\text{eff}} = M \frac{L}{a} \frac{\sum_{k=1}^N v_k^2}{\left(\sum_{k=1}^N v_k\right)^2}. \quad (17)$$

Схематическое изображение процесса движения островка с помощью солитонного механизма дано на рисунке.

Вычислим силы трения, возникающие при миграции островка за счет возбуждения солитоном колебаний атомов подложки, вязкости двумерного пара адатомов, окружающего островок, и торможения солитонов дефектами упаковки и микродвойниками, содержащимися на поверхности подложки. В принципе некоторые потери энергии могут также иметь место за счет отличия истинного потенциала подложки от $\cos 2\pi x/a$ и зависимости реальных λ и m от x , а также за счет задержек в образовании очередной дислокации [14]. В рамках данной модели такие потери не рассматриваются. Нетрудно показать, что сила трения, вызванная затратами на колебания атомов подложки с собственной частотой ω_0 , при $N = 1$ равна

$$F_1 = (f^2/ma) \left| \int_{-\infty}^{\infty} \sin u(t) e^{i\omega_0 t} dt \right|^2, \quad (18)$$

где

$$u(t) = 4 \arctg \exp[(v/c)\omega t].$$

Вычисление интеграла в (18) дает

$$F_1 = \frac{\lambda a \omega_0^2}{2\omega^2 v^4} \text{ch}^{-2} \frac{\pi c \omega_0}{2v\omega}. \quad (19)$$

При $\omega_0 = \omega$, $v \ll 1$ имеем

$$F_1 = 2\lambda a [v^2 / \exp(\pi c/v)]^{-1},$$

следовательно, при $v \sim 10^{-5}$ сила трения о подложку F_1 практически равна нулю.

Сила трения островка о двумерный пар адатомов на поверхности подложки с вязкостью η равна

$$F_2 = B^{-1} v_0, \quad (20)$$

где B — подвижность островка. Если островок имеет форму диска с радиусом r , то $B = 3/32\eta r$. Так как в двумерном случае коэффициент диффузии связан с подвижностью соотношением $D = 4kTB$ (T — температура адсорбата), то коэффициент диффузии островков равен

$$D = \frac{3kT}{8\eta r}. \quad (21)$$

При $T = 700$ К, $\eta = 4 \cdot 10^{-3}$ кг/мс, $r = 10^{-7}$ м из (21) находим $D \sim 10^{-1}$ м²/с.

Сила трения островка за счет торможения солитонов ступенями на поверхности подложки, дефектами упаковки и микродвойниками [14] также описывается выражением (20), но подвижность островка в данном случае гораздо ниже. Ее можно оценить как $B = c/4\rho r^2$, где ρ — поверхностная концентрация дефектов, c — коэффициент пропорциональности. Тогда

$$D = \frac{ckT}{\rho r^2}. \quad (22)$$

В частности, при $T = 700$ К, $r = 10^{-8}$ м, $\rho = 10^{17}$ м $^{-2}$, $c = 10^4$ с/кг из (22) следует, что $D \sim 10^{-17}$ м 2 /с, т.е. данная сила трения самая большая.

3. Обсуждение результатов

Как следует из (11), (13), если высота островка h превышает некоторое критическое значение, равное $h_c[1 - \varepsilon^{-1} \exp(-h_c/\pi a \varepsilon)]^{-2} \approx h_c$, то введение дислокаций несоответствия решеток в межфазную границу понижает потенциальную энергию системы островок-подложка. Оптимальное значение линейной плотности дислокаций при ε , очень близких к ε_c , определяется выражением

$$\frac{L}{aN} \simeq 4c \ln \frac{1}{\varepsilon - \varepsilon_c}. \quad (23)$$

Поскольку движущаяся дислокация несоответствия ведет себя как частицеподобная волна, то введение в межфазную границу хотя бы одной дислокации резко увеличивает подвижность островка. Его движение становится подобным движению тела с некоторой массой M_{eff} . Если все солитоны движутся с одинаковой скоростью, то

$$M_{\text{eff}} \sim 4cM \ln \frac{1}{\varepsilon - \varepsilon_c}. \quad (24)$$

Основными силами, действующими на островок, будут сила торможения, возникающая из-за отличия рельефа Пайерлса материалов пленки и подложки, сила трения за счет взаимодействия солитонов с дефектами на поверхности подложки (отклонение потенциального рельефа подложки от $fa \cos 2\pi x/a$ также можно трактовать как присутствие дефектов) и внешняя сила, вызывающая движение островка, например взаимодействие с быстрыми частицами падающего потока. Если внешняя сила является случайной, то островок будет мигрировать по подложке с коэффициентом диффузии, даваемым выражением (22).

Оценим величины h_0 и M_{eff} . При $f = m_0 \omega^2 a$, $\varepsilon = 10^{-1}$, $d = 4 \cdot 10^{-10}$ м, $\varepsilon - \varepsilon_c = 10^{-2}$, $c = 5$ из (11), (24) находим $h_c = 10^{-3}$ м, $M_{\text{eff}} = 10^2 M$. Маленькие островки с $h < h_c$ являются неподвижными, так как они не содержат дислокаций несоответствия. Затем, начиная с критического размера, островки становятся подвижными, причем их подвижность падает с размером как r^{-2} . В реальной ситуации поверхность островка является двумерной, а не одномерной. Если в одном направлении критерий существования дислокаций несоответствия выполнен, а в другом нет, то образуются параллельные друг другу солитонные линии

(одноосный несоизмеримый кристалл). Если пленка и подложка несоизмеримы в двух направлениях, то солитоны образуют сложную двумерную решетку [12]. Подобные решетки дислокаций несоответствия наблюдаются при росте пленок экспериментально [14].

Термодинамическое исследование взаимодействующих солитонных линий показывает, что в некотором интервале значений ε логарифмическая зависимость L/Na от $\varepsilon - \varepsilon_c$ сменяется корневой, $L/Na \sim \text{const} (\varepsilon - \varepsilon_c)^{-1/2}$. Это приводит к соответствующему изменению зависимости (24). Кроме того, при определенной температуре наступает плавление решетки солитонов, причем соизмеримая и несоизмеримая фазы могут образовывать сложные фазовые диаграммы [12]. Численное решение нестационарного двумерного уравнения синус-Гордона и некоторых других похожих уравнений (в частности, с другим периодическим потенциалом) [15] позволяет сделать вывод о том, что и в случае реальной двумерной межфазной границы дислокации несоответствия ведут себя подобно частицам (солитонам). Следовательно, островок может мигрировать по подложке за счет перемещения солитонных линий дислокаций несоответствия. При этом лишь малая часть атомов островка перемещается относительно подложки. Как уже отмечалось, свойства солитонов таковы, что подобный механизм скольжения осуществляется с малыми потерями энергии.

Авторы выражают глубокую благодарность О.В. Клявину за полезное обсуждение полученных результатов.

Работа выполнена при поддержке Всероссийского фонда фундаментальных исследований (№ 93-03-5351).

Список литературы

- [1] Kern R., Le Lay G., Metois J.J. // *Curr. Top. Mater. Sci.* 1979. V. 3. P. 139-419.
- [2] Трусов Л.И., Холмянский В.А. Островковые металлические пленки. М.: Металлургия, 1973. 320 с.
- [3] Гегузин Я.Е., Кагановский Ю.С. // *УФН.* 1978. Т. 125. № 3. С. 489-525.
- [4] Rubets V.P., Kukushkin S.A. // *Thin Solid Films.* 1992. V. 221. P. 267-270.
- [5] Masson A., Metois J.J., Kern R. // *Surf. Sci.* 1971. V. 7. № 3. P. 483-498.
- [6] Masson A., Metois J.J., Kern R. *Advances in Epitaxy and Endotaxy.* Leipzig, 1971. P. 103-108.
- [7] Lewis B. // *Surf. Sci.* 1970. V. 21. P. 273-288.
- [8] Френкель В.Я. Введение в физику металлов. М.: Гл. изд. физ.-мат. лит., 1958. 318 с.
- [9] Frank F.C., van der Merwe J.H. // *Proc. Roy. Soc.* 1949. V. 198. № 1053. P. 205-216.
- [10] Osipov A.V. // *Thin Solid Films.* 1993. V. 27. P. 111-118.
- [11] Kukushkin S.A., Osipov A.V. // *Thin Solid Films.* 1993. V. 227. P. 119-127.
- [12] Люксютов И.Ф., Наумов А.Г., Покровский В.Л. Двумерные кристаллы. Киев: Наукова думка, 1988. 220 с.
- [13] Ablowitz M.J., Kaup D.J., Newell A.C., Segur H. // *Phys. Rev. Lett.* 1973. V. 30. № 25. P. 1262-1264.
- [14] Иевлев В.М., Трусов Л.И., Холмянский В.А. Структурные превращения в тонких пленках. М.: Металлургия, 1982. 248 с.
- [15] Dodd R.K., Eilbeck J.C., Gibbon J.D., Morris H.C. *Solitons and Nonlinear Wave Equations.* London: Acad. Press, 1984. 694 p.

Институт проблем машиноведения РАН
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию
7 июля 1993 г.
В окончательной редакции
14 декабря 1993 г.