

01;02;06;11;12

Динамика роста однокомпонентной кристаллической тонкой пленки

© В.Г. Дубровский, Г.Э. Цырлин

Институт аналитического приборостроения РАН,
198103 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 26 ноября 1996 г.)

Исследование динамики роста тонких пленок необходимо для контроля качества поверхности, определения оптических и электрофизических свойств пленки. Знание динамических закономерностей позволяет проводить оптимизацию технологических режимов эпитаксиального роста, в том числе при молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) полупроводников. В настоящей работе теоретическими методами исследуются некоторые характерные случаи роста однокомпонентных пленок на подложке, по своим параметрам отличной от напыляемого материала.

Процесс роста полислоистой кристаллической пленки на сингулярной поверхности рассматривается в рамках модели [1], которая используется для нахождения не только средней высоты, но и более детальных характеристик поверхности пленки — шероховатости и функции распределения по высоте. В результате взаимодействия поверхности с молекулярным пучком (адсорбции и миграции) образуются заполненные участки первого слоя пленки. Дальнейшее осаждение молекул приводит к появлению на этих участках зародышей второго, третьего и т.д. слоев. Будем исходить из интегрального соотношения между заполненностями слоев $i+1$ $ig_{i+1}(t)$ и $g_i(t-\tau)$ ($i = 0, 1, 2, \dots$) [1]

$$g_{i+1}(t) = \int_0^t d\tau \dot{g}_{i+1}^{(0)}(t-\tau)g_i(\tau). \quad (1)$$

Здесь $g_i^{(0)}(t) = 1 - \exp(-f_i(\omega_i t))$, $g_0 = 1$, $g_1(t) = g_1^{(0)}(t)$, $\dot{g}_i^{(0)} = dg_i^{(0)}(t)/dt$, функции $f_i(\omega_i t)$ описывают кинетику формирования слоя i , ω_i — характерные обратные времена формирования слоев. Предполагается отсутствие нависания слоев друг над другом. Введем вероятности обнаружения случайной точки поверхности пленки на высоте hi (h — высота монослоя)

$$p_i(t) = g_i(t) - g_{i+1}(t). \quad (2)$$

Отнесенные к h средняя высота $H(t)$ и шероховатость поверхности пленки $\sigma(t)$ определяются выражениями

$$H(t) = \sum_{i \geq 1} i p_i(t), \quad \sigma^2(t) = \sum_{i \geq 1} i^2 p_i(t) - H^2(t). \quad (3)$$

Система уравнений (1)–(3) исследовалась нами для случая $f_1 \neq f_2 = f_3 = f_4 = \dots$; $\omega_1 \neq \omega_2 = \omega_3 = \omega_4 = \dots$ [1] (кинетика роста одинакова

во всех слоях, начиная со второго). Для лаплас-образов вероятностей $p_i(\omega)$ из (1)–(3) с учетом сделанного предположения следует

$$p(\omega) = \omega^{-1} \phi_2(\omega)(1 - \phi_2(\omega))^{i-1}(1 - \phi_1(\omega)), \quad (4)$$

$$\phi_k(\omega) = \omega \int_0^\infty dt \exp(-\omega t - f_k(\omega_k t)); \quad k = 1, 2. \quad (5)$$

Формулы обращения для средней высоты и шероховатости пленки имеют вид

$$H(t) = \int_0^t dt \Psi_2(t - \tau)g_1(\tau),$$

$$\sigma^2(t) = 2 \int_0^t dt \Psi_2(t - \tau)H(\tau) - H^2(t) - H(t). \quad (6)$$

Ядро $\Psi_2(t)$ является лаплас-оригиналом функции $1/\phi_2(\omega)$. Для нахождения явного вида $H(t)$, $\sigma(t)$ необходимо конкретизировать зависимости $f_k(\omega_k t)$.

В отсутствие десорбции и миграции $f(t) = Jst$, где J — плотность потока молекул; s — площадь, занимаемая молекулой на поверхности (нормальный механизм роста). В случае роста по механизму двумерного твердофазного спекания для нахождения $f(t)$ используется модель Колмогорова [2]. Если $v(t) = v_0 t^\beta$ есть скорость роста двумерных кластеров, $I(t) = I_0 t^\alpha$ или $I(t) = \Gamma \delta(t)$ (мгновенное зарождение) есть интенсивность нуклеации зародышей, для $f(t)$ соответственно имеем

$$f(t) = (\beta + 1)^{-2} [(\alpha + 1)^{-1} + (2\beta + \alpha + 3)^{-1} - 2(\alpha + \beta + 2)^{-1}] c I_0 v_0^2 t^{2\beta + \alpha + 3}$$

или

$$f(t) = c \Gamma v_0^2 t^{2\beta + 2},$$

где c — константа формы.

Более точные выражения для $f(t)$ выводятся на основе самосогласованных моделей [3], учитывающих кинетику фазового перехода в монослой. Однако и они в первом приближении приводят к степенным зависимостям вида $f(\omega t) = (\omega t)^m$, где $1 \leq m \leq 3$. Случай $m = 1$ наблюдается при нормальном механизме роста или при $\beta = -1/2$, $I(t) = \Gamma \delta(t)$, случай $m = 2$ при $\alpha = 0$, $\beta = -1/2$ или при $\beta = 0$, $I(t) = \Gamma \delta(t)$, случай $m = 3$ при $\alpha = \beta = 0$.

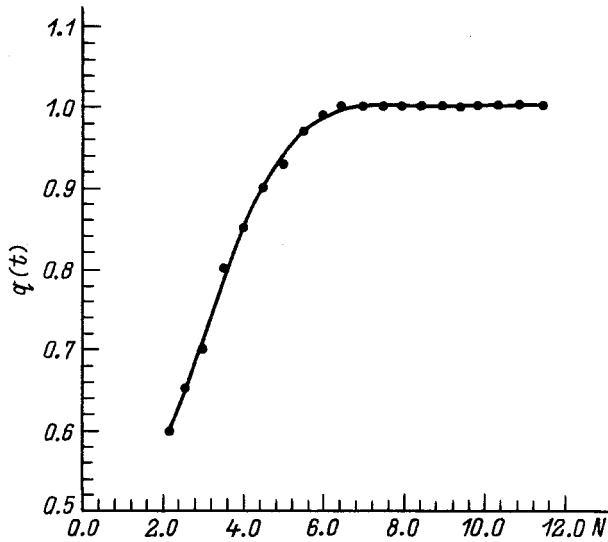


Рис. 1. Зависимость отношения квадрата шероховатости к средней высоте пленки от количества осажденных монослоев в случае низких температур по данным компьютерного моделирования.

Решения (6) представимы в явном виде для случая $f_2(\omega_2 t) = \omega_2 t$ при произвольной зависимости $f_1(\omega_1 t)$

$$H(t) = g_1(\omega_1 t) - \nu A_1(\omega_1 t) + \omega_2 t, \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \sigma^2(t) = & [g_1(\omega_1 t) - 2\nu A_1(\omega_1 t) + 2\omega_2 t] \\ & \times \exp(-f_1(\omega_1 t)) + \nu A_1(\omega_1 t) \\ & \times [\nu A_1(\omega_1 t)(2B(\omega_1 t) - 1) - 1] + \omega_2 t, \end{aligned} \quad (8)$$

где $\nu = \omega_1/\omega_2$.

Здесь и далее используются обозначения ($k = 1, 2$)

$$A_k(y) = \int_0^y dx \exp(-f_k(x));$$

$$B_k(y) = A_k^{-2}(y) \int_0^y dx \exp(-f_k(x)). \quad (9)$$

Если миграция отсутствует и в первом слое ($f_1 = f_2 = Jst \equiv \omega_2 t$), то из (4) получаем пуассоновское распределение по высотам i

$$p_i(t) = \exp(-\omega_2 t)(\omega_2 t)^i / i!, \quad H(t) = \sigma^2(t) = \omega_2 t. \quad (10)$$

Из (7), (8) следует, что для произвольного механизма роста первого слоя при $\omega_1 t, \omega_2 t \gg 1$ также наблюдается пуассоновский закон $H(t) = \sigma^2(t) = \omega_2 t$. Вместе с тем при малых t поведение шероховатости имеем немонотонный характер.

В случае нелинейной зависимости $f_2(\omega_2 t)$ нетрудно получить асимптотические выражения для средней высоты и шероховатости пленки, справедливые при $\omega_1 t,$

$\omega_2 t \gg 1$. Для этого используется асимптотика (5) при $\omega/\omega_2 \ll 1$. Приведем только окончательный результат

$$H(t) \simeq B_2 - C_{12} + \omega_2 t / A_2, \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \sigma^2(t) \simeq & B_2(B_2 - 1) + C_{12}[C_{12}(2B_1 - 1) \\ & - 2B_2 + 1] + (2B_2 - 1)\omega_2 t / A_2. \end{aligned} \quad (12)$$

Здесь $A_k = A_k(\infty), B_k = B_k(\infty), C_{12} = \nu A_1 / A_2$, функции $A_k(y), B_k(y)$ определены в (9). Видно, что в рассматриваемом случае картина роста сильно изменяется. Асимптотика отношения квадрата шероховатости к средней высоте отлична от единицы и равна значению $2B_2 - 1$. При $f_k(\omega_k t) = (\omega_k t)^{m_k}$ интегралы в (9) сводятся к гамма-функциям. Отношение $q(t) = \sigma^2(t)/H(t)$ при больших временах зависит только от степенного показателя m_2 , который определяется механизмом роста верхних слоев

$$q(t) \rightarrow q_\infty(m_2) = 2m_2 \Gamma(2/m_2) / \Gamma^2(1/m_2) - 1.$$

Значение $q_\infty(m_2)$ быстро убывает с ростом m_2 : $q_\infty(1) = 1, q_\infty(2) = 0.274, q_\infty(3) = 0.132$, что указывает на переход к более гладкой поверхности пленки.

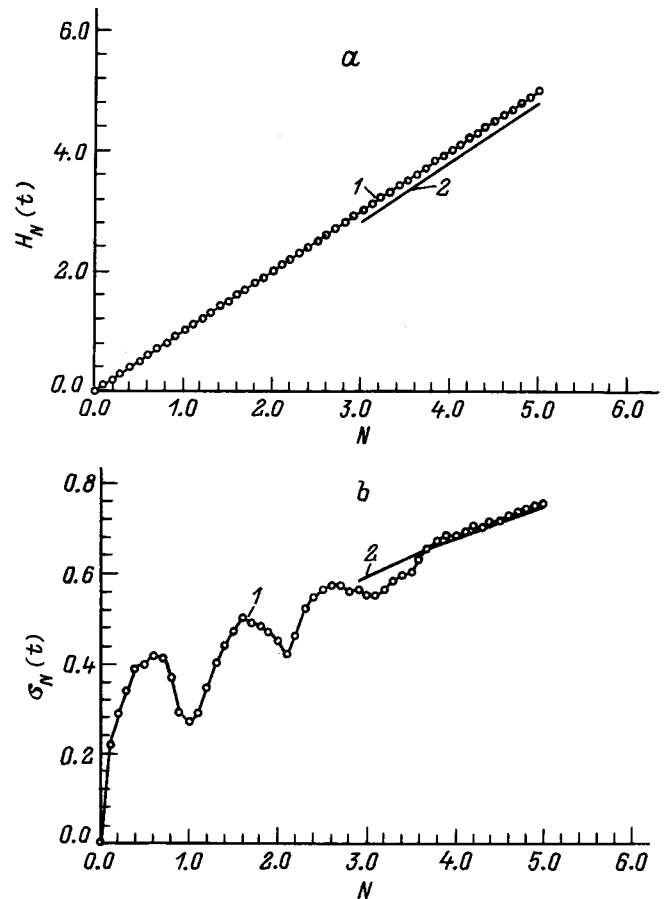


Рис. 2. Зависимости средней высоты (а) и шероховатости (б) от количества осажденных монослоев по данным компьютерного моделирования и временным асимптотикам в аналитической теории. 1 — результаты компьютерного моделирования, 2 — временная асимптотика в аналитической теории.

Динамика средней высоты, шероховатости поверхности и функции распределения по высоте изучалась также с помощью компьютерного моделирования полислоистого роста кристаллической пленки. За основу была взята модель роста Монте-Карло, описанная в [4], примененная для однокомпонентной системы. Локальные энергии связи и константы десорбции и миграции подложки и растущей пленки отличались друг от друга на 3%.

На рис. 1 приводятся результаты компьютерного моделирования в случае отсутствия на поверхности миграции и десорбции (низкие температуры подложки). Для вероятности обнаружения случайной точки поверхности на высоте hi действительно выполняется пуассоновское распределение, что соответствует случаю $q_{\infty}(1) = 1$ аналитической теории. При этом временная зависимость отношения средней высоты к квадрату шероховатости на рис. 1 выходит на насыщение уже после напыления нескольких монослоев, что также хорошо согласуется с результатами теории.

Для случая температур, типичных для МПЭ, наблюдается как линейный рост средней высоты пленки, так и корневая зависимость шероховатости от времени. При этом данные компьютерного моделирования, начиная с некоторых t , практически совпадают с результатами расчета по аналитической теории при $m_2 = 3$ (рис. 2, *a, b*). Однако на начальном этапе на корневую зависимость $\sigma(t)$ накладываются осцилляции, свидетельствующие о механизме роста, близком к послойному.

Полученные результаты демонстрируют возможности получения пленок с заранее заданными параметрами. Это становится особенно важным в связи с проявляющимся в последнее время интересом к эффектам самоорганизации на поверхности полупроводников, в частности к эффекту спонтанного образования квантовых точек и квантовых проволок при МПЭ рассогласованных по параметру постоянной решетки полупроводников [5,6]. Несмотря на очевидные экспериментальные достижения, до сих пор до конца не выяснены механизмы роста подобных структур. Проведенное теоретическое исследование роста пленок показывает, что кинетика формирования слоев существенно влияет на морфологию поверхности.

Данная работа была частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований в рамках гранта № 95-02-05084-а и научной программой "Физика твердотельных наноструктур".

Список литературы

- [1] *Kashchiev D.* // J. Cryst. Growth. 1977. Vol. 40. P. 29–46.
- [2] *Колмогоров А.Н.* // Изв. АН СССР. Сер. мат. 1937. Т. 3. С. 355–367.
- [3] *Dubrovskii V.G.* // Phys. St. Sol. (b). 1992. Vol. 171. P. 345–356.
- [4] *Филаретов А.Г., Цырлин Г.Э.* // ФТТ. 1991. Т. 33. С. 1329–1336.
- [5] *Tersoff J., Tromp R.M.* // Phys. Rev. Lett. 1993. Vol. 70. P. 2782–2785.
- [6] *Cirlin G.E., Guryanov G.M., Golubok A.O.* et al. // Appl. Phys. Lett. 1995. Vol. 67. P. 97–99.