

РОСТ И УСТОЙЧИВОСТЬ ОСТРОВКА НОВОЙ ФАЗЫ ПРИ ОСАЖДЕНИИ ВЕЩЕСТВА НА ПОВЕРХНОСТИ КРИСТАЛЛА

А.В.Коропов, канд.физ.-мат.наук, доцент

*Институт прикладной физики Национальной академии наук Украины,
ул. Петропавловская, 58, г. Сумы, 40030*

E-mail: ipfmail@ipfcentr.sumy.ua

В статье рассмотрен диффузионный рост двумерного островка новой фазы на поверхности кристалла. Проанализирована устойчивость роста островка относительно малых возмущений его формы с учетом граничной кинетики адатомов на границе островка. Найдены пороговые радиусы островка, выше которых нарастают амплитуда искажения формы и относительная деформация формы островка.

ВВЕДЕНИЕ

Хорошо известно [1-9], что на начальном этапе осаждения сплошных пленок во многих случаях формируются островковые структуры. Так, в системах, характеризующихся достаточно слабым взаимодействием, пленка-подложка (например, металлы на диэлектрических и некоторых полупроводниковых кристаллах [2], металлы на аморфных подложках [3], металлы на кристаллических органических подложках) пленки растут по островковому механизму, т.е. путем зарождения и последующего роста островков новой фазы. Такой механизм роста пленок называется также механизмом Фольмера-Вебера [1,2,7]. Существенно, что при механизме роста Фольмера-Вебера островковые пленки определяют структурные характеристики образующихся сплошных пленок и их структурно-чувствительные свойства [2,4,5].

Островковые структуры, кроме того, возникают при росте пленок по механизму Странского-Крастанова [7,10]. В этом режиме послойный рост пленки, начиная с некоторой критической толщины (обычно равной 2-5 монослоев), сменяется образованием когерентных упругонапряженных трехмерных островков (островков, не содержащих дислокаций несоответствия). Это позволяет «сбросить» значительную часть упругой энергии растущего плоского слоя, возникающей вследствие рассогласования параметров решетки осаждаемого вещества и подложки [7]. Таким путем практически создаются плотные упорядоченные массивы квантовых точек полупроводников InAs/GaAs(001), Ge/Si(001), InGaAs/GaAs, CdSe/ZnSe и др. с характерными размерами $\sim 1 - 100$ нм и слоевой плотностью $\sim 10^{10} - 5 \cdot 10^{11}$ см⁻² (см., например, [10-14]).

Отметим еще, что островковые структуры могут возникать в результате распада достаточно толстых сплошных пленок, который обусловлен напряжениями, имеющимися в пленке и приповерхностном слое подложки [15]. В связи со сказанным выше (а также в связи с возможностью экспериментальных исследований *in situ* и многообразием механизмов переноса на поверхности кристалла) рост островков и процессы переноса в островковых пленках традиционно вызывают значительный интерес [15,16].

В настоящей работе теоретически рассматривается диффузионный рост одиночного (уединенного) островка новой фазы на поверхности кристалла с учетом граничной кинетики адатомов, а также устойчивость островка в процессе его диффузионного роста.

ОСНОВНЫЕ СООТНОШЕНИЯ

Уравнение диффузии адсорбированных атомов (адатомов) вокруг островка с учетом как испарения, так и конденсации атомов на поверхности кристалла запишем в виде [16]:

$$\frac{\partial n_S}{\partial t} = D_S \Delta n_S + \alpha I \left(1 - \frac{n_S}{N} \right) - \frac{n_S}{\tau_S}. \quad (1)$$

Здесь n_S - двумерная плотность адатомов на поверхности кристалла; t - время; D_S - коэффициент диффузии адатомов; $\Delta \equiv \nabla^2$ - двумерный оператор Лапласа; $N (N \gg n_S)$ - плотность адатомов в полностью заполненном монослое (плотность позиций для адсорбции на поверхности кристалла); τ_S - среднее время жизни адатомов до испарения с поверхности; I - внешний поток конденсации атомов на поверхность кристалла; α - вероятность конденсации атома из потока I в свободной позиции; множитель $(1 - n_S/N)$ при αI - вероятность того, что падающий на поверхность атом попадает в свободную, а не занятую позицию.

Как и в работах [2,16-20], будем рассматривать плоский цилиндрический островок с высотой h . Такой островок, по существу, является двумерным кристаллом [1,21], изотропным в плоскости подложки.

Граничные условия к уравнению (1) в случае неискаженного островка цилиндрической формы берем такими [16,22]:

$$D_S \left. \frac{\partial n_S}{\partial r} \right|_{r=R} = \beta_S \{ n_S(R) - n_{SR} \}; \quad n_S|_{r \rightarrow \infty} \rightarrow \bar{n}_S, \quad (2)$$

Здесь r - расстояние от центра островка вдоль поверхности подложки (кристалла); $R = R(t)$ - радиус островка; n_{SR} - термодинамически равновесное значение плотности адатомов вблизи границы островка ($r = R$); β_S - граничный кинетический коэффициент, характеризующий скорость «встраивания» адатомов в островок. Для величины n_{SR} имеет место термодинамическое выражение

$$n_{SR} = n_{S\infty} e^{\Gamma_s/R}, \quad (3)$$

где $n_{S\infty}$ - значение n_{SR} вблизи плоской границы конденсированной фазы на поверхности кристалла (при $R \rightarrow \infty$); $\Gamma_s \equiv \sigma w/kT$; σ - удельная поверхностная энергия боковой поверхности островка; w - объем, занимаемый атомом в островке; k - постоянная Больцмана; T - температура. Считается, что поверхностная энергия σ и кинетический коэффициент β_S изотропны.

Плотность \bar{n}_S во втором из граничных условий (2) определяется условием стационарности при $r \rightarrow \infty$, т.е. равенством потоков испарения и конденсации адатомов в уравнении (1) вдали от островка:

$$\alpha I \left(1 - \frac{\bar{n}_S}{N} \right) = \frac{\bar{n}_S}{\tau_S}, \quad (4)$$

откуда

$$\bar{n}_S = \frac{\alpha I \tau_S}{1 + \alpha I \tau_S / N} \approx \alpha I \tau_S \ll N. \quad (5)$$

Далее будем считать, что двумерный газ адатомов пересыщен ($\bar{n}_S > n_{S\infty}$).

В квазистационарном приближении ($\partial n_S / \partial t = 0$) уравнение диффузии адатомов (1) примет вид

$$\lambda_S^2 \Delta n_S - n_S + \bar{n}_S = 0, \quad (6)$$

где $\lambda_S^2 \equiv D_S \tau_S (1 + \alpha I \tau_S / N)^{-1} \approx D_S \tau_S$ - квадрат характерной диффузионной длины задачи, а значение \bar{n}_S дается формулой (5). Пределы применимости квазистационарного приближения обсуждаются в Приложении.

Решение уравнения (6) с граничными условиями (2) дает распределение плотности адатомов вокруг неискаженного островка цилиндрической формы:

$$n_S(r) = \bar{n}_S - (\bar{n}_S - n_{SR}) \frac{K_0(r/\lambda_S)}{F_0(R/\lambda_S)}. \quad (7)$$

Здесь и ниже $K_l(x)$ - функция Макдональда l -го порядка [23]; введенная функция $F_0(x)$ определяется соотношением

$$F_0(x) \equiv K_0(x) + \frac{D_S}{\beta_S \lambda_S} K_1(x). \quad (8)$$

В формулу (7) входит термодинамически равновесный перепад плотности адатомов на островке радиуса R :

$$\Delta n_{SR} \equiv (\bar{n}_S - n_{SR}) = n_{S\infty} (e^{\Gamma_S/R^*} - e^{\Gamma_S/R}), \quad (9)$$

где

$$R^* = \frac{\Gamma_S}{\ln(\bar{n}_S/n_{S\infty})} \quad (10)$$

- критический радиус островка (островок с радиусом $R > R^*$ растет за счет «встраивания» в него адатомов, а островок с радиусом $R < R^*$ уменьшается в размере, испуская со своей границы адатомы).

СКОРОСТЬ ДИФФУЗИОННОГО РОСТА ОСТРОВКА

Скорость роста островка пропорциональна диффузионному потоку адатомов $-D_S \nabla n_S$ на его границе и находится так:

$$\frac{dR}{dt} = \frac{D_S w}{h} \frac{\partial n_S}{\partial r} \Big|_{r=R} = \frac{D_S w}{h \lambda_S} \Delta n_{SR} \frac{K_1(R/\lambda_S)}{F_0(R/\lambda_S)}. \quad (11)$$

Если рост островка лимитируется диффузией адатомов ($D_S/\beta_S \rightarrow 0$), то

$$\frac{dR}{dt} = \frac{D_S w}{h \lambda_S} \Delta n_{SR} \frac{K_1(R/\lambda_S)}{K_0(R/\lambda_S)}. \quad (12)$$

Если же рост островка лимитируется граничной кинетикой встраивания адатомов в островок ($D_S/\beta_S \rightarrow \infty$), то

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\beta_S w}{h} \Delta n_{SR}. \quad (13)$$

Рассмотрим теперь другие предельные случаи общего выражения dR/dt (11). Для островка достаточно большого радиуса ($R \gg \lambda_S$) из формулы (11) получаем

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\bar{D}_S w}{h \lambda_S} \Delta n_{SR}, \quad (14)$$

где

$$\bar{D}_S \equiv \frac{D_S \beta_S \lambda_S}{D_S + \beta_S \lambda_S} \quad (15)$$

- эффективный (с учетом граничной кинетики встраивания) коэффициент диффузии адатомов. Для островка малого радиуса ($R \ll \lambda_S$) имеем

$$\frac{dR}{dt} = \frac{D_S w}{h} \frac{\Delta n_{SR}}{R K_0(R/\lambda_S) + D_S/\beta_S}. \quad (16)$$

Отметим, что случай $R \ll \lambda_S$ представляет интерес для твердотельных поверхностных наноструктур. В этом случае

$$K_0(R/\lambda_S) = -\{\ln(R/2\lambda_S) + \gamma\} + 0\{(R/2\lambda_S)^2 \ln(R/2\lambda_S)\}, \quad (17)$$

где $\gamma = 0,5772\dots$ - постоянная Эйлера [23].

Далее будем считать, что радиус островка превышает критический ($R > R^*$), что соответствует росту, а не уменьшению островка в размере.

Время роста островка от радиуса R_1 до радиуса R_2 в квазистационарном приближении находится следующим образом:

$$\Delta t(R_1, R_2) = \int_{R_1}^{R_2} \frac{dR}{(dR/dt)} = \frac{h}{D_S w} \int_{R_1}^{R_2} \frac{dR}{n'_S(R)}, \quad (18)$$

где $n'_S(R) \equiv \left. \frac{\partial n_S}{\partial r} \right|_{r=R}$. Рассмотрим сначала случай малых пересыщений

двумерного газа адатомов $(\bar{n}_S - n_{S\infty})/n_{S\infty} \ll 1$. В этом случае

$$\frac{\Gamma_S}{R^*} = \frac{\bar{n}_S - n_{S\infty}}{n_{S\infty}} \ll 1, \quad \frac{\Gamma_S}{R} \ll 1. \quad (19)$$

Для островка малого радиуса ($R \ll \lambda_S$), рост которого лимитируется диффузией адатомов ($D_S/\beta_S \rightarrow 0$), формулу (16) с учетом (9) и (19) запишем в виде, аналогичном [24]:

$$\frac{dR}{dt} = \frac{D_S n_{S\infty} \Gamma_S w}{h R K_0(R/\lambda_S)} \left(\frac{1}{R^*} - \frac{1}{R} \right). \quad (20)$$

Считая, что $K_0(R/\lambda_S)$ слабо (логарифмически) зависит от R , из формул (18) и (20) находим

$$\Delta t(R_1, R_2) = t_0 \left\{ \frac{u_2^2 - u_1^2}{2} + (u_2 - u_1) + \ln \left(\frac{u_2 - 1}{u_1 - 1} \right) \right\}, \quad (21)$$

где введены безразмерные начальный и конечный радиусы островка $u_1 = R_1/R^*$; $u_2 = R_2/R^*$, а

$$t_0 \equiv \frac{h R^{*3} K_0(R/\lambda_S)}{D_S n_{S\infty} \Gamma_S w} \quad (22)$$

- характерное время диффузионного изменения размера островка.

Для островка большого радиуса ($R \gg \lambda_S$) в том же случае малых пересыщений

$$\Delta t(R_1, R_2) = t_1 \left\{ (u_2 - u_1) + \ln \left(\frac{u_2 - 1}{u_1 - 1} \right) \right\}, \quad (23)$$

где

$$t_1 \equiv \frac{h R^{*2} \lambda_S}{D_S n_{S\infty} \Gamma_S w}. \quad (24)$$

Если рост островка лимитируется граничной кинетикой встраивания адатомов в островок (R произвольно, пересыщения малы), то формула (23) остается в силе, а в формуле (24) \bar{D}_S/λ_S следует заменить на β_S . В этом случае островок, очевидно, «не чувствует» диффузионную длину адатомов, которая различна для островков малого ($R \ll \lambda_S$) и большого ($R \gg \lambda_S$) радиусов.

Отметим, что в формулах (21), (23) фигурирует слагаемое, пропорциональное $\ln \left(\frac{u_2 - 1}{u_1 - 1} \right)$, т.е. $\Delta t(R_1, R_2)$ имеет логарифмическую расходимость при $R_1 \rightarrow R^*$ ($u_1 \rightarrow 1$). Наличие расходимости связано с тем, что в общем случае скорость $\frac{dR}{dt}$ (формула (11)) пропорциональна Δn_{SR} (выражение (9)) и обращается в нуль при $R = R^*$.

Приведем также времена роста островка в случае больших пересыщений двумерного газа адатомов ($\bar{n}_S \gg n_{SR}$).

1 Островок малого радиуса ($R \ll \lambda_S$), рост которого лимитируется диффузией адатомов ($D_S/\beta_S \rightarrow 0$):

$$\Delta t(R_1, R_2) = \frac{hR^{*2} K_0(R/\lambda_S)}{D_S n_{sw}} \left(\frac{u_2^2 - u_1^2}{2} \right). \quad (25)$$

2 Островок большого радиуса ($R \gg \lambda_S$):

$$\Delta t(R_1, R_2) = \frac{hR^* \lambda_S}{D_S n_{sw}} (u_2 - u_1). \quad (26)$$

3 Рост островка лимитируется граничной кинетикой ($D_S/\beta_S \rightarrow \infty$), R произвольно:

$$\Delta t(R_1, R_2) = \frac{hR^*}{\beta_S n_{sw}} (u_2 - u_1). \quad (27)$$

Отметим, что в случаях (26), (27) островок растет с постоянной скоростью $\frac{dR}{dt} = const$.

ЛИНЕЙНЫЙ АНАЛИЗ УСТОЙЧИВОСТИ ФОРМЫ ОСТРОВКА

Проведем анализ устойчивости цилиндрической формы островка в процессе его роста. Анализ такого типа выполняется, как правило, в задачах с движущимся фронтом фазового (например, структурного) или химического превращения. Это, прежде всего, задачи устойчивости различных форм роста кристаллов при кристаллизации из растворов или расплавов [1,25-27], в частности, задача устойчивости стационарного роста иглообразного двумерного дендрита в пределе малой анизотропии поверхностной энергии [28]. Далее, это задачи устойчивости теории горения в приближении узкой зоны реакции [29,30], близкая к ним по духу задача о распространении фронта фазового превращения при распаде конфигурационно замороженных метастабильных состояний с существенным тепловыделением на фронте [31] и некоторые другие вопросы (например, [32-34]).

Считая возмущение цилиндрической формы островка малым, представим его как суперпозицию круговых гармоник $e^{il\varphi}$ ($l \geq 1$):

$$R(\varphi, t) = R(t) + \sum_{l \geq 1} \delta_l(t) e^{il\varphi}. \quad (28)$$

Здесь $R(\varphi, t)$ - вид возмущенной границы островка в полярной системе координат с началом в центре островка; l - номер гармоники; δ_l - малая амплитуда возмущения, соответствующего l -ой гармонике ($\delta_l \ll R$); φ - полярный угол. В записи (28) мы пренебрегаем искажениями формы островка $\sim e^{iqz}$ вдоль оси z , перпендикулярной плоскости подложки. Такое пренебрежение предполагает, что высота островка h , во всяком случае, значительно меньше его радиуса R ($h \ll R$) и заведомо оправдано для островков моноатомной высоты, наблюдаемых

экспериментально [21,35,36]. Ограничиваясь только линейным анализом устойчивости, в дальнейших формулах члены, содержащие $\delta_l/R \ll 1$ в степени выше первой, будем опускать. Кроме того, для простоты будем рассматривать возмущение формы островка, описываемое одной круговой гармоникой $e^{il\varphi}$, а не их суперпозицией $\sum_l \delta_l e^{il\varphi}$.

Граничное условие, аналогичное первому из условий (2), следует записать на истинной, т.е. возмущенной границе островка $R(\varphi, t) = R(t) + \delta_l(t)e^{il\varphi}$. Это условие имеет вид

$$D_S \frac{\partial n_S}{\partial r} \Big|_B = \beta_S (n_S - n_{S\infty} e^{\Gamma_S K})_B, \quad (29)$$

где символ "B" обозначает границу; K - кривизна границы островка:

$$K = \frac{1}{R} + (l^2 - 1) \frac{\delta_l}{R^2} e^{il\varphi}. \quad (30)$$

Аналогично работам [32-34] введем v_l - инкремент амплитуды возмущения формы островка $\delta_l(t)$:

$$v_l \equiv \frac{d}{dt} \ln \{ \delta_l(t) \} = \frac{\dot{\delta}_l}{\delta_l}. \quad (31)$$

Явное выражение для v_l при произвольных значениях $a \equiv R/\lambda_S$ находится в результате решения квазистационарного уравнения диффузии адатомов (6) с граничным условием (29) на возмущенной границе островка и условием $n_S \rightarrow \bar{n}_S$ при $r \rightarrow \infty$. Это выражение таково:

$$v_l = \frac{D_S w}{h \lambda_S} \left\{ G_S \phi_l(a) - (l^2 - 1) \frac{\Gamma_S n_{SR}}{R^2} \frac{|K_1'(a)|}{F_l(a)} \right\}. \quad (32)$$

Здесь

$$G_S \equiv \frac{\partial n_S}{\partial r} \Big|_{r=R} = \frac{\Delta n_{SR}}{\lambda_S} \frac{K_1(a)}{F_0(a)} \quad (33)$$

- величина градиента плотности адатомов на границе неискаженного островка;

$$F_l(a) \equiv K_l(a) + \frac{D_S}{\beta_S \lambda_S} |K_l'(a)|, \quad (34)$$

$$\phi_l(a) \equiv \frac{F_1(a)}{K_1(a)} \frac{|K_l'(a)|}{F_l(a)} - \frac{|K_1'(a)|}{K_1(a)} \quad (35)$$

- функции радиуса островка a , возникающие при анализе его устойчивости.

Введем также μ_l - инкремент амплитуды относительной деформации формы островка:

$$\mu_l \equiv \frac{d}{dt} \ln \left\{ \frac{\delta_l(t)}{R(t)} \right\} = \frac{\dot{\delta}_l}{\delta_l} - \frac{\dot{R}}{R}. \quad (36)$$

Явное выражение для μ_l при произвольных a имеет вид:

$$\mu_l = \frac{D_S w}{h \lambda_S} \left\{ G_S \left[\phi_l(a) - \frac{1}{a} \right] - (l^2 - 1) \frac{\Gamma_S n_{SR}}{R^2} \frac{|K'_l(a)|}{F_l(a)} \right\}. \quad (37)$$

Выпишем и проанализируем формулы (32), (37) для случая островка малого радиуса ($R \ll \lambda_S$):

$$v_l = \frac{(l-1)D_S w}{hR} \frac{1}{1 + lD_S/\beta_S R} \left\{ G_S - l(l+1) \frac{\Gamma_S n_{SR}}{R^2} \right\}, \quad (38)$$

$$\mu_l = \frac{D_S w}{hR} \frac{1}{1 + lD_S/\beta_S R} \left\{ \left[l \left(1 - \frac{D_S}{\beta_S R} \right) - 2 \right] G_S - l(l^2 - 1) \frac{\Gamma_S n_{SR}}{R^2} \right\}, \quad (39)$$

$$G_S = \frac{\Delta n_{SR}}{RK_0(R/\lambda_S) + D_S/\beta_S}. \quad (40)$$

Пороговый радиус островка $R_{C1}(l)$, выше которого $\delta_l(t)$ нарастает ($v_l > 0$), определяется уравнением

$$G_S - l(l+1) \frac{\Gamma_S n_{SR}}{R^2} = 0. \quad (41)$$

В случае малых пересыщений двумерного газа адатомов (19) в пренебрежении зависимостью функции $K_0(R/\lambda_S)$ от радиуса островка R физическое решение уравнения (41) имеет вид

$$R_{C1}(l) = \frac{1}{2} l(l+1) K_0 R^* + \left\{ \left[\frac{1}{2} l(l+1) K_0 \right]^2 + l(l+1) \frac{D_S}{\beta_S R^*} \right\}^{1/2} R^*, \quad (42)$$

где

$$K_0 \equiv K_0(R/\lambda_S). \quad (43)$$

Поскольку $R_{C1}(l)$ (формула (42)) возрастает с ростом l , неустойчивость цилиндрической формы островка по мере его роста впервые наступает на второй гармонике (при $l = 2$). Соответствующий пороговый радиус равен

$$R_{C1}(2) = 3K_0 R^* + \left\{ (3K_0)^2 + 6D_S/\beta_S R^* \right\}^{1/2} R^*. \quad (44)$$

Если рост островка лимитируется диффузией адатомов ($D_S/\beta_S \rightarrow 0$), то формулы (42) и (44) принимают следующий более простой вид:

$$R_{C1}(l) = l(l+1)K_0(R/\lambda_S)R^*, \quad (45)$$

$$R_{C1}(2) = 6K_0(R/\lambda_S)R^*. \quad (46)$$

В случае предельно больших пересыщений

$$\frac{\Gamma_S}{R^*} = \ln\left(\frac{\bar{n}_S}{n_{S\infty}}\right) \gg 1, \quad (47)$$

аналогично [32] можно показать, что

$$R_{C1}(l) = R^* \left(1 + \chi_l \frac{R^*}{\Gamma_S}\right), \quad (48)$$

где

$$\chi_l = \ln\left\{l(l+1)\left(\Gamma_S/R^*\right)\left(K_0^* + D_S/\beta_S R^*\right)\right\}, \quad (49)$$

$$K_0^* \equiv K_0(R^*/\lambda_S). \quad (50)$$

Для случая малых пересыщений (19) приведем также пороговый радиус $R_{C2}(l)$, выше которого нарастает амплитуда относительной деформации формы островка δ_l/R ($\mu_l > 0$):

$$R_{C2}(l) = U_l R^* + \left\{U_l^2 + V_l\right\}^{1/2} R^*, \quad (51)$$

где

$$U_l \equiv l \frac{(l^2 - 1)K_0 + D_S/\beta_S R^*}{2(l-2)}, \quad (52)$$

$$V_l \equiv \frac{l(l^2 - 1)}{(l-2)} \left(\frac{D_S}{\beta_S R^*}\right). \quad (53)$$

Формула (51), как и формула (42), получена в пренебрежении зависимостью K_0 от R . Анализ показывает, что нарастание амплитуды относительной деформации формы островка δ_l/R наступает, начиная с третьей гармоники ($l = 3$). Соответствующий пороговый радиус равен

$$R_{C2}(3) = \left\{12K_0 + \frac{3}{2} \frac{D_S}{\beta_S R^*}\right\} R^* + \left\{\left(12K_0 + \frac{3}{2} \frac{D_S}{\beta_S R^*}\right)^2 + 24 \frac{D_S}{\beta_S R^*}\right\}^{1/2} R^*. \quad (54)$$

Если рост островка лимитируется диффузией адатомов ($D_S/\beta_S \rightarrow 0$), формулы (51) и (54) принимают вид

$$R_{C2}(l) = \frac{l(l^2 - 1)}{(l-2)} K_0(R/\lambda_S) R^*, \quad (55)$$

$$R_{C2}(3) = 24K_0(R/\lambda_S) R^*. \quad (56)$$

КАЧЕСТВЕННЫЙ АНАЛИЗ УСТОЙЧИВОСТИ ФОРМЫ ОСТРОВКА

Приведем качественный анализ устойчивости формы островка и сопоставим его со строгим линейным анализом, приведенным выше. Рассмотрим возмущение формы островка, соответствующее второй гармонике ($l = 2$), как это показано на рис.1. Длина волны такого возмущения

$$\lambda_2 = \frac{2\pi R}{2} = \pi R, \quad (57)$$

а кривизна границы островка (см. формулу(30)):

$$K = \frac{1}{R} + \frac{3\delta_2}{R^2} e^{2i\varphi}. \quad (58)$$

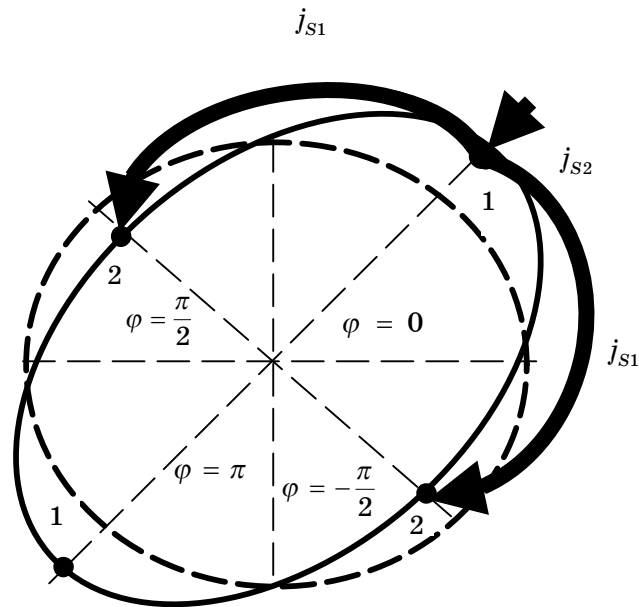


Рисунок 1 – Механизм неустойчивости формы островка, связанный с анизотропией диффузионных потоков на подложке. Жирной сплошной линией показана форма островка, соответствующая возмущению вида $\delta_2 e^{2i\varphi}$ ($l = 2$), жирной штриховой линией – невозмущенная (круговая) форма островка; 1- «горбы», 2 – «впадины» возмущения; φ – полярный угол ($-\pi < \varphi \leq \pi$). Смысл диффузионных потоков j_{S1} и j_{S2} объясняется в тексте

Максимальное и минимальное значения кривизны отвечают «горбу» и «впадине» возмущения соответственно (см. рис.1):

$$K_{\max} = \frac{1}{R} + \frac{3\delta_2}{R^2}; \quad K_{\min} = \frac{1}{R} - \frac{3\delta_2}{R^2}. \quad (59)$$

Далее будем рассматривать для простоты случай малых пересыщений двумерного газа адатомов (19) и считать, что рост островка лимитируется диффузией адатомов ($D_S/\beta_S \rightarrow 0$). Тогда плотности адатомов вблизи

«горба» и «впадины» возмущения соответственно равны (см. формулу (29)):

$$n_{S \max} = n_{S\infty} + n_{S\infty} \Gamma_S \left(\frac{1}{R} + \frac{3\delta_2}{R^2} \right), \quad n_{S \min} = n_{S\infty} + n_{S\infty} \Gamma_S \left(\frac{1}{R} - \frac{3\delta_2}{R^2} \right). \quad (60)$$

Перепад плотности адатомов между «горбом» и «впадиной»

$$\Delta n_S \equiv n_{S \max} - n_{S \min} = 6n_{S\infty} \Gamma_S \left(\frac{\delta_2}{R^2} \right) \quad (61)$$

осуществляется на расстоянии $\lambda_2/2 = \pi R/2 \approx 3R/2$. Вследствие перепада плотности Δn_S (формула (61)) возникает диффузионный поток адатомов j_{S1} , который направлен от «горба» к «впадине» возмущения и стремится загладить (выровнять) возмущение:

$$j_{S1} \approx D_S \frac{\Delta n_S}{(3R/2)} = \frac{4D_S n_{S\infty} \Gamma_S}{R^2} \left(\frac{\delta_2}{R} \right). \quad (62)$$

При рассматриваемом возмущении формы островка помимо диффузионного потока j_{S1} (формула (62)) возникает дополнительный диффузионный поток j_{S2} , идущий на «горб» возмущения за счет его продвижения в область повышенных плотностей адатомов. Этот диффузионный поток можно оценить так:

$$j_{S2} \approx D_S G_S \left(\frac{\delta_2}{R} \right) = \frac{D_S \Delta n_{SR}}{RK_0(R/\lambda_S)} \left(\frac{\delta_2}{R} \right), \quad (63)$$

где G_S - величина градиента плотности адатомов на границе неискаженного островка (формула (40), записанная при $D_S/\beta_S \rightarrow 0$). В случае малых пересыщений двумерного газа адатомов (19), как следует из формулы (9),

$$\Delta n_{SR} \equiv \bar{n}_S - n_{SR} = n_{S\infty} \Gamma_S \left(\frac{1}{R^*} - \frac{1}{R} \right). \quad (64)$$

В качестве критерия неустойчивости круговой формы островка возьмем неравенство (см. рис.1):

$$j_{S2} > 2j_{S1}, \quad (65)$$

при выполнении которого амплитуда возмущения формы островка $\delta_2(t)$ нарастает. Подстановка выражений (62)-(64) в неравенство (65) дает

$$R > 8K_0(R/\lambda_S)R^*, \quad (66)$$

в то время как строгий линейный анализ устойчивости дает значение $R_{C1}(2) = 6K_0(R/\lambda_S)R^*$ (формула (46)), выше которого $\delta_2(t)$ нарастает.

ВЫВОДЫ

1 В различных предельных случаях при произвольных пересыщениях двумерного газа адатомов найдена скорость роста цилиндрического островка новой фазы $\frac{dR}{dt}$ (формулы (11)-(16)).

Время роста островка от радиуса R_1 до радиуса R_2 $\Delta t(R_1, R_2)$ (формула (18)) найдено как в случае малых пересыщений двумерного газа адатомов (формулы (21)-(24)), так и в случае больших пересыщений (формулы (25)-(27)).

2 Проанализирована устойчивость растущего цилиндрического островка относительно произвольных малых возмущений его формы (формула (28)) с учетом граничной кинетики адатомов на границе островка (граничное условие (29)). Аналогичный анализ для двумерной полости (поры) в монослое адатомов был проведен в [33], однако в случае цилиндрического островка появляется дополнительный параметр – высота островка h . Обсуждаемые далее конкретные результаты (пункты 3-6) получены в случае малых пересыщений двумерного газа адатомов (19) для островка достаточно малого радиуса ($R \ll \lambda_S$). Последнее обстоятельство актуально для твердотельных поверхностных наноструктур.

3 Найдены пороговый радиус островка $R_{C1}(l)$, выше которого нарастает амплитуда возмущения формы островка $\delta_l(t)$ (формула (42)) и пороговый радиус $R_{C2}(l)$, выше которого нарастает амплитуда относительной деформации формы островка δ_l/R (формулы (51)-(53)).

4 Неустойчивость формы островка впервые наступает на второй гармонике ($l = 2$), соответствующий пороговый радиус $R_{C1}(2)$ дается формулой (44). Нарастание же относительной деформации формы островка δ_l/R начинается на третьей гармонике ($l = 3$); $R_{C2}(3)$ дается формулой (54).

5 Как следует из формул (42), (51)-(53), возрастание роли граничной кинетики в переносе адатомов к островку (рост отношения D_S/β_S) приводит к увеличению пороговых радиусов $R_{C1}(l)$ и $R_{C2}(l)$.

6 В том случае, когда рост островка лимитируется диффузией адатомов ($D_S/\beta_S \rightarrow 0$), проведенный качественный анализ дает для $R_{C1}(2)$ значение $8K_0(R/\lambda_S)R^*$ (см. неравенство (66)), в то время как строгий линейный анализ дает $R_{C1}(2) = 6K_0(R/\lambda_S)R^*$ (формула (46)).

7 В случае предельно больших пересыщений двумерного газа адатомов (47) пороговый радиус $R_{C1}(l)$ дается формулами (48)-(50). В этом случае радиус $R_{C1}(l)$ близок к критическому R^* , а разность $(R_{C1}(l) - R^*)$ слабо (логарифмически) зависит как от l , так и от D_S/β_S .

ПРИЛОЖЕНИЕ

Обсудим пределы применимости квазистационарного приближения в рассматриваемой диффузионной задаче на примере островка малого радиуса ($R \ll \lambda_S$), предполагая, что его двумерный рост лимитируется диффузией (а не встраиванием) адатомов. Для такого островка, как это следует из формулы (16),

$$\frac{dR}{dt} = \frac{D_S w}{h} \frac{\Delta n_{SR}}{RK_0(R/\lambda_S)}. \quad (67)$$

Время роста островка до размера $\sim R$ определяется величиной

$$\tau_R \sim \frac{R}{(dR/dt)} \sim \frac{hR^2 K_0(R/\lambda_S)}{D_S \Delta n_{SR} w}, \quad (68)$$

а характерное время установления стационарного диффузионного потока адатомов на островок есть просто

$$\tau_D \sim \frac{R^2}{D_S}. \quad (69)$$

Отношение характерных времен τ_D/τ_R очень мало:

$$\frac{\tau_D}{\tau_R} \sim \frac{\Delta n_{SR} w}{hK_0(R/\lambda_S)} \sim \frac{wN}{hK_0(R/\lambda_S)} \left(\frac{\Delta n_{SR}}{N} \right) \ll 1. \quad (70)$$

В самом деле, полагая для грубой оценки $N \sim 1/a_0^2$; $w \sim a_0^3$ (a_0 - параметр решетки) и учитывая, что $(\Delta n_{SR}/N) \ll 1$, $(a_0/h) \leq 1$, $K_0(R/\lambda_S) \sim \ln(\lambda_S/R) > 1$, имеем

$$\frac{\tau_D}{\tau_R} \sim \frac{a_0}{hK_0(R/\lambda_S)} \left(\frac{\Delta n_{SR}}{N} \right) \ll 1. \quad (71)$$

Именно в меру малости этого отношения ($\tau_D/\tau_R \ll 1$) поле плотности адатомов при заданном радиусе островка R успевает релаксировать к некоторому стационарному (зависящему только от R) распределению, т.е. справедливо квазистационарное приближение.

Автор признателен чл.-корр. НАН Украины, проф. П.И.Фомину и чл.-корр. НАН Украины, проф. В.В.Слезову за поддержку тематики данной работы.

SUMMARY

GROWTH AND STABILITY OF AN ISLAND-SHAPED NEW PHASE DEPOSITED ON THE CRYSTAL SURFACE

A.V.Koropov

Applied Physics Institute, 58, Petropavlovskaya St., 40030, Sumy, Ukraine

The paper discusses the diffusion-induced growth of a two-dimensional island of a new phase on the crystal surface. The stability of the island growth is analyzed for minor distortions of the island shape taking into account the boundary kinetics of adatoms at the island boundary. Critical radii of the island were found for the distorted island amplitude and strain to increase.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Чернов А.А. Процессы кристаллизации // Современная кристаллография / Под ред. Б.К.Вайнштейна. - М.: Наука, 1980. -Т.3. - С.7-232.
2. Иевлев В.М., Трусов Л.И., Холмянский В.А. Структурные превращения в тонких пленках. - М.: Металлургия, 1982. - 248 с.
3. Жданов Гл.С. Кинетика роста островков конденсированной фазы //ФТТ. - 1984. - Т.26, Вып.10. - С.2937-2942.
4. Коропов А.В., Сагалович В.В. Диффузионный рост островковых пленок в среде инертного газа // Поверхность. Физика, химия, механика. - 1987. - №6. - С.50-55.
5. Коропов А.В., Сагалович В.В. Диффузионный рост островковых пленок в среде инертного газа с источниками атомов // Поверхность. Физика, химия, механика. - 1989. - №5. - С.55-63.
6. Трофимов В.И. Статистические эффекты в тонких пленках: Автореферат дис... д-ра физ.-мат.наук: 01.04.07. - Харьков: ХГУ, 1992. - 33 с.
7. Shchukin V.A., Bimberg D. Spontaneous ordering of nanostructures on crystal surfaces //Rev. Mod.Phys. - 1999. - Vol.71, №4. - Pp.1125-1171.

8. Перекрестов В.И., Коропов А.В., Кравченко С.Н. Образование островковых структур при осаждении слабопересыщенных паров алюминия // ФТТ. – 2002. – Т.44, Вып.6. – С.1131-1136.
9. Перекрестов В.И., Косминская Ю.А., Кравченко С.Н. Закономерности структурообразования конденсатов слабопересыщенных паров Cu, Ti, Al и Cr // Металлофиз. новейшие технол. – 2003. – Т.25, №6. – С.725-735.
10. Карпович И.А. Квантовая инженерия: самоорганизованные квантовые точки // Соросовский образоват. журн. – 2001. – Т.7, №11. – С.102-108.
11. Бахтизин Р.З., Хасегава Ю., Щуе К.-К., Сакурай Т. Атомные структуры двумерных напряженных эпитаксиальных слоев InAs на поверхности GaAs(001): in situ наблюдение роста квантовых точек // ЖЭТФ. – 2000. – Т.118, Вып.5(11). – С.1153-1166.
12. Двуреченский А.В., Якимов А.И. Гетероструктуры Ge/Si с квантовыми точками // УФН. – 2001. – Т.171, №12. – С.1371-1373.
13. Дадыкин А.А., Козырев Ю.Н., Наумовец А.Г. Полевая электронная эмиссия из Ge-Si наноструктур с квантовыми точками // Письма в ЖЭТФ. – 2002. – Т.76, Вып.7. – С.550-552.
14. Днепровский В.С., Жуков Е.А., Шалыгина О.А. и др. Захват и рекомбинация носителей в полупроводниковых квантовых точках CdSe/ZnSe // ЖЭТФ. – 2004. – Т.125, Вып.1. – С.173-180.
15. Гегузин Я.Е., Кагановский Ю.С. Диффузионные процессы на поверхности кристалла. – М.: Энергоатомиздат, 1984. – 128с.
16. Коропов А.В. Кинетическая теория процессов диффузионного распада и роста в островковых пленках: Дис... канд.физ.-мат.наук: 01.04.07. - Харьков: ХФТИ, 1989.- 131с.
17. Кацнельсон А.А., Олемской А.И. Микроскопическая теория неоднородных структур. М.: Изд-во Моск. ун-та, 1987. – 336с.
18. Коропов А.В., Сагалович В.В. Рост островковых структур и критерии образования сплошных пленок. I. Слабые источники атомов: Препринт ХФТИ 88-33. – Харьков: ХФТИ, 1988. – 12с.
19. Коропов А.В., Сагалович В.В. Рост островковых структур и критерии образования сплошных пленок. II. Сильные источники атомов: Препринт ХФТИ 88-41. – Харьков: ХФТИ, 1988. – 11с.
20. Коропов А.В., Сагалович В.В. Рост островковых структур и критерии образования сплошных пленок // Поверхность. Физика, химия, механика. – 1990. – №2. – С.17-26.
21. Люксютов И.Ф., Наумовец А.Г., Покровский В.Л. Двумерные кристаллы. – Киев: Наук. думка, 1988. – 220с.
22. Коропов А.В., Остапчук П.Н., Слезов В.В. Диффузионный рост двумерных фаз в ансамблях // ФТТ. – 1991. – Т.33, Вып.10. – С.2835-2844.
23. Абрамович М., Стиган И. Справочник по специальным функциям. – М.: Наука, 1979. – 832с.
24. Slezov V.V. Theory of diffusive decomposition of solid solutions // Physics Reviews. Sov. Sci. Rev. A / Ed. by I.M. Khalatnikov. – 1995. – Vol.17, Part 3. – Pp.1-214.
25. Mullins W.W., Sekerka R.F. Morphological stability of a particle growing by diffusion or heat flow // J. Appl. Phys. – 1963. – Vol. 34, №2. – Pp.323-329.
26. Coriell S.R., Parker R.L. Stability of the shape of a solid cylinder growing in a diffusion field // J. Appl. Phys. – 1965. – Vol.36, №2. – Pp.632-637.
27. Langer J.S. Instabilities and pattern formation in crystal growth // Rev. Mod. Phys. – 1980. – Vol.52, №1. – Pp.1-28.
28. Бренер Е.А., Иорданский С.В., Мельников В.И. Устойчивость роста иглообразного дендрита // ЖЭТФ. – 1988. – Т.94, Вып.12. – С.320-329.
29. Зельдович Я.Б., Баренблатт Г.И., Либрович В.Б., Махвиладзе Г.М. Математическая теория горения и взрыва. – М.: Наука, 1980. – 480с.
30. Алдушин А.П., Каспарян С.Г. Теплодиффузионная неустойчивость стационарной волны горения: Препринт. – Черногловка: Отделение Института химической физики АН СССР, 1978. – 21с.
31. Шкловский В.А. Тепловая неустойчивость фронта фазового превращения при распаде «замороженных» метастабильных состояний // ЖЭТФ. – 1982. – Т.82, Вып.2.-С.536-547.
32. Коропов А.В., Шаповал В.Г. Диффузионный рост двумерной полости в монослое адатомов на поверхности кристалла // Вісник Сумського державного університету. Серія Фізика, математика, механіка. – 2003. – №10(56). – С.5-13.
33. Коропов А.В. Влияние граничной кинетики вакансий на рост и устойчивость двумерной полости в монослое адатомов // Вісник Сумського державного університету. Серія Фізика, математика, механіка. – 2005. – №8(80). – С.78-87.
34. Коропов А.В. Математическая модель роста и устойчивости двумерной полости в монослое адатомов с учетом граничной кинетики // Матеріали одинадцятої Міжнародної наукової конференції імені академіка М.Кравчука (18-20 травня 2006 р., Київ). – Київ: ТОВ «Задруга», 2006. – С.149.
35. Жданов В.П. Элементарные физико-химические процессы на поверхности. – Новосибирск: Наука, Сибирское отделение, 1988. – 320с.
36. Ведула Ю.С., Люксютов И.Ф., Наумовец А.Г., Поплавский В.В. Стабильность межфазной границы и флуктуации плотности в адсорбированной пленке на подложке с дефектами // ФТТ. – 1987. – Т.29, Вып.4. – С.971-976.

Поступила в редакцию 26 октября 2006 г.