

А.В. ДВОРНИЧЕНКО

Сумський державний університет

(Вул. Римського-Корсакова, 2, Суми 40000; e-mail: alina.dvornichenko@ukr.net)

ЕФЕКТИ ЕЛЕКТРОМІГРАЦІЇ ПРИ ЕПІТАКСІАЛЬНОМУ РОСТІ ТОНКИХ ПЛІВОК: МОДЕЛЮВАННЯ МЕТОДОМ ФАЗОВОГО ПОЛЯ

УДК 538.9

У роботі проводиться теоретичне дослідження процесу росту тонких плівок при епітаксії з урахуванням анізотропії поверхневої дифузії адсорбату, індукованої ефектами електроміграції, в рамках теорії фазового поля з використанням процедури числового моделювання. Встановлено вплив коефіцієнта індукованої анізотропної дифузії, пропорційного до напруженості підведеного електричного поля, на динаміку росту товщини плівки та висоти поверхневих структур, морфологію зростаючої поверхні, статистичні властивості поверхневих багатшарових структур адсорбату та розподіл поверхневих структур за висотою.

Ключові слова: метод фазового поля, епітаксіальний ріст, поверхневі структури, електроміграція, числові симуляції, статистичні властивості.

1. Вступ

Процеси формування поверхневих структур при підвищених температурах є результатом самоорганізації адсорбованих атомів. Вони, зазвичай, керуються кінетичними факторами, тобто швидкостями процесів, які протікають на зростаючій поверхні. Одним з цікавих явищ, що впливають на формування морфології поверхні при високих температурах, є електроміграція, яка виникає, коли до підкладки підведено електричний струм [1, 2]. Електроміграція – викликана електричним полем перенесення речовини. Вона являє собою важливу технологічну проблему особливо в областях надійності електронних схем, що широко використовуються у сучасній мікро- та наноелектроніці. Атоми в твердому тілі рухаються за рахунок дифузійних процесів та внаслідок дії сили електронного вітру, що виникає при передачі імпульсу електронами провідності, які розсіюються на іонах в твердому тілі і штовхають іони в напрямку електронного потоку. При наявності рушійної сили процес дифузії в матеріалі стає анізотропним та направленим у напрямку цієї сили. Останнє приводить до чистого потоку атомів в цьому напрямку.

Переважна більшість досліджень з електроміграції почалась з 1970-х років. Такі дослідження

здебільшого проводились експериментально. Було показано, що вплив підведеного до підкладки електричного струму приводить до ефективного нагріву поверхні і, як наслідок, індукований просторово направлений дрейф атомів починає відігравати значну роль у процесах формування поверхневих структур при осадженні [3–6]. Реорганізація сходинкової структури островів адсорбату спостерігалась на кремнієвих підкладках [7, 8]. Сильні ефекти електроміграції проявлялися у процесах еволюції морфології поверхні ванадію [9], та при епітаксіальному рості гетероструктур напівпровідників [10]. Було виявлено, що при невисоких температурах осадження зростання поверхневих структур відбувається за режимом росту Странського–Крастанова [11–14], тоді як при підвищених температурах такі процеси пов'язані з твердим розчиненням шарів осаджуваного матеріалу [15, 16]. Таким чином, ефекти електроміграції, індуковані наявністю різниці потенціалів на протилежних сторонах підкладки, можуть суттєво впливати на динаміку еволюції морфології поверхні при підвищених температурах. Цей ефект може приводити до зміни морфології покриття у порівнянні з ізотропним випадком осадження без наявності зовнішнього поля.

Процеси формування та росту багатшарових поверхневих структур адсорбату при епітаксіальному рості тонких плівок також досліджуються

© А.В. ДВОРНИЧЕНКО, 2021

ISSN 2071-0194. Укр. фіз. журн. 2021. Т. 66, № 5

439

теоретично з використанням декількох методів у рамках схеми багатомасштабного моделювання (див., наприклад, роботу [17]). Використання такого підходу дозволяє якісно описати процеси, що протікають на атомарному рівні [18], на дифузійних часових масштабах [19], процеси формування структур зі сходинками [20] та вивчити динаміку зміни морфології поверхні [21, 22]. На мезоскопічному рівні опису динаміки зміни морфології поверхні широко використовуються підходи, що ґрунтуються на теорії фазового поля. Цю методику було вперше запропоновано авторами [23] для моделювання динаміки росту островів адсорбату при епітаксії та розвинуто у роботі [24]. Подальше узагальнення цього підходу дозволило дослідити вплив флуктуацій поверхневого потоку адсорбату та локальних змін температури поверхні, індукованих процесами адсорбції/десорбції, на динаміку росту поверхні та її морфологію. У роботі [27] було вивчено вплив потоку осадження, енергії взаємодії адсорбату та часу релаксації температури поверхні на статистичні характеристики зростаючої поверхні та поверхневих структур. Проте, ці дослідження проводились з урахуванням ізотропної поверхневої дифузії адсорбату. Теоретичні дослідження ефектів електроміграції при осадженні проводилися здебільшого шляхом вивчення взаємодії між прикладеним електричним полем та ефективним зарядом поверхневих атомів [28–31].

У даній роботі буде розвинено метод фазового поля для опису процесів формування та росту багаточастикових поверхневих структур адсорбату при епітаксимальному рості з урахуванням ефектів електроміграції. При проведенні числового моделювання ефекти направленої дрейфу адатомів буде враховано шляхом введення анізотропної поверхневої дифузії адсорбату. Буде вивчено вплив коефіцієнта індукованої дифузії на динаміку росту поверхні, її морфологію та статистичні властивості.

Роботу побудовано таким чином. У другому розділі буде побудовано математичну модель еволюції концентрації адсорбату та висоти поверхні, що базується на методі фазового поля. Розділ 3 містить інформацію про деталі процедури числового моделювання. У розділі 4 обговорюються результати моделювання. Основні висновки роботи наведено в останньому розділі.

2. Математична модель

У рамках теорії фазового поля будемо досліджувати еволюцію безрозмірної концентрації адсорбату x на підкладці, визначену через відношення кількості адсорбованих атомів (адатомів) N_a до загальної кількості місць для адсорбції N_s у кожній елементарній комірці розміру ℓ : $x = N_a/N_s$; $x \in [0, 1]$. Будемо розглядати процеси гомоепітаксії, коли осаджувана речовина не відрізняється за хімічним складом від речовини підкладки. Просторово-часова еволюція концентрації адсорбату при епітаксимальному рості задається рівнянням реакційно-дифузійного типу у стандартному вигляді:

$$\partial_t x = R(x) - \nabla \mathbf{J}. \quad (1)$$

Тут, перший доданок у правій частині задає реакційну складову та визначається процесами, які протікають на поверхні при осадженні; другий доданок відповідає за поверхневий потік адсорбату. Серед основних реакційних процесів зазвичай виділяють адсорбцію та десорбцію. При епітаксимальному рості адатоми осаджуються з певною швидкістю k_a , пропорційною до потоку осадження. Адсорбовані атоми можуть десорбувати назад до газової фази зі швидкістю k_{d0} , яка визначається ефективним часом життя адатома τ_d та енергією активації десорбції E_{des} у вигляді: $k_{d0} = [\tau_d]^{-1} \exp(-E_{des}/T)$, де T задає температуру осадження в енергетичних одиницях. Оскільки адатоми є мобільними взаємодіючими частинками, то взаємодія адатом-адатом може привести до корекції швидкості десорбції за рахунок потенціалу взаємодії адсорбату $U(\mathbf{r})$ у такому вигляді: $k_d = k_{d0} \exp(U/T)$.

Загальний поверхневий потік адсорбату \mathbf{J} містить звичайний дифузійний потік $(-D\nabla x)$ та потік, пов'язаний із потенціалом взаємодії $U(\mathbf{r})$, який визначає термодинамічну силу $\mathbf{f} = -\nabla(U/T)$, що діє на адсорбовані частинки та індукує потік адатомів $\mathbf{v}x$. Швидкість \mathbf{v} визначається відповідно до співвідношення Айнштайна стандартним чином: $\mathbf{v} = D\mathbf{f}$. Такий індукований взаємодією адсорбату потік можливий лише на $(1-x)$ вільних місць. Коефіцієнт поверхневої дифузії D визначається у стандартний спосіб, $D = a^2\nu \exp(-E_{diff}/T)$, де a – параметр ґратки субстрату, ν – частотний фактор, E_{diff} – енергія активації дифузії, $E_{diff} > E_{des}$.

З метою визначення вигляду потенціалу взаємодії адатомів $U(\mathbf{r})$ скористаємося самоузгодженим підходом, виражаючи $U(\mathbf{r})$ через бінарний притягуючий потенціал для двох адсорбованих частинок $u(r)$ у вигляді: $U(x(\mathbf{r})) = -\int u(\mathbf{r}-\mathbf{r}')x(\mathbf{r}')d\mathbf{r}'$. Аналогічний підхід широко використовувався у теоретичних дослідженнях процесів епітаксiального росту [25–27], просторового упорядкування при структуруванні поверхні при конденсації [32–34], радіаційно-стимульованому структуруванні дефектів [35, 36], та ін. У рамках такого підходу енергія взаємодії адсорбату ϵ визначається інтегралом $\epsilon = \int u(r)dr$, що для потенціалу взаємодії U у першому наближенні дає $U(x(r)) \simeq -\epsilon x(r)$. Таким чином, використовуючи отриманий вираз для потенціалу взаємодії адсорбату та комбiнуючи реакційну й дифузійну складові, рівняння просторово-часової еволюції концентрації адсорбату (1) набуває вигляду:

$$\frac{\partial x}{\partial t} = F - xe^{-\epsilon x} + D_0 [\nabla^2 x - \epsilon \nabla M(x) \nabla x], \quad (2)$$

де безрозмірний час вимірюється в одиницях k_{d0} , уведено безрозмірні параметри $F = k_a/k_{d0}$, $D_0 = D/k_{d0}$, $\epsilon = \epsilon/T$ та використано позначення $M(x) = x(1-x)$. З рівняння (2) видно, що потік, індукований взаємодією адсорбату, є протилежним до звичайного дифузійного потоку.

При дослідженні процесів росту поверхні у рамках теорії фазового поля висота поверхні у певній точці субстрату у кожен момент часу визначається значенням фазового поля (ефективного параметра порядку) $\phi(\mathbf{r}, t)$ [24] в одиницях параметра ґратки a та задає кількість моношарів. Слідуючи роботам [23, 24] рівняння просторово-часової еволюції фазового поля ϕ записується у такому вигляді:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -\frac{\delta \mathcal{H}}{\delta \phi}, \quad \mathcal{H} = \int d\mathbf{r} [\varpi^2 (\nabla \phi)^2 / 2 + H(\phi, x)]. \quad (3)$$

Тут вільна енергія \mathcal{H} визначається густиною H ; параметр ϖ задає безрозмірну константу зв'язку. З метою опису процесів росту багат шарових структур адсорбату з терасами, відповідно до роботи [23], будемо вважати, що локальні стійкі мінімуми параметра порядку відповідають терасам пірамідальних структур, тоді як швидка просторова зміна параметра порядку визначає положення сходки такої структури. Для моделювання процесу формування великої кількості терас у структурах

адсорбату для густини вільної енергії прийемо такий вираз [25]:

$$H(\phi, x) = \frac{1}{2\pi} \cos(2\pi[\phi - \phi_s]) - \lambda x \left(\phi + \frac{1}{2\pi} \sin(2\pi[\phi - \phi_s]) \right), \quad (4)$$

де параметр λ визначає ширину тераси, ϕ_s задає початкове значення висоти поверхні. Таким чином, динаміка формування структур адсорбату при епітаксiальному рості задається системою рівнянь (2), (3) з урахуванням рівняння (4).

Основною метою даної роботи є встановлення впливу ефектів електроміграції, що виникають при підведенні до підкладки зовнішнього електричного поля, на динаміку росту поверхні при осадженні, її морфологію та статистичні характеристики. Підведення електричного поля до підкладки з напрямком, паралельним до підкладки, індукує результуючі зміни у внутрішньому локальному електричному полі, які можуть приводити до появи направленої сили $\mathbf{F}_{el} = eZ\mathbf{E}$. Напруженість цього поля $|\mathbf{E}| = -\Phi/L$ визначається різницею потенціалів Φ та лінійним розміром підкладки L (відстанню між анодом і катодом); e – заряд електрона. Напрямок сили \mathbf{F}_{el} задається ефективною валентністю Z , яка є негативною для більшості металів. Таким чином, адсорбовані атоми рухаються у напрямку, протилежному електричному полю. Для урахування ефектів електроміграції при проведенні числового моделювання будемо вважати, що поверхнева дифузія адатомів узагальнюється урахуванням направленої руху адатомів в одному з напрямків, індукованим електричним полем, з коефіцієнтом дифузії D_{em} . Така анізотропна дифузія у найпростішому випадку задається виразом: $\pm D_{em} \nabla_x x(\mathbf{r})$, де враховано, що електричне поле направлене вздовж напрямку x , а знак \pm визначається взаємним розташуванням катода та анода. Таким чином, загальна система динамічних рівнянь на концентрацію адсорбату $x(\mathbf{r}, t)$ та фазове поле $\phi(\mathbf{r}, t)$, що описує процеси епітаксiального росту пірамідальних структур адсорбату з ефектами електроміграції, приймає такий вигляд:

$$\begin{cases} \frac{\partial x}{\partial t} = F - xe^{-\epsilon x} + \\ + D_0 \nabla M(x) \nabla x + D_{em} \nabla_x x - \frac{1}{2} \frac{\partial \phi}{\partial t}, \\ \frac{\partial \phi}{\partial t} = \varpi^2 \Delta \phi + \sin(\pi \phi) + \lambda x (1 + \cos(\pi \phi)), \end{cases} \quad (5)$$

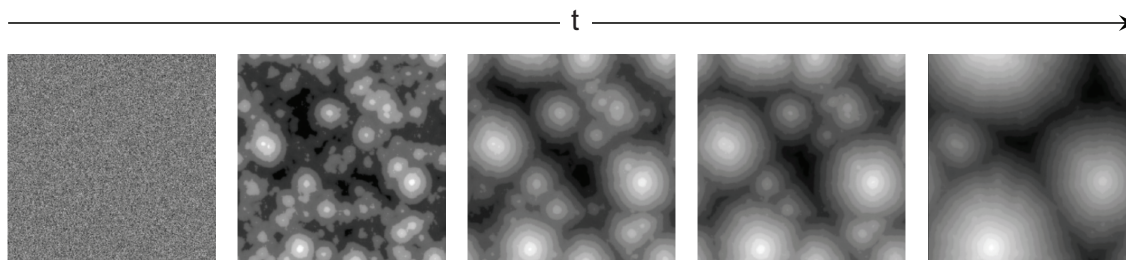


Рис. 1. Типова еволюція морфології поверхні при епітаксiальному рості за умови відсутності ефектів електроміграції

де використано позначення $M(x) = 1 - \varepsilon M(x)$ та для простоти покладено $\phi_s = 0$. У першому рівнянні системи (5) остання складова уведена для опису динаміки концентрації адсорбату на зростаючому шарі. У другому рівнянні системи (5) складова $1 + \cos(\pi\phi)$ означає, що мінімуми вільної енергії \mathcal{H} реалізуються при $\phi = 2n + 1$, незалежно від концентрації адатомів [24].

3. Деталі процедури моделювання

Дослідження процесів росту поверхні при гомоепітаксії проводилось в рамках використання процедури числового моделювання. Для цього система рівнянь (5) чисельно розв'язувалась на двовимірній квадратній ґратці розміру $L \times L$ з лінійним розміром $L = 512\ell$ та періодичними граничними умовами. Розрахунок просторових похідних проводився у r -просторі з використанням стандартної кінцево-різницевої схеми. Для розрахунку похідної $\nabla M(x)\nabla x$ використовувалась така математична конструкція [37]:

$$\begin{aligned} \nabla_{i,j} M_{i,j} \nabla_{i,j} x_{i,j} = & \frac{M_{i+1,j} + M_{i,j}}{2} \frac{x_{i+1,j} - x_{i,j}}{(\Delta x)^2} - \\ & - \frac{M_{i,j} + M_{i-1,j}}{2} \frac{x_{i,j} - x_{i-1,j}}{(\Delta x)^2} + \\ & + \frac{M_{i,j+1} + M_{i,j}}{2} \frac{x_{i,j+1} - x_{i,j}}{(\Delta x)^2} + \\ & - \frac{M_{i,j} + M_{i,j-1}}{2} \frac{x_{i,j} - x_{i,j-1}}{(\Delta x)^2}, \end{aligned} \quad (6)$$

де використано позначення $M_{i,j} = M(x_{i,j})$. Інтегрування системи (5) проводилось з використанням методу Верле з подвійною точністю [37]. Кроки інтегрування за простором та часом виберемо $\Delta x = 1,0$ та $\Delta t = 10^{-3}$, відповідно, які забезпечують стійкість вибраного методу [38]. Моделювання проводилось до значення безрозмірного часу

$t = 10^3$. Таким чином, при проведенні числового моделювання розв'язувалось 524 288 рівнянь 10^6 разів. У ролі початкових умов для фазового поля було вибрано гаусовий розподіл з $\langle \phi(\mathbf{r}, 0) \rangle = 0$ та $\langle (\delta\phi)^2 \rangle = 0,1$, враховуючи ненульову шорсткість підкладки; для поля концентрації адсорбату покладемо $x(\mathbf{r}, 0) = 0$. При проведенні розрахунків зафіксуємо параметри $\varpi^2 = 2$ та $\lambda = 10$, що керують динамікою фазового поля та покладемо $D_0 = 1$. Як було показано у роботах [25, 27], в умовах ізотропної поверхневої дифузії динаміка росту структурованої тонкої плівки та її морфологія визначається, в основному, параметрами F та ε . З метою дослідження впливу анізотропної дифузії з коефіцієнтом D_{em} на динаміку росту поверхні та її статистичні властивості виберемо $F = 2$ та $\varepsilon = 4$, коли в ізотропному випадку при епітаксiальному рості формуються добре виражені пірамідальні структури адсорбату.

4. Результати та їх обговорення

Знімки типової еволюції морфології поверхні (поля $\phi(\mathbf{r})$) у фіксовані моменти часу t при моделюванні процесів росту плівки при гомоепітаксії за відсутності електричного поля біля підкладки (в моделі з ізотропною поверхневою дифузією) наведено на рис. 1. Тут у відтінках сірого кольору наведено значення висоти зростаючої поверхні від мінімального ϕ_{\min} (чорний колір) до максимального ϕ_{\max} (білий колір). З рисунка видно, що упродовж еволюції системи (5) з початкового гаусового розподілу поля висоти поверхні (параметра порядку ϕ) процеси самоорганізації адсорбату приводять до формування відокремлених островів адсорбату. На початкових етапах росту структур адсорбату формуються чітко виражені тераси пірамідальних структур. Ці структури збільшуються з часом: їх

висота та лінійний розмір стають більшими. При тривалому осадженні структури адсорбату починають взаємодіяти так, що більші піраміди поглинають менші. Скінченність ґратки та використання періодичних граничних умов приводить до реалізації однієї пірамідальної структури у границі великого часу осадження. Слід зазначити, що відповідно до побудованої моделі, мінімальне значення фазового поля ϕ_{\min} зростає з часом. Останнє свідчить про те, що упродовж осадження зростає як товщина плівки, так і висота поверхневих багато-шарових структур.

З метою проведення статистичного аналізу процесу росту поверхні при осадженні далі проаналізуємо динаміку дисперсії W^2 фазового поля ϕ (середньоквадратичного відхилення ϕ), асиметрії m_3 та ексцесу m_4 , які визначаються таким чином [39]:

$$W^2(t) = \langle [\phi(\mathbf{r}, t) - \langle \phi(\mathbf{r}, t) \rangle]^2 \rangle,$$

$$m_3 = \frac{\langle (\phi(\mathbf{r}) - \langle \phi(\mathbf{r}) \rangle)^3 \rangle}{(W^2)^{3/2}}, \quad m_4 = \frac{\langle (\phi(\mathbf{r}) - \langle \phi(\mathbf{r}) \rangle)^4 \rangle}{(W^2)^2},$$

де $\langle \phi(\mathbf{r}, t) \rangle$ задає середнє значення висоти поверхні, визначене у кожен момент часу t стандартним чином: $\langle \phi(\mathbf{r}, t) \rangle \equiv L^{-2} \sum_{\mathbf{r}} \phi(\mathbf{r}, t)$. Дисперсія W^2 відіграє роль параметра порядку для процесу структурування. Її зростання з часом свідчить про проходження процесів упорядкування – росту поверхневих структур. Асиметрія m_3 характеризує симетрію розподілу висоти поверхні (фазового поля $\phi(\mathbf{r})$) відносно середнього рівня. Так, позитивне значення величини m_3 визначає, що більшість точок поверхні розташовані над середнім рівнем; при $m_3 < 0$ більшість значень поля висоти поверхні мають значення менші за середнє $\langle \phi(\mathbf{r}) \rangle$. Ексцес m_4 характеризує хаотичність розподілу висоти і описує випадковість (стохастичність) поверхні відносно гаусової поверхні. Для поверхні, що характеризується гаусовим розподілом висот, маємо: $m_3 = 0$ та $m_4 = 3$.

Отримані залежності $W^2(t)$ при різних значеннях коефіцієнта індукованої електроміграцією дифузії D_{em} наведено на рис. 2, а. З рисунка 2, а видно, що на початковій стадії епітаксіального росту (стадія I), незалежно від значення коефіцієнта індукованої дифузії D_{em} , дисперсія W^2 не змінюється з часом, набуваючи значень $\sim 10^{-3}$. На

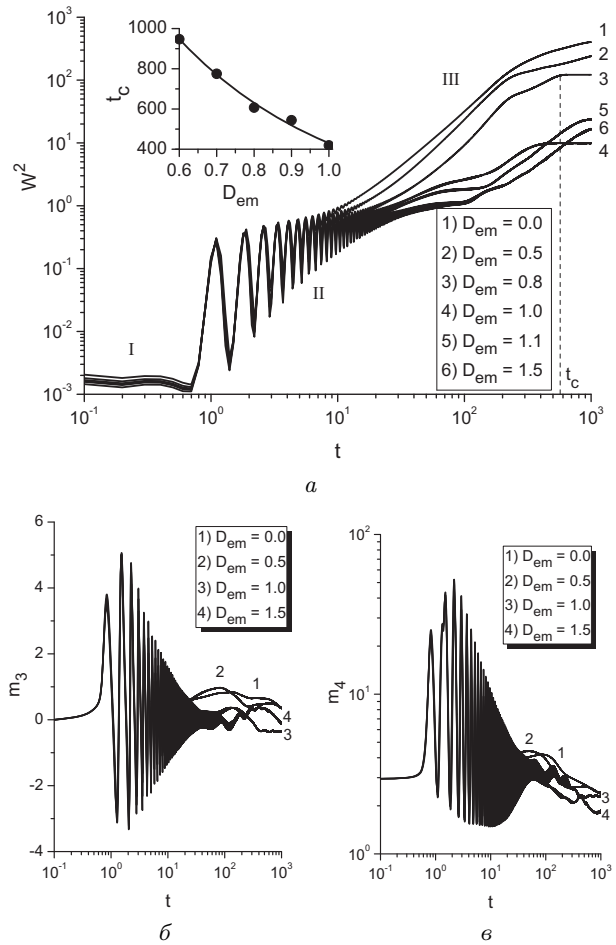


Рис. 2. Еволюція (а) дисперсії W^2 , (б) асиметрії m_3 та (в) ексцесу m_4 при різних значеннях коефіцієнта дифузії D_{em} . На вставці на рис. 2, а наведено залежність моменту часу t_c настання стаціонарного режиму від коефіцієнта дифузії D_{em}

цій стадії відбувається накопичення адсорбату на першому шарі. Початок процесів зростання плівки супроводжується осциляторною динамікою $W^2(t)$, доки $W^2 < 1$ (стадія II). При цьому, частота цих осциляцій є інваріантною до зміни коефіцієнта індукованої дифузії. Зі збільшенням коефіцієнта індукованої дифузії осциляторна динаміка $W^2(t)$ реалізується упродовж довшого часу осадження. На наступній стадії (стадія III) величина W^2 зростає з часом, при чому динаміка її росту суттєво визначається силою анізотропії поверхневої дифузії адсорбату, що задається параметром D_{em} . Порівнюючи криві для ізотропного (крива 1 при $D_{em} = 0$)

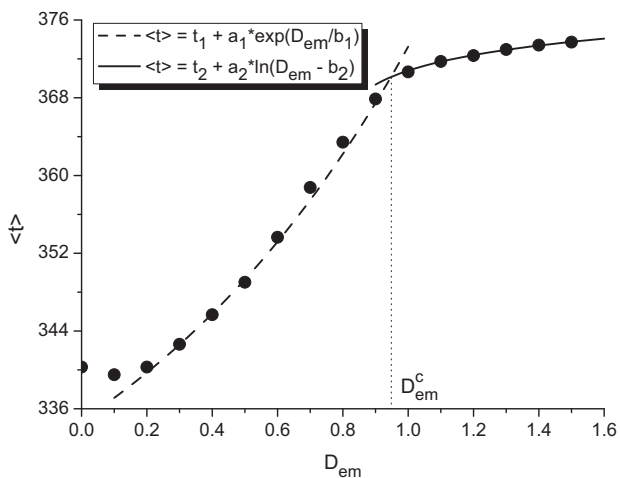


Рис. 3. Залежність часу, необхідного для росту 1000 атомних шарів від коефіцієнта дифузії D_{em} . Апроксимаційні штрихова та суцільна криві параметризуються значеннями: $t_1 = 312,37$, $a_1 = 22,4$, $b_1 = 1$; та $t_2 = 374,55$, $a_2 = 2,6$, $b_2 = 0,76$, відповідно

та анізотропного (крива 2 при $D_{em} = 0,5$) випадків маємо, що анізотропія у поверхневій дифузії, спричинена ефектами електроміграції, приводить до уповільнення процесів росту поверхневих структур у процесі осадження. Збільшення коефіцієнта анізотропної поверхневої дифузії адсорбату, спричиненої підведеним до підкладки електричним полем, приводить, разом із подальшим уповільненням процесів структуризації поверхні, до реалізації стаціонарного режиму в динаміці $W^2(t)$ за умови тривалого осадження при $t = t_c$ (див. криву 3 при $D_{em} = 0,8$). Збільшення коефіцієнта індукованої дифузії D_{em} приводить до зменшення значення моменту часу t_c (пор. криві 3 та 4 на рис. 2, а). Більш детальний аналіз показав, що t_c експоненціально зменшується з D_{em} , як це показано суцільною кривою на вставці до рис. 2, а; дані числового моделювання представлено кружечками. За умови досить сильної анізотропії у поверхневій дифузії, при $D_{em} > 1$, подальше збільшення D_{em} приводить до уповільнення динаміки $W^2(t)$ (див. криві 5 та 6 на рис. 2, а).

Динаміку еволюції асиметрії m_3 та ексцесу m_4 подано на рис. 2, б та рис. 2, в, відповідно. На початкових стадіях осадження як асиметрія m_3 , так і ексцес m_4 набувають гаусових значень $m_3 \simeq 0$, $m_4 \simeq 3$, що відповідає стадії I у динаміці $W^2(t)$. Осциляторна динаміка обох величин (стадія II) ха-

рактеризується значно більшою амплітудою, порівняно з динамікою параметра порядку $W^2(t)$. На пізніх стадіях осадження (стадія III) як m_3 , так і m_4 слабо змінюються з часом. Варто відзначити, що при певних значеннях коефіцієнта анізотропної дифузії обидві величини ілюструють стаціонарний режим (див. криві 3 при $D_{em} = 1$). Проте, слід відзначити, що стаціонарність величин W^2 , m_3 та m_4 свідчить лише про незмінність статистичних характеристик зростаючої поверхні, а не про стаціонарність процесу осадження чи росту плівки. Динаміку росту товщини плівки та висоти поверхневих структур буде проаналізовано нижче.

З метою детального вивчення ефектів уповільнення динаміки росту поверхні за рахунок ефектів електроміграції, спричинених впливом зовнішнього електричного поля, розрахуємо середній час $\langle t \rangle$, необхідний для росту однієї тисячі атомних шарів при різних значеннях коефіцієнта індукованої дифузії D_{em} . Отримані результати наведено на рис. 3 заповненими кружечками. Видно, що з ростом коефіцієнта дифузії D_{em} середній час, необхідний для росту 1000 атомних шарів, збільшується. Слід відзначити, що закон росту часу $\langle t \rangle$ з D_{em} змінюється при перевищенні величини D_{em} критичного значення $D_{em}^c \simeq 0,95$. Отримані числові результати для $D_{em} < D_{em}^c$ добре апроксимуються експоненційною зростаючою функцією $\langle t \rangle = t_1 + a_1 \exp(D_{em}/b_1)$, поданою штриховою кривою на рис. 3. При $D_{em} > D_{em}^c$ середній час зростає повільніше з D_{em} і числові дані відповідають логарифмічній залежності $\langle t \rangle = t_2 + a_2 \ln(D_{em}/b_2)$ (див. суцільну криву на рис. 3). Критерієм для апроксимації отриманих числових результатів було максимальне значення коефіцієнта детермінації.

Далі проаналізуємо динаміку росту товщини плівки та висоти поверхневих пірамідальних структур при варіюванні коефіцієнта індукованої дифузії D_{em} . Як було вказано вище, упродовж осадження зростає як максимальне, так і мінімальне значення фазового поля, ϕ_{max} та ϕ_{min} , відповідно. Таким чином, $d \equiv \phi_{min}$ можна асоціювати із товщиною плівки, щільно заповненої адсорбатом, тоді як висота поверхневих структур визначається різницею $h \equiv (\phi_{max} - \phi_{min})$. Еволюцію d та h подано на рис. 4 штриховими та суцільними кривими, відповідно. Тут результати подано при $d, h \geq 1$, нехтуючи стадіями перегрупування адсорбату на підкладці: криві з позначкою 1 отри-

мано для ізотропного випадку при $D_{em} = 0$; криві з позначкою 2 відповідають анізотропному випадку з $D_{em} = 1,5$. Перш за все слід відзначити, що електроміграція суттєво не впливає на закон росту товщини плівки, $d(t) \simeq bt$, де швидкість росту спадає від $b = 3,04$ при $D_{em} = 0$ до $b = 2,68$ при $D_{em} = 1,5$ (див. штрихові криві 1 та 2 на рис. 4). Динаміка росту висоти поверхневих структур $h(t)$ суттєво залежить від коефіцієнта дифузії D_{em} : збільшення D_{em} приводить не лише до суттєвого зменшення висоти поверхневих структур, а ще й до певного стохастичного характеру залежності $h(t)$ (пор. криві 1 та 2 при $D_{em} = 0$ та $D_{em} = 1,5$ на рис. 4). Слід відзначити, що на пізній стадії еволюції висоти структур $h(t)$ реалізується степеневий закон $h(t) \propto t^\delta$. Аналіз суцільних кривих 1 та 2 показує, що показник росту δ залежить від коефіцієнта дифузії D_{em} . На вставці до рис. 4 наведено значення параметра росту δ для різних D_{em} . Видно, що при $D_{em} < D_{em}^c$ показник росту δ зменшується, набуває мінімального значення та починає зростати. Таким чином, посилення ефектів електроміграції з одного боку приводить до зменшення висоти поверхневих структур, але з іншого боку – до пришвидшення динаміки росту висоти структур на пізній стадії. При цьому, за умови $D_{em} > D_{em}^c$ показник росту не залежить від коефіцієнта індукованої дифузії та приймає значення $\delta \simeq 0,46$ (див. вставку на рис. 4).

Далі проаналізуємо вплив коефіцієнта дифузії D_{em} на середні значення товщини плівки $\langle d \rangle$ та висоти поверхневих структур $\langle h \rangle$ у квазістаціонарному режимі при довгостроковому осадженні (при $t = 10^3$). Відповідні результати подано на рис. 5. Видно, що збільшення напруженості електричного поля біля підкладки при $D_{em} < D_{em}^c$ приводить до зменшення як товщини плівки, так і висоти поверхневих структур; при $D_{em} > D_{em}^c$ ефекти електроміграції суттєво не впливають на значення $\langle d \rangle$ та $\langle h \rangle$. При цьому варто відзначити, що товщина плівки зменшується на рівні 15% зі збільшенням коефіцієнта анізотропної дифузії D_{em} , тоді як висота поверхневих структур, а отже й кількість шарів пірамідальних структур суттєво зменшується з ростом D_{em} . Таким чином, ефекти електроміграції призводять до руйнування терас пірамідальних структур адсорбату та сприяють гомогенізації розподілу адсорбату на плівці.

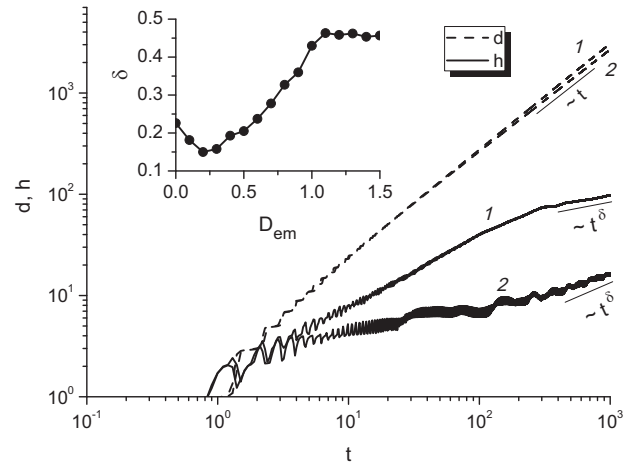


Рис. 4. Еволюція товщини плівки d та висоти поверхневих структур h при різних значеннях коефіцієнта дифузії D_{em} : $D_{em} = 0,0$ (1); $D_{em} = 1,5$ (2). На вставці наведено залежність показника росту δ від коефіцієнта дифузії D_{em} у режимі огрубіння

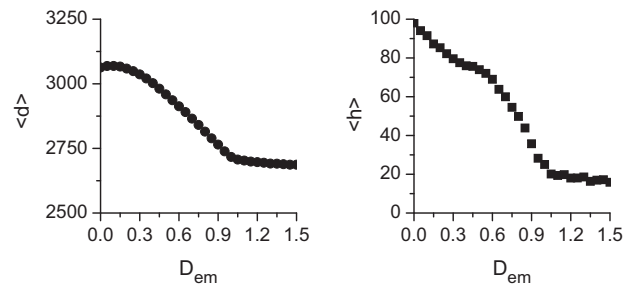


Рис. 5. Залежності середніх значень товщини плівки $\langle d \rangle$ та висоти поверхневих структур $\langle h \rangle$ від коефіцієнта дифузії D_{em} при довгостроковому осадженні ($t = 10^3$)

Для характеристики впливу сили анізотропії поверхневої дифузії адсорбату, викликаної ефектами електроміграції, на розподіл поля висоти поверхні за значеннями при довгостроковому осадженні далі проаналізуємо залежності значень асиметрії m_3 та ексцесу m_4 поверхні при $t = 10^3$ від коефіцієнта індукованої електричним полем дифузії D_{em} . Розраховані залежності $m_3(D_{em})$ та $m_4(D_{em})$ наведено на рис. 6. Типові ілюстрації морфології поверхні при $t = 10^3$ та різних значеннях коефіцієнта дифузії D_{em} подано на рис. 7. Розраховані розподіли поля висоти за значеннями представлено на рис. 8. Аналіз отриманих результатів показує, що за умови ізотропної дифузії (при $D_{em} = 0$) поверхня характеризується значеннями $m_3 > 0$ та $m_4 < 3$, а, отже, поверхня статистично відрізняє-

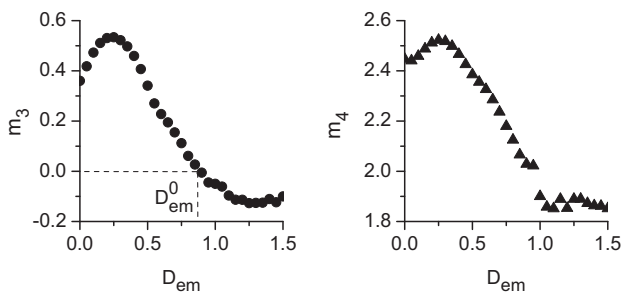


Рис. 6. Залежності статистичних моментів m_3 і m_4 від коефіцієнта дифузії D_{em} при $t = 10^3$

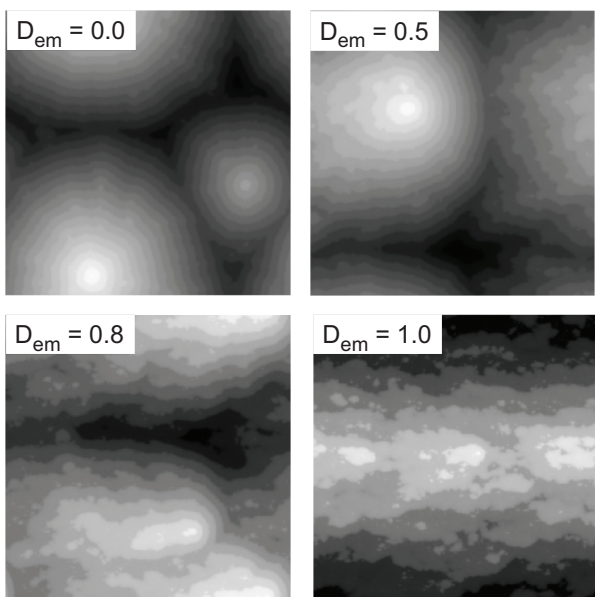


Рис. 7. Типові знімки морфології поверхні у квазістаціонарному режимі при різних значеннях коефіцієнта дифузії D_{em}

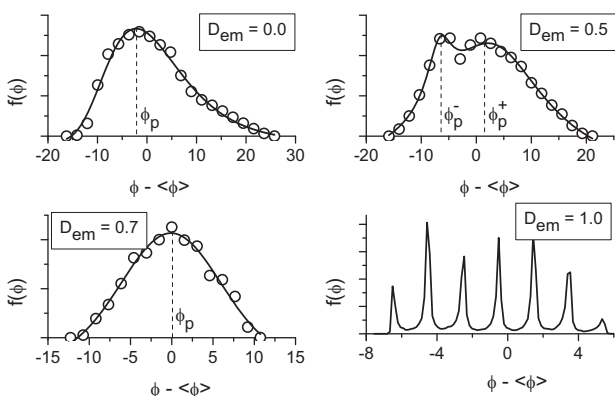


Рис. 8. Розподіли висоти поверхні, відрахованої від середнього значення $\langle \phi \rangle$ для структур, наведених на рис. 7

ться від гаусової: розподіл висот є асиметричним і більшість значень висоти поверхні є більшими за середнє значення. Розрахований розподіл поля висоти за розмірами подано на рис. 8 при $D_{em} = 0,0$. Тут числові дані, представлені порожніми кружечками, добре узгоджуються з узагальненим розподілом екстремальних значень (Generalized Extreme Value Distribution) у вигляді [40]:

$$f(\phi) = \kappa^{-1} \exp(-z) \exp\{-\exp(-z)\},$$

де $z \equiv (\phi - \mu)/\kappa$; μ та κ це параметри апроксимації. Видно, що даний розподіл є асиметричним і більшість значень поля ϕ характеризується значеннями, більшими за середнє $\langle \phi \rangle$, тоді як для найбільш імовірного значення ϕ_p маємо $\phi_p < \langle \phi \rangle$. Відхилення m_4 від значення $\phi_p = 3$, характерного для гаусового розподілу, (див. рис. 6) свідчить про просторовий порядок поверхні з реалізацією терас у просторовому розподілі висот, що є відмінним від гаусового випадкового поля. При збільшенні коефіцієнта індукованої дифузії D_{em} обидві статистичні величини m_3 та m_4 дещо збільшуються, набувають максимального значення та зменшуються до відповідних фіксованих значень. При цьому асиметрія змінює знак при $D_{em} = D_{em}^0$. Таким чином, збільшення D_{em} приводить до морфологічного перетворення в структурі поверхні: від поверхні з більшістю значень висоти більших за середнє значення до поверхні з переважною більшістю значень висоти менших за середнє. При цьому, зменшення значення ексцесу m_4 з ростом D_{em} свідчить про збільшення кореляцій вздовж поверхні і, як результат, до збільшення ширини терас поверхневих структур.

При $D_{em} = 0,5$ поверхневі структури адсорбату характеризуються анізотропією у напрямку підведеного до підкладки електричного поля завдяки ефектам електроміграції (див. рис. 7). При цьому, розподіл висот стає більш симетричним і характеризується наявністю двох основних піків: при $\phi = \phi_p^- < \langle \phi \rangle$ та $\phi = \phi_p^+ > \langle \phi \rangle$ (див. розподіл на рис. 8 при $D_{em} = 0,5$). Числові дані добре апроксимуються суперпозицією двох гаусіанів.

З подальшим збільшенням коефіцієнта індукованої дифузії поверхневі структури стають видовженими у напрямку підведеного поля (див. ілюстрацію поверхні на рис. 7 при $D_{em} = 0,8$). Варто відзначити, що при $D_{em} \simeq 0,8$ маємо $m_3 = 0$

(див. рис. 6), що свiдчить про симетричний розподіл значень висоти поверхні відносно середнього значення $\langle\phi\rangle$ (див. рис. 8 при $D_{em} = 0,8$). Суцільною кривою тут наведено апроксимацію числових даних (поданих пустими кружечками) одномодовим гаусіаном, для якого $\phi_p \simeq \langle\phi\rangle$.

При завищених значеннях коефіцієнта індукованої дифузії $D_{em} > D_{em}^c$ як асиметрія, так і ексцес суттєво не залежать від D_{em} (див. рис. 6). При таких умовах вирощування прикладене електричне поле приводить до руйнування добре виражених пірамідальних поверхневих структур. Тут формується один перколюючий кластер адсорбату з малою кількістю широких терас, що характеризуються негладкою границею (див. рис. 7 при $D_{em} = 1,0$). Така поверхня суттєво відрізняється від гаусової, оскільки характеризується значенням ексцесу $m_4 \simeq 1,85$ (див. рис. 6). Асиметрія $m_3 \simeq -0,15$ свiдчить про незначну більшість значень поля висоти, що є меншими за середнє значення. Відповідний розподіл подано на рис. 8 при $D_{em} = 1,0$, який ілюструє незначну кількість терас (кількість піків визначає кількість терас).

5. Висновки

У даній роботі було досліджено вплив ефектів електроміграції на динаміку росту тонких плівок при епітаксiальному рості в рамках теорії фазового поля з використанням процедури числового моделювання. Ефекти електроміграції враховано шляхом уведення направленого потоку атомів з коефіцієнтом дифузії, пропорційним до напруженості підведеного до підкладки електричного поля.

Встановлено, що підвищення коефіцієнта індукованої дифузії приводить до уповільнення динаміки росту як товщини плівки, так і висоти поверхневих багатопіверхових структур адсорбату та симетризації розподілу поля висоти за значеннями. Показано, що ефекти електроміграції приводять до формування анізотропних поверхневих структур, а на стадії огрубіння динаміка росту висоти структур дається степеневим законом. При цьому, показник росту збільшується до стаціонарного значення $\sim 0,46$ зі збільшенням коефіцієнта індукованої дифузії до певного критичного значення. При великих значеннях коефіцієнта індукованої дифузії у процесі епітаксiального росту формується перколююча багатопіверхова структура адсорбату з широ-

кими терасами, що характеризуються негладкими границями. При перевищенні коефіцієнтом індукованої дифузії певного критичного значення динаміка росту поверхні та її статистичні властивості суттєво не залежать від збільшення напруженості електричного поля.

Отримані у роботі результати можуть бути корисними для прогнозування динаміки росту плівок при епітаксiальному рості в умовах наявності електричного поля біля підкладки та для корегування технологічних умов вирощування поверхневих структур заданої морфології.

Роботу виконано за підтримки Міністерства освіти і науки України, грант № 0117U003927.

1. J.R. Black. Electromigration – a brief survey and some recent results. *IEEE Transactions on Electron Devices* **16**, 338 (1969).
2. P.S. Ho, T. Kwok. Electromigration in metals. *Rep. Prog. Phys.* **52**, 301 (1989).
3. Y. Homma, R.J. McClelland, H. Hibino. DC-resistive-heating-induced step bunching on vicinal Si (111). *Jap. J. Appl. Phys.* **29**, L2254 (1990).
4. E.D. Williams, E.Fu, Y.N. Yang *et al.* Measurement of the anisotropy ratio during current-induced step bunching. *Surf. Sci.* **336**, L746 (1995).
5. B.J. Gibbons, J. Noffsinger, J.P. Pelz. Influence of Si deposition on the electromigration induced step bunching instability on Si(111). *Surf. Sci.* **575**, L51 (2005).
6. S. Lin, Y. Liu, S. Chiu *et al.* The electromigration effect revisited: non-uniform local tensile stress-driven diffusion. *Sci. Rep.* **7**, 3082 (2017).
7. F. Leroy, D. Karashanova, M. Dufay *et al.* Step bunching to step-meandering transition induced by electromigration on Si(111) vicinal surface. *Surf. Sci.* **603**, 507 (2009).
8. V. Usov, C.O. Coileain, I.V. Shvets. Influence of electromigration field on the step bunching process on Si(111). *Phys. Rev. B* **82**, 153301 (2010).
9. O. Toktarbaiuly, V. Usov, C.O. Coileain *et al.* Step bunching with both directions of the current: Vicinal W(110) surfaces versus atomistic-scale model. *Phys. Rev. B* **97** 035436 (2018).
10. A.A. Shklyayev, A.V. Latyshev. Electromigration effect on the surface morphology during the Ge deposition on Si(111) at high temperatures. *App. Surf. Sci.* **465**, 10 (2019).
11. B. Voigtlander. Fundamental processes in Si/Si and Ge/Si epitaxy studied by scanning tunneling microscopy during growth. *Surf. Sci. Rep.* **43**, 127 (2001).
12. A.A. Shklyayev, M. Ichikawa. Extremely dense arrays of germanium and silicon nanostructures. *Phys. Usp.* **51**, 133 (2008).

13. A.A. Shklyaev, K.N. Romanyuk, S.S. Kosolobov. Surface morphology of Ge layers epitaxially grown on bare and oxidized Si(001) and Si(111) substrates. *Surf. Sci.* **625**, 50 (2014).
14. S.A. Teys. Different growth mechanisms of Ge by Stranski-Krastanow on Si (111) and (001) surfaces: An STM study. *Appl. Surf. Sci.* **392**, 1017 (2017).
15. J.M. MacLeod, J.A. Lipton-Duffin, U. Lanke *et al.* Shape transition in very large germanium islands on Si(111). *Appl. Phys. Lett.* **94**, 103109 (2009).
16. A. Shklyaev, L. Bolotov, V. Poborchii *et al.* Properties of three-dimensional structures prepared by Ge dewetting from Si(111) at high temperatures. *J. Appl. Phys.* **117**, 205303 (2015).
17. A. Voigt. *Multiscale modeling in epitaxial growth* (Birkhauser, 2000) [ISBN: 3-7643-7208-7].
18. C. Ratsch, P. Puggerone, M. Scheffler. *Surface Diffusion: Atomistic and Collective Processes* (Plenum, 1997) [ISBN: 978-1-4899-0262-7].
19. H. Metiu, Y.-T. Lu, Z.Y. Zhang. Epitaxial growth and the art of computer simulations. *Science* **255**, 1088 (1992).
20. C. Ratsch, M.F. Gyure, R.E. Caflisch *et al.* Level-set method for island dynamics in epitaxial growth. *Phys. Rev. B* **65**, 195403 (2002).
21. S. Park, H. Jeong, B. Kahng. Numerical test of the damping time of layer-by-layer growth on stochastic models. *Phys. Rev. E* **59**, 6184 (1999).
22. D.O. Kharchenko, V.O. Kharchenko, I.O. Lysenko *et al.* Stochastic effects at ripple formation processes in anisotropic systems with multiplicative noise. *Phys. Rev. E* **82**, 061108 (2010).
23. F. Liu, H. Metiu. Stability and kinetics of step motion on crystal surfaces. *Phys. Rev. E* **49**, 2601 (1994).
24. A. Karma, M. Plapp. Spiral surface growth without desorption. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4444 (1998).
25. D.O. Kharchenko, V.O. Kharchenko, I.O. Lysenko. Phase-field modeling of epitaxial growth in stochastic systems with interacting adsorbate. *Phys. Scr.* **83**, 045802 (2011).
26. D.O. Kharchenko, V.O. Kharchenko, T. Zhylenko *et al.* A study of pyramidal islands formation in epitaxy within the generalized phase-field model. *Eur. Phys. J. B* **86**, 175 (2013).
27. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, A. V. Dvornichenko. Scaling properties of pyramidal islands formation process at epitaxial growth. *Eur. Phys. J. B* **88**, 3 (2015).
28. D. Kandel, E. Kaxiras. Microscopic theory of electromigration on semiconductor surfaces. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1114 (1996).
29. S. Stoyanov, V. Tonchev. Properties and dynamic interaction of step density waves at a crystal surface during electromigration affected sublimation. *Phys. Rev. B* **58**, 1590 (1998).
30. V. Popkov, J. Krug. Dynamic phase transitions in electromigration-induced step bunching. *Phys. Rev. B* **73**, 235430 (2006).
31. B. Rangelov, S. Stoyanov. Instability of vicinal crystal surfaces with transparent steps: Transient kinetics and non-local electromigration. *Surf. Sci.* **603**, 2907 (2009).
32. V.O. Kharchenko, D.O. Kharchenko. Nanosize pattern formation in overdamped stochastic reaction-diffusion systems with interacting adsorbate. *Phys. Rev. E* **86**, 041143 (2012).
33. V.O. Kharchenko, D.O. Kharchenko, S.V. Kokhan *et al.* Properties of nano-islands formation in nonequilibrium reaction-diffusion systems with memory effects. *Phys. Scr.* **86**, 055401 (2012).
34. V.O. Kharchenko, D.O. Kharchenko, A.V. Dvornichenko. Statistical properties of nanosized clusters on a surface in overdamped stochastic reaction-Cattaneo systems. *Surf. Sci.* **630**, 158 (2014).
35. V.O. Kharchenko, D.O. Kharchenko. Noise-induced pattern formation in system of point defects subjected to irradiation. *Eur. Phys. J. B* **85**, 383 (2012).
36. V.O. Kharchenko, D.O. Kharchenko. Abnormal grain growth in nonequilibrium systems: Effects of point defect patterning. *Phys. Rev. E* **89**, 042133 (2014).
37. F. Cucker, P.G. Ciarlet. *Handbook of Numerical Analysis vol 11 Special Volume: Foundations of Computational Mathematics* (Elsevier, 2003). [ISBN: 9780444512475]
38. G. Strang. *Introduction to Applied Mathematics* (Wellesley-Cambridge Press, 1986) [ISBN: 978-0961408800].
39. E.S. Gadelmawla, M.M. Koura, T.M.A. Maksoud *et al.* Roughness parameters. *J. Mater. Process. Tech.* **123**, 133 (2002).
40. G. Muraleedharan, C.G. Soares, C. Lucas. Characteristic and moment generating functions of generalised extreme value distribution (GeV). In *Sea Level Rise, Coastal Engineering, Shorelines and Tides*. Edited by L.L. Wright (Nova Science Publishers, 2009), p. 269 [ISBN 978-1-61728-655-1].

Одержано 31.03.20

A. V. Dvornichenko

ELECTROMIGRATION EFFECTS
AT EPITAXIAL GROWTH OF THIN FILMS:
PHASE-FIELD MODELING

The epitaxial growth of thin films with regard for the anisotropy of the adsorbate surface diffusion induced by electromigration effects has been studied theoretically in the framework of the phase-field theory and with the use of numerical simulations. The influence of the coefficient of electromigration-induced anisotropic diffusion, which is proportional to the applied electric field strength, on the dynamics of growth of the film thickness and the height of surface structures, growing surface morphology, statistical characteristics of the surface multilayer adsorbate structures, and distribution of surface structures over their heights is revealed.

Keywords: phase-field method, epitaxial growth, surface structures, electromigration, numerical simulation, statistical characteristics.