

УДК 548.0:539.219.3; PACS 68.55; 81.15

Ю.С. Кагановський<sup>1</sup>, О.П. Кулик<sup>2</sup>, С.П. Юрченко<sup>3</sup>  
**Моделювання гомоепітаксії на гвинтових дислокаціях з  
урахуванням граничної кінетики**

<sup>1</sup> Dept. of Physics, Bar-Ilan University, Ramat-Gan 52900, Israel

<sup>2</sup> Харківський державний автомобільно-дорожній технічний університет, вул. Петровського, 25, 61002,  
Харків. Тел.: (0572) – 459127. E-mail: kap@skynet.kharkov.com

<sup>3</sup> Харківський національний університет, пл. Свободи, 4, 61077, Харків

Досліджено процес гомоепітаксії на гвинтових дислокаціях з урахуванням ролі кінетичних процесів на уступах. Отримані аналітичні вирази для залежності швидкості елемента спіралі від радіуса його ефективної кривини і для радіуса критичного двовимірного зародка в дифузійному полі першого витка спіралі за умови, що уступи рухаються в дифузійно-кінетичному режимі. На основі отриманих виразів за допомогою комп'ютера виконано математичне моделювання процесу формування полігонізованих спіралей. Показано, що залежність відстані між витками спіралей від радіуса двовимірного критичного зародка носить нелінійний характер і визначається не лише термодинамічними факторами (пересиченням, температурою, лінійним натягом сходин), а залежить від співвідношення швидкості дифузійного підводу структурних елементів речовини (молекул, атомів, іонів) до сходин і швидкості їх вбудовування в зломи на уступах.

**Ключові слова:** гомоепітаксія, морфологія, спіраль, сходина, дифузійно-кінетичний режим, двовимірний критичний зародок.

*Стаття поступила до редакції 12.02.2001; прийнята до друку 8.04.2001*

## I. Вступ

Як відомо, за певних умов гомоепітаксія може здійснюватися шарувато-спіральним механізмом [1]. У цьому випадку важливо розуміти, від чого і як залежить середня відстань між витками спіралей  $l$ , що встановлюється при заданих зовнішніх умовах (пересиченні і температурі) і визначає в кінцевому рахунку нормальну швидкість росту епітаксiальної плівки.

Питання про взаємозв'язок  $l$  з радіусом критичного зародка  $\rho^*$  на гвинтовій дислокації неодноразово обговорювалося в літературі. Аналітична теорія полігонізованої спіралі [2] призводить до співвідношення

$$l = 19\rho^* \quad (1)$$

з припущенням, що сходини рухаються в кінетичному режимі, коли лімітують не процеси постачання структурних частинок речовини (атомів, молекул, іонів) до сходин, а процеси їх вбудовування в зломи. Для дифузійного режиму руху сходин, характерного для процесів росту кристалів з парової фази або випаровування, співвідношення (1) має місце за умови, що  $\rho^* > \lambda_s$  [3], де  $\lambda_s$  – довжина дифузійного шляху адсорбованих молекул за час їх життя на поверхні. Якщо ж пересичення великі, такі що  $\rho^* < \lambda_s$ , замість (1) використовують співвідношення  $l = 19\rho_s^*$ , де  $\rho_s^*$  – радіус

критичного двовимірного зародка, який отримують, враховуючи ефект «зворотної дії» – зниження поверхневого пересичення  $\sigma_s$  у центрі спіралі внаслідок дифузійних потоків адсорбованих молекул до її першого витка у порівнянні з пересиченням  $\sigma$  у паровій фазі [4]. Тут треба зауважити, що коефіцієнт пропорційності 19 між  $l$  і  $\rho^*$  в (1) можна отримати лише в тому разі, якщо залежність швидкості руху елемента спіралі від радіуса його ефективної кривини  $\rho$  визначається як

$$v(\rho) = v_0(1 - \rho^*/\rho) \quad (2)$$

де  $v_0$  – швидкість руху прямолінійної ізольованої сходини [5]. Вираз (2) правильно описує залежність  $v(\rho)$  за будь-яких  $\sigma$  для кінетичного режиму руху сходин. У випадку дифузійного режиму цей вираз має місце лише за малих  $\sigma$ , таких що  $\rho^* > \lambda_s$  (або з урахуванням ефекту зворотної дії  $\rho_s^* > \lambda_s$ ). За умов реальних дослідів з гомоепітаксії переважно  $\rho^* \ll \lambda_s$  і навіть  $\rho_s^* \ll \lambda_s$ . При цьому можлива ситуація, коли швидкість руху сходин з великою кривиною через великі градієнти концентрації адсорбованих молекул буде перевершувати величину, що задається співвідношенням (2). Крім того, суттєво може змінитися роль кінетики вбудовування молекул в зломи в процесі руху сходин. Підставою для такого твердження можуть бути, наприклад, експериментальні результати, отримані в [6], які свідчать про те, що анізотропія форми спіралей на сингулярних поверхнях монокристалів NaCl пов'язана саме з різною роллю граничної кінетики у процесі руху сходин, орієнтованих по-різному. Це дало можливість визначити кінетичні коефіцієнти сходин моноіонної і подвійної висоти, показати, що з висотою сходин роль граничної кінетики в процесі їх руху значно зростає і її слід враховувати при дослідженні морфології спіралей. Саме цьому і присвячена дана робота.

## II. Дифузійна задача

Розглянемо процес розвитку спіралі за

умов, коли рух сходин відбувається в дифузійно-кінетичному режимі і необхідно враховувати ефект зворотної дії. Для того щоб з'ясувати характер залежності  $v(\rho)$ , припустимо, як і в [4], що перший виток спіралі з середнім ефективним радіусом  $\rho$ , який найбільш суттєво впливає на пересичення в її центрі, можна з достатнім наближенням замінити на коло того ж радіуса. У цьому випадку дифузійна задача аналогічна тій, яка розглядається в [5, 4], і різниця полягає лише в тому, що необхідно враховувати кінцеву швидкість обміну молекулами між поверхнею і сходами.

Розподіл поверхневого пересичення всередині ( $\Psi_1$ ) і зовні ( $\Psi_2$ ) двовимірного зародку знаходимо з рівняння [5]:

$$\nabla^2 \Psi(r) = \Psi(r); \quad \Psi(r) = \sigma - \sigma_s(r) \quad (3)$$

з граничними умовами [7]:

$$\Psi_1(R) = \Psi_2(R),$$

$$\frac{D_s}{\lambda_s} \left[ \frac{\partial \Psi_1}{\partial r} \Big|_{R=0} - \frac{\partial \Psi_2}{\partial r} \Big|_{R=0} \right] = \beta_s [\Psi_R - \Psi_1(R)], \quad (4)$$

де  $\sigma_s(r) = \xi(r)/\xi_0 - 1$ ,  $\xi(r)$  і  $\xi_0$  – відповідно дійсна і рівноважна концентрації адсорбованих молекул,  $r$  – безрозмірна координата, що відраховується від центра зародка,  $R = \rho/\lambda_s$  – безрозмірний радіус двовимірного зародка,  $D_s = D_a \xi_0$ ,  $D_a$  – коефіцієнт дифузії адмолекул по поверхні терас,  $\beta_s = \beta_a \xi_0$ ,  $\beta_a$  – кінетичний коефіцієнт сходини, що характеризує швидкість обміну адмолекулами між терасою і сходиною;  $\Psi_R = \sigma - \sigma_R$ ,  $\sigma_R$  – пересичення, пов'язане з кривиною двовимірного зародка. За малих пересичень у паровій фазі  $\Psi_R \approx \sigma(1 - R^*/R)$ , де  $R^* = \rho^*/\lambda_s$ . Шукані значення  $\Psi_1(r)$  і  $\Psi_2(r)$  мають вигляд

$$\Psi_1(r) = I_0(r) \Psi_R R K_0(R) [Q + R I_0(R) K_0(R)]^{-1} \quad (5)$$

$$\Psi_2(r) = K_0(r) \Psi_R R I_0(R) [Q + R I_0(R) K_0(R)]^{-1} \quad (6)$$

де  $I_0, K_0$  – функції Бесселя нульового порядку від уявного аргумента,  $Q = D_s / \beta_s \lambda_s$  – параметр, що характеризує режим руху сходин; при  $Q \ll 1$  уступи рухаються в дифузійному режимі, при  $Q \gg 1$  – в кінетичному.

Обчислюючи за допомогою (5) значення  $\Psi_1(r)$  у центрі ( $r=0$ ), знаходимо вираз для безрозмірного радіуса двовимірного критичного зародка:

$$R_s^* = R^* \left[ 1 - \frac{(1 - R^*/R)RK_0(R)}{Q + RI_0(R)K_0(R)} \right]^{-1} \quad (7)$$

Якщо у виразі (7) покласти  $Q \cong 0$  (дифузійний режим руху сходин), одержимо для  $R_s^*$  вираз, що співпадає з розрахованим у [4]:

$$R_s^* \cong R^* [1 - I_0^{-1}(R)]^{-1}.$$

При великих  $Q$  (кінетичний режим)  $R_s^* \approx R^*$ , оскільки у цьому випадку пересичення адсорбованих молекул поблизу уступа дорівнює пересиченню у паровій фазі.

Залежність  $v(R)$  при  $R > R_s^*$  одержуємо, підставляючи в праву частину виразу (4) значення  $\Psi_R$  і  $\Psi(R) = \Psi_1(R) = \Psi_2(R)$

$$v(R) = v_0 \frac{(1 - R_s^*/R)(Q + 1/2)}{Q + RI_0(R)K_0(R)}. \quad (8)$$

### III. Математичне моделювання

Використовуючи вирази (7) і (8), процес формування спіралі моделювали за допомогою комп'ютера. Оскільки експериментально у центральних витків спіралей спостерігаються спрямлені ділянки сходин (див., напр., [6, 8]), при моделюванні розглядали утворення полігонізованої спіралі. Спочатку задавали координати центра спіралі і першу “напівнескінчену” прямолінійну сходину, безрозмірну швидкість якої на підставі виразу (8) поклали за одиницю. Відступ першої сходини призводив до утворення другої, ефективний радіус кривини якої  $R$ , брали як половину її довжини. Коли значення  $R$  перевищувало значення  $R^*$ , що задавалось, починався рух другої сходини з урахуванням залежності (8), потім третьої і так далі аж до п'ятої сходини, тобто до моменту утворення першого витка спіралі. З цього часу враховувався ефект зворотної дії. П'ята сходина починала рухатися після досягнення нею довжини  $2R_s^*$ , що

визначається виразом (7). При цьому за середній радіус першого витка спіралі вибирали найкоротшу відстань від центра спіралі до другої сходини. Формування і рух усіх наступних сегментів спіралі відбувалися аналогічним чином. Варіюючи величини  $R^*$  і  $Q$ , спостерігали такі особливості у розвитку спіралей.

Залежність безрозмірної швидкості сегмента спіралі  $v(R)/v_0$  від величини його ефективного радіуса кривини  $R$  носить немонотонний характер (рис. 1). Однак, ці немонотонності спостерігаються лише у

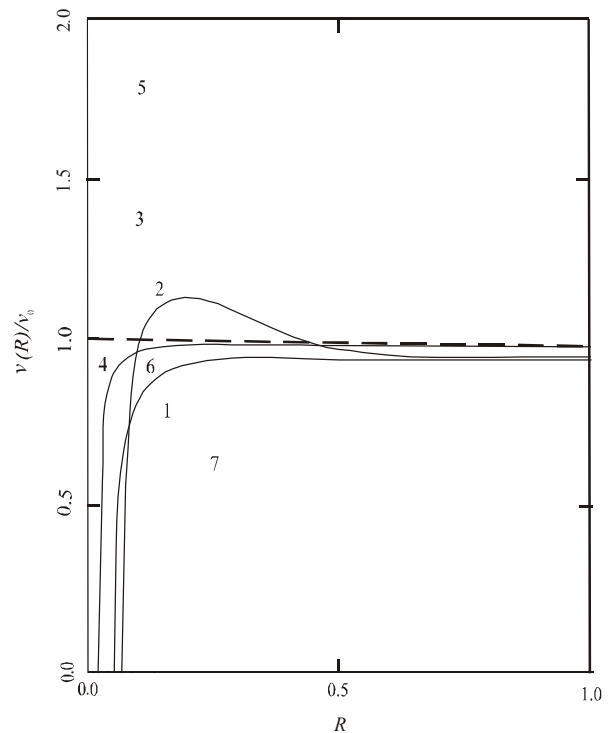


Рис. 1 Графіки залежності безрозмірної швидкості сегмента спіралі  $v(R)/v_0$  від його ефективного радіуса кривини  $R$  при різних значеннях радіуса двовимірного критичного зародка  $R^*$  і параметра, що характеризує режим руху сходин,  $Q$ :

$$1 - 4 : R^* = 0.01; Q = 0.025; 0.05; 0.1; 0.5$$

$$5 - 7 : Q = 0.2; R^* = 0.005; 0.02; 0.05$$

деякому інтервалі малих значень  $R^*$  і  $Q$ , коли  $R$  не дуже відрізняється від величини критичного зародка. Вони зникають або при великих  $Q$  (кінетичний режим руху сходин), або при великих  $R^*$  ( $\rho^* > \lambda_s$  – відсутній ефект зворотної дії). І в першому, і

в другому випадках (7), (8) приводяться до вигляду  $R_s^* \cong R^*$ ,  $v/v_0 \cong 1 - R^*/R$ . Немонотонності  $v(R)$  на рис.1, очевидно, пов'язані з тим, що при малих значеннях  $R^*$  характерною відстанню, яка визначає градієнт концентрації молекул поблизу сходини, є не довжина дифузійного шляху  $\lambda_s$ , а радіус кривини сегмента  $\rho$  [5]. У зв'язку з цим, не дивлячись на велику кривину, швидкість такого сегмента може перевищувати швидкість прямолінійної сходини. Немонотонності, які спостерігаються, приводять до того, що відношення відстані між сходинами у спіралі  $L$  до радіуса критичного зародка в умовах ефекту зворотної дії  $R_s^*$  виявляється не сталим, а залежить від величини параметра  $Q$  (рис. 2). Відоме з теорії росту відношення  $L/R_s^* = 19$  має місце або при малих  $Q$  і великих  $R^*$ , або при великих  $Q$  для будь-яких значень  $R^*$ .

З цих результатів впливає важливий висновок щодо морфології спіралей, які формуються у дифузійно-кінетичному режимі. Як відомо,  $\rho^* = \alpha\omega / h k T \ln \eta$ , де  $\alpha$  – лінійний натяг сходини,  $h$  – її висота,  $\omega$  – молекулярний об'єм,  $k$  – стала Больцмана,  $T$  – термодинамічна температура,  $\eta = 1 + \sigma$  [1, 5]. Отже виявляється, що в області достатньо великих значень  $\sigma$  (таких, що  $\rho^* < \lambda_s$ ) відстань між витками спіралей визначається не лише термодинамічними факторами ( $\alpha, T, \sigma$ ), а залежить також від відношення кінетичних характеристик ( $Q = D_s / \beta_s \lambda_s$ ). Ця залежність проявляється в значенні коефіцієнта пропорційності між величинами  $L$  і  $R^*$ , що, як видно з рис. 3, також не є сталою величиною. Відхилення коефіцієнта від значення 19 при фіксованому значенні  $R^*$  тим більше, чим менше величина  $Q$ . Наслідком цього є, наприклад, те, що коли сходини різної висоти характеризуються різними кінетичними коефіцієнтами, то відстані  $l$  у спіралях, утворених цими сходинами, повинні відрізнятися навіть при одних і тих же значеннях  $\alpha/h$ .

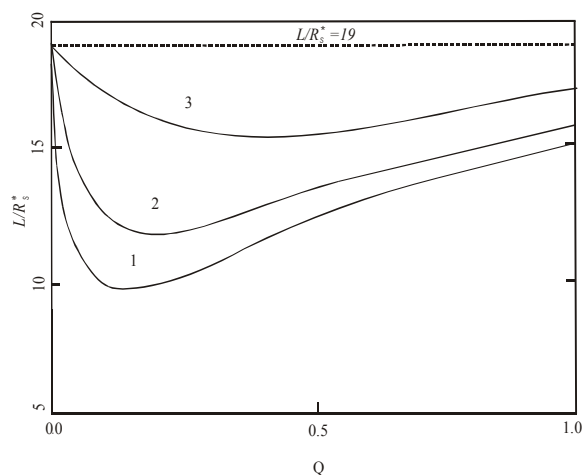


Рис. 2. Графіки залежності відношення відстані між витками спіралі  $L$  до радіуса двовимірного критичного зародка з урахуванням ефекту зворотної дії  $R_s^*$  від параметра  $Q$  при різних значеннях  $R^*$ :

1 –  $R^* = 0.01$ ; 2 –  $0.02$ ; 3 –  $0.05$ .

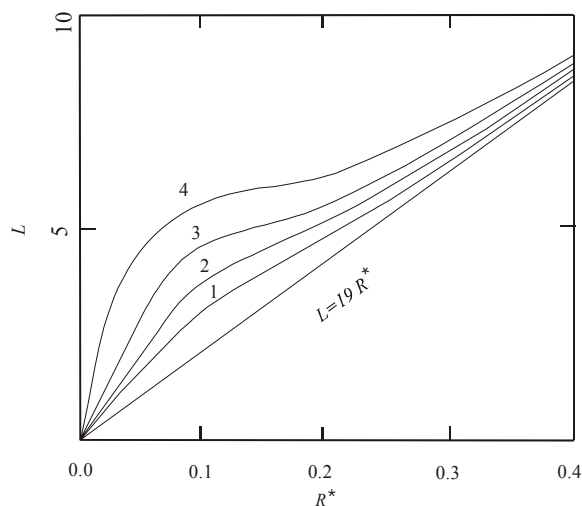


Рис. 3 Графіки залежності  $L$  від  $R^*$  при різних значеннях параметра  $Q$ :

1 –  $Q = 0.5$ ; 2 –  $0.2$ ; 3 –  $0.1$ ; 4 –  $0.02$

Таким чином, оскільки  $l$  з одного боку задає нахил віцинального горбика росту  $h/l$ , а з іншого впливає на швидкість руху сходин в ешелонах  $v(l/\lambda_s)$ , визначаючи ширину перекриття дифузійних полів сусідніх сходин [1], виникає необхідність аналізу нормальних швидкостей гомоепітаксії з урахуванням отриманих результатів. Крім того викриваються можливості, досліджуючи морфологію спіралей, визначати лінійні натяги елементарних сходин, дані про які необхідні

для розрахунків швидкостей гомоепітаксії зародкоутворення.  
механізмом випадкового двовимірного

- [1] А.А. Чернов. Процессы кристаллизации. Глава 1 в кн.: *Современная кристаллография*, т. 3, сс. 7-232, М.: Наука (1980).
- [2] А.А. Чернов, Л.Н. Рашкович, А.А. Мкртчян. Интерференционно-оптическое исследование поверхностных процессов роста кристаллов KDP, DKDP и ADP // *Кристаллография*, **32(3)**, сс. 737-754 (1987).
- [3] Н. Кабрера, М. Левин. К дислокационной теории испарения кристаллов. Глава 6 в кн.: *Элементарные процессы роста кристаллов*, сс. 152-165, М.: ИЛ (1959).
- [4] Н. Кабрера, Р.В. Кольман. Теория роста кристаллов из пара. Раздел 1 в кн.: *Теория и практика выращивания кристаллов*, сс. 9-48, М.: Металлургия (1968).
- [5] В. Бартон, Н. Кабрера, Ф. Франк. Рост кристаллов и равновесная структура их поверхностей. Глава 1 в кн.: *Элементарные процессы роста кристаллов*, сс. 11-109, М.: ИЛ (1959).
- [6] Ю.С. Кагановский, А.П. Кулик. Кинетические характеристики массопереноса на вицинальных поверхностях NaCl // *Поверхность*, **9**, сс. 16-24 (1991).
- [7] А.А.Чернов. Слоисто-спиральный рост кристаллов // *УФН*, **73(2)**, сс. 277-331, (1961).
- [8] K.W. Keller. Modes of crystal growth revealed by electron microscopy on NaCl // *J. Cryst. Growth*, **74(1)**, pp. 161-171 (1986).

Yu.S. Kaganovskii<sup>1</sup>, O.P. Kulyk<sup>2</sup>, S.P. Yurchenko<sup>3</sup>

### **Simulating Homoepitaxy on Screw Dislocations Including Boundary Kinetics**

<sup>1</sup> Dept. of Physics, Bar-Ilan University, Ramat-Gan 52900, Israel

<sup>2</sup> Dept. of Physics, Kharkov State Automobile and Highway Technical University, Petrovskogo str. 25, Kharkov 61002, Ukraine. Tel. (8-0038-0572) – 459127, E-mail: [kap@skynet.kharkov.com](mailto:kap@skynet.kharkov.com)

<sup>3</sup> Kharkov National University, Svoboda sq. 4, Kharkov 61077, Ukraine

The process of homoepitaxy on screw dislocations including the role of kinetic processes on steps has been investigated. Analytical expressions have been obtained for dependence of spiral element velocity on radius of its effective curvature and for the radius of critical two-dimensional nucleus in the diffusion field of the first coil of the spiral under the condition that steps move in the diffusional-kinetic mode. On the basis of expressions obtained the numerical simulation of the process of polygonal spiral formation was made. It is shown that the dependence of distance between spiral coils on the radius of two-dimension critical nucleus has a non-linear character and is determined by not only thermodynamic factors (supersaturation, temperature, linear tension of steps), but depends on relation between velocities of diffusion supply of crystal growth units to steps and speed of their building in kinks on steps.