

# 超薄晶体膜生长过程的计算机模拟

王培林 丁天骅 蔡

(上海交通大学材料科学与工程学院, 教育部高温材料与高温测试重点实验室, 上海 200030)

(2001 年 5 月 13 日收到, 2001 年 7 月 27 日收到修改稿)

建立一种新模型, 模拟超薄晶体膜生长过程. 通过引入网格和俘获截面的概念来归一化处理错综复杂的原子间相互作用, 研究了扩散、衬底温度等因素对 Ge/Si 超薄晶体膜生长形式的影响.

关键词: 晶体膜, 模型, 模拟

PACC: 6855, 6870, 0555

## 1. 引 言

随着计算机及其相关技术的发展, 计算机模拟在物理及材料等许多领域得到了广泛应用, 已成为补充理论研究和实验研究的第三种研究方法<sup>[1]</sup>. 近年来, 国内外学者已相继开展计算机模拟薄膜生长方面的研究<sup>[2-4]</sup>. 例如多晶超薄膜的生长过程及生长中的分形、团簇和扩散现象<sup>[5-8]</sup>. 模拟中建立模型的过程实质上是对薄膜生长时发生的复杂现象的理解和反映过程. 以描述原子间相互作用力为例, 比较简单的硬核模型是采用最简单的公式来表示原子尺寸和原子间强斥力, 稍作改进的模型是考虑了结合能和原子尺寸的平方势阱, 而软核势能模型则更精确地表示出原子间的相互作用. 模型越真实, 计算的难度越大, 甚至无法实现. 由于实际上不可能对原子进行微观跟踪和定位, 因此注重模拟结果真实具有重要意义. 本文建立一种新的模型, 通过引入网格和俘获截面的概念来考虑增原子与最近邻原子、次近邻原子及衬底原子之间的相互作用关系, 以此决定粒子运动的方式, 使模拟过程变得简单、直接、有效. 从而模拟出超薄晶体膜生长时从一个原子到多个原子直至成膜的全过程.

## 2. 模 型

晶体薄膜生长一般在特定的衬底上进行, 其特点是原子排列长程有序, 晶体结构直接取决于原子

类型, 同时也受衬底材料影响. 现有的大部分晶体膜原子结构已清楚, 例如 Si, Ge, PtSi 等. 超薄晶体膜生长时, 在一个适当大小的范围内, 除第一个满足沉积条件的增原子(外来原子)的沉积有一定的随机性以外, 其他增原子只能在一定的位置上停留下来, 这些位置符合晶格结构约束条件. 这相当于往一个事先规定好的网格里投入粒子. 因此, 对于晶体薄膜, 如果引入网格的概念, 即用适合于各自晶体结构的网格来描述晶体格点, 作为确定增原子沉积着陆位置的基础, 会避免很多非确定因素, 使模拟模型变得简单容易. 另外, 事实上增原子与最近邻原子、次近邻原子及衬底原子之间的相互作用是相当复杂的, 无论是从力的角度还是从能量的角度来考虑, 都不能轻而易举地解决问题, 甚至于人们还不清楚很详细的作用机制. 虽然有些特定的问题可以用分子动力学描述, 但由于数值计算上的困难, 投入在求解方程近似解上的大量精力和财力往往成为影响和制约薄膜生长过程计算机模拟研究的障碍. 而引入网格的概念以后, 再考虑增原子与最近邻原子、次近邻原子及衬底原子之间的相互作用, 就使问题变得比较直接和清楚. 此时可以认为增原子沉积着陆情况与几何配位数、衬底温度、激活能、增原子入射动能、扩散能力等关系密切, 而不涉及增原子与欲着陆位置的几何距离. 因此, 我们引入俘获截面的概念来归一化考虑增原子根据周围情况选择沉积着陆位置的过程. 即每一个晶格点阵位置对增原子都张开一个大小不等的俘获截面, 增原子只是选择最大俘获截面的晶格点阵位置沉积, 而不具体考虑与衬底原子和已沉积原子的相互作用过程. 这样就将计算增原子与衬底原子之间相互作用力和能的过程归结为判断

网格节点对增原子所张俘获截面大小的过程. 增原子沉积后, 还以一定的方式和概率向周围格点跃迁, 具体取决于外延条件和工艺过程.

例如, 对于具有二维正方或斜方晶格点阵结构的晶体薄膜生长, 在直角或非直角坐标系中建立网格, 由计算机随机产生粒子, 一个一个沉积在衬底的某个位置上. 当沉积在  $(x, y)$  这个格点上以后, 可以有一定的概率向  $(x+1, y)$   $(x-1, y)$   $(x, y+1)$ ,  $(x, y-1)$   $(x+1, y+1)$   $(x+1, y-1)$   $(x-1, y+1)$  及  $(x-1, y-1)$  八个方向跃迁扩散, 其概率按照物理模型进行确定. 粒子跃迁时采用周期性边界条件, 例如左出右进, 右出左进, 上出下进, 下出上进. 当粒子走到任一簇粒子的最近邻位置后, 并不是通过对每一个格点位置的势能进行严格的数学计算, 来决定该点势能是否满足停留条件, 而仍然是根据该点对其俘获截面的大小决定粒子可以停下或绕此团簇跃迁到更合适的位置, 即对应于能量较低的状态.

### 3. 衬底温度对超薄晶体膜生长形式的影响

在薄膜沉积时如果选择衬底的温度比较低, 增原子到达衬底后, 不容易从衬底获得更多的能量. 一旦运动到一个能量较低的位置, 进行再跃迁的可能性较小, 就被牢牢地固定在那里, 不能进行充分的扩散. 表现在模拟模型中就是减小不同配位格点俘获截面的差异, 减小增原子再跃迁能量. 粒子走到任一簇的最近邻位置后基本上就停下来, 此时薄膜生长形式以分形结构为主, 而且具有明显的屏蔽效应. 以 Si 衬底上生长超薄 Ge 膜为例, 模拟结果如图 1(a) 所示.

当衬底温度逐渐升高, 晶格振动加强, 格点周围配位原子影响作用的权重增加, 表现在模拟模型中就是不同配位数格点俘获截面的差异逐渐明显; 同时增原子在晶核周界上的迁移概率也逐渐增大, 它经过充分选择后在能量最小的位置停留. 模拟过程中可见粒子到达最近邻位置后并不马上停下, 而是绕着此团簇继续行走, 一直走到能量最低的位置才停下, 此时生长形式为规则的团状. Ge/Si 超薄晶体膜生长情况如图 1(c) 所示.

图 1(b) 所示为 Ge/Si 超薄晶体膜生长介于分形结构和团簇结构之间的结果.

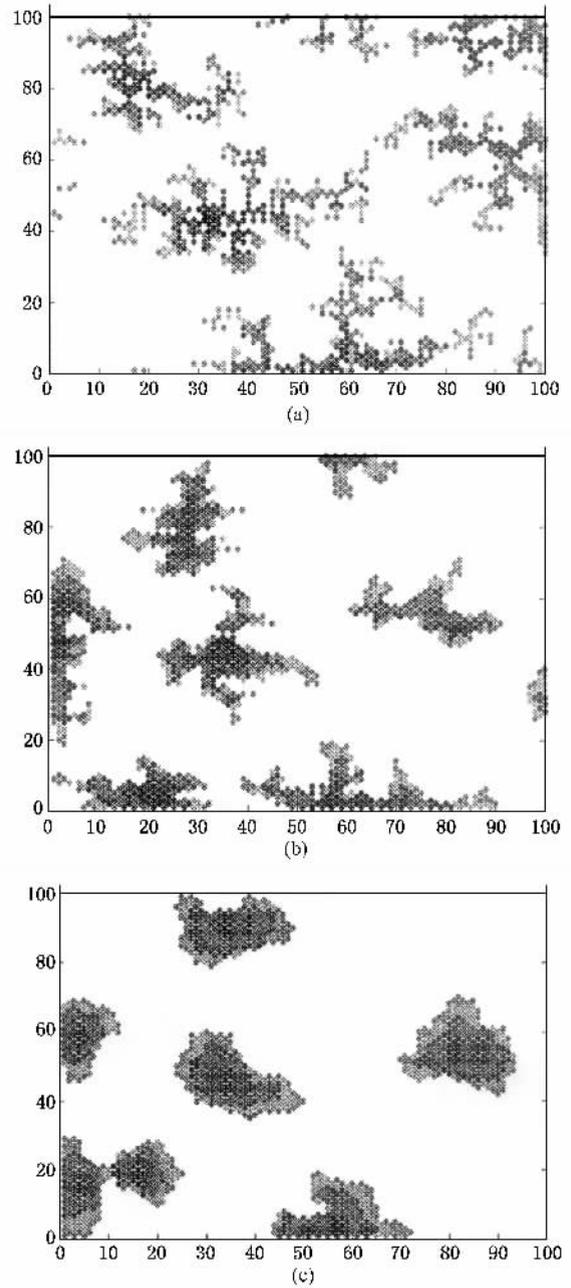


图 1 Ge/Si 超薄晶体膜生长时衬底温度影响薄膜生长形式的模拟结果 (a) 为较低温度时的分形结构 (b) 为过渡的中间情况 (c) 为较高温度时的团簇结构. 颜色深浅代表粒子沉积先后顺序

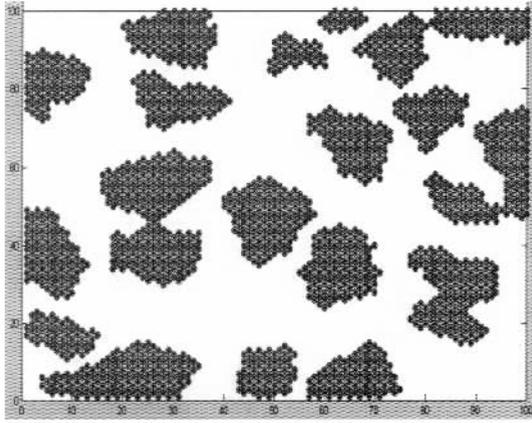
### 4. 吸附能与激活能对超薄晶体膜生长形式的影响

在薄膜生长过程中, 当沉积工艺不同或改变沉积室气分和压力时, 可能对沉积原子的吸附能和激活能有所改变, 这将直接影响沉积原子在衬底上的驻留时间和扩散步数. 沉积原子在衬底上的驻留时

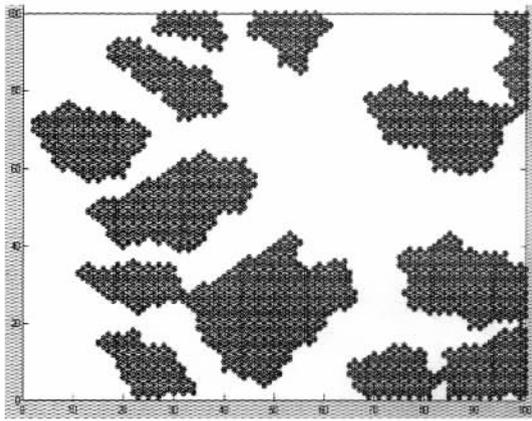
间  $\tau_s$  和单位时间内扩散步数  $\nu$  可表示为<sup>[9]</sup>

$$\tau_s = \exp(E_a/kT) \nu, \quad (1)$$

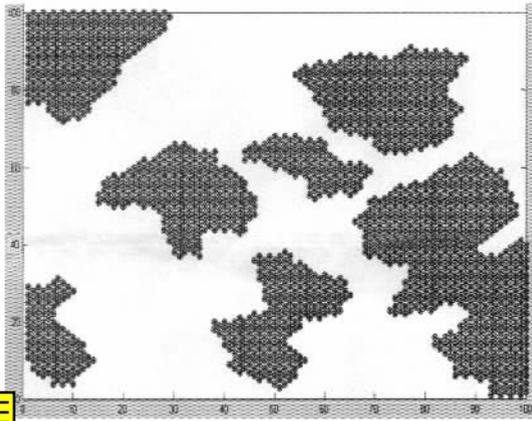
$$\nu = \nu \exp(-E_d/kT), \quad (2)$$



(a)



(b)



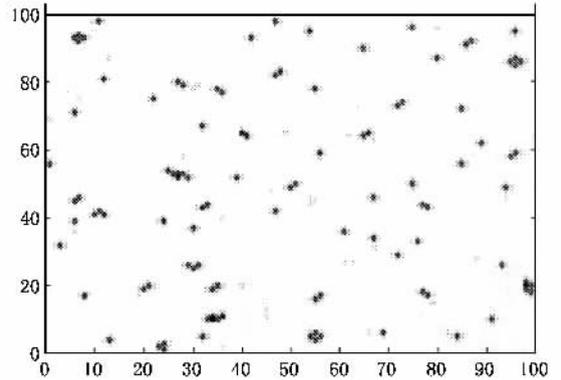
(c)

图2 Ge/Si 超薄晶体膜生长时沉积粒子迁移能力由小到大影响薄膜生长形式的模拟结果

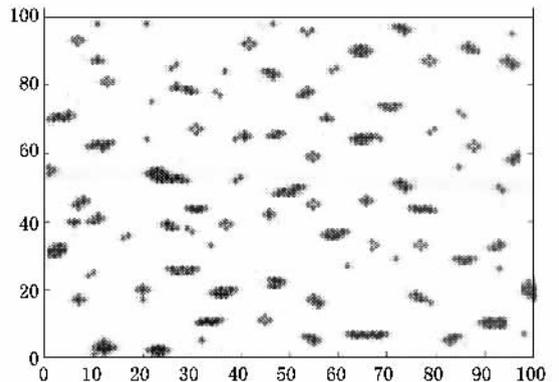
式中  $E_a$  为吸附能, 决定沉积原子在衬底上的驻留时间;  $E_d$  为扩散激活能, 决定沉积原子在衬底上的扩散步数;  $\nu$  为沉积原子的振动频率;  $T$  为衬底的绝对温度;  $k$  为波尔兹曼常数.

沉积原子的吸附能越小, 衬底的温度越高, 沉积原子驻留时间就越短, 同时扩散激活能越小, 扩散步数越多. 这种情况对应模拟模型中增原了再跃迁的概率增大. 图 2(a)(b)(c) 所示为模拟 Ge/Si 超薄晶体膜生长时改变增原子再跃迁概率所得到的结果. 较小的跃迁概率对应凝团数目很多(图 2(a)), 而且每个凝团的尺寸都比较小; 较大的跃迁概率对应凝团数目逐渐减小(图 2(c)), 而且每个凝团的相对尺寸逐渐变大.

从中可以看出, 在小的吸附能和小的扩散激活能及较高的衬底温度下, 沉积粒子在衬底上的运动越来越充分, 粒子通过足够多的随机运动而相互结合在一起, 使得独立凝团的数目减小, 凝团尺寸增加.



(a)



(b)

图3 Ge/Si 超薄晶体膜生长时形核密度出现饱和现象的模拟结果(颜色深浅代表粒子沉积在不同层面上)

## 5. 凝团核心饱和密度

沉积粒子在滞留时间内沿基体表面作扩散运动的平均距离  $\bar{X}$  可表示为<sup>[9]</sup>

$$\bar{X} = \sqrt{2} a \exp\left(\frac{E_a - E_d}{2kT}\right), \quad (3)$$

式中  $a$  为常数, 是两个吸附位置之间的跃迁距离.

如果几个粒子组成的两个核心相距很近, 已在它们的平均扩散距离  $\bar{X}$  之内, 就可能形成小岛, 而不可能形成第三个核心, 这时其它增原子都会加入这个小岛中. 这就意味着凝团核心密度存在饱和值.

模拟中发现随着沉积总粒子数越来越多, 对于不同的  $E_a$  和  $E_d$ , 当凝团数目的增加到达一定程度后就不再变大, 然后随着凝团的逐渐变大而相互兼并, 如图 3(a)(b) 所示. 这表明凝团距离小于粒子平均扩散距离之后, 凝团数目达到饱和, 不会再增大. 落在衬底的粒子不能再形成独立的凝团, 只能扩

散加入到已形成的凝团中, 凝团长大互相兼并.

## 6. 结 论

本文建立了一种新的模型, 用于超薄晶体膜生长过程的数值模拟, 通过引入网格和俘获截面的概念来考虑增原子与最近邻原子、次近邻原子及衬底原子之间的相互作用关系, 以此决定粒子运动的方式, 使模拟过程变得简单、直接、有效. 以 Ge/Si 超薄晶体膜生长为例, 成功地模拟了分形生长与团簇生长两种不同的生长方式, 它们分别对应薄膜沉积时衬底的较低温度与较高温度; 模拟研究了激活能和吸附能对薄膜生长形态的影响; 同时对沉积总粒子数与形核数目的关系进行了模拟研究, 表明当形核数目达到一定之后, 再沉积粒子只是促使形核长大, 而不能使形核数再增加. 这些模拟结果都与已有的实验结果相符合, 证明所建立的模型是正确的.

[1] Ozawa S *et al* 1996 *Thin Solid Films* **272** 172

[2] Wu F M *et al* 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 1427 [in Chinese] 吴锋民等 1998 物理学报 **47** 1427

[3] Zhang Q Y *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 297 [in Chinese] 张庆瑜等 2000 物理学报 **49** 297

[4] Zhuang J *et al* 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 2418 [in Chinese] 庄 军等 1997 物理学报 **46** 2418

[5] Zhang Q Y *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1124 [in Chinese] 张庆瑜等 2000 物理学报 **49** 1124

[6] Yang N *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2225 [in Chinese] 杨 宁等 2000 物理学报 **49** 2225

[7] Wei H L *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 791 [in Chinese] 魏合林等 2000 物理学报 **49** 791

[8] Wang X P *et al* 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1412 [in Chinese] 王晓平等 1999 物理学报 **48** 1412

[9] Yang L Y *et al* 1991 *Thin Film Technology of Materials* (People's Transportation Press) [in Chinese] [杨烈宇等 1991 材料表面薄膜技术 (人民交通出版社)]

# Computer simulation of ultra-thin crystal film growth

Wang Pei-Lin Ding Tian-Hua Cai Xun

(Key Laboratory of High Temperature Materials and Testing School of Materials Science and Engineering, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200030, China)

(Received 13 May 2001; revised manuscript received 27 July 2001)

### Abstract

A new model is proposed to simulate the whole process of ultra-thin crystal film growth. The concepts of reseau and seize section are introduced to treat the complex relationship among atoms. The effects of diffusion, substrate temperature, etc., on the growth of the Ge/Si ultra-thin crystal film are studied.

**Keywords:** crystal film, model, simulation

**PACC:** 6855, 6870, 0555