

异质外延生长中应变对圆形岛形貌稳定性的影响*

王静 冯露[†] 郝毅 赵洋 陈振飞

(天津市现代工程力学重点实验室, 天津 300072)

(天津大学机械学院力学系, 天津 300072)

(2013年7月17日收到; 2013年8月31日收到修改稿)

本文利用 BCF 模型研究了应变对圆形岛形貌稳定性的影响. 通过 Gibbs-Thomson 关系将应变引入该模型中, 讨论了在失配应变、外场应变以及沉积流量、线张力和远场流量等因素共同作用下圆形岛的稳定性, 并得到了相应的扰动增长率以及临界沉积流量. 研究表明: 较大的失配应变和远场流量都能促进岛在生长过程中失稳, 而线张力可以抑制岛的失稳. 随着岛的生长, 岛的半径越大越趋于稳定, 当岛生长到临界半径后, 临界沉积流量随着失配应变的增大而增大. 在外场应变存在的情况下, 外场负应变对岛的生长起稳定作用并使临界沉积流量减小; 相反, 正应变促进岛的失稳, 且使临界流量增大. 这些结论对在薄膜生长过程中控制原子岛的形貌及其稳定性提供了重要的理论依据.

关键词: 形貌稳定性, 失配应变, 外场应变, 圆形岛

PACS: 81.15.Aa, 68.55.J-, 68.35.Gy, 68.43.Jk

DOI: 10.7498/aps.62.238102

1 引言

薄膜材料广泛应用于光学材料、铁电材料、超导体及新型器件中^[1], 薄膜的最终质量与其初期生长的单原子层二维岛密切相关. 原子岛在生长过程中受到原子在表面的扩散势垒、沉积流量及弹性变形等因素的影响. 失配应变和外应变可以明显改变原子的扩散势垒, 而选取一定的沉积流量也可以控制和改变原子在表面的扩散^[2-4], 因此为了更好的控制薄膜的生长条件, 提高薄膜制备质量, 探讨原子岛在生长过程中各种复杂的微观过程及其稳定性具有重要意义.

研究薄膜生长形貌演化过程的方法主要有实验方法、数值模拟和理论分析. 薄膜生长过程中的形态演化是发生在原子尺度上的动态过程, 已有相关实验对此过程中的生长模式、相互扩散以及台阶稳定性等主要微观过程进行了观察和分析^[5-7]. 为了弥补现有实验手段的不足, 借助模拟方法可以很好地再现薄膜的生长过程^[8-10]. 早期 Jou

等^[11]采用数值模拟的方法研究了远场应变和失配应变存在时微结构的形貌演化过程. 近几年, 王晓平等^[2]和陈成等^[12]也分别使用了动力学蒙特卡罗方法和晶体相场法模拟了异质外延过程中晶格失配对成核和界面层形态演化的影响.

基于薄膜稳定性的理论研究始于 Mullins 和 Sekera^[13], 他们对球形原子岛的形貌稳定性进行了分析, 并得到了临界岛半径. 之后, 很多研究者采用速率方程等理论方法对薄膜形貌的生长过程及其稳定性进行了研究^[14-17]. Colin^[18-20]分别对球形颗粒和圆柱形沉淀的形貌稳定性进行了理论分析. 结果显示临界半径随着失配应变的增大而明显减小, 并且最不稳定性波数和临界波数随着失配应变的增大而近似线性增长. 早在 1951 年, Burton, Cabrera 和 Frank^[21]首次提出半离散的 BCF 模型, 该模型描述了薄膜生长过程中原子的扩散过程和台阶的运动. 在 BCF 模型的基础上, 许多工作者对 BCF 模型做了修改和延伸. 他们在前人的基础上将 E-S 能量势垒、线张力、吸附-脱附率和表面扩散等因素作为边界条件引入 BCF 模型中^[22,23]. 随

* 国家自然科学基金(批准号: 11272231, 11072169)资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: lufeng20132011@126.com

后, Li, Rätz 和 Voigt^[24] 分析了在动力学边界条件下外延原子岛的线性稳定性, 发现在原子岛的生长过程中存在一个稳定的临界岛半径, 当大于该临界半径时, 原子岛会稳定生长. 他们还发现, 当线张力或表面扩散存在时, 岛会一直稳定生长. 2007 年, Hu 等^[25] 利用 BCF 模型, 考虑了沉积流量、线张力、表面扩散和远场流量等因素同时存在时对二维圆形岛稳定性的影响, 发现了临界岛半径和临界沉积流量, 当达到临界半径时, 沉积流量大于临界流量将会导致失稳. 本文将基于 Hu 等^[25] 的理论研究, 采用 BCF 模型, 对应变存在时圆形岛的稳定性进行理论分析. 在求解过程中, 利用 Gibbs-Thomson 关系将应变作为边界条件引入 BCF 模型中, 即在 BCF 模型的基础上建立弹性失稳机理. 并对只考虑失配应变和同时考虑失配和外应变这两种情况下岛的稳定性进行分析.

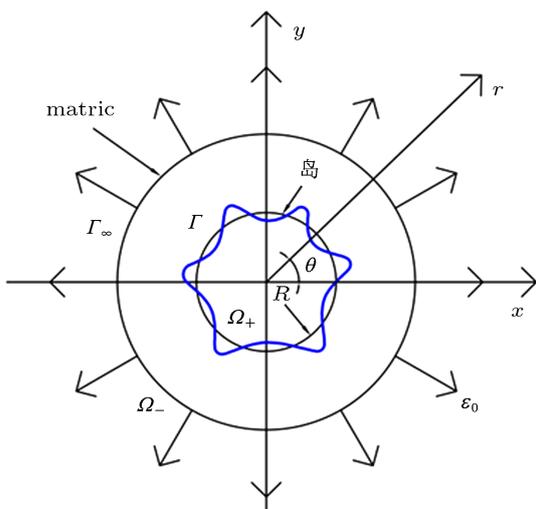


图1 基底上半径为 R 的圆形岛示意图

2 数学模型及公式推导

2.1 初始扩散场方程

如图 1 所示, 考虑一个半径为 R 的二维圆形岛位于无限大的理想基底上. 定义 $\Omega_+(t)$ 为圆形岛所占区域, $\Omega_-(t)$ 为基底所占区域, $\Gamma(t)$ 为岛/基底系统的边界. $\rho = \rho(x, y, t)$ 为圆形岛上的原子浓度. 在极坐标 (r, θ) 下, 扩散方程可以写为

$$-D\nabla^2\rho = F, \quad \Omega_+(t) \cap \Omega_-(t), \quad (1)$$

其中, D 和 F 分别为扩散常数和沉积流量. 在岛/基

底界面处引入动力学边界条件

$$D\nabla\rho_- \cdot \mathbf{n} = k_-(\rho_- - \rho_{\text{eq}}), \quad \text{在 } \Gamma(t), \quad (2)$$

其中, \mathbf{n} 为岛/基底界面法向量, k_- 为动力吸附率. ρ_{eq} 为连续台阶上平均原子浓度, 根据 Gibbs-Thomson 关系有 $\rho_{\text{eq}} = \rho^* \left(1 + \Gamma_D k + \frac{\Gamma_D}{\gamma} g^e \right)$. Γ_D 为曲率常数, k 为边界 $\Gamma(t)$ 的曲率, γ 为线张力, g^e 为弹性能密度.

考虑远场流量施加于半径为 R_∞ 的外边界 Γ_∞ 上

$$\frac{1}{2\pi} \int_{\Gamma_\infty} D\nabla\rho_0 \cdot \mathbf{n} d\Gamma = J, \quad \text{在 } \Gamma_\infty, \quad (3)$$

其中, J 为远场流量. 岛的生长速度为

$$V = -D\nabla\rho \cdot \mathbf{n}, \quad \text{在 } \Gamma(t). \quad (4)$$

2.2 初始弹性场

由于原子岛和基底材料的晶格常数不同而存在失配应变 ϵ^* , 对于均质材料, 失配应变可以定义为 $\epsilon_{rr}^{c,*} = \epsilon_{\theta\theta}^{c,*} = \epsilon^* = \frac{a_c - a_m}{a_c}$. 其中, a_c 和 a_m 分别为岛和基底材料的晶格常数. 故在原子岛中, 各向同性线弹性本构关系可以表示为

$$\sigma_{ij}^{c,0} = 2\mu_c \left(\epsilon_{ij}^{c,0} + \frac{\nu_c}{1-2\nu_c} \epsilon_{kk} \delta_{ij} - \frac{1+\nu_c}{1-2\nu_c} \epsilon^* \delta_{ij} \right), \quad (5)$$

在基底中, 本构关系为

$$\sigma_{ij}^{m,0} = 2\mu_m \left(\epsilon_{ij}^{m,0} + \frac{\nu_m}{1-2\nu_m} \epsilon_{kk} \delta_{ij} \right). \quad (6)$$

其中, $\sigma_{ij}^{c,0}$ ($\sigma_{ij}^{m,0}$) 和 $\epsilon_{ij}^{c,0}$ ($\epsilon_{ij}^{m,0}$) 分别为岛 (基底) 的应力和应变, μ_c (μ_m) 和 ν_c (ν_m) 分别为岛 (基底) 的剪切模量和泊松比, δ_{ij} 克罗内克符号.

该系统应满足的应变平衡方程及几何方程分别为

$$\sigma_{ij,j}^{p,0} = 0, \quad (7)$$

$$\epsilon_{ij}^{p,0} = \frac{1}{2} (\partial_j u_i^{p,0} + \partial_i u_j^{p,0}), \quad (8)$$

其中, $p = c, m$ 分别指岛和基底. 将 (5)–(7) 式代入 (8) 式中. 该系统可以看成是轴对称问题, 可得到用

位移表示的平衡方程为 $\frac{d^2 u_r^{p,0}}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{du_r^{p,0}}{dr} - \frac{u_r^{p,0}}{r^2} = 0$,

故解得岛和基底的初始位移解为 $u_r^{p,0} = C_p r + D_p \frac{1}{r}$. 其中, C_p 和 D_p 为待定系数. 当 $r = 0$ 时, 岛中心的

位移不可能为无限大, 故 $D_c = 0$. 其他系数可以由下列边界条件确定.

假设在界面处岛与基底的晶格点阵完全联接, 即没有失配位错. 则岛/基底系统在界面处应满足位移连续和应力连续的边界条件

$$u_r^{c,0} = u_r^{m,0}, \sigma_{rr}^{c,0} = \sigma_{rr}^{m,0}. \quad (9)$$

在薄膜表面存在着表面力, 各种因素可以产生表面力, 如外界施加的应力、表面应力、外延应变和热应力. 特别是, 表面应力及外延失配应变产生的体力可导致岛和岛之间的弹性相互作用. 这种弹性相互作用在薄膜表面的纳米结构的自组织演化过程中起着重要的作用, 故在该 BCF 模型中引入外场应变是十分必要的. 我们可以假定在基底上施加外场径向应变 ε^0 , 则在远离原子岛的基底应满足

$$\lim_{r \rightarrow \infty} \varepsilon_{rr}^{m,0} = \varepsilon^0, \quad (10)$$

确定 C_p 和 D_p 后, 可得到岛和基底的弹性场, 比如

$$\sigma_{rr}^{c,0} = \frac{4\mu_m(1+\nu_c)}{(1-\nu_m)[1+\nu_c+\zeta(1-\nu_c)]} \varepsilon^0 - \frac{2\mu_m(1-\nu_c^2)}{(1-2\nu_c)[1+\nu_c+\zeta(1-\nu_c)]} \varepsilon^*, \quad (11)$$

其中, $\zeta = \frac{\mu_m}{\mu_c}$ 为剪切比.

2.3 无量纲化

将长度、时间、应力和剪切模量无量纲化

$$\hat{x} = \frac{x}{R_\infty}, \hat{t} = \frac{tD}{R_\infty^2}, \hat{\sigma}_{ij} = \frac{\sigma_{ij}}{\mu_m}, \hat{\mu}_c = \frac{\mu_c}{\mu_m}, \hat{\mu}_m = \frac{\mu_m}{\mu_m} = 1.$$

从而得到 (1)—(4) 式的无量纲形式为

$$-\hat{\Delta}\rho = \Lambda, \quad \text{在 } \hat{\Omega}_+(t) \cap \hat{\Omega}_-(t), \quad (12)$$

$$\xi_- \hat{\nabla}\rho_- \cdot \mathbf{n}$$

$$= \rho_- - \rho^*(1 + \delta\hat{k} + \lambda\hat{g}^e), \quad \text{在 } \hat{\Gamma}(t), \quad (13)$$

$$\frac{1}{2\pi} \int_{\hat{\Gamma}_\infty} \hat{\nabla}\rho_0 \cdot \mathbf{n} d\hat{\Gamma} = \Psi, \quad \text{在 } \hat{\Gamma}_\infty, \quad (14)$$

$$\hat{V} = -\hat{\nabla}\rho \cdot \mathbf{n} \quad \text{在 } \hat{\Gamma}(t). \quad (15)$$

其中

$$\Lambda = \frac{FR_\infty^2}{D}, \xi_- = \frac{D}{k_- R_\infty}, \delta = \frac{\Gamma_D}{R_\infty}, \lambda = \frac{\Gamma_D \mu_m}{\gamma}, \Psi = \frac{J}{D}$$

分别为沉积流量、动力吸附率、线张力、弹性能和表面能的相对比例以及远场流量项的无量纲常数. 为书写方便, 下文的公式中将无量纲量上的^号舍去.

求解 (12)—(15) 式, 得到初始原子浓度以及岛生长速度的表达式如下:

$$\rho(r,t) = \frac{\Lambda}{4}(R^2 - r^2) + \left(\Psi + \frac{\Lambda}{2}\right) \ln \frac{r}{R} + \frac{\Lambda\xi_-}{2R}(1 - R^2) + \frac{\Psi\xi_-}{R} + \rho^* \left(1 + \frac{\delta}{R} + \lambda g^{e,0}\right), \quad (16)$$

$$\dot{R}(t) = \frac{\Lambda}{2R}(1 - R^2) + \frac{\Psi}{R}. \quad (17)$$

3 线性稳定性分析

在扩散场和弹性场中引入如下小扰动:

$$\tilde{\rho}(r, \theta, t) = \rho(r, t) + \varepsilon \rho_1, \quad (18)$$

$$\tilde{R}(\theta, t) = R(t) + \varepsilon R_1. \quad (19)$$

其中, $\rho_1 = \rho_{1,l} \cos l\theta$ 和 $R_1 = R_{1,l} \cos l\theta$ 为扰动项, ε 为小参数, l 为波数.

下面将求解受扰动后的弹性场, 从而得到扰动后的弹性能密度. 在岛/基底系统中引入小扰动 $R_{1,l} \cos l\theta$ 后, 可以假设岛和基底的应力函数^[26] 分别为

$$\Phi_c^{\text{rel}}(r, \theta) = (A_c r^l + B_c r^{l+2}) \cos l\theta, \quad (20)$$

$$\Phi_m^{\text{rel}}(r, \theta) = (A_m r^{-l} + B_m r^{-l+2}) \cos l\theta. \quad (21)$$

通过应力函数可以求得受扰动的应力 $\sigma_{ij}^{\text{p,rel}}$ 和应变 $\varepsilon_{ij}^{\text{p,rel}}$, 比如

$$\sigma_{rr}^{\text{c,rel}} = \frac{1}{r} \frac{\partial \Phi_c^{\text{rel}}}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 \Phi_c^{\text{rel}}}{\partial \theta^2} = [A_c r^{l-2}(l-l^2) + B_c r^l(2+l-l^2)] \cos l\theta, \quad (22)$$

$$\varepsilon_{rr}^{\text{c,rel}} = \frac{1}{2\mu_c(1+\nu_c)} (\sigma_{rr}^{\text{c,rel}} - \nu_c \sigma_{\theta\theta}^{\text{c,rel}}) = \frac{\cos l\theta}{2\mu_c(1+\nu_c)} [A_c r^{l-2}(l-l^2)(1+\nu_c) + B_c r^l(1+l)(2-l-l\nu_c-2\nu_c)], \quad (23)$$

其中, A_c, B_c, A_m 和 B_m 为待定系数, 可以由下列位移和应力边界条件确定.

$$u_i^{c,0} + u_i^{\text{c,rel}} = u_i^{m,0} + u_i^{\text{m,rel}}, \quad (24)$$

$$(\sigma_{ij}^{c,0} + \sigma_{ij}^{\text{c,rel}}) n_j - (\sigma_{ij}^{m,0} + \sigma_{ij}^{\text{m,rel}}) n_j = 0. \quad (25)$$

其中, $n_j = \left(1, \frac{\varepsilon R_{1,l}}{R} l \sin l\theta\right)$. 根据 Leo 和 Sekerka^[27], 受扰动后的弹性能密度可以表示为

$$\tilde{g}^e = g^{e,0} + \varepsilon g^{e,\text{rel}} + \Theta(\varepsilon^2) = \frac{1}{2} \sigma_{ij}^{\text{c,tot}} (\varepsilon_{ij}^{\text{c,tot}} - \varepsilon_{ij}^{\text{c,*}}) - \frac{1}{2} \sigma_{ij}^{\text{m,tot}} \varepsilon_{ij}^{\text{m,tot}}$$

$$+ \sigma_{ij}^{m,tot} (\varepsilon_{ij}^{m,tot} - \varepsilon_{ij}^{c,tot}). \quad (26)$$

$$\varepsilon_{ij}^{m,tot} = \varepsilon_{ij}^{m,0} + \varepsilon_{ij}^{m,rel}.$$

其中, $\sigma_{ij}^{p,tot} = \sigma_{ij}^{p,0} + \sigma_{ij}^{p,rel}$, $\varepsilon_{ij}^{c,tot} = \varepsilon_{ij}^{c,0} + \varepsilon_{ij}^{c,rel} + \varepsilon_{ij}^{c,*}$,

将初始弹性场的应力 $\sigma_{ij}^{p,0}$ 、应变 $\varepsilon_{ij}^{p,0}$ 以及受扰动后的应力 $\sigma_{ij}^{p,rel}$ 、应变 $\varepsilon_{ij}^{p,rel}$ 代入 (26) 式中, 得到

$$g^{e,rel} = \frac{R_1}{R} g^{elas}, \quad (27)$$

$$g^{elas} = \mu_m l \left[\frac{f_1(\zeta, v_c, v_m)}{h_1(\zeta, v_c, v_m)} (\varepsilon^0)^2 + \frac{f_2(\zeta, v_c, v_m)}{h_2(\zeta, v_c, v_m)} \varepsilon^0 \varepsilon^* + \frac{f_3(\zeta, v_c, v_m)}{h_3(\zeta, v_c, v_m)} (\varepsilon^*)^2 \right]. \quad (28)$$

$$f_1(\zeta, v_c, v_m) = -16\zeta(1 - v_m + v_c - v_c v_m - \zeta + \zeta v_c - \zeta v_m + \zeta v_c v_m)^2,$$

$$h_1(\zeta, v_c, v_m) = (\zeta + \zeta v_m - v_m + 3)(1 + v_c + \zeta - \zeta v_c)^2 (1 - v_m)^2,$$

$$\begin{aligned} f_2(\zeta, v_c, v_m) = & 4(3 + 16\zeta^2 v_c v_m + 16\zeta v_c v_m - 9\zeta + 6v_c - 4v_m + 2\zeta v_m - 16\zeta v_c - 8\zeta^2 v_c \\ & + 32\zeta^2 v_m - 8v_c v_m - 25\zeta^2 + 24\zeta v_c^3 + 8v_c^3 v_m + 6\zeta v_c^2 + 16\zeta^2 v_c^3 - 36\zeta^3 v_c \\ & + 34\zeta^2 v_c^2 + 38\zeta^3 v_m - 14\zeta^3 v_c^2 + 36\zeta^3 v_c^3 + 9\zeta^2 v_m^2 + 3\zeta v_m^2 - 16\zeta v_c^3 v_m \\ & - 16\zeta^2 v_c^3 v_m + 12\zeta v_c^2 v_m - 56\zeta^2 v_c^2 v_m - 68\zeta^3 v_c v_m - 8\zeta^2 v_c v_m^2 - 8\zeta v_c^3 v_m^2 \\ & - 26\zeta^2 v_c^2 v_m^2 - 10\zeta v_c^2 v_m^2 - 32\zeta^3 v_c v_m^2 + 32\zeta^3 v_c^3 v_m^2 - 2\zeta^3 v_c^2 v_m^2 - 3v_c^4 \\ & + 6\zeta^4 - 6v_c^3 + 25\zeta^3 + 13\zeta^3 v_m^2 + v_m^2 + 2v_c v_m^2 + 11\zeta v_c^4 - \zeta^2 v_c^4 - 2v_c^3 v_m^2 \\ & - 26\zeta^4 v_c + 38\zeta^4 v_c^2 - 11\zeta^3 v_c^4 v_m^2 + 6\zeta^4 v_m^2 - 22\zeta^4 v_c^3 + 4\zeta^4 v_c^4 - 14\zeta v_c^4 v_m \\ & + 4v_c^4 v_m - v_c^4 v_m^2 - 11\zeta^3 v_c^4 + 24\zeta^2 v_c^4 v_m - \zeta v_c^4 v_m^2 - 22\zeta^3 v_c^4 v_m - 52\zeta^4 v_c v_m \\ & + 76\zeta^4 v_c^2 v_m - 26\zeta^4 v_c v_m^2 - 44\zeta^4 v_c^3 v_m + 8\zeta^4 v_c^4 v_m + 9\zeta^2 v_c^4 v_m^2 + 12\zeta^4 v_m \\ & + 38\zeta^4 v_c^2 v_m^2 - 22\zeta^4 v_c^3 v_m^2 + 4\zeta^4 v_c^4 v_m^2), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} h_2(\zeta, v_c, v_m) = & (1 - 2v_c)(1 - v_m)(1 + v_c + \zeta - \zeta v_c)^2 (2\zeta v_m - 3 - 2\zeta v_c v_m + \zeta^2 v_c v_m - 3\zeta^2 v_m \\ & + v_m + 2\zeta v_c + v_c v_m + \zeta^2 v_c - 3\zeta^2 - 10\zeta - 3v_c), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} f_3(\zeta, v_c, v_m) = & 4(v_c^2 - 1)(3 + 11\zeta^2 v_c v_m + 2\zeta v_c v_m - 2\zeta + 3v_c - v_m - 2\zeta v_m - 6\zeta v_c + 15\zeta^2 v_c \\ & - 7\zeta^2 v_m - 19\zeta^2 - 3v_c^2 + 10\zeta v_c^3 + v_c^3 v_m + 6\zeta v_c^2 + v_c^2 v_m - 11\zeta^2 v_c^3 + 23\zeta^2 v_c^2 \\ & + 20\zeta^3 v_c - 6\zeta^3 v_m - 18\zeta^3 v_c^2 + 4\zeta^3 v_c^3 + 2\zeta v_c^3 v_m - 7\zeta^2 v_c^3 v_m + 6\zeta v_c^2 v_m - 6\zeta^3 \\ & + 11\zeta^2 v_c^2 v_m + 20\zeta^3 v_c v_m - 18\zeta^3 v_c^2 v_m + 4\zeta^3 v_c^3 v_m - 3v_c^3 - v_c v_m), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} h_3(\zeta, v_c, v_m) = & (1 - 2v_c)^2 (1 + v_c + \zeta - \zeta v_c)^2 (2\zeta v_m - 2\zeta v_c v_m + \zeta^2 v_c v_m - 3\zeta^2 v_m + 2\zeta v_c + v_c v_m \\ & - 3 + \zeta^2 v_c - 3\zeta^2 - 10\zeta + v_m - 3v_c). \end{aligned}$$

将 (18), (19) 式代入扩散场方程 (12)—(15) 中, 得到受扰动后含有一阶小量 ε 的扩散方程及边界条件为

$$\Delta \rho_1 = 0, \quad \text{在 } \Omega_+(t) \cap \Omega_-(t), \quad (29)$$

$$\begin{aligned} & \xi_-(R_1 \partial_{rr} \rho + \partial_r \rho_1) \\ = & R_1 \partial_r \rho + \rho_1 + \frac{\rho^* \delta(\partial_{\theta\theta} R_1 + R_1)}{R^2} \\ & - \rho^* \lambda g^{e,rel}, \quad \text{在 } \tilde{\Gamma}(t), \quad (30) \end{aligned}$$

$$\partial_r \rho_1 = 0, \quad \text{在 } \Gamma_\infty, \quad (31)$$

$$\partial_t R_1 = R_1 \partial_{rr} \rho + \partial_r \rho_1, \quad \text{在 } \tilde{\Gamma}(t). \quad (32)$$

利用 (16), (17) 式求解 (29)—(32) 式, 可求出扰动后的原子浓度 ρ_1 和岛的生长速度 \dot{R}_1 .

根据 Mullins 和 Sekerka^[13] 扰动增长率可以定义为

$$\omega_l = \left(\frac{R_{1,l}(t)}{R(t)} \right)^{-1} \frac{d}{dt} \left(\frac{R_{1,l}(t)}{R(t)} \right). \quad (33)$$

将求出的 \dot{R} 和 \dot{R}_1 代入 (33) 式中, 得到

$$\omega_l = \frac{l(R - \xi_-)(1 - R^2)(1 - R^{2l}) - 2R(1 + R^{2l})}{2R^2[\xi_- l(1 - R^{2l}) + R(1 + R^{2l})]} \Lambda$$

$$\begin{aligned}
 & + \frac{l(R - \xi_-)(1 - R^{2l}) - 2R(1 + R^{2l})}{R^2[\xi_- l(1 - R^{2l}) + R(1 + R^{2l})]} \Psi \\
 & - \frac{l(1 - R^{2l})\rho^* \lambda g^{\text{elas}}}{R^2[\xi_- l(1 - R^{2l}) + R(1 + R^{2l})]} \\
 & + \frac{\rho^* \delta l(1 - l^2)(1 - R^{2l})}{R^2[\xi_- l(1 - R^{2l}) + R(1 + R^{2l})]}. \quad (34)
 \end{aligned}$$

忽略弹性变形影响, 即 $g^{\text{elas}} = 0$ 代入上式中, 得到的扰动增长率与之前 Hu 等 [25] 所得到结果一致. 扰动增长率 $\omega_l > 0$ 说明界面上的扰动随时间增长, 对应的扰动波促使生长的岛不稳定. 相反, $\omega_l < 0$ 说明扰动随时间减小, 岛稳定生长.

4 结果及讨论

本节我们将分为两种情况进行讨论. 第一种情况为: 只有失配应变存在时, 失配应变、远场流量以及线张力对岛的稳定性和对临界沉积流量的影响; 第二种情况: 在失配应变和外场应变同时存在时, 外场应变对岛稳定性和临界沉积流量的影响.

4.1 只存在失配应变 ($\varepsilon^* \neq 0, \varepsilon^0 = 0$)

我们将考虑应变对最普遍的一类外延系统 (Ge/Si) 稳定性的影响. 在计算中, 方程中的相关参数分别取 $\mu_c = 54.52$ GPa, $\mu_m = 66.62$ GPa, $\nu_c = 0.21$, $\nu_m = 0.22$, $\rho^* = 1$, $\xi_- = 0.002$, $\lambda = 55.5$ Si 和 Ge 的晶格常数分别为 $a_{\text{Si}} = 5.43$ Å 和 $a_{\text{Ge}} = 5.66$ Å, 故失配应变 $\varepsilon^* = 0.04$. 将这些参数代入 (34) 式中, 可以看出扰动增长率与岛的半径 R 、波数 l 、弹性能密度、沉积流量、线张力和远场流量有关.

图 2 描述了不同失配应变下岛的扰动增长率随波数的变化. 可以看出, 随着失配应变的增大, 扰动增长率快速增大, 岛的生长越来越不稳定. 并且, 临界波数和最不稳定性波数也随着失配应变增大而增大.

图 3 显示了远场流量对岛稳定性的影响. 从图中可以看出, 远场流量的增大, 也能够使扰动增长率增大, 促使岛不稳定生长, 但是远场流量对临界波数和最不稳定性波数的影响并不明显.

线张力对岛稳定性的影响与失配应变和远场流量的作用正相反, 如图 4 所示, 当线张力增大时,

扰动增长率迅速减小, 并且临界波数和最不稳定性波数也减小. 说明线张力的存在能够抑制扰动的增长, 促使岛稳定生长. 这是因为线张力可以驱动原子通过扩散从突起处到凹进处的运动, 从而使岛稳定生长.

图 5 考察了岛的半径对稳定性的影响. 从图中可以看出, 扰动增长率随着半径的增大而减小, 说明岛的半径较大时, 有利于岛的稳定生长. 并且可以看出, 岛的半径越大, 临界波数越大, 最不稳定性波数越小, 这说明半径较大的岛失稳需要更长的时间. 因此相比小岛而言, 半径较大的岛更加稳定.

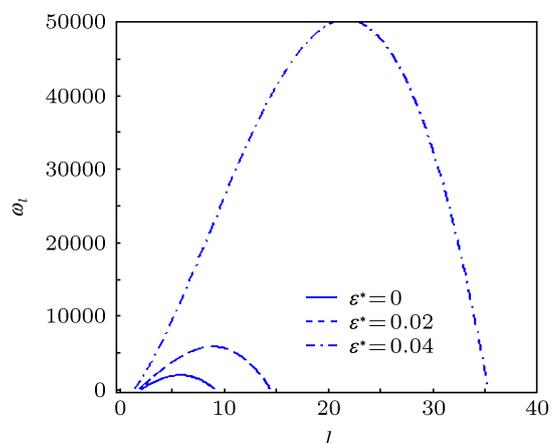


图 2 失配应变对岛稳定性的影响 ($\Lambda = 20, \Psi = 1, \delta = 0.01, R = 0.1$)

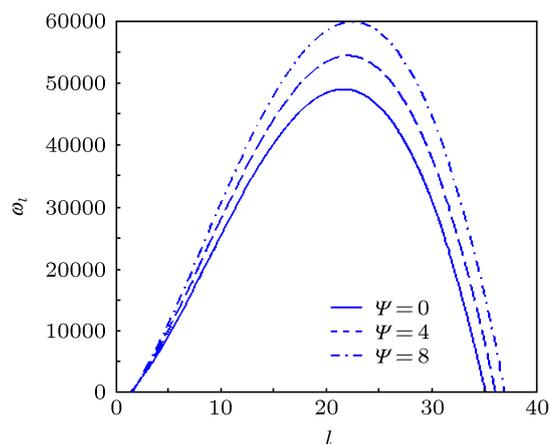


图 3 远场流量对岛稳定性的影响 ($\Lambda = 20, \delta = 0.01, \varepsilon^* = 0.04, R = 0.1$)

下面考虑失配应变对临界沉积流量的影响. 令 $\omega_l = 0$, 得到临界沉积流量表达式如下:

$$\Lambda_c = \frac{2[2R(1 + R^{2l}) - l(R - \xi_-)(1 - R^{2l})]\Psi + 2\rho^* l(1 - R^{2l})[\delta(l^2 - 1) + \lambda g^{\text{elas}}]}{l(R - \xi_-)(1 - R^2)(1 - R^{2l}) - 2R(1 + R^{2l})}. \quad (35)$$

从上式可以看出, 式中包含弹性能密度项, 说明失配应变对临界流量有影响. 如图 6 所示, 临界半径 $R_c \approx 0.545$ 将曲线分成两部分. 当 $R_c < 0.545$ 时, 临界流量随着失配应变的增加而减小; 当 $R_c > 0.545$ 时, 情况正相反. 这是因为, 当岛半径小于临界半径时, 小岛的生长是不稳定的. 失配应变越大, 小岛越容易失稳, 故临界流量越小. 当岛半径大于临界半径时, 岛会稳定生长, 而失配应变使原子的扩散势垒降低了, 导致原子的扩散能力增强. 对于一样尺寸的稳定岛来说, 在一定程度上失配应变越大需要的沉积原子就越多, 故沉积流量越大.

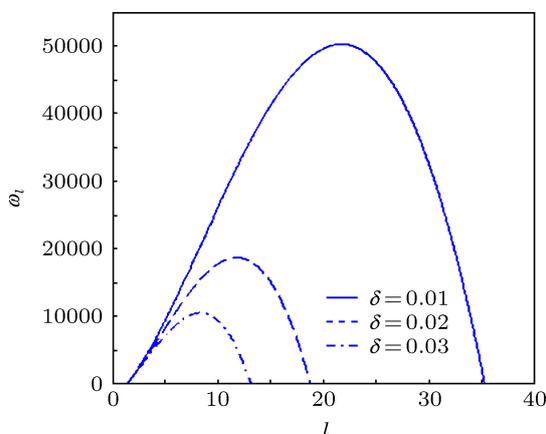


图 4 线张力对岛稳定性的影响 ($\Lambda = 20, \Psi = 1, \epsilon^* = 0.04, R = 0.1$)

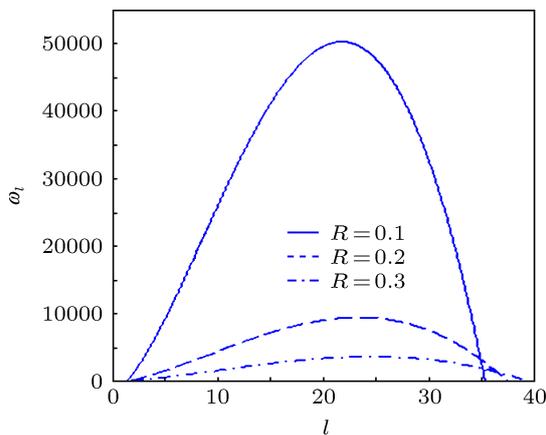


图 5 半径对岛稳定性的影响 ($\Lambda = 20, \Psi = 1, \epsilon^* = 0.04, \delta = 0.01$)

4.2 失配应变和外场应变同时存在 ($\epsilon^* \neq 0, \epsilon^0 \neq 0$)

由于外场应变对薄膜生长过程中表面形貌的形成至关重要, 故本节将考虑失配应变存在的情况下, 外场应变对岛稳定性、临界沉积流量以及岛半径的影响. 图 7 中显示了外场正应变、负应变和无

外场应变的情况. 在这三种情况中, 正应变对应的扰动增长率最大, 无应变次之, 负应变最小. 这说明正应变促进岛的失稳, 而负应变抑制岛的失稳. 这是因为失配应变 ($\epsilon^* > 0$) 导致扰动前岛内产生了压应变, 而在基底上施加的径向压应变放松了由失配应变产生的压应变, 并同时释放了存储的弹性能, 因此有利于岛的稳定生长, 这样最不稳定性波和临界波数也就减小了. 而正应变的作用正好相反.

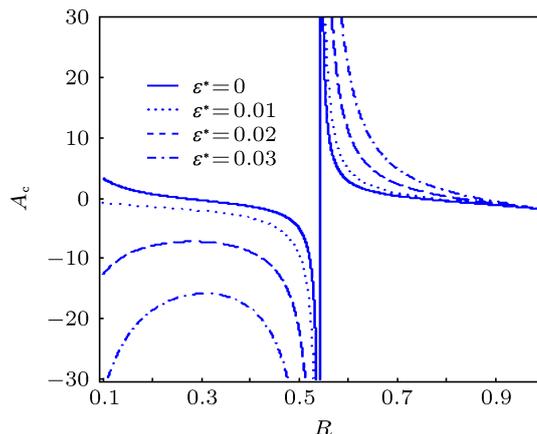


图 6 失配应变对临界沉积流量的影响 ($\Psi = 1, \delta = 0.01, l = 3$)

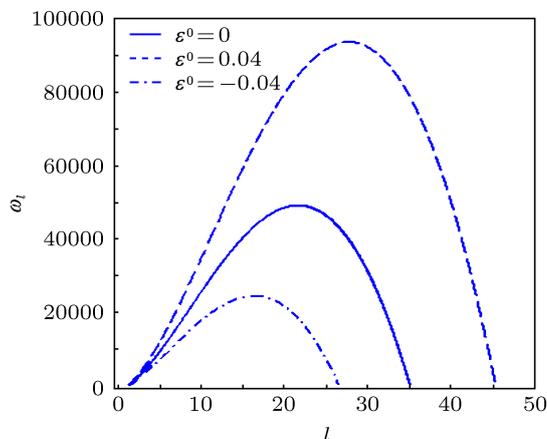


图 7 外场应变对岛稳定性的影响 ($\Lambda = 20, \Psi = 1, \delta = 0.01, \epsilon^* = 0.04, R = 0.1$)

从图 6 和图 8 中可以看出, 当波数 l 一定时, 临界半径也是确定的. 并且, 当岛半径大于 0.545 时比半径小于 0.545 时的临界流量值大. 这是因为, 小岛的缺陷位较少, 并不需要过多的原子, 故临界流量较小; 而大于临界半径的岛化学势较低, 本身比较稳定, 并且大岛有较多的缺陷位, 有吸收原子的倾向, 故需要的沉积原子多, 临界流量大. 但随着岛的不断生长, 逐渐形成了连续、平滑的薄膜表面, 需要的沉积原子也会越来越少, 故当半径 $R \in (0.545, 1)$ 时, 临界流量随着半径的增大而减小.

图 8 显示了外场正应变与负应变对临界沉积流量的影响. 当岛半径达到临界半径后, 对于固定的临界半径来说, 正应变可以提高临界流量, 而负应变使临界流量减小. 其原因与失配应变对临界流量的影响类似, 负应变使扩散势垒增加, 正应变使扩散势垒降低.

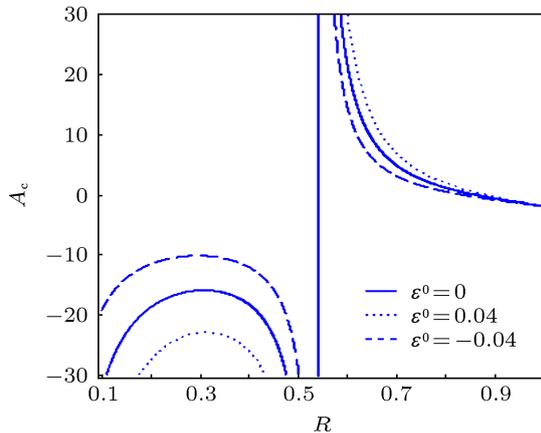


图 8 外场应变对临界沉积流量的影响 ($\Psi = 1, \delta = 0.01, \epsilon^* = 0.03, l = 3$)

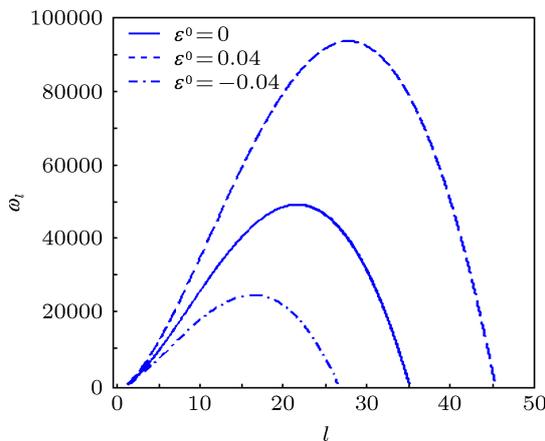


图 9 扰动增长率与半径的关系 ($\Psi = 0, \delta = 0.01, l = 5$)

图 9 显示了不同外场应变时, 在一定的沉积流量下扰动增长率随着岛半径的变化. 当不考虑失配应变和外场应变 ($\epsilon^* = 0, \epsilon^0 = 0$) 时, 我们的预测结果与文献 [25] 的预测结果一致. 此外, 我们还考虑

了失配应变、外场正应变以及负应变这三种情况下, 所得到的扰动增长率与岛半径的关系如图 9 所示. 从图中可以看出, 无应变和存在外场负应变情况下, 当岛半径较小时, 扰动就会逐渐趋于稳定; 而当只有失配应变和存在外场正应变这两种情况下, 岛半径较大时, 扰动才有明显趋于稳定的趋势. 这说明, 外场负应变可以使得岛半径较小时就稳定生长; 而外场正应变的作用正好相反, 正应变使得小半径岛趋于不稳定生长.

5 结论

本文研究了应变对圆形岛形貌稳定性的影响. 采用 BCF 模型来描述薄膜生长过程中的主要微观过程, 并利用 Gibbs-Thomson 关系将应变引入该模型中. 在此基础上, 研究了失配应变、外场应变、远场流量、线张力和岛半径等因素对原子岛稳定性的影响. 研究结果表明:

1. 失配应变促使岛不稳定生长, 随着失配应变的增大最不稳定性波和临界波的波数也增大; 并且, 当岛生长到临界半径后, 临界沉积流量随着失配应变增加而有所增加.
2. 远场流量也不利于岛的稳定生长, 但相比于失配应变, 临界波数和最不稳定性波数的变化并不明显.
3. 线张力可以促进岛的稳定生长, 并可以减小临界波数和最不稳定性波数.
4. 随着岛半径的增大, 岛的生长越稳定, 最不稳定性波数越小, 但临界波数增大.
5. 外场负应变对岛的生长起稳定作用, 当超过临界半径后, 却使临界沉积流量降低; 外场正应变的作用则正好相反.
6. 外场负应变对小半径岛的生长起稳定作用, 外场正应变促使小半径岛不稳定生长.

以上得到的结论对控制薄膜的生长条件以便制备高质量薄膜具有重要意义.

[1] Capper P, Mauk M 2007 *Liquid Phase Epitaxy of Electronic Optical and Optoelectronic Materials* (West Sussex: Wiley) p16
 [2] Wang X P, Xie F, Shi Q W, Zhao T X 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2699 (in Chinese) [王晓平, 谢峰, 石勤伟, 赵特秀 2004 物理学报 **53** 2699]
 [3] Brune H, Bromann K, Röder H, Kern K 1995 *Phys. Rev. B* **52** R14380
 [4] Song Y X, Yu Z Y, Liu Y M 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2399 (in Chinese)

[宋禹忻, 俞重远, 刘玉敏 2008 物理学报 **57** 2399]
 [5] Ling P, Kok-Keong L, Joan M R, Elizabeth C D 2005 *Nano. Lett.* **5** 1081
 [6] Maggie X, Michael C, Judy L H 2007 *Semicond. Sci. Technol.* **22** 55
 [7] Zhang B C, Zhou Xun, Luo Z J, Guo X, Ding Z 2012 *Chin. Phys. B* **21** 048101

- [8] Liu Z L, Zhang X F, Yao K L, Wei H L, Huang Y M 2004 *Chin. Phys. Soc.* **13** 2115
- [9] Wu F M, Lu H J, Wu Z Q 2006 *Chin. Phys. Soc.* **15** 0807
- [10] Qiu J H, Ding J N, Yuan N Y, Wang X Q 2012 *Chin. Phys. B* **21** 097701
- [11] Jou H J, Leo P H, Lowengrub J S 1997 *J. Comput. Phys.* **131** 109
- [12] Chen C, Chen Z, Zhang J, Yang T 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 108103 (in Chinese) [陈成, 陈铮, 张静, 杨涛 2012 物理学报 **61** 108103]
- [13] Mullins W, Sekerka R F 1963 *J. Appl. Phys.* **34** 323
- [14] Bales G S, Zangwill A 1997 *Phys. Rev. B* **55** R1973
- [15] Bales G S, Chrzan D C 1994 *Phys. Rev. B* **50** 6057
- [16] Shao Q Y, Fang R C, Zhu K G, Liao Y, Xue Z Q 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 1135
- [17] Shao Q Y, Zhang J 2011 *Chin. Phys. B* **20** 086803
- [18] Colin J 2004 *Acta Mater.* **52** 4985
- [19] Colin J 2005 *Phys. Rev. B* **71** 165403
- [20] Colin J 2007 *Int. J. Solids Struct.* **44** 3218
- [21] Burton W, Cabrera N, Frank F 1951 *Philos. Trans. R. Soc. Lond. Ser. A* **243** 299
- [22] Bales G S, Zangwill A 1990 *Phys. Rev. B* **41** 5500
- [23] Caffisch R E, Li B 2003 *Multiscale Model. Simul.* **1** 150
- [24] Li B, Rätz A, Voigt A 2004 *Phys. D* **198** 231
- [25] Hu Z Z, Li S W, Lowengrub J S 2007 *Phys. D* **233** 151
- [26] Xu Z L, Wu Y Z 1964 *Theory of elasticity* (Beijing: Higher Education Press) p122 (in Chinese) [徐芝纶, 吴永祯 1964 弹性理论 (北京: 高等教育出版社) 第 122 页]
- [27] Leo P H, Sekerka R H 1989 *Acta Metall* **37** 3119

Strain effect on the morphological instability of a circular island in heteroepitaxy*

Wang Jing Feng Lu[†] Hao Yi Zhao Yang Chen Zhen-Fei

(Tianjin Key Laboratory of Modern Engineering Mechanics, Tianjin 300072, China)

(Department of Mechanics, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

(Received 17 July 2013; revised manuscript received 31 August 2013)

Abstract

In this paper, the strain effect on the morphological instability of the circular island is studied in terms of the BCF (Burton, Cabera, Frank) model. We introduce strains into the BCF model under the Gibbs-Thomson condition and investigate the instability of the island due to the combined effect of the misfit strain, applied strain, deposition flux, line tension, and the far-field flux. Thus, we obtain the perturbation growth rate and the critical deposition flux. Results indicate that the misfit strain and the far-field flux tend to destabilize the growth of the island, and the line tension has a stabilizing effect. In addition, the larger island is more stable during the growth of the island. Up to the critical radius, as the misfit strain increases, the critical flux increases. When taking into account the applied strain, the negatively applied strain stabilizes the growth of the island and decreases the critical flux. These results are almost opposite to the case of the positive strain. This could potentially provide an important theoretical basis for controlling the growth and stability of the films.

Keywords: morphological instability, misfit strain, applied strain, circular island

PACS: 81.15.Aa, 68.55.J-, 68.35.Gy, 68.43.Jk

DOI: 10.7498/aps.62.238102

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11272231, 11072169).

† Corresponding author. E-mail: lufeng20132011@126.com