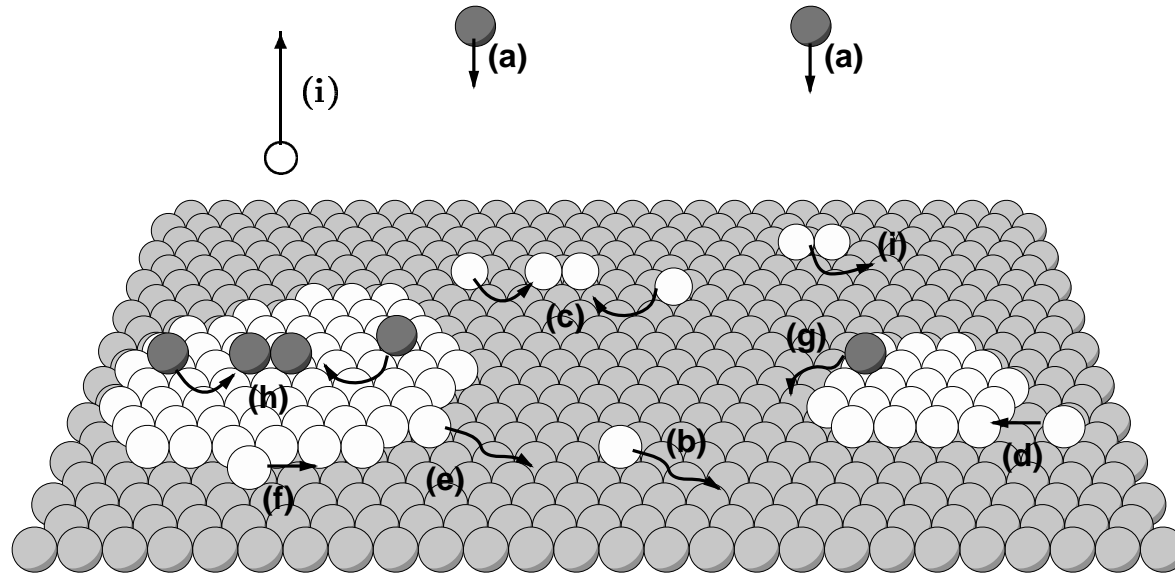


Strukturbildung und nichtlineare Dynamik auf kristallinen Oberflächen

Joachim Krug
Institut für Theoretische Physik, Universität zu Köln

- Selbstorganisierte Nanostrukturen an Kristalloberflächen
- Dynamik fern vom Gleichgewicht:
Wachstum, Sublimation, Elektromigration
- Beispiele:
 1. Bergbildung durch Stufenrandbarrieren
 2. Stufenbündeln (**step bunching**)
 3. Elektromigration von zweidimensionalen Inseln

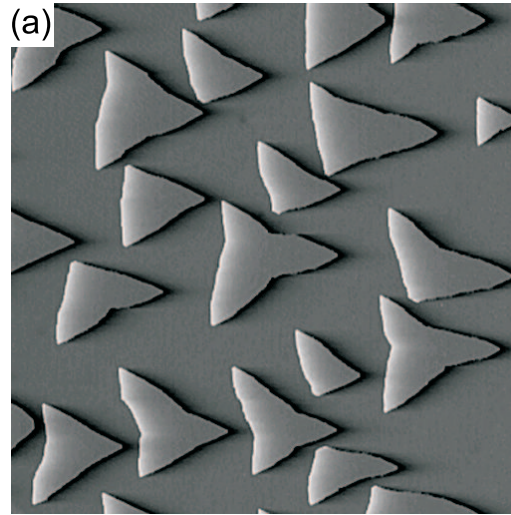
Atomare Prozesse an Kristalloberflächen



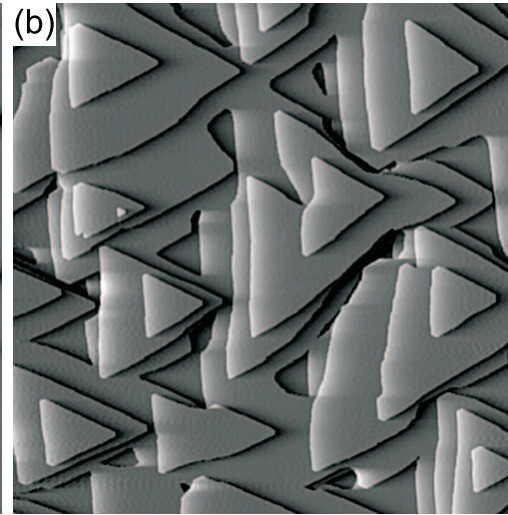
1. Bergbildung

Bergbildung auf Pt(111) bei 440 K

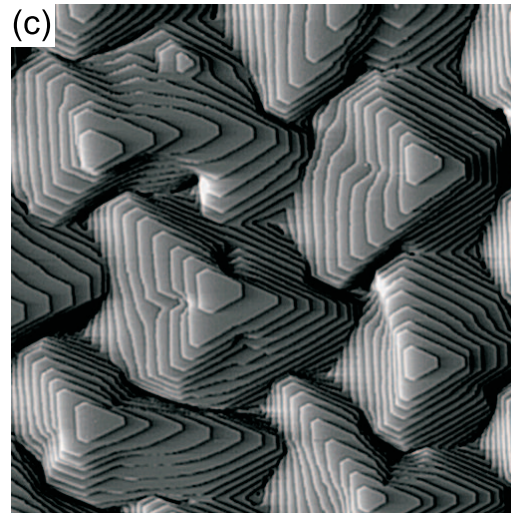
0.35 ML



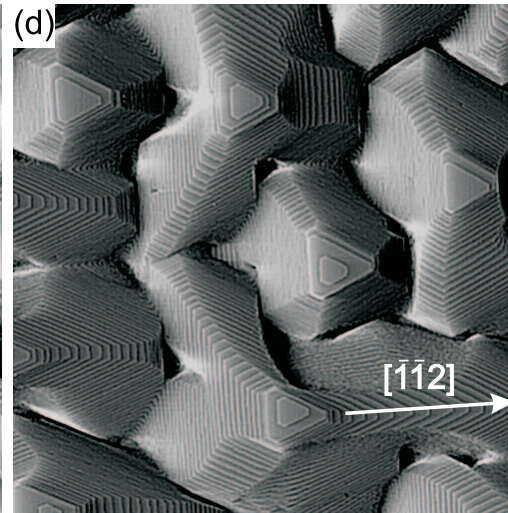
3 ML



12 ML



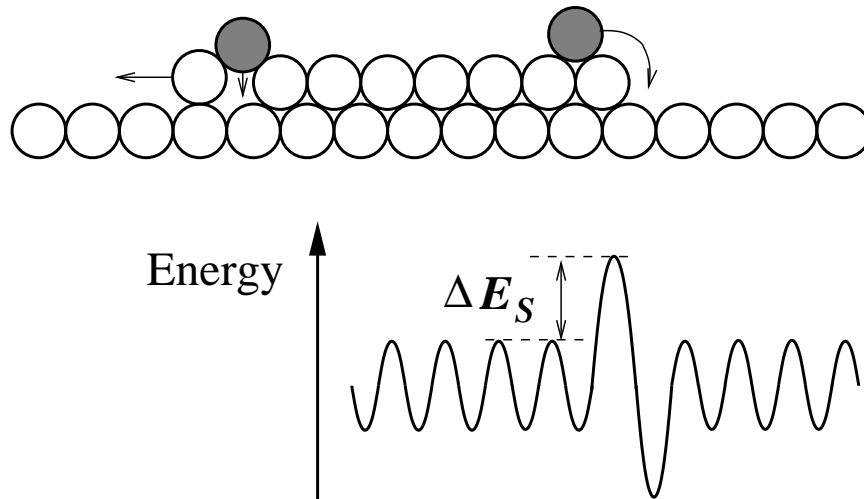
90 ML



Th. Michely, JK: Islands, Mounds and Atoms (Springer, 2004)

Der Ehrlich-Schwoebel-Effekt

[G. Ehrlich, F. Hudda (1966); R.L. Schwoebel, E.J. Shipsey (1966)]



D : Diffusion innerhalb einer Lage

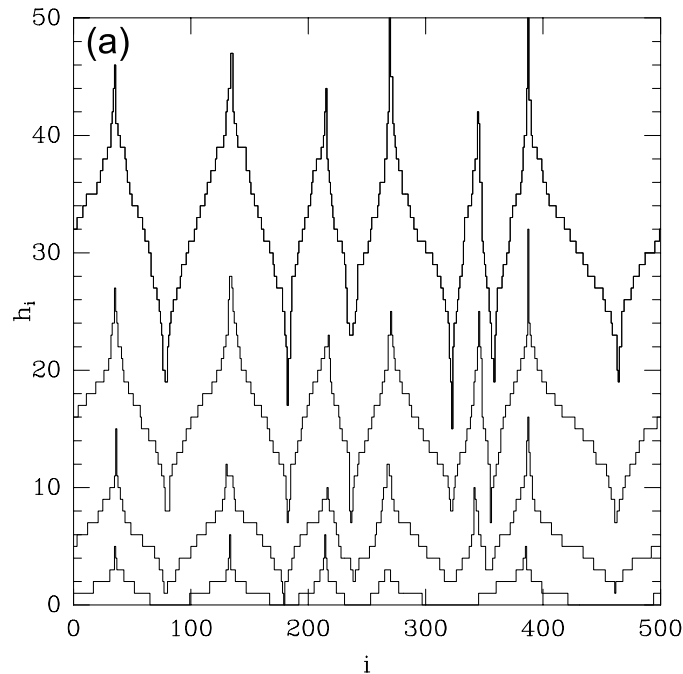
D' : Transport zwischen den Lagen

$$D'/D = \exp[-\Delta E_S/k_B T] < 1$$

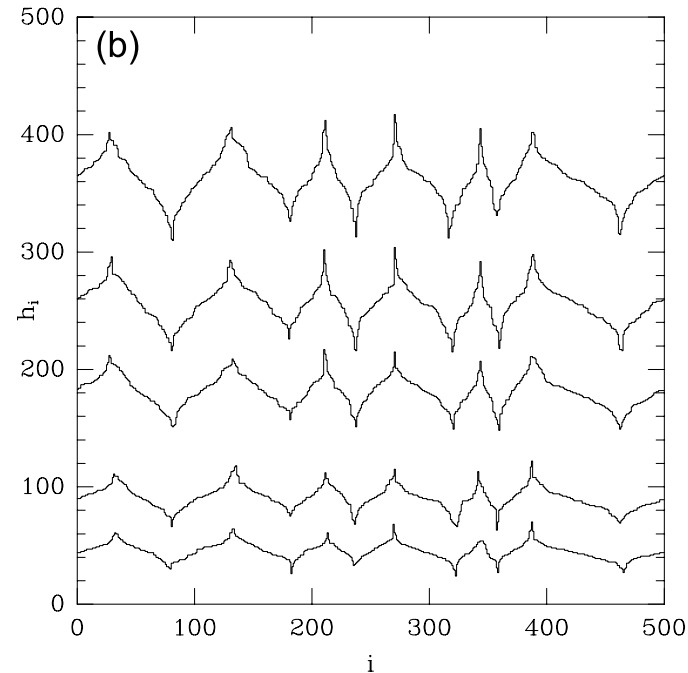
- Interlagen-Transport durch Sprünge oder Austauschprozesse wird von der **Stufenrandbarriere** ΔE_S behindert
- Längere Aufenthaltszeit auf den Inseln beschleunigt die Keimung der zweiten Lage und führt zur Bergbildung
- Versagen der klassischen Keimbildungstheorie in begrenzten Geometrien
JK, P. Politi, Th. Michely, Phys. Rev. B 61, 14037 (2000)

Eindimensionale Wachstumssimulation mit $D' = 0$

JK, J. Stat. Phys. 87, 505 (1997)



$$\Theta = 1 - 32 \text{ ML}$$



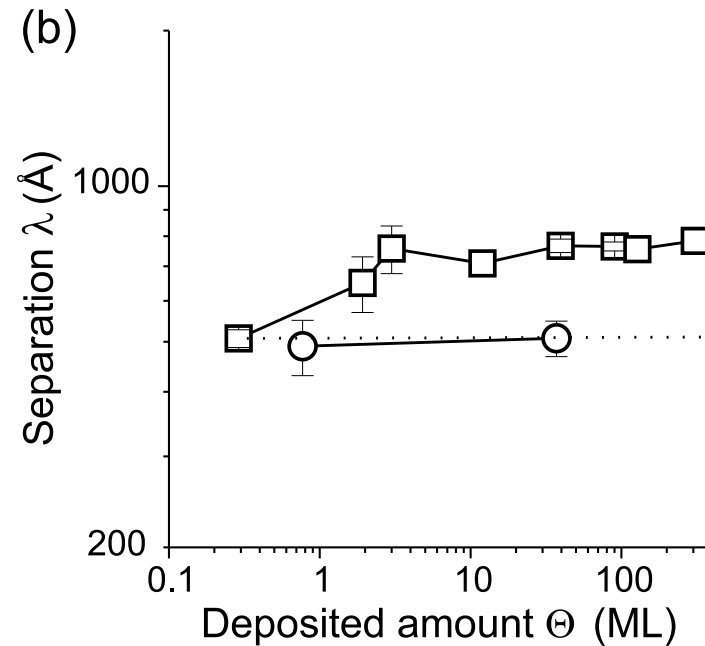
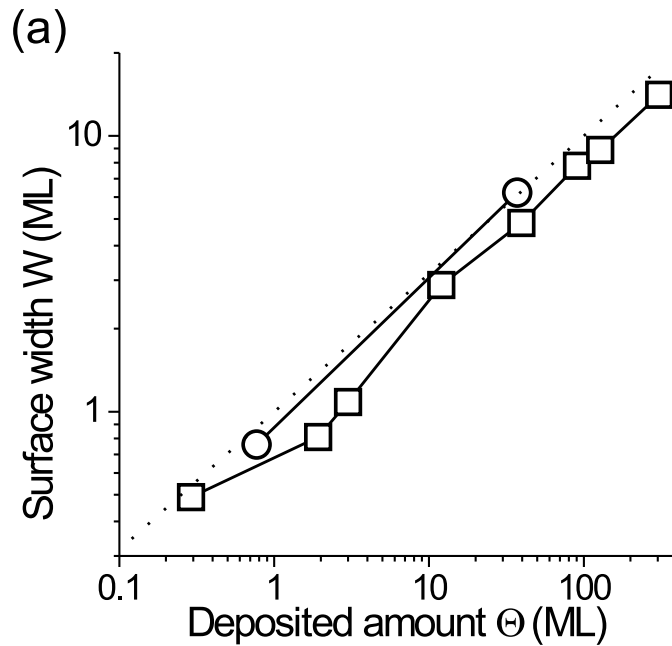
$$\Theta = 45 - 362 \text{ ML}$$

- Struktur mit fester lateraler Längenskala $\sim (D/F)^{1/4}$ F : Depositionsfluss
- Rauigkeit $W = \sqrt{\langle (h - \bar{h})^2 \rangle}$ wächst wie $\sqrt{\Theta}$

Quantitativer Test des Modells

Rauhigkeit: $W = \sqrt{\Theta}$

Breite der Berge: $\lambda = \text{const.}$

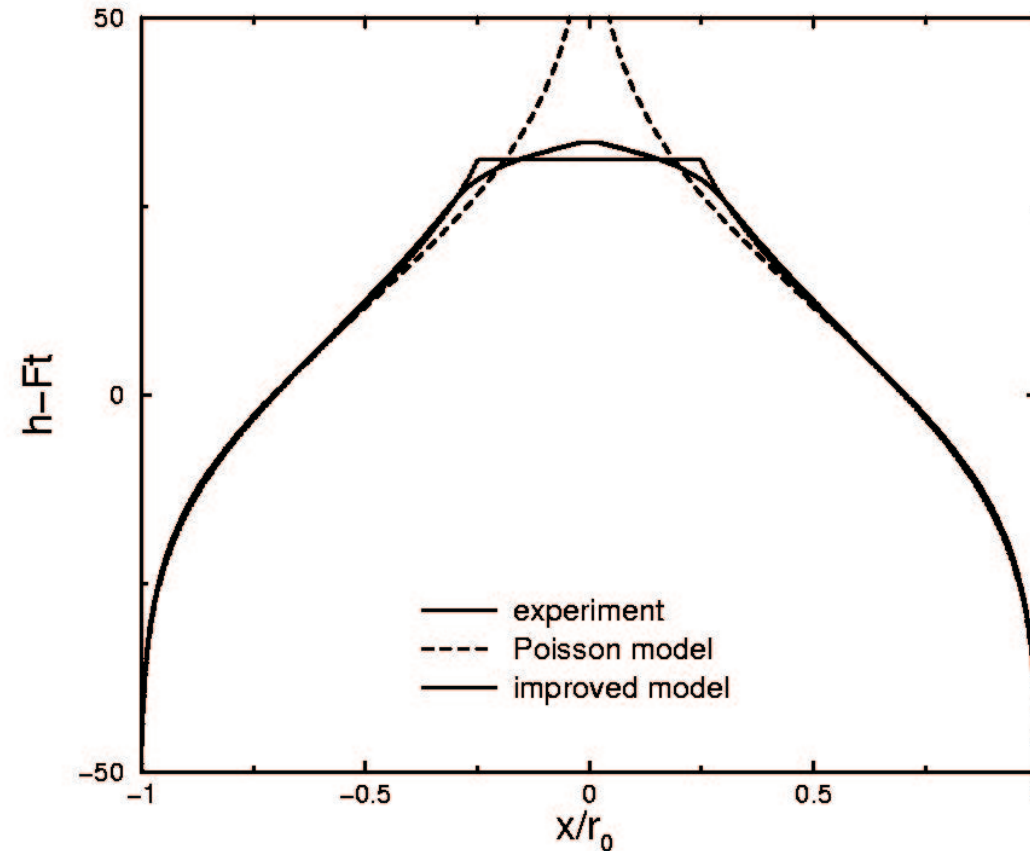


□: saubere Wachstumsbedingungen

O: Wachstum in Gegenwart von CO

Vergleich der Bergformen

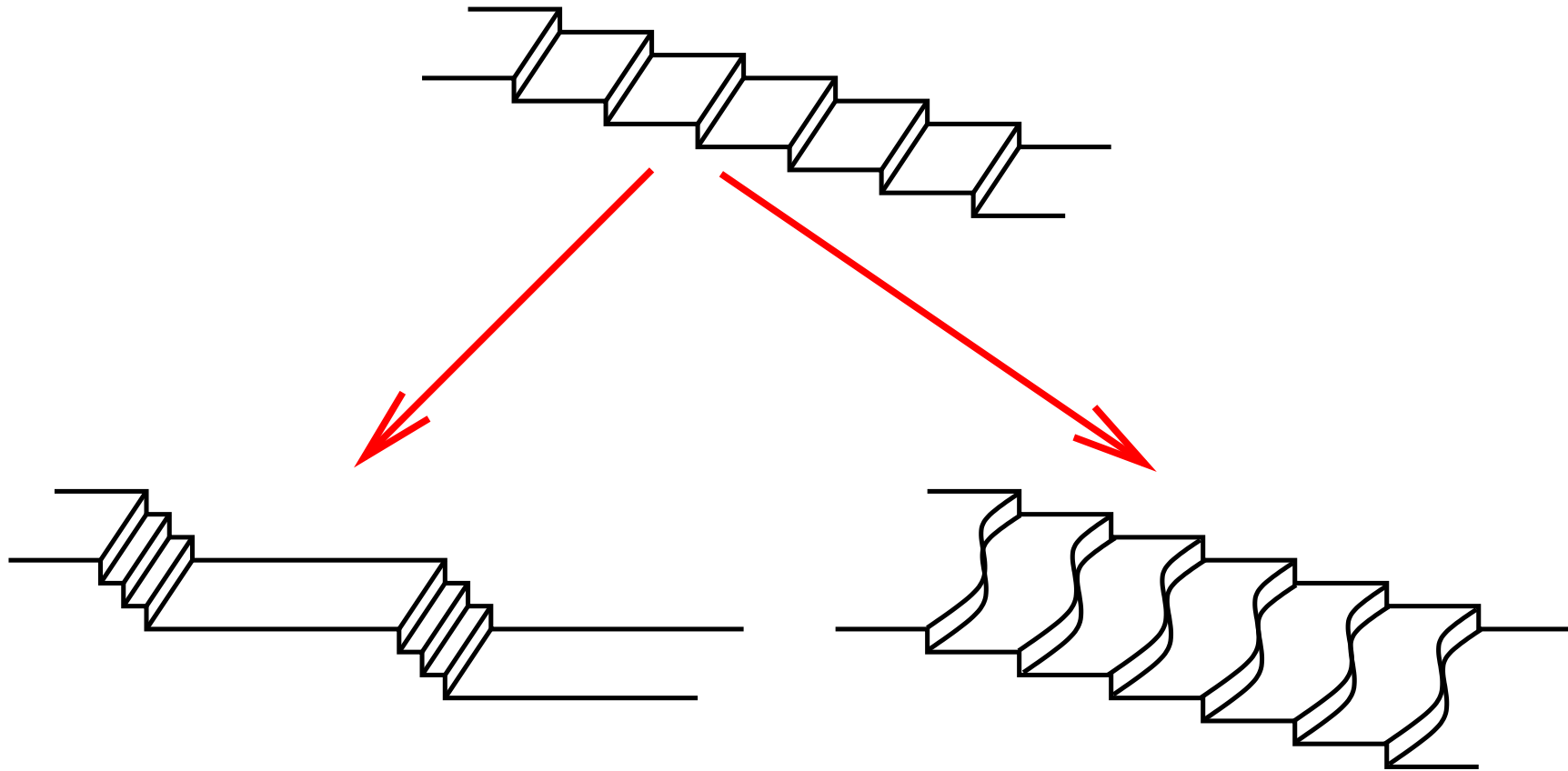
JK, P. Kuhn (2002)



- Abplattung der Spitzen wegen verzögerter Keimung auf der Gipfelterrasse
- Keimung findet statt bei Bedeckung $\theta_c \approx 0.22 \Rightarrow \Delta E_s \approx 0.14 \text{ eV}$

2. Stufenbündeln

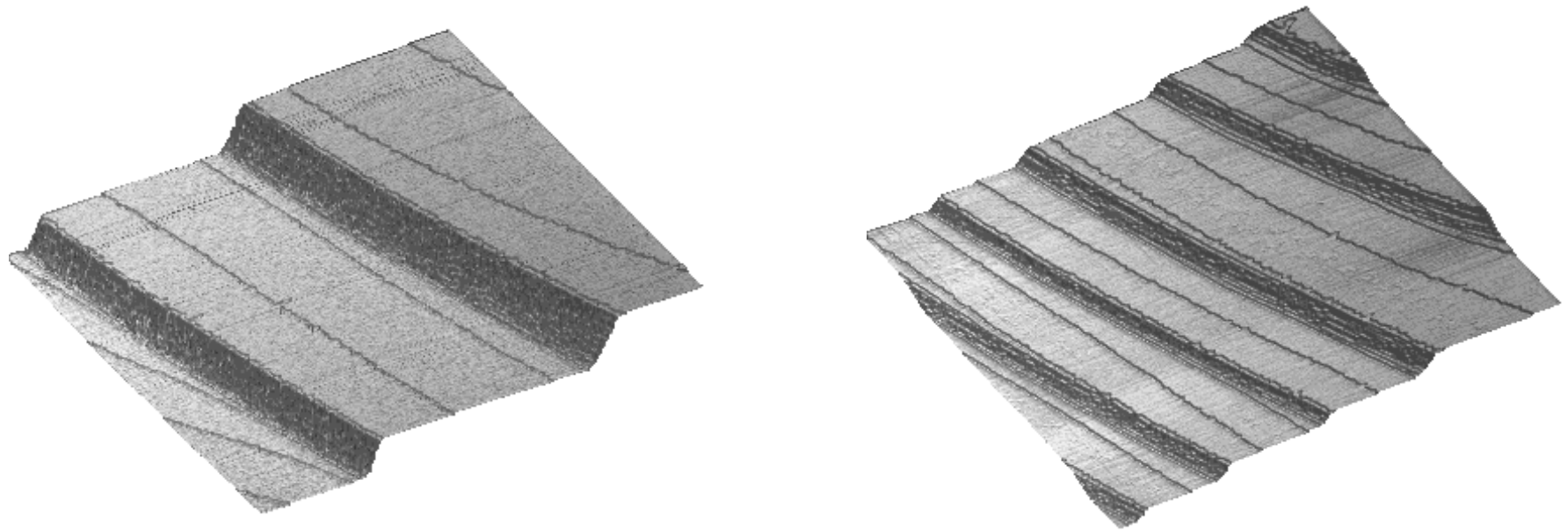
Strukturbildung auf gestuften Oberflächen



Stufenbündeln

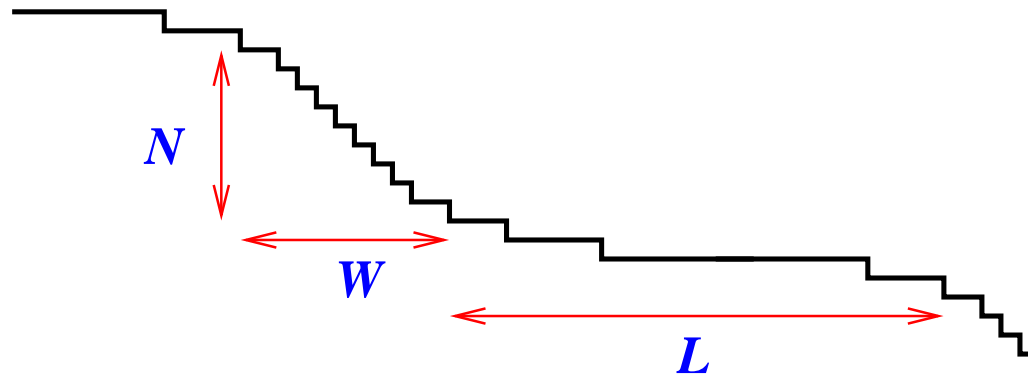
Stufenmäandern

Elektromigrations-induzierte Stufenbündel auf Si(111)



Ellen D. Williams, University of Maryland

Skaleneigenschaften der Stufenbündel



- Höhe, Breite, Abstand:

$$N \sim W^\alpha, \alpha > 1$$

$$N \sim L \sim t^\beta$$

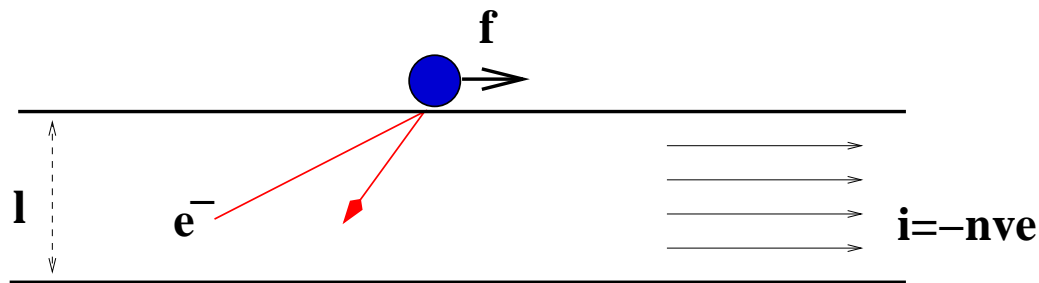
- minimale Terrassenbreite:

$$l_{\min} \sim N^{-\gamma} \sim W/N$$

$$\Rightarrow \gamma = 1 - 1/\alpha$$

- Die Form der Stufenbündel ist bestimmt durch den Wettbewerb von Instabilität und abstossender Stufenwechselwirkung
- **Ziel:** Konsistente Herleitung der Potenzgesetze und Vorfaktoren
- **Methode:** Herleitung und Analyse von Kontinuumsgleichungen

Elektromigration an Oberflächen



Elektromigrationskraft:

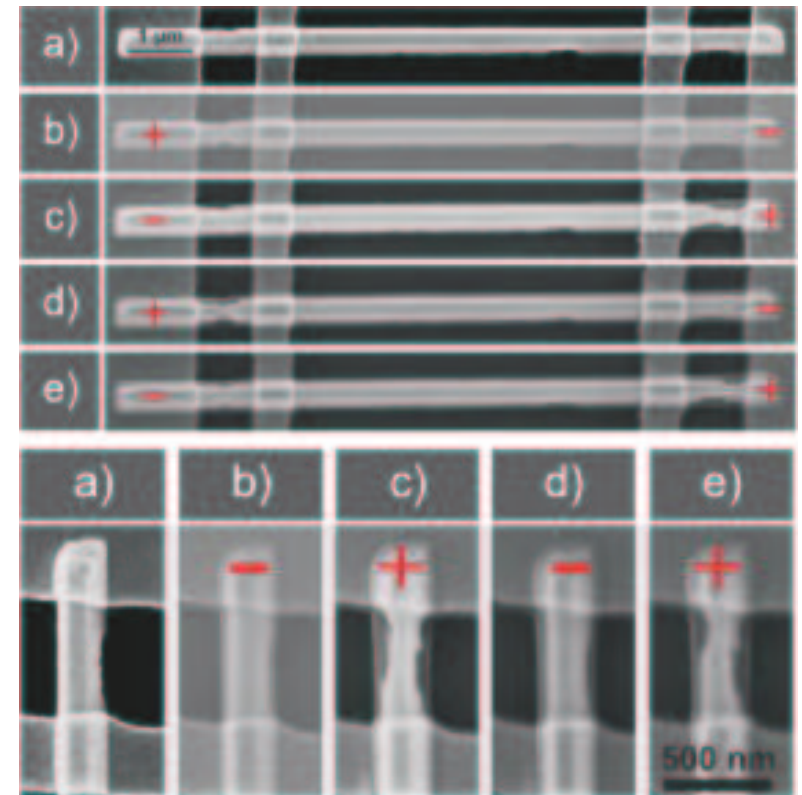
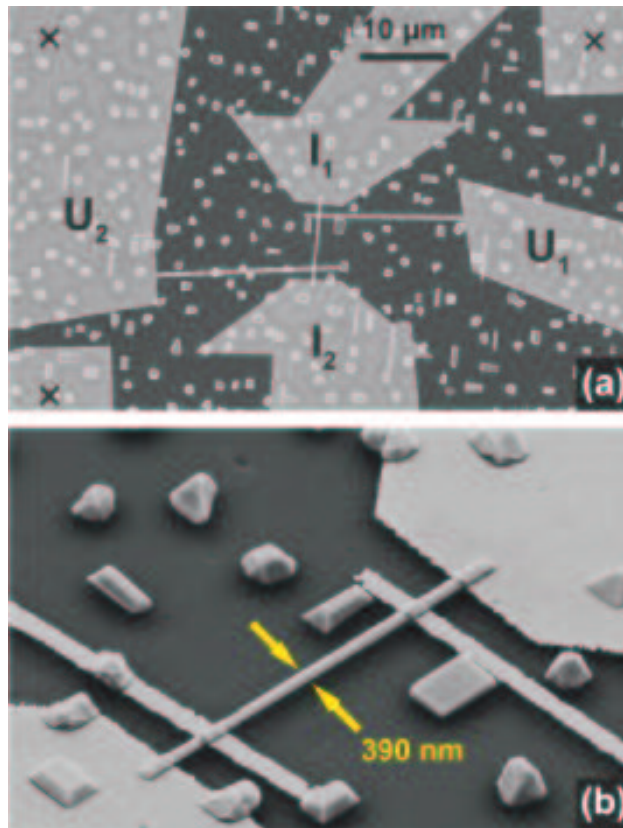
$$f = eZ^*E$$

Z^* : Effektive Valenz

- Impulsübertrag der Leitungselektronen \Rightarrow **Windkraft**
- Wichtigster Schädigungsmechanismus in integrierten Schaltungen

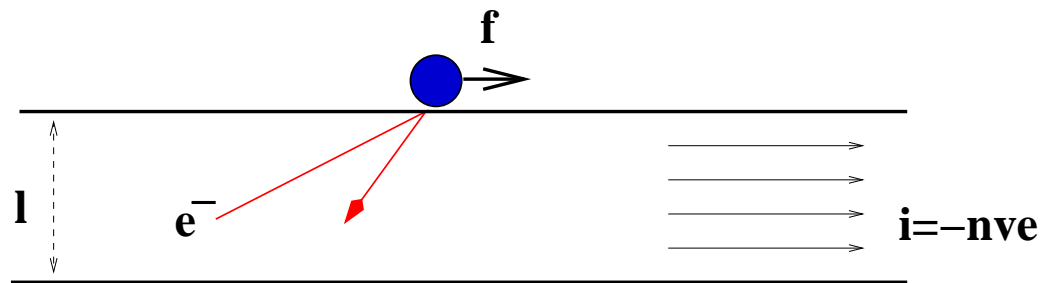
Elektromigration in Silber-Nanodrähten

B. Stahlmecke et al., Appl. Phys. Lett. **88**, 053122 (2006)



⇒ Materialtransport **entgegen** der Windrichtung!

Elektromigration an Oberflächen



Elektromigrationskraft:

$$f = eZ^*E$$

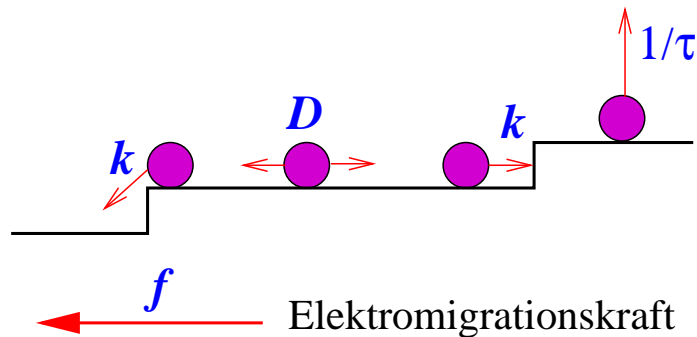
Z^* : Effektive Valenz

- Impulsübertrag der Leitungselektronen \Rightarrow **Windkraft**
- Wichtigster Schädigungsmechanismus in integrierten Schaltungen

Modellsysteme für elektromigrations-induzierte Stufendynamik:

- Stufenbündeln auf Si(111) [A. Latyshev et al., 1989; S. Stoyanov, 1991]
- Elektromigration von zweidimensionalen Inseln
[Pierre-Louis & Einstein, 2000; Biham et al., 2000]

Stufenbündeln durch Elektromigration



- Diffusion D und Desorption $1/\tau$
- Symmetrische Anlagerung mit Rate k
- Stufenpositionen x_i

- Stationäre Diffusionsgleichung für Adatomdichte $n(x)$ auf den Terrassen:

$$D \frac{d^2 n}{dx^2} - \frac{Df}{k_B T} \frac{dn}{dx} - \frac{n}{\tau} = 0 \quad \text{b.c.:} \quad D \frac{dn}{dx} - \frac{Df}{k_B T} n \Big|_{x=x_i} = \pm k [n - n_{\text{eq}}] \Big|_{x=x_i}$$

- Abstossende Stufenwechselwirkungen: $n_{\text{eq}}(x_i) = n_{\text{eq}}^0 \exp[\Delta\mu(x_i)/k_B T]$ mit

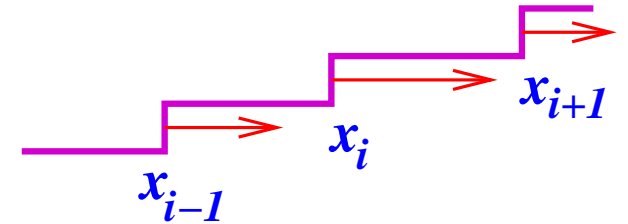
$$\frac{\Delta\mu(x_i)}{k_B T} = - \left(\frac{l_0}{x_{i+1} - x_i} \right)^3 + \left(\frac{l_0}{x_i - x_{i-1}} \right)^3$$

$l_0 = (2g/k_B T)^{1/3}$: Wechselwirkungslänge g : Wechselwirkungsstärke

Diskrete Stufendynamik im anlagerungsbegrenzten Regime

- Dimensionslose Bewegungsgleichungen:

$$\frac{dx_i}{dt} = \frac{1-b}{2}(x_{i+1} - x_i) + \frac{1+b}{2}(x_i - x_{i-1}) + U(2f_i - f_{i+1} - f_{i-1})$$



mit $f_i = \frac{1}{(x_i - x_{i-1})^3} - \frac{1}{(x_{i+1} - x_i)^3}$

- Kontrollparameter:

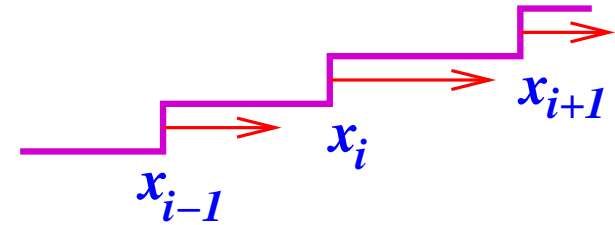
$$b = \frac{k\tau f}{k_B T}, \quad U = \frac{g\tau k}{k_B T}$$

- Lineare Instabilität des homogenen Stufenzuges für

$$N > N^* = 2\pi \left[\arccos \left(1 - \frac{b}{12U} \right) \right]^{-1}$$

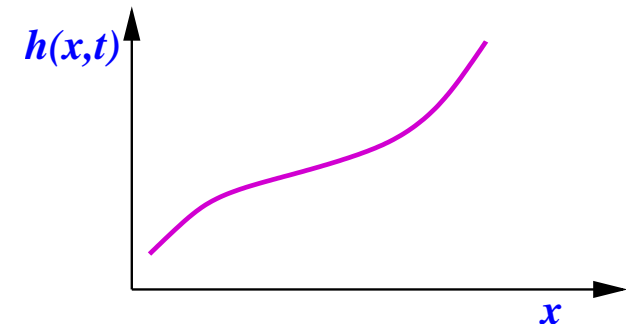
Von Lagrange zu Euler

$$\frac{dx_i}{dt} = \frac{1-b}{2}(x_{i+1} - x_i) + \frac{1+b}{2}(x_i - x_{i-1})$$
$$+ U(2f_i - f_{i+1} - f_{i-1})$$



$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} \left(-\frac{b}{2m} - \frac{1}{6m^3} \frac{\partial m}{\partial x} + \frac{3U}{2m} \frac{\partial^2 m^2}{\partial x^2} \right) = -1$$

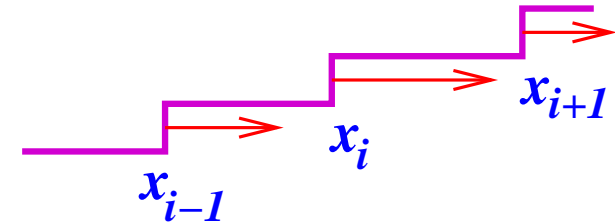
$$m = \frac{\partial h}{\partial x} > 0$$



Von Lagrange zu Euler

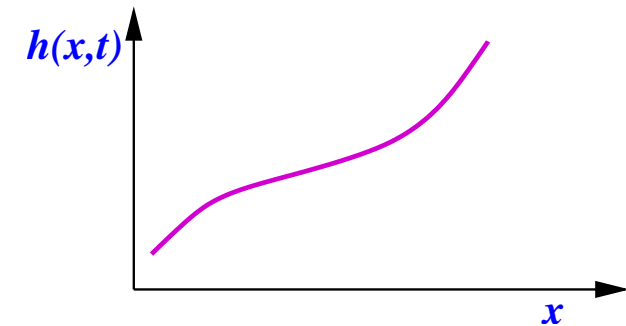
$$\frac{dx_i}{dt} = \frac{1-b}{2}(x_{i+1} - x_i) + \frac{1+b}{2}(x_i - x_{i-1})$$

$$+U(2f_i - f_{i+1} - f_{i-1})$$



$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} \left(-\frac{b}{2m} - \frac{1}{6m^3} \frac{\partial m}{\partial x} + \frac{3U}{2m} \frac{\partial^2 m^2}{\partial x^2} \right) = -1$$

$$m = \frac{\partial h}{\partial x} > 0$$

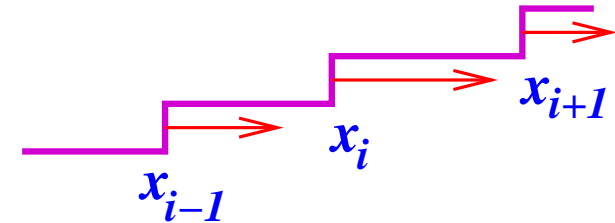


• stabilisierend

Von Lagrange zu Euler

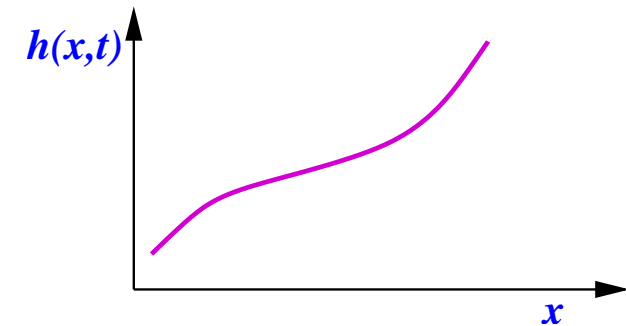
$$\frac{dx_i}{dt} = \frac{1-b}{2}(x_{i+1} - x_i) + \frac{1+b}{2}(x_i - x_{i-1})$$

$$+ U(2f_i - f_{i+1} - f_{i-1})$$



$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} \left(-\frac{b}{2m} - \frac{1}{6m^3} \frac{\partial m}{\partial x} + \frac{3U}{2m} \frac{\partial^2 m^2}{\partial x^2} \right) = -1$$

$$m = \frac{\partial h}{\partial x} > 0$$

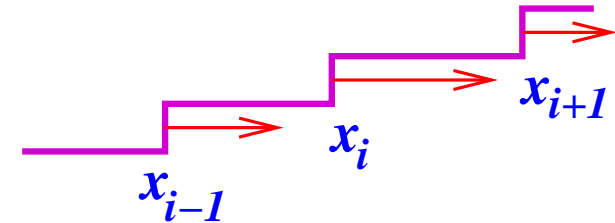


- stabilisierend
- destabilisierend

Von Lagrange zu Euler

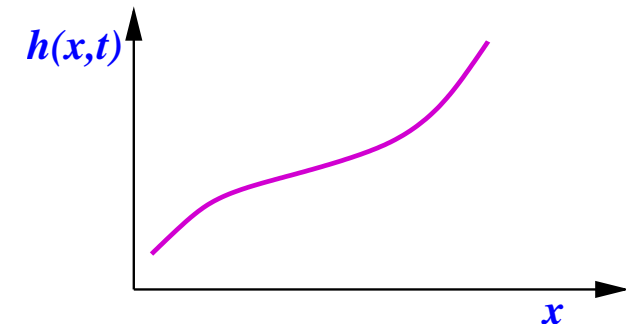
$$\frac{dx_i}{dt} = \frac{1-b}{2}(x_{i+1} - x_i) + \frac{1+b}{2}(x_i - x_{i-1})$$

$$+ U(2f_i - f_{i+1} - f_{i-1})$$



$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} \left(-\frac{b}{2m} - \frac{1}{6m^3} \frac{\partial m}{\partial x} + \frac{3U}{2m} \frac{\partial^2 m^2}{\partial x^2} \right) = -1$$

$$m = \frac{\partial h}{\partial x} > 0$$



- stabilisierend
- destabilisierend
- **symmetriebrechend**

Stationäre und bewegte Stufenbündel

- Zeitunabhängige Lösungen der Bewegungsgleichung beschreiben Stufenbündel mit Pokrovsky-Talapov-Singularitäten $m(x) \sim (x - x_0)^{1/2}$ an den Rändern
 $\Rightarrow l_{\min} \sim N^{-2/3}$, $W \sim N^{1/3}$.

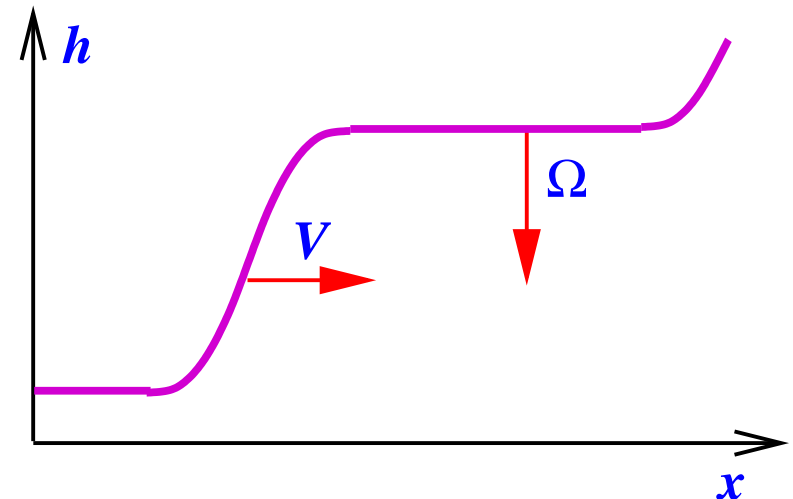
J.K., V. Tonchev, S. Stoyanov, A. Pimpinelli: Phys. Rev. B **71**, 045412 (2005)

- Ansatz für bewegte Stufenbündel:
 (S. Stoyanov)

$$h(x, t) = h(x - Vt) - \Omega t$$

- Summenregel (Massenerhaltung):

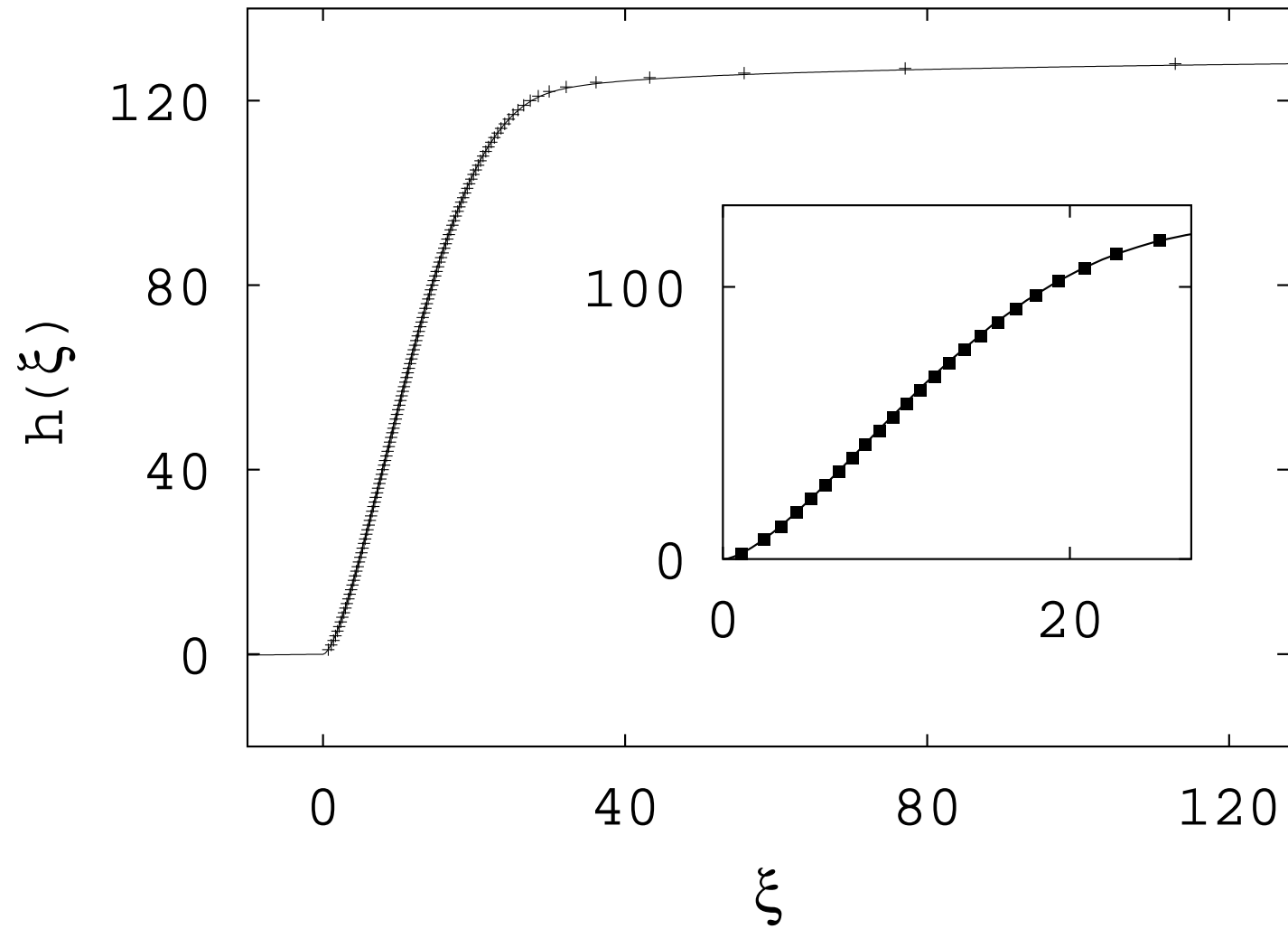
$$\Omega + V = 1$$



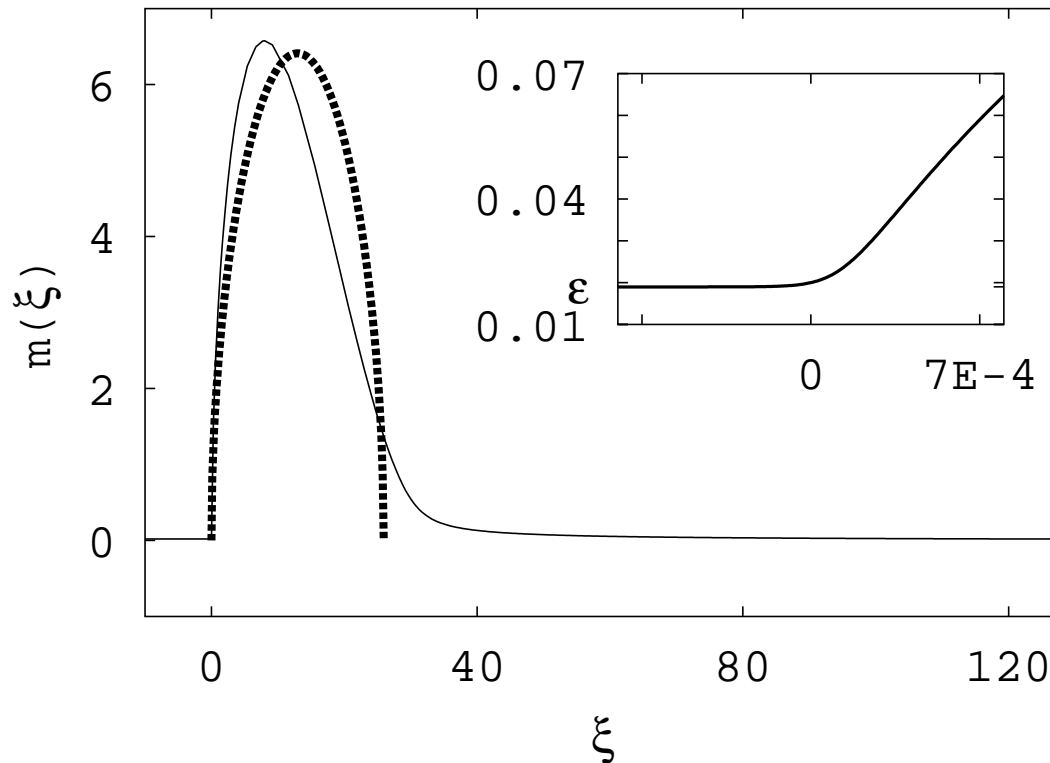
$$\Rightarrow \Omega(\xi + \xi_0 - h) + \frac{b}{2} \left(1 - \frac{1}{m}\right) - \frac{m'}{6m^3} + \frac{3U}{2m} (m^2)'' = 0, \quad \xi = x - Vt$$

V. Popkov, JK, Europhys. Lett. **72**, 1025 (2005)

Vergleich mit diskreter Stufendynamik ($b = 0.18$)



Stufendichten-Profile



- Regularisierung der Randsingularitäten

- Ausflussregion:
 $m \sim 1/\xi, h \sim \ln \xi$

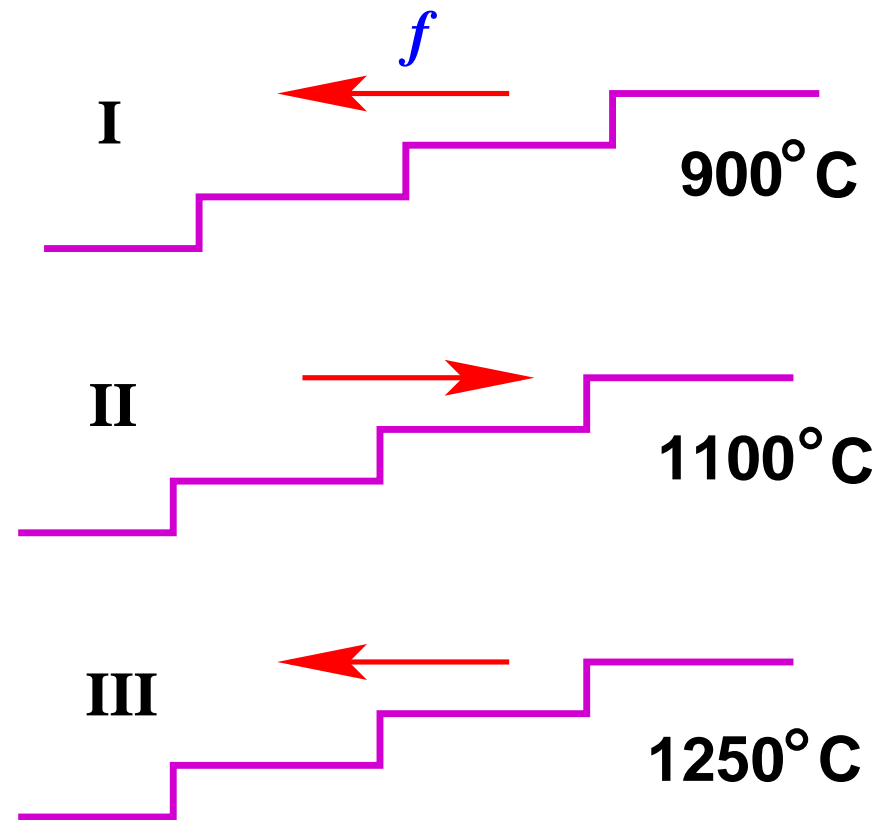
- Geschwindigkeit
 $V \sim 1/N$

- Skaleneigenschaften bestimmt durch **minimale Steigung** $\varepsilon = \min_{\xi} m(\xi)$:

$$l_1 = (6U\varepsilon)^{1/3}, \quad l_{\min} \approx (120Ub\varepsilon^2)^{1/3}$$

- Asymptotisch $\varepsilon \sim 1/N \Rightarrow$ Skalengesetze der stationären Lösung bleiben bestehen, aber mit veränderten Vorfaktoren und starken Korrekturen

Temperaturabhängigkeit der instabilen Stromrichtung auf Si(111)

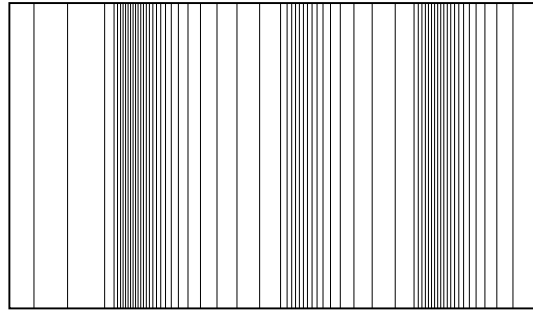


- Regime I: $b \approx 14$ Regime III: $b \approx 0.3$ Regime II: anderer Mechanismus
- Kontinuumstheorie erfordert langsam veränderliche Stufendichte $\Rightarrow b \rightarrow 0$
- Was passiert für grosse b ?

Phasenübergang bei $b = 1$

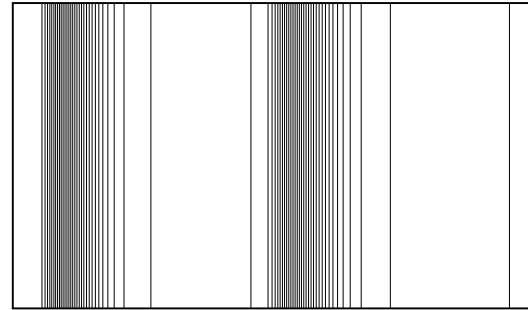
V. Popkov, JK, Phys. Rev. B **73**, 235430 (2006)

$b = 0.1$

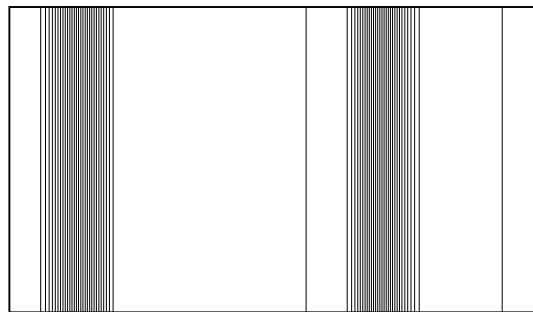


(a)

$b = 0.5$

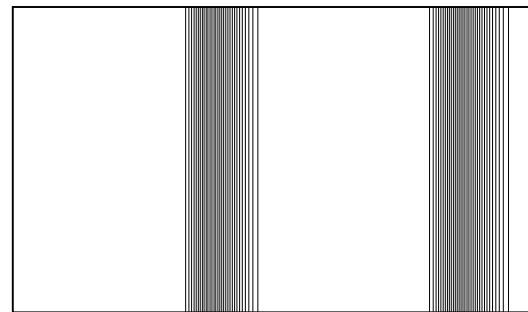


(b)



(c)

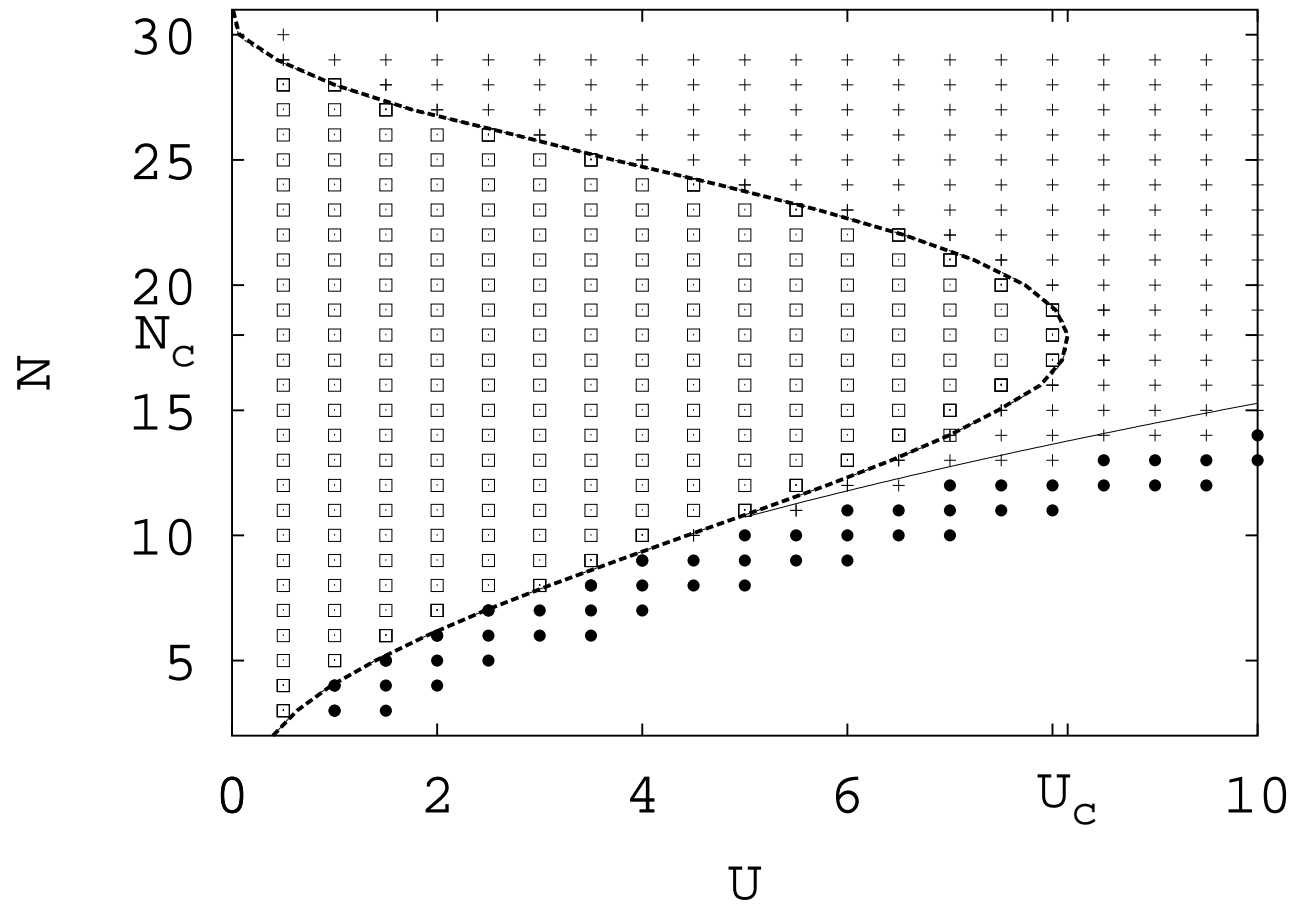
$b = 5$



(d)

$b = 20$

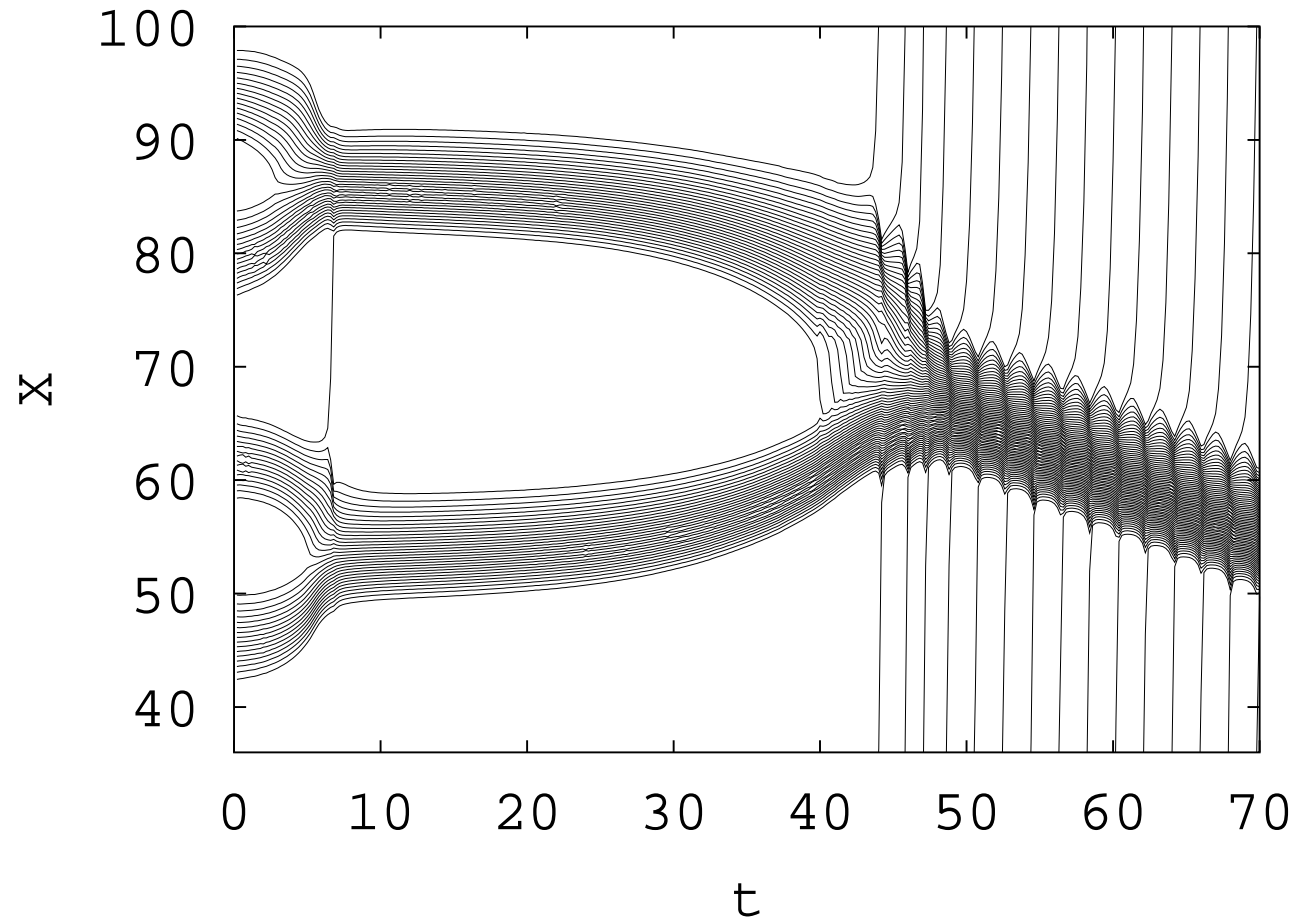
Phasendiagramm für $b = 10$



● linear stabil □ keine Stufenemission + Stufenemission

Skalierung mit b : $U_c \sim b^3, N_c \sim b$

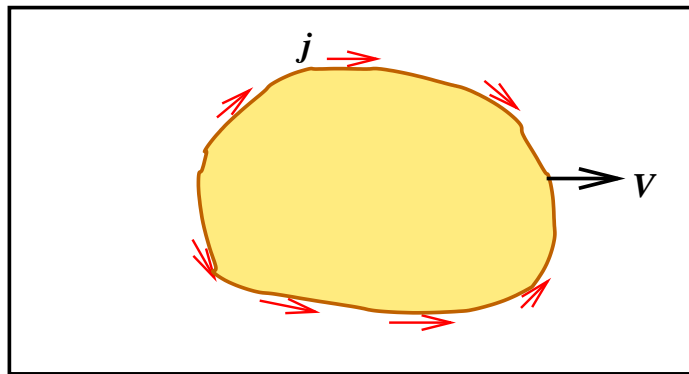
Vergrößerungsregimes



$$b = 20, U = 6, N = 64$$

3. Elektromigration von Inseln

Kontinuumsmodell der Inselbewegung



- Inselrand als geschlossene Stufe
- Massentransport nur entlang des Inselrandes
- Kristallanisotropie

- Normalengeschwindigkeit v_n erfüllt

$$v_n + \frac{\partial j}{\partial s} = 0, \quad j = \sigma(\theta) \left[f_t - \frac{\partial}{\partial s} \tilde{\gamma} \kappa \right]$$

s : Bogenlänge

θ : Orientierung

κ : Krümmung

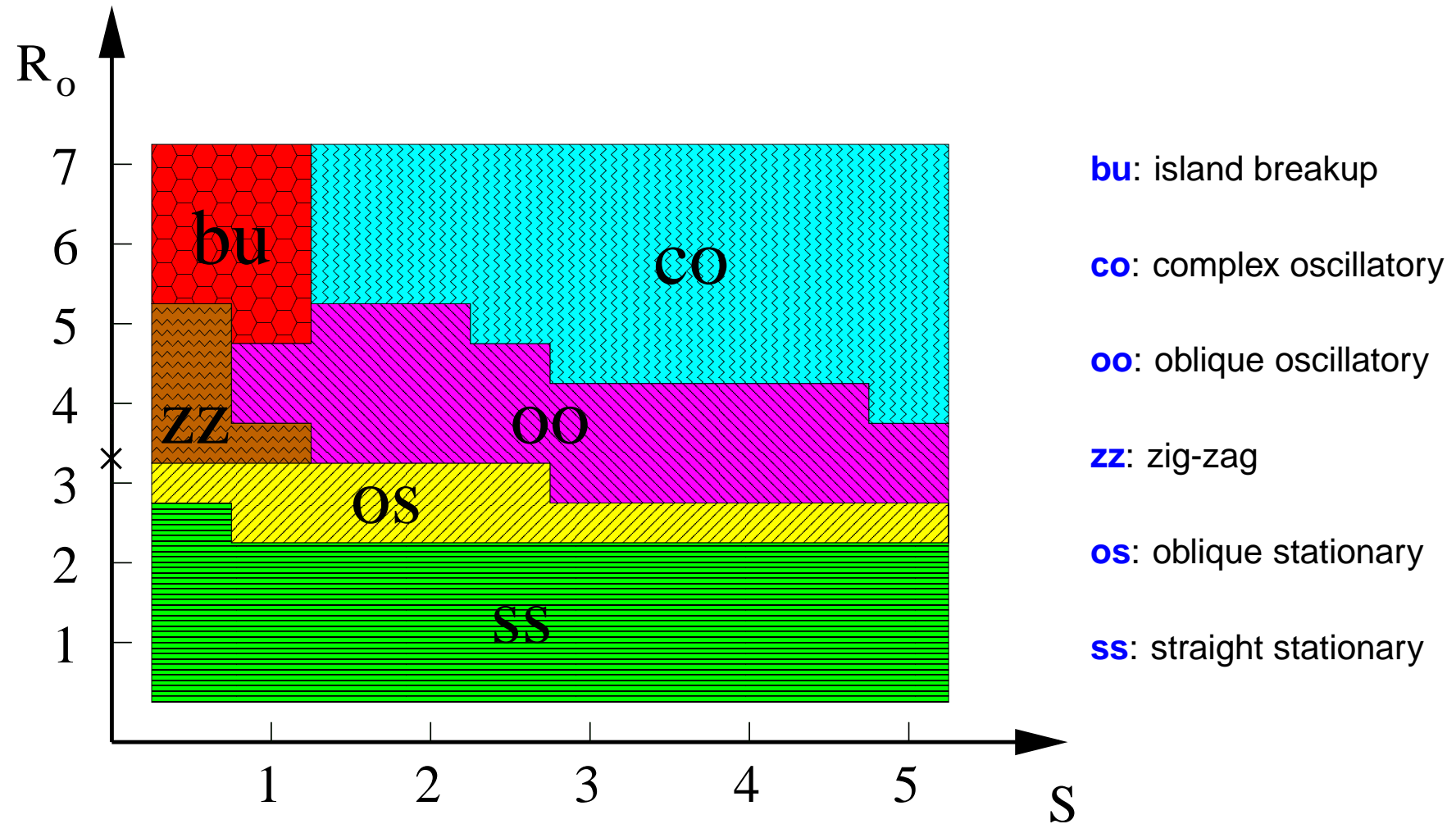
$\sigma(\theta)$: Beweglichkeit

$\tilde{\gamma}$: Steifigkeit

f_t : Tangentialkraft

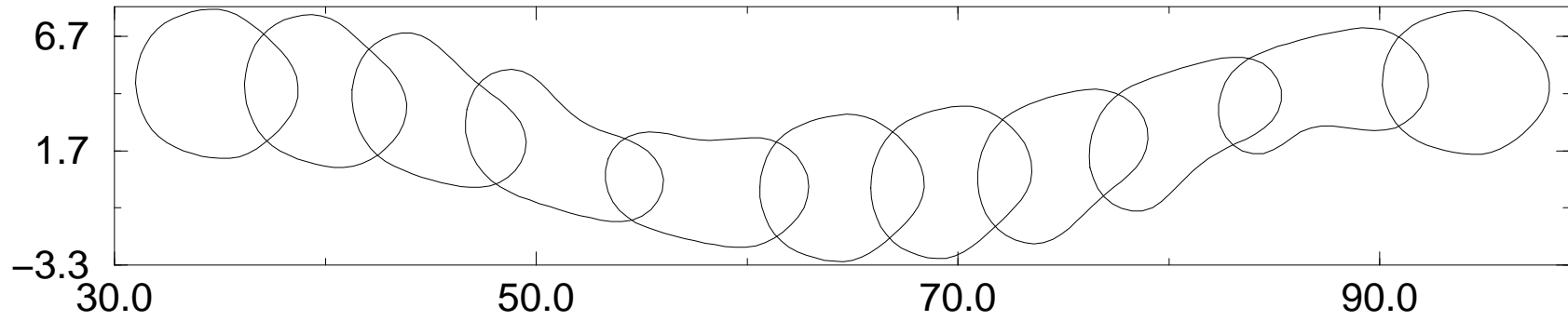
- Elektromigration dominiert auf Längenskalen $\gg l_E = \sqrt{\tilde{\gamma}/|f|}$
- Kontrollparameter: Inselgrösse (R_0) und Stärke der Anisotropie (S)

Phasendiagramm

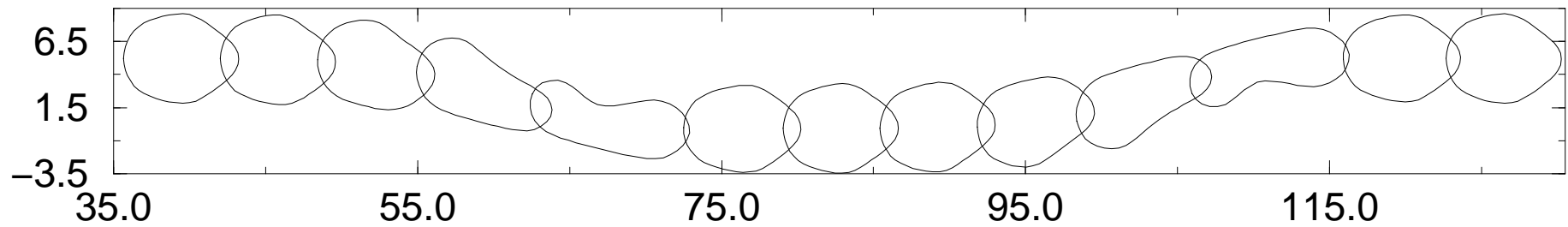


P. Kuhn, JK, F. Hausser, A. Voigt, Phys. Rev. Lett. 94, 166105 (2005)

Zickzack-Bewegung

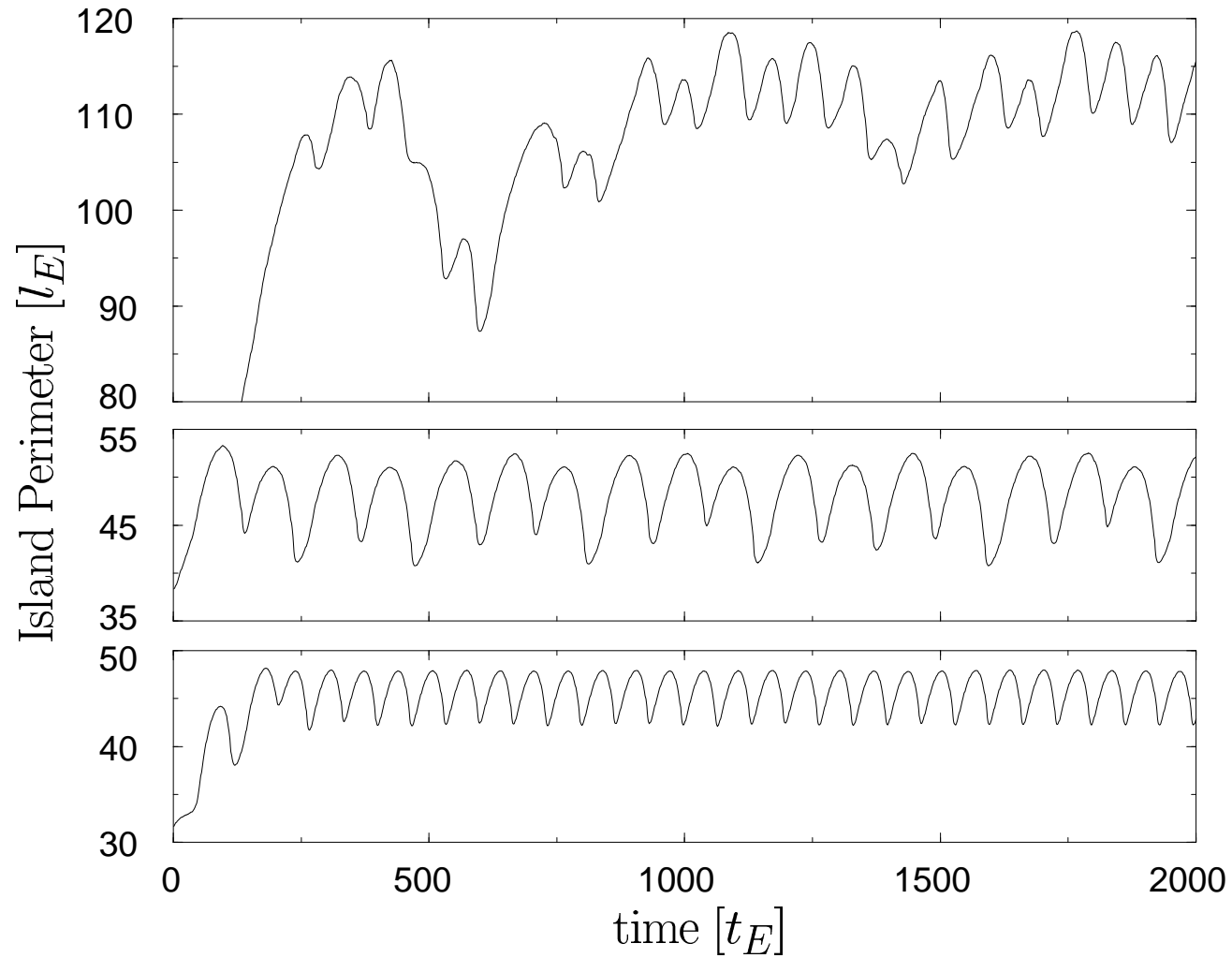


$$R_0 = 3.5, S = 0.5$$



$$R_0 = 3.5, S = 1$$

Zeitreihe des Inselumfangs



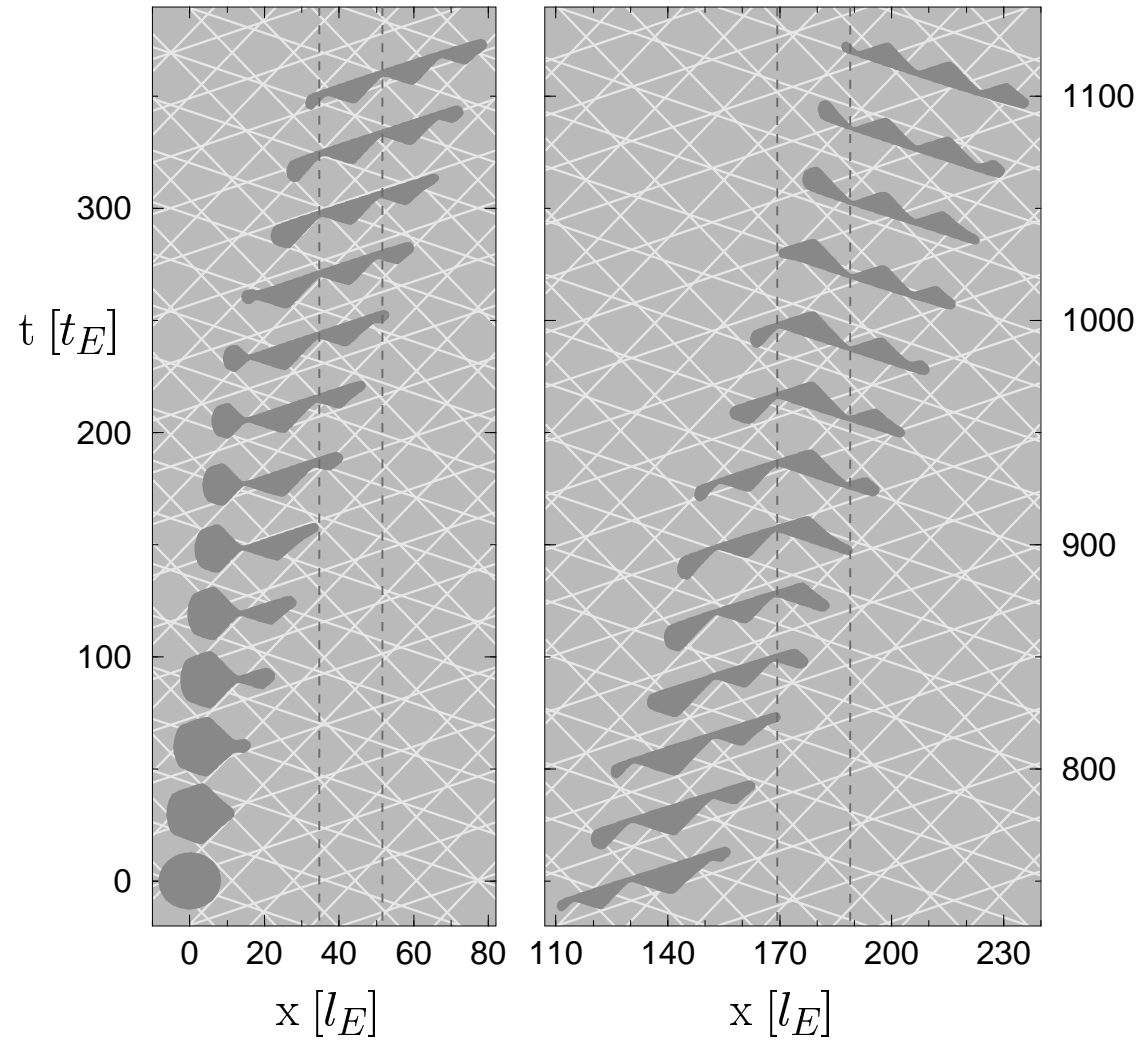
$$S = 3, R_0 = 8$$

$$S = 5, R_0 = 5$$

$$S = 2, R_0 = 5$$

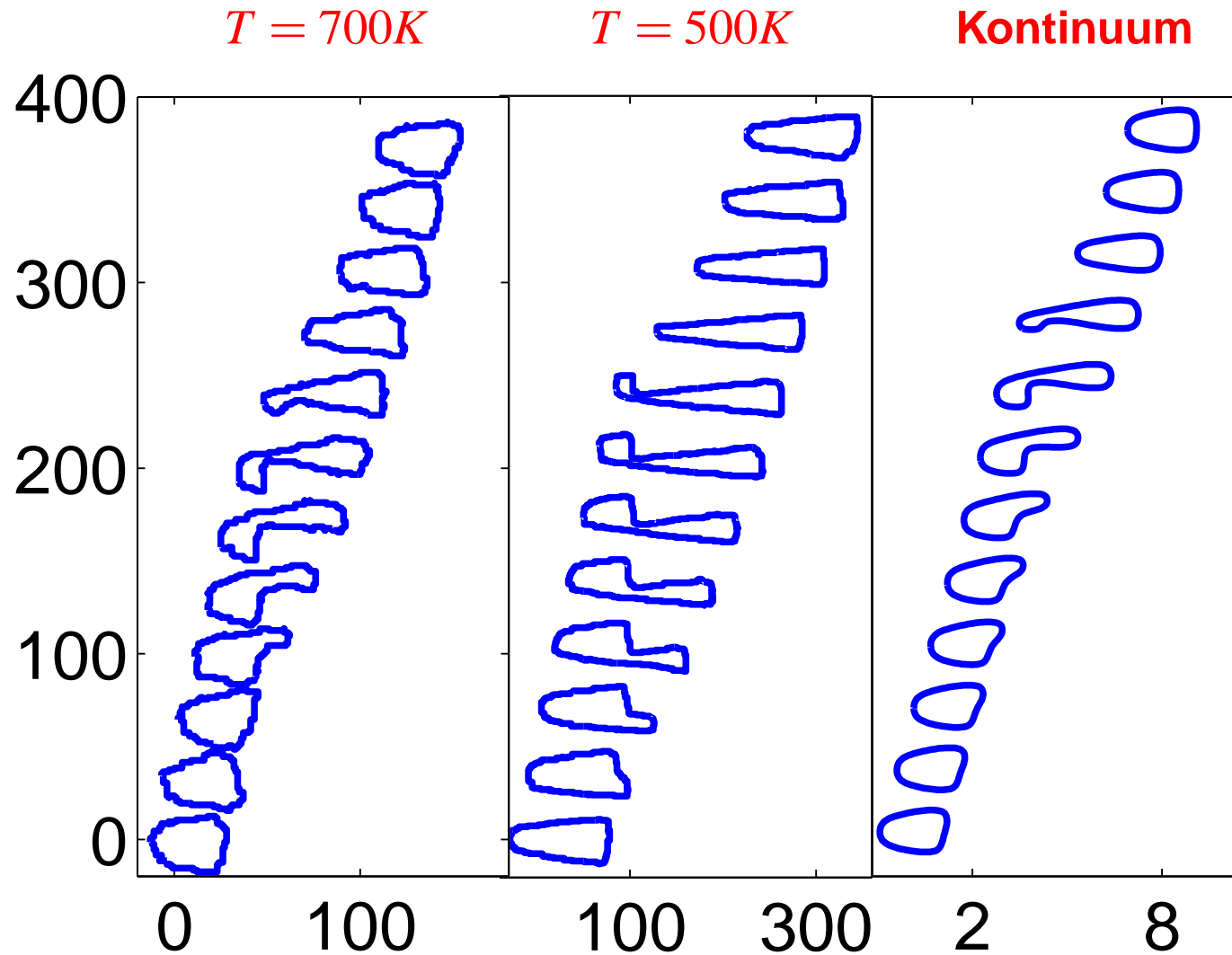
charakteristische Zeitskala: $t_E = l_E^4 / \sigma_{\max} \tilde{\gamma}$

Chaotische Inselbewegung



$$S = 3, R_0 = 8$$

Kinetische Monte Carlo Simulationen



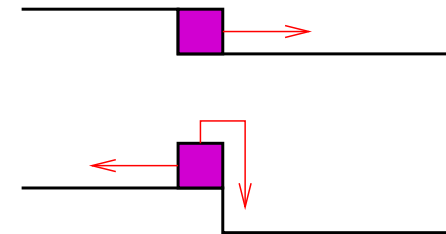
- Cu(100) mit Elektromigrationskraft $f \sim 10^{-3}$ eV/Gitterplatz (M. Rusanen)

KMC-Modell

Heinonen et al., PRL **82**, 2733 (1999)

- Energiebarriere eines Stufenatoms: $E = E_s - 2\varepsilon \min[0, \Delta_{\text{NN}}]$
 Δ_{NN} : Änderung der Bindungszahl
 $E_s = 0.26 \text{ eV}$: Stufen-Diffusionsbarriere $\varepsilon = 0.13 \text{ eV}$: Kinkenenergie

- Ablösung von Kink: $E_{\text{det}} = 2\varepsilon + E_s = 0.52 \text{ eV}$
- Umrundung eines Kinks: $E_{\text{kr}} = 2\varepsilon = 0.26 \text{ eV}$



Parameter des Kontinuumsmodells

- Steifigkeit: $\tilde{\gamma}(\theta) = k_B T \frac{(1+m^2)^{3/2}}{m^2 + \sqrt{m^2 + 1}/l_{\text{th}}^2}$, $m = \tan(\theta)$, $l_{\text{th}} = \frac{1}{2} e^{\varepsilon/k_B T}$
- Beweglichkeit: $\sigma(\theta) = \frac{1}{2} e^{-E_{\text{det}}/k_B T} \frac{l_{\text{eff}}(\theta)}{l_{\text{eff}}(\theta) + 1/p_{\text{kr}}}$, $l_{\text{eff}} = \tilde{\gamma}/k_B T$, $p_{\text{kr}} = e^{-E_{\text{kr}}/k_B T}$

Zusammenfassung

- Kristalloberflächen fern vom Gleichgewicht zeigen ein reichhaltiges Spektrum von Strukturbildung und nichtlinearer Dynamik
⇒ **”Experimental statistical mechanics”** (E.D. Williams)

- Rastersondenmikroskopie bietet direkten Zugang zur Morphologie

- **Mesoskopische** Strukturen liefern quantitative Informationen über **atomistische** Elementarprozesse

- Potentielle Anwendungen:

Selbstorganisierte Strukturierung auf der Nanometer-Skala

Manipulation von Nanostrukturen durch äussere Felder

Bessere Beherrschung von Elektromigrationsschäden

Dank an:

- P. Kuhn, V. Popkov (Köln)
- T. Michely (RWTH Aachen)
- F. Hausser, A. Voigt (caesar, Bonn)
- S. Stoyanov, V. Tonchev (IPC-BAS, Sofia)
- M. Rusanen, T. Ala-Nissilä (Helsinki University of Technology)
- DFG: SFB 237, SFB 616 & Normalverfahren