

Epitaksie – Oriënteringskriterium

J.H. van der Merwe

Departement Fisika, Universiteit van Suid-Afrika, Posbus 392, Pretoria, 0003

Ontvang April 2001; goedgekeur Mei 2001

UITTREKSEL

Hierdie oorsig is gemotiveer deur die impak van epitaksie – die georiënteerde groei van 'n kristallyne dunlagie (die epilagie) op 'n kristallyne substraat – in die nastreef van perfekte kristalliniteit soos benodig word in hoëgraadtegnologie en fundamentele studies. Terwyl aanvaarde kennis met betrekking tot die termodinamiese stabiliteit en groeiwyse van epitaksiale lagies beskikbaar is, is daar steeds 'n dringende behoefte aan 'n betroubare maar eenvoudige kriterium vir epitaksiale groei, ten einde die seleksie van geskikte materiale te vergemaklik. Frank en Van der Merwe het wel 'n voldoende kriterium voorgestel, maar duidelike aanduidings van 'n nodige en voldoende kriterium het eers voortgespruit uit 'n termodinamies-teoretiese studie gegrond op 'n starremodel van fcc (111)/bcc (110)-epitaksie. Hierdie studie het (i) die passing van atoomrye oor die kontakvlak, (ii) die kristallyne kontakvlak as oorsprong van epilagiesubstraat periodiese wisselwerking met die Fourier-voorstelling daarvan en (iii) die grootte van die Fourier-koëffisiënte uitgewys as vername rolspelers. Die doelwitte is gefinaliseer deur (a) die berekening van optimum Fourier-koëffisiënte en (b) die beskrywing van die omgekeerde tralieruimte van die periodiese wisselwerking, insluitende struktuurfaktore as aanduiding van die bydraes vanaf atoomvlakke verder weg van die kontakvlak, en die analitiese formulering van die gesoekte kriterium.

ABSTRACT

Epitaxy: Criterion for orientation

This review is motivated by the impact of epitaxy – the oriented overgrowth of a thin crystalline layer (the epilayer) on a crystalline substrate – in pursuit of perfection in crystallinity as needed in high grade technology and fundamental studies. While acceptable knowledge with respect to the thermodynamic stability and growth modes of epitaxial layers is available, need exists for a reliable, simple criterion for epitaxial growth in order to facilitate the selection of suitable materials. Frank and Van der Merwe have proposed a sufficient criterion. A clear indication of a necessary and sufficient condition has emanated from a thermodynamic theoretical study of rigid model epitaxy at fcc (111)/bcc (110) interfaces. This study has identified, as important role players: (i) the matching of atomic rows across the contact interface, (ii) the crystalline interfacial source of periodic epilayer-substrate interaction, including its Fourier representation and (iii) the magnitude of the Fourier coefficients. The objectives have been finalised by (a) the calculation of optimum Fourier coefficients and (b) the reciprocal space Fourier series description of the periodic interaction, including the structure factors as evidence of the contributions from atomic planes further away from the contact plane and the analytical formulation of the desired criterion.

1. INLEIDING

Die ervaring het epitaksie geïdentifiseer as die geskikste proses vir die groei van dunlagies met die oog op die verkryging van volmaakte kristallyne strukture soos benodig vir die vervaardiging van hoëtegnologietoestelle en vir die fundamentele studie van tweedimensionele stelsels. *Epitaksie* is die verskynsel waarvolgens 'n spesifieke enkelkristallyne “oppervlak” – die substraat (A) – byvoorbeeld die (110)-vlak van wolfram (W), by herhaling 'n spesifieke oriëntasie induseer op 'n kristallyne dunlagie – die *epilagie* (B) – byvoorbeeld van koper (Cu), wat op sy oppervlak groei wanneer Cu-atome daarop neergeslaan word deur deposisie. In die diagram van figuur 1 stel die rombus ABCD byvoorbeeld die (110)-oppervlakeenheidsel van 'n bcc (body centred cubic = liggaamsgesentreerde) -kristal voor met atome, van byvoorbeeld wolfram (W) op die hoekpunte A, B, C en D, terwyl die rombus ACFG die (111)-oppervlakeenheidsel van 'n fcc (face centred cubic = oppervlakgesentreerde) -kristal voorstel met atome van byvoorbeeld koper (Cu) op die hoekpunte A, E, F en G. Die diagram beeld die welbekende Nishiyama-Wassermann epitaksiale oriëntasie uit, waarby die lang diagonale van die twee eenheidselle ewewydig is, en so ook die kortes, in teenstelling met 'n willekeurige rangskikking waarvan die

diagonale willekeurig gerig is met betrekking tot mekaar en selfs die (111)- en (110)-vlakke nie ewewydig is nie. Van laasgenoemde moontlikhede kan sommige natuurlik ook epitaksiale oriëntasies wees, maar dan vir ander kristal-kombinasies. Die definisie van epitaksie vereis dat 'n eksperiment wat herhaaldelik onder dieselfde omstandighede, temperatuur, tempo en chemiese samestelling deurgevoer word, elke keer dieselfde oriëntasie moet oplewer, ook wat die kontakvlakke, byvoorbeeld fcc(111) en bcc(110), betref.

Alhoewel die verskynsel reeds in 1836 deur Frankenheim waargeneem is, was dit Royer wat gedurende 1928, op grond van kwantitatiewe eksperimentele ondersoeke die benaming “epitaksie” (“rangskikking op”) voorgestel het en tot die gevolgtrekking gekom het dat die graad van wanpas in die tussenvlak van die twee kristalle – die lagie-substraat-kontakvlak – bepalend is vir die realisering van die verskynsel. Frank en Van der Merwe¹, wat die eerste navorsers was om die verskynsel teoreties te bestudeer, het die (graad van) wanpas in 'n eendimensionele model gedefinieer met die verhouding

$$f = \frac{b-a}{a} \quad (1)$$

waar a en b respektieflik die atoomspasiërings in die substraat en epilagie is. Hulle het ook belangrike kriteria afgelei vir

die stabiliteit van die wyses waarvolgens die wanpas geakkommodeer kan word. Die twee vernaamste wyses heet wanpasontwrigtings en wanpasvervorming, wat afsonderlik of gesamentlik kan voorkom. By *wanpasvervorming* word die epilagie homogeen vervorm onder die invloed van die periodiese epilagie-substraatwisselwerking (breedvoerig bespreek in afdeling 2.1) om sodoende die wanpas geheel of gedeeltelik uit te wis. Die limietgeval, waarby die wanpas volkome uitgewis word en perfekte passing bewerkstellig is, is bekend as die *pseudomorfe* of koherente wanpasakkommodasiewyse. Dit is 'n gesogte wyse omdat dit die suksesvolste is in die nastreef van 'n perfekte kristallyne epilagie: die veronderstelling is dat die substraat 'n perfekte kristallyne oppervlak het en dat die epilagiestruktuur dus net 'n voortsetting daarvan is.

As die pseudomorfe struktuur nie bewerkstellig word nie, word die oorblywende wanpas – of die geheel, as wanpasvervorming volkome afwesig is – geakkommodeer deur sogenaamde wanpasontwrigtings. As daar in 'n bepaalde rigting van die tussenvlak byvoorbeeld elf atoomryspasiërings van die epilagie gelyk is aan tien atoomryspasiërings van die substraattoepervlak, sal die epilagie ossillerend – stuksgewys positief en negatief – vervorm, sodat daar vir opeenvolgende epilagierye oor die grootste gedeelte van die tien substraatrye goeie passing bewerkstellig word met die minima van die epilagie-substraatpotensiaal en slegs relatiewe smal strokies uit pas is. Die smal strokie van gelokaliseerde wanpas heet 'n *wanpasontwrigting* – dit tree op as wanpasakkommodasiewyse. Die diagram in figuur 2 stel twee opeenvolgende wanpasontwrigtings \perp voor in die eendimensionele Frenkel-Kontorowa-model wat deur Frank en Van der Merwe¹ in hulle klassieke teorie gebruik is. In dié model word die kragte tussen opeenvolgende atome in die lagie deur elastiese vere gemodelleer – elastisiteit synde 'n goeie benadering vir klein relatiewe verplasinge – en die lagie-substraatwisselwerking deur die periodiese kromme. In 'n tweedimensionele epilagie word die ontwrigtings in die rigting loodreg op die figuur voortgesit as 'n lynfout. As wanpas boonop in dié rigting ook bestaan kan 'n reëlmatige ry wanpasontwrigtings loodreg in dié rigting ook voorkom om 'n netwerk te vorm. As die lagie homogeen uitgerek word sodat opeenvolgende atome in opeenvolgende potensiaalminima beland, kom die pseudomorfetoestand tot stand. Talryke oorsigartikels oor epitaksie en wanpasontwrigtings het reeds in internasionale Engelse literatuur verskyn, waarvan dié deur Matthews^{2,3} waarskynlik die bekendste is. Dit is vermeldingswaardig dat die voorkoms van wanpasontwrigtings eers meer as tien jaar na die teoretiese voorspellings daarvan eksperimenteel waargeneem is.^{4,5} 'n Derde wanpasakkommodasiewyse, die *wanpasnonius*⁶ bestaan ook en geld as beide epilagie en substraat volkome star is of as die tussenvlakwisselwerking weglaatbaar is, of andersinds gesien kan word as 'n limietgeval van groot wanpas as die spasiëring van die wanpasontwrigtings so klein is dat die amplitude van ossillerende vervorming weglaatbaar is.

Op grond van termodinamiese kriteria het Frank en Van der Merwe¹ voorspel dat daar 'n *kritieke* waarde (f_c) van die *wanpas* van 'n monolaag bestaan; onderkant f_c is die pseudomorfetoestand stabiel en bokant f_c vereis stabiliteit die teenwoordigheid van wanpasontwrigtings. Laasgenoemde toestand is 'n *metastabiele* toestand, dit wil sê die ontstaan van 'n wanpasontwrigting vereis nog die oorkoming van 'n *aktiveringsenergie* (energieversperring) wat normaalweg deur 'n termiese fluktuasie (skommeling) voorsien moet word. Eers bokant 'n *limiet* van *wanpas* $f_1 > f_c$ val die

aktiveringsenergie volkome weg en ontstaan wanpasontwrigtings spontaan. As die energieversperring in die metastabiele gebied hoog genoeg is en die temperatuur laag genoeg, is die waarskynlikheid vir die voorkoms van 'n geskikte termiese fluktuasie so klein en die wagtyd vir die voorkoms daarvan so lank dat dit selfs die nuttige leeftyd van 'n gegewe tegnologiese toestel kan oorskry en heet die toestand *pseudostabiel*. As $f < f_c$, bestaan daar, analoog aan die epilagiewanpasse f_c en f_1 (multi) epilagiediktes t_c (kritiek) en t_l (limiet), sodat die pseudomorfe multilagie onderkant t_c stabiel is, tussen t_c en t_l metastabiel en bokant t_c ook nog pseudostabiel kan wees afhange van die omstandighede. Pseudostabiliteit vind veral toepassing in die halfgeleier-tegnologie by die vervaardiging van elektroniese toestelle. In halfgeleiers is die energieversperring meestal groot vergeleke met dié in metale en die kans vir die voorkoms van 'n geskikte fluktuasie ter oorkoming van die versperring baie kleiner.

Die tegnologiese en fundamentele belang van epitaksiale groei regverdig dus 'n betroubare voorspelling van materiaal kombinasies waarvoor die epitaksiale verskynsel kan realiseer. Frank en Van der Merwe,¹ het daarop gewys dat pseudomorfe monolaag-op-monolaag groei op 'n kristallyn perfekte substraat 'n georiënteerde lagie ('n epilagie) sal oplewer. Dit is klaarblyklik slegs 'n *voldoende* en nie 'n *nodige kriterium* vir oriëntering nie. Die oogmerk van hierdie artikel is om die ontwikkelinge wat gelei het tot die formulering van 'n nodige en voldoende voorwaarde en 'n meganisme vir die realisering van georiënteerde (epitaksiale) groei, op te teken.

2. KRITERIUM : EPITAKSIALE GROEI

2.1. Kwalitatiewe oorweginge

Die dryfkrag agter epitaksiale groei is gesetel in die feit dat die wisselwerking tussen atome aan weerskante van die tussenvlak periodies varieer oor die tussenvlak. Weens die reëlmatige struktuur van die kristalle kan die atome gerangskik in ryreekse aan weerskante van die tussenvlak gesien word. In elke reeks van die substraat is die rye reglynig, ewewydig en gelyk gespasiëer met gelyke (atoom-) lyndighede, d.i. die aantal atome per eenheid lynlengte. Verskillende reekse is nie alleen in verskillende rigtings gerig nie maar behels ook verskillende lyndighede en spasiërings. Ekwivalente reekse kan wel voorkom waarin die lyndighede en rypasiërings respektieflik gelyk is, maar die rigtings verskil. Die huidige beskouing berus op die feit dat elke ryreekse die bron daarstel van 'n epilaagsubstraat *periodiese veld* soos uitgebeeld in figuur 2 – 'n veld waarvan die veldperiode (vergelykbaar met die golflengte) gelyk is aan die relevante rypasiëring a en die veldamplitude sterk gekoppel is aan die lyndigtheid.

Indien daar in die epilagiekontakvlak 'n reeks atoomrye voorkom met dieselfde reëlmatige spasiëring as in die substraat, sal die totale energie van die bikristal minimeer en aan termodinamiese stabiliteitsvoorwaardes voldoen as die oriëntasie van die epilagie en rypasing geoptimeer is. Met ander woorde die atoomrye van die epilagie sal presies saamval met die veldminima van die substraat – aldus energieminimering deur rypasing as dryfkrag (kriterium) vir die epitaksiale *oriënteringsmeganisme*. Wat meer is, hoe digter die atome in die relevante substraatrye gerangskik is hoe groter die *potensiaal amplitude* – die veldvalleidiepte – en hoe sterker en effektiewer is die oriënteringsdryfkrag. Ekwivalente oorweginge en gevolgtrekkings geld vir die

omgekeerde, dit is, die substraat in die veld van die epilagie.

Die kans dat die natuurlike rypsasiërings aan weerskante van die tussenvlak presies gelyk is, is gering. Nogtans, in die beginstadia, as die lagie nog dun genoeg is en die wanpas klein genoeg en die lagie homogeen vervorm word, kan die energiewins – deurdat die atome van die epilagie in die vallei van die substraatveld beland – die elastiese energie wat nodig is vir homogene vervorming oorskry en kan die pseudomorfe-toestand dus wel realiseer en dus termodinamies stabiel wees.¹ Selfs as presiese passing nie realiseer nie kan reoriëntasie en ossillerende elastiese relaksasie plaasvind met die vorming van wanpasontwrigtings om die moontlikheid te bied vir 'n netto energiewins wat groter sal wees hoe kleiner die stabiele finale wanpas (dimensioneel en/of wanoriëntasie-gewys) en hoe digter opmekaar die atome in die substraatrye gerangskik is.

2.2 Fcc (111)/bcc (110)-epitaksie in die starremodel

Die eerste analitiese studie, gegrond op termodinamiese beginsels, wat lig gewerp het op die epitaksiale oriënterings-dryfkrag is uitgevoer op kristalle met fcc (111)/bcc (110)-epitaksiale kontakvlak deur gebruikmaking van die starremodel of “starre” kristalle. Weens die verskeidenheid van wanpasakkommodasiewyses by hierdie stelsels, is die keuse daarvan uiters betekenisvol vir die huidige studie. Terwyl die starremodel enersyds gesien kan word as 'n nuttige wiskundige instrument waardeur die analise drasties vereenvoudig word met presiese sommasie van die totale energie, kan dit ook beskou word as 'n limietgeval van reële stelsels waarvan die wanpas groot is en/of die epilagie-substraatwisselwerking baie swak is. As instrument lê dit baie belangrike inligting bloot oor stelsels wat nie as limietgevalle beskou kan word nie.

Die atoomrangskikkings in die bcc (110)- en fcc (111)-vlakke word deur die relevante eenheidselle in figuur 1 uitgebeeld. Die analiese word verder vereenvoudig deur die aanname dat die epilagie-substraatwisselwerking tot atome wat aan die kontakvlak grens, beperk is. In hierdie geval het die wisselwerking (eintlik die epilagie in die veld van die bcc (110)-substraat en omgekeerd) tweevoudige simmetrie en kan deur die Fourier-reeks^{6,7}

$$V(x, y) = V_{00} + V_{11} \left\{ \cos \left[2\pi \left(\frac{x}{a_x} + \frac{y}{a_y} \right) \right] + \cos \left[2\pi \left(\frac{x}{a_x} - \frac{y}{a_y} \right) \right] \right\} + V_{20} \cos \left(\frac{4\pi x}{a_x} \right) + V_{02} \cos \left(\frac{4\pi y}{a_y} \right) \quad (2)$$

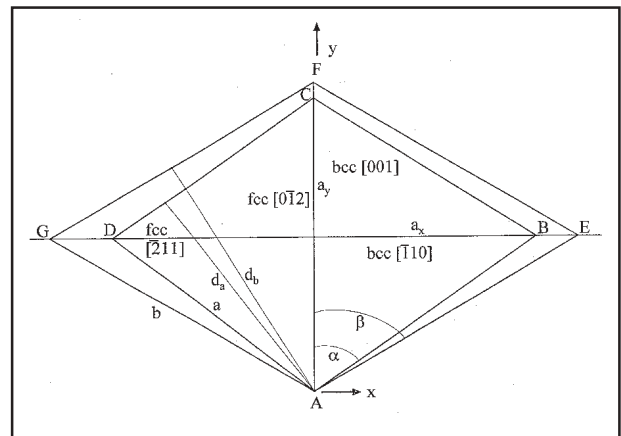
voorgestel word. Die reeks is by die tweede harmoniese terme afgekort, die veronderstelling is dat die Fourier-koëffisiënte V_{hk} vinnig genoeg afneem⁸ met toenemende orde $|h| + |k|$. Die tempo van afname van die koëffisiënte hang af van die mate waarin die werklike variasie ooreenkom met die eenvoudige sinusoidale in die vergelyking, of meer algemeen, van hoe “glad” die oppervlak is, en van die afwesigheid van willekeurige afwykings.

Die Cartesiese assestelsel (x, y) vir die beskrywing van die betrokke Fourier-reeks word ook deur die rombus (eenheidsel) in figuur 1 uitgebeeld: die hoekpunte, byvoorbeeld $(x, y) = (0,0)$, synde posisies van minimum potensiële energie⁶, terwyl a_x en a_y respektieflik die lengtes van die lang en kort diagonale van die eenheidsel voorstel. Klaarblyklik stel die terme in die volgorde waarin hulle in die reeks voorkom, harmoniese golwe voor met bronne

(atoomrye) ewewydig aan respektieflik AD, AB, AC en DB. Vir die reeks ewewydig aan AD is 'n atoomry 'n ry atome wat na weerskante uitstrek en normaalweg 'n groot aantal atome bevat soos bepaal deur die grootte van die epilagie-substraatkontakvlak, halfpad tussen AD en BC met opeenvolgende rye op afstande d_a , dit is, die afstand tussen AD en BC. Dit skep dus 'n periodiese veld met fundamentele (eerste harmoniese) golflengte d_a . Die insluiting van hoër orde (n-te orde) harmoniese terme (golflengtes d_a/n) maak voorsiening vir afwykings van die eksakte sinusoidale (eerste harmoniese) vorm. Die atoomrye ewewydig aan AC en DB is respektieflik op afstande $\frac{1}{2}a_x$ en $\frac{1}{2}a_y$ – aldus eerste harmoniese terme met golflengtes $\frac{1}{2}a_x$ en $\frac{1}{2}a_y$ respektieflik en n-te orde golwe met golflengtes $\frac{1}{2}a_x/n$ en $\frac{1}{2}a_y/n$ respektieflik. Die reeks in vergelyking 2 identifiseer die terme as eerste harmoniese golfkruine met opeenvolgende golwe ewewydig aan AD, AB, AC en DB respektieflik.

Die individuele terme in vergelyking 2 is reeds gekoppel aan spesifieke atoomrye en daar is voorgestel dat die amplitudes van spesifieke terme sal toeneem met toename in die betrokke lyndigtheid van die bron en ook sal afhang van die golflengte (relevante rypsasiëring). Op grond van hierdie kriterium word verwag dat die Fourier-koëffisiënte sal afneem vir die golfbronne in die volgorde AD, AC en DB. Hierdie vermoede is bevestig deur berekening gegrond op die ingebedde atoommetode (EAM).⁸ Die berekening van optimale Fourier-koëffisiënte sal in afdeling 2.4 aandag geniet.

Daar is reeds met semikwalitatiewe argumente aangetoon dat rypsasiëring 'n belangrike kriterium is vir die realisering van ideale epitaksiale oriëntasies. Dit is ook reeds voorspel² vir fcc (111)/bcc (110)-epitaksie met behulp van die starremodel – 'n bevestiging wat meer volledig in afdeling 2.3 aandag sal geniet. Die welbekende Nishiyama-Wassermann (NW)-oriëntasie van figuur 1 vereis dus primêr passing van rye ewewydig aan ACF – die sogenaamde NW-x-oriëntasie – of rye ewewydig aan EBDG (die NW-y-oriëntasie) terwyl in die Kurdjumov-Sachs (KS)-oriëntasie AB ewewydig is aan AE. Die relevante wanpasse van ooreenkomstige rye word gegee deur



Figuur 1: Struktuur van rombiese bcc (110) ABCD- en fcc (111) ACFG-kontakvlak eenheidselle in Nishiyama-Wassermann-oriëntasie. Die simboolpare (a, b) , $(a_x, b_x) = (2a \sin \alpha, 2b \sin \beta)$, $(a_y, b_y) = (2a \cos \alpha, 2b \cos \beta)$ en $(d_a, d_b) = (a \sin 2\alpha, b \sin 2\beta)$ stel respektieflik lengtes van naastebyre afstande, lang diagonale, kort diagonale en spasiering van oorsaande sye van die eenheidselle voor. Die hoeke $BAC = \alpha$ en $BEF = \beta$ is respektieflik gelyk aan $\arctan \sqrt{2} \approx 54.74^\circ = \alpha$ en $\beta = 60^\circ$.

$$f_x = \frac{b_x - a_x}{a_x} = \frac{r}{r_x} - 1; NW - x; r_x = \frac{\sin \alpha}{\sin \beta} \approx 0.94 \quad (3)$$

$$f_y = \frac{b_y - a_y}{a_y} = \frac{r}{r_y} - 1; NW - y; r_y = \frac{\sin \alpha}{\sin \beta} \approx 1.15 \quad (4)$$

$$f_{KS} = \frac{d_b - d_a}{d_a} = \frac{r}{r_x} - 1; KS; r_{KS} = \frac{\sin 2\alpha}{\sin 2\beta} \approx 1.09 \quad (5)$$

waar $\alpha = \arctan \sqrt{2}$, $\beta = \pi/3$ (radiale) en $r = b/a$. Daar is ook geargumenteer dat energieminimering verkry kan word met 'n klein genoeg wanpas (f), deurdat passing bewerkstellig kan word óf deur homogene (wanpas-) vervorming óf deur ossillerende elastiese relaksasie met die vorming van wanpasontwrigtings. Die voorkoms van die genoemde oriëntasies by voldoende klein wanpasse is eksperimenteel bevestig.⁹

Die fcc (111)/bcc (110)-epitaksiekriteria soos hierbo bespreek, is gegrond op eendimensionele (1D-) passing. Oriëntering deur passing van een reeks rye impliseer 'n groot wanpas in die loodregte rigting, d.i. wanpasakkommodasie by benadering deur 'n wanpasnonius. 'n Nonius-wanpasakkommodasiewyse behels 'n reduksie van die algehele potensiële energiewins en aldus ook van die potensiële epitaksiale dryfkrag. Let op dat 2D-passing, of gedwonge pseudomorfe groei, in hierdie stelsels slegs energeties moontlik is solank die lagie dun genoeg is, byvoorbeeld by 'n monolaag (ML) van (111) Cu op (110) W.¹⁰ By (111) fcc/fcc (111)- en (110) bcc/bcc (110)-epitaksie is natuurlike 2D-passing wel denkbaar. Dit is vanselfsprekend dat die oriënteringsdryfkrag met natuurlike 2D-passing groter sal wees as met (111) fcc/(110) bcc natuurlike 1D-passing of gedwonge 2D-passing, mits alle ander faktore dieselfde is.

Die studie van fcc (111)/bcc (110)-epitaksie het nog veel meer interessante eienskappe van die verskynsel blootgelê. Daar word nou oorgegaan na die meer algemene beskrywing, naamlik, dié van die omgekeerde tralieruimte. Ter afsluiting van die voorafgaande word kortliks vermeld dat in die (r , θ)-ruimte⁶, waar θ die asimutale oriëntasie van 'n epitaksiale eilandjie is, die starremodel voorspel dat (i) die gemiddelde energie $\langle V \rangle$ per epitaksiale tussenvlakatoom in die gebied tussen ideale punte van die (r , θ)-ruimte ossilleer, (ii) dat die amplitudes groter sal wees hoe nader hulle aan die ideale punte kom en (iii) dat die amplitudes na nul neig as die eilandbasis baie groot word, terwyl die aanloop tot die ideale waardes van $\langle V \rangle$ dan na 'n δ -funksievariasie neig. Stelsels met swak eiland-substraatwisselwerking, soos byvoorbeeld metaalioniese kristalkombinasies, word redelik goed deur die starremodel voorgestel.

Dit is interessant om daarop te let dat 'n sterk substraat-gebonde ultradunlagie – monolaag of dubbellaag – wat bokant 'n kritieke dikte van 'n pseudomorfoetostand (NW-oriëntasie) na 'n KS-oriëntasie oorgaan, reoriëntasie oor 'n groot oppervlak met energieversperrings moet ondergaan en dat dit dan dikwels, minstens in die vroeë oorgangstadia, 'n verspreiding van oriëntasies tussen NW en KS kan vertoon.

Dit is ook begryplik dat in 'n nonius van wanpasakkommodasie, wat natuurlik kan realiseer as die wanpas groot genoeg is en/of die kontakvlakwisselwerking swak genoeg is, die weerstand van die substraat teen verplasing van die epilagie in die betrokke rigting(s) – of selfs rotasie as die nonius tweedimensioneel is – weglaatbaar is sodat die epilagie maklik op die substraat kan “dryf”. Hierdie eienskap vind belangrike toepassing in die tegnologie met gebruikmaking van sogenaamde “meegaande” (compliant) substrate.¹¹

2.3 Die omgekeerde traliebeskrywing

In die voorafgaande is met kwalitatiewe argumente aan die hand van 'n spesifieke stelsel die weg aangedui waarlangs gesoek kan word na 'n meer algemene en beter gefundeerde kriterium vir die totstandkoming van epitaksiale oriëntasies. So 'n kriterium is deur M. Braun¹² in sy Ph.D.-studie geïdentifiseer. Hy het aangetoon hoe die omgekeerde tralieformalisme in kombinasie met die starremodel op 'n natuurlike wyse lei tot 'n elegante en kragtige kriterium, gegrond op energieminimering, vir epitaksiale oriëntering.

Die eenheidsel van die substraatoppervlak kan beskryf word in terme van 'n tweedimensionele Bravais-rooster met basisvektore \mathbf{a}_1 en \mathbf{a}_2 en omgekeerde traliebasisvektore \mathbf{a}_1^* en \mathbf{a}_2^* , wat benewens die vereiste van samevlakkigheid, die verband

$$\mathbf{a}_j \cdot \mathbf{a}_j^* = 2\pi\delta_{ij}; i, j = 1 \text{ en/of } 2, \quad (6)$$

waar δ_{ij} die Kronecker-delta is, moet bevredig.

Braun en medewerkers^{12, 13} het daarop gewys dat (i) 'n omgekeerde tralievektor

$$\mathbf{q}_{hk} = h\mathbf{a}_1^* + k\mathbf{a}_2^*; h, k \text{ heelgetalle} \quad (7)$$

– 'n vektor van roosterpunt tot roosterpunt in die omgekeerde tralieruimte van die substraat – ook uitgedruk kan word in terme van omgekeerde traliebasisvektore \mathbf{b}_1^* en \mathbf{b}_2^* van die epilagie kontakvlak, hier geïdentifiseer in terme van boskifte p en q , as

$$\mathbf{q}^{pq} = p(h, k) \mathbf{b}_1^* + q(h, k) \mathbf{b}_2^* \quad (8)$$

$$p \equiv p(h, k) = hr_{11}c_\theta + kr_{12}s_\theta; r_{ij} = b_i/a_j \equiv |\mathbf{b}_i|/|\mathbf{a}_j| \quad (9)$$

$$q \equiv q(h, k) = hr_{21}s_{\theta\beta} + kr_{22}c_{\theta\beta} \quad (10)$$

$$c_\theta = \frac{\sin(\alpha - \theta)}{\sin \alpha}, \quad s_\theta = \frac{\sin \theta}{\sin \alpha} \quad (11)$$

$$s_{\theta\beta} = \frac{\sin(\alpha - \beta - \theta)}{\sin \alpha}, \quad c_{\theta\beta} = \frac{\sin(\beta + \theta)}{\sin \alpha} \quad (12)$$

waar θ die hoek is tussen \mathbf{a}_1 en \mathbf{b}_2 om so die asimutale oriëntasie van die epilagie te spesifiseer, β die hoek tussen \mathbf{b}_1 en \mathbf{b}_2 , en α die hoek tussen \mathbf{a}_1 en \mathbf{a}_2 en

$$(ii) \quad \mathbf{q}_{hk} = \mathbf{q}^{pq} \quad (13)$$

\mathbf{q}_{hk} en \mathbf{q}^{pq} synde dieselfde vektor en

(iii) as (p, q) heelgetalle is, dan is \mathbf{q}^{pq} 'n omgekeerde tralievektor van die epilagie.

Volgens afdeling 2.2 speel die sterkte van epilagie-substraatwisselwerking, soos weerspieël in die grootte van die Fourier-koëffisiënte in die voorstelling van die periodiese epilagie-substraatwisselwerking, 'n vername rol in die realisering van epitaksie, d.i. die groei van 'n lagie met spesifieke oriëntasie. Soos reeds vermeld, bied die omgekeerde tralieformalisme die bes gefundeerde weg waarlangs die relevante Fourier-reekse gekonstrueer kan word. Die konstruksie van die reekse word vergemaklik deur die feit dat die atoom-atoomwisselwerking oor die algemeen 'n kort reikafstand het – vir doeelindes van hierdie studie waarskynlik minder as drie tussenvlakspasiërings, wat be-

teken dat die wisselwerking oor die kontakvlak min of meer voldoende verteenwoordig word deur die wisselwerking tussen atome in die eerste twee atoomvlakke aan weerskante van die kontakvlak. In figuur 3 stel A en B twee naastebeur (nb)-atome in die eerste twee atoomvlakke van die substraat voor en C en D twee in die epilagie. Gestel A is die oorsprong in die atoomvlak (x^1, x^2) wat A bevat en die posisies van die atome by B, C en D word op dié vlak geprojekteer. Die posisies word gegee deur

$$\mathbf{r}_B = x_B^1 \mathbf{a}_1 + x_B^2 \mathbf{a}_2, \quad \mathbf{r}_D = x_D^1 \mathbf{a}_1 + x_D^2 \mathbf{a}_2, \quad (14)$$

$$\mathbf{r}_C \equiv \mathbf{r} = x^1 \mathbf{a}_1 + x^2 \mathbf{a}_2, \quad (15)$$

waarin \mathbf{r}_B en $\mathbf{r}_D - \mathbf{r}_C$ vaste vektore is en \mathbf{r} , d.i. (x^1, x^2) , veranderlik is, om sodoende voorsiening te maak vir die verplasing van die epilagie op die substraat.

As die epilagie op die substraat rondgeskuif word sal die atoompaar C-D 'n periodiese wisselwerking van die substraat ondervind wat in die omgekeerde tralieformalisme gegee word deur^{12, 13}

$$V_{AB}^{CD}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{q}} V_{qA}^C e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} + \sum_{\mathbf{q}} V_{qA}^D e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_D} + \sum_{\mathbf{q}} V_{qB}^C e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_B)} + \sum_{\mathbf{q}} V_{qB}^D e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_D - \mathbf{r}_B)} \quad (16)$$

Dit beteken ook dat in 'n starre epilagie met wanpas, opeenvolgende atoompare in die epilagie wat ekwivalent is aan C-D 'n periodiese potensiaal soos beskryf deur vergelyking 16, vanaf die substraat sal ondervind. In vergelyking 16 stel die eerste reeks die periodiese potensiaal voor wat atoom C van die epilagie sal ondervind as gevolg van die reëlmatige rangskikking van substraatatome in die vlak wat A bevat. Soortgelyke interpretasies geld vir die ander drie reekse.

Vergelyking 16 word gerieflikheidshalwe geskryf as

$$V_{AB}^{CD}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{q}} V_{qA}^C F_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} \quad (17)$$

in terme van die sogenaamde struktuurfaktor $F_{\mathbf{q}}$. As atoom C bokant die oorsprong by A geplaas word kan die posisies van opeenvolgende epilaagtussenvlakatome van 'n starre reghoekige epilagie geskryf word as

$$\mathbf{r}_{mn} = m\mathbf{b}_1 + n\mathbf{b}_2; \quad m = -M, -(M-1) \dots -1, 0, 1, \dots M \\ n = -N, -(N-1) \dots -1, 0, 1, \dots N \quad (18)$$

Deur instelling van \mathbf{r}_{mn} in vergelyking 17, sommasie oor m en n en gebruikmaking van vergelykings 6 – 10, verkry ons die gemiddelde energie per epilaagtussenvlakatoom as

$$\langle V \rangle = \frac{1}{(2M+1)(2N+1)} \sum_{hk} V_{hkA}^C F_{hk} \left\{ \frac{\sin[\pi(2M+1)p]}{\sin \pi p} \frac{\sin[\pi(2N+1)q]}{\sin \pi q} \right\} \quad (19)$$

waar p en q in vergelykings 9 en 10 gedefinieer is.

Die funksie in krulhakies het skerp dominante pieke vir waardes van (h, k) waarvoor $p(h, k)$ en $q(h, k)$ heelgetalle is, dit wil sê die vektor q^{pq} ook 'n tralievektor van die epilagie is. Die gegewe heelgetalle (h, k) en (p, q) respektieflik identifiseer gegewe atoomrye in die substraat en epilagie. Volgens vergelyking 13 is q^{hk} en q^{pq} dieselfde vektore, dit wil sê respektieflik gelyktydig gelyke roostervektore van die substraat en epilagie in die kontakvlak. Samevattend kom dit daarop neer dat gelyke omgekeerde tralievektore in die epilagie en substraat (sien vergelyking 13) op grond van energetiese beginsels deur vergelyking 19, gelyk gespaseerde ewewydige atoomrye aan weerskante van die tussenvlak identifiseer as epitaksiale oriënteringskriterium. Die oriënteringsdryfkrag word verder deur die grootte van die relevante Fourier-koëffisiënt (ietwat gewysig deur struktuurfaktore) bepaal.

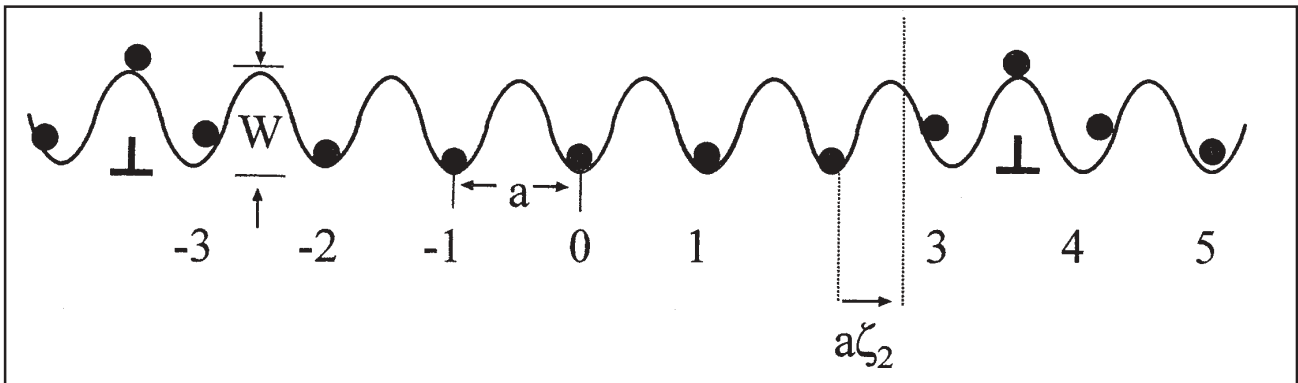
In vergelyking 17 is die reële gedeelte van V van primêre fisiese betekenis en kan geskryf word in die vorm

$$V_{AB}^{CD,R}(x^1, x^2) = \sum_{h,k} V_{hkA}^C \left\{ F_{hk}^R \cos[2\pi(hx^1 + kx^2)] - F_{hk}^I \sin[2\pi(hx^1 + kx^2)] \right\} \quad (20)$$

Die reële (R) en imaginêre (I) dele van die struktuurfaktor F_{hk} , kan respektieflik geskryf word as

$$F_{hk}^R = 1 + f_{hk}^R \quad \text{en} \quad F_{hk}^I = f_{hk}^I \quad (21)$$

waar f_{hk} die veldbydraes spesifiseer van atoomvlakke (aan weerskante van die tussenvlak) wat twee (A→D, B→C) of meer atoomvlakspasiërings van mekaar is. Weens die kort reikwydte van interatoomwisselwerking is¹⁴ $|f_{hk}| \ll 1$, dit



Figuur 2: Die kromme beeld die periodiese potensiaal (amplitude $W/2$ en golflengte a) van die eendimensionele Frenkel-Kontorowa-model uit; die atome (●) – sonder die verbindingsvere (natuurlike lengte b , kragkonstante μ) – en twee opeenvolgende wanpasontwrigtings (⊥). Die getalle nommer opeenvolgende potensiaalminima en opeenvolgende atome. Die periodiese potensiaal (golflengte a) word voortgebring deur reëlmatig gespaseerde (a) atoomrye van die substraat.

wil sê, 'n spesifieke oriëntasie word primêr deur die struktuur in die twee kontaktoomvlakke geïnduseer. Daaropvolgende atoomvlakke maak slegs 'n geringe bydrae tot die grootte van die Fourier-koëffisiënte en aldus tot die oriënteringsterkte. Dat $|f_{hk}| < 1$, is die geval in metale waar die spasierings van opeenvolgende atoomvlakke min of meer gelyk is. Dit kan egter ietwat verskil vir byvoorbeeld (111)-vlakke van halfgeleiers met diamantstruktuur.

2.4. Optimum Fourier-koëffisiënte

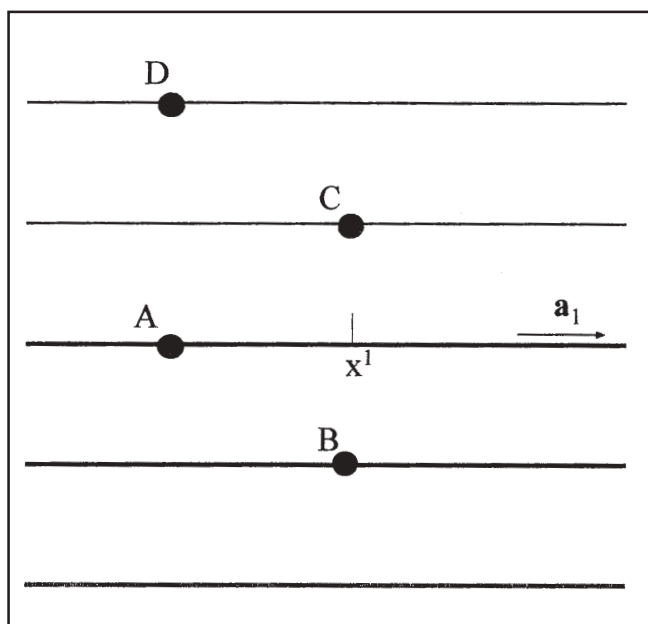
Uit die voorafgaande is dit duidelik dat Fourier-koëffisiënte gekwantiseer moet word as betroubare voorspellings van epitaksiale oriëntasies gemaak wil word. Daarvoor word normaalweg 'n geskikte interatoomwisselwerkingspotensiaal geselekteer byvoorbeeld die ingebedde-atoommetode EAM (= "embedded-atom method").^{15, 16} Die substraatoppervlak-eenheidsel word met K^2 reëlmatige roosterpunte $P_{ij}(x_i^1, x_j^2)$ oordek.^{8, 17} 'n Epilagie wat homogeen vervorm ($\bar{\epsilon}$) is om presies op die substraat te pas, word op die substraat rondgeskuif. Met 'n spesifieke epilagetussenvlakatoom by elk van die K^2 roosterpunte P_{ij} word die ewewigswaarde E_{ij} van die stelsel se energie per tussenvlakatoom bereken. Deur instelling van die koördinate (x_i^1, x_j^2) word 'n alternatiewe energiewaarde $V(x_i^1, x_j^2)$ bereken in terme van die onbekende Fourier-koëffisiënte V_{hk} . Deur minimering van die som

$$S(V_{hk}) = \sum [V(x_i^1, x_j^2) - E_{ij}]^2 \tag{22}$$

met betrekking tot die onbekende koëffisiënte V_{hk} word die uitdrukkings⁹

$$V_{hk} \equiv V_{hk,A}^C F_{hk}^R = \frac{2}{K^2} \sum_{ij} E_{ij} \cos[2\pi(hx_i^1 + kx_j^2)] \tag{23}$$

$$V_{hk,A}^C F_{hk}^I = - \frac{2}{K^2} \sum_{ij} E_{ij} \sin[2\pi(hx_i^1 + kx_j^2)] \tag{24}$$



Figuur 3: Syaansig van vlakke wat atome A, B, C en D bevat – A en B in die eerste twee atoomvlakke van die substraat en C en D in die eerste twee van die epilagie. Met A as oorsprong word die projeksie van die koördinate van atoom C op die vlak wat A bevat aangedui deur die getalle (x^1, x^2) van vergelyking 15.

$$V_{00} \equiv V_{00,A}^C F_{00}^R = \frac{1}{K^2} \sum_{ij} E_{ij} - \epsilon_B = V_{00}(\bar{\epsilon}) - \epsilon_B \tag{25}$$

$$V_{00,A}^C F_{00}^I = 0 \text{ omdat } F_{00}^I = 0 \tag{26}$$

vir die optimum koëffisiënte, soos afgelei deur differensiasie, verkry. In vergelyking 25 is ϵ_B die elastiese energie van homogene vervorming per epilagetussenvlakatoom. Dit blyk dat in metale⁸, die V_{hk} redelik vinnig afneem met harmoniese orde om so die praktyk van afkapping van die reeks by lae ordes vir analitiese gebruik, te regverdig. EAM-berekening het bevestig dat $|f_{hk}|$ soos verskyn in vergelyking 21 inderdaad weglaatbaar klein is.¹⁴

3. SAMEVATTING

Hierdie artikel is geïnspireer deur die behoefte aan kennis ten opsigte van 'n kriterium vir epitaksiale (georiënteerde) groei van 'n dun kristallyne lagie (epilagie) op 'nstruktureel verskillende kristallyne substraat. Epitaksie is die effektiëste proses in die nastreef van perfekte kristalliniteit en lae dimensionaliteit soos benodig in elektroniese stelsels, byvoorbeeld in rekenaars en vir die fundamentele studie van lae-dimensionele stelsels.

Die dryfkrag agter epitaksiale groei is geleë in kristalliniteit; die feit dat die atoomrangskikkings in die kontakvlak georden kan word in verskillende reëlmatige reekse van atoomrye. In elke reeks is die rypspasiering en die (atoom-)lyndigthede dieselfde in opeenvolgende rye. Die sleutelfaktor is dat elke reeks 'n periodiese potensiaal genereer waarvan die golflengte gelyk is aan die rypspasiering en die lyndigtheid die vernaamste faktor is in die groottebepaling van die golfamplitude – die Fourier-koëffisiënte van die periodiese potensiaalvoorstelling. 'n Vernae vereiste in die oriënteringsproses is dat daar in die kontakvlak van die epilagie 'n reëlmatige atoomryreeks bestaan met dieselfde spasiering as die bogenoemde golflengte, sodat energetiese beginsels (minimum energie) die oriëntasie kan voorskryf deurdat die relevante atoomrye van die epilagie hulle oriënteer en posisioneer om energeties verkieslik in die genoemde potensiaalvalleie te lande te kom. Sleutelfaktore in die oriëntering is dus die rypspasiering en grootte van Fourier-koëffisiënte.

Die ideale omstandigheid is dus dat daar presiese passing is – zero wanpas – tussen ooreenkomstige rye aan weerskante van die kontakvlak soos voorspel deur teoretiese berekeninge gegrond op energetiese beginsels toegepas op 'n starremodel – oftewel starre kristalle. Presiese passing is egter onwaarskynlik in kristalle van verskillende materiale. Gelukkig kan reële kristalle elasties vervorm en die vereiste energiminimering bewerkstellig, veral in die beginfase vir 'n monolaag mits die wanpas klein genoeg (subkritiek) is en oriëntering dus moontlik is met presiese aanpassing wat deur homogeenvervorming bewerk word. As die kritieke dikte mettertyd oorskry word en die epilagie 'n oorgang maak na 'n toestand met wanpasontwrigtings behoort die oriëntasie behoue te bly omdat asimutale reoriëntasie gewoonlik 'n energietoename behels, tensy reoriëntasie 'n beter passing – gewoonlik eendimensioneel – bewerk, 'n passing wat energeties meer voordelig is, soos byvoorbeeld in die oorgang van die pseudomorfe NW-oriëntasie na die KS-oriëntasie. Ook van belang is dat 'n asimutale reoriëntasie gewoonlik 'n vertraging ondervind omdat dit die oorkoming van

energieversperrings vereis.

As die natuurlike wanpas superkritiek is, vereis stabiliteit die vorming van wanpasontwrigtings reeds op 'n vroeë stadium en kan termiese energie 'n asimutale reoriëntasie bewerk, indien nodig, na 'n minimum energiekonfigurasie, wat gewoonlik ewewydigheid van kontakvlakatoomrye met klein wanpas impliseer om so oriëntering te bewerk.

Implisiet in die voorafgaande bespreking is dat die groei lagigegewys (ML op ML) geskied. Hierdie groeiwyse vereis dat die binding van adatome op die substraat sterk genoeg is sodat adatome energeties verkiesliker op die substraat aan die epitaksiale eilandrand bind as bo-op die eiland. As die teenoorgestelde geld, geskied die groei deur die vorming van kritieke kerne – kristallyne eilandjies wat driedimensioneel groei. Die periodiese potensiaal, gegenerer deur die substraat en verantwoordelik vir oriëntering, is egter steeds teenwoordig. 'n Belangrike verskil is dat in die begin, as die eilandjies nog klein is, hulle 'n sekere mate van mobiliteit in translasië en rotasië besit. Namate hulle groter word vestig hulle hulle dan meestal in 'n energeties voordelige oriëntasie op die substraat.

Die kwalitatiewe voorspellings soos hierbo beskryf, is teoreties bevestig, beginnende met 'n elementêre energetiese analise van epitaksie by *fcc(111)/bcc(110)*-kontakvlakke van “starre” kristalle en periodiese interaksie gegenerer deur reëlmatige atoomrangskikkings in die twee atoomkontakvlakke. Hierdie analise is opvolgend streng veralgemeen met beskrywings in die tralieruimte deur:

- die konstruksie van toepaslike Fourier-reeksse ter voorstelling van die periodiese potensiale soos gegenerer deur die starre of homogeen vervormde kristalle,
- bevestiging van die impak van Fourier-koëffisiënte op die oriënteringsdryfkrag,
- berekening van die bydraes – die struktuurfaktore – van opeenvolgende atoomvlakke tot die Fourier-koëffisiënte soos verkry van die reëlmatige atoomrangskikkings in die kontakvlak,
- afleiding van formules vir die berekening van optimale Fourier-koëffisiënte met gebruikmaking van geskikte interatoomwisselwerkings en
- die afleiding van 'n formule vir die voorstelling van die kriterium vir epitaksiale groei.

Vir die gebruiker van epitaksie behels dit:

- die identifisering van materiale – elemente, verbindings, legerings en so meer – wat aan gesogte elektroniese en/of optiese eienskappe voldoen,
- die selektering van kombinasies wat moontlik aan die vereistes van rypassing vir epitaksiale groei en laag-vir-laag groei vir homogene dikte, en dus struktuurvereistes sal voldoen en
- die identifisering van prosedures om die kombinasies wat nie presies aan al die vereistes voldoen nie te “dokter” deur gebruikmaking van tussenlae en/of dotering en/of temperatuur- en tempostappe, ten einde die onverenigbaarheid te oorbrug.

'n Breedvoerige beskrywing van al die bogenoemde aspekte behels 'n afwyking van die beoogde doelwit van hierdie artikel, naamlik die identifisering van die voorwaardes vir epitaksiale (of georiënteerde) groei.

SUMMARY

This review has mainly been motivated by the impact of epitaxy on the fabrication of (i) high technological devices, for example in electronics and optics and (ii) low dimensional systems for fundamental studies. Epitaxy is the most successful mechanism by which the necessary perfection in crystallinity, thickness uniformity and miniaturisation in thin film growth can be pursued. Epitaxy is the phenomenon by which a crystalline substrate, A, induces a specific orientation on a normally misfitting thin crystalline film, B, the epilayer that grows on its surface.

Evidently, an indispensable property of device components to be useful is their structural and compositional stability. Reliable knowledge exists with respect to the various modes of misfit accommodation (MA): (i) misfit (homogeneous) strain (MS) to reduce or eliminate mismatch, (ii) misfit dislocations (MDs) when the crystals do not match – neither naturally nor homogeneously strained – with oscillatory strains though for energy minimization, and (iii) a misfit vernier (MV) that would be realised if the crystals were perfectly rigid and otherwise represent the asymptotic configuration when the mismatch becomes so large that oscillatory strains become negligible. Of these MA modes MS alone – the so-called pseudomorphic (ps) configuration – serves best to attain perfection in crystallinity and constitutes an important theme in this review.

The accepted knowledge about structural stability can be summarized as follows: (i) for a monolayer (ML) there exists a critical misfit f_c below which the ps configuration is stable and above which stability requires the presence of MDs. However, between f_c and a limiting misfit f_l the ps configuration is metastable, i.e. the generation of a MD requires a thermal fluctuation to overcome the energy barrier. Above f_l the energy barrier vanishes and MDs enter spontaneously. Above f_c the ps configuration is named pseudostable if the temperature and energy barrier are such that the occurrence probability of an appropriate thermal fluctuation within a “practical” time span is practically zero, e.g. is longer than the useful lifetime of the device. When the natural misfit is below f_c ps multilayers can be grown that exhibit critical and limiting thicknesses t_c and t_l such that a ps multilayer can be pseudostable in the interval (t_c, t_l) . Clearly, ps growth on a perfect crystalline substrate serves best to pursue the ideal of perfection in crystallinity.

Uniformity in thickness depends on the growth mode (GM). Bauer has identified the three growth modes, namely ML-by-ML, island – respectively also known as Frank-Van der Merwe (FM) and Volmer-Weber (VW) – and Stranski-Krastanov (SK) growth. In SK growth, the growth changes to VW after completion of one or a few MLs in FM growth. Clearly, the pursuit of uniformity in thickness is best served by growing in FM mode. The FM mode is favoured when the bonding onto the substrate is stronger than on top of the completed layer, i.e. it is energetically profitable to cover up the substrate.

Thus while reliable knowledge about structural perfection and stability, as well as GM is available, uncertainty exists as to the driving forces for epitaxial growth (i.e. orientation). Knowledge about these forces is important because it facilitates the selection of suitable materials. Frank and Van der Merwe have proposed ps ML-by-ML growth on a perfect crystalline substrate as a driving mechanism. While this is a sufficient condition, clear indications of a necessary and sufficient condition only emanated from energy considera-

tions in a theoretical study of epitaxy at (111) fcc/(110) bcc misfitting "rigid" crystals. Key factors in this study are (1) that the interaction potential between the two crystals is limited to the atomic layers adjoining the interface and (2) that V is periodic and can thus be represented by a Fourier series – truncated for simplicity – with the periodicity of the adjoining atomic layers. The "rigid" nature of the model facilitates exact calculation of properties based on energetic principles and yields clear indications of a necessary and sufficient criterion for epitaxy.

Before summarising the findings of this study it would facilitate understanding to elaborate on the physical principles underlying the applied model. The periodic atomic arrangements in the adjoining atomic layers may be thought of as sets of atomic rows. In each set the rows are parallel, equally spaced and equally and homogeneously populated with atoms. Different sets normally have different directions and atomic densities. It is evident that each set would generate in planes above the set, a periodic potential field (V) with wave length equal to the row spacing and height undulation that increases with increasing atomic density within the rows and decreases with increasing height above the set.

If a thin crystalline overlayer is thought of in terms of sets of interfacial atomic rows and the substrate as the source of periodic potentials emanating from its sets of interfacial atomic rows, then obviously the overlayer-substrate interaction energy will be minimized if the overlayer interfacial row spacing of a specific set equals the wave length (substrate row spacing) of the interaction potential from a given set, provided the overlayer is positioned in such a way that its relevant atomic rows fall within the potential valleys. To conclude, of all the sets of overlayer atomic rows and substrate potential valleys energy minimization will combine the two sets that match, i.e. select an epitaxial orientation.

In practice it very seldomly happens that two sets, that satisfy the matching condition exactly, exist. One would expect that if two sets exist for which the misfit is small, real crystals, being elastic, may deform elastically and homogeneously to reduce the mismatch. If the overlayer is thin enough, the misfit small enough and the valleys deep enough, the overlayer will acquire the ps configuration – select a specific epitaxial orientation – to minimize the energy; the gain in energy is effected by moving the rows into the potential valleys being in excess of the strain energy induced into the overlayer. If the ps strain energy is in excess then ps configuration will be unstable. Homogeneous strain may reduce the mismatch and the residual mismatch may be accommodated by MDs to minimize the energy. Since the MDs are linked to the two given sets, a specific orientation will again be selected. At certain interfaces of given crystals, e.g. fcc(111)/bcc (110) interfaces, it is possible that more than one pair of sets, with small misfit may occur simultaneously. A competition then results between the different orientations in which the magnitudes of misfit, homogeneous strain and valley depth are important factors in the orientating driving force.

The predictions of the foregoing qualitative considerations have been confirmed by theoretical analysis and experimental observations. This article focuses on the understanding of the theory. The first clear indication of a criterion for epitaxial (oriented) growth emanated from a study of epitaxy of rigid crystal fcc (111)/bcc (110) interfaces. A Fourier series with the appropriate two-fold symmetry of this interface, truncated at second order harmonic terms, and with magnitudes of Fourier coefficients based on qualitative considerations, has

been constructed to model the interfacial interaction. The energies of finite "rigid" overlayer islands have been obtained exactly by summation and minimized for stability. Apart from confirming the predictions of the foregoing qualitative considerations presented above, specifically the criterion for epitaxial growth, it predicted amongst others, that a finite, but large island of large misfit may more or less float freely over an extensive substrate. The analysis has been extended to involve MS and MDs.

A more formal theory in reciprocal space formalism was put forward by Braun in his Ph.D. thesis. This approach allows the exact construction of the appropriate Fourier series in which the dominant contribution, particularly to the Fourier coefficient, emanates from the interfacial atomic planes, while inputs from first and second nearest neighbour atomic planes are provided in terms of structural factors. By this approach the epitaxial criterion is expressed by equality of the relevant reciprocal lattice vectors and confirms and extends the predictions of the foregoing qualitative considerations. Relations, which facilitate the calculation of optimum Fourier coefficients – quantities of great impact – using suitable atomic interaction potentials, have been derived.

LITERATUURVERWYSINGS

1. Frank, F.C. & Van der Merwe, J.H. (1949). One-dimensional dislocations, I. Static theory, II. Misfitting monolayers, *Proc. Roy. Soc. A.*, 198, 205-216, 216-225.
2. Matthews, J.W. (1975). Coherent interfaces and misfit dislocations. In *Epitaxial Growth, Part B*, Matthews, J.W. ed. (Academic Press, New York) chap. 8.
3. Matthews, J.W. (1979). Misfit dislocations. In *Dislocations in Solids*, Nabarro, F.R.N. ed. (Amsterdam) Chapt. 7, pp. 461-555.
4. Matthews, J.W. (1961). The observation of dislocations to accommodate the misfit between crystals with different lattice parameters, *Phil. Mag.* 6, 1347-1349.
5. Delavignette, P., Tournier, J. & Amelinckx, S. Direct observation of dislocation due to epitaxy, *Phil. Mag.* 6, 1419-1420.
6. Van der Merwe, J.H. (1982). Analytical selection of ideal epitaxial configurations and some speculations on the occurrence of epitaxy, II. Epitaxy of f.c.c. {111} epilayers on a b.c.c. {110} substrate, *Phil. Mag. A*, 45, 145-157.
7. Van der Merwe, J.H. & Braun, M.W.H. (1985). Epitaxy at {111} f.c.c./{110} b.c.c. metal interfaces, *Appl. Surf. Sci.*, 22/23, 545-555.
8. Van der Merwe, J.H., Tönsing, D.L. & Stoop, P.M. (1994). Elastic constants of f.c.c. {111} films, Pt. 2: A monolayer on a b.c.c. {110} substrate, *Thin Solid Films*, 237, 297-309.
9. Bruce, L.A. & Jaeger, H. (1978). Geometrical factors in f.c.c. and b.c.c. metal-on-metal epitaxy: III. The alignment of (111) f.c.c. – (110) b.c.c. epitaxed metal pairs, *Phil. Mag. A*, 38, 223-240.
10. Bauer, E. (1982). Epitaxy of metals on metals, *Appl. Surf. Sci.*, 11/12, 479-494.
11. Jesser, W.A., Van der Merwe, J.H. & Stoop, P.M. (1999). Misfit accommodation by compliant substrates, *J. Appl. Phys.*, 85, 2129-2139.
12. Braun, M.W.H. (1987). Epitaxy on substrates with hexagonal lattice symmetry, Ph.D. proefskrif, Universiteit van Pretoria.
13. Braun, M.W.H. & Van der Merwe, J.H. (2001). Reciprocal space formulation and prediction of misfit accommodation in rigid and strained epitaxial systems, *Metallurg. & Mater. Trans A*, (in druk).
14. Van der Merwe, J.H. (2001). Interplay of periodical interaction and interfacial energy of ultrathin epilayer-thick substrate systems, *Surf. Sci.* (in voorbereiding).
15. Daw, M.S. & Baskes, M.I. (1984). Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces and other defects in metals, *Phys. Rev. B*, 29, 6444-6453.
16. Johnson, R.A. (1988). Relation between defect energies and embedded-atom method parameters, *Phys. Rev. B*, 37, 6121-6125.
17. Stoop, P.M. & Snyman, J.A. (1988). Equilibrium interaction potential and height of an Ar adatom on Ar (001) crystal surface, *Thin Solid Films*, 158, 151-166.



J.H. VAN DER MERWE

Johannes Hendrik (Jan) van der Merwe is op 28 Februarie 1922 in Angola gebore en is saam met sy ouers na Namibië in 1928 waar hy sy skoolopleiding, met matriek aan die Windhoek Hoërskool, voltooi het. Hy het daarna aan die Universiteit van Stellenbosch (US) die B.Sc.-graad (1943) en die M.Sc.-graad (1945) in toegepaste wiskunde, beide met onderskeiding, verwerf. Met die Victoria Stipendium – (US) en 'n WNNR-beurs het hy aan die Universiteit van Bristol 'n Ph.D.-graad (1950) oor teoretiese vastetoestand verwerf en sy formele studies aan UP afgerond met 'n M.Sc.-graad (1956) in wiskunde.

Jan se professionele loopbaan kan soos volg opgesom word: junior lektor (US 1946), navorsings- en senior navorsingsbeampte (WNNR 1947-1953), senior lektor en medeprofessor in fisika (UP 1953-1964), professor in toegepaste wiskunde (UPE 1965-1967 en Unisa 1968-1971), professor in fisika (UP 1972-1989), professor extraordinarius (Unisa 1990-).

Prof. Van der Merwe het sowat 130 publikasies in vaktydskrifte en kongresbundels gepubliseer. Hy ontvang ook 13 eretoekennings wat onder meer die Havengaprys vir wetenskaplike werk van hoogstaande gehalte, insluit.