

К распределению по размерам в трехмерных квантовых точечных кристаллах

© Р.Д. Венгреневич, Б.Д. Иванський, М.О. Стасик, И.И. Панько

Черновицкий национальный университет им. Ю. Федьковича,
58012 Черновцы, Украина

(Получена 18 сентября 2013 г. Принята к печати 30 сентября 2013 г.)

Рассчитана функция распределения наноточек по размерам в искусственных трехмерных квантовых точечных кристаллах (Si)Ge/Si и In(Ga)As/GaAs, полученных с использованием шаблонов с совершенной периодичностью. Наноточки пирамидальной формы моделировались конусообразными кластерами, для которых была получена формула Томсона, необходимая при выводе скорости роста (растворения) кластеров в процессе остальдовского созревания. Из результатов сравнения теоретической кривой с экспериментальными гистограммами следует, что само распределение по размерам формируется в процессе остальдовского созревания и обусловлено особенностями образования квантовых точек Ge и InAs на предварительно текстурированных подложках Si и GaAs.

1. Введение

Элементная база электронной техники нового поколения основывается на использовании как отдельных элементов низкоразмерных 2D-, 1D- и 0D-структур, так и их комбинации. В таких низкоразмерных структурах имеют место квантово-размерные эффекты, на основе которых их разделяют на квантовые 2D ямы — двухмерные структуры, у которых размерное квантование существует в одном направлении, квантовые 1D проволоки — одномерные структуры, движение носителей заряда которых квантуется в двух направлениях и квантовые 0D точки — нуль-мерные структуры, с размерным квантованием во всех трех направлениях (нуль-мерные кристаллы) [1,2].

В квантовых точках (КТ) с пространственным ограничением носителей заряда во всех трех направлениях реализуется предельный случай размерного квантования, наиболее характерный для полупроводников. Если полупроводниковый кристалл уменьшать до размеров, меньших 100 нм, то при переходе в нанометрическую область все его основные характеристики, вследствие эффекта размерного квантования, кардинально изменяются. Наиболее характерное изменение свойств нанокристалла связывается с его электронным спектром. Именно он кардинально изменяется по сравнению с объемными полупроводниками.

Электронный спектр такого воображаемого нанокристалла, ассоциируемого с КТ, представляет собой набор дискретных уровней, разделенных областями запрещенных состояний, и соответствует электронному спектру изолированного атома.

Качественный прорыв в технологии получения наноразмерных структур и, в частности, КТ связан с использованием эффекта самоорганизации полупроводниковых наноструктур, получаемых методом молекулярно-лучевой эпитаксии в режиме Странски–Крастанова [3]. Следует отметить, что движущей силой образования КТ в рассогласованных системах является релаксация упругих напряжений в трехмерном островке [4–6].

Использование полупроводниковых гетероструктур в электронной технике и, в частности, в оптоэлектронных приборах предполагает определенную плотность массива КТ и их высокую однородность как по размерам, так и по форме. Плотные массивы КТ ($\sim 10^{11} \text{ см}^{-2}$) нужны, например, для реализации высокого модального усиления в лазерах. Высокая структурная однородность (узкое распределение по размерам с небольшим значением дисперсии, одинаковая форма КТ, отсутствие дефектов их кристаллического строения) позволяет достигать наиболее кардинальной модификации электронного спектра по сравнению с объемными полупроводниками. Таким образом, КТ должны соответствовать вполне определенным требованиям, предъявляемым к их плотности, размерам, кристаллической структуре, форме и однородности. Нарушение этих требований ведет к деградации структуры массива КТ, а следовательно, к ограничению возможностей их практического применения.

В последнее время благодаря успехам современных нанотехнологий создаются новые искусственные материалы, в значительной мере расширяющие функциональные возможности электронной техники в физике и специальных устройств в химии и биологии. В частности, использование шаблонной самоорганизации позволяет достигать точного позиционирования квантовых точек для создания плоских и объемных матриц квантовых точек [7–10].

Для получения шаблонов с совершенной периодичностью используется метод предельной ультрафиолетовой интерференционной литографии (EUV-IL), на длине волны $\lambda = 13.5 \text{ нм}$ [7]. В качестве подложек для изготовления двухмерных матриц дырок путем реактивного ионного травления в большинстве исследований используется арсенид галлия (GaAs) [11–13], хотя иногда применяют и кремниевые (Si) подложки [8,9,14–16]. На этих подложках методом молекулярно-лучевой эпитаксии и выращивают искусственные, трехмерно упорядоченные, квантовые точечные кристаллы. Рентгеновская дифрактометрия и микроскопия атомного разрешения (AFM) указывают на высокое структурное совершен-

ство полученных таким способом квантовых точечных кристаллов, а также на узкое распределение квантовых точек по размерам.

Возможные структурные нарушения, о которых говорилось выше, в большей мере характерны для гетероструктур, получаемых методом самоорганизации в режиме Странски–Крастанова. В случае шаблонной самоорганизации, при использовании двумерных матриц дырок с совершенной периодичностью [7], структурные нарушения сводятся к минимуму. И все же избежать их полностью не удастся. В большей или меньшей мере эти нарушения могут наблюдаться в процессе эпитаксиального роста при образовании новой фазы, выделяющейся в виде массива квантовых точек.

Процесс образования новой фазы, являясь фазовым переходом первого рода, начинается с возникновения ее зародышей, их последующего независимого роста и, наконец, развития этих зародышей во взаимодействии между собой. В литературе описано несколько типов взаимодействий между кластерами образовавшейся новой фазы [17]. Однако основной тип взаимодействия, который в значительной мере может ухудшать микроструктуру островкового конденсата, связан с остальдовским созреванием (ОС). Говоря о микроструктуре имеются в виду все ее аспекты: распределение по размерам, форма кластеров, их кристаллическая структура и т.д.

ОС — это поздняя стадия фазового превращения, т.е. заключительная стадия образования новой фазы [18]. ОС наступает тогда, когда пересыщение адатомов на подложке очень мало (стремится к нулю), что соответствует полному или частичному прекращению напыления атомов. При этом новые кластеры не образуются, а происходит их перераспределение по размерам. Собственно происходит то, что называется ОС: мелкие кластеры, имея большую кривизну поверхности (основания), в соответствии с эффектом Гиббса–Томсона, растворяются и исчезают, а более крупные растут. В равновесии с пересыщенным „морем“ адатомов находятся кластеры так называемого критического размера r_k .

Возможность управления структурообразованием на поздних стадиях фазового превращения предполагает изучение механизма роста кластеров в процессе ОС. Существующие математические методы, используемые при теоретическом рассмотрении явления ОС, позволяют для данного механизма роста и данной формы кластеров рассчитать функцию распределения кластеров по размерам, в которой содержится наиболее полная информация о структурных особенностях дисперсной системы [19–24].

Первое теоретическое описание процесса ОС в островковых пленках как прообраза гетероструктур с квантовыми точками [25–27] было сделано Чакаверти [28]. Он распространил теорию Лифшица–Слезова–Вагнера (теорию ЛСВ) [19–21], первоначально разработанную для объемных трехмерных систем (сплавы, композиты), на поверхностные двумерные системы (пленки). В его работе куполообразные островки моделировались сферическими сегментами, массоперенос между которыми

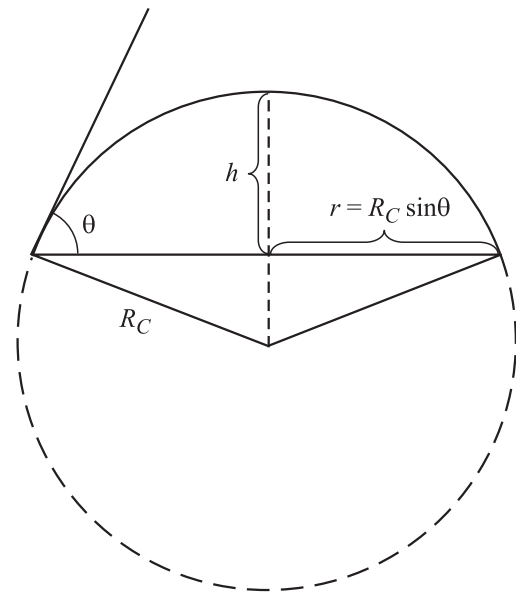


Рис. 1. Сегментобразный кластер (островок).

осуществлялся путем поверхностной диффузии. Если рост кластеров лимитируется коэффициентом поверхностной диффузии D_s , то в формуле Томсона, которая изначально была получена для кластеров сферической формы и которая определяет концентрацию адатомов C_r на границе кластер–подложка, должен фигурировать радиус кривизны основания кластера r [29]. У Чакаверти же концентрация адатомов C_r на границе с островком определяется радиусом кривизны сферы R_c , частью которой является сегментобразный островок (рис. 1), т.е. радиусом кривизны его поверхности. В этом случае скорость роста кластеров должна определяться не поверхностной диффузией, а диффузией в неком приповерхностном слое, толщина которого должна совпадать со средней высотой сегментобразных кластеров $\langle h \rangle$ (рис. 1). Это обстоятельство требует введения нового коэффициента диффузии в приповерхностном слое, что является проблематичным. Указанная неточность, когда, с одной стороны, скорость роста кластеров $\frac{dr}{dt} \equiv \dot{r}$ определяется коэффициентом поверхностной диффузии D_s , а с другой — когда концентрация адатомов C_r на границе с кластером определяется не радиусом кривизны его основания r , а радиусом кривизны его поверхности R , не повлияла, однако, на правильность полученных результатов, поскольку при этом не изменились размерности \dot{r} , ни функции распределения по размерам $f(r, t)$.

И все же допущенная в работе [28] неточность при определении концентрации на границе раздела кластер–матрица C_r указывает на то, что формулу Томсона необходимо модифицировать таким образом, чтобы ее можно было бы использовать как для объемных, так и для поверхностных систем, с учетом формы кластеров. Например, если КТ в гетероструктуре или квантовом кристалле имеют пирамидальную или клиновидную фор-

му, то при проведении расчетов их удобно моделировать конусообразными островками. Возникает вопрос — какой вид в этом случае будет иметь формула Томсона.

Цель настоящей работы — расчет функции распределения квантовых точек по размерам в искусственных, трехмерных квантовых точечных кристаллах, содержащих конусообразные квантовые точки (кластеры).

2. Формула Томсона в общем виде

Давление насыщенного пара над плоской поверхностью жидкости P_∞ и растворимость (концентрация) C_∞ связаны соотношением

$$\frac{P_\infty}{C_\infty} = kT. \quad (1)$$

Над искривленной поверхностью, в частности, над выпуклой давление насыщенного пара P_r больше, чем над плоской ($P_r > P_\infty$). При этом соотношение (1) между P_r и C_r сохраняется:

$$\frac{P_r}{C_r} = kT. \quad (2)$$

Само искривление поверхности жидкости происходит под действием дополнительного лапласовского давления ΔP , направленного внутрь жидкости. Работа ΔA по искривлению одного моля V_μ жидкости равна

$$\Delta A = V_\mu \Delta P. \quad (3)$$

Эта же работа может быть выражена через работу изотермического расширения одного моля насыщенного пара от давления P_∞ до давления P_r :

$$\Delta A = RT \ln \frac{P_r}{P_\infty} \quad (4)$$

или

$$V_\mu \Delta P = RT \ln \frac{P_r}{P_\infty}, \quad (5)$$

откуда

$$C_r = C_\infty l^{\frac{v_m}{kT} \Delta P}, \quad (6)$$

где $C_r = \frac{P_r}{kT}$, $C_\infty = \frac{P_\infty}{kT}$, $V_\mu = N_A v_m$, $k = \frac{R}{N_A}$, R — газовая константа, N_A — число Авогадро, v_m — объем атома, C_r — концентрация насыщенного пара над искривленной поверхностью жидкости.

Соотношение (6) является обобщенным выражением формулы Томсона, которое может быть использовано для определения растворимости (концентрации) C_r атомов растворенного вещества на границе раздела кластер–матрица (кластер–подложка).

Действительно, под действием дополнительного давления ΔP объем сферического кластера $V = \frac{4}{3} \pi r^3$ в объеме матрицы уменьшится на величину $dV = 4\pi r^2 dr$, а его поверхность $S = 4\pi r^2$ — на величину $dS = 8\pi r dr$, так что

$$\frac{dS}{dV} = \frac{2}{r}. \quad (7)$$

При этом ΔP выполняет работу

$$dA = \Delta P dV. \quad (8)$$

По модулю эта работа равна уменьшению поверхностной энергии кластера за счет уменьшения его поверхности:

$$dA = |dE| = \sigma dS, \quad (9)$$

где σ — удельное значение поверхностной энергии. Из (8) и (9) получаем

$$\Delta P = \sigma \frac{dS}{dV} = \sigma \frac{2}{r}. \quad (10)$$

Подставляя (10) в (6), получаем известную формулу Томсона для сферических кластеров:

$$C_r = C_\infty l^{\frac{2\sigma v_m}{kT} \frac{1}{r}}. \quad (11)$$

В случае плоских кластеров, моделируемых шайбами (цилиндрами) постоянной высоты h , имеем: $V = \pi r^2 h$, $dV = 2\pi r h dr$; $S = 2\pi r h$, $dS = 2\pi h dr$; $\frac{dS}{dV} = \frac{1}{r}$, $\Delta P = \frac{\sigma}{r}$ и

$$C_r = C_\infty l^{\frac{\sigma v_m}{kT} \frac{1}{r}}. \quad (12)$$

Для этих же плоских кластеров при выполнении критерия подобия, когда $\frac{h}{r} = \text{const}$: $V = \pi r^3 \frac{h}{r}$, $dV = 3\pi r^2 \frac{h}{r} dr$; $S = 2\pi r^2 \frac{h}{r}$, $dS = 4\pi r \frac{h}{r} dr$; $\frac{dS}{dV} = \frac{4}{3} \frac{1}{r}$, $\Delta P = \frac{4}{3} \frac{\sigma}{r}$, формула Томсона принимает вид

$$C_r = C_\infty l^{\frac{4}{3} \frac{\sigma v_m}{kT} \frac{1}{r}}. \quad (13)$$

Формулы (12) и (13) пригодны как для объема, так и для поверхности, только в одном случае концентрация C_r выражается, например, в единицах массы на единицу объема, а во втором — в единицах массы на единицу площади.

Из рис. 1 видно, что сегментообразные островки, моделирующие форму куполообразных КТ в гетероструктуре, являются частью сферы радиуса R_c , с краевым углом Θ . Поэтому радиус основания островка r , длина его периметра l , поверхность S и объем V могут быть выражены через R_c : $r = R_c \sin \Theta$, $l = 2\pi r \sin \Theta$, $S = 4\pi r^2 \sin^2 \Theta \alpha_2(\Theta)$, $V = \frac{4}{3} \pi r^3 \sin^3 \Theta \alpha_1(\Theta)$, где $\alpha_1(\Theta) = \frac{2-3\cos\Theta+\cos^3\Theta}{4}$, $\alpha_2(\Theta) = \frac{1-\cos\Theta}{2}$ [30]. Зная S и V , находим: $dS = 8\pi r \sin^2 \Theta \alpha_2(\Theta) dr$, $dV = 4\pi r^2 \sin^3 \Theta \alpha_1(\Theta) dr$, откуда

$$\frac{dS}{dV} = \frac{2\alpha_2(\Theta)}{\alpha_1(\Theta) \sin \Theta} \frac{1}{r} \quad (14)$$

и соответственно

$$\Delta P = \frac{2\sigma \alpha_2(\Theta)}{\alpha_1(\Theta) \sin \Theta} \frac{1}{r}. \quad (15)$$

Подставляя (15) в (6), получаем

$$C_r = C_\infty l^{\frac{2\sigma v_m \alpha_2(\Theta)}{kT \alpha_1(\Theta) \sin \Theta} \frac{1}{r}}. \quad (16)$$

Выражение (16) является формулой Томсона для сегментообразного кластера с радиусом основания r и определяет концентрацию адатомов на границе раздела сегментообразный кластер–подложка. В таком виде формула Томсона была впервые получена в [25].

И наконец, получим формулу Томсона для конусообразных островков, моделирующих КТ пирамидальной формы. При условии, что $h/r = \text{const}$ (критерий подобия), объем островка $V = \pi r^2 \frac{1}{3} h = \frac{1}{3} \pi r^3 \frac{h}{r}$, его поверхность $S = \pi r l = \pi r^2 \frac{l}{r}$. Из рис. 2 видно, что $\frac{l}{r} = \sqrt{\frac{h^2}{r^2} + 1}$. Обозначив $\frac{h}{r} = a$, получаем: $V = \frac{1}{3} \pi r^3 a$, $S = \pi r^2 \sqrt{a^2 + 1}$ или $dV = \pi r^2 a \cdot dr$, $dS = 2\pi r \sqrt{a^2 + 1} dr$. Таким образом,

$$\frac{dS}{dV} = 2 \frac{1}{r} \sqrt{1 + \frac{1}{a^2}}, \quad (17)$$

$$\Delta P = \sigma 2 \frac{1}{r} \sqrt{1 + \frac{1}{a^2}}. \quad (18)$$

После подстановки (18) в (6) формула Томсона для конусообразных островков принимает вид

$$C_r = C_\infty l^{\frac{2\sigma v_m}{kT} \frac{1}{r}} \sqrt{1 + \frac{1}{a^2}}. \quad (19)$$

3. Скорость роста кластеров

КТ не всегда подвержены процессу ОС [31]. Однако на практике, при длительных экспозициях, т. е. на поздних стадиях формирования гетероструктуры с КТ, не редко наблюдается процесс ОС [29], сопровождающийся деградацией структуры и свойств гетеросистемы. Особенно это характерно для КТ, синтезируемых химическими методами [32]. При этом, если в процессе релаксации упругих напряжений в КТ не возникают дефекты кристаллического строения и, в частности, дислокации несоответствия [33], то ОС может происходить в условиях поверхностной диффузии.

При диффузионном механизме роста конусообразных кластеров массоперенос между ними осуществляется путем поверхностной диффузии в условиях самосогласованного диффузионного поля [23,34], которое характеризуется коэффициентом поверхностной диффузии D_s . При этом как эмиссия атомов (растворение кластеров), так и присоединение адатомов к кластерам (рост кластеров) происходят по периметру кластера, т. е. вдоль его контура. Для того, чтобы адатомы, достигнув путем поверхностной диффузии периметров островков, могли попасть на их поверхность, они должны преодолеть потенциальный барьер на границе раздела кластер–подложка. После преодоления потенциального барьера перераспределение адатомов по поверхности кластеров происходит под действием капиллярных сил (сил поверхностного натяжения). При этом перераспределение должно происходить таким образом, чтобы сохранялся угол α (рис. 2) ($\text{tg } \alpha = \frac{h}{r}$).

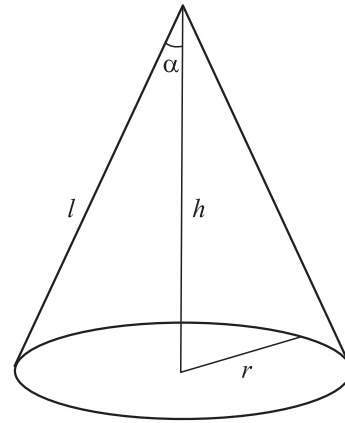


Рис. 2. Конусообразный кластер.

Скорость роста отдельного кластера определяется из условия

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{1}{3} \pi r^3 a \right) = j_s v_m. \quad (20)$$

Диффузионный поток адатомов к кластеру (от кластера) j_s определяется градиентом концентрации $\left(\frac{dC}{dR} \right) \Big|_{R=r}$ на границе раздела кластер–подложка:

$$j_s = 2\pi r D_s \left(\frac{dC}{dR} \right) \Big|_{R=r}. \quad (21)$$

Концентрация адатомов вокруг отдельного кластера описывается уравнением Фика, которое в условиях стационарности и радиальной симметрии принимает вид

$$\frac{1}{R} \frac{d}{dR} \left(R D_s \frac{dC}{dR} \right) = 0. \quad (22)$$

Решение этого уравнения известно [25]:

$$C(R) = \frac{\langle C \rangle - C_r}{\ln l} \ln \frac{R}{r} + C_r, \quad (23)$$

где $\langle C \rangle$ — средняя концентрация адатомов на подложке, определяемая критическим радиусом r_k . В рамках теории ЛСВ критический радиус кластеров r_k совпадает с их средним радиусом $\langle r \rangle$.

Зная $C(R)$, находим j_s :

$$j_s = \frac{2\pi D_s}{\ln l} (\langle C \rangle - C_r), \quad (24)$$

где l — так называемое экранирующее расстояние: $C(R) = \langle C \rangle$ при $R = lr$ ($l = 2, 3$) [28],

$$\langle C \rangle = C_\infty l^{\frac{2\sigma v_m}{kT} \frac{1}{r_k}} \sqrt{1 + \frac{1}{a^2}} \approx C_\infty \left(1 + \frac{2\sigma v_m}{kT} \frac{1}{r_k} \sqrt{1 + \frac{1}{a^2}} \right),$$

$$C_r \approx C_\infty \left(1 + \frac{2\sigma v_m}{kT} \frac{1}{r} \sqrt{1 + \frac{1}{a^2}} \right).$$

Подставляя (24) в (20), находим скорость роста кластера:

$$\frac{dr}{dt} \equiv \dot{r} = \frac{A}{r^3} \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right), \quad (25)$$

где

$$A = \frac{4C_\infty D_s v_m^2 \sigma \sqrt{1 + \frac{1}{a^2}}}{akT \ln l}.$$

Из (25) видно, что те кластеры, размер которых больше критического ($r > r_k$), имея положительную скорость роста ($\dot{r} > 0$), увеличиваются в объеме, т.е. растут, и наоборот, кластеры, радиус которых меньше критического ($r < r_k$), $\dot{r} < 0$, растворяются. В равновесии с раствором (морем) адатомов на положке находятся кластеры критического размера ($r = r_k$), для которых $\dot{r} = 0$.

Скорость роста (25) позволяет определить значение так называемой запирающей точки $u_0 = \frac{r_g}{r_k}$ [16] — основного параметра теории ЛСВ, где r_g — максимальный размер кластеров. Для этого, согласно [35], необходимо перейти к удельной скорости роста $\frac{\dot{r}}{r}$, т.е. скорости роста в расчете на единицу длины r — радиуса основания кластера:

$$\frac{\dot{r}}{r} = \frac{A}{r^4} \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right). \quad (26)$$

Схематически выражение (26) показано на рис. 3. При $r = r_g$ кривая (26) достигает максимума. Из условия экстремума,

$$\left. \frac{d}{dr} \left(\frac{\dot{r}}{r} \right) \right|_{r=r_g} = 0, \quad (27)$$

находим

$$u_0 = \frac{r_g}{r_k} = \frac{4}{3}. \quad (28)$$

Смысл запирающей точки u_0 в том, что соотношение между максимальным размером кластеров r_g и критическим r_k (средним $\langle r \rangle$) остается постоянным на протяжении всего времени протекания процесса ОС. Все решения в рамках теории ЛСВ, в том числе и функцию распределения кластеров по относительным

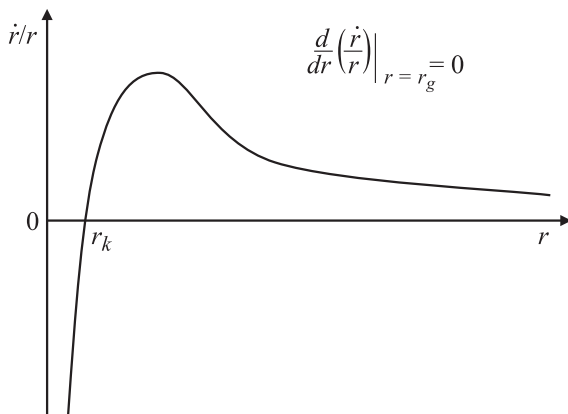


Рис. 3. Удельная скорость роста.

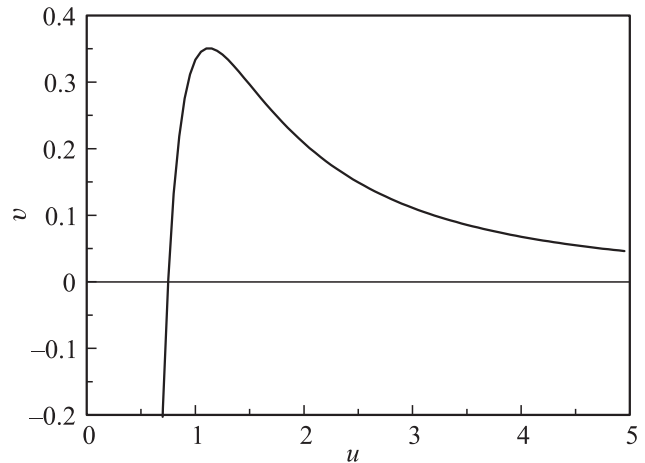


Рис. 4. Безразмерная скорость роста.

размерам $g(u)$, получают только для одного отношения между r_g и r_k , определяемого из условия (27) [35], которое в рассматриваемом случае для данной формы кластеров и данного механизма роста, равно $\frac{4}{3}$. Повидимому, стационарных решений для других отношений между r_g и r_k не существует.

Используя (28), скорость роста кластеров (25) можно выразить в черз безразмерную переменную u :

$$v = \frac{r_g^3}{A} \frac{dr}{dt} = \frac{4}{3} \frac{1}{u^2} - \frac{1}{u^3}. \quad (29)$$

На рис. 4 безразмерная скорость роста v (29) изображена графически.

Зная u_0 , можно проинтегрировать уравнение (25) и получить временные зависимости для максимальных, а следовательно, и для критических размеров кластеров. Положив в уравнении для скорости роста (25) $r = r_g$, получим

$$\frac{dr_g}{dt} = \frac{A}{r_g^3} \left(\frac{r_g}{r_k} - 1 \right) = \frac{1}{3} \frac{A}{r_g^3}, \quad (30)$$

откуда

$$r_g^4 = \frac{4}{3} At \quad (31)$$

или

$$r_k^4 = \left(\frac{4}{3} \right)^3 At. \quad (32)$$

4. Функция распределения кластеров по относительным размерам $g(u)$

Согласно [35], функцию распределения кластеров по размерам $f(r, t)$ будем искать в виде произведения двух функций, одна из которых — $\varphi(r_g)$ не явно, через r_g , зависит от времени t , а вторая — $g'(u)$, с точностью до постоянной, является функцией распределения кластеров по относительным размерам $u = \frac{r}{r_g}$:

$$f(r, t) = \varphi(r_g) g'(u). \quad (33)$$

Функцию $\varphi(r_g)$ можно определить из закона сохранения объема дисперсной фазы:

$$\Phi = \frac{1}{3}\pi a \int_0^{r_g} r^3 f(r, t) dr. \quad (34)$$

После подстановки в (34) $f(r, t)$ из (33) получаем

$$\varphi(r_g) = \frac{Q}{r_g^4}, \quad (35)$$

где

$$Q = \frac{\Phi}{\frac{1}{3}\pi a \int_0^1 u^3 g'(u) du}. \quad (36)$$

С учетом (35) $f(r, t)$ (33) переписывается в виде

$$f(r, t) = \frac{1}{r_g^4} Q g'(u) = \frac{1}{r_g^4} g(u), \quad (37)$$

где

$$g(u) = Q g'(u). \quad (38)$$

Для того чтобы определить постоянную Q и соответственно функцию распределения по относительным размерам $g(u)$, необходимо найти $g'(u)$.

Функцию $g'(u)$ будем искать из уравнения непрерывности:

$$\frac{\partial f(r, t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial r} [f(r, t) \dot{r}] = 0. \quad (39)$$

Если в (39) вместо \dot{r} и $f(r, t)$ подставить их значения из (25) и (33) и перейти от дифференцирования по r и t к дифференцированию по u , то в уравнении непрерывности (39) разделяются переменные, и мы приходим к выражению

$$\frac{dg'(u)}{g'(u)} = -\frac{4v_g - \frac{1}{u^3} \frac{dv}{du} - \frac{1}{u^4} 3v}{4v_g - \frac{1}{u^3} v} du, \quad (40)$$

где

$$v = -\frac{r^3}{A} \frac{dr}{dt} = \frac{r}{r_g} \frac{r_g}{r_k} - 1 = u \frac{r_g}{r_k} - 1, \quad v = v_g|_{r=r_g}.$$

Как уже отмечалось, в теории ЛСВ все решения получают только для одного значения запирающей точки $u_0 = r_g/r_k$, которое в нашем случае равно $\frac{4}{3}$. Поэтому в (40) $v = \frac{4}{3}u - 1$, $\frac{dv}{du} = \frac{4}{3}$, $v_g = \frac{1}{3}$, и в результате получаем

$$\frac{dg'(u)}{g'(u)} = -\frac{4u^4 + 8u - 9}{u(1-u)^2(u^2 + 2u + 3)} du. \quad (41)$$

Искомую функцию $g'(u)$ находим путем интегрирования (41):

$$g'(u) = \frac{u^3 \exp\left[-\frac{1}{2(1-u)}\right] \exp\left[-\frac{\sqrt{2}}{12} \tan\left(\frac{u+1}{\sqrt{2}}\right)\right]}{(1-u)^{19/6}(u^2 + 2u + 3)^{23/12}}. \quad (42)$$

Зная $g'(u)$, находим Q и соответственно функцию распределения по относительным размерам (38).

Поскольку в процессе ОС отношение r_g/r_k остается неизменным ($g(u)$ не зависит от времени), то распределение по относительным размерам $g(u)$ не зависит от начального распределения $g_0(u)$. По этой причине функцию $g(u)$ удобно использовать на практике для сравнения с экспериментальными гистограммами, предварительно представив их в зависимости от переменной u .

5. Обсуждение

Изображенная на рис. 5, *a* кривая соответствует рассчитанному распределению по относительным размерам (38). Поскольку распределение (38) было получено при условии $h/r = \text{const}$, то переменную u можно выразить не только как отношение r/r_g , но и как отношение h/h_g , т.е. $u = r/r_g = h/h_g$, где h_g — максимальная высота островков. Это означает, что для сравнения с теоретически рассчитанной кривой (38) могут быть использованы не только экспериментальные гистограммы, полученные в виде зависимостей числа островков от их радиусов (диаметров), т.е. в виде распределений по диаметрам, но и в виде распределений по высотам.

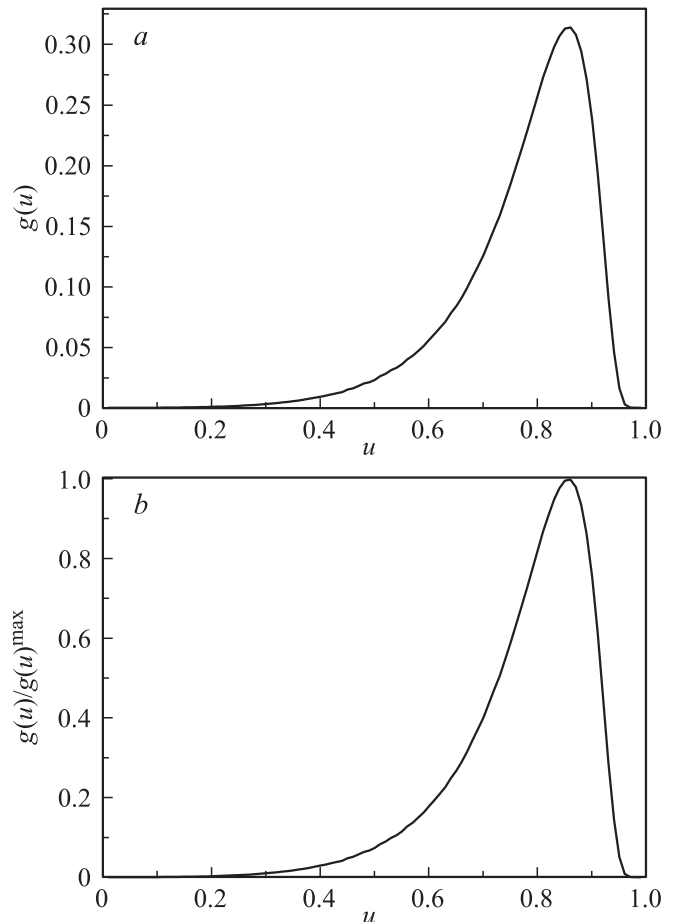


Рис. 5. *a* — распределение по относительным размерам (38); *b* — кривая (38), нормированная на свой максимум.

На рис. 5, *b* приведена кривая (38), нормированная на свой максимум. В таком виде, когда координатные оси нормированы на единицу, распределение (38) удобно для сравнения с аналогичным образом нормированными экспериментальными гистограммами [35].

На рис. 6 приведены результаты сравнения теоретической кривой (38) с экспериментальными гистограммами, демонстрирующими распределение по высотам h (рис. 6, *a*) и диаметрам (рис. 6, *b*) нанокристаллов (наноточек) германия, выращенных на поверхности трехмерного квантового точечного кристалла Ge/Si [7]. Сам кристалл состоял из пакета (штабеля) квантовых точек Ge, имеющих пирамидальную (или клиновидную) форму, разделенных десятью слоями кремния толщиной приблизительно 10 нм. Все точки в германиевых слоях были выращены при температурах от 300 до 450°C на предварительно структурированных поверхностях Si.

Отсутствие на экспериментальных гистограммах асимметричной ветви со стороны мелких размеров может означать, что в процессе шаблонной самоорганизации наноточки Ge могут образовываться не только в

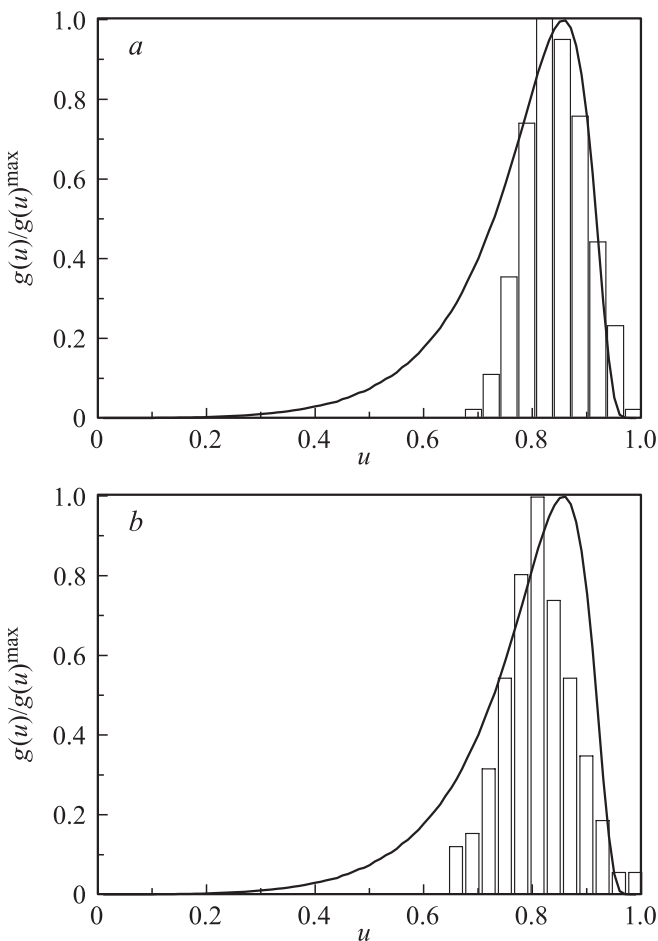


Рис. 6. Сравнение теоретической кривой (38) с нормированными экспериментальными гистограммами наноточек Ge, выращенных на поверхности квантового трехмерного точечного кристалла Ge/Si [4]: *a* — распределение по высотам h ; *b* — распределение по диаметрам d .

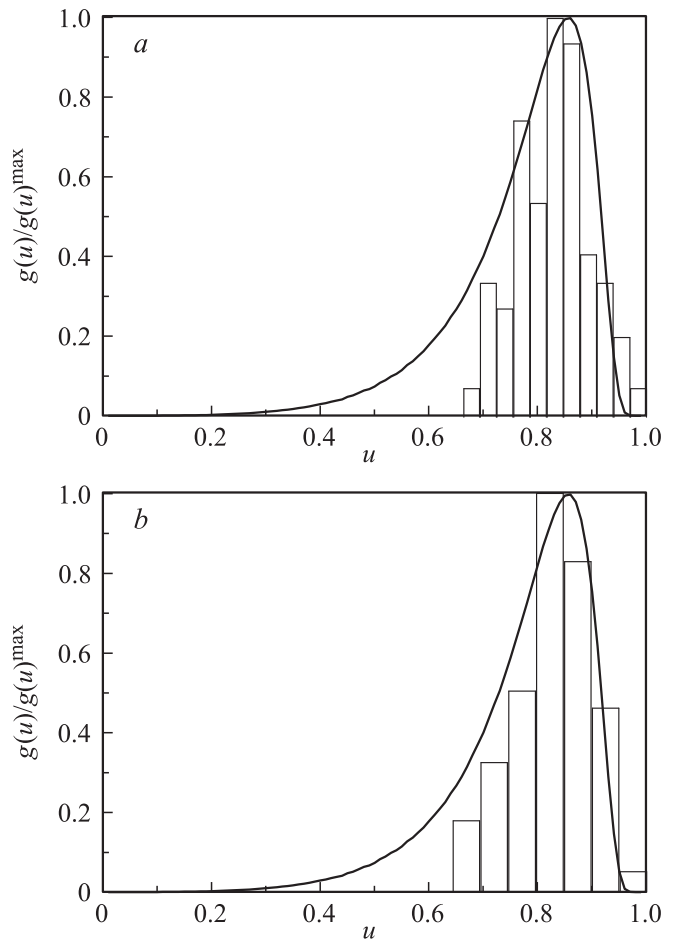


Рис. 7. Сравнение теоретической кривой (38) с экспериментальными гистограммами наноточек InAs на поверхности квантового кристалла In(Ga)As/GaAs с периодичностью 210 нм [30]: *a* — распределение по высотам h ; *b* — распределение по диаметрам d .

строго отведенных местах матрицы дырок, но самопроизвольно и в других местах, например в ячейках между дырками матрицы. Однако случайно образовавшиеся зародыши наноточек Ge, имея докритический размер ($r < r_k$, гомогенное образование зародышей), в процессе конкурирующего роста быстро растворяются и исчезают. Остаются только наноточки Ge, образовавшиеся в местах точного позиционирования матрицы дырок, имеющие с самого начала закритические размеры ($r > r_k$, гетерогенное образование зародышей). Это означает, что в случае шаблонной самоорганизации, при использовании двухмерных матриц дырок, начальное распределение по размерам, полученное в рамках кинетической теории [36], может трансформироваться в форму Лифшица–Слезова (ЛС форму).

Таким образом узкое распределение по размерам формируется в процессе эволюции ансамбля КТ на всех стадиях роста и обусловлено особенностями образования наноточек Ge на предварительно текстурированной подложке Si.

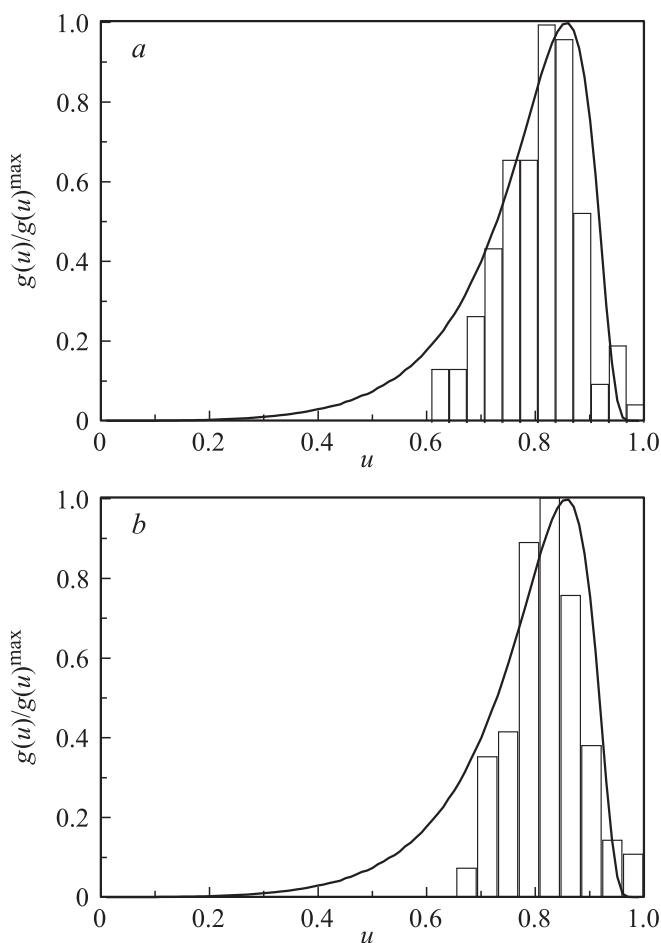


Рис. 8. Сравнение теоретической кривой (38) с экспериментальными гистограммами наноточек InAs на поверхности квантового кристалла In(Ga)As/GaAs с периодичностью 160 нм [30]: *a* — распределение по высотам *h*; *b* — распределение по диаметрам *d*.

На рис. 7,8 показано сравнение теоретической кривой (38) с экспериментальными гистограммами, которые соответствуют распределениям по высотам *h* (рис. 7,8, *a*) и диаметрам *d* (рис. 7,8, *b*) наноточек InAs на поверхностях трехмерных квантовых точечных кристаллов In(Ga)As/GaAs [37]. Как и в случае квантовых кристаллов (Si)Ge/Si, наноточки InAs имели пирамидальную форму. Сами кристаллы состояли из пакета островков InAs, разделенных шестью слоями определенной конфигурации и состава [37], осажденных на предварительно структурированную поверхность. Для изготовления шаблонов в виде матриц дырок с совершенной периодичностью использовались подложки из арсенида галлия (GaAs). Периодичность квантового кристалла, гистограмма поверхности которого показана на рис. 7, составляла 210 нм, а на рис. 8 — 160 нм.

Из рис. 7,8 видно, что рассчитанная функция распределения кластеров по размерам (38) неплохо описывает экспериментальные гистограммы. Отсутствие на гистограммах наноточек InAs с размерами, соответствующи-

ми асимметричной ветви теоретической кривой (38), как и в случае системы Ge–Si, может быть объяснено растворением в процессе ОС нанокристаллов InAs докритического размера ($r < r_k$), образовавшихся в процессе гомогенного зародышеобразования на начальных стадиях формирования квантового кристалла In(Ga)As/GaAs. Таким образом, используя полученную формулу Томсона, моделируя квантовые точки пирамидальной (клиновидной) формы конусообразными кластерами удалось рассчитать функцию распределения квантовых точек по размерам в искусственных трехмерных квантовых точечных кристаллах (Si)Ge/Si и In(Ga)As/GaAs.

Список литературы

- [1] X. Fang, T. Zhai, U.K. Gautan, L. Li, L. Wu, Y. Bando, D. Golbeg. *Progr. Mater. Sci.*, **56**, 175 (2011).
- [2] D.V. Talapin, J.-S. Lee, M.V. Kovalenko, E.V. Shevchenko. *Chem. Rev.*, **110**, 389 (2010).
- [3] I.N. Stranski, L. Krastanov. *Sitz. Ber. Oesterr. Akad. Wiss., Meth.-Nat. wiss. Kl.II*, **146**, 797 (1938).
- [4] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum dot heterostructures* (Wiley, N.Y., 1999).
- [5] V.G. Dubrovskii, G.E. Cirlin, V.M. Ustinov. *Phys. Rev. B*, **68**, 075 409 (2003).
- [6] A.V. Osipov, F. Schimitt, S.A. Kukushkin, P. Hess. *Appl. Surf. Sci.*, **188**, 156 (2002).
- [7] D. Grutzmacher, T. Fromherz, Ch. Dais, Ju. Stangl, E. Muller, Y. Ekinici, H.H. Solak, H. Sigg, R.T. Lechner, E. Wintersberger, S. Birner, V. Holy, G. Bauer. *Nano Lett.*, **7**, 3150 (2007).
- [8] S. Kiravittaya, A. Rastelli, O.G. Schmidt. *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 243 112 (2005).
- [9] Z. Zhong, A. Halilovic, T. Fromherz, F. Schaffler, G. Bauer. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 4779 (2003).
- [10] J.L. Gray, S. Atha, R. Hull, J.A. Floro. *Nano Lett.*, **4**, 2447 (2004).
- [11] H. Lee, J.A. Johnson, J.S. Speck, P.M. Petroff. *J. Vac. Sci. Technol.*, **18**, 2193 (2000).
- [12] M.H. Baier, S. Watanabe, E. Pelucchi, E. Kapon. *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 1943 (2004).
- [13] S. Kiravittaya, A. Rastelli, O.G. Schmidt. *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 043 112 (2006).
- [14] O.G. Schmidt, K. Eberl. *IEEE Trans. Electron Dev.*, **48**, 1175 (2001).
- [15] O.G. Schmidt, N.Y. Jin-Phillipp, C. Lange, U. Denker, K. Eberl, R. Schreiner, H. Grabelding, H. Schweizer. *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 4139 (2000).
- [16] A. Karmous, A. Cuenat, A. Ronda, I. Berbezier, S. Atha, R. Hull. *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 6401 (2004).
- [17] С.А. Кукушкин, В.В. Слезов. *Дисперсные системы на поверхности твердых тел* (СПб., Наука, 1996) с. 309.
- [18] W. Ostwald. *Zs. Phys. Chem.*, **34**, 495 (1900).
- [19] И.М. Лифшиц, В.В. Слезов. *ЖЭТФ*, **35**, 479 (1958).
- [20] I.M. Lifshits, V.V. Slezov. *J. Phys. Chem. Sol.*, **19**, 35 (1961).
- [21] C. Wagner. *Zs. Electrochem.*, **65**, 581 (1961).
- [22] В.В. Слезов. *ФТТ*, **9**, 1187 (1967).
- [23] В.В. Слезов, В.В. Сагалович. *УФН*, **151**, 67 (1987).
- [24] Р.Д. Венгреневич, Б.В. Иванский, А.В. Москалюк. *ЖЭТФ*, **131**, 1040 (2007).

- [25] Р.Д. Венгреневич, Б.В. Иванский, А.В. Москалюк. УФЖ, **53**, 1102 (2008).
- [26] R.D. Vengrenovich, B.V. Ivanskii, A.V. Moskalyuk. Optoelectron. Rev., **18**, 168 (2010).
- [27] Р.Д. Венгреневич, Б.В. Иванский, М.О. Стасик. Металлофизика і новітні технології, **32**, 1085 (2010).
- [28] В.К. Chakraverty. J. Phys. Chem. Sol., **28**, 2401 (1967).
- [29] О.П. Пчеляков, Ю.Б. Болховитянов, А.В. Двуреченский, Л.В. Соколов, А.И. Никифоров, А.И. Якимов, Б. Фойхтлендер. ФТП, **34** (11), 1281 (2000).
- [30] J.P. Hirth, G.M. Pound. *Condensation and Evaporation, Progress in Materials Science*, **11** (Pergamon Press, Oxford, 1963).
- [31] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Шукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП, **32** (4), 385 (1998).
- [32] R. Vengrenovich, B. Ivanskii, I. Panko, M. Stasyk. J. Phys. Chem. C, **117** (26), 13681 (2013).
- [33] Ю.Б. Болховитянов, О.П. Пчеляков, С.И. Чикичев. УФН, **171** (7), 690 (2001).
- [34] С.А. Кукушкин, А.В. Осипов. УФН, **168**, 1083 (1998).
- [35] R.D. Vengrenovich. Acta Metal., **30**, 1079 (1982).
- [36] В.Г. Дубровский. ФТП, **40** (10), 1153 (2006).
- [37] S. Kiravittaya, A. Rastelli, O.G. Schmidt. Rev. Prog. Phys., **72**, 046 502 (2009).

Редактор Т.А. Полянская

On the size distribution function in three-dimensional quantum dot crystals

R.D. Vengrenovich, B.V. Ivanskii, M.O. Stasyk, I.I. Panko

Fed'kovish Chernivtsi National University,
Chernivtsi, Ukraine

Abstract The size distribution of nano-dots has been calculated for artificial three-dimensional quantum-dot crystals (Si)Ge/Si and In(Ga)As/GaAs. Nano-dots of pyramidal shape are modelled as cone-shape clusters, for which the Thomson formula is obtained that is necessary for finding the rate of growth (dissolution) of clusters under the Ostwald's ripening. Comparison of the results of calculation with experimental data is provided. The absence of asymmetric arm for small sizes shows that nano-dots of Ge under the gage self-organization regime can be formed not only at strictly specified locations of holes but also spontaneously at other locations, to say at cells between holes of a matrix. However, spontaneously formed nuclei of nano-dots of Ge with pre-critical size ($r < r_k$, homogeneous forming nuclei) are progressively dissolved and vanish during the concurring growth. The only nano-dots of Ge remain, which were formed at points of strict positioning of the matrix of holes having initial supercritical size ($r > r_k$, heterogeneous forming nuclei). It means that in the case of the gage self-organization and using the two-dimensional hole matrix, the initial size distribution function can be transformed into the Lifshitz-Slyozov distribution (LS-formula). Thus, narrow size distribution function is formed under evolution of nano-crystals at all stages of growth, being caused by the peculiarities of forming quantum dots of Ge and InAs at preliminary textures substrates Si and GaAs.