

01;06;11;12

Спонтанное формирование массивов трехмерных островков в эпитаксиальных слоях

© В.Г. Дубровский, Г.Э. Цырлин, Д.А. Бауман,
В.В. Козачек, В.В. Мареев

Институт аналитического приборостроения РАН, С.-Петербург
Институт высокопроизводительных вычислений и баз данных,
С.-Петербург

Поступило в Редакцию 19 декабря 1997 г.

Исследуется теоретическая модель формирования трехмерных островков нанометрового диапазона при молекулярно-пучковой эпитаксии. Кинетика процессов самоорганизации описывается в рамках модели решеточного газа адсорбата при самосогласованном учете латеральных взаимодействий в энергиях активации диффузионных процессов. Показано, что при температурах ниже критической в некотором интервале толщин распад пространственно-однородного состояния приводит к образованию массивов трехмерных наноструктур, не вступающих в процесс коалесценции после остановки роста. Средний размер островков, геометрическая форма и характер пространственного упорядочения существенно зависят от кинетических параметров модели.

Исследование процессов формирования наноструктур при молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) и ее разновидностях представляет большой интерес как с фундаментальной точки зрения, так и для практических приложений в микро- и оптоэлектронике [1]. Одним из наиболее перспективных методов получения наноструктур является их прямое формирование за счет эффектов самоорганизации поверхности при МПЭ-росте. Не требуя предварительной или послеростовой обработки поверхности, данный метод позволяет получать системы трехмерных (3D) бездислокационных островков нанометрового диапазона (квантовых точек) с высокой поверхностной плотностью [2]. При соответствующем выборе условий роста экспериментально наблюдается уменьшение разброса островков по размерам, а также их пространственное упорядочение [3]. Несмотря на значительные успехи

равновесной теории образования наноструктур в гетероэпитаксиальных системах [4,5], Монте-Карло моделирования [6,7] и континуальных моделей диффузионных неустойчивостей при МПЭ [6], кинетическая теория эффектов самоорганизации при МПЭ развита еще недостаточно. В частности, практически отсутствуют микроскопические модели, позволяющие проследить связь между кинетикой роста и морфологией поверхности, а также температурную зависимость характеристик получаемых наноструктур.

В настоящей работе предпринята попытка построения такой модели, основанной на обобщении модели динамики неидеального 3D адсорбата [8]. В рамках предложенной модели проведено численное исследование эффектов самоорганизации в эпитаксиальном слое, приводящих к формированию упорядоченных массивов 3D наностроек.

Для описания кинетики роста используется модель решеточного газа (РГ). Числа заполнения узла (l, \mathbf{R}) в слое l с дискретной координатой \mathbf{R} в плоскости подложки $n_l(\mathbf{R})$ равны 0 или 1. Усредненное по всем микроскопическим состояниям в момент времени t число заполнения дает вероятность обнаружения адатома в узле (l, \mathbf{R}) $\theta_l(\mathbf{R}, t) = \langle n_l(\mathbf{R}) \rangle_t$. Статистически усредненная вероятность того, что локальная высота поверхности в точке \mathbf{R} равна l монослоев (МС) в момент времени t определяется согласно выражениям

$$p_0(\mathbf{R}, t) = \frac{1 - \theta_1(\mathbf{R}, t)}{1 + \sum_{l=2}^{\infty} \theta_l(\mathbf{R}, t)}, \quad (1)$$

$$p_l(\mathbf{R}, t) = \frac{\theta_l(\mathbf{R}, t)}{1 + \sum_{l=2}^{\infty} \theta_l(\mathbf{R}, t)}, \quad l \geq 1. \quad (2)$$

Трехмерная поверхность эпитаксиальной пленки описывается функцией

$$h(\mathbf{R}, t) = \sum_{l=0}^{\infty} lp_l(\mathbf{R}, t). \quad (3)$$

Предложенная в [8] система нелинейных кинетических уравнений для $\theta_l(\mathbf{R}, t)$ имеет общий вид

$$\frac{\partial \theta_l(\mathbf{R}, t)}{\partial t} = AD + M + P, \quad (4)$$

где операторы AD , M и P описывают процессы адсорбции–десорбции, двумерной диффузии внутри слоя l и межслойные переходы в $3D$ решетке. Ниже используются следующие явные представления кинетических операторов при самосогласованном учете взаимодействия между частицами РГ

$$AD = \alpha_l J \sigma (1 - \theta_l) \theta_{l-1} - \frac{\theta_l}{t_l^a} \exp(-\phi_l^a \theta_l), \quad (5)$$

$$M = \frac{1}{z t_l^D} \sum_{\mathbf{R}'} \left(\theta'_l \exp(-\phi_l^D \theta'_l) (1 - \theta_l) \theta_{l-1} - \theta_l \exp(-\phi_l^D \theta_l) (1 - \theta'_l) \theta'_{l-1} \right), \quad (6)$$

$$P = \sum_{\mathbf{R}'} \left[\left(\frac{\theta'_{l-1}}{t_{l-1,l}} \exp(-\phi_{l-1}^P \theta'_{l-1}) + \frac{\theta'_{l+1}}{t_{l+1,l}} \exp(-\phi_{l+1}^P \theta'_{l+1}) \right) (1 - \theta_l) \theta_{l-1} - \theta_l \exp(-\phi_l^P \theta_l) \left(\frac{(1 - \theta'_{l-1}) \theta'_{l-2}}{t_{l,l-1}} + \frac{(1 - \theta'_{l+1}) \theta'_l}{t_{l,l+1}} \right) \right], \quad (7)$$

где $\theta'_l \equiv \theta_l(\mathbf{R}')$, $\theta_l \equiv \theta_l(\mathbf{R})$, зависимость от времени для кратности не указана, $\theta \equiv 1$ и $t_{0,1} = \infty$ в отсутствие обмена частицами между эпитаксиальным слоем и подложкой. Суммирование проводится по всем ближайшим соседям в двумерной решетке. В уравнениях (5)–(7) J есть плотность потока частиц на поверхность; σ — площадь адсорбционной ячейки; α_l — коэффициент адсорбции на поверхности слоя $l - 1$; t_l^a , t_l^D , $t_{l-1,l}$ и $t_{l,l-1}$ есть характерные времена жизни адсорбированной частицы в слое l , диффузии в слое l , межслойных переходов $l - 1 \rightarrow l$ ("запрыгивание" вверх) и $l \rightarrow l - 1$ ("скатывание" вниз) при нулевом покрытии; z есть координационное число двумерной решетки. Выраженные в единицах $k_B T$ энергии связи ϕ_l^a , ϕ_l^D и ϕ_l^P в самосогласованной форме учитывают влияние латеральных взаимодействий на активационные барьеры десорбции, двумерной прыжковой диффузии внутри слоя и межслойных переходов [8,9]. Ленгмюровские множители $(1 - \theta_l(\mathbf{R})) \theta_{l-1}(\mathbf{R})$ означают запрет на вакансию и нависание слоев друг над другом, что является обычным предположением в теории МПЭ-роста [7]. Выражения (5)–(7) записаны для однородной планарной подложки.

Численные исследования проводились на кубической решетке в предположении фиксированного количества вещества на поверхности $AD = 0$, т.е. после остановки роста в отсутствие десорбции ($J = 0$, $t_l^a = \infty$). Рассматривался случай гетероэпитаксии, причем считалось, что кинетические константы и параметры взаимодействия во всех слоях начиная с $l = 2$ одинаковы: $t_1^D \neq t_2^D = t_3^D = \dots \equiv t_*^D$; $t_{12} \neq t_{21} = t_{23} = t_{32} = \dots \equiv t_*^{\uparrow\downarrow}$; $\phi_1^P \neq \phi_2^P = \phi_3^P = \dots \equiv \phi_*^P$; $\phi_1^D \neq \phi_2^D = \phi_3^D = \dots \equiv \phi_*^D$. Начальное состояние с однородным заполнением слоев $\theta_l(0)$ и постоянной по поверхности подложки толщиной $\bar{h}(0)$, равной количеству осажденного материала в МС, возмущалось двоякопериодическим возмущением вида

$$\theta_l(x, y, t = 0) = \theta_l(0) + \gamma \min(1 - \theta_l(0), \theta_l(0)) \times \sin\left(\omega_x \frac{2\pi x}{L}\right) \sin\left(\omega_y \frac{2\pi y}{L}\right). \quad (8)$$

Период решетки в плоскости подложки L , значение $\theta_l(0)$ и амплитуда возмущения γ варьировались. Частоты возмущения $\omega_x = \omega_y$ при данном L выбирались равными критической частоте, при которой основное состояние с $\bar{h}(0) = \text{const}$ становится неустойчивым по линейному приближению при температуре ниже критической ($\phi_*^D > 4$) [8,9]. Неустойчивость пространственно-однородного решения связана с аномальной диффузией в спиноидальной области [10], где притяжение частиц доминирует над обычным диффузионным размытием, так что диффузионный поток направлен по градиенту плотности РГ. Система уравнений (4)–(7) для $\theta_l(\mathbf{R}, t)$ с учетом сделанных выше предположений интегрировалась численно на каждом шаге по времени с периодическими граничными условиями. Затем по формулам (1)–(3) рассчитывалась эволюция морфологии поверхности.

Результаты вычислений показывают, что при $\phi_*^D \geq 4.5$ независимо от значения ϕ_*^P и отношения времен $t_*^{\uparrow\downarrow}/t_*^D$, а также параметров первого слоя в интервале толщин от 2 до 4 МС наложение слабого периодического возмущения критической частоты приводит к распаду эпитаксиального слоя на систему 3D наноостровков. При этом геометрия островков, их распределение по поверхности подложки, средний размер и характер пространственного упорядочения существенно зависят от кинетических параметров. Варьируя характеристики t_1^D , t_{12} , ϕ_1^D и ϕ_1^P ,

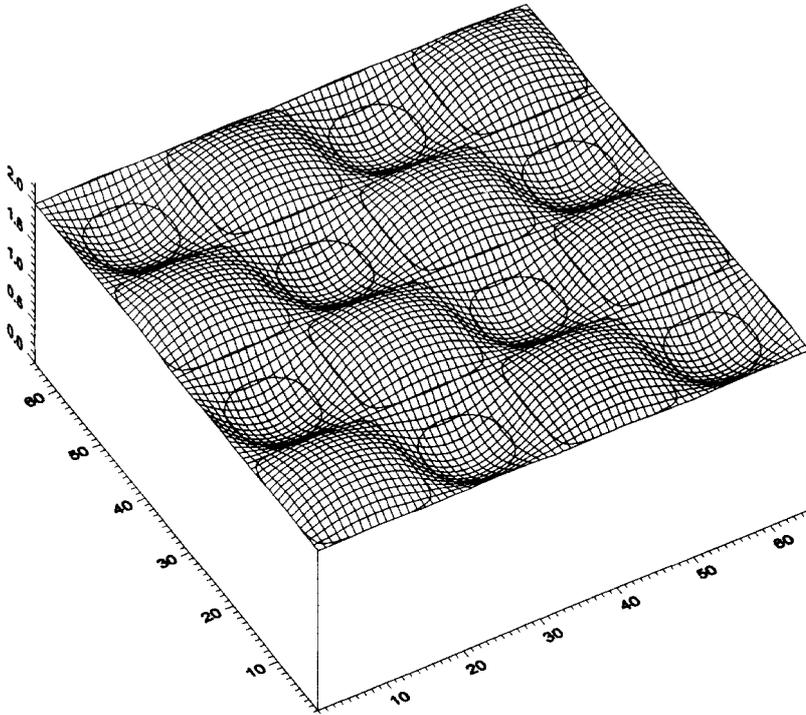


Рис. 1. Морфология поверхности при средней толщине $2MS$, $\phi_*^D = 5$, $\phi_*^P = 3$, $t_*^{\uparrow\downarrow}/t_*^D = 800$ и времени $t = 0.5t_*^{\uparrow\downarrow}$. Цифры на осях указаны в нм.

можно моделировать образование массивов островков как по механизму Фольмера–Вебера, так и по механизму Странски–Крастанова [3,5]. Типичная динамическая картина формирования $3D$ островков при средней толщине $\bar{h}(0) = 2MS$ приведена на рис. 1, 2. На начальном этапе распада морфология поверхности имеет вид нелинейных осцилляций плотности. В дальнейшем происходит формирование островков с ярко выраженной границей. Структура поверхности, представленная на рис. 2, является устойчивой на временах, превосходящих по порядку величину характерное время ее образования. Таким образом, можно говорить о формировании ансамбля островков, не вступающих в течение

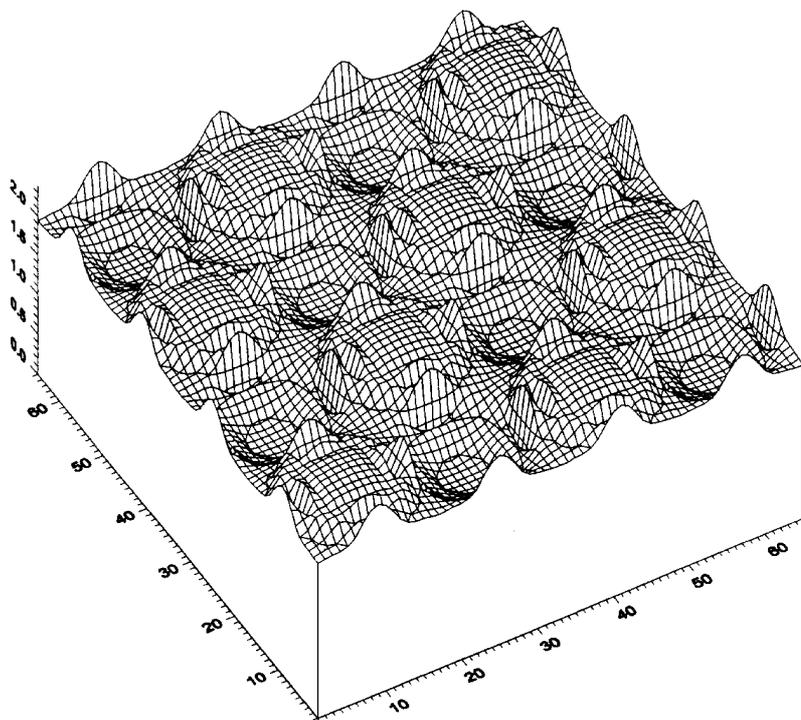


Рис. 2. То же, что на рис. 1, при $t = 2t_*^{\uparrow\downarrow}$ (квазистационарная структура поверхности).

длительного времени в процесс коалесценции [5]. Следует отметить, что при возрастании температуры ($4 \leq \phi_*^D \leq 4.5$) образования островков с выраженной границей не наблюдается. Разумеется, формирование пространственно-упорядоченной структуры не происходит и при температурах выше критической ($\phi_*^D < 4$).

Таким образом, предложенная модель, в принципе, позволяет описывать динамику трансформации поверхности при фиксированном количестве осажденного материала. Полученные результаты показывают, что влияние латеральных взаимодействий на энергии активации элементарных диффузионных процессов на поверхности может в ряде случаев

приводить к формированию устойчивых массивов 3D наностроек. Кинетика диффузионных процессов и значение констант взаимодействия оказывают существенное влияние на морфологию поверхности. Очевидно, необходимо обобщение теории для описания эффектов самоорганизации поверхности непосредственно в процессе МПЭ-роста, с учетом адсорбции и десорбции, двухкомпонентного потока, а также последовательного учета рассогласования решеток в микроскопической модели роста.

Авторы благодарят научную программу "Физика твердотельных наноструктур" за частичную финансовую поддержку работы.

Авторы признательны Н.Н. Леденцову и В.А. Щукину за полезное обсуждение затронутых в работе вопросов.

Список литературы

- [1] *Arakava Y., Yariv A.* // IEEE J. Quantum Electronics. 1986. V. QE-22. P. 1887–1899.
- [2] *Petroff P.M., Medeiros-Ribeiro G.* // MRS Bulletin. 1996. V. 21. P. 50–65.
- [3] *Girlin G.E., Petrov V.N., Golubok A.O., Tapissev S.Ya., Dubrovskii V.G., Ledentsov N.N., Bimberg D.* // Surf. Sci. 1997. V. 377–379. P. 895–898.
- [4] *Tersoff J., Tromp R.M.* // Phys. Rev. Lett. 1993. V. 70. P. 2782–2785.
- [5] *Shchukin V.A., Ledentsov N.N., Kop'ev P.S., Bimberg D.* // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 75. P. 2968–2972.
- [6] *Rost M., Smilauer P., Krug J.* // Surf. Sci. 1996. V. 369. P. 393–402.
- [7] *Barabasi A.L.* // Appl. Phys. Lett. 1997. V. 70. P. 2565–2567.
- [8] *Дубровский Г.В., Козачек В.В.* // ЖТФ. 1995. Т. 85. № 4. С. 124–135.
- [9] *Dubrovskii V.G., Girlin G.E., Bauman D.A., Kozachek V.V., Mareev V.V.* // Vacuum (в печати).
- [10] *Kukushkin S.A., Osipov A.V.* // Prog. Surf. Sci. 1996. V. 51. P. 1–136.