

Распределение островков по размерам в условиях дислокационно-поверхностной диффузии для полупроводниковых гетероструктур

© Р.Д. Венгреневич[†], А.В. Москалюк, С.В. Ярема

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

(Получена 6 июня 2005 г. Принята к печати 5 июля 2005 г.)

Предложен механизм оствальдовского созревания островков в условиях дислокационно-поверхностной диффузии для полупроводниковых гетероструктур с квантовыми точками. Рассчитана функция распределения островков по размерам для предложенного механизма роста, а также проведено сопоставление экспериментальных гистограмм с рассчитанными кривыми.

PACS: 66.30.-h, 68.35.-p

Получение нанокристаллов, отвечающих требованиям, предъявляемым к квантовым точкам (КТ), традиционными методами, такими, например, как селективное травление, рост на профилированных подложках, химическое осаждение, конденсация в стеклянных матрицах, кристаллизация при сверхвысоких скоростях охлаждения или отжиг аморфных матриц, не дало желаемого результата [1,2]. И только в процессе самоорганизации в полупроводниковых гетероэпитаксиальных системах удалось реализовать идеальные гетероструктуры с КТ.

К наиболее распространенному методу получения КТ относится метод гетероэпитаксиального роста в режиме Странского–Крастанова [3], когда вследствие явления самоорганизации послойный рост пленки сменяется образованием и последующим развитием наноструктур в виде объемных (3D) островков [4–6]. Островки с пространственным ограничением носителей заряда по всем трем направлениям называют КТ. Полученные таким способом КТ имеют совершенную кристаллическую структуру, высокий квантовый выход излучательной рекомбинации и характеризуются достаточно высокой однородностью по размерам [7–10]. Размеры КТ могут колебаться от нескольких нанометров до нескольких сотен нанометров. Например, в гетеросистемах Ge–Si и InAs–GaAs размеры КТ колеблются от 10 до 100 нм с плотностью $10^{10}–10^{11}$ см⁻².

В литературе большое внимание уделяется распределению островков по размерам, поскольку этот параметр системы квантовых точек очень важен для практических применений [11–16]. В частности, изменяя форму и размеры островков, можно управлять их энергетическим спектром, что крайне важно для их технического применения. Чем более однородно распределение по размерам, при прочих равных условиях, тем привлекательней система квантовых точек в практическом отношении.

Однородность распределения по размерам удобно характеризовать среднеквадратическим отклонением $\sigma' = \sqrt{D}$, где D — дисперсия. Чем уже распределение по размерам, тем меньше σ' .

Лучшие в этом отношении распределения по размерам получены для островков германия в гетеросистеме Ge/Si(001), для которых значения $\sigma < 10\%$ [17].

Теоретические распределения, соответствующие таким значениям дисперсии D или среднеквадратическим отклонениям σ' , получены в работах [18,19] в предположении, что на поздних стадиях формирования островковой пленки основным фактором, определяющим форму распределения островков по размерам, является оствальдовское созревание (ОС). Расчеты выполнены в рамках теории ЛСВ, при условии, что лимитирующим звеном ОС является дислокационная диффузия. При этом дислокационный механизм укрупнения островков в процессе ОС возможен, если поток вещества к островку за счет дислокационной диффузии намного больше потока за счет поверхностной диффузии, т. е.

$$D_s^{(d)} Z d \left(\frac{dC}{dR} \right)_{R=r} \gg D_s 2\pi r \left(\frac{dC}{dR} \right)_{R=r}, \quad (1)$$

где $D_s^{(d)}$ — коэффициент диффузии вдоль дислокационных канавок, D_s — коэффициент поверхностной диффузии, $\left(\frac{dC}{dR} \right)_{R=r}$ — градиент концентрации на поверхности островка, d — ширина дислокационной канавки, $d = 2\sqrt{2q/\pi}$, $b^2 \leq q \leq 60b^2$, где b — вектор Бюргерса, Z — число дислокационных линий, оканчивающихся у основания островка радиусом r ($Z \equiv \text{const}$). Для упрощения расчетов островки считаются дискообразными, постоянной высоты h [18]. Общий случай, когда изменяется h и r , рассмотрен в [19].

Соотношение (1) накладывает ограничения на размеры островков, укрупняющихся посредством дислокационной диффузии

$$r \ll \frac{Zd D_s^{(d)}}{2\pi D_s}. \quad (2)$$

Если условие (2) нарушается, то необходимо в общем потоке вещества, кроме потока за счет дислокационной диффузии, учитывать также и составляющую за счет поверхностной диффузии.

[†] E-mail: general@chnu.cv.ua

Настоящая работа посвящена определению функции распределения островков по размерам в условиях дислокационно-поверхностной диффузии, когда ни одним из потоков пренебрегать нельзя.

Для определения функции распределения островков по размерам $f(r, t)$ необходимо знать скорость роста (растворения) островков.

Скорость роста отдельного островка при условии, что $h = \text{const}$, определяется из уравнения

$$\frac{d}{dt} (\pi r^2 h) = j v_m, \quad (3)$$

где v_m — объем адатома, j — суммарный поток адатомов к островку.

В условиях дислокационно-поверхностной диффузии

$$j = j_d + j_s, \quad (4)$$

где j_d — поток к частице за счет диффузии вдоль дислокаций, j_s — поток за счет поверхностной диффузии, j_d и j_s задаются соответственно левой и правой частью неравенства (1).

После подстановки (4) в (3) с учетом значений j_d и j_s , а также значений градиента концентрации на границе с островком радиуса r $\left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r} = \frac{\sigma v_m}{kT \ln l} C_\infty \frac{1}{r^2} \left(\frac{r}{r_k} - 1\right)$ [20] получим

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty}{2\pi h k T \ln l} \frac{1}{r^2} \left(D_s^{(d)} Z_d \frac{1}{r} + 2\pi D_s \right) \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right), \quad (5)$$

где C_∞ — равновесная концентрация адатомов на границе с островком при условии, что $r \rightarrow \infty$, σ — удельная поверхностная энергия, r_k — критический радиус, k — постоянная Больцмана.

Обозначим через x и $(1-x)$ долю соответственно j_s и j_d в общем потоке j :

$$x = \frac{j_s}{j}, \quad 1-x = \frac{j_d}{j}, \quad \frac{j_d}{j_s} = \frac{1-x}{x}. \quad (6)$$

Для того чтобы скорость роста (5) выразить через долевые потоки j_d и j_s , вынесем за скобки $D_s^{(d)} Z_d \frac{1}{r}$ и умножим числитель и знаменатель первого слагаемого на r_g (максимальный размер островков) и $\left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}$ (градиент концентрации на границе с r_g).

В результате получим

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s^{(d)} Z_d}{\pi h k T \ln l} \frac{1}{r^3} \times \left(\frac{2\pi r_g D_s \left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}}{D_s^{(d)} Z_d \left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}} \frac{r}{r_g} + 1 \right) \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right). \quad (7)$$

Отношение $\frac{2\pi r_g D_s \left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}}{Z_d D_s^{(d)} \left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}}$, согласно (1), равно отношению потоков j_s/j_d для частицы максимального

размера r_g и его, согласно (6), можно заменить на $\frac{x}{1-x}$, так как никаких ограничений на размеры частиц (6) не содержит. Поэтому (7) можно переписать

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s^{(d)} Z_d}{\pi h k T \ln l} \frac{1}{r^3} \left(\frac{x}{1-x} \frac{r}{r_g} + 1 \right) \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right). \quad (8)$$

При $x = 0$ имеем первый предельный случай, когда рост островков лимитируется диффузией вдоль дислокаций. Соответствующая функция распределения имеет вид [18]

$$g(u) = \frac{u^3 \exp\left[-\frac{1}{3(1-u)}\right] \exp\left[-\frac{1}{9\sqrt{2}} \arctg \frac{u+1}{\sqrt{2}}\right]}{(1-u)^{25/9} (u^2 + 2u + 3)^{29/18}}. \quad (9)$$

Если в (5) вынести за скобки $2\pi D_s$ и опять умножить числитель и знаменатель первого слагаемого на $r_g \left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}$, то получим

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s}{h k T \ln l} \frac{1}{r^2} \left(\frac{1-x}{x} \frac{r_g}{r} + 1 \right) \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right). \quad (10)$$

Если в (10) положить $x = 1$, то имеем второй предельный случай, когда скорость роста лимитируется только поверхностной диффузией. Функция распределения островков по размерам в этом случае определяется распределением Лифшица–Слезова [21], модифицированным для поверхности [22]:

$$g(u) = u^2 (1-u)^{-28/9} (u+2)^{-17/9} \exp\left(-\frac{2/3}{1-u}\right), \quad (11)$$

где $u = \frac{r}{r_g}$.

Теперь задача состоит в нахождении распределений по размерам между этими двумя предельными случаями. Но прежде чем этим заняться, определим отношение максимального размера частиц r_g к критическому r_k , $\frac{r_g}{r_k}$. Это важно потому, что в рамках теории ЛСВ критический размер совпадает со средним размером островков $r_k \equiv \langle r \rangle$. Таким образом, чем меньше значение $\frac{r_g}{r_k}$, тем ближе средний размер к максимальному и тем однородней по размерам массив островков. Поэтому в первом приближении по значению $\frac{r_g}{r_k}$ можно судить об однородности распределения по размерам. Его $\left(\frac{r_g}{r_k}\right)$ можно определить из условия [23]

$$\left. \frac{d}{dr} \left(\frac{\dot{r}}{r} \right) \right|_{r=r_g} = 0, \quad (12)$$

где $\dot{r} \equiv \frac{dr}{dt}$.

Используя уравнение (8) или (10), после выполнения процедуры (12) получим

$$\frac{r_g}{r_k} = \frac{4-x}{3-x}. \quad (13)$$

Для предельных случаев, когда $x = 0$, $\frac{r_g}{r_k} = \frac{4}{3}$ (дислокационная диффузия) и при $x = 1$, $\frac{r_g}{r_k} = \frac{3}{2}$ (поверхностная диффузия).

Используя (13), можно определить временную зависимость для r_g и r_k . Если в (8) вместо r подставить r_g , то оно преобразуется к виду

$$\frac{dr_g}{dt} = \frac{A}{r_g^3} \frac{1}{(1-x)(3-x)}, \quad (14)$$

где $A = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s^{(d)} Z d}{\pi h k T \ln l}$. После интегрирования (14) получим

$$r_g^4 = \frac{4A}{(1-x)(3-x)} t, \quad (15)$$

или, используя (13),

$$r_k^4 = \frac{4A(3-x)^3}{(1-x)(4-x)^4} t. \quad (16)$$

Аналогично для уравнения (10)

$$\frac{dr_g}{dt} = \frac{B}{r_g^2} \frac{1}{x(3-x)}, \quad (17)$$

после интегрирования (17) имеем

$$r_g^3 = \frac{3B}{x(3-x)} t, \quad (18)$$

$$r_k^3 = \frac{3B(3-x)^2}{x(4-x)^3} t, \quad (19)$$

где $B = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s}{h k T \ln l} \frac{1}{r^2}$.

Легко видеть, что после объединения (15) и (18), (16) и (19), r_g и r_k удовлетворяют уравнениям

$$\frac{r_g^4(1-x)}{4A} + \frac{r_g^3 x}{3B} = \frac{2t}{(3-x)}. \quad (20)$$

$$\frac{r_k^4(1-x)}{4A} + \frac{r_k^3 x}{3B} = 2 \frac{(3-x)^2}{(4-x)^3} t. \quad (21)$$

Для определения $f(r, t)$, согласно [23], ее представляют в виде произведения двух функций:

$$f(r, t) = \varphi(r_g) \cdot g(u), \quad (22)$$

где $g(u)$ — распределение островков по относительным размерам $u = \frac{r}{r_g}$. Из закона сохранения массы M островкового конденсата находим $\varphi(r_g)$

$$M = K \int_0^{r_g} r^2 f(r, t) dr, \quad (23)$$

где $K = \pi h \rho$, ρ — плотность островков. После подстановки (22) в (23) получаем

$$\varphi(r_g) = \frac{Q}{r_g^3}, \quad (24)$$

где $Q = \frac{M}{K \int_0^1 u^2 g(u) du}$.

Функцию распределения по относительным размерам $g(u)$ определяем из уравнения непрерывности

$$\frac{\partial}{\partial t} (f(r, t)) + \frac{\partial}{\partial t} (f(r, t) \dot{r}) = 0. \quad (25)$$

Если в (25) вместо $f(r, t)$ и \dot{r} подставить их значения соответственно из (8) и (22), а затем перейти от дифференцирования по r и t к дифференцированию по u , то в (25) разделяются переменные

$$\frac{dg(u)}{g(u)} = - \frac{3v_g + 2\frac{v}{u^3} - \frac{1}{u^2} \frac{dv}{du}}{uv_g - \frac{v}{u^2}} du, \quad (26)$$

где $v_g = \frac{dr_g}{dt} \frac{r_g^2}{A}$, $v = \left(\frac{x}{1-x} u + 1\right) \left(\frac{4-x}{3-x} u - 1\right)$. Подставив значения v и v_g ($v_g = v|_{u=1}$) в (26), получаем

$$\begin{aligned} \frac{dg(u)}{g(u)} &= \\ &= \frac{3u^4 - (x^2 - 4x)u^2 + (x^2 - 4x + 2)4u^2 - 3x^2 + 12x - 9}{u[u^4 + (x^2 - 4x)u^2 - (x^2 - 4x + 2)2u + x^2 - 4x + 3]} du. \end{aligned} \quad (27)$$

После разложения в знаменателе многочлена четвертой степени на простые множители (с целью интегрирования) (27) примет вид

$$\begin{aligned} \frac{dg(u)}{g(u)} &= \\ &= - \frac{3u^4 - (x^2 - 4x)u^2 + (x^2 - 4x + 2)4u^2 - 3x^2 + 12x - 9}{u(u-1)^2(u^2 + bu + c)} du, \end{aligned} \quad (28)$$

где $b = 2$, $c = x^2 - 4x + 3$.

Интегрирование (28) дает функцию распределения островков по относительным размерам в условиях дислокационно-поверхностной диффузии

$$\begin{aligned} g(u) &= \frac{u^3(u^2 + bu + c)^{\frac{b}{2}}}{(u-1)^K} \exp\left(\frac{F}{u-1}\right) \\ &\times \exp\left(\frac{\frac{E-Db}{2}}{\sqrt{c - \frac{b^2}{4}}} \arctg \frac{u + b/2}{\sqrt{c - b^2/4}}\right), \end{aligned} \quad (29)$$

где

$$\begin{aligned} D &= \frac{3c^2 + (x^2 - 4x + 6b - 6)c + 6b^2 + (4x^2 - 16x + 14)b + 7x^2 - 28x + 19}{c^2 + (b+1)2c + b^2 + 2b + 1}, \\ E &= \frac{(3-D)c + (D-3)b^2 + (2b+1)D + x^2 - 4x - 3}{2+b}, \\ F &= D(b+1) - 3b - E, \\ K &= 6 - D. \end{aligned} \quad (30)$$

На рис. 1,а приведено семейство распределений, рассчитанное с помощью формулы (29) через интервал

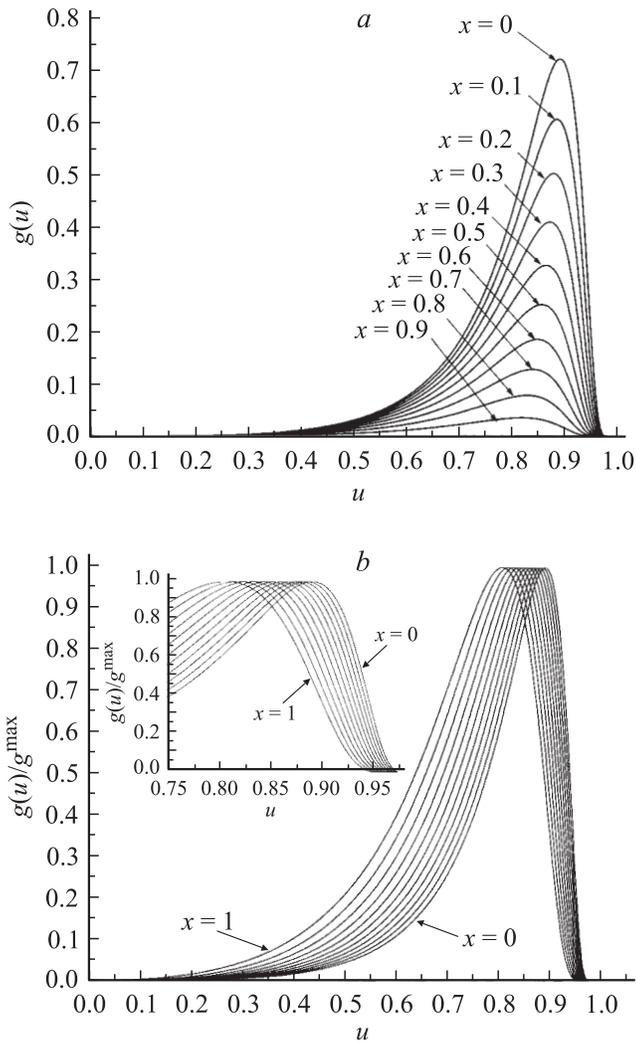


Рис. 1. *a* — распределения по размерам, рассчитанные через интервал $\Delta x = 0.1$. *b* — эти же распределения, нормированные на свои максимумы (в увеличенном масштабе на вставке), где $g^{\max} \equiv g(u')$.

$\Delta x = 0.1$ для значений x между нулем и единицей. Видно, что с увеличением x максимумы распределений уменьшаются, а значения u' , в котором $g(u')$ их достигают, смещаются влево, в сторону уменьшения u . Это смещение более заметно на рис. 1, *b*, на котором показаны эти же распределения, нормированные на свои максимумы, где $g^{\max} \equiv g(u')$. Сами значения u' определяются из уравнения

$$3u^4 - (x^2 - 4x)u^2 + (x^2 - 4x + 2)4u^2 - 3x^2 + 12x - 9|_{u=u'} = 0. \quad (31)$$

Следует отметить, что в большинстве случаев экспериментальные гистограммы строятся как зависимости числа островков (процент островков) на единицу площади от их высоты h . Теоретически, выбор переменной является относительным. При постоянной скорости изменения объема островка не имеет значения, какая из

переменных, r или h , остается постоянной. Поэтому полученные в работе и изображенные на рис. 1 распределения могут быть использованы и для сравнения с экспериментальными гистограммами, в которых в качестве переменной выступает высота островка h .

Одно из таких сравнений приведено на рис. 2. Экспериментальная гистограмма, нормированная по осям $u(\frac{h}{h_g})$ и $\frac{g(u)}{g^{\max}}$ на единицу, соответствует распределению островков германия по высотам h в (Ge/ZnSe) [24].

На рис. 3 экспериментальная гистограмма, нормированная как и в предыдущем случае, соответствует распределению по высотам островков германия (Ge/Si(001)) при количестве осажденного германия 5.5 монослоев ($d_{Ge} = 5.5ML$) [25]. Теоретические кривые рассчитаны при значениях $x = 0.2, x = 0.4$. Видно, что с увеличением x расхождение между экспериментальной гистограммой и рассчитанными кривыми увеличивается.

Судить о том, хорошие эти совпадения или нет, с помощью какого механизма укрупнения сформировался

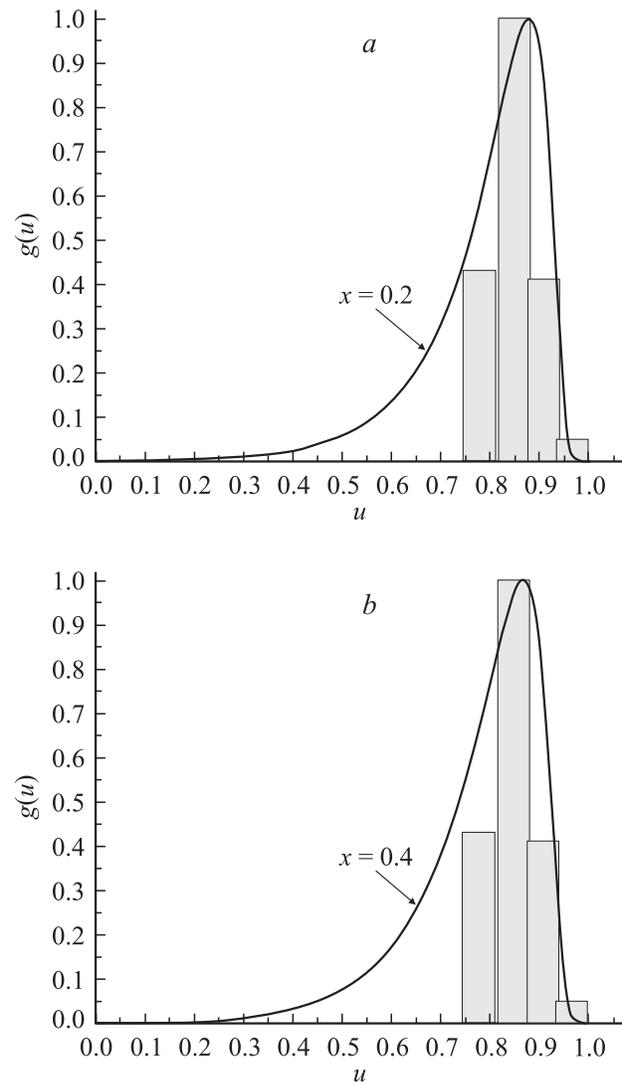


Рис. 2. Сравнение с экспериментом [25]. *a* — $x = 0.2$, *b* — $x = 0.4$.

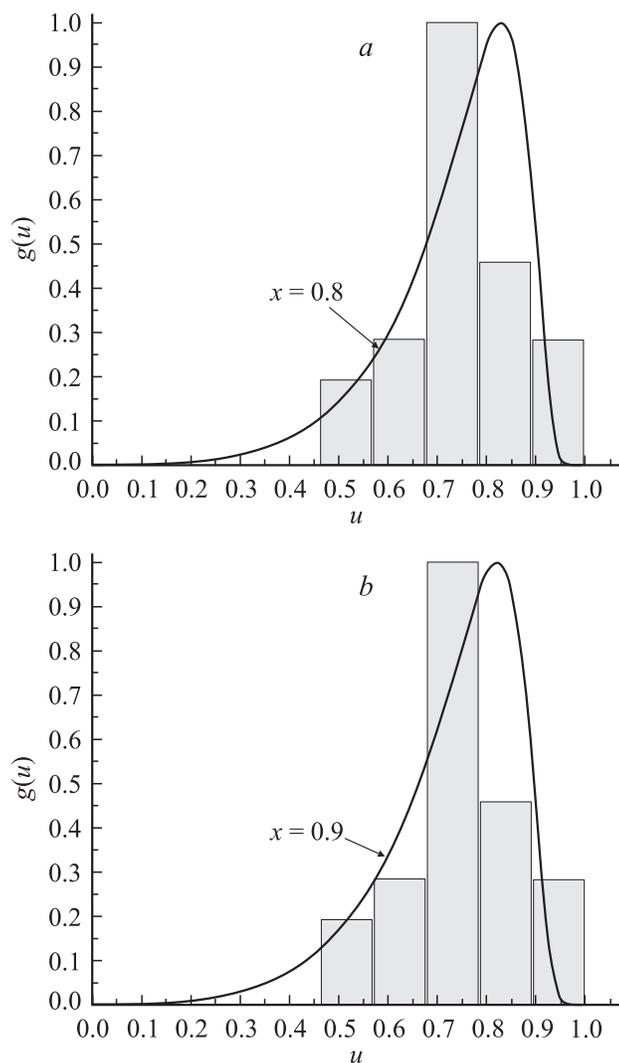


Рис. 3. Сравнение экспериментальной гистограммы с теоретическими кривыми [24]. *a* — $x = 0.8$, *b* — $x = 0.9$.

массив островков, представленных на гистограммах, было бы легче, если была бы известна временная зависимость для среднего размера островков. К примеру, если бы оказалось, что средний размер островков изменяется как $t^{1/4}$ (16), то механизм укрупнения был бы ближе к дислокационному с определенной долей диффузионного, если как $t^{1/3}$ (19), то к поверхностной диффузии. К сожалению, нам не удалось подобрать экспериментальные данные, для которых было бы и то и другое — т.е. и гистограмма, и временная зависимость для среднего размера r и h .

Список литературы

- [1] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Шукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. *ФТП*, **32**, 385 (1998).
- [2] О.П. Пчеляков, Ю.Б. Болховитянов, А.В. Двуреченский, Л.В. Соколов, А.И. Никифоров, А.И. Якимов, Б. Фойхтлендер. *ФТП*, **34**, 1281 (2000).

- [3] I.N. Stranski, L. Krastanow. *Sitzungsberichte Akad. Wissenschaften (Wien), Abt. lib.*, Band **146**, 797 (1937).
- [4] V.A. Shchukin, D. Bimberg. *Rev. Mod. Phys.*, **71**, 1125 (1999).
- [5] P. Müller, R. Kern. *Microsc. Microanal. Microstructur.*, **8**, 229 (1997).
- [6] Y.-W. Mo, D.E. Savage, B.S. Swartzentruber, M.G. Lagally. *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 1020 (1990).
- [7] L.N. Aleksandrov, R.N. Lovyagin, O.P. Pchelyakov, S.I. Stenin. *J. Cryst. Growth*, **24/25**, 298 (1974).
- [8] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C.M. Reaves, S.P. Denbaars, P.M. Petroff. *Appl. Phys. Lett.*, **63** (23), 3203 (1993).
- [9] J.M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, O. Vatel. *Appl. Phys. Lett.*, **64**, 196 (1994).
- [10] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, С.В. Иванов, Б.Я. Мельцер, М.В. Максимов, П.С. Копьев, Д. Бимберг, Ж.И. Алфёров. *УФН*, **166**, 423 (1996).
- [11] N.C. Bartelt, W. Theis, R.M. Tromp. *Phys. Rev. B*, **54**, (16), 11 741 (1996).
- [12] I. Goldfarb, P.T. Hayden, J.H.G. Owen, G.A.D. Briggs. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, (20), 3959 (1997); *Phys. Rev. B*, **56**, 10 459 (1997).
- [13] B.A. Joyce, D.D. Vvedensky, A.R. Avery, J.G. Belk, H.T. Dobbs, T.S. Jones. *Appl. Surf. Sci.*, **130–132**, 357 (1998).
- [14] T.I. Kamins, G. Medeiros-Ribeiro, D.A.A. Ohlberg, R.J. Stanley Williams. *Appl. Phys.*, **85**, (2), 1159 (1999).
- [15] В.И. Иванов-Омский, А.В. Колобов, А.Б. Лодыгин, С.Г. Ястребов. *ФТП*, **38**, 1463 (2004).
- [16] А.В. Антонов, Д.М. Гапонова, В.М. Данильцев, М.Н. Дроздов, Л.Д. Молдавская, А.В. Мурель, В.С. Туловчиков, В.И. Шашкин. *ФТП*, **39**, 96 (2005).
- [17] Jian-hong Zhu, K. Brunner, G. Abstreiter. *Appl. Phys. Lett.*, **73**, (5), 620 (1998).
- [18] Р.Д. Венгреневич, Ю.В. Гудыма, С.В. Ярема. *ФТП*, **35**, 1440 (2001).
- [19] R.D. Vengrenovitch, Yu.V. Gudyma, S.V. Yarema. *Phys. Status Solidi B*, **242**, 881 (2005).
- [20] Р.Д. Венгреневич. *УФЖ*, **22**, 219 (1977).
- [21] И.М. Лифшиц, В.В. Слэзов. *ЖЭТФ*, **35**, 479 (1958).
- [22] I.M. Lifshits, V.V. Slezov. *J. Phys. Chem. Sol.*, **19**, 35 (1961).
- [23] R.D. Vengrenovitch. *Acta Metall.*, **30**, 1079 (1982).
- [24] И.Г. Неизвестный, С.П. Супрун, А.Б. Галочкин, В.Н. Шумский, А.В. Ефанов. *ФТП*, **35**, 1135 (2001).
- [25] Н.В. Востоков, С.А. Гусев, И.В. Долгов, Ю.Н. Дроздов, З.Ф. Красильник, Д.Н. Лобанов, Л.Д. Молдавская, А.В. Новиков, В.В. Постников, Д.О. Филатов. *ФТП*, **34**, 8 (2000).

Редактор Л.В. Беляков

Size distribution of islands under dislocation-surface diffusion for semiconductor heterostructures

R.D. Vengrenovich, A.V. Moskalyuk, S.V. Yarema

Yu. Fed'kovich Chernivtsi National University,
58012 Chernivtsi, Ukraine

Abstract The mechanism of the Ostwald ripening of islands in the conditions of dislocation-surface diffusion for semiconductor heterostructures with quantum dots is suggested in the work given. The function of distribution of islands according to the size of the mechanism suggested is calculated. The comparison of experimental bar graphs with rated curves is analysed.