

# Критическая толщина перехода по Странскому–Крастанову с учетом эффекта сегрегации

© Д.В. Юрасов, Ю.Н. Дроздов<sup>¶</sup>

Институт физики микроструктур Российской академии наук,  
603950 Нижний Новгород, Россия

(Получена 16 июля 2007 г. Принята к печати 1 октября 2007 г.)

Предложена новая оценка для критической толщины перехода 2D–3D при эпитаксиальном росте в системах  $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}(001)$  и  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$  с учетом сегрегации атомов во время ростового процесса. В качестве критерия такого перехода по Странскому–Крастанову использован баланс между выигрышем в упругой энергии системы за счет релаксации островка и проигрышем в поверхностной энергии системы из-за увеличения площади поверхности. В отличие от ранее известных критериев величина упругой энергии вычисляется с учетом всех нанесенных слоев, а не только верхнего. Сегрегация описана моделью термоактивационного обмена атомов на границе поверхность–(верхний слой). Сравнение с экспериментом вычисленных значений критической толщины для различного состава наносимого твердого раствора, температуры и скорости роста показало достаточно хорошее совпадение в обеих системах. Обсуждаются механизмы перехода, отвечающие предложенному критерию.

PACS: 68.65.Hb, 68.35.Dv, 81.07.St

## 1. Введение

Переход по Странскому–Крастанову (СК) — хорошо известное явление при гетероэпитаксиальном росте кристаллов [1]. Явление заключается в том, что при эпитаксиальном наращивании слоя, период решетки которого на несколько процентов больше, чем у подложки, на первом этапе растет псевдоморфный упругонапряженный слой, смачивающий слой, а затем быстро образуются островки, когерентные с решеткой подложки, т.е. бездефектные. Современный интерес к переходу СК связан со свойствами таких островков, „квантовых точек“, в основном в полупроводниковых системах  $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}(001)$  и  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$  (см., например, обзоры [2–8]). При объяснении природы перехода СК на качественном уровне обычно называют выигрыш в упругой энергии системы за счет релаксации верхней части островка, что компенсирует проигрыш в поверхностной энергии системы, возникающий из-за увеличения площади поверхности в сравнении с плоским слоем. В области исследования квантовых точек выполнено большое число экспериментальных и теоретических работ (см. [2–8]). Эксперимент, однако, ограничен, поскольку сам переход происходит быстро. Удастся лишь зарегистрировать конечное состояние системы островков и толщину слоя, при которой начинается переход к островкам, некоторую критическую толщину. Островки обычно наблюдают с помощью электронной или атомно-силовой микроскопии, а переход регистрируют по изменению картины дифракции электронов либо по изменению кривизны подложки [9–11] *in situ*, либо измеряя толщину смачивающего слоя на поперечном сечении *ex situ* [12,13].

Простейшие теоретические оценки критической толщины слоя ( $h_c$ ) при переходе СК были предложены

на основе явления сегрегации атомов ростовым фронтом — индия в системе  $\text{InAs}/\text{GaAs}$  [12,13] и германия в системе  $\text{Ge}/\text{Si}$  [14]. Сегрегация атомов ростовым фронтом, как известно, [1], приводит к обеднению твердого раствора этими атомами в объеме кристалла и обогащению поверхностных слоев. Постепенное обогащение (примерно по экспоненциальному закону) слоев  $\text{GeSi}$  атомами Ge на подложке Si или слоев  $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$  атомами In ведет к нарастанию упругих напряжений от монослоя к монослою (МС). В работе [13] для системы  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$  сегрегация описывалась кинетическими уравнениями термоактивационного обмена атомов между поверхностью и верхним слоем твердой фазы [15], что позволило учесть температуру и скорость роста. Численная оценка [13] на основе известной из эксперимента минимальной концентрации (в потоке), при которой переход СК наблюдается,  $x = 0.25$ , дала значение критической концентрации в поверхностном МС  $x_c \approx 0.85$ . Рассчитанные для разных составов в потоке значения  $h_c$ , отвечающие критерию  $x_c = 0.85$ , хорошо совпали с экспериментом. Это послужило основой для предположения [13], что переход СК во всех системах происходит по достижении определенной концентрации твердого раствора в поверхностном МС, а сегрегация выступает как явление, определяющее переход СК. Для системы  $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}\text{Si}(001)$  предложено  $x_c = 0.23$  [14], однако в отличие от предыдущей работы это значение для верхнего МС твердой фазы, а не для поверхностного, и здесь этот подход работает хуже [8].

Более общие теории включают описание кинетики перехода СК. Одна из таких теорий — теория морфологической неустойчивости напряженного слоя (см., например, [7,16,17]) — основана на уравнении роста слоя в условиях поверхностной диффузии атомов под действием градиента химического потенциала атомов. Градиент возникает из-за неоднородности упругой и

<sup>¶</sup> E-mail: drozdyyu@ipm.sci-nnov.ru

поверхностной энергии вдоль поверхности слоя. Строго говоря, в рамках этой теории упругонапряженные слои абсолютно неустойчивы [7], т.е.  $h_c = 0$ . В зависимости от несоответствия периодов и величины поверхностной энергии изменяется лишь критическая длина волны неустойчивости. При численном моделировании реальных систем используют ограниченную по размерам площадку. В этом случае критическая толщина слоя соответствует критической длине волны, равной длине площадки, в силу используемых здесь периодических граничных условий [16,17]. Кроме того, для объяснения экспериментально наблюдаемых плоских смачивающих слоев в промежутках между островками некоторые авторы включают градиентный по составу переходный слой в качестве смачивающего слоя [17]. Поверхностная диффузия, доходя по глубине до слабонапряженного слоя, существенно подавляется, и смачивающий слой остается плоским.

Наиболее проработанная теория перехода СК предложена в работах [18–20], где кроме упругой и поверхностной энергии учитывается дополнительная энергия притяжения атомов к подложке — энергия смачивания по Мюллеру–Керну [21]. Эта энергия экспоненциально спадает с расстоянием атома от поверхности подложки, что позволяет объяснить переход СК в однородном по составу слое и сохранение плоских смачивающих слоев. Результирующее выражение для критической толщины перехода СК, выражение (6) в [20], определяется условием потери стабильности смачивающего слоя при положительной разнице химических потенциалов атома в островке и плоском слое.

Перечисленные критерии опираются на различные механизмы перехода СК, что свидетельствует об отсутствии к настоящему времени общепринятого механизма этого явления и оправдывает дальнейшие усилия по его исследованию.

В данной работе рассматривается оценка для критической толщины перехода СК с учетом сегрегации атомов во время ростового процесса. В качестве критерия перехода использован баланс между выигрышем в упругой энергии системы за счет релаксации островка и проигрышем в поверхностной энергии системы из-за увеличения площади поверхности. В отличие от ранее использованных критериев величина упругой энергии вычисляется с учетом всех неодинаковых между собой по составу нанесенных МС, а не только верхнего. Критерий, с одной стороны, нельзя назвать новым, поскольку баланс изменений в упругой и поверхностной энергии всегда назывался в качестве причины перехода СК. С другой стороны, количественно этот критерий не анализировался в предлагаемом виде и алгоритм вычисления критической толщины является новым. Выполнено сравнение с экспериментом вычисленных значений критической толщины для различного состава твердого раствора в системах  $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}(001)$  и  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ . Обсуждаются механизмы перехода, отвечающие предложенному критерию.

## 2. Схема расчета

В этом разделе мы последовательно опишем, как вычислялись распределение концентрации твердого раствора по толщине слоя, изменение упругой и поверхностной энергии при переходе от плоского слоя к пирамидальным по форме островкам, критическая толщина, а также приведем использованные численные константы.

### 2.1. Описание послыного роста с сегрегацией атомов

Рост до стадии перехода СК считается послыным, толщина МС ( $d_{\text{ML}}$ ) InGaAs(100) составляет половину периода решетки, для системы GeSi — 1/4 периода. Далее будем описывать систему InGaAs, поскольку для GeSi отличаются только численные константы при расчете. Задаются потоки доставленных на ростовую поверхность индия  $F_{\text{In}}$  и галлия  $F_{\text{Ga}}$  в долях МС за секунду. Этим задается и скорость роста, поскольку время роста одного МС

$$t_{\text{ML}} = \frac{1}{F_{\text{In}} + F_{\text{Ga}}}.$$

Атомы мышьяка считаются всегда присутствующими в достаточном количестве, что соответствует обычным условиям эпитаксии. Диффузия в объеме и переиспарение с поверхности не учитывались, так как вероятность этих процессов обычно ниже, чем вероятность обмена поверхность–(верхний слой).

Использованная нами кинетическая модель [15] описывает сегрегацию как совокупность двух термоактивационных процессов обмена атомами In–Ga между поверхностью и верхним слоем твердой фазы. Параметры модели:  $E_1$  — энергия активации обмена (индий в верхнем слое)–(галлий на поверхности),  $E_2$  — то же для обмена (индий на поверхности)–(галлий в верхнем слое),  $\nu$  — частотный фактор. При  $E_1 < E_2$  возникает сегрегация (выталкивание) атомов индия растущей поверхностью. Рост одного МС описывается следующим уравнением [15]:

$$\frac{dX_{\text{In}}^{(s)}(t)}{dt} = F_{\text{In}} + P_1 X_{\text{In}}^{(b)}(t) X_{\text{Ga}}^{(s)}(t) - P_2 X_{\text{In}}^{(s)}(t) X_{\text{Ga}}^{(b)}(t), \quad (1)$$

где  $t$  — время,  $X_{\text{In}}^{(b)}$  — содержание индия в верхнем слое,  $X_{\text{In}}^{(s)}$  — на поверхности.  $X_{\text{Ga}}^{(b)}$ ,  $X_{\text{Ga}}^{(s)}$  — то же для галлия.  $P_1 = \nu \exp(-E_1/kT)$  — вероятность (частота) обмена (индий в верхнем слое)–(галлий на поверхности),  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура роста по шкале Кельвина.  $P_2$  — вероятность обратного процесса. В твердой фазе  $X_{\text{In}}^{(b)}(t) + X_{\text{Ga}}^{(b)}(t) = 1$ , но на поверхности содержание индия и галлия (в долях МС) изменяется от нуля в начале роста каждого МС до  $X_{\text{In}}^{(s)} + X_{\text{Ga}}^{(s)} = 1$  — в конце. Заполненный поверхностный слой „замерзает“ и становится верхним МС твердой фазы, после чего процесс повторяется. Мы использовали

машинный код, написанный ранее для расчета профиля состава квантовых ям  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$  (см. [22]), где подробнее обсуждены схема и результаты численных расчетов по этой модели. Сравнение с приведенными в литературе результатами аналогичных расчетов, например [13], показало совпадение вычисленных концентраций на поверхности и по глубине слоя. Следует обратить внимание на то, что состав верхнего слоя твердой фазы изменяется во время наращивания следующего МС за счет обмена с поверхностью, и только второй от поверхности слой считается окончательно сформированным по составу в использованной модели. В частности, во время нанесения первого МС происходит обмен с верхним МС подложки, поэтому верхний МС подложки упруго напряжен и вносит свой вклад в упругую энергию системы. В то же время накопленный на поверхности избыток атомов In — поверхностный слой, он же „всплывающий“ слой, не учитывался нами при расчете упругой энергии, поскольку его свойства сильно отличаются от объемных (см. обсуждение в [22]).

## 2.2. Вычисление упругой и поверхностной энергии

Поверхностная плотность упругой энергии для одного МС вычислялась как объемная плотность упругой энергии, умноженная на толщину слоя:

$$F_{\text{elast}} = \frac{1}{2} C_{ijkl} e_{ij} e_{kl} d_{\text{ML}}, \quad (2)$$

где  $C_{ijkl}$  — тензор упругих модулей слоя,  $e_{ij}$  — тензор упругих деформаций слоя,  $d_{\text{ML}}$  — толщина МС. В случае плосконапряженного псевдоморфного слоя кубического кристалла и плоскости подложки типа (001) тензор  $e_{ij}$  — диагональный, его компоненты связаны между собой соотношением

$$e_{11} = e_{22} = -\varepsilon_0, \quad e_{33} = \varepsilon_0 \frac{2C_{1122}}{C_{1111}},$$

где  $\varepsilon_0$  — рассогласование периодов решетки слоя  $a(x)$  и подложки  $a_s$ :

$$\varepsilon_0 = \frac{a(x) - a_s}{a_s}.$$

Период решетки слоя  $a(x)$ , вместе с ним величина упругой деформации, а также упругие модули  $C_{ijkl}$  вычислялись в зависимости от состава МС в линейном приближении, по Вегарду.

Для слоя, состоящего из  $N$  МС, упругая энергия на единицу площади поверхности вычислялась как сумма выражений (2) по МС, начиная с верхнего МС подложки,  $n = 0$ , до верхнего МС твердой фазы,  $n = N - 1$ , в момент, когда  $N$ -й МС полностью заполнен, а значит,  $(N - 1)$ -й МС дальше не меняет свой состав:

$$F_{\text{elast}} = \sum_{n=0}^{n=N-1} F_{\text{elast}}(n). \quad (3)$$

Изменение упругой энергии при переходе атомов в островок оценено по методу, использованному авторами [19,20], с помощью общего коэффициента остаточной упругой энергии островка  $Z$ . Степень релаксации упругой энергии островка  $(1 - Z)$  определяет выигрыш в энергии при переходе СК:

$$\Delta F_{\text{elast}} = -(1 - Z) F_{\text{elast}}. \quad (4)$$

Оценка увеличения поверхностной энергии при образовании пирамидального островка с углом наклона грани к поверхности подложки  $\theta$  также взята из работы [20]:

$$\Delta F_{\text{surf}} = \left[ \frac{\sigma(\theta)}{\cos \theta} - \sigma(0) \right] L^2, \quad (5)$$

где  $\sigma(0)$  — поверхностная энергия для плоской поверхности,  $\sigma(\theta)$  — для наклонной грани островка,  $L$  — длина стороны квадратного основания островка. Как и в [20], использовано приближение  $\sigma(\theta) \approx \sigma(0)$ .

## 2.3. Вычисление критической толщины

В качестве критерия перехода взято равенство

$$\Delta F_{\text{elast}} L^2 + \Delta F_{\text{surf}} = 0, \quad (6)$$

которое при постоянных  $Z$  и  $\theta$  задает некоторую пороговую величину суммарной упругой энергии, при накоплении которой происходит переход по СК. Этому отвечает в выражении (3) некоторое число монослоев  $N_c$ , по которому и определяется критическая толщина перехода  $h_c$ :

$$h_c = N_c d_{\text{ML}}. \quad (7)$$

Интерпретация критерия (6) и его сравнение с другими критериями будут проведены далее (см. разд. 4).

## 2.4. Используемые численные константы

Расчет не содержит подгоночных параметров, все численные константы (см. табл. 1) взяты из современной литературы.

По степени надежности использованные параметры сильно различаются. Периоды решетки и упругие модули чистых веществ наиболее надежны, они включены в справочники по свойствам полупроводников [23].

Менее надежны параметры модели сегрегации, но они экспериментально определены в нескольких работах для условий молекулярно-пучковой эпитаксии [15,24].

Плотность поверхностной энергии  $\sigma$ , используемая в расчетах различными авторами, сильно различается — от 0.8 Дж/м<sup>2</sup> [18,20] до 2.0 в [25] для Ge и от 0.75 [26] до 2.5 [17] для InAs. Поэтому использовали некоторое усредненное значение 1 Дж/м<sup>2</sup> для обеих систем.

Угол наклона грани пирамиды  $\theta$  определяется кристаллографическими индексами граней пирамиды на начальном этапе возникновения островков. По литературным данным, это слабо наклоненные грани с индексами типа (105)  $\theta \approx 11^\circ$  для Ge/Si(001) на стадии

**Таблица 1.** Используемые в расчетах численные параметры

Вещество	Ge	Si	InAs	GaAs
Период решетки $a$ , нм	0.5658	0.5431	0.6058	0.5653
Число монослоев в периоде	4		2	
Упругие модули				
$C_{1111}$ , ГПа	128.5	165.8	83.3	118.8
$C_{1122}$ , ГПа	48.3	63.9	45.3	53.7
Коэффициент остаточной упругой энергии островка, $Z$	0.7		0.7	
Плотность поверхностной энергии $\sigma(0)$ , Дж/м <sup>2</sup>	1.0		1.0	
Угол наклона грани островка, град	11		11	
Энергия активации процесса обмена атомами $E_1$ , эВ	1.8		1.63	
$E_2$ , эВ	2.0		1.91	
Частотный фактор, с <sup>-1</sup>	$10^{13}$		$5 \cdot 10^{12}$	

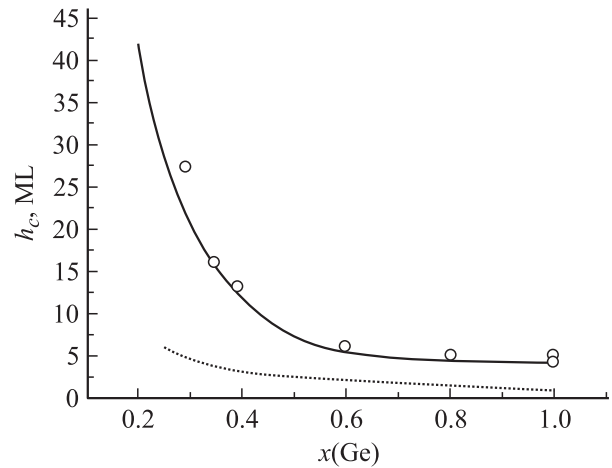
„hut“ — островков [6–8]. В системе InAs/GaAs(001) огранка более сложная, присутствуют грани разного типа (см., например, [27]). Здесь мы также использовали значение  $\theta = 11^\circ$ , поскольку на начальном этапе обычно формируются островки с минимальным отношением высота/ширина.

Остаточная упругая энергия островка по отношению к слою ( $Z$ ) наиболее сильно зависит от формы островка. Способ теоретического расчета описан, например, в [18], а график вычисленной зависимости  $Z(\theta)$  приведен в [19], откуда видно, что  $Z(11^\circ) \approx 0.7$ . Величина  $Z$  может быть прямо оценена из дифракционных экспериментов в том случае, когда регистрируется дифракционный пик островков. Когда он присутствует в спектре, его максимум отвечает некоторому среднему значению соответствующего межплоскостного расстояния. Тогда по положению пиков симметричного и асимметричного отражений (в приближении плоского слоя) определяется усредненный состав твердого раствора и усредненная упругая деформация [28]. Измеренная таким способом относительная остаточная упругая деформация (RES — residual elastic strain) дает значение остаточной упругой энергии:  $Z = RES^2$ , поскольку отсчет деформации ведется относительно полностью напряженного псевдоморфного слоя. Типичная величина RES для островков  $RES \approx 0.8$ ,  $Z = 0.64$ , что близко к вышеприведенным теоретическим оценкам. Аналогичные данные удастся получить и методом рамановского рассеяния, и они хорошо согласуются с рентгенодифракционными [29]. Соответствующая степень релаксации упругой энергии, которая определяет выигрыш при переходе СК,  $1 - Z = 0.36$ . Тем не менее островки, образующиеся на начальных стадиях перехода СК, обычно слишком мелкие, чтобы сформировать свой дифракционный пик, и чем ближе островок к плоскому слою, тем больше  $Z$ , поэтому мы использовали приведенную выше теоретическую оценку  $Z = 0.7$ .

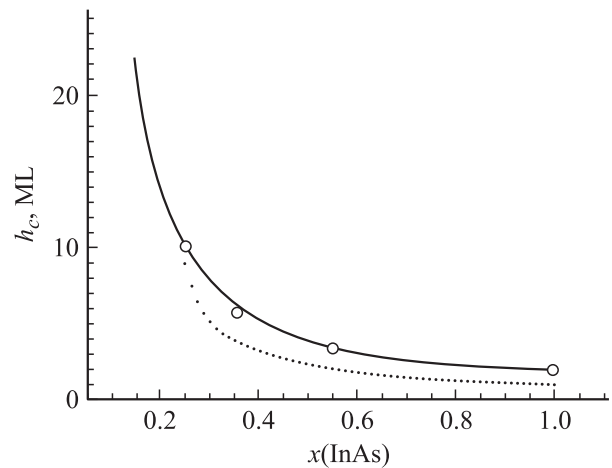
### 3. Результаты расчета

В данном разделе приведены вычисленные зависимости критической толщины от состава, для которых известны соответствующие экспериментальные результаты с указанием температуры и скорости роста, что делает возможным сравнение вычисленных и экспериментальных данных. Результаты расчета для системы  $Ge_xSi_{1-x}/Si(001)$  показаны на рис. 1, для системы  $In_xGa_{1-x}As/GaAs(001)$  — на рис. 2.

Поясним более подробно ход вычисления на примере одной точки для системы  $In_xGa_{1-x}As$  (см. табл. 2). Проводится вычисление  $h_c$  для точки  $x = 0.35$ , заданы потоки In (0.035 МС/с для InAs) и Ga (0.065 МС/с для GaAs), температура роста  $T_g = 540^\circ C$ , как и в экспери-



**Рис. 1.** Сравнение экспериментальных [6] (точки) и вычисленных (линии) значений  $h_c$  для системы  $Ge_xSi_{1-x}/Si(001)$ . Условия роста:  $T_g = 700^\circ C$ , скорость роста 0.1 МС/с. Сплошная линия отвечает критерию (6), пунктирная — накоплению 88% германия на поверхности.



**Рис. 2.** Сравнение экспериментальных [13] (точки) и вычисленных (линии) значений  $h_c$  для системы  $In_xGa_{1-x}As/GaAs(001)$ . Условия роста:  $T_g = 540^\circ C$ , скорость роста 0.1 МС/с. Сплошная линия отвечает критерию (6), пунктирная — накоплению 85% индия на поверхности.

**Таблица 2.** Вычисленный профиль состава и суммарная упругая энергия для системы  $\text{In}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}/\text{GaAs}(001)$  с учетом сегрегации

Номер монослоя $N$	$x(s)$	$x(b)$	$F, 10^{-4}$ Дж/м <sup>2</sup>
0	0.00	0.03	1.3
1	0.32	0.08	11.9
2	0.60	0.17	59.9
3	0.78	0.27	176
4	0.86	0.32	343
5	0.89	0.34	530
6	0.90	0.35	724
7	0.90	0.35	919
8	0.90	0.35	1120
9	0.90	0.35	1310
10	0.90	0.35	1510

*Примечание.* 1)  $x(s)$  — концентрация раствора во всплывающем слое, когда монослой с номером  $N$  был поверхностным,  $x(b)$  — концентрация раствора в монослое  $N$ , когда он стал слоем твердой фазы,  $F$  — суммарная упругая энергия слоя, вычисленная по соотношению (3). 2) Заданы потоки In (0.035 МС/с) и Ga (0.065 МС/с), температура  $T_g = 540^\circ\text{C}$ . Остальные параметры см. в табл. 1.

менте [13]. При решении уравнения (1) с соответствующими начальными и граничными условиями за время роста первого МС концентрация InAs в верхнем МС подложки доходит до  $x = 0.03$ . (Отметим, что концентрация атомов In в 2 раза меньше,  $x/2$ , так как величина  $x$  относится к InAs, а не In). Этот слой и включается в расчет накопленной упругой энергии из равенств (2) и (3),  $F = 1.3 \cdot 10^{-4}$  Дж/м<sup>2</sup>, для момента, когда высажен 1 МС. Верхний МС с  $x = 0.32$  находится на поверхности, поэтому не учитывается. Затем наращивается 2-й МС и т.д. Поэтому цифры, приведенные в двух последних столбцах табл. 2, относятся к моменту, когда высажен МС с номером  $N + 1$ . При использованных нами численных параметрах пороговая величина суммарной упругой энергии, найденная из выражений (6) и (3), составляет для обеих систем 0.06 Дж/м<sup>2</sup>. Из табл. 2 видно, что она достигается, когда в расчет включаются  $\sim 5.5$  МС, т.е. высажено  $\sim 6.5$  МС. Эта точка и нанесена на рис. 2 для  $x = 0.35$  на линии, которая аппроксимирует вычисленные точки. В данном случае в отличие от других точек экспериментальное значение лежит заметно ниже. Из табл. 2 видно также, что использование критерия „85% индия в поверхностном слое“ приводит к  $h_c \approx 4$  МС, что совпадает с приведенным в работе [13] вычисленным значением  $h_c$  для точки  $x = 0.35$  и несколько ниже экспериментального значения. Отметим, что существует большой разброс в экспериментальных данных разных авторов, например в [30] приведено значение  $h_c \approx 9$  МС для той же точки  $x = 0.35$ .

На тех же рис. 1 и 2 приведены линии, вычисленные по критерию накопления концентрации в поверхностном слое до критического значения: 85% для InAs/GaAs и 88% для Ge/Si. Эти значения в соответствии с логи-

кой [13], приведенной во Введении, — стационарные концентрации на поверхности, вычисленные для концентрации в потоке 25% в первой системе и 20% во второй, при которых островки уже не образуются [13,6].

## 4. Обсуждение

На рис. 1 и 2 показано, что, несмотря на оценочный характер некоторых параметров, согласие предлагаемого критерия с экспериментом достаточно хорошее для обеих систем. Такой результат порождает ряд вопросов, для ответа на которые нужны дополнительные экспериментальные и теоретические исследования. В настоящем разделе мы обозначим некоторые из этих вопросов.

В сравнении с работами, где учтена сегрегация, но использован состав только одного слоя [12–14], предлагаемый критерий работает как для  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ , так и для  $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}(001)$ . Как показано на рис. 1, критерий одного поверхностного слоя для Ge/Si не работает, вычисленная линия идет значительно ниже экспериментальных точек. Вблизи  $x = 0.2$  линия устремляется к бесконечности. Кроме того, недостаток учета только одного поверхностного слоя, как это сделано в [12,13], с точки зрения представлений о переходе СК состоит в том, что этот „всплывающий“ слой не вносит вклада в упругую энергию системы, о чем наиболее ясно свидетельствуют эксперименты по измерению *in situ* кривизны подложки (см. [31] и обсуждение в [14,22]). Учет одного лишь верхнего слоя твердой фазы, как в [14], делает вычисленную величину  $h_c$  сильно зависящей от параметров сегрегации и ростовых условий. Действительно, в условиях подавленной сегрегации состав первого же МС может достичь критической величины, тогда значение  $h_c$  должно существенно понизиться, чего в экспериментах не наблюдается. Как показали дополнительные расчеты, наш интегральный критерий в отличие от состава верхнего слоя слабее реагирует на изменение температуры или скорости роста.

Сравнение предлагаемого критерия с теорией морфологической неустойчивости затруднено, поскольку, как указывалось во Введении, в рамках этой теории  $h_c = 0$ . С другой стороны, плоский ростовой фронт здесь метастабилен, и нужно некоторое начальное возмущение, чтобы развилась и начала нарастать амплитуда вариации толщины слоя. Волнистая поверхность, которая теоретически получается в результате решения уравнений неустойчивости, бывает хорошо видна в экспериментах по переходу СК в разбавленных растворах, например при  $x = 0.5$  [32], где  $h_c$  довольно высока. В случае чистых веществ (в потоке, а не в островке) величина  $h_c$  близка к одному периоду решетки кристалла: 2 МС для InAs и 4 МС для Ge. После перехода СК здесь видна не волнистость, а ограниченные пирамиды, что дало основания разделить эти случаи на два отдельных вида перехода СК [8]. Интересно, что предлагаемый критерий работает в обеих этих областях.

Прямое сравнение с теорией, развитой в работах [18–20], также затруднено, поскольку в формулу для  $h_c$  в [20] входит упругая энергия на один атом в приближении однородного по составу смачивающего слоя. В этом приближении несущественно, из всех МС, или только поверхностных, формируется островок. Кроме того, в формулу входит амплитуда дополнительной энергии смачивания и не входит поверхностная энергия.

В настоящей работе мы не обсуждаем микромеханизм перехода СК, соответствующий предлагаемому критерию. На качественном уровне критерий (6) может быть интерпретирован следующим образом: атомы, представляющие собой участок смачивающего плоского слоя площадью  $L^2$ , преобразуются в пирамидальный островок с примерно той же площадью основания, если выигрыш в упругой энергии покрывает проигрыш в поверхностной. Преобразование затрагивает весь смачивающий слой до подложки (так как упругая энергия суммируется по всем МС), но не затрагивает соседние участки смачивающего слоя, которые остаются плоскими (если островки не стоят „впритык“ друг к другу). При фиксированных значениях  $h_c$  и  $\theta$  это равенство площадей не выполняется точно, островок может вобрать в себя атомы с несколько большей площади, чем  $L^2$ , по краям островка в этом случае должны образоваться некоторые „канавки“. Мы рассматриваем равенство площадей как одно из приближений в вычислении. С другой стороны, сам механизм локального преобразования слой–островок имеет некоторые экспериментальные обоснования, например в работе [33] наблюдались „канавки“ вокруг островка и плоский смачивающий слой вдали от островков. Привлекательной в таком механизме является возможность объяснения обогащения островка материалом подложки, поскольку канавка „вскрывает“ смачивающий слой на полную глубину, до подложки [29]. Альтернативные механизмы объяснения сильного разбавления островков, выращенных при повышенной температуре, сталкиваются с той трудностью, что объемная диффузия через основание островка обычно бывает недостаточна для объяснения экспериментов, так как температура роста недостаточна высока для этого. В случае волнистой поверхности (малое рассогласование периодов) эксперименты также фиксируют значительное уменьшение толщины смачивающего слоя во впадинах между соседними вершинами волн [7,8]. Такую поверхность можно рассматривать как полностью заполненную волнообразными островками, где предлагаемый критерий, судя по рис. 1 и 2, в некотором приближении работает.

Следует отметить, что данные экспериментов по измерению  $h_c$  в различных условиях достаточно скудны, поэтому здесь также нужны дополнительные исследования.

Имеется еще один аспект рассмотрения величины критической толщины перехода СК — сравнение этой величины ( $h_c^{(SK)}$ ) с критической толщиной образования дислокаций несоответствия ( $h_c^{(D)}$ ). Обычно считается [7],

что линия зависимости  $h_c^{(D)}(x)$  пересекается с  $h_c^{(SK)}(x)$  при некотором  $x_0$ , и для растворов с  $x < x_0$   $h_c^{(D)} < h_c^{(SK)}$ . Тогда при росте слоя в области  $x < x_0$  первой достигается критическая толщина  $h_c^{(D)}$  и образуются дислокации несоответствия. Это область относительно слабого рассогласования слой–подложка. В области сильного рассогласования, наоборот,  $h_c^{(D)} > h_c^{(SK)}$ , первой достигается величина  $h_c^{(SK)}$ , и образуются островки. Это простое объяснение экспериментально наблюдаемого поведения слоев тем не менее встречается с затруднением при количественном анализе. Если взять, например, простейшую, но достаточно надежную в области  $x < 0.3$  эмпирическую оценку  $h_c^{(D)}$  для системы  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$   $h_c^{(D)} \approx 2.8/x$  в нм [34] или  $h_c^{(D)} \approx 10/x$  в единицах числа МС GaAs, и наложить эту зависимость на рис. 2, то во всей области составов, начиная с малых  $x = 0.05$ ,  $h_c^{(D)} > h_c^{(SK)}$ , поэтому первой достигается величина  $h_c^{(SK)}$ . Тем не менее с учетом приведенных выше рассуждений о морфологической неустойчивости, полученный результат представляется оправданным. Действительно, эксперименты показывают, что поверхность слоя при росте во многих случаях начинает искажаться еще до образования дислокаций несоответствия (см. обсуждение и ссылки в [16]), а значит, можно предположить, что морфологическая неустойчивость возникает раньше, чем образуются дислокации несоответствия. В этом случае определение точки перехода „дислокации–островки“ на линии концентрации ( $x$ ) по точке пересечения  $h_c^{(D)}(x)$  и  $h_c^{(SK)}(x)$  становится некорректным. Известно, что волнистость поверхности, понижая общий уровень упругой энергии слоя, одновременно создает неоднородность в ее распределении. При развитии волнистости в местах максимальных упругих напряжений могут появиться дислокации несоответствия, если превышен некоторый предел, но могут и не появиться сразу (сценарий перехода СК), а лишь при дальнейшем увеличении толщины высаженного слоя [16]. Таким образом, вопрос о связи критической толщины перехода СК с критической толщиной образования дислокаций несоответствия также требует дополнительных исследований.

## 5. Заключение

Предложена новая оценка для критической толщины перехода по Странскому–Крастанову при эпитаксиальном росте в системах  $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}(001)$  и  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$  с учетом сегрегации атомов во время ростового процесса. В качестве критерия такого перехода 2D–3D использован баланс между выигрышем в упругой энергии системы за счет релаксации островка и проигрышем в поверхностной энергии системы из-за увеличения площади поверхности. В отличие от ранее известных критериев величина упругой энергии вычисляется с учетом всех неодинаковых между собой

по составу нанесенных монослоев, а не только верхнего. Состав монослоев изменяется из-за сегрегации крупных атомов ростовым фронтом, что описано моделью термоактивационного обмена атомов поверхность–(верхний слой).

Сравнение с экспериментом вычисленных значений критической толщины для различного состава наносимого твердого раствора показало достаточно хорошее совпадение в обеих системах.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ 07-02-00163.

## Список литературы

- [1] А.А. Чернов, Е.И. Гиваргизов, Х.С. Багдасаров, В.А. Кузнецов, Л.Н. Демьянец, А.Н. Лобачев. *Современная кристаллография* (М., Наука, 1980) т. 3, с. 72.
- [2] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Шукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. *ФТП*, **32**, 385 (1998).
- [3] О.П. Пчеляков, Ю.Б. Болховитянов, А.В. Двуреченский, Л.В. Соколов, А.И. Никифоров, А.И. Якимов, Б. Фойхтлендер. *ФТП*, **34**, 1281 (2000).
- [4] *Nano-Optoelectronics, Concepts, Physics and Devices*, ed. by M. Grudman (Springer, Berlin, 2002).
- [5] *Semiconductor Quantum Dots. Physics, Spectroscopy and Applications*, ed. by Y. Masumoto, T. Takagahara (Springer, Berlin, 2002).
- [6] K. Brunner. *Rep. Progr. Phys.*, **65**, 27 (2002).
- [7] J. Stangl, V. Holý, G. Bauer. *Rev. Mod. Phys.*, **76** (3), 726 (2004).
- [8] J. M. Baribeau, X. Wu, N.L. Rowell, D.J. Lockwood. *J. Phys.: Condens. Matter*, **18**, R139, (2006).
- [9] J.A. Floro, E. Chason, R.D. Twisten, R.Q. Hwang, L.B. Freund. *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 3946 (1997).
- [10] J.A. Floro, E. Chason, L.B. Freund, R.D. Twisten, R.Q. Hwang, G.A. Lucadamo. *Phys. Rev. B*, **59**, 1990 (1999).
- [11] R. Koch. *Appl. Phys. A*, **69**, 529 (1999).
- [12] T. Walther, A.G. Cullis, D.J. Norris, M. Hopkinson. *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 2381 (2001).
- [13] A.G. Cullis, D.J. Norris, T. Walther, M.A. Migliorato, M. Hopkinson. *Phys. Rev. B*, **66**, 081 305 (2002).
- [14] Y. Tu, J. Tersoff. *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 216 101 (2004).
- [15] O. Dehaese, X. Wallart, F. Mollot. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 52 (1995).
- [16] Y.W. Zhang, A.F. Bower. *J. Mech. Phys. Sol.*, **47**, 2273 (1999).
- [17] H.T. Johnson, V. Nguyen, A.F. Bower. *J. Appl. Phys.*, **92**, 4653 (2002).
- [18] С.А. Кукушкин, А.В. Осипов, F. Schmitt, P. Hess. *ФТП*, **36**, 1177 (2002).
- [19] A.V. Osipov, S.A. Kukushkin, F. Scmitt, P. Hess. *Phys. Rev. B*, **64**, 205 421 (2001).
- [20] V.B. Dubrovskii, G.E. Cirilin, V.M. Ustinov. *Phys. Rev. B*, **68**, 075 409 (2003).
- [21] P. Muller, R. Kern. *Appl. Surf. Sci.*, **102**, 6 (1996).
- [22] Ю.Н. Дроздов, Н.В. Байдусь, Б.Н. Звонков, М.Н. Дроздов, О.И. Хрыкин, В.И. Шашкин. *ФТП*, **37**, 203 (2003).
- [23] O. Madelung. *Semiconductors: Data Handbook* 3rd edn. (N.Y., Springer Verlag, 2003).
- [24] S. Fukatsu, K. Fujita, H. Yaguchi, Y. Shiraki, R. Ito. *Appl. Phys. Lett.*, **59**, 2103 (1991).

- [25] H.T. Johnson, L.B. Freund. *J. Appl. Phys.*, **81**, 6081 (1997).
- [26] F. Long, S.P.A. Gill, A.C.F. Cocks. *Phys. Rev. B*, **64**, 121 307 (2001).
- [27] V.A. Jouce, D.D. Vvedensky. *Mater. Sci. Eng. R*, **46**, 127 (2004).
- [28] Ю.Н. Дроздов, В.М. Данильцев, З.Ф. Красильник, Л.Д. Молдавская, А.В. Новиков, О.И. Хрыкин, В.И. Шашкин. *Поверхность. РСНИ*, № 5, 22 (2003).
- [29] Н.В. Востоков, С.А. Гусев, И.В. Долгов, Ю.Н. Дроздов, З.Ф. Красильник, Д.И. Лобанов, Л.Д. Молдавская, А.В. Новиков, В.В. Постников, В.В. Филатов. *ФТП*, **34**, 8 (2000).
- [30] D. Pan, J. Xu, E. Towe. *J. Cryst. Growth*, **196**, 23 (1999).
- [31] F. Bugge, U. Zeimer, M. Sato, M. Weyers, G. Trankle. *J. Cryst. Growth*, **183**, 511 (1998).
- [32] Н.Н. Фалеев, Ю.Г. Мусихин, А.А. Суворова, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, М. Tabuchi, Y. Takeda. *ФТП*, **35**, 969 (2001).
- [33] J.H. Li, S.C. Moos, B.S. Han, Z.H. Mai. *J. Appl. Phys.*, **89**, 3700 (2001).
- [34] D.J. Dunstan. *J. Mater. Sci.: Mater. in Electron.*, **8**, 337 (1977).

Редактор Т.А. Полянская

## The critical thickness of Stranski–Krastanow transition with accounted segregation effect

D.V. Yurasov, Yu.N. Drozdov

Institute for Physics of Microstructures,  
Russian Academy of Sciences,  
603950 Nizhny Novgorod, Russia

**Abstract** A novel estimation for the critical thickness of epitaxial layer at 2D–3D transition is proposed for both  $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}(001)$  and  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$  systems. The estimation accounts a segregation effect during growth process. The balance between the gains in elastic strain energy in relaxed 3D island and the loss in surface energy for enlarged surface area is used as a Stranski–Krastanow transition criterion. In contrast to several known criteria, the strain energy is calculated for all of the deposited layers, but not only the topmost layer. Segregation is modeled with a thermo-activative atom exchange between surface layer and the topmost layer. Comparison of the calculated critical thickness and several experimental data for different solid-solution contents show good coincidence for both the systems. The transition mechanisms related to the criterion are discussed.