

フェーズフィールド法による自己組織化量子ドットのシミュレーション

Phase-Field Simulation of Self-Assembling Quantum Dot

○学 井上 正史 (同志社大・院) 正 長谷部 忠司 (神戸大・工)
正 高木 知弘 (神戸大・海科)

Masafumi INOUE, Graduate School, Doshisha University, Kyotanabe, Kyoto

Tadashi HASEBE, Faculty of Engineering, Kobe University, Kobe

Tomohiro TAKAKI, Faculty of Maritime Sciences, Kobe University, Kobe

1. 緒言

エピタキシャル成長における自己組織化を利用した量子ドットの作成方法が注目されている。基板材料と薄膜成長材料との格子不整合により膜内に生じるひずみを緩和しようとして三次元的な島状構造が形成される。これが自己組織化の起こるメカニズムである。この方法は大量生産が可能である反面、大きさや位置に不均一性が生じるという問題がある。これらの課題を解決するための方法として、リソグラフィによりパターンされた基板を用いる方法が有力視されている。Fig.1 に電子線ビームリソグラフィを用いて 140 nm の間隔で配列パターンされた Si(001) 基板上で Ge を MBE 成長させた実験結果を示す⁽¹⁾。

フェーズフィールド法を用いて、パターンされた基板上における量子ドットの自己組織化過程をモデル化し、シミュレーションを行った。

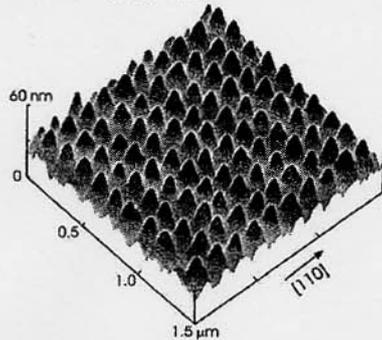


Fig.1 AFM image of an array of Ge islands on prepatterned Si(001) surfaces.

2. シミュレーションモデル

解析領域および基板上にパターンされた山の寸法を Fig.2 のように与える。

系の全自由エネルギーは次のように表わされる。

$$F = \int_D [f_{ch}(\phi, c) + f_{el}(\phi, c) + \frac{\varepsilon^2}{2} |\nabla\phi|^2 + \frac{1}{2} |\nabla c|^2] d^2\mathbf{x} + \int_B f_s(\phi, c) dl - \int_{B_1} \mathbf{t} \cdot \mathbf{u} dl \quad (1)$$

ここで、 c は濃度、 \mathbf{u} は変位ベクトルを表わす。 ϕ はフェーズフィールドのパラメーターで、薄膜 ($\phi = 1$) と基板 ($\phi = 0$) を区別する。 f_{ch} は化学エネルギー密度、 f_{el} は弾性エネルギー密度を表わす。なお、勾配エネルギー係数 ε は一定であるとする。 f_s は薄膜と基板表面の間の相互作用エネルギー密度を表わす。第三項は摩擦カベクトル \mathbf{t} によってされる仕事を表わす。

化学エネルギー密度 f_{ch} は次のように表わされる。

$$f_{ch}(\phi, c) = cf_B(\phi) + (1-c)f_A(\phi) + [c \ln c + (1-c) \ln(1-c)] + \left[\frac{2}{\theta} h(\phi) + 1.5(1-h(\phi)) \right] c(1-c) \quad (2)$$

ここで、 θ は無次元温度を表わす。 f_A , f_B , g , h はフェーズフィールド変数 ϕ の関数である。

$$f_i(\phi) = \frac{1}{4} W_i g(\phi) + \frac{1}{6} W_i \beta_i(\theta) h(\phi), \quad i = A, B$$

$$g(\phi) = \phi^2(1-\phi)^2$$

$$h(\phi) = \phi^2(3-2\phi) \quad (3)$$

W_i は正の定数である。 β_i は温度に依存し、 $-1 \leq 2\beta_i(\theta) \leq 1$ の関係を満たす。本研究では $\theta = 0.8$ と置いている。

相互作用エネルギー密度 f_s は、薄膜と基板の界面の微小領域に働くことと仮定し、変形の状態から独立で、濃度 c に線形依存する。

$$f_s(\phi = 1, c) = f_s(c) = s_0 + s_1 c(\mathbf{x}) \quad (4)$$

ここで、 s_0 , s_1 は定数である。

弾性エネルギー密度 f_{el} は次のように表わされる。

$$f_{el}(\phi, c) = \frac{1}{2} T_{ij}(E_{ij} - e(\phi, c)\delta_{ij}) \quad (5)$$

ここで、 E_{ij} は線形ひずみテンソル、 T_{ij} はコーシーの応力テンソルを表わす。

$$T_{ij} = C_{ijkl}(E_{kl} - e(\phi, c)\delta_{kl}) \quad (6)$$

δ_{ij} はクロネッカーのデルタ、 C_{ijkl} は弾性定数テンソル、 e は固有ひずみを表わす。固有ひずみはエピタキシャルひずみ δ および基板の組成ひずみ η_0 、薄膜の組成ひずみ η_1 により次のように定義される。

$$e(\phi, c) = \phi\delta + [\phi\eta_1 + (1-\phi)\eta_0](c - c_s) \quad (7)$$

応力平衡は常に満たされていると仮定する。

次に、発展方程式を構成する。連続の式

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{j} \quad (8)$$

質量流束 \mathbf{j} は F の濃度 c に関する変分導関数の勾配に比例すると仮定する。

$$\mathbf{j} = -M(\phi, c) \nabla \left(\frac{\partial f_{ch}}{\partial c} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} - \nabla^2 c \right) \quad (9)$$

ここで、 M はフェーズフィールドパラメーター ϕ および濃度 c に依存する易動度を表わす。

$$M(\phi, c) = [\phi - \bar{M}(1-\phi)]c(1-c) \quad (10)$$

\bar{M} は正の定数である。

以上より、Cahn-Hilliard 方程式が構成される。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot [M(\phi, c) \nabla (\frac{\partial f_{ch}}{\partial c} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} - \nabla^2 c)] \quad (11)$$

本研究で用いたパラメーターは以下の通りである。
 $W_A = W_B = 10.0$, $\beta_A = \beta_B = -0.135$, 弾性定数テンソルの成分 $C_{11} = 500$, $C_{12} = 190$, $C_{44} = 240$.
 エピタキシャルひずみ $\delta = 0.015$, 基板の組成ひずみ $\eta_0 = 0$, 薄膜の組成ひずみ $\eta_1 = 0.01$, 定数 $s_1 = 0.1$, $\bar{M} = 10^{-3}$.

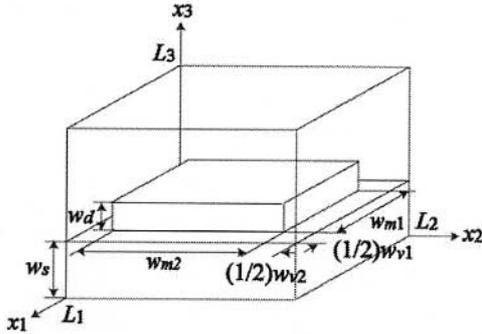


Fig. 2 Computational domain.

3. シミュレーション結果

x_1, x_2 方向に周期境界条件を用いる. x_3 方向に Neumann 型の境界条件を課す. $\partial c(x_1, x_2, 0) / \partial x_3 = 0$, $\partial c(x_1, x_2, L_3) / \partial x_3 = -s_1$. 質量流束は境界で $j_3(x_1, x_2, 0) = j_3(x_1, x_2, L_3) = 0$.

初期条件として, 薄膜および基板の濃度をそれぞれ $c_f = 0.3$, $c_s = 0.5$ とし, 振幅を 0.01 で与える.

Fig. 3 に二次元系 $\mathbf{x} = (x_1, x_2)$ において, 解析領域およびパターンされた山の寸法 $(L_1, L_2) = (128, 64)$, $w_s = 20$, $(w_{m1}, w_d) = (108, 10)$, $w_{v1} = 20$, 時間刻み $\Delta t = 0.01$ として, $t = 400$ から $t = 1000$ まで時間発展させた結果を示す. $t = 400$ において基板上を一樣な膜が覆い, その後時間とともに立体的な構造が形成されていく様子が表わされている.

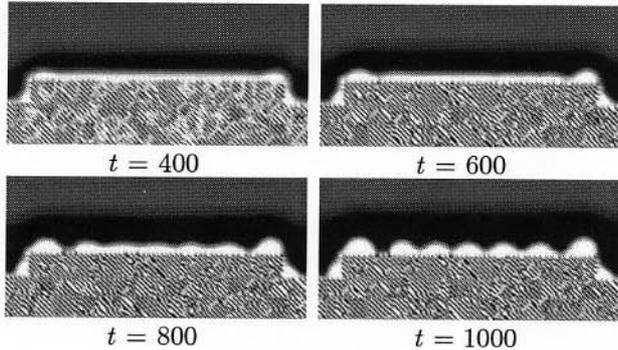


Fig. 3 Simulated images for 2D system from $t = 400$ to $t = 1000$.

4. 考察

Fig. 3 に三次元系において, 解析領域およびパターンされた山の寸法 (a) $(L_1, L_2, L_3) = (64, 64, 32)$, $w_s = 10$, $(w_{m1}, w_{m2}, w_d) = (54, 54, 5)$, $w_{v1} = w_{v2} = 10$, (b) $(L_1, L_2, L_3) = (32, 32, 16)$, $w_s = 5$,

$(w_{m1}, w_{m2}, w_d) = (16, 16, 3)$, $w_{v1} = w_{v2} = 16$, 時間刻み $\Delta t = 0.01$ として, $t = 400$ 時間発展させたときの結果を示す.

(a) は, 三次元構造が端部から優先的に形成されている様子を表わしている. (b) はパターンされた山の寸法を小さくとった場合で, 解析領域の基板上においてただ一つの島状構造が形成されていることがわかる.

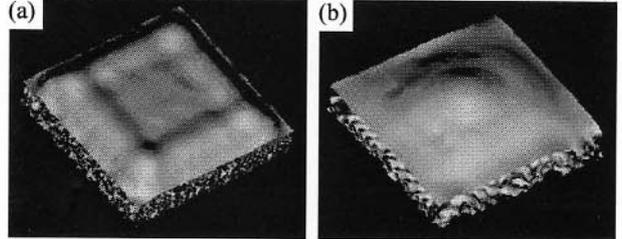


Fig. 4 Simulated images for 3D system at $t = 400$ on different size mesas.

ここで, Fig. 5 に電子線ビームリソグラフィーを用いて (a) 500 nm, (b) 140 nm の間隔で配列パターンされた Si(001) 基板上で Ge を MBE 成長させた実験結果を示す⁽¹⁾.

(a) には, 量子ドットがひずみを緩和するために都合の良い端部から優先的に形成されている様子が表わされている⁽²⁾⁽³⁾. (b) は Fig. 1 の一周期分を切りとったもので, パターンされた山に対し一対一の関係で島状構造を形成させることにより, 大きさの均一な量子ドットを作成することに成功している.

Fig. 4 に示したシミュレーション結果と比較すると, 本モデルが実験条件を非常に良い精度で再現していることがわかる.

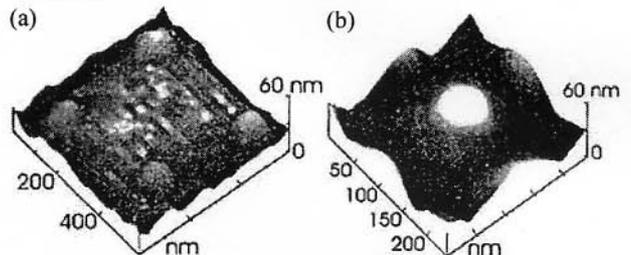


Fig. 5 AFM images of Ge islands on different size Si mesas.

5. 結言

フェーズフィールド法を用いた本研究におけるシミュレーションモデルが, パターンされた基板上における量子ドットの自己組織化過程において定性的に妥当な結果を示し得ることが確認された.

参考文献

- (1) T. Kitajima, B. Liu and S. R. Leone, Two-dimensional periodic alignment of self assembled Ge islands on patterned Si(001) surfaces, Appl. Phys. Lett. **80**, 497 (2002).
- (2) G. Jin, J. L. Liu, S. G. Thomas, Y. H. Luo, K. L. Wang, and B. Nguyen, Appl. Phys. Lett. **75**, 2752 (1999).
- (3) G. Jin, J. L. Liu, K. L. Wang, Appl. Phys. Lett. **76**, 3591 (2000).
- (4) S. M. Wise and W. C. Johnson, J. Appl. Phys. **94**, 889 (2003).