

量子ドットの自己形成 Phase-field シミュレーション

Phase-field simulation of self-formation process of quantum dots

正 高木 知弘 (神戸大・海科)

正 富田 佳宏 (神戸大・工)

Tomohiro TAKAKI, Faculty of Maritime Sciences, Kobe University, Kobe
Yoshihiro TOMITA, Faculty of Engineering, Kobe University, Kobe

Key Words : Quantum dot, Self-formation, Phase-field method

1 緒言

ドブロイ波長以下の微小な三次元空間に電子を閉じ込める量子ドット構造は、現在のナノテクノロジーの分野で最も注目を集めているテーマの一つであり、次世代デバイスの開発のために高い期待が寄せられている。量子ドットの作成方法の一つとして、自己形成法⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾がある。自己形成法は、生成されるドットのサイズ揺らぎや位置制御などの問題を抱えているが、要求される非常に微細なドットを数多く比較的容易に生成することが可能であるため、現在最も注目されている方法である。自己形成法により生成される量子ドットのサイズや形状は、基板と薄膜の表面エネルギーと界面エネルギーおよび格子不整合ひずみエネルギーのバランスによって決定される。著者らのグループでは、影響の顕著な表面エネルギーと格子不整合ひずみエネルギーに注目し、量子ドットの成長過程に生じる島形態変化⁽⁴⁾およびそれにより生じるサイズの bimodal 分布⁽⁵⁾を Phase-field 法を用いることで再現することを可能とした。本研究では、より精度の高いシミュレーションモデルの構築および量子ドット形成メカニズムの解明を目指して、Multi-phase-field モデル⁽⁶⁾を導入し、基板と薄膜の界面エネルギーが形態形成におよぼす影響を評価する。

2 Multi-Phase-Field モデル

図 1 に示すような気相、薄膜、基板より構成されるエピタキシャル成長モデルを考え、それぞれの相の体積分率を 3 つの秩序変数、 ϕ_1, ϕ_2, ϕ_3 を用いて表す。つまり、 ϕ_1, ϕ_2, ϕ_3 は、それぞれ気相、薄膜、基板中で 1、それ以外の相中で 0 となり、界面 (表面) 領域で滑らかに変化する。ここで、これら 3 つの秩序変数を用いた次の自由エネルギー汎関数を考える⁽⁶⁾。

$$F = \int_V \left[\sum_{i=1}^3 \sum_{j>i} \left(-\frac{a_{ij}^2}{2} \nabla \phi_i \cdot \nabla \phi_j + W_{ij} \phi_i^2 \phi_j^2 \right) + f_e \right] dV \quad (1)$$

ここで、条件 $\phi_1 + \phi_2 + \phi_3 = 1$ が絶えず成り立つと仮定している。 a_{ij} と W_{ij} はそれぞれ i 相と j 相間の勾配エネルギー係数とエネルギー障壁の高さである。また、 f_e は薄膜と基板の格子不整合により生じる弾性ひずみエネルギーである。

基板の表面形態は時間と伴に変化しないと仮定すると、 $\phi_1 = 1 - \phi_2 - \phi_3$ と表されるので、独立変数は ϕ_2 のみとなる。 ϕ_2 は薄膜の体積分率であり保存量であるので、Cahn-Hilliard の式に従うと、薄膜成長のための蒸着項 S

を考慮した ϕ_2 の時間発展式は次のように表される。

$$\frac{\partial \phi_2}{\partial t} = \nabla \cdot \left[M \nabla \frac{\delta F}{\delta \phi_2} \right] + S \dots \dots \dots (2)$$

ここで、 M は表面拡散を表すモビリティである。薄膜の表面エネルギーの異方性を $a_{12} = a_{12}(\theta)$ として考慮すると、2 次元問題における汎関数微分 $\delta F / \delta \phi_2$ は次のように算出することができる。

$$\begin{aligned} \frac{\delta F}{\delta \phi_2} = & -\nabla \cdot (a_{12}^2 \nabla \phi_2) \\ & + \frac{1}{2} \left[-\nabla \cdot (a_{12}^2 \nabla \phi_3) + \nabla \cdot (a_{23}^2 \nabla \phi_3) - \nabla \cdot (a_{31}^2 \nabla \phi_3) \right] \\ & + \frac{\partial}{\partial x} \left(a_{12} \frac{\partial a_{12}}{\partial \theta} \frac{\partial \phi_2}{\partial y} \right) - \frac{\partial}{\partial y} \left(a_{12} \frac{\partial a_{12}}{\partial \theta} \frac{\partial \phi_2}{\partial x} \right) \\ & - \frac{\partial}{\partial x} \left(a_{12} \frac{\partial a_{12}}{\partial \theta} \frac{\partial \theta}{\partial \phi_{2,x}} \nabla \phi_3 \cdot \nabla \phi_2 \right) \\ & - \frac{\partial}{\partial y} \left(a_{12} \frac{\partial a_{12}}{\partial \theta} \frac{\partial \theta}{\partial \phi_{2,y}} \nabla \phi_3 \cdot \nabla \phi_2 \right) \\ & + 2W_{12} \phi_1 \phi_2 (\phi_1 - \phi_2) + 2W_{23} \phi_2 \phi_3^2 - 2W_{31} \phi_3^2 \phi_1 + \frac{\partial f_e}{\partial \phi_2} \end{aligned} \quad (3)$$

ここで、下付の $(\cdot), x, (\cdot), y$ はそれぞれ x, y による微分を表している。 θ は x 軸から反時計回りにとった薄膜表面の法線方向の角度である。

異方性を考慮した勾配エネルギー係数 $a_{12}(\theta)$ には次式を用いる。

$$a_{12}(\theta) = \frac{\bar{a}_{12}}{1 + \gamma} \{1 + \gamma \cos(k\theta)\} \dots \dots \dots (4)$$

ここで、 \bar{a}_{12} は定数、 γ は異方性強度、 k は異方性モードである。 $\theta > \pi$ の領域に対しては $a_{12}(\theta) = \bar{a}_{12}$ としている。また、自己形成法により生成される量子ドットはファセット面を有する島形態を呈することが知られている⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾。このファセット島形態を再現するために、高い異方性強度を導入する。この場合、異方性強度が $\gamma > 1 / (k^2 - 1)$ となると平衡形に現れない角度領域が現れる。平衡形に現れない角度領域 $(2\pi i/k - \theta_m) < \theta < (2\pi i/k + \theta_m)$ では、次式に示す修正した勾配係数を用いることで、ファ

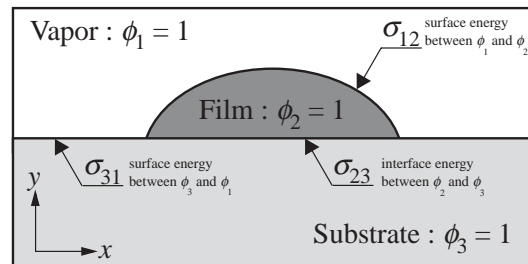


Fig. 1 Schematic illustration of an epitaxial growth model

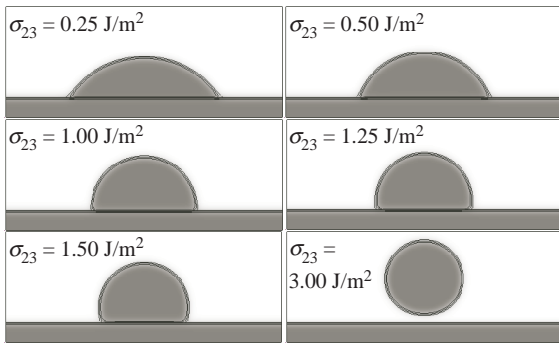


Fig. 2 Equilibrium shapes with isotropic surface energy of $\sigma_{12} = \sigma_{31} = 1.00 \text{ J/m}^2$

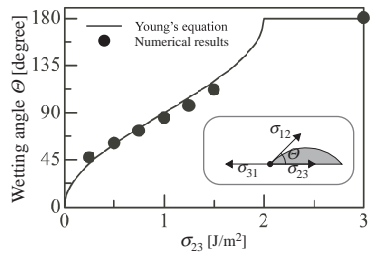


Fig. 3 Wetting angle under different interface energies σ_{23}

セット形態に現れるシャープなコーナーを表現する．

$$a(\theta) = \frac{a(\theta_m)}{\cos \theta_m} \cos \theta \quad (5)$$

ここで、 θ_m は平衡形に含まれない領域の最大角度である．

式 (1) 中の定数 a_{ij} と W_{ij} は、相 i と j の 2 相状態の 1 次元平衡問題を考えることで、

$$a_{ij} = \sqrt{\frac{3\delta\sigma_{ij}}{b}}, W_{ij} = \frac{6\sigma_{ij}b}{\delta} \quad (6)$$

と決定される．ここで、 δ は界面幅、 σ_{ij} は相 i と j 間の界面 (表面) エネルギー、 b は定数である．また、 ϕ_3 は一次元平衡プロファイル $\phi_3 = \frac{1}{2} [\tanh\{\frac{b}{\delta}(y_{subst} - y)\} + 1]$ としている．ここで、 y_{subst} は基板表面の y 座標である．

式 (1) 中の弾性ひずみエネルギー f_e は次式により定義する．

$$f_e(\phi_2, \varepsilon_{ij}) = \frac{1}{2} D_{ijkl}(\phi_2) (\varepsilon_{ij} - \varepsilon_{ij}^0) (\varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^0) \quad (7)$$

ε_{ij}^0 は基板と薄膜の格子不整合により生じる薄膜内の初期ひずみである． $D_{ijkl}(\phi_2)$ は気相中で零、固相中で弾性率 D_{ijkl}^0 の値を持つ滑らかに変化する弾性係数であり、

$$D_{ijkl}(\phi_2) = \rho(\phi_2) D_{ijkl}^0 \quad (8)$$

によって表される． $\rho(\phi_2)$ は $\rho(\phi_2) = p^3(10 - 15p + 6p^2)$ としている．ここで、 $p = \phi_2 + \phi_3$ で表される固相の体積分率である．また、表面拡散によって発展する薄膜表面の移動に対して応力場は瞬間的に追従するとして、常に応力平衡 $\sigma_{ij,j} = 0$ が満足されると仮定している．

3 シミュレーション結果

数値シミュレーションの精度を評価するため、表面エネルギーの異方性と弾性ひずみエネルギーを考慮せず ($\gamma = 0, f_e = 0$)、表面エネルギー $\sigma_{12} = \sigma_{31} = 1.00 \text{ J/m}^2$ 一定のもと界面エネルギー σ_{23} を変化させて、濡れ角を

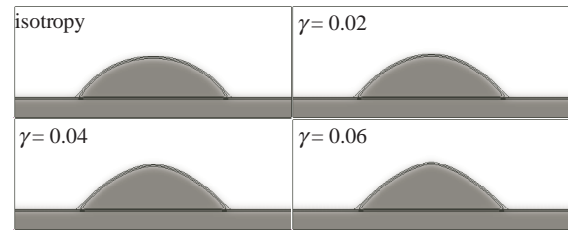


Fig. 4 Equilibrium shapes with anisotropic surface energy σ_{12} , in which $\sigma_{23} = 0.25 \text{ J/m}^2$ and $\sigma_{31} = 1.00 \text{ J/m}^2$

算出しヤングの式と比較する．図 2 はシミュレーションの結果得られた各 σ_{23} の値に対する薄膜の平衡形を示している．図より、 σ_{23} が小さい場合は薄膜と基板の界面領域が大きく薄膜は半楕円状の形態を示すが、 σ_{23} が大きくなるにつれて薄膜は円形に近づき、 $\sigma_{23} = 3.00 \text{ J/m}^2$ では基板から完全に離れ、円形になっていることがわかる．図 3 中の実線は、ヤングの関係式⁽⁷⁾ $\sigma_{31} = \sigma_{23} + \sigma_{12} \cos(\theta)$ より $\sigma_{12} = \sigma_{31} = 1.00 \text{ J/m}^2$ の条件の下、 σ_{23} を変化させて得られた濡れ角 θ の変化を示している．また、図 3 中の●はシミュレーションより得られた結果である．図 3 より、ヤングの式とシミュレーション結果の差は ± 5 度の範囲となり、本シミュレーションが精度良く濡れ角を再現できていることが分かる．

図 4 は、弾性ひずみエネルギー $f_e = 0, \sigma_{12} = \sigma_{31} = 1.00 \text{ J/m}^2, \sigma_{31} = 0.25 \text{ J/m}^2$ 、異方性モード $k = 4$ の条件の下で、異方性強度 γ を 0.0, 0.2, 0.4, 0.6 と変化させてシミュレーションを行った際の平衡形態を示している．図 4 より、異方性強度 γ が大きくなると、薄膜の形態が半楕円形から半正方形へ近づき、異方性形態を精度良く表現できていることが分かる．

4 結言

薄膜と基板の界面エネルギーが量子ドットの形態発展におよぼす影響を評価するために、薄膜の表面エネルギーの異方性および薄膜材の蒸着項を考慮することの可能な Multi-Phase-Field モデルを構築した．また、弾性ひずみエネルギーと表面エネルギーの異方性を考慮せずにシミュレーションを行い、算出された濡れ角とヤングの式を比較し、数値シミュレーションの精度を確認した．

ファセット、弾性ひずみエネルギー、薄膜蒸着項の評価に関しては、講演会において発表する．

参考文献

- (1) G. Medeiros-Ribeiro, A.M. Bratkovski, T.I. Kamins, D.A.A. Ohlberg, R.S. Williams, *Science*, **279** (1998), 353 – 355.
- (2) Y.-W. Mo, D.E. Savage, B. S. Swartzentruber, M. G. Lagally, *Phys. Rev. Lett.*, **65** (1990), 1020 – 1023.
- (3) F.M. Ross, R.M. Tromp, M. C. Reuter, *Science*, **286** (1999), 1931 – 1934.
- (4) T. Takaki, T. Hasebe, Y. Tomita, *J. Crystal Growth*, **287** (2006), 495 – 499.
- (5) 高木知弘, 富田佳宏, *材料*, **55** (2006), 掲載予定.
- (6) D. J. Seol, S. Y. Hu, Z. K. Liu, L. Q. Chen, S. G. Kim, K. H. Oh, *J. Appl. Phys.*, **98** (2005), 044910-1 – 044910-5.
- (7) T. Young, *Philos. Trans. Roy. Soc.*, **95** (1805), 65 – 87.