

Phase-field 法による自己形成量子ドット形態におよぼす 界面エネルギーの影響評価

Phase-Field Study of Interface Energy Effects on Morphology of Self-Formation Quantum Dots

正 高木 知弘 (神戸大・院) 正 富田 佳宏 (神戸大・院)

Tomohiro TAKAKI, Graduate School of Maritime Sciences, Kobe University, Kobe
Yoshihiro TOMITA, Graduate School of Engineering, Kobe University, Kobe

The most promising approach for creating small and dense dots needed for device application is via the spontaneous self-assembly of islands which occurs during Stranski-Krasnator (SK) growth. In SK growth, the island shape is determined by the competition among surface energy of thin film, surface energy of substrate, interface energy between thin film and substrate, and elastic strain energy due to lattice misfit. In this study, in order to investigate the effects of interface energy on the island shape and island growth kinetics, we construct Multi-Phase-Field method taking into account the deposition of thin film material.

Key Words : Quantum Dot, Self-Formation, Interface Energy, Phase-Field Method

1 緒言

薄膜と基板の格子不整合を利用し、自発的に島形態を生成する自己組織化成長は、デバイスへの応用を可能とする微細かつ高密度の量子ドットを作成する最も将来性のある方法として多くの研究が行われている⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾。多くの半導体材料の自己組織化島は SK 成長モードを取り、その平衡形は薄膜表面エネルギー、基板表面エネルギー、薄膜と基板間の界面エネルギー、薄膜と基板の格子不整合による弾性ひずみエネルギーのバランスによって決定される。また、島成長カインティクスは、薄膜材の蒸着速度と基板温度に依存する表面拡散にも影響を受ける。

著者らのグループでは、影響が顕著であるといわれている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、基板と薄膜の界面エネルギーの影響と薄膜材の蒸着速度を考慮可能な Multi-phase-field モデルを構築し、シミュレーションを行うことで薄膜形態およびカインティクスにおよぼす影響を検討する。

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⁾。

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

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共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。

$$\frac{\partial \phi_2}{\partial t} = \nabla \cdot \left[M \nabla \frac{\delta F}{\delta \phi_2} \right] + V_d n_y \chi \quad (2)$$

ここで、 M は表面拡散を表すモビリティ、 V_d は蒸着速度、 n_y は $n_y = -\partial(\phi_2 + \phi_3)/\partial y$ で表される表面法線、 χ は $[1 - \bar{\chi}, 1 + \bar{\chi}]$ の乱数である。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

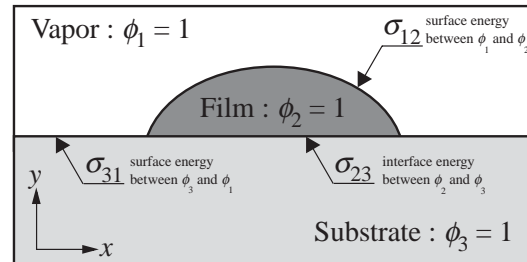


Fig. 1 Schematic illustration of an epitaxial growth model

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。

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

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。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、ファセット形態に現れるシャープなコーナーを表現する。

$$a_{12}(\theta) = a_{12}^2(\theta) = \frac{a_{12}^1(\theta_m)}{\cos \theta_m} \cos \theta \cdots (5)$$

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、

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

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。

$$f_e(\phi_2, \varepsilon_{ij}) = \frac{1}{2} D_{ijkl}(\phi_2 + \phi_3)(\varepsilon_{ij} - \varepsilon_{ij}^0)(\varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^0) \quad (7)$$

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。 $D_{ijkl}(\phi_2 + \phi_3)$ 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、

$$D_{ijkl}(\phi_2 + \phi_3) = \rho(\phi_2 + \phi_3) D_{ijkl}^0 \cdots (8)$$

によって表される。ここで、

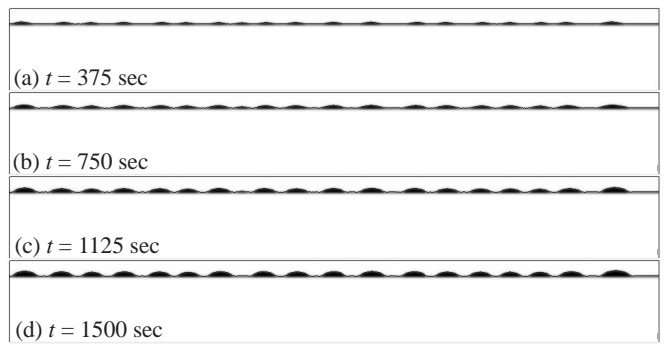
$$\rho(\phi_2 + \phi_3) = \frac{1}{2} \left[\tanh\frac{2(\phi_2 + \phi_3) - 1}{2\tau} + 1 \right] \cdots (9)$$

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。

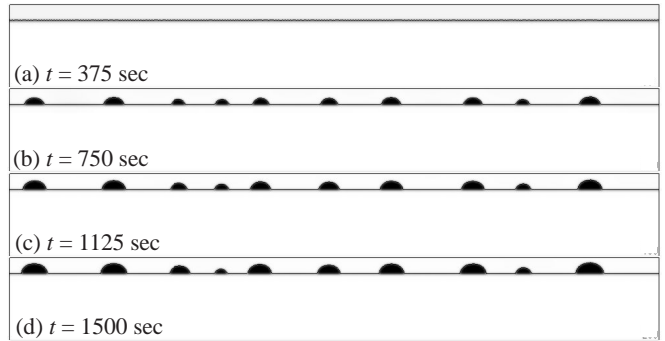
3 シミュレーション結果

$\text{Si}_{0.25}\text{Ge}_{0.75}/\text{Si}$ を想定し、以下のパラメータを用いたシミュレーションを行う。解析領域 $\Delta X \times \Delta Y = 4.995 \times 0.175 \mu\text{m}$ 、差分格子間隔 $\Delta x = \Delta y = 0.005 \mu\text{m}$ 、基板厚さ $t_s = 0.50 \mu\text{m}$ 、薄膜初期表面位置 $y = 0.51 \mu\text{m}$ 、表面エネルギー $\sigma_{12} = 1.0 \text{ J/m}^2$ 、 $\sigma_{31} = 1.5 \text{ J/m}^2$ 、表面幅 $\delta = 4 \Delta x$ 、易動度 $M = 1 \times 10^{-23} \text{ m}^5/\text{Js}$ 、ヤング率 $E = 107 \text{ GPa}$ 、ポアソン比 $\nu = 0.27$ 、時間増分 $\Delta t = 100 \mu\text{s}$ 、 $\chi = [0.9, 1.1]$ 、 $\lambda = 0.1$ 、 $\tau = 0.1$ 、格子不整合ひずみ $\varepsilon^{mis} = 0.03$ 、蒸着速度 $V_d = 1 \times 10^{-11} \text{ m/s}$ 、異方性強度 $\gamma = 0.1$ 、異方性モード $k = 16$ 。

図2(a)は $\sigma_{23} = 0.1 \text{ [J/m}^2]$ 、図2(b)は $\sigma_{23} = 1.0 \text{ [J/m}^2]$ とした場合の表面形態 ($\phi_1 = 0.5$) と ϕ_2 の分布の時間変化を示している。図3(a)(b)は図2(a)(b)の中央付近の島の拡大図である。 $\sigma_{23} = 0.1 \text{ [J/m}^2]$ の場合、早い段階で

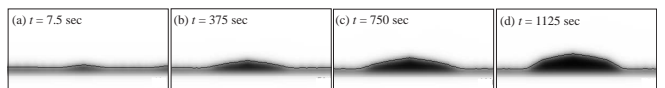


(a) $\sigma_{23} = 0.1 \text{ [J/m}^2]$

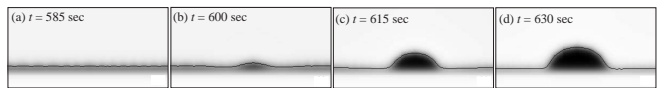


(b) $\sigma_{23} = 1.0 \text{ [J/m}^2]$

Fig. 2 Time slices of surface morphology



(a) $\sigma_{23} = 0.1 \text{ [J/m}^2]$



(b) $\sigma_{23} = 1.0 \text{ [J/m}^2]$

Fig. 3 Close-up views

薄膜表面にピラミッド形態が核生成し、濡層ピラミッドドームの形態変化を伴った島の成長が確認できる。一方、 $\sigma_{23} = 1.0 \text{ [J/m}^2]$ の場合、薄膜はしばらく濡層のまま成長し、あるところでピラミッド島の核生成が生じ、その後、島が周囲の薄膜材を取込み急速に成長している。この場合、 $\sigma_{23} = 0.1 \text{ [J/m}^2]$ の場合に比べて核生成サイト数が少ないため、島数が少なく島サイズのばらつきが大きくなっていることが確認できる。

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), 929-935.
- (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.