

Phase-field 法によるエピタキシャル成長過程の ファセット島形態発展シミュレーション

神戸大学[海科] 高木知弘 神戸大学[工] 富田佳宏

Phase-Field Simulation of Faceted Island Evolution during Epitaxial Growth

Tomohiro TAKAKI and Yoshihiro TOMITA

1 緒 言

量子ドットの作成方法の一つとして、基板上に格子サイズの異なる材料を蒸着させ、その格子不整合ひずみによって自発的に島形態を生成させる自己組織化成長がある。この方法は、リソグラフィ等技術では作成することの困難な 10nm 以下のサイズの島形態を高密度で比較的容易に作成することが可能である。しかしながら、作成した島形態を、量子ドットとして利用するために必要な島サイズの均一性を達成することが困難である。自己組織化成長によって生成された島サイズのゆらぎは、bimodal な分布を示す特徴がある¹⁾²⁾。これは、島生成初期の形態が単一ファセット島(pyramid)であるのに対し、島の成長に伴い形態がマルチファセット島(dome or hut)へ形態変化し、またその過程で Ostwald ripening による粗大化が生じるためである。そのため、島サイズの bimodal 分布を避ける成長条件のコントロールが重要となる。このためには、各因子を体系的に評価することのできる数値モデルの構築が重要である。

本研究では、薄膜成長過程における島形態変化を考慮することのできる Phase-field モデルおよび数値シミュレーション手法を構築し、島サイズ分布を評価することの可能な比較的大きな領域での数値シミュレーションを行うことで bimodal 分布を再現可能であることを確認し、数値モデルの妥当性を確認する。

2 Phase-field モデル

薄膜の形態は、表面エネルギーと格子不整合ひずみにより生じ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と仮定すると、phase field の時間発展方程式は次のようになる³⁾。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = M \nabla^2 \left[\frac{\partial f_d(\phi)}{\partial \phi} + \frac{\partial f_e(\phi, \varepsilon_{ij})}{\partial \phi} - a^2 \nabla^2 \phi \right] + \frac{\partial}{\partial x} \left(a \frac{\partial a}{\partial \theta} \frac{\partial \phi}{\partial y} \right) - \frac{\partial}{\partial y} \left(a \frac{\partial a}{\partial \theta} \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) + V_d n_y \chi \quad (1)$$

ここで、 ϕ は固相(= 基板+薄膜)中で 1、気相中で 0 の値をとる phase field、 ε_{ij} はひずみテンソル、 M は phase field の易動度、 V_d は蒸着速度、 n_y は表面法線方向の y 方向成分、 χ は [0.9, 1.1] の乱数である。また $f_d(\phi)$ はダブルウェルポテンシャル $f_e(\phi, \varepsilon_{ij})$ は弾性ひずみエネルギーであり、それぞれ次式により定義する。

$$f_d(\phi) = Wg(\phi) \quad (2)$$

$$f_e(\phi, \varepsilon_{ij}) = \frac{1}{2} D_{ijkl}(\phi) (\varepsilon_{ij} - \varepsilon_{ij}^0) (\varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^0) \quad (3)$$

ここで、 W は表面のエネルギー障壁、 $g(\phi) = \phi^2(1-\phi)^2$ 、

ε_{ij}^0 は格子不整合により生じる薄膜内の初期ひずみである。 $D_{ijkl}(\phi)$ は気相中で零、固相中で D_{ijkl}^0 の値を持つ表面領域中で滑らかに変化する弾性係数である。表面拡散によって発展する表面の移動に対して応力場は瞬時に追従するとして、常に応力平衡 $\sigma_{ij,j} = 0$ が満足されると仮定している。

表面エネルギーの異方性は、phase field の勾配係数 a に式 $a(\theta) = \bar{a}\{1 + \gamma \cos k\theta\}$ を用いることで導入する。ここで \bar{a} は表面エネルギー σ と表面厚さ δ に関係する定数、 γ は異方性強度、 k は異方性モード、 θ は x 軸と表面法線方向のなす角度である。ここで、島のファセット形態を再現するために、強い異方性強度を導入する。 $\gamma > 1/(k^2 - 1)$ を満たす場合、平衡形に現れない角度領域が現れるため、次式のように θ に応じて $a(\theta)$ を使い分ける。

$$a(\theta) = \begin{cases} \bar{a}\{1 + \gamma \cos k\theta\} & \text{for } (2\pi i/k + \theta_m) \leq \theta \leq (2\pi(i+1)/k - \theta_m) \\ a(\theta_m) \cos \theta & \text{for } (2\pi i/k - \theta_m) < \theta < (2\pi i/k + \theta_m) \end{cases} \quad (4)$$

ここで、 θ_m は $\theta=0$ から θ を増加させた時、一番はじめに平衡形に現れる角度の大きさである。また、 i は零から $k-1$ の整数である。

図 1 は SiGe/Si(001) の島形態変化を模式的に示している。この形態変化を再現するために、 $k=16$ を用いる。この場合、式(4)によって表わされる平衡形のファセット面は、x 軸とのなす角度が小さい方から 11.25, 33.75, 56.25° となり、それぞれ {105}, {15 3 23}, {111} 面の傾斜角に近い値となる。

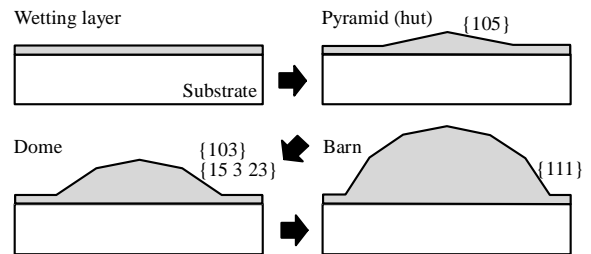


Fig. 1 Morphological change of SiGe/Si(001) island

3 シミュレーション結果

Si_{0.25}Ge_{0.75}/Si を対象としたシミュレーションを行う。解析領域は 4.995x0.625 μm、差分格子間隔と最小有限要素サイズは 0.005 μm としている。

図 2 は薄膜形態発展と x 方向応力 σ_{xx} 分布の変化を示している。図中の時間は、pyramid 島が生成する直前に

おける濡れ層の状態を零としている．図3は図2中破線で囲った領域の表面近傍の拡大図である．図2(b)と図3(b)より，島形態は濡れ層表面に核生成によって形成され，初期の形態は pyramid 島であることが確認される．蒸着量が増加すると，核生成した pyramid 島は大きく成長するが，そのサイズは核生成開始時間と核生成時の島間の距離に依存している(図2(c)，図3(c))．すなわち，核生成した pyramid 島は蒸着原子の取込サイトとなり，濡れ層表面に蒸着した原子は表面拡散によって島に取り込まれるため，早く核生成しかつ島間が広いところほど大きな pyramid 島が成長している．pyramid 島がある程度成長しサイズに違いが現れ始めると，大きな島はより大きく成長し小さな島は収縮して消滅する粗大化過程，いわゆる Ostwald ripening 現象が確認される(図2(d)，図3(d))．図3(c)中の一番右側の島は，図3(d)では消滅しており，その隣の島が大きく成長していることが分かる．また，図3(c)中左側の島も小さくなっている．この粗大化過程は，2つの島の融合によって生じるのではなく，隣合う島の成長と収縮によって生じている．これは，複数の小さな島で存在するよりも，一つの大きな島として存在する方が，エネルギーを小さくすることが可能であるためであり，このため大きな島の方が小さな島よりも原子を取り込み易くなる．さらに蒸着を続けると，大きく成長した pyramid 島が付加的なファセット面を有する dome 島へ形態変化することが確認できる(図2(e)，図3(e))．この場合，ある程度大きくなった pyramid 島から順次 dome 島へ形態変化するため，しばらくの間 pyramid 島と dome 島が共存している．しかしながら，pyramid 島は安定に存在することができず，最終的に全ての島は大きな dome 島へと形態変化している(図2(f)，図3(f))．

図4と図5は，図2で生成した全ての島の幅と高さの時間変化を示している．いずれも濡れ層表面を基準として算出している．Pyramid 島の核生成後，比較的短時間で消滅する島もいくつか見られるが，ほとんどの島は250s程度まで成長を続けている．250sを過ぎると，成長を続ける島と収縮し消滅する島に分かれている．500sを超えると，図4の島幅は若干減少し，図5の高さは単位時間あたりの増加量が大きくなっている島が存在することが分かる．これが pyramid 島から dome 島へ形態変化する点である．Pyramid 島から dome 島へ形態変化すると，図4に示す幅は一旦減少し再び増加している．この増加の傾向は，近くの pyramid 島の消滅による余剰原子の取り込みのためしばらく高いが，隣接する pyramid 島が消滅した後は緩やかになっていることが分かる．図5に示す島の高さは，dome 形態へ変化する際，その増加率が瞬間的に高くなるが，島サイズの変化と同じ理由でしばらくすると緩やかな増加となっている．図4と図5の結果から特に強調すべき点は，pyramid 島と dome 島で，その島のサイズと高さが明確に異なる，すなわち bimodal な分布を呈しているという点である．特に800sあたりから pyramid 島が完全に消滅する1600sまでの間で bimodal な分布が顕著に現れている．

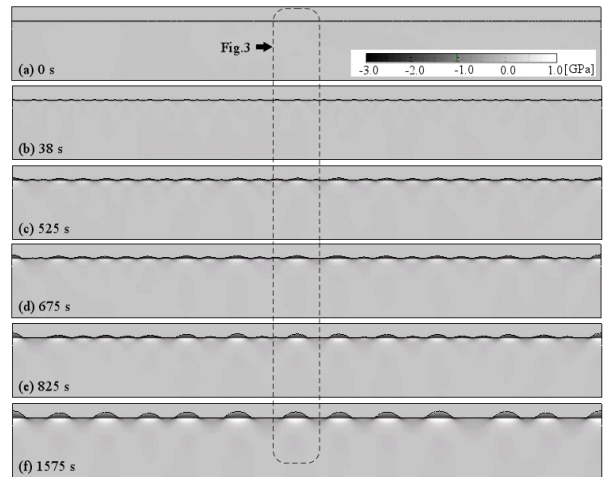


Fig. 2 Morphological change during islands growth

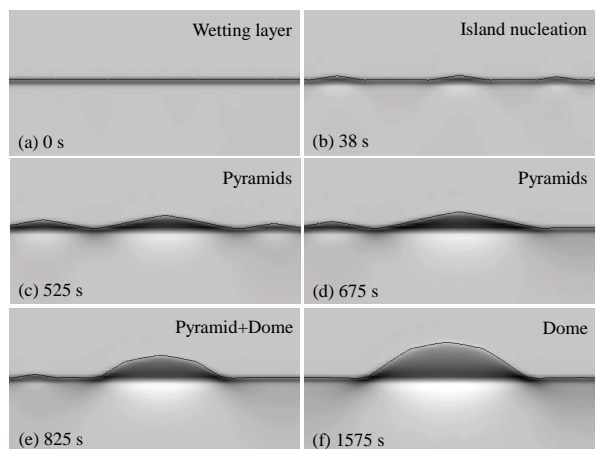


Fig. 3 Close-up views inside broken line in Fig. 2

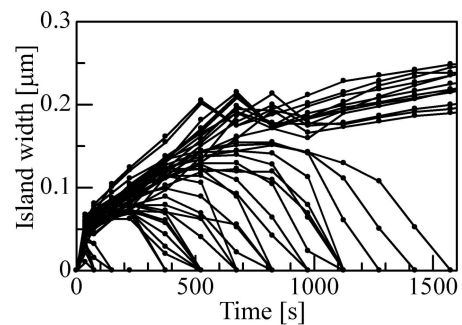


Fig. 4 Variations of island width

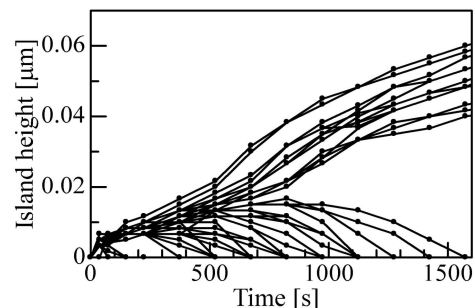


Fig. 5 Variations of island height

参考文献

- 1) F. M. Ross, et al., Phys. Rev. Lett., 80, 984(1998).
- 2) F. M. Ross, IBM journal of research and development, 44, 489(2000).
- 3) T. Takaki, et al., J. Crystal Growth, 287, 495(2006).