

二维 Ge 岛成核早期阶段的动力学蒙特卡罗模拟^{*}

邓 宁 肖 鸿 陈培毅 李志坚

(清华大学微电子学研究所, 北京 100084)

摘要: 采用动力学蒙特卡罗(Kinetic Monte Carlo)方法模拟了 Si/Ge 系统自组织生长 Ge 量子点过程中二维 Ge 岛成核的早期阶段. 引入吸附原子导致的应力场, 对原子扩散的势垒进行了修正. 研究了温度和应力场分布对二维 Ge 岛成核位置以及尺寸分布的影响, 结果表明应力场对二维岛的成核具有决定作用, 采用调制应力的方法可以有效控制量子点的自组织生长过程.

关键词: 动力学蒙特卡罗模拟; 自组织生长; 应力场

EEACC: 0240G

中图分类号: TN304.054

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2003)S0-0056-04

1 引言

半导体量子点在纳米电子学、光电子学和信息科学领域具有广阔的应用前景, 如单电子存储器、量子点激光器以及量子计算机等. 对量子点的尺寸分布、密度和排列进行有效的控制是应用的关键. 目前, 采用大失配的应变半导体材料系统(如 Si/Ge)进行量子点的自组织生长是制备量子点的主要方法之一. 然而, 由于生长量子点材料系统的多样化和生长模式本身的复杂性, 现在对于量子点自组织生长机理的研究还远不能实现对生长过程的有效控制, 因此, 有必要对量子点生长过程进行更深入的研究.

异质材料系统中量子点的自组织生长属于薄膜生长的 S-K 生长模式. 从能量的角度考虑, 应力的积累和释放是形成量子点的主要驱动力, 纯粹从能量的角度进行计算, 在 0K 下按照二维网格规则排列的金字塔形状的量子点对应于系统的最低能量^[1,2]. 但是, 在 S-K 生长过程中, 存在强的非线性动力学过程^[3,4], 目前还没有报道证实用自组织生长的方法可以得到二维网格排列的量子点阵列. 因此, 不能简单地从能量的角度研究和解释量子点的形成, 必须对特定的过程(尤其是成核阶段)结合动力学的方法进行研究.

在量子点的形成过程中, 二维岛的成核对于其后向三维岛的转变以及尺寸和位置的分布都有很大的影响, 这已经为实验所证实^[5]. 因此, 研究二维岛的动力学成核过程是很有必要的.

本文采用动力学蒙特卡罗法(Kinetic Monte Carlo, KMC)对 Si/Ge 系统中二维 Ge 岛成核的早期阶段进行了模拟. 模拟中考虑了吸附原子引入的应力场对成核的影响, 研究了温度、应力场分布对二维岛成核的影响. 发现应力场在成核过程中起着关键的作用, 表明在量子点的制备中, 可以通过调制应力场分布, 对量子点的尺寸和位置分布进行控制.

2 KMC 模拟

KMC 是一种用于模拟表面生长随时间变化的过程的方法. 通用的 KMC 的主要思想是通过模拟吸附原子在表面原子周期势和其他吸附原子的势场下的扩散运动来描述表面的生长过程, 原子间的非线性相互作用通过影响扩散势垒的高度来体现.

如果只考虑最近邻原子间的相互作用和原子在相邻位置的跳跃, 那么, 在势阱中的原子跳跃到邻近位置的几率为:

$$P = \nu \exp\left(-\frac{E_s + nE_n}{k_B T}\right) \quad (1)$$

^{*} 国家自然科学基金重点基金(批准号: 69836020)和教育部 985(No. Jz2001010)资助项目

其中 E_s 为表面的束缚能; E_n 为近邻原子的束缚能; n 为近邻原子数; T 为温度; k_B 为玻尔兹曼常数; ν 为势阱中原子的振动频率.

对于 Si/Ge 系统, 由于存在应变, 系统的平衡束缚能减小. 为了考虑应力对生长过程的影响, 引入 E_c 对系统的束缚能进行修正^[6], (1)式成为:

$$P = \nu \exp\left(-\frac{E_s + nE_n + E_c}{k_B T}\right) \quad (2)$$

E_c 为吸附原子引入的应力场对系统束缚能的修正项, 由于应力场的作用总是减小束缚能, 因此该项恒为负值. 上式表明在存在应力场的位置, 原子比没有应力场时更容易发生扩散, 从而导致高应力区域向低应力区域的原子扩散流.

应力场的严格计算应该采用连续弹性理论. 此处为了计算方便, 直接对 E_c 采用了简单的线性近似, 即在岛的中心 E_c 取最大值, 偏离中心方向线性减小, 到岛半径两倍距离处减小至零, 应力场由下式表示:

$$E_c(x, y) = E_c^{\max}(R - r)/R \quad (3)$$

$E_c(x, y)$ 的最大值 $|E_c^{\max}| = aN$, N 是量子点所包含的原子数, $a = 0.01\text{eV}$.

模拟中参数选取如下^[6]: $E_s = 1.3\text{eV}$, $E_n = 0.3\text{eV}$, $\nu = 10^{13}\text{S}^{-1}$.

首先计算表面所有吸附原子的跃迁几率(有 4 个近邻原子的原子认为不发生跳跃), 确定下一步将要发生跃迁的原子; 然后进一步对这些原子进行分类, 把一个几率段内的所有原子归为一类, 然后此类中原子的数目 N_i 乘以这个几率 p_i , 得到加权后的几率 $N_i \times p_i$, 再根据这个几率选出发生事件的类 i , 从中随机地取出一个原子随机地跃迁到相邻的某个位置上, 这样, 就完成了表面原子的一次集体事件; 在每一个时间单位内重复上面两步, 发生跃迁的原子和其周围原子的几率将被重新计算, 并根据新的几率把他们划分到相应的类当中去. 需要指出的是, 这个模拟方法和理论基础并不适用于二维岛向三维岛的转变以及三维岛的继续生长, 因此, 模拟过程只对生长的最初几个原子层有效. 但这并不影响模拟的意义, 因为单原子层或双原子层的团簇就已经成为量子点生长的核心.

3 结果和讨论

模拟区域是 200×200 的晶格, 除模拟温度场作用外, 温度均为 750K .

图 1 为考虑吸附原子引入的应力场后二维 Ge 岛的成核过程.

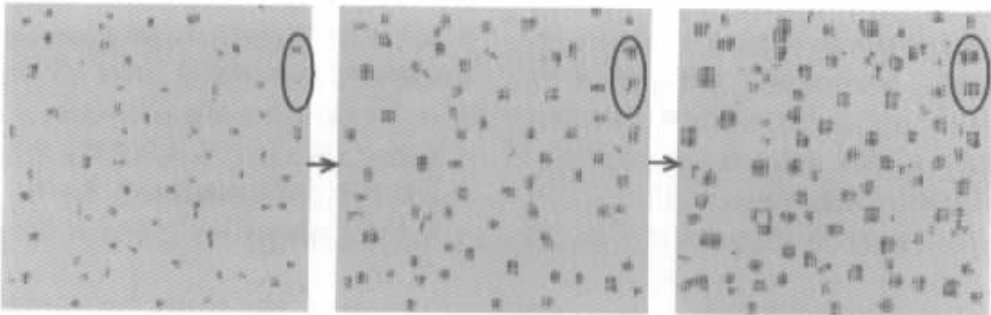


图 1 考虑原子引入应力场后二维岛的成核过程

Fig. 1 Nucleation process of 2D islands when considering strain field induced by adsorbed atoms

从二维 Ge 岛成核的演变过程可以发现, 生长过程中 Ge 岛的尺寸有自限制的效应. 图中椭圆圈起的两个 Ge 岛的演变明显表示出了不同尺寸的岛在成核过程中的变化, 较小岛的生长速率大于大岛的速率, 最后尺寸趋于一致. 这是由于刚开始时由于原子形成簇时跃迁几率大大降低, 从而形成小的点簇, 随着簇的增大, 进而向岛演变, 岛边界的应力越

来越大, 导致边界原子跃迁几率的增大. 当岛的尺寸增大到一定程度后, 边界原子有足够大的跃迁几率, 以至于脱离岛的束缚而成为自由原子. 从(2)式可以看出, 大岛的原子比小岛具有更大的跳跃几率, 更容易失去原子, 形成从大尺寸点到小尺寸点的净原子流, 导致岛的尺寸趋于均匀, 这就是应力场对量子点大小的影响. 因此, 在考虑了吸附原子的应力场作用

后,在二维岛成核的演变过程中,各岛之间存在协同的效应。

对于多层量子点材料的生长,每层 Ge 岛的成核将受到下面埋层量子点产生的应力场的影响,这种应力场对于上层二维岛成核属于外界作用.为了模拟埋层量子点对上层 Ge 岛成核的影响,我们可以在生长的同时在表面上附加一个和前一层量子点的分布相对应的应力场的分布.为了计算方便,同时

也为了说明应力场对量子点水平排列的作用,我们用 10 个周期的按正弦规律变化的附加势垒(势垒振幅为 0.3eV)模拟应力场分布.

模拟结果如图 2 所示.从图中可以明显看出,在外加应力场的作用下,二维 Ge 岛在排列上都呈现出规则性.这是由于在附加势垒的极值点处原子的跃迁几率最小,因此呈现和附加势垒相同周期的规则排列,可以很好的解释多层量子点的纵向对准现象.

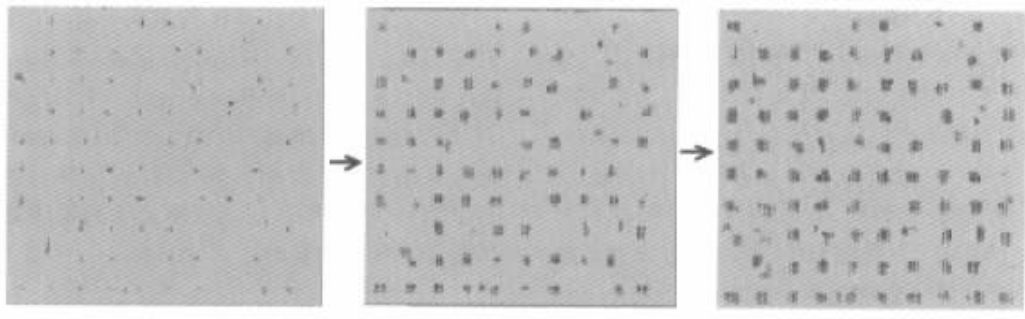


图 2 多层量子点情况下二维 Ge 岛成核过程

Fig. 2 Nucleation process of 2D Ge islands for stacked quantum dots

结合多层量子点的实际生长情况,可以知道,对应于两个埋层量子点之间的位置,也存在应力最小的位置,从修正的跃迁几率的表达式容易看出,也就是原子的跃迁几率最小,容易和其它原子结合成核.因此,从我们的模型来看,在多层量子点的生长中, 45° 的斜对准^[7]是有理论依据的.随着点簇的生长,团簇自身引入的应力逐渐增大,使边界原子的跃迁几率不断增大,直至可以脱离点簇而成为自由原子,从而使其尺寸具有自限制的效应.

为了分析生长过程中衬底温度对二维 Ge 岛成

核的影响,在给表面外加温度分布(仍然是 10 个周期正弦变化,振幅为 50K)的条件下进行了模拟,结果如图 3 所示.从图中可以看出,衬底温度的分布对二维岛的成核也会产生影响,这种影响表现在低温区域内所有原子跃迁几率的降低,最终也会导致岛的规则排列.但是,对比图 2 和图 3 可以发现,温度场对二维 Ge 岛成核的影响远不如应力场.这表现在规则应力场条件下,在成核的最初阶段已经表现出规则排列,而在规则温度场下,要经过一定的演化过程才能达到规则排列;而且,从最终的排列来看,

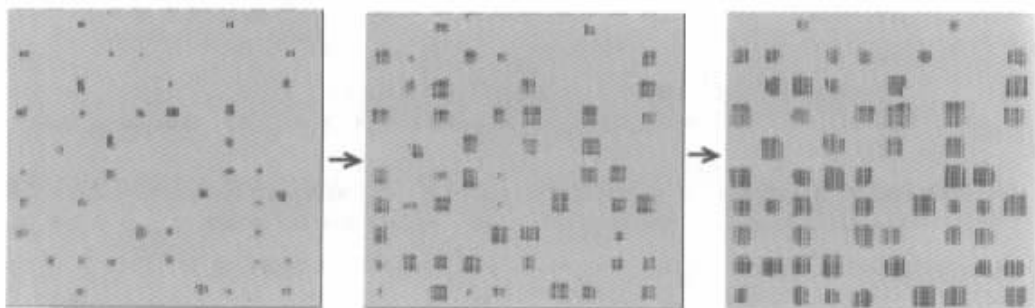


图 3 规则温度场对二维 Ge 岛成核的影响

Fig. 3 Influence of regular temperature field on nucleation of 2D Ge islands

其规则性较应力场作用下要差. 不过, 在实际生长过程中, 客观存在的表面温度分布仍然对 Ge 岛的成核有一定的影响, 有必要对其进行精确的控制.

最后需要指出的是, 模型本身还是做了很多简化, 如, 假设衬底是各向同性, 应力场的线性近似等. 如果要对生长过程作更详细的分析, 需要对模型做进一步的完善.

4 结论

从不同条件下对二维 Ge 岛成核早期阶段的 KMC 模拟可以初步得到以下结论:

(1) 考虑吸附原子引入的应力场作用之后, 各个二维岛之间的生长不是完全孤立的, 相互之间通过应力场对跃迁几率的影响耦合, 生长过程具有协同作用, 应力场导致形成从大岛到小岛的净原子流.

(2) 多层量子点情况下, 埋层量子点形成的应力分布对上层量子点的排列有很大的作用. 可以定性地解释多层量子点结构中 45° 斜对准的现象.

(3) 生长过程中, 衬底表面的温度对二维岛的成核也有一定的影响, 在具体生长过程中需精确控制.

参考文献

- [1] Catherine Priester, Michel Lannoo. Growth aspects of quantum dots. *Current Opinion in Solid State & Materials Science*, 1997, 2: 716
- [2] Boucaud P, Le Thanh V, Yam V, et al. Aspects of Ge/Si self-assembled quantum dots. *Materials Science & Engineering B*, 2002, 89: 36
- [3] Shchukin V A, Ledentsov N N, Kop'ev P S, et al. Spontaneous ordering of arrays of coherent strained islands. *Phys Rev Lett*, 1995, 75: 2968
- [4] Tersoff J, Teichert C, Lagally M G. Self-organization in growth of quantum dot superlattices. *Phys Rev Lett*, 1996, 76: 1675
- [5] Boucaud P, Le Thanh V, Sauvage S, et al. Photoluminescence of self-assembled Ge dots grown by ultra-high-vacuum chemical vapor deposition. *Thin solid film*, 1998, 336: 240
- [6] Nurminen L, Kuronen A, Koski K. Kinetic Monte Carlo simulation of nucleation on patterned substrates. *Phys Rev*, 2001, B63: 35407
- [7] Wang Zhanguo, Liu Fengqi, Liang Jiben, et al. Self-assembled InAs/GaAs quantum dots materials and quantum dot laser. *Chinese Science (A)*, 2000, 30(7): 644 (in Chinese) [王占国, 刘峰奇, 梁基本, 等. 自组装 InAs/GaAs 量子点材料和量子点激光器. *中国科学(A)*, 2000, 30(7): 644]

Kinetic Monte Carlo Simulation of Initial Nucleation Stage of 2D Ge Islands*

Deng Ning, Xiao Hong, Chen Peiyi and Li Zhijian

(Institute of Microelectronics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Initial nucleation stage of 2D Ge islands during the self-assembled growth of Ge islands in Si/Ge mismatch system is studied by Kinetic Monte Carlo (KMC) simulation. The diffusion barrier is corrected by introducing a strain field induced by adsorbed atoms. The influence of stain and substrate temperature on nucleation sites and size is investigated. The nucleation of 2D islands is determined by strain field and the self-assembled growth can be controlled by modulating the stain on the surface.

Key words: kinetic Monte Carlo simulation; self-assembled growth; strain field

EEACC: 0240G

Article ID: 0253-4177(2003)S0-0056-04

* Project supported by National Natural Science Foundation of China (No. 69836020) and by Program 985 of Ministry of Education of China (No. Jz2001010)