УДК 536.421; 539.219

© 2005 р. Р.Д. Венгренович, А.В. Москалюк, С.В. Ярема

Чернівецький національний університет ім. Ю.Федьковича, Чернівці

ДИСЛОКАЦІЙНО-ПОВЕРХНЕВА ДИФУЗІЯ В ГЕТЕРОСТРУКТУРАХ ІЗ КВАНТОВИМИ ТОЧКАМИ

Розрахована функція розподілу острівців за розмірами $f(r,t)$ для випадку, коли масоперенесення здійснюється шляхом дислокаційно-поверхневої дифузії. Розрахунок виконаний у рамках теорії ЛСВ за умови, що сумарний потік до острівця j складається з двох потоків j_v та j_d, зумовлених об'ємною або поверхневою дифузією та дифузією вздовж дислокаційних трубок. Показано, що характер поведінки $f(r,t)$ залежить від співвідношення між потоками j_v та j_d.

The function of islands distribution on sizes $f(r,t)$ for a case when the masshift is carried out by means of dislocation-surface diffusion have been worked out. The calculation was made within the frameworks of LSW theory under condition that the summary flow to a island j consists of two flows j_v and j_d, stipulated respectively by volume or surface diffusion and diffusion along dislocation tubes. It is shown, that the nature of behavior of $f(r,t)$ depends on the correlation between the flows j_v and j_d.

Одержання наноструктур, що відповідають квантовим точкам (КТ), традиційними методами такими як селективне травлення, ріст на профільованих підкладках, конденсація у скляних матрицях, кристалізація при надвисоких швидкостях охолодження, або відпал аморфних матриць не, дало бажаного результату [1,2]. Тільки в процесі самоорганізації напівпровідникових наноструктур у гетероепітаксійних напівпровідникових системах вдалося реалізувати ідеальні гетероструктури з КТ.

Найбільш поширений метод одержання КТ – гетероепітаксійний ріст в режимі Странського-Крастанова [3], коли, внаслідок явища самоорганізації, пошаровий ріст плівки змінюється утворенням і наступним розвитком наноструктур у вигляді об'ємних ($3D$) острівців [4-6]. Острівці із просторовим обмеженням носіїв заряду за всіма трьома напрямками називають КТ. Отримані у такий спосіб КТ мають досконалу кристалічну структуру, високий квантовий вихід випромінювальної рекомбінації і характеризуються досить високою однорідністю за розмірами [7-10]. Розміри КТ можуть коливатися від декількох до сотень нанометрів. Наприклад, у гетеросистемах Ge–Si і InAs–GaAs розміри КТ коливаються від 10 до 100 нм зі щільністю 10^{10}–10^{11} см$^{-2}$.

Значна увага в новітній літературі приділяється розподілу острівців за розмірами, оскільки цей параметр системи квантових точок надзвичайно важливий для практичного застосування [11-14]. Зокрема, змінюючи форму і розміри острівців, можна керувати енергетичним спектром, що вкрай важливо для їх технічного застосування. Чим більш однорідний розподіл за розмірами, тим цікавіша система квантових точок у практичному відношенні.

Однорідність розподілу за розмірами зручно характеризувати середньоквадратичним відхиленням $\sigma^* = \sqrt{D}$, де D – дисперсія. Чим вужчий розподіл за розмірами, тим менше σ^*.

В цьому відношенні найкращі розподіли за розмірами отримані для острівців германію у гетеросистемі Ge/Si(001), для яких значення σ^* менше 10% [15].

Теоретичні розподіли, що відповідають таким значенням дисперсії D або середньоквадратичним відхиленням σ^*, отримані у працях [16-17] у припущенні, що на пізніх стадіях формування острівцевої плівки основним фактором, який визначає форму розподілу острівців за розмірами, є оствальдівське дозрівання (ОС). Розрахунки виконані в рамках теорії ЛСВ, за умови, що ланкою, яка лімітує ОС, є дислокаційна дифузія. При цьому дислокаційний механізм укрупнення острівців у процесі ОС можливий, якщо потік речовини до острівця за рахунок дислокаційної дифузії набагато більший від потоку за рахунок поверхневої дифузії, тобто

$$D_S^{(d)} Zd\left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r} >> D_S\, 2\pi r\left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r}, \quad (1)$$

де $D_s^{(d)}$ – коефіцієнт дифузії вздовж дислокаційних канавок, D_s – коефіцієнт поверхневої дифузії, $(dC/dR)_{R=r}$ – градієнт концентрації на поверхні острівця, $d=2\sqrt{2q/\pi}$ – діаметр дислокаційної канавки, $b^2 \le q \le 60b^2$, b – вектор Бюргерса, Z – кількість дислокаційних ліній, що закінчуються біля основи острівця, радіусом r ($z\equiv$cost). Для спрощення розрахунків, острівці вважаються дископодібними, постійної висоти h [16]. Загальний випадок, коли змінюється h і r, розглянутий у [17].

Співвідношення (1) накладає обмеження на розміри острівців, які укрупнюються внаслідок дислокаційної дифузії:

$$r << \frac{Zd}{2\pi}\frac{D_s^{(d)}}{D_s}. \qquad (2)$$

Якщо умова (2) порушується, то необхідно в загальному потоці речовини, крім потоку за рахунок дислокаційної дифузії, враховувати також і складову поверхневої дифузії.

Дана робота присвячена визначенню функції розподілу острівців за розмірами в умовах дислокаційно-поверхневої дифузії, коли жодним із потоків нехтувати не можна.

Для визначення функції розподілу острівців за розмірами $f(r, t)$ необхідно знати швидкість росту (розчинення) острівців.

Швидкість росту окремого острівця, за умови h=const, визначається з рівняння

$$\frac{d}{dt}\left(\pi r^2 h\right) = jv_m, \qquad (3)$$

де v_m – об'єм адатома, j – сумарний потік адатомів до острівця.

В умовах дислокаційно-поверхневої дифузії

$$j=j_d+j_s, \qquad (4)$$

де j_d – потік до частинки за рахунок дифузії вздовж дислокацій, j_s – потік за рахунок поверхневої дифузії, j_d і j_s – задаються відповідно лівою і правою частиною нерівності (1).

Після підстановки (4) у (3) з врахуванням значень j_d і j_s, а також значень градієнта концентрації на межі з острівцем, радіуса r [18],

$$\left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r} = \frac{\sigma v_m}{kT\ln l}C_\infty \frac{1}{r^2}\left(\frac{r}{r_k}-1\right),$$

одержимо

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\sigma\; v_m^2 C_\infty}{2\pi hkT\ln l}\frac{1}{r^2}\times$$

$$\times\left(D_s^{(d)} Zd\frac{1}{r}+2\pi D_s\right)\left(\frac{r}{r_k}-1\right), \qquad (5)$$

де C_∞ – рівноважна концентрація адатомів на межі з острівцем за умови $r\to\infty$, σ – питома поверхнева енергія, r_k – критичний радіус, k – постійна Больцмана.

Позначимо через x і $(1–x)$ частку j_s і j_d у загальному потоці j:

$$x=\frac{j_s}{j},\quad 1-x=\frac{j_d}{j},\quad \frac{j_d}{j_s}=\frac{1-x}{x}. \qquad (6)$$

Для того, щоб швидкість росту (5) виразити через дольові потоки j_d і j_s, винесемо за дужки $2\pi Ds$ і помножимо чисельник і знаменник першого доданка на r_g – максимальний розмір острівця і $(dC/dR)_{R=r_g}$ – градієнт по концентрації на межі з r_g.

У результаті отримаємо:

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s}{hkT\ln l}\times$$

$$\times\frac{1}{r^2}\left(\frac{ZdD_s^{(d)}\left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}}{2\pi r_g D_s\left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}}\frac{r_g}{r}+1\right)\left(\frac{r}{r_k}-1\right). \qquad (7)$$

$\dfrac{ZdD_s^{(d)}\left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}}{2\pi r_g D_s\left(\frac{dC}{dR}\right)_{R=r_g}}$ дорівнює відношенню потоків j_d/j_s для частинки максимального розміру r_g, і його, згідно з (6), можна замінити на $(1–x)/x$, оскільки ніяких обмежень на розміри частинок співвідношення (6) не містить. Тому (7) можна переписати так:

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s}{hkT\ln l}\frac{1}{r^2}\left(\frac{1-x}{x}\frac{r_g}{r}+1\right)\left(\frac{r}{r_k}-1\right). \qquad (8)$$

При x=1 маємо перший граничний випадок, коли ріст острівців лімітується дифузією вздовж дислокацій. Відповідна функція розподілу має вигляд [16]:

$$g(u) = \\ = \frac{u^3\exp\left[-\frac{1}{3(1-u)}\right]\exp\left[-\frac{1}{9\sqrt{2}}\mathrm{arctg}\frac{u+1}{\sqrt{2}}\right]}{(1-u)^{25/9}(u^2+2u+3)^{29/18}}. \qquad (9)$$

Якщо в (5) винести за дужки $D_s^{(d)} Zd / r$ і знову помножити чисельник і знаменник першого доданка на $r_g \left(dC / dR\right)_{R=r_g}$, то отримаємо:

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s^{(d)} Zd}{\pi hkT \ln l} \times \times \frac{1}{r^3}\left(\frac{x}{1-x}\frac{r}{r_g}+1\right)\left(\frac{r}{r_k}-1\right). \quad (10)$$

Якщо в (10) підставити x=0, то маємо другий граничний випадок, коли швидкість росту лімітується тільки поверхневою дифузією. Функція розподілу острівців за розмірами у цьому випадку визначається розподілом Ліфшиця-Сльозова [19], модифікованим для поверхні [18]:

$$g(u) = = u^2 (1-u)^{-28/9} (u+2)^{-17/9} \exp\left(-\frac{2/3}{1-u}\right), \quad (11)$$

де $u = r / r_g$.

Тепер завдання полягає в знаходженні розподілів за розмірами у діапазоні між цими двома граничними випадками. Але перш ніж до цього перейти, визначимо відношення максимального розміру частинок r_g до критичного r_k. Це важливо, адже в рамках теорії ЛСВ критичний розмір збігається із середнім розміром острівців $r_k \equiv \langle r \rangle$. Отже, чим менше значення r_g/r_k, тим ближче середній розмір до максимального, і більш однорідний за розмірами масив острівців. Тому в першому наближенні за значенням r_g/r_k можна судити про однорідність розподілу за розмірами. Відношення r_g/r_k можна визначити з умови [21]:

$$\left.\frac{d}{dr}\left(\frac{\dot r}{r}\right)\right|_{r=r_g} = 0 , \quad (12)$$

де $\dot r \equiv \frac{dr}{dt}$.

Використовуючи рівняння (8) або (10), після виконання процедури (12), одержимо

$$\frac{r_g}{r_k} = \frac{4-x}{3-x} . \quad (13)$$

Для граничних випадків, коли x=0, r_g/r_k=4/3 (поверхнева дифузія), і при x=1, r_g/r_k=3/2 (дислокаційна дифузія).

Використовуючи (13), можна визначити часову залежність для r_g і r_k. Якщо в (10) замість r підставити r_g, то воно набуде вигляду

$$\frac{dr_g}{dt} = \frac{A}{r_g^3}\left(\frac{x}{1-x}+1\right)\left(\frac{r_g}{r_k}-1\right) = = \frac{A}{r_g^3}\left(\frac{4-x}{3-x}-1\right)\frac{1}{1-x}, \quad (14)$$

де $A = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s^{(d)} Zd}{\pi hkT \ln l}$.

Після інтегрування одержимо:

$$r_g^4 = \frac{4A}{(3-x)(1-x)} t , \quad (15)$$

або, використовуючи (13),

$$r_k^4 = \frac{4A(3-x)^3}{(1-x)(4-x)^4} t . \quad (16)$$

Аналогічно для рівняння (8)

$$\frac{dr}{dt} = \frac{B}{r_g^2}\left(\frac{4-x}{3-x}-1\right)\left(\frac{1}{x}\right) \quad (17)$$

після інтегрування (17) маємо:

$$r_g^3 = \frac{3B}{x(3-x)} t , \quad (18)$$

$$r_k^3 = \frac{3B(3-x)^2}{x(4-x)^3} t , \quad (19)$$

де $B = \frac{\sigma v_m^2 C_\infty D_s}{hkT \ln l}\frac{1}{r^2}$.

Очевидно, якщо об'єднати (15) і (18), (16) і (19), то r_g і r_k задовольняють рівнянням

$$\frac{r_g^4(1-x)}{4A} + \frac{r_g^3 x}{3B} = \frac{2t}{(3-x)}, \quad (20)$$

$$\frac{r_k^4(1-x)}{4A} + \frac{r_k^3 x}{3B} = 2\frac{(3-x)^2}{(4-x)^3} t . \quad (21)$$

Згідно з [21], $f(r,t)$ подають у вигляді добутку двох функцій:

$$f(r, t) = \varphi(r_g) \cdot g(u), \quad (22)$$

де $g(u)$ – розподіл острівців за відносними розмірами $u = r/r_g$. Із закону збереження маси M острівцевого конденсату знаходимо $\varphi(r_g)$

$$M = K \int_0^{r_g} r^2 f(r,t) dr , \quad (23)$$

де $K = \pi h \rho$, ρ – щільність острівців. Після підстановки (22) у (23) одержуємо:

$$\varphi(r_g) = \frac{Q}{r_g^3} , \quad (24)$$

де $Q = \dfrac{M}{K\int\limits_0^1 u^2 g(u)du}$.

Функцію розподілу за відносними розмірами $g(u)$ визначаємо з рівняння неперервності

$$\frac{\partial}{\partial t}(f(r,t)) + \frac{\partial}{\partial t}(f(r,t)\dot{r}) = 0\,. \qquad (25)$$

Якщо в (25) замість $f(r,t)$ і $\dot{r}$ підставити їх значення з (10) і (21), а потім перейти від диференціювання за r і t до диференціювання за u, то в (25) розділяються змінні:

$$\frac{dg(u)}{g(u)} = -\frac{3\upsilon_g + 2\dfrac{\upsilon}{u^3} - \dfrac{1}{u^2}\dfrac{d\upsilon}{du}}{u\upsilon_g - \dfrac{\upsilon}{u^2}}du\,, \qquad (26)$$

де $\upsilon_g = \dfrac{dr_g}{dt}\dfrac{r_g^2}{A}$, $\upsilon = \left(\dfrac{x}{1-x}u + 1\right)\left(\dfrac{4-x}{3-x}u - 1\right)$.

Після підстановки значення υ і υ_g $\left(\upsilon_g = \upsilon_{u=1}\right)$ у (26) одержуємо

$$\frac{dg(u)}{g(u)} = \frac{-\left(3u^4 - (x^2-4x)u^2 + (x^2-4x+2)4u^2 - -3x^2 + 12x - 9\right)du}{u(u^4 + (x^2-4x)u^2 - -2(x^2-4x+2)u + x^2 - 4x + 3)}. \qquad (27)$$

Після розкладання в знаменнику багаточлена четвертого степеня на прості множники (з метою інтегрування), замість (27) отримаємо:

$$\frac{dg(u)}{g(u)} = \frac{-\left(3u^4 - (x^2-4x)u^2 + (x^2-4x+2)4u^2 - -3x^2 + 12x - 9\right)du}{u(u-1)^2(u^2+bu+c)}. \qquad (28)$$

де b=2, c=x^2–$4x$+3.

Інтегрування (28) дає функцію розподілу острівців за відносними розмірами в умовах дислокаційно-поверхневої дифузії:

$$g(u) = \frac{u^3(u^2+bu+c)^{\frac{D}{2}}}{(u-1)^K}\exp\left(\frac{F}{u-1}\right)\times$$

$$\times\exp\left(\frac{E - Db/2}{\sqrt{c - b^2/4}}\operatorname{arctg}\frac{u + b/2}{\sqrt{c - b^2/4}}\right), \qquad (29)$$

де

$$D = \frac{\begin{pmatrix} 3c^2 + (x^2 - 4x + 6b - 6)c + 6b^2 + \\ + (4x^2 - 16x + 14)b + 7x^2 - 28x + 19 \end{pmatrix}}{c^2 + (b+1)2c + b^2 + 2b + 1},$$

$$E = \frac{(3-D)c + (D-3)b^2 + (2b+1)D + x^2 - 4x - 3}{2+b},$$

$$F = D(b+1) - 3b - E\,, \quad K = 6 - D.$$

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Леденцов Н.Н.*, *Устинов В.М.*, *Щукин В.А.*, *Копьев П.С.*, *Алфёров Ж.И.*, *Бимберг Д.* Гетероструктуры с квантовыми точками: получение, свойства, лазеры // ФТП. – 1998. – **32**, №4. – С.385-410.
2. *Пчеляков О.П.*, *Болховитянов Ю.Б.*, *Двуреченский А.В.*, *Соколов Л.В.*, *Никифоров А.И.*, *Якимов А.И.*, *Фойхтлендер Б.* Кремний-германиевые наноструктуры с квантовыми точками: механизмы образования и электрические свойства // ФТП. – 2000. – **34**, вып.11. – С. 1281-1299.
3. *Stranski I.N.*, *Krastanow L.* // Sitzungsberichte der Akademien der Wissenschaften in Wien. Abt. lib. – 1937. – Band **146**. – P.797.
4. *Shchukin V.A.*, *Bimberg D.* // Review of Modern Physics. – 1999. – **71**. – P.1125.
5. *Müller P.*, *Kern R.* // Microsc. Microanal. Microst. – **8**. – P.229.
6. *Mo Y.-W.*, *Savage D.E.*, *Swartzentruber B.S.*, *Lagally M.G.* // Phys. Rev. Lett. – 1990. – **65**. – P.1020.
7. *Aleksandrov L.N.*, *Lovyagin R.N.*, *Pchelyakov O.P.*, *Stenin S.I.* // J.Cryst. Growth. – 1974. – **24**/**25**. – P.298.
8. *Leonard D.*, *Krishnamurthy M.*, *Reaves C.M.*, *Denbaars S.P.*, *Petroff P.M.* Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces // Appl. Phys. Lett. – 1993. – **63**, No.23. – P.3203-3205.
9. *Moison J.M.*, *Houzay F.*, *Barthe F.*, *Leprince L.*, *Andre E.*, *Vatel O.* // Appl. Phys. Lett. – 1994. – **64**. – P.196.
10. *Леденцов Н.Н.*, *Устинов В.М.*, *Иванов С.В.*, *Мельцер Б.Я.*, *Максимов М.В.*, *Копьев П.С.*, *Бимберг Д.*, *Алфёров Ж.И.* Упорядоченные массивы квантовых точек в полупроводниковых матрицах // УФН. – 1996. – **166**. – С.423-431.
11. *Bartelt N.C.*, *Theis W.*, *Tromp R.M.* Ostwald ripening of two-dimensional islands on Si(001) // Phys. Rev. B. – 1996. – **54**, No.16. – P.11741-11751.

12. *Goldfarb I., Hayden P.T., Owen J.H.G., Briggs G.A.D.* Nucleation of "Hut" pits and clusters during Gas-Source molecular-beam epitaxy of Ge/Si(001) in *In Situ* scanning tunnelng microscopy // Phys. Rev. Lett. – 1997. – **78**, No.20. – P.3959-3962. Competing growth mechanisms of Ge/Si(001) coherent clusters // Phys. Rev. B. – 1997. – **56**. – P.10459-10468.
13. *Joyce B.A., Vvedensky D.D., Avery A.R., Belk J.G., Dobbs H.T., Jones T.S.* Nucleation mechanisms during MBE growth of lattice-matched and strained III–V compound films // Appl. Surf. Sci. – 1998. – **130-132**. – P.357-366.
14. *Kamins T.I., Medeiros-Ribeiro G., Ohlberg D.A.A., Stanley Williams R.* Evolution of Ge islands on Si(001) during annealing // J. Appl. Phys. – 1999. – **85**, No.2. – P.1159-1171.
15. *Jian-hong Zhu, Brunner K., and Abstreiter G.* Two-dimensional ordering of self-assembled Ge islands on vicinal Si(001) surfaces with regular ripples // Appl. Phys. Lett. – 1998. – **73**, No.5. – P.620-622.
16. *Венгренович Р.Д., Гудыма Ю.В., Ярема С.В.* Оствальдовское созревание наноструктур с квантовыми точками // ФТП. – 2001. – **35**, №12. – С.1440-1444.
17. *Vengrenovitch R.D., Gudyma Yu. V., Yarema S.V.* Dislocation mechanism of quantum dot formation in heteroepitaxial structures // Phys. Stat. Sol. (b) – 2004. – **242,** No.4. – P.881-889.
18. *Венгренович Р.Д.* К расчету функции распределения в поверхностных дисперсных системах // УФЖ. – 1977. – **22**, №2. – С.219-223.
19. *Лифшиц И.М., Слёзов В.В.* О кинетике диффузного распада пересыщенных твердых растворов // ЖЭТФ. – 1958. – **35**, №2. – С.479–492.
20. *Lifshits I.M., Slezov V.V.* The kinetics of precipitation from supersaturated solid solution // J. Phys. Chem. Solids. – 1961. – **19**, No.1/2. – P.35–50.
21. *Vengrenovitch R.D.* On the Ostwald ripening theory // Acta metall. – 1982. – **30**. – P.1079–1086.