

Отчет о проделанной работе с использованием оборудования ИВЦ НГУ

Тема работы

Влияние биаксиальной деформации на энергии связи адсорбированных атомов In и Al на поверхностях (001) InAs и AlAs

Аннотация

С использованием теории функционала плотности исследована зависимость энергий связи адсорбированных атомов In и Al на поверхности (001) InAs и AlAs с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$ от деформаций биаксиального сжатия и растяжения. Построены карты поверхности потенциальной энергии адсорбированного атома In на поверхности (001) InAs и AlAs с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$. По результатам расчетов наблюдается общий тренд на увеличение абсолютных значений энергии связи адсорбированных атомов In и Al на поверхности (001) InAs и AlAs при увеличении деформации биаксиального растяжения. Для отдельных положений адсорбированных атомов наблюдается изменение знака производной зависимости энергии связи от величины биаксиальной деформации при изменении симметрии адсорбированного состояния атома.

Состав коллектива

Александров Иван Анатольевич, к.ф.-м.н., н.с. ИФП СО РАН
Гуляев Дмитрий Владимирович, к.ф.-м.н., с.н.с. ИФП СО РАН
Колосовский Евгений Анатольевич, к.ф.-м.н., с.н.с. ИФП СО РАН
Журавлев Константин Сергеевич, д.ф.-м.н., зав. лаб. ИФП СО РАН

Финансовая поддержка

Работа выполнена в рамках гранта РФФИ № 23-22-10054, руководитель Гуляев Д.В.

Научное содержание работы

1. Постановка задачи.

Скорость роста и состав растущего слоя $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{As}$ в условиях молекулярно-лучевой эпитаксии зависит от потоков In, Al, As_2 , As_4 и температуры подложки. Для теоретического описания этих процессов могут применяться термодинамические и кинетические модели, а также кинетическое моделирование методом Монте-Карло [1–3]. При этом энергетические параметры элементарных процессов адсорбции, десорбции и поверхностной диффузии могут быть рассчитаны методами теории функционала плотности. В случае гетероэпитаксии пленки с отличной постоянной решетки от подложки или при наличии структурных дефектов, на поверхности могут создаваться упругие деформации, которые влияют на энергетические параметры элементарных процессов при эпитаксии. Работа посвящена исследованию зависимости энергии связи адсорбированных атомов In и Al на поверхности (001) InAs и AlAs от деформации биаксиального сжатия и растяжения для реконструкции поверхности $\beta_2(2 \times 4)$.

2. Современное состояние проблемы.

В работе [4] исследовалось влияние деформаций на поверхностную диффузию и адсорбцию атомов In на поверхности (001) GaAs с реконструкцией $c(4 \times 4)$. Согласно расчетам [4] абсолютная величина энергии связи атома In на поверхности GaAs увеличивается с деформацией биаксиального растяжения. В работе [5] рассмотрена адсорбция In на поверхность тонкого (1.75 монослоя) псевдоморфно напряженного слоя InAs на GaAs (001) для реконструкций поверхности $\alpha_2(2 \times 4)$ и $\beta_2(2 \times 4)$. В этом случае латеральный параметр решетки уменьшен по сравнению с объемным InAs на 6.7%.

В работе [3] предложена методология моделирования равновесной атомной конфигурации поверхности и процессов роста на поверхностях материалов A_3B_5 . Методология

основывается на моделировании кинетики методом Монте-Карло с энергетическими параметрами, рассчитанными методом теории функционала плотности. Для большого числа локальных конфигураций ненапряженной поверхности (001) InAs для смешанной реконструкции $\alpha_2(2 \times 4)$ и $\beta_2(2 \times 4)$ рассчитаны разности энергий атомных конфигураций поверхности и энергии десорбции димера мышьяка. Для реконструкции поверхности InAs (001) $\beta_2(2 \times 4)$ энергия десорбции As₂ составила 2.49 эВ, для реконструкции $\alpha_2(2 \times 4)$ энергия десорбции As₂ составила 3.202 эВ.

Согласно расчету Fujiiwara et al. [6, 7] энергетические барьеры для поверхностной диффузии атома In на поверхности (001) ненапряженного InAs с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$ составляют 0.456 эВ в направлении [110] и 0.386 эВ в направлении [-110]. Для псевдоморфно напряженного тонкого слоя InAs на поверхности GaAs энергетические барьеры для поверхностной диффузии атома In на поверхности с той же реконструкцией, согласно расчетам Rosini et al. [7], составляют 0.375 эВ в направлении [110] и 0.253 эВ в направлении [-110].

Таким образом, в литературе рассмотрены отдельные случаи ненапряженного слоя InAs и псевдоморфно напряженного слоя InAs на GaAs, при этом актуальной задачей является рассмотрение зависимости энергии связи атомов In и Al на поверхностях InAs и AlAs от деформации биаксиального сжатия и растяжения.

3. Подробное описание работы, включая используемые алгоритмы.

Расчеты проводились в приближении локальной плотности [8] с псевдопотенциалами PSlibrary0.3.1 [9], с использованием пакета программ Quantum ESPRESSO [10, 11]. Энергия отсечки при разложении на плоские волны составляла 80 Ry, что обеспечивало сходимость полной энергии менее 1 мэВ на атом. Рассчитанный параметр решетки объемных InAs и AlAs составил 6.031 Å для InAs и 5.633 Å для AlAs, что меньше экспериментальных значений (6.058 Å для InAs и 5.661 Å для AlAs [12]) на 0.4% и 0.5%, соответственно. Рассчитанный коэффициент Пуассона составил $\nu_{\text{InAs}} = 0.366$ для объемного InAs и $\nu_{\text{AlAs}} = 0.336$ для объемного AlAs. Эти результаты хорошо согласуются с экспериментальными значениями $\nu_{\text{InAs}} = 0.352$ [13] для InAs и $\nu_{\text{AlAs}} = 0.324$ для AlAs [14]. Для биаксиально напряженных InAs и AlAs коэффициент биаксиальной релаксации $R_B = 2C_{12}/C_{11}$ оценивался как отношение изменения параметра решетки в направлении z , перпендикулярном плоскости XY, в которой приложено механическое напряжение, к изменению параметра решетки в плоскости XY при малых (<1%) деформациях. Коэффициент биаксиальной релаксации составил $R_{B, \text{InAs}} = 1.14$ для InAs и $R_{B, \text{AlAs}} = 1.01$ для AlAs, что сравнимо с экспериментальными значениями 1.09 для InAs [13] и для 0.96 AlAs [14].

Согласно теоретическим расчетам [15–17] и экспериментальным данным [15, 18], одной из наиболее энергетически выгодных реконструкций поверхности (001) InAs и AlAs, реализующейся в условиях избытка мышьяка при молекулярно-лучевой эпитаксии является реконструкция $\beta_2(2 \times 4)$. В настоящей работе энергии связи атомов In и Al рассчитывались для реконструкции $\beta_2(2 \times 4)$ поверхности (001) InAs и AlAs.

Сверхъячейка для расчета атомной структуры поверхности состояла из 132 атомов (2 единицы сверхструктуры 2×4) и включала 4 слоя атомов As, 3 слоя атомов In или Al. Верхние слои атомов As и In/Al содержат по 8 и 12 атомов, соответственно, остальные слои – по 16 атомов. С обратной стороны слой атомов As пассивировался 32-мя искусственными атомами водорода с зарядом $3/4e$ для насыщения оборванных связей [19]. Координаты нижнего слоя атомов As и нижнего слоя атомов In/Al фиксировались в соответствии со структурой объемного материала. Для расчета энергии связи адсорбированного атома в такую сверхъячейку добавлялся один атом In или Al. Общая высота сверхъячейки составляла $4a$, где a – параметр решетки, толщина пластины атомов $2a$ и толщина вакуумного промежутка $2a$. Для интегрирования по зоне Бриллюэна использовалась сетка k-точек $2 \times 2 \times 1$. Энергия связи адсорбированного атома определялась по разности полной энергии сверхъячейки с адсорбированным атомом In или Al на поверхности и суммы полных энергий поверхности без адсорбированного атома и отдельного атома в сверхъячейке такого же размера.

Поверхности потенциальной энергии для адсорбированного атома In на поверхностях InAs и AlAs рассчитывались путем фиксации координат x , y адсорбированного атома и релаксации координаты z адсорбированного атома и всех координат атомов поверхности к положению с минимумом энергии.

4. Полученные результаты.

Рассчитанные поверхности потенциальной энергии для атома In на поверхности (001) InAs и AlAs с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$ показаны на рис. 1.

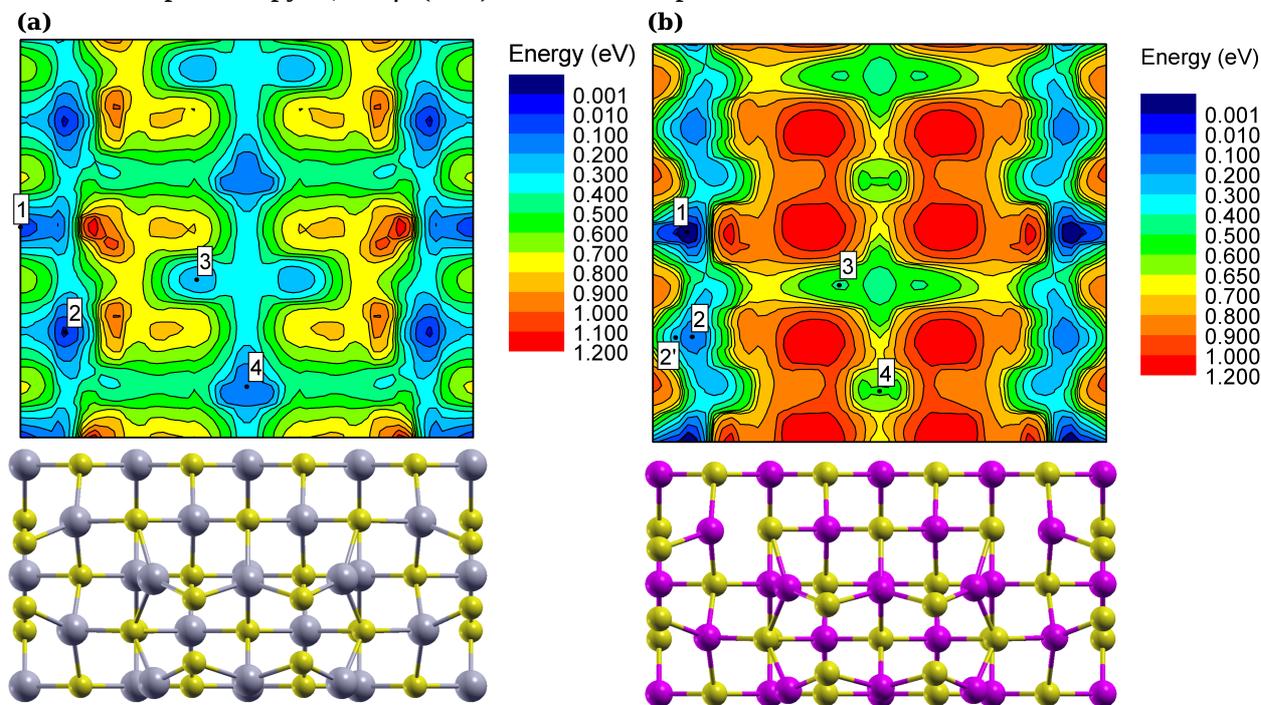


Рис. 1. Поверхность потенциальной энергии для адсорбированного атома In на поверхности (001) InAs (a) и AlAs (b) с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$. Снизу показана атомная структура поверхности (001) InAs и AlAs с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$.

Энергии связи адсорбированных атомов In и Al для различных локальных минимумов энергии на ненапряженных поверхностях InAs и AlAs с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$, обозначенных цифрами на рис. 1, показаны в таблице 1.

Таблица 1. Энергии связи адсорбированных атомов In и Al в различных положениях на поверхности (001) InAs и AlAs с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$. Расчет в приближении локальной плотности.

Положение	Энергия связи, эВ			
	In на InAs	Al на InAs	In на AlAs	Al на AlAs
1	-2.61	-2.87	-2.68	-3.01
2 или 2'	-2.63	-3.13	-2.96	-3.87
3	-2.47	-2.75	-2.20	-2.79
4	-2.52	-2.89	-2.04	-2.27

Минимальная энергия адсорбированного атома In для ненапряженного InAs наблюдается в положении 2 на рис. 1a (A_4 , A_9 по обозначениям работы [5]). В этом положении энергия связи адсорбированного атома In для ненапряженного InAs составляет -2.63 эВ, при увеличении латерального параметра решетки от $0.92a_0$ до $1.05a_0$ абсолютное значение энергии связи атома In увеличивается от 2.45 до 2.93 эВ (рис. 2a).

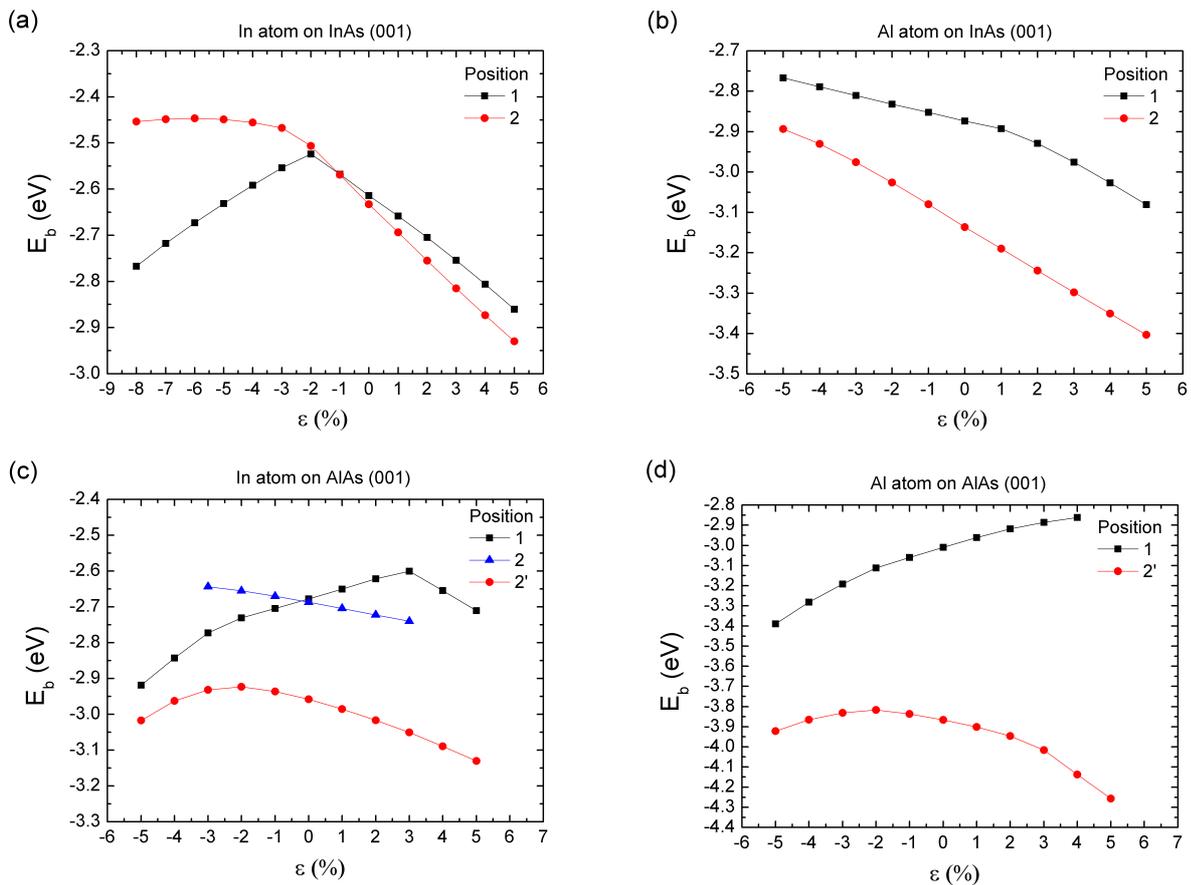


Рис. 2. Расчетные зависимости энергии связи адсорбированных атомов In и Al на поверхности (001) InAs и AlAs от биаксиальной деформации для реконструкции поверхности $\beta_2(2 \times 4)$.

Положение адсорбции 1 на рис. 1а (B_8 по обозначениям работы [5]) лежит в плоскости зеркальной симметрии для реконструкции поверхности $\beta_2(2 \times 4)$ ненапряженного InAs. Это согласуется с результатами работ [5, 6]. При этом согласно нашим расчетам, абсолютное значение энергии связи атома In в этом положении растёт от 2.52 эВ до 2.86 эВ при увеличении латерального параметра решетки от $0.98a_0$ до $1.05a_0$. Для меньшего латерального параметра решетки наблюдается два локальных минимума энергии для адсорбированного атома In, смещенных относительно плоскости симметрии (A_6 и A_8 по обозначениям работы [5]). В этом случае абсолютное значение энергии связи атома In уменьшается от 2.77 эВ до 2.52 эВ при увеличении латерального параметра решетки от $0.92a_0$ до $0.98a_0$.

Для атома Al на поверхности (001) InAs с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$ минимум энергии также наблюдается в положении 2, энергия связи атома Al для ненапряженного InAs составляет -3.14 эВ и при увеличении латерального параметра решетки от $0.95a_0$ до $1.05a_0$ меняется от -2.89 эВ до -3.40 эВ (рис. 2b). Второй локальный минимум энергии для атома Al на InAs наблюдается в симметричном положении 1, для этого положения энергия связи атома Al меняется от -2.77 эВ до -3.08 эВ при увеличении латерального параметра решетки от $0.95a_0$ до $1.05a_0$.

Для атома In на поверхности (001) AlAs с реконструкцией $\beta_2(2 \times 4)$ минимум энергии наблюдается в положении 2' (A_{11} , A_{12} по обозначениям работы [5]), которое соответствует положению атома In вблизи димера As с сильным смещением атомов As в разные стороны вдоль оси димера. Другой локальный минимум энергии также наблюдается в положении 2 с меньшим абсолютным значением энергии связи. В первом случае энергия связи атома In для ненапряженного AlAs составляет -2.96 эВ, во втором случае -2.69 эВ (рис. 2c). Так как поверхность потенциальной энергии на рис. 2 строилась при релаксации адсорбируемого атома

по направлению к поверхности, то полученные значения энергии соответствуют второму локальному минимуму. Подобное встраивание адсорбированного атома In в димер As наблюдалось также для поверхности (001) GaAs $c(4 \times 4)$ [4], а также в работе [5] для поверхности (001) $\beta_2(2 \times 4)$ псевдоморфно напряженного InAs на подложке GaAs. Абсолютное значение энергии связи атома In на AlAs для положения 2' сначала уменьшается от 3.02 эВ до 2.92 эВ при увеличении латерального параметра решетки от $0.95a_0$ до $0.98a_0$ а затем увеличивается до 3.13 эВ при увеличении латерального параметра решетки до $1.05a_0$.

Для ненапряженного AlAs положение 1 адсорбции атома In смещено относительно плоскости зеркальной симметрии, при этом абсолютное значение энергии связи уменьшается от 2.84 эВ до 2.60 эВ при увеличении латерального параметра решетки от $0.96a_0$ до $1.03a_0$, при дальнейшем увеличении латерального параметра решетки основным становится положение в плоскости зеркальной симметрии, и при этом абсолютное значение энергии связи атома In растет от 2.60 эВ до 2.71 эВ при увеличении латерального параметра решетки от $1.03a_0$ до $1.05a_0$.

Для атома Al на поверхности (001) AlAs абсолютное значение энергии связи в положении 2' сначала уменьшается от 3.92 эВ до 3.82 эВ при увеличении латерального параметра решетки от $0.95a_0$ до $0.98a_0$ а затем увеличивается до 4.26 эВ при увеличении латерального параметра решетки до $1.05a_0$ (рис. 2d). В положении 1 абсолютное значение энергии связи атома Al уменьшается от 3.39 эВ до 2.86 эВ при увеличении латерального параметра решетки от $0.95a_0$ до $1.04a_0$.

Эффект от использования кластера в достижении целей работы.

Расчеты атомной структуры поверхностей полупроводников и поверхностей потенциальной энергии адсорбированных атомов методами теории функционала плотности требовательны к вычислительным ресурсам, поэтому использование кластера является необходимым для выполнения расчетов.

Перечень публикаций, содержащих результаты работы

A1) Aleksandrov I.A., Gulyaev D.V., Kolosovsky E.A., Zhuravlev K.S., Effect of biaxial strain on the binding energies of adsorbed In and Al atoms on (001) surfaces of InAs and AlAs. Monte Carlo Methods and Applications, v. 30, № 4, 431-436 (2024). (IF 0.8, DOI: 10.1515/mcma-2024-2023)

Литература

- [1] П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, Физика и техника полупроводников, 22, 1729 (1988).
- [2] S.V. Ivanov, P.S. Kop'ev and N.N. Ledentsov, Journal of Crystal Growth, 111, 151-161 (1991).
- [3] F. Grosse, M. F. Gyure, Phys. Rev. B 66, 075320 (2002).
- [4] E. Penev, P. Kratzer, M. Scheffler, Phys. Rev. B, 64, 085401 (2001).
- [5] M. Rosini, R. Magri, P. Kratzer, Phys. Rev. B 77, 165323 (2008).
- [6] K. Fujiwara, A. Ishii, T. Aisaka, Thin Solid Films 464-465, 35-37 (2004).
- [7] M. Rosini, P. Kratzer, R. Magri, J. Phys.: Condens. Matter 21, 355007 (2009).
- [8] J.P. Perdew and A. Zunger, Phys. Rev. B 23, 5048 (1981).
- [9] A. Dal Corso, Computational Material Science 95, 337 (2014).
- [10] Giannozzi, P., Baroni, S., Bonini, N., Calandra, M., Car, R., Cavazzoni, C., Ceresoli, D., Chiarotti, G. L., Cococcioni, M., Dabo, I., Dal Corso, A., de Gironcoli, S., Fabris, S., Fratesi, G., Gebauer, R., Gerstmann, U., Gougoussis, C., Kokalj, A., Lazzeri, M., Martin-Samos, L., Marzari, N., Mauri, F., Mazzarello, R., Paolini, S., Pasquarello, A., Paulatto, L., Sbraccia, C., Scandolo, S., Sclauzero, G., Seitsonen, A. P., Smogunov, A., Umari, P. and Wentzcovitch, R. M., Journal of Physics: Condensed Matter, 21(39), 395502 (2009).
- [11] Giannozzi, P., Andreussi, O., Brumme, T., Bunau, O., Nardelli, M. B., Calandra, M., Car, R., Cavazzoni, C., Ceresoli, D., Cococcioni, M., Colonna, N., Carnimeo, I., Dal Corso, A., de Gironcoli, S., Delugas, P., DiStasio, R. A., Ferretti, A., Floris, A., Fratesi, G., Fugallo, G., Gebauer, R.,

- Gerstmann, U., Giustino, F., Gorni, T., Jia, J., Kawamura, M., Ko, H.-Y., Kokalj, A., Küçükbenli, E., Lazzeri, M., Marsili, M., Marzari, N., Mauri, F., Nguyen, N. L., Nguyen, H.-V., de-la Roza, A. O., Paulatto, L., Poncé, S., Rocca, D., Sabatini, R., Santra, B., Schlipf, M., Seitsonen, A. P., Smogunov, A., Timrov, I., Thonhauser, T., Umari, P., Vast, N., Wu, X. and Baroni, S. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 29(46), 465901 (2017).
- [12] Vurgaftman, I., Meyer, J. R. and Ram-Mohan, L. R., *Journal of Applied Physics*, 89(11), 5815–5875 (2001).
- [13] Yu. A. Burenkov, S. Yu. Davydov, and S. P. Nikanorov, *Sov. Phys. Solid State* 17(7), 1446–1447 (1975).
- [14] M. Krieger, H. Sigg, N. Herres, K. Bachem, K. Kohler, *Appl. Phys. Lett.* 66, 682–684 (1995).
- [15] W. Barvosa-Carter, R.S. Ross, C. Ratsch, F. Grosse, J.H.G. Owen, J.J. Zinck, *Surface Science* 499, L129–L134 (2002).
- [16] In Won Yeu, Jaehong Park, Gyuseung Han, Cheol Seong Hwang, Jung-Hae Choi, *Scientific reports*, 7, 10691 (2017).
- [17] Tomonori Ito, Toru Akiyama, Kohji Nakamura, and Abdul-Muizz Pradipto, *Phys. Status Solidi A*, 216, 1800476 (2019).
- [18] A.M. Dabiran, P.I. Cohen, *Journal of Crystal Growth*, 150, 23–27 (1995).
- [19] K. Shiraishi, *Journal of the Physical Society of Japan*, 59(10), 3455-3458 (1990).