

Тема работы.

«Моделирование процесса эпитаксии трехмерного ансамбля квантовых точек».

Состав коллектива.

Рудин Сергей Алексеевич, Ненашев Алексей Владимирович, Зиновьев Владимир Анатольевич, Поляков Артем Юрьевич, Смагина Жанна Викторовна.

Научное содержание работы:

Постановка задачи.

Разработка теоретических подходов к моделированию гетероэпитаксиального роста с учетом деформации из-за несоответствия параметров кристаллических решеток осаждаемого материала и материала подложки.

Современное состояние проблемы.

При моделировании процесса гетероэпитаксиального роста в случае несоответствия параметров кристаллических решеток осаждаемого материала и материала подложки ключевыми факторами, влияющими на процесс зарождения и формирования островков, являются геометрия кристалла и упругая деформация. А поскольку размеры моделируемых структур сопоставимы с характерным межатомным расстоянием, то целесообразно использование атомистического подхода к моделированию. Необходимость решения задачи теории упругости для большого количества частиц (атомов) при невозможности ее распараллеливания требует больших вычислительных мощностей или существенного упрощения моделей. И если для двумерных моделей еще можно получить [1,2,3] достаточно точный результат за приемлемое время расчета, то при вводе третьего измерения количество требуемых вычислений возрастает на порядки. Поэтому в существующих трехмерных моделях гетероэпитаксиального роста [4,5,6] в основном используются простые кубические решетки и различные допущения.

Подробное описание работы, включая используемые алгоритмы.

В основе модели лежит трехмерная кристаллическая решетка типа алмаза с периодическими граничными условиями по координатам X и Y (вдоль поверхности подложки). Каждый узел может быть занят атомом кремния или германия, или быть пустым. Для учёта упругой деформации каждый атом характеризуется вектором смещения \mathbf{u}_i относительно радиус-вектора узла идеальной решётки кремния $\mathbf{r}_i^{(0)}$.

Моделирование роста производится методом Монте-Карло, заключающемся в выполнении последовательности элементарных событий, выбираемых случайным образом в соответствии с их вероятностями. Возможны события двух типов: добавление нового атома (осаждение) и диффузионный прыжок атома по поверхности. Вероятность осаждения атома вычисляется исходя из требуемой скорости роста (т.е. числа осаждаемых монослоёв в единицу времени). Вероятности диффузионных прыжков будут рассмотрены нами ниже.

Важнейшей величиной при моделировании роста является полная энергия кристалла, состоящая из энергии связи и упругой энергии. Энергия связи была взята по аналогии с моделью, разработанной Введенским и Кларке [7], а также Хансоном и Ларсоном [8]. Энергия активации $\varepsilon_i^{(0)}$ диффузионного прыжка i -го атома определялась в этих работах как

$$\varepsilon_i^{(0)} = n_{i1}E_1 + n_{i2}E_2, \quad (1)$$

где n_{i1} , n_{i2} — число 1-х и 2-х соседей i -го атома, E_1 и E_2 — численные константы. Согласно принципу детального баланса, энергия активации вида (1) соответствует следующему

выражению для энергии кристалла:

$$E^{(0)} = -N_1 E_1 - N_2 E_2, \quad (2)$$

где N_1 и N_2 — число пар соседних атомов в кристалле и число пар 2-х соседей, соответственно. Таким образом, каждая пара ближайших соседей (т. е. каждая атомная связь) даёт вклад $(-E_1)$ в энергию кристалла, а каждая пара 2-х соседей добавляет вклад $(-E_2)$.

В предлагаемой нами модели к энергии $E^{(0)}$ добавляется энергия упругой деформации E_{el} , выражаемая в виде потенциала Китинга [12]:

$$E_{el} = A \sum_i \sum_j \left((r_i - r_j)^2 - d_{ij}^2 \right)^2 + B \sum_i \sum_{j>k} \left((r_i - r_j)(r_i - r_k) + \frac{1}{3} d_{ij} d_{ik} \right)^2, \quad (3)$$

где $\mathbf{r}_i = \mathbf{r}_i^{(0)} + \mathbf{u}_i$ — радиус-вектор i -го атома, d_{ij} — равновесная длина атомной связи i - j (зависит от типа атомов), A и B — численные параметры, отвечающие за жёсткость атомных связей по отношению к растяжению/сжатию и к изменению углов между связями, соответственно. Индекс i пробегает по всем атомам кристалла, индексы j и k — по ближайшим соседям i -го атома. В качестве единицы длины удобно взять толщину монослоя кремния ($1/4$ постоянной решётки). Тогда координаты узлов идеальной решётки ($\mathbf{r}_i^{(0)}$) будут целочисленными, а равновесные длины связей выражаются как

$$d_{Si,Si} = \sqrt{3}, d_{Ge,Ge} = (1 + \delta)\sqrt{3}, d_{Si,Ge} = (1 + \delta/2)\sqrt{3}, \quad (4)$$

где $\delta = (a_{Ge} - a_{Si})/a_{Si} \approx 0.042$ — относительное рассогласование постоянных решёток германия (a_{Ge}) и кремния (a_{Si}).

Для упрощения вычислений мы пренебрегаем нелинейными эффектами теории упругости. С этой целью мы разлагаем выражение (3) по степеням \mathbf{u}_i и оставляем только члены степени не выше 2.

Вероятность диффузионного прыжка выбрана нами так, чтобы удовлетворить двум условиям: 1) вероятность прыжка зависит только от состояния ближайшего окружения узла, из которого прыгает атом (в пределах второй координационной сферы); 2) вероятности прямого ($i \rightarrow j$) и обратного ($j \rightarrow i$) прыжков должны удовлетворять принципу детального равновесия. Можно показать, что этим критериям удовлетворяет следующее выражение для вероятности прыжка $p_{i \rightarrow j}$ из узла i в узел j :

$$p_{i \rightarrow j} = v_0 \exp\left(\frac{-\varepsilon_i^{(0)} + \min[\varepsilon_{el,i}(\mathbf{r}_i)]}{kT}\right), \quad (5)$$

где v_0 — частота попыток (параметр модели); $\varepsilon_i^{(0)}$ — энергия активации без учёта деформационных эффектов, определяемая формулой (1); $\varepsilon_{el,i}(\mathbf{r}_i)$ — часть упругой энергии кристалла, относящаяся к i -му атому (т.е. часть суммы (3), содержащая только слагаемые, зависящие от \mathbf{r}_i); k — постоянная Больцмана; T — температура. (Минимизация в выражении (5) производится по \mathbf{r}_i — положению i -го атома, в то время как положения остальных атомов фиксированы.) Разрешены любые прыжки из заполненного узла в пустой в пределах 2-й координационной сферы, за исключением прыжков, приводящих к «отрыву» атома от кристалла. Критерием отсутствия «отрыва» является наличие по крайней мере двух вторых соседей у каждого атома. После прыжка $i \rightarrow j$ (или осаждения нового атома в узел j) положение атома \mathbf{r}_j выбирается случайно в соответствии с распределением Больцмана; плотность распределения $f(\mathbf{r}_j)$ равна

$$f(\mathbf{r}_j) = F \exp\left(-\frac{\varepsilon_{el,j}(\mathbf{r}_j)}{kT}\right), \quad (6)$$

где F — нормировочный множитель.

Этого, однако, ещё недостаточно для моделирования роста. Дело в том, что изменения, происходящие на поверхности кристалла, влияют на упругую деформацию внутри кристалла. Таким образом, модель гетероэпитаксиального роста должна обеспечивать «отклик» положений атомов в глубине кристалла на элементарные события — диффузионные прыжки и добавление новых атомов. Стандартный способ обеспечения такого «отклика» заключается в решении задачи теории упругости на каждом шаге Монте-Карло, т. е. в вычислении новых положений всех атомов после каждого элементарного события. Мы предлагаем альтернативный подход, основанный на локальных манипуляциях, удовлетворяющих принципу детального равновесия. А именно, после каждого элементарного события выбираются случайным образом N атомов кристалла (где N — настраиваемый параметр модели) и каждый из них смещается в новое положение, выбранное случайно в соответствии с распределением (6). Независимо от значения параметра N , каждый шаг данного алгоритма (кроме осаждения атомов) удовлетворяет принципу детального равновесия. Поэтому в отсутствие внешних воздействий (т. е. поступления новых атомов) моделируемая система будет гарантированно стремиться к термодинамическому равновесию при любом N . В случае же притока новых атомов, N следует выбирать достаточно большим, чтобы обеспечить приемлемую скорость «отклика» объёма кристалла на изменения, происходящие на поверхности.

Таким образом, предлагаемый алгоритм моделирования роста кристалла состоит из следующих шагов:

1. Создание начальной конфигурации атомов и вычисление вероятностей всех возможных элементарных событий (осаждения или прыжка атома) согласно (5).
2. Случайный выбор элементарного события, в соответствии с найденными вероятностями, и выполнение этого события. Новое положение атома после прыжка или осаждения назначается в соответствии с распределением (6).
3. Случайное смещение N атомов кристалла в соответствии с распределением (6).
4. Обновление вероятностей элементарных событий, согласно (5), и возврат к пункту 2.

Данный алгоритм является эффективным (по сравнению со стандартным методом учёта упругой деформации в процессе роста), хорошо масштабируемым и подходящим для распараллеливания. Первое свойство вытекает из того, что в нашем алгоритме не требуется полного решения задачи теории упругости на каждом шаге Монте-Карло. Второе и третье свойства следуют из локальности всех входящих в алгоритм операций. Действительно, вычисление вероятности события по формуле (5) требует обработки информации о состоянии лишь небольшого фрагмента кристалла, состоящего из 16 атомов или меньше (положение атома до прыжка + его 1-е и 2-е соседи). То же относится и к выбору положения атома согласно распределению (6). Таким образом, затраты машинного времени на обработку одного элементарного события практически не зависят от размера моделируемой структуры.

Полученные результаты.

Модельные расчеты воспроизводят основные эффекты на начальных стадиях

гетероэпитаксиального роста, такие как переход к трехмерному росту по механизму Странского-Крастанова (рис. 1), вертикальное упорядочение наноструктур (рис. 2) и уменьшение критической толщины смачивающего слоя в многослойных гетероструктурах. Проведены эксперименты по гетероэпитаксиальному росту на предварительно структурированных подложках при разной температуре. Например, в случае роста на подложке с ямками в виде перевернутого конуса (рис. 3) видно, что при 400° островки растут как в ямках, так и между ними. При 425° и 450° островки растут только над ямками, причем чем выше температура, тем больше материала скапливается над ямкой, что объясняется увеличением диффузионной длины адатомов и они успевают встроиться в островок. Проведены первые тесты распараллеленного алгоритма, которые наглядно показали его преимущества по сравнению с однопоточной версией. Так, структура размерами 27x27 нм (105000 → 145000 атомов) в однопоточной версии рассчитывалась ~260 ч, тогда как расчет в 4 раза бóльшей площади (420000 → 580000 атомов) в параллельной версии занял всего ~70 ч (рис. 4). Данная модель может быть использована для выяснения механизмов упорядоченного роста трёхмерных островков не только в системе Ge/Si, но и в других гетероэпитаксиальных системах.

Иллюстрации, визуализация результатов.

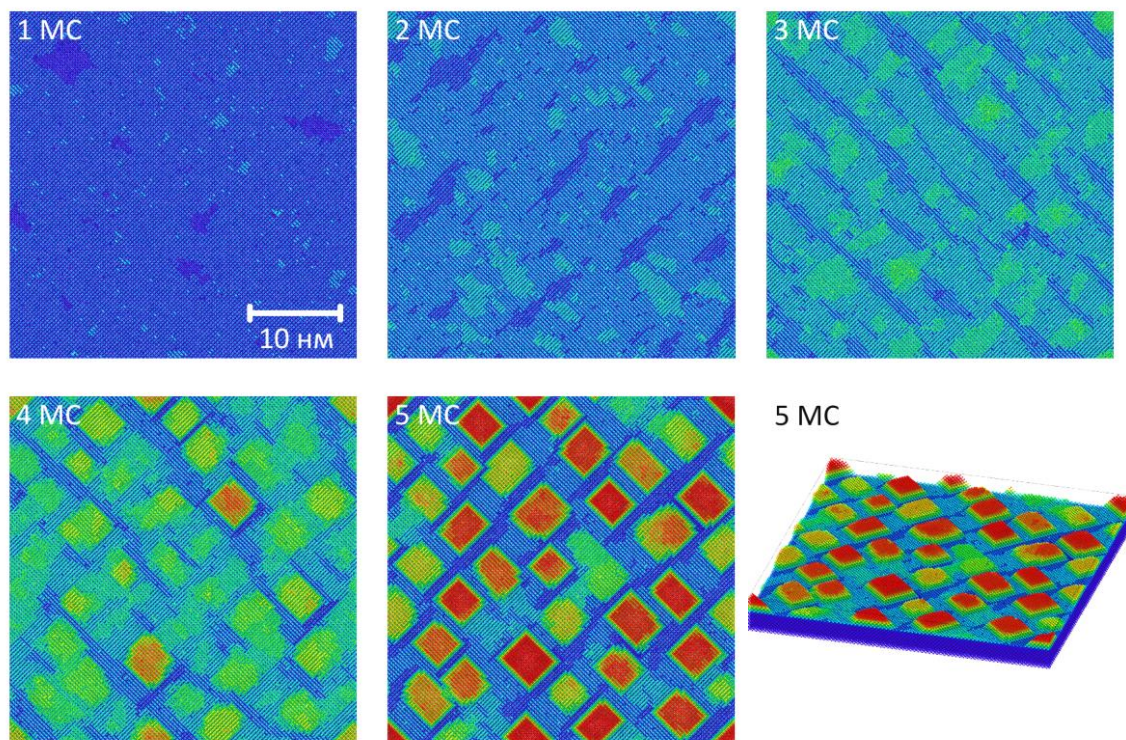


Рис. 1. Эволюция поверхности кристалла в процессе моделирования роста Ge на Si(100) в следующих условиях: температура 400° С, скорость осаждения Ge 0.1 MC/с. Количество осажденного германия: 1-5 MC. Цвет соответствует высоте рельефа поверхности.

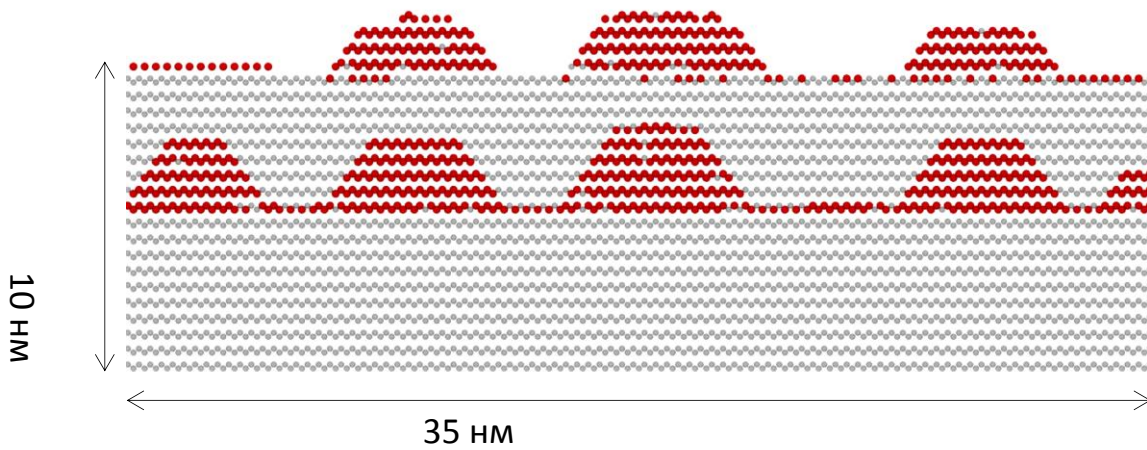


Рис. 2. Двухслойная структура Si/Ge/Si/Ge с вертикально совмещенными трехмерными островками германия. Показано сечение структуры плоскостью (110). Параметры роста те же, что на рис. 1. Количество осажденного Ge — 6 МС на каждом слое островков. Толщина закрывающего слоя Si — 30 МС. Красным цветом показаны атомы германия, серым — атомы кремния.

Подложка перед осаждением Ge.

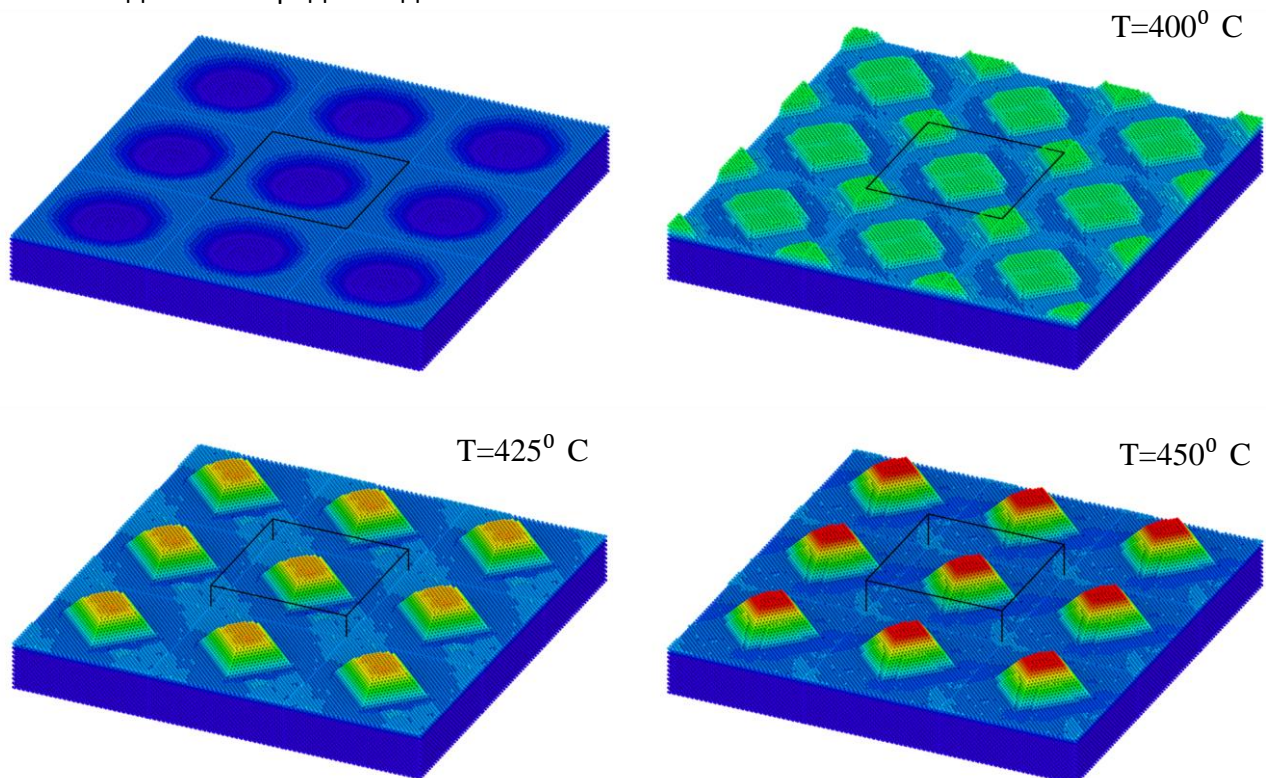


Рис. 3. Рост Ge островков в ямках в виде перевернутого конуса, предварительно созданных на поверхности подложки Si(100). При повышении температуры меняется распределение материала на поверхности. Угол наклона стенок ямок $\sim 10^\circ$, подложка 15x15 нм, скорость осаждения Ge 0.1 МС, осаждено 5 МС Ge. Моделировалась только центральная часть, обозначенная черным прямоугольником. Цвет соответствует высоте рельефа поверхности.

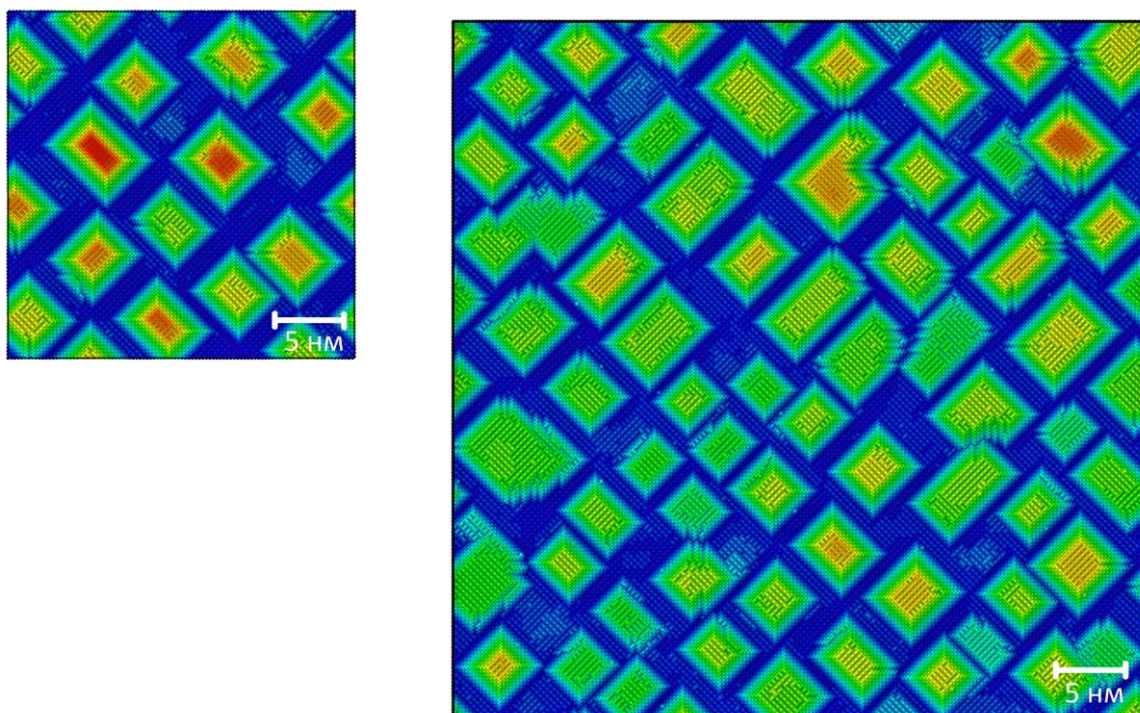


Рис. 4. Сравнение результатов моделирования структур, рассчитанных в однопоточной (слева) и распараллеленной (справа) версии алгоритма. Параметры роста: температура 400°C, скорость осаждения Ge 0.1 МС/с. Количество осажденного германия: 8 МС. Цвет соответствует высоте рельефа поверхности.

Эффект от использования кластера в достижении целей работы.

С помощью вычислительного кластера удалось сократить время расчета до приемлемых значений. Возможность одновременного запуска нескольких задач позволяет моделировать сразу ряд структур с различными параметрами. Первые тесты распараллеленного алгоритма наглядно показали его преимущества по сравнению с однопоточной версией.

Перечень публикаций, содержащих результаты работы.

С.А. Рудин, В.А. Зиновьев, А.В. Ненашев, А.Ю. Поляков, Ж.В. Смагина, А.В. Двуреченский, "Трехмерная модель гетероэпитаксиального роста германия на кремнии," *Автометрия*, **49(5)**, 50-56 (2013).

<http://link.springer.com/article/10.3103/S8756699013050063>

А.В. Двуреченский, А.А. Bloшкин, В.А. Зиновьев, А.В. Ненашев, П.Л. Новиков, А.Ю. Поляков, С.А. Рудин, Ж.В. Смагина, А.И. Якимов. "Формирование и электронные свойства квантовых точек Ge в матрице Si- моделирование на супер-ЭВМ," Труды 1-й Российско-Белорусской научно-технической конференции «Элементная база отечественной радиоэлектроники», Нижний Новгород, 11-14 сентября, т.1, с.18-19 (2013).

A.V. Dvurechenskii, Zh.V. Smagina, N.P.Stepina, A.V. Nenashev, P.L. Novikov, S.A. Rudin.

"Nucleation and epitaxial growth of Ge nanocrystals on pattern Si surface with ion irradiation," 11th Int. Conf. «E-MRS 2012 Fall Meeting», Warsaw, September 17-21, H-VII-4 (2012).

Zh.V.Smagina, A.V.Dvurechenskii, P.L.Novikov, A.V.Nenashev, N.P.Stepina, S.A.Rudin.

"Epitaxial growth of Ge nanocrystals on pattern Si surface with ion irradiation," IV Всероссийская конференция Физические и физико-химические основы ионной имплантации и Международная молодёжная конференция Радиационно-термические эффекты и процессы в неорганических материалах, Новосибирск, 23-26 октября, с. 59 (2012).

А.В. Ненашев, Ж.В. Смагина, С.А. Рудин, А.В. Двуреченский. "Эпитаксиальный рост nanoостровков Ge/Si в условиях ионного облучения," Труды XVII международного симпозиума «Нанопизика и наноэлектроника», Нижний Новгород, Март 11-15, с. 538-539 (2013).

S.A. Rudin, A.V.Nenashev, A.Y. Polyakov, Zh.V. Smagina, A.V. Dvurechenskii. "3D Monte Carlo Simulation of strained heteroepitaxial growth of Ge on Si(100)," The 7th Russian-French Seminar on Nanosciences and Nanotechnologies. Novosibirsk, 3-6 Jule, p. 70 (2013).

Zh. Smagina, A. Dvurechenskii, A. Nenashev, P. Novikov, S. Rudin. N. Stepina, N. Filippov. "Nucleation and growth of Ge nanoislands on patterned Si substrates prepared by ion-irradiation," Abstract Book. 10th Int. Conf. «Nanosciences & Nanotechnologies (NN13)», Thessaloniki, Greece, July 6-13, p. 107 (2013).

S. A. Rudin., A. V. Nenashev, V. A. Zinoviev, A. Y. Polyakov, Zh. V. Smagina and A. V. Dvurechenskii. "Three-dimensional model of heteroepitaxial growth of germanium on silicon," Abstract Book. 8th Int. Conf. «Quantum Dots 2014 (QD 2014)», Pisa, Italy, May 11-16, p. 91 (2014).

Ваши впечатления от работы вычислительной системы и деятельности ИВЦ НГУ, а также Ваши предложения по их совершенствованию.

Работа вычислительного кластера способствует получению новых результатов.

Литература.

- [1] **Ж. В. Смагина, В. А. Зиновьев, А. В. Ненашев и др.**, "Самоорганизация наноостровков германия при импульсном облучении пучком низкоэнергетических ионов в процессе гетероэпитаксии структур Ge/Si(100)," Журнал экспериментальной и теоретической физики **133** (3), 593-604 (2008).
- [2] **A. Baskaran, J. Devita, P. Smereka**, "Kinetic Monte Carlo Simulation of Strained Heteroepitaxial Growth with Intermixing," Continuum Mechanics and Thermodynamics **22** (1), 1-26 (2010).
- [3] **M. Biehl, F. Much and C. Vey**, "Off-Lattice Kinetic Monte Carlo Simulations of Strained Heteroepitaxial Growth," International Series of Numerical Mathematics **149**, 41-56 (2005).
- [4] **T. P. Schulze and P. Smereka**, "Kinetic Monte Carlo Simulation of Heteroepitaxial Growth: Wetting Layers, Quantum Dots, Capping, and Nanorings," Physical Review B **86** (23), 235313 (2012).
- [5] **P. Nath, M. Ranganathan**, "Kinetic Monte Carlo Simulations of Heteroepitaxial Growth with an Atomistic Model of Elasticity," Surface Science **606**, 1450-1457 (2012).
- [6] **P. Petrov and W. Miller**, "Kinetic Monte Carlo Simulation of the Wetting Layer in Stranski-Krastanov Heteroepitaxial Growth," Computational Materials Science **60**, 176-180 (2012).
- [7] **D. D. Vvedensky, S. Clarke**, "Recovery Kinetics During Interrupted Epitaxial Growth," Surface Science **255** (3), 373-389 (1990).
- [8] **G. V. Hansson, M. I. Larson**, "Initial Stages of Si Molecular Beam Epitaxy on Si(100) Studied with Reflection High-Energy Electron Diffraction Intensity Measurements and Monte Carlo Simulation," Surface Science **321** (3), L255-L260 (1994).