

Анализ закономерностей роста при гетероэпитаксии кремния на сапфире

© Д.А. Павлов, П.А. Шилияев, А.В. Пирогов[¶], Н.О. Кривулин^{¶¶}, А.И. Бобров, М.Д. Пегасина

Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
603950 Нижний Новгород, Россия

(Получена 6 августа 2012 г. Принята к печати 13 августа 2012 г.)

На начальных стадиях гетероэпитаксии кремния на сапфире экспериментально обнаружено образование наноструктур двух форм: куполообразных и в форме усеченного купола. Получены снимки атомарного разрешения островков кремния на сапфире методом просвечивающей электронной микроскопии. В работе предложена модель, объясняющая нестабильность формы островков и их переход от изотропности к анизотропии формы, а также описывающая эволюцию средних геометрических размеров островков с увеличением времени роста. Показано, что зависимость диаметра от высоты близка к линейной, но при больших размерах островков наблюдается значительное расхождение с экспериментальными данными вследствие процесса коалесценции, который не учитывается моделью.

1. Введение

Структуры на основе кремния на сапфире (КНС) имеют ряд преимуществ по сравнению со структурами, создаваемыми по технологии объемного кремния, и структурами кремний на оксиде. Такие структуры имеют достаточно высокую радиационную и термическую стойкость, что так необходимо в космической, военной отраслях, а также, например, в атомной энергетике. С их применением достигается высокая степень диэлектрической изоляции элементов БИС, СБИС и других полупроводниковых приборов, уменьшается влияние паразитных емкостей, повышается степень интеграции микросхем, уменьшаются токи утечки, увеличивается их быстродействие [1]. Все это определяет перспективность структур КНС в области микроэлектроники. Также сапфир является хорошей оптической средой, что может быть применено в оптоэлектронике.

Основным способом получения КНС является метод газофазной эпитаксии (ГФЭ). Но при толщинах слоев кремния на сапфире меньше или порядка 300 нм высокая концентрация дефектов (в основном двойников [2]) не позволяет применять такие структуры в микроэлектронике, так как уже при таких толщинах на электрофизические, функциональные и надежность свойства элементов СБИС значительное влияние оказывает дефектность пленки. Также при газофазной эпитаксии имеет место быть легирование кремния атомами алюминия, что тоже вносит негативный вклад в использование данного метода получения.

Существует альтернативная технология получения ультратонких слоев КНС толщиной порядка 100 нм, так называемая технология UTSi. Но UTSi — сверхдорогая, высокотехнологичная, патентованная за границей технология, что затрудняет ее применение в нашей стране. Поэтому в России существует проблема получения кристаллически-совершенных ультратонких пленок КНС.

Альтернативой UTSi и ГФЭ является метод молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ). Показано, что пленки КНС, получаемые методом МЛЭ, имеют плотность дефектов значительно меньшую, чем в ГФЭ-образцах, и при толщинах кремниевого слоя 100 нм эти структуры подходят для производства СБИС [2]. Параметры данной методики позволяют получать атомно-гладкие структурно-совершенные чистые пленки. Для внедрения этой методики требуется преодолеть некоторые технологические трудности и определить оптимальные параметры для роста кремния.

В ходе исследований было обнаружено, что при одинаковых условиях роста, но при различном времени осаждения форма островков меняется [3]. При малых временах роста островки симметричные (назовем их изотропными), а с увеличением продолжительности процесса их форма становится вытянутой в одном из латеральных измерений (назовем их анизотропными). Возник вопрос о причинах такого поведения гетероэпитаксиальной системы. Причину было решено искать из энергетических соображений.

Цель данной работы — установление физических закономерностей роста островков кремния на сапфире на начальных стадиях молекулярно-лучевой гетероэпитаксии.

2. Методика эксперимента

Слои кремния на сапфире изготавливались методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Температура роста 550–750°C, время роста 15–120 с. Методика получения образцов описана в работе [3].

Морфология поверхности исследовалась методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) при помощи сканирующего зондового микроскопа Solver Pro (производство фирмы NT-MDT, Зеленоград). Исследования проводились в контактном и полуконтактном режимах АСМ с помощью зондов CSG10 и вискерсов NCS05-20°.

Подготовка образцов для ПЭМ осуществлялась при помощи специальной оснастки фирмы Gatan (США).

[¶] E-mail: pirogov@phys.unn.ru

^{¶¶} E-mail: krivulin@phys.unn.ru

Исследование поперечного среза осуществлялось при помощи просвечивающего электронного микроскопа JEM-2100F (производство фирмы JEOL, Япония).

3. Теоретическая модель

3.1. Аппроксимация формы островков усеченной пирамидой

Упругие напряжения, возникающие вследствие достаточно большого рассогласования решеток кремния и сапфира в различных измерениях (12.5 и 4.2%), релаксируют с образованием островков кремния [4,5].

Будем считать, что релаксация происходит в латеральных измерениях x и y , а в направлении z релаксации не происходит. Энергию отдельного островка можно записать следующим образом [6]:

$$E = E_s + E_e + E_{el}, \quad (1)$$

где E_s — поверхностная энергия и энергия интерфейса, E_e — энергия граней [7], E_{el} — изменение энергии вследствие упругой релаксации.

Рассмотрим сначала энергию упругой релаксации E_{el} . Из-за анизотропного рассогласования решеток кремния и R -среза сапфира эпитаксиальные слои кремния на сапфире будут сильно напряжены. Это рассогласование вызывает силу упругости, которая пропорциональна напряжениям несоответствия и воздействует на периферию островка [8–10]. Точная аппроксимация энергии упругой релаксации была представлена в работе [11], она достаточно хорошо описывает поведение островков. С учетом анизотропии системы энергия упругой релаксации может быть записана [11]:

$$E_{el} = -\Lambda h^2 \left[b \ln \left(\frac{a}{\Phi h} \right) + a \ln \left(\frac{b}{\Phi h} \right) \right], \quad (2)$$

где a и b — латеральные размеры; h — высота, $\Lambda = f^2(1 - \nu)/\pi\mu$; μ — деформация сдвига; ν — коэффициент Пуассона; $\Phi = e^{3/2} \text{ctg } \theta$ — параметр, связанный с размерами и геометрией огранки островка; $f = (\sigma_a + \sigma_b)/2$ — монополю эластичных сил, приложенных к периметру островка для гетероэпитаксиальной системы [10]; σ_a и σ_b — xx - и yy -компоненты двумерного тензора напряжений. Мы пренебрегли вариацией σ как релаксацией в направлении z .

Энергия ребер E_e , которая всегда положительна, не учитывалась в работе [11]. Позднее это слагаемое было учтено Шукиным в работах [7,12]. Это слагаемое может быть учтено в E_{el} путем перенормировки Φ :

$$E_e + E_{el} = -\Lambda h^2 \left[b \ln \left(\frac{a}{\Theta h} \right) + a \ln \left(\frac{b}{\Theta h} \right) \right], \quad (3)$$

где $\Theta = e^{\beta-3/2} \text{ctg } \theta$.

Выражение (3) можно преобразовать к следующему виду с учетом, что $a \gg h$ и $b \gg h$:

$$E_e + E_{el} = \Lambda D h^2 \left[\left(c - \frac{1}{c} \right) \ln(c) - \left(c + \frac{1}{c} \right) \ln \left(\frac{D}{\Theta h} \right) \right], \quad (4)$$

где $D = (ab)^{1/2}$ — эффективный диаметр островка, $c = (b/a)^{1/2}$ — геометрическое соотношение сторон островка.

Дополнительная поверхностная энергия может быть записана следующим образом:

$$E_s = -\gamma_1 ab - \Gamma_1(a + b)h, \quad (5)$$

где $\gamma_1 = u_s - u_t - u_i$ и $\Gamma_1 = (u_t + u_s - u_i) \text{ctg } \theta - 2c \text{sc} \theta$. Здесь u_s, u_e, u_t и u_i — поверхностная энергия подложки (на единицу площади), боковых граней, верхней грани островка и энергия интерфейса. Энергией интерфейса кремний–сапфир можно пренебречь по сравнению с остальными слагаемыми. Поверхностная энергия подложки из сапфира равна 6 Дж/м² [6], а поверхностная энергия боковых граней и верхней грани для кремния равна 2 Дж/м² [13]. В данном рассмотрении предполагаем, что углы наклона для всех боковых граней равны.

Упругим взаимодействием между островками пренебрегаем. Тогда, комбинируя (4) и (5), получаем следующее выражение:

$$E = -\gamma_1 D^2 - \Gamma_1 \left(c + \frac{1}{c} \right) h D + \Lambda D h^2 \left[\left(c - \frac{1}{c} \right) \ln(c) - \left(c + \frac{1}{c} \right) \ln \left(\frac{D}{\Theta h} \right) \right]. \quad (6)$$

Введем новый параметр, характеризующий соотношение сторон островка $\psi = \arctg(b/a)$. То есть островки симметричны, когда $\psi = 45^\circ$.

Критический диаметр островков, при котором происходит переход от изотропии к анизотропии в их форме, находится из выражения

$$\frac{d^2 E}{d\psi^2} = 0 \quad \text{при} \quad \psi = 45^\circ. \quad (7)$$

Отсюда

$$D_c = e^2 \theta h \exp \left(\frac{-\Gamma_1}{\Lambda h} \right). \quad (8)$$

С учетом (8) для размера $D = \alpha D_c$ выражение (6) запишется в виде

$$E = -\gamma_1 D^2 + \Lambda D h^2 \left[\left(c - \frac{1}{c} \right) \ln c - \left(c + \frac{1}{c} \right) (2 + \ln \alpha) \right]. \quad (9)$$

Первое слагаемое не зависит от ψ , поэтому можно рассматривать зависимость $E + \gamma_1 D^2$ от ψ для различных размеров островка D .

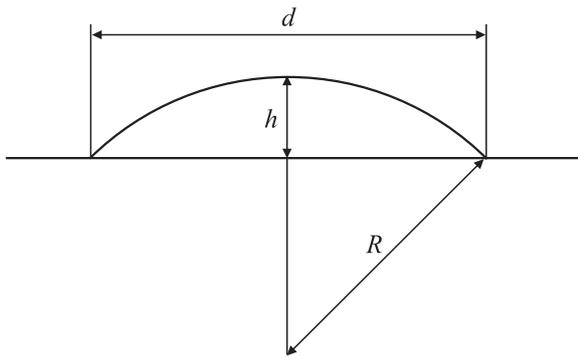


Рис. 1. Схематичный вид островка.

3.2. Аппроксимация формы островков сегментом сферы

Форму островков мы можем аппроксимировать сегментом сферы радиуса R (рис. 1).

По аналогии с моделью, представленной выше, энергию отдельного островка можно записать следующим образом:

$$E = E_s + E_{el}, \quad (10)$$

где E_s — поверхностная энергия и энергия интерфейса, E_{el} — изменение энергии вследствие упругой релаксации.

Исходя из формы островков дополнительная поверхностная энергия может быть записана следующим образом:

$$E_s = \frac{\pi}{4} [u_{\text{sap}} d^2 - u_{\text{Si}} (d^2 + 4h^2)], \quad (11)$$

где d — диаметр островка, h — высота островка, u_{sap} — поверхностная энергия сапфировой подложки (на единицу площади), u_{Si} — поверхностная энергия кремния. Поверхностная энергия подложки из сапфира порядка 6 Дж/м^2 , а поверхностная энергия для кремния порядка 2 Дж/м^2 .

Рассмотрим энергию упругой релаксации E_{el} . Принимая во внимание анизотропное рассогласование решеток кремния и R -среза сапфира, эпитаксиальные слои Si на сапфире будут сильно напряжены. Будем считать, что напряжения в островках кремния спадают по линейному закону (12) или по экспоненциальному закону (13):

$$E_{el} = -\frac{\pi}{12} \Lambda \kappa h (d^2 + h^2), \quad (12)$$

$$E_{el} = \Lambda \pi h (A h^2 + B d^2), \quad (13)$$

где $\Lambda = f^2(1 - \nu)/\pi\mu$; μ — деформация сдвига; ν — коэффициент Пуассона; $f = (\sigma_a + \sigma_b)/2$ — монополю эластических сил, приложенных к периметру островка для гетероэпитаксиальной системы; σ_a и σ_b — xx - и yy -компоненты двумерного тензора напряжений; κ — подгоночный коэффициент, $A = \frac{2}{k^3} (1 - e^{-k}) - \frac{1}{k^2} (1 + e^{-k})$, $B = \frac{1}{4k^2} (1 - e^{-k}) - \frac{1}{4k}$.

Упругим взаимодействием между островками пренебрегаем. Получаем следующие выражения для энергии островка:

$$E = \frac{\pi}{4} [u_{\text{sap}} d^2 - u_{\text{Si}} (d^2 + 4h^2)] - \frac{\pi}{12} \Lambda \kappa h (d^2 + h^2), \quad (14)$$

$$E = \frac{\pi}{4} [u_{\text{sap}} d^2 - u_{\text{Si}} (d^2 + 4h^2)] + \Lambda \pi h (A h^2 + B d^2). \quad (15)$$

Путем минимизации энергии островка получаем следующие выражения:

$$d = \sqrt{3h^2 + \frac{24u_{\text{Si}}}{\Lambda \kappa} h}, \quad (16)$$

$$d = \sqrt{12h^2 \frac{A}{B} - \frac{8u_{\text{Si}}}{\Lambda B} h}. \quad (17)$$

Выражения (16) и (17) дают зависимость диаметра островка от высоты.

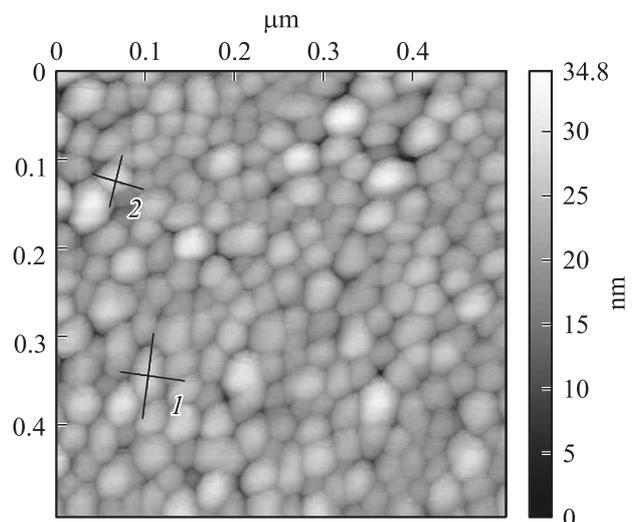
4. Результаты и их обсуждение

На рис. 2 показана топограмма образца КНС, выращенного при температуре 750°C в течение 2 мин. Цифрами „1“ и „2“ обозначены анизотропный (вытянутый в одном из измерений) и изотропный (симметричный) островки соответственно.

Также измерена высота и эффективный диаметр еще нескольких изотропных и анизотропных по форме островков. Полученные данные находятся в полном согласии с теоретической моделью, т. е. каждый тип островков располагается в своей области графика зависимости, описываемой выражением (8) (рис. 3).

Таким образом, построенная теоретическая модель способна описать переход от изотропности к анизотропии формы островков.

Образец КНС, выращенный при температуре 650°C и времени роста 45 с, был успешно препарирован для

Рис. 2. Топограмма образца КНС, выращенного при 750°C в течение 2 мин.

ПЭМ. На рис. 4 и рис. 5 представлены наноструктуры кремния на сапфире в атомарном разрешении.

Из данных рисунков можно предположить, что островки КНС, достигая высоты примерно 8 нм, начинают преимущественно расти в латеральных размерах и приобретают форму усеченного купола. Данные о форме

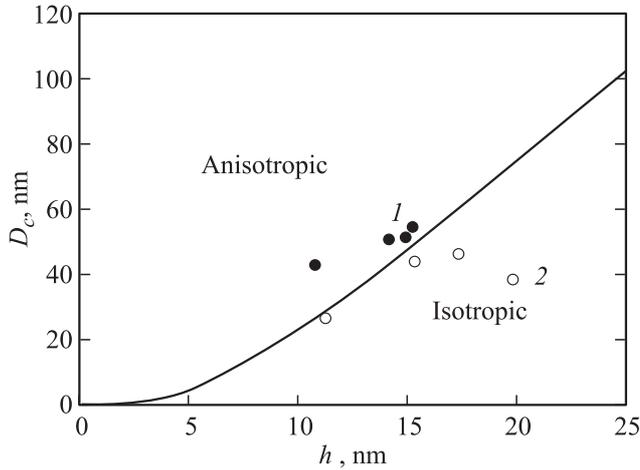


Рис. 3. Сопоставление экспериментальных данных с моделью.

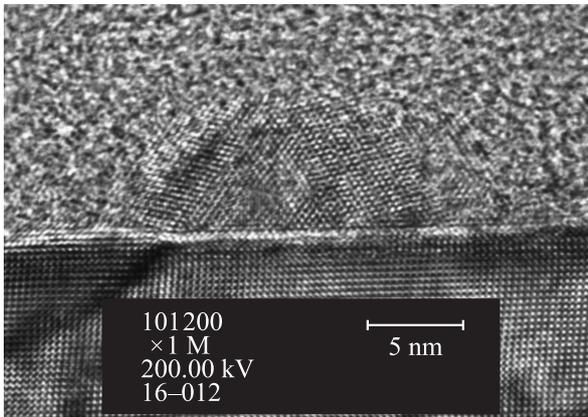


Рис. 4. Изображение высокого разрешения островка КНС куполообразной формы.

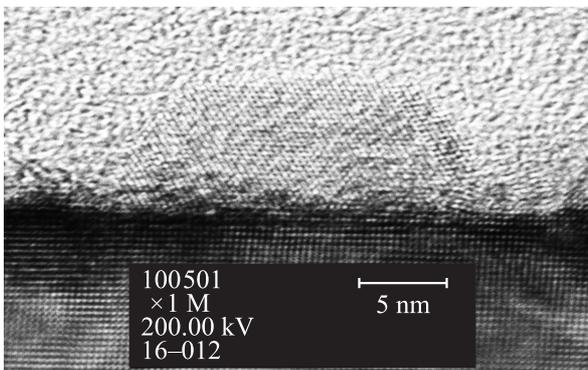


Рис. 5. Изображение высокого разрешения островка КНС формы усеченного купола.

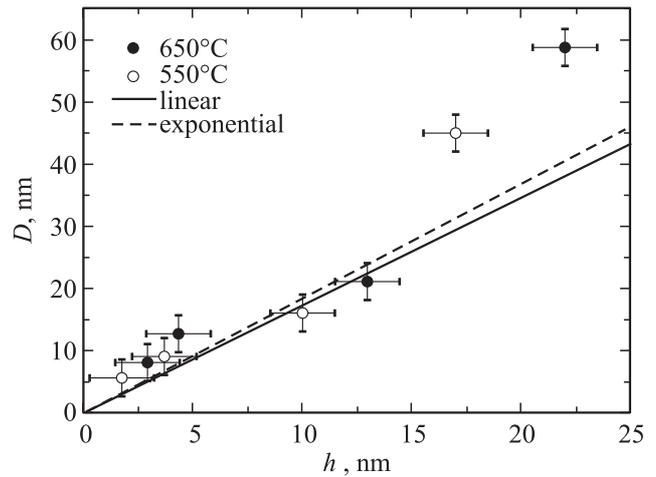


Рис. 6. Зависимости диаметра островков от высоты при температурах роста 550 и 650°C в случае линейного и экспоненциального спада напряжений.

и размерах островков, полученные посредством ПЭМ, коррелируют с АСМ-данными.

На рис. 6 построены зависимости диаметра островков кремния от высоты в случае линейного спада напряжений (сплошная линия) и экспоненциального спада напряжений (штриховая линия), а точками указаны практические соотношения средних геометрических размеров для серии образцов, полученных при температурах роста 650°C и 550°C соответственно. Время роста, соответствующее средним размерам островков, — 15, 30, 60, 120 с. Опытным путем установлено, что при подгонном коэффициенте $\kappa = 1.1$ теоретическая прямая в случае экспоненциального спада напряжений наиболее правильно описывает зависимость высоты от латерального размера.

Как видно из рисунков, зависимость диаметра от высоты близка к линейной, но при больших размерах островков за счет коалесценции и разрастания точки не ложатся на прямую.

5. Заключение

В работе исследованы начальные стадии роста при гетероэпитаксии кремния на сапфире методом молекулярно-лучевого осаждения. Рассогласование кристаллических решеток кремния и сапфира вызывает напряжения в растущем слое кремния, которые могут релаксировать при помощи образования трехмерных островков. В ходе работы было произведено исследование формы островков методами АСМ и ПЭМ и установлено, что островки имеют куполообразную форму или форму усеченного купола. Достигая высоты примерно 8 нм куполообразные островки КНС начинают преимущественно расти в латеральных размерах и приобретают форму усеченного купола.

Построена теоретическая модель, которая объясняет нестабильность формы островков и их переход от изо-

тропности к анизотропии формы, а также описывает эволюцию геометрических размеров островков с увеличением времени роста. Зависимость диаметра островков от высоты на начальных стадиях роста близка к линейной, что хорошо описывает модель, учитывающая экспоненциальный спад напряжений в островке, но при больших размерах островков за счет коалесценции и разрастания точки не ложатся на прямую.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 12-02-31686).

Список литературы

- [1] А.С. Адонин. Электрон. компоненты, № 3, 1 (2000).
- [2] E.D. Richmond, M.E. Twigg, S. Qadri, J.B. Pellegrino, M.T. Duffey. Appl. Phys. Lett., **56** (25), 2551 (1990).
- [3] П.А. Шилияев, Д.А. Павлов, Е.В. Коротков, М.В. Треушников. Материалы электрон. техники. № 2, с. 62–66 (2008).
- [4] Д.А. Павлов, П.А. Шилияев, Е.В. Коротков, А.В. Пирогов. Вестн. ННГУ, № 1, 41 (2011).
- [5] Д.А. Павлов, П.А. Шилияев, Е.В. Коротков, Н.О. Кривулин. Письма ЖТФ, **36** (12), 16 (2010).
- [6] J.C. Nie, H. Yamasaki, Y. Mawatari. Phys. Rev. B, **70**, 195 421 (2004).
- [7] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, D. Bimberg. Phys. Rev. Lett., **75**, 2968 (1995).
- [8] O.L. Alerhand, D. Vanderbilt, R.D. Meade, J.D. Joannopoulos. Phys. Rev. Lett., **61**, 1973 (1988).
- [9] Adam Li, Feng Liu, M.G. Lagally. Phys. Rev. Lett., **85**, 1922 (2000).
- [10] M.T. Middel, H.J.W. Zandvliet, B. Poelsema. Phys. Rev. Lett., **88**, 196 105 (2002).
- [11] J. Tersoff, R.M. Tromp. Phys. Rev. Lett., **70**, 2782 (1993).
- [12] V.A. Shchukin, A.I. Borovkov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg. Phys. Rev. B, **51**, 10 104 (1995).
- [13] A.A. Stekolnikov, J. Furthmuller, F. Bechstedt. Phys. Rev. B, **65**, 115 318 (2002).

Редактор Т.А. Полянская

Analysis of growth dependencies of the heteroepitaxy of silicon-on-sapphire

D.A. Pavlov, P.A. Shilyaev, A.V. Pirogov, N.O. Krivulin, A.I. Bobrov, M.D. Pegasina

Lobachevsky State University of Nizhni Novgorod,
603950 Nizhni Novgorod, Russia.

Abstract In the initial stages of heteroepitaxy of silicon-on-sapphire it was discovered the formation of nanoislands of two forms: dome-shaped and truncated dome. The atomic resolution images of the silicon islands on sapphire were obtained by transmission electron microscopy. In this paper it was proposed the model explained the instability of the islands shape, transition from isotropy to anisotropy shape and evolution of island size in growth time. It was shown that the dependence of the islands diameter on the it height was approximately linear, but in case of the large size of islands there was a significant difference with the experimental data due to the coalescence process, which was not considered in the model.