

06

## Температурная зависимость морфологии ансамблей нанокластеров в системе Ge/Si(100)

© В.Г. Дубровский, В.М. Устинов, А.А. Тонких,  
В.А. Егоров, Г.Э. Цырлин, Р. Werner

Институт аналитического приборостроения РАН, С.-Петербург  
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург  
Max-Planck Institut für Mikrostrukturphysik, Halle, Germany

В окончательной редакции 18 февраля 2003 г.

Представлены результаты теоретических расчетов и исследований методом атомно-силовой микроскопии зависимости морфологических свойств ансамблей hut-кластеров в гетероэпитаксиальной системе Ge/Si(100) от температуры поверхности. Показано, что при увеличении температуры поверхности от 420 до 500°C латеральный размер нанокластеров с квадратным основанием, выращенных при одинаковой скорости роста Ge (0.0345 монослоя в секунду), при заполнении 6.2 монослоя увеличивается от 12 до 20 nm, а поверхностная плотность падает от  $5.6 \cdot 10^{10}$  до  $1.5 \cdot 10^{10}$  1/cm<sup>2</sup>. Полученные результаты показывают достаточно хорошее совпадение предсказаний кинетической модели с экспериментальными данными.

Процессы формирования ансамблей когерентных островков в полупроводниковых гетероэпитаксиальных системах представляют большой интерес как с фундаментальной точки зрения, так и в связи с их использованием для создания плотных массивов квантовых точек [1]. Пространственное ограничение носителей заряда по трем направлениям приводит к атомно-подобному спектру энергетических состояний квантовых точек, что делает перспективным их применение в оптоэлектронике. За счет эффектов размерного квантования длина волны светоизлучающих устройств с активной областью на основе гетероструктур с квантовыми точками зависит от латерального размера островков, в то время как поверхностная плотность определяет интенсивность излучения. Это объясняет актуальность исследования зависимости морфологии ансамблей квантовых точек от технологически контролируемых параметров их выращивания [2]. Целью настоящей

работы является исследование зависимости латерального размера и поверхностной плотности квантовых точек от температуры на начальном этапе роста. В качестве модельной была выбрана система Ge/Si (100), перспективная с точки зрения создания оптоэлектронных устройств на кремниевой базе [3].

Кинетическая модель формирования когерентных островков на начальном этапе роста [4,5] дает следующую качественную картину процесса роста. Двумерная поверхность стабильна при толщине смачивающего слоя, меньшей равновесной толщины, которая определяется в соответствии с критерием Мюллера–Керна [6]:  $h_{eq} = k_0 \ln[\Phi/h_0(1 - z(\theta))\lambda\varepsilon_0^2]$ . Здесь  $k_0$  — коэффициент релаксации сил притяжения к подложке,  $\Phi$  — плотность смачивающей энергии на поверхности подложки,  $z(\theta)$  — зависящая от контактного угла  $\theta$  относительная релаксация упругой энергии в островке [7],  $\lambda$  — модуль упругости депозита и  $\varepsilon_0$  — рассогласование решетки. Максимальная интенсивность нуклеации островков наблюдается при максимальной толщине смачивающего слоя  $h_c = (1 + \xi_*)h_{eq}$  в момент времени  $t_* = \xi_* t_{eq}$ , где  $t_{eq} = h_{eq}/V$  — время роста равновесного смачивающего слоя,  $V$  — скорость роста в монослоях в секунду (ML/s) и  $\xi_* = 0.24A^{3/2}/B \ln^{1/2} Q$  — максимальная степень метастабильности. Константы  $A \equiv (\sigma(\theta)/\cos\theta - \sigma(0))\alpha^2(\theta)l_0^2/k_B T$  и  $B \equiv (h_{eq}/k_0)(1 - z(\theta))\lambda\varepsilon_0^2 h_0 l_0^2/k_B T$  определяются соответственно отношением дополнительной поверхностной энергии островка и разности упругой энергии в островке и в смачивающем слое к тепловой энергии,  $\sigma(\theta)$  — плотность поверхностной энергии для боковой грани,  $\sigma(0)$  — плотность поверхностной энергии в плоскости поверхности подложки,  $l_0$  — расстояние между атомами на поверхности,  $T$  — температура поверхности,  $\alpha(\theta) \equiv (6h_0 \cotan\theta/l_0)^{1/3}$  — геометрический фактор и  $h_0$  — высота монослоя (МС). Если основным механизмом роста островков является диффузионный поток материала из смачивающего слоя в островки [4,5], контрольный параметр  $Q = t_{eq}/\tau$ , где  $\tau = 3l_0^2/8\alpha B\nu D(T)$ ,  $D(T)$  — зависящий от температуры коэффициент объемной диффузии в смачивающем слое,  $\nu$  — параметр обрезания потенциала упругих сил. Температурная зависимость коэффициента диффузии аппроксимируется в аррениусовской форме  $D(T) = D_0 \exp(-T_D/T)$ , где  $T_D$  есть характерная диффузионная температура. Приведенные выражения записаны для островков пирамидальной формы с квадратным основанием длины  $L$  и отношением высоты к латеральному размеру  $\beta = \tan\theta/2$ .

Нуклеация островков практически завершается при  $t = t_* + \Delta t$ , где  $\Delta t = (0.57 / \ln Q) t_*$  есть продолжительность стадии нуклеации. По окончании стадии нуклеации наступает стадия релаксации по размерам островков, на которой поверхностная плотность остается постоянной, а средний размер островков растет по закону

$$\frac{t - t_*}{t_R} = \ln \left[ \frac{(1 + l + l^2)^{1/2}}{1 - l} \right] - \sqrt{3} \arctan \left( \frac{2l + 1}{\sqrt{3}} \right) + \frac{\pi}{2\sqrt{3}},$$

$$t_* \leq t \leq 3t_R. \quad (1)$$

Здесь  $l(t) = L(t)/L_R$ ,  $L(t)$  — средний латеральный размер и  $L_R$  — средний латеральный размер по окончании стадии релаксации по размерам, определяемый согласно

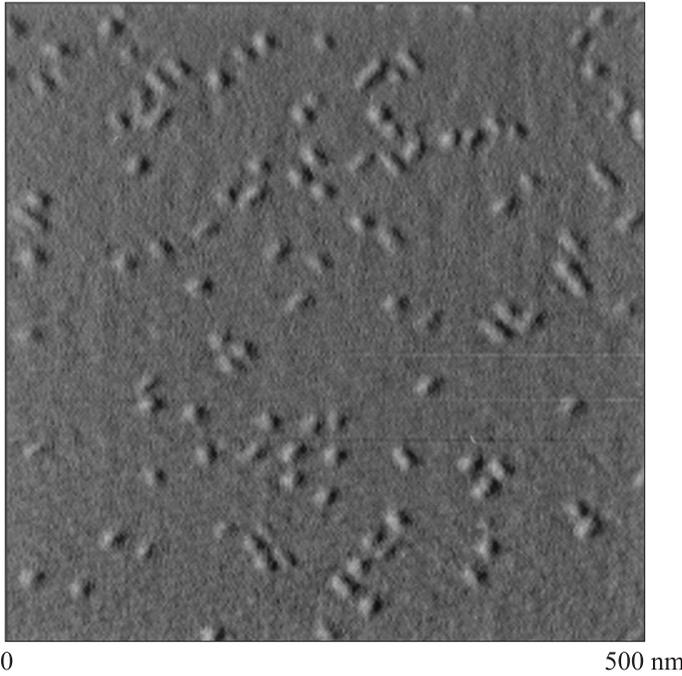
$$L_R = 0.2\alpha l_0 \frac{A^{3/2}}{B} \frac{Q^{1/2}}{\ln^{2/3} Q}. \quad (2)$$

Характерное время релаксации по размерам  $t_R = (0.47 / \ln^{1/3} Q) t_*$ . Поверхностная плотность островков  $N$ , сформированных на стадии нуклеации, дается выражением

$$N = \frac{30}{l_0^2} h_{eq} \frac{B^2}{A^3} \frac{\ln^{3/2} Q}{Q^{3/2}}. \quad (3)$$

Приведенные формулы справедливы при выполнении сильного неравенства  $F = (5/2) \ln Q \gg 1$ , обеспечивающего применимость макроскопического описания процесса нуклеации и временную иерархию  $\Delta t \ll t_R \ll t_*$  [4]. Большой параметр теории  $F$  есть активационный барьер нуклеации при максимальной толщине смачивающего слоя [4,5]. Во всех приведенных выражениях время отсчитывается с момента достижения равновесной толщины  $h_{eq}$ .

Ростовые эксперименты проводились на установке молекулярно-пучковой эпитаксии Riber SIVA (Франция). Образцы Ge/Si(100) нанокластеров выращивались при четырех различных температурах  $T = 420^\circ\text{C}$  (1),  $450^\circ\text{C}$  (2),  $470^\circ\text{C}$  (3) и  $500^\circ\text{C}$  (4). Техника ростовых экспериментов и характеристики структур подробно описаны в [3]. Скорость роста германия во всех экспериментах была равна  $0.0345 \text{ ML/s}$ . Момент прерывания роста соответствовал напылению  $6.2 \text{ MC}$  общего количества германия. Время нанесения при указанной скорости



**Рис. 1.** Изображение АСМ для образца, выращенного при  $450^{\circ}\text{C}$ . Область сканирования  $500 \times 500 \text{ nm}$ . Стороны изображений параллельны кристаллографическим направлениям  $[011]$  и  $[0\bar{1}1]$ .

роста составило 180 s. Выращенные образцы исследовались методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) на установке Digital Instruments Inc. (США).

Типичное АСМ изображение образца приведено на рис. 1. Анализ АСМ изображений показывает, что нанокластеры, выращенные при температуре  $420^{\circ}\text{C}$ , имеют форму пирамиды с приблизительно квадратным основанием. При повышении температуры в АСМ изображениях проявляются две фракции кластеров — с квадратным основанием и с прямоугольным основанием, удлинённым в направлении оси  $x$  (ось  $x$  направлена вдоль  $[010]$ , ось  $y$  — вдоль  $[001]$ ). Отношение  $L_x/L_y$  для удлинённых кластеров варьируется в пределах от 1.74

**Таблица 1.** Экспериментальные данные измерений АСМ геометрических параметров нанокластеров Ge/Si (100)

Образец	$T, ^\circ\text{C}$	Поверхностная плотность $\times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$	Высота, nm	Поперечные размеры, nm			
				Квадратные кластеры		Прямоугольные кластеры	
				$L_x$	$L_y$	$L_x$	$L_y$
1	420	5.6	1.3	11.8	13.0	—	—
2	450	3.9	2.5	14.2	15.3	24.7	11.8
3	470	1.1	3.0	20.2	17.9	33.1	19.0
4	500	1.5	5.0	20.2	21.3	53.1	20.1

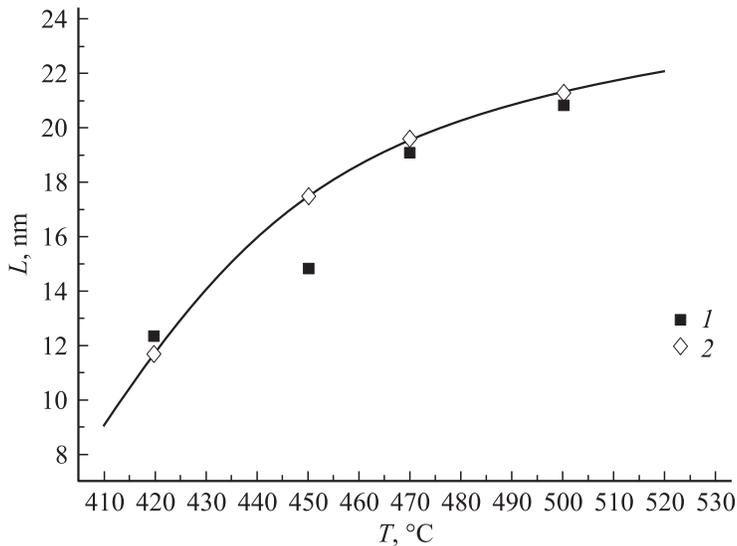
**Таблица 2.** Результаты расчетов для основных характеристик процесса формирования нанокластеров

$T, ^\circ\text{C}$	$\theta, \text{grad}$	$h_{eq}, \text{MC}$	$h_c, \text{MC}$	$t_{eq}, \text{s}$	$t_*, \text{s}$	$t_0, \text{s}$	$\Delta t, \text{s}$	$t_R, \text{s}$	$F$	$L_R, \text{nm}$	$L_0, \text{nm}$	$N, 1/\text{cm}^2$
420	13	2.7	5.7	77	95	103	7.1	23	19	25	11.7	$5.7 \cdot 10^{10}$
450	19	2.6	5.5	74	90	106	6.5	21	20	26	17.5	$4.0 \cdot 10^{10}$
470	18	2.4	5.5	74	90	106	6.2	21	20	28	19.6	$3.3 \cdot 10^{10}$
500	26	2.4	5.5	69	94	111	6.4	22	21	31	21.3	$1.7 \cdot 10^{10}$

Размер  $L_0 = L(t_0)$  и время  $t_0$  соответствуют среднему размеру при 6.2MC нанесенного материала.

до 2.64. Для всех четырех образцов фракция кластеров с квадратным основанием является доминирующей. Контактный угол  $\theta$  увеличивается с увеличением температуры. Средний размер кластеров обеих фракций при 6.2MC существенно увеличивается с повышением температуры. Полученные в результате АСМ измерений экспериментальные данные по среднему латеральному размеру и поверхностной плотности нанокластеров представлены в табл. 1. Погрешность измерения размеров не превосходит 5%.

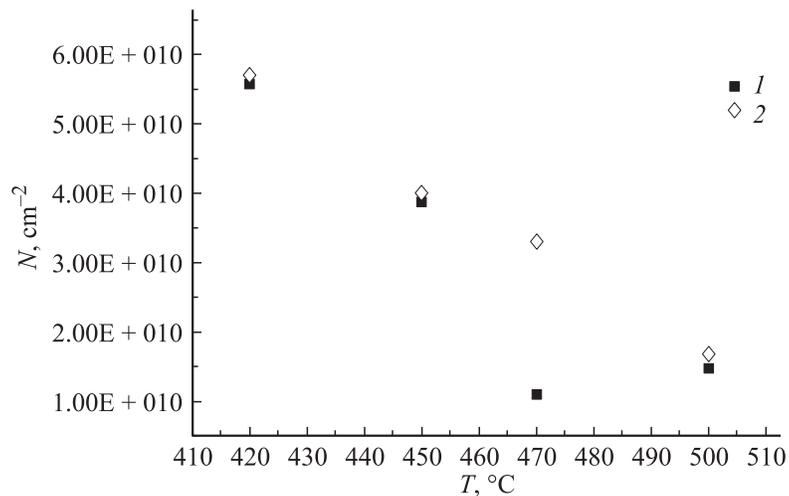
Вычисления проводились для кластеров с квадратным основанием при четырех различных температурах для следующих значений параметров:  $\lambda = 1.27 \cdot 10^{12} \text{ dyn/cm}^2$ ;  $\varepsilon_0 = 0.042$ ,  $h_0 = 0.145 \text{ nm}$ ,



**Рис. 2.** Экспериментальная (1) и теоретическая (2) температурная зависимость среднего латерального размера нанокластеров Ge/Si(100).

$l_0 = 0.395$  nm,  $\Phi = 450$  erg/cm<sup>2</sup>,  $\sigma(0) = 800$  erg/cm<sup>2</sup>,  $\sigma(\theta) = 830$  erg/cm<sup>2</sup>,  $k_0 = 0.68$ ,  $\nu = 10$ ,  $T_D = 5000$  K и  $D(T = 470^\circ\text{C}) = 1.8 \cdot 10^{-13}$  cm<sup>2</sup>/s. Значения контактного угла выбирались на основе измеренных значений отношения высоты к латеральному размеру при различных температурах. Зависимость  $z(\theta)$  рассчитывалась по данным работы [7]. Средний размер нанокластеров рассчитывался на основе выражений (1) и (2) в момент времени, соответствующий нанесению 6.2 МС германия. Поверхностная плотность рассчитывалась по формуле (3). Результаты теоретических расчетов для основных характеристик процесса формирования островков приведены в табл. 2.

Экспериментальные и расчетные значения для среднего размера и поверхностной плотности нанокластеров Ge/Si(100) приведены на рис. 2 и 3. Видно, что теоретические и экспериментальные результаты для среднего размера и плотности практически совпадают в трех точках ( $T = 420, 470$  и  $500^\circ\text{C}$  для среднего размера и  $T = 420, 450$  и  $500^\circ\text{C}$  для плотности). Экспериментальные точки при  $T = 450^\circ\text{C}$  для среднего



**Рис. 3.** Экспериментальная (1) и теоретическая (2) температурная зависимость поверхностной плотности нанокластеров Ge/Si(100).

размера и  $T = 470^\circ\text{C}$  для плотности несколько выпадают из полученных монотонных зависимостей. Это может быть связано, в частности, с наличием фракции островков с удлиненным основанием, а также с недостаточной площадью сканирования при АСМ измерениях.

В заключение, представленные результаты демонстрируют рост среднего размера и уменьшение поверхностной плотности нанокластеров Ge/Si(100) при увеличении температуры, а также существенно кинетический характер процесса формирования нанокластеров на начальном этапе роста. Предсказания кинетической модели достаточно хорошо соответствуют экспериментальным данным. Полученные результаты открывают путь к управлению параметрами наноструктур Ge/Si(100) путем соответствующего выбора температуры поверхности.

Данная работа выполнена при частичной финансовой поддержке научными программами Минпромнауки и технологии РФ.

Г.Э. Цырлин выражает признательность Alexander von Humboldt Stiftung.

## Список литературы

- [1] *Bimberg D., Grundmann M., Ledentsov N.N.* Quantum dot heterostructures. Chichester: John Wiley & Sons, 1998.
- [2] *Пчеляков О.П., Болховитянов Ю.Б., Двуреченский А.В., Соколов Л.В., Никифоров А.И., Якимов А.И., Фойхтлендер Б.* // ФТП. 2000. Т. 34. С. 1281.
- [3] *Цырлин Г.Э., Егоров В.А., Соколов Л.В., Werner P.* // ФТП. 2002. Т. 36. С. 1379.
- [4] *Dubrovskii V.G., Cirilin G.E., Ustinov V.M.* // Phys. Rev. B (submitted).
- [5] *Кукушкин С.А., Осипов А.В., Schmidt F., Hess P.* // ФТП. 2002. Т. 36. С. 1177.
- [6] *Müller P., Kern R.* // Appl. Surf. Sci. 1996. V. 102. P. 6.
- [7] *Ratsch C., Zangwill A.* // Surf. Sci. 1993. V. 293. P. 123.