

05;06

Особенности морфологии массива Ge островков на поверхности Si(100) при докритической толщине осажденного слоя Ge

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

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург
Институт аналитического приборостроения РАН, С.-Петербург
Max-Planck Institute of Microstructure physics,
D-06120, Germany, Halle (Saale), Weinberg 2

Поступило в Редакцию 12 мая 2004 г.

Экспериментально обнаружено формирование Ge островков на поверхности Si(100) при эффективной толщине осажденного слоя Ge, меньшей критической толщины перехода от двумерного к трехмерному росту. Плотность массива Ge островков составляет $3 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$. Полученные результаты предложено интерпретировать в рамках кинетической модели формирования островков в гетероэпитаксиальных системах, рассогласованных по параметру решетки.

Особенности формирования упругонапряженных наноструктур при гетероэпитаксии в системах, рассогласованных по параметру решетки, в последние годы привлекают все больший интерес исследователей. Это обусловлено возможностью применения островковых структур в современных микро- и оптоэлектронных приборах. Система материалов Si/Ge является одной из наиболее интересных с точки зрения создания оптоэлектронных приборов, которые могут быть непосредственно интегрированы с кремниевой технологией интегральных микросхем. Механизмы формирования и возможные типы Ge островков на поверхности Si к настоящему времени изучены достаточно подробно [1]. Ранее нами был проведен цикл экспериментальных и теоретических работ, посвященных исследованию механизмов формирования островков в гетероэпитаксиальных системах, рассогласованных по параметру решетки [2–5]. Результаты экспериментальных исследований, проведенных для двух систем материалов Ge/Si [3] и InAs/GaAs [4], хорошо

согласовывались с расчетами, проведенными в рамках кинетической теории формирования островков для данных систем [2]. В частности, экспериментально был обнаружен факт образования InAs островков на поверхности GaAs при эффективных толщинах осажденного слоя InAs 1.5–1.6 монослоя (ML), т.е. меньших, чем критическая толщина перехода от двумерного к трехмерному росту [5]. В данной работе обсуждаются особенности формирования массива Ge островков на поверхности Si при докритической толщине осаждения Ge.

Ростовые эксперименты проводились на установке молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) Riber Siva 45 на подложках Si(100). Было выращено два образца. В образце *A* на буферный слой кремния толщиной 100 nm при температуре подложки 600°C осаждался слой Ge с эффективной толщиной 0.75 nm. Образец *B* отличался от образца *A* лишь меньшей эффективной толщиной осажденного Ge, составляющей 0.55 nm. В процессе осаждения Ge проводилось наблюдение за поверхностью образца методом дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО). После осаждения слоя Ge образцы немедленно охлаждались до комнатной температуры, извлекались из установки МПЭ, а затем исследовались методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) в бесконтактном режиме на атмосферном АСМ микроскопе Digital Instruments.

Экспериментальное значение критической толщины h_c , при которой в системе Si/Ge при температуре поверхности $T = 600^\circ\text{C}$ происходит переход от двумерного к трехмерному росту, составляет примерно 0.66 nm, или 4.55 ML [1] (высота монослоя Ge $d_0 = 0.145$ nm). В образце *A* эффективная толщина осажденного Ge превышала h_c и формирование островков происходило согласно классическому механизму Странски–Крастанова, подтверждением чего было характерное изменение ДБЭО картины. Изображение поверхности этого образца, полученное методом АСМ, представлено на рис. 1. В данном случае на поверхности наблюдается dome-фаза [1]. Размеры островков составляют: средний латеральный размер — 73.5 nm, средняя высота — 10.0 nm. Плотность островков N равна $5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$. В образце *B* толщина слоя Ge была меньше критической h_c . АСМ изображение образца *B* представлено на рис. 2. Из рисунка видно, что, несмотря на докритическую толщину осажденного Ge, на поверхности наблюдаются островки. Размеры островков в данном случае составляют: средний латеральный размер — 34.5 nm, средняя высота — 2.9 nm. Заметим,

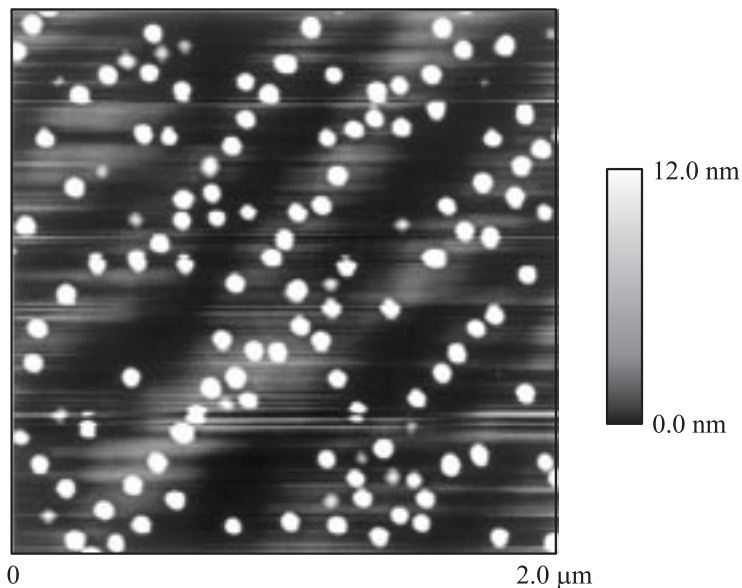


Рис. 1. АСМ изображение поверхности образца *A*; область сканирования $2 \times 2 \mu\text{m}$.

что плотность Ge островков в образце *B* существенно меньше, чем в образце *A*, и равна $3.1 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$.

Полученный результат может быть объяснен с позиций кинетической теории формирования островков в гетероэпитаксиальных системах [2–6]. Равновесная толщина смачивающего слоя (СС) h_{eq} определяется балансом упругих и смачивающих сил [7]

$$h_{eq} \cong k_0 \ln \left(\frac{\Psi_0}{d_0 \lambda \varepsilon_0^2} \right). \quad (1)$$

Здесь и далее толщина выражена в ML, Ψ_0 — плотность смачивающей энергии на границе раздела Ge–Si, λ — модуль упругости Ge, ε_0 — расхождение решеток, k_0 — радиус действия экспоненциально спадающего с расстоянием от подложки потенциала притяжения адатомов к подложке, выраженный в единицах высоты монослоя. Для системы Ge/Si $\lambda = 1.27 \cdot 10^{12} \text{ dyn/cm}^2$, $\varepsilon_0 = 0.042$, $d_0 = 0.145 \text{ nm}$, $\Psi_0 = 450 \text{ erg/cm}^2$ [6],

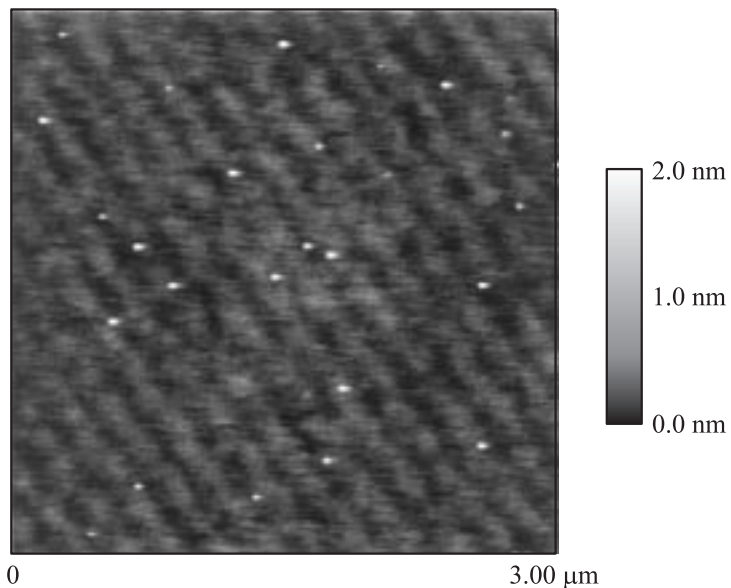


Рис. 2. АСМ изображение поверхности образца *B*; область сканирования $3 \times 3 \mu\text{m}$.

что при $k_0 = 1.11$ дает равновесную толщину $h_{eq} \approx 2.91 \text{ ML}$. При $h < h_{eq}$ СС является стабильным, а при $h > h_{eq}$ — метастабильным; формирование островков возможно только из метастабильного СС. Мерой метастабильности системы является величина $\xi = h/h_{eq} - 1$.

Далее мы приводим обобщение модели, развитой в работе [2], на случай докритической толщины осаждения. Поскольку интенсивность нуклеации островков чрезвычайно резко зависит от ξ , главная часть спектра островков по размерам формируется при $H_* \approx h_*$ и $\Phi_* \approx \xi_*$, где H обозначает эффективную толщину осаждения в момент времени t , $\Phi = H/h_{eq} - 1$ — идеальную метастабильность в отсутствие формирования островков, индекс * — величины в точке максимума метастабильности. Поток вещества на поверхность V в ML в секунду (ML/s) при МПЭ обычно равен константе при $t < t_0$ и нулю при $t > t_0$, где t_0 — момент выключения источника. Тогда зависимость Φ от времени определяется выражением $\Phi(t) = t/t_\infty$ при $t < t_0$ и $\Phi(t) = t_0/t_\infty$ при $t > t_0$, где

$t_\infty = h_{eq}/V$ есть время выращивания СС равновесной толщины, момент $t = 0$ соответствует $h = h_{eq}$ и $\Phi = \xi = 0$. Считая, что все образующиеся островки вначале имеют одинаковое отношение высоты к латеральному размеру и считая островки пирамидами с квадратным основанием $L \times L$ и контактным углом θ , а также предполагая, что адатомы из СС в основном потребляются островками через границу периметром $4L$, вводим „размер“ островков $\rho = i^{2/3} = (L/\alpha l_0)^2$. Здесь l_0 есть среднее расстояние между атомами на поверхности, $\alpha = (6d_0 \cot \theta / l_0)^{1/3}$ — геометрический фактор, i — число частиц в зародыше. В терминах переменной ρ скорость роста островков не зависит от их размера. Поэтому можно утверждать [2], что функция распределения островков по размерам ρ имеет вид $g(\rho, t) = g_s(\xi(x))$, где $g_s(\xi)$ — не зависящее от ρ стационарное распределение и $x(\rho, t) = z(t) - \rho$. Зависимость от времени $z(t)$ определяется уравнением $dz/dt = \xi/\tau$ (τ — характерное время роста островков) с начальным условием $z(t = t_*) = 0$. По физическому смыслу $z(t)$ есть максимально представительный размер островков, зародившихся при максимальной толщине СС.

В соответствии с формулой Зельдовича стационарное распределение $g_s(\xi)$ пропорционально $\exp[-F(\xi)]$, где $F(\xi)$ — активационный барьер нуклеации в тепловых единицах. Модель свободной энергии образования зародыша, изложенная в [2], приводит к выражению [4] $F(\xi) = T_e/T\xi^2$, где T — температура поверхности. Квазиравновесная температура T_e определяет высоту активационного барьера нуклеации при данной температуре подложки и толщине СС и определяется значением энергетических констант гетероэпитаксиальной системы и формой островков на начальном этапе их формирования:

$$T_e = \frac{4}{27} \frac{[\sigma(\theta)/\cos\theta - \sigma(0)]^3 (6 \cot \theta)^2}{k_B [(1 - Z(\theta)) \lambda \varepsilon_0^2 (h_{eq}/k_0)]^2}. \quad (2)$$

Здесь $\sigma(0)$ и $\sigma(\theta)$ — поверхностные энергии депозита для грани (100) и боковых граней пирамиды соответственно, $Z(\theta)$ — относительная релаксация упругих напряжений в островке [8]. Полагая для системы Ge/Si $\sigma(0) \approx \sigma(\theta) = 800 \text{ erg/cm}^2$ и принимая значение контактного угла для начальных островков $\theta = 20^\circ$ ($Z \approx 0.6$), получаем оценку $T_e \approx 6700 \text{ K}$.

Чрезвычайно резкая зависимость стационарного распределения от ξ позволяет использовать вблизи максимума метастабильности аппрокси-

мацию [2]

$$g(x) = g_s(\Phi_*) \exp \left[-\frac{\Gamma}{\Phi_*} (\Phi_* - \xi(x)) \right], \quad (3)$$

где $\Gamma = 2F(\Phi_*) \gg 1$ — большой параметр классической теории нуклеации. Используя уравнение баланса вещества на поверхности $\Phi = \xi + G$, где G — объем островков на единицу площади поверхности, деленный на $d_0 h_{eq}$, получаем

$$\Phi_* - \xi(x) = G(x) - [\Phi(x) - \Phi_*]. \quad (4)$$

Функция $\Phi(x)$ вблизи максимума метастабильности может быть представлена в виде

$$\Phi(x) = \begin{cases} \Phi_* + (\Phi_*/\Gamma)cx, & x \leq z_0, \\ \Phi_* + (\Phi_*/\Gamma)cz_0, & x > z_0, \end{cases} \quad (5)$$

где $z_0 = (\Gamma/c)(\Phi_0/\Phi_* - 1)$, $\Phi_0 = H_0/h_{eq} - 1$ и $c = \Gamma/\Phi_*^2 Q$. Величина $H_0 = Vt_0$ есть количество осажденного материала в ML. Величина c зависит от кинетического контрольного параметра $Q = t_\infty/\tau \gg 1$, равного отношению характерных времен выращивания равновесного смачивающего слоя и роста островков. Величины z_0 и Φ_0 зависят от количества осажденного материала H_0 : очевидно, случай $H_0 > h_c$ соответствует закритической, а $H_0 < h_c$ — докритической толщине осаждения.

Для аналитического описания стадии нуклеации необходимо использовать выражение для объема островков в переменных z и x :

$$G(z) = \frac{l_0^2}{h_{eq}} \int_{-\infty}^z dx (z-x)^{3/2} g(x). \quad (6)$$

Очевидно, поверхностная плотность массива островков N есть

$$N = \int_{-\infty}^{\infty} dx g(x). \quad (7)$$

Дальнейшие вычисления вполне аналогичны [2]. Выражение (5) подставляется в (4), результат используется в (3) и подставляется в (6).

Это приводит к самосогласованному интегральному уравнению для $G(z)$, которое решается итерациями. Найденный в первом приближении результат для G подставляется в (3), это дает функцию распределения островков по размерам. Ее интегрирование по x в соответствии с (7) дает плотность островков. Для определения характеристик в точке максимума метастабильности при закритической толщине осаждения мы замечаем, что при $H_0 \geq h_c$ $d\xi/dz(z=0) = 0$ и, следовательно, $dG/dz(z=0) = d\Phi/dz(z=0) = (\Phi_c/\Gamma)c$. Отсюда получаем связь между значениями $F(\Phi_c)$ и Q , которая имеет вид $F(\Phi_c) = (5/2) \ln Q$ [2], а также определяем значение нормировочного множителя $g_s(\Phi_*)$ в выражении (3). Для критической толщины находим

$$h_c = h_{eq} \left[1 + \left(\frac{2}{5} \frac{T_e}{T \ln Q} \right)^{1/2} \right]. \quad (8)$$

Таким образом, наша модель предсказывает слабую логарифмическую зависимость критической толщины от потока [9]. Поскольку h_c является величиной, определяемой с помощью метода ДБЭО с высокой точностью, при известных значениях h_{eq} , T_e и T дает возможность определить параметр Q . В рассматриваемом случае гетероэпитаксии в системе Ge/Si(100) $h_{eq} = 2.91$ ML, $h_c = 4.55$ ML, $T_e = 6700$ K, что при $T = 600^\circ\text{C}$ дает $Q \approx 1.56 \cdot 10^4$.

Окончательное выражение для плотности массива островков имеет вид

$$N = N_{\max} \begin{cases} \varphi^{-3} [1 - e^{-f} + fU(f)], & H_0 \leq h_c, \\ 1 - e^{-f} + fU(f), & H_0 > h_c. \end{cases} \quad (9)$$

Здесь $\varphi = \Phi_0/\Phi_c = (H_0 - h_{eq})/(H_c - h_{eq})$,

$$f(\varphi) = \begin{cases} \varphi^7 \exp[F_c(1 - 1/\varphi^2)], & H_0 \leq h_c, \\ \exp[2F_c(\varphi - 1)], & H_0 > h_c \end{cases} \quad (10)$$

и $F_c = F(\Phi_c)$. Функция $U(f)$ определяется согласно

$$U(f) = \int_0^\infty d\xi \exp \left[-f \left(\frac{4}{3\sqrt{\pi}} e^\xi \int_\xi^\infty dy y^{3/2} e^{-y} + \frac{8}{15\sqrt{\pi}} \xi^{5/2} \right) \right]. \quad (11)$$

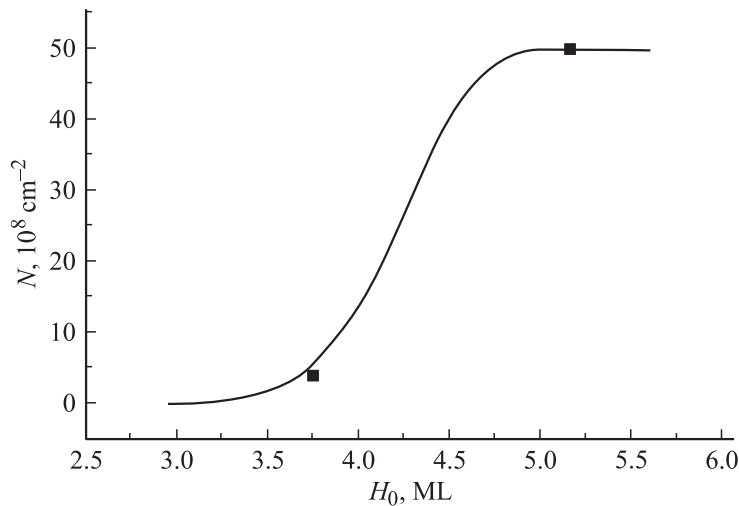


Рис. 3. Расчетная зависимость плотности массива островков от количества осажденного Ge, черные квадраты — экспериментальные измерения для образцов А и В.

Максимальная плотность массива островков, достигаемая при закритических толщинах осаждения, определяется полученным в [2] выражением

$$N_{\max} = \frac{4}{l_0^2} h_{eq} \frac{T}{T_e} \left(\frac{\ln Q}{Q} \right)^{3/2}. \quad (12)$$

Расчетный график для плотности массива островков в зависимости от количества осажденного Ge H_0 , полученный на основе выражений (9)–(12) для параметров системы Ge/Si(100) при $T = 600^\circ\text{C}$, приведен на рис. 3. Видно, что плотность массива островков увеличивается с увеличением количества осажденного Ge и в закритической области выходит на значение $N_{\max} = 4.96 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ (при $l_0 = 0.395 \text{ nm}$), определяемое выражением (12). Расчетные значения плотности при $H_0 = 0.55$ и 0.75 nm (3.79 и 5.17 ML) достаточно хорошо совпадают с данными из экспериментальной части работы.

Таким образом, нами был экспериментально установлен эффект возникновения островков в системе Ge/Si(100) при осаждении слоя Ge

докритической толщины. Наблюдаемый эффект был теоретически объяснен в рамках кинетической модели формирования островков в рассогласованных гетероэпитаксиальных системах.

Список литературы

- [1] 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.
- [2] Dubrovskii V.G., Cirilin G.E., Ustinov V.M. // Phys. Rev. B. 2003. V. 68. P. 075409.
- [3] Tonkikh A.A., Dubrovskii V.G., Cirilin G.E., Egorov V.A., Ustinov V.M., Werner P. // Phys. Stat. Sol. (b). 2003. V. 236. P. R1.
- [4] Дубровский В.Г., Мухихин Ю.Г., Цырлин Г.Э., Егоров В.А., Поляков Н.К., Самсоненко Ю.Б., Тонких А.А., Крыжановская Н.В., Берт Н.А., Устинов В.М. // ФТП. 2004. Т. 38. С. 342.
- [5] Тонких А.А., Цырлин Г.Э., Дубровский В.Г., Самсоненко Ю.Б., Поляков Н.К., Егоров В.А., Гладышев А.Г., Крыжановская Н.В., Устинов В.М. // Письма в ЖТФ. 2003. Т. 29. С. 72.
- [6] Osipov A.V., Schmitt F., Kukushkin S.A., Hess P. // Appl. Surf. Sci. 2002. V. 188. P. 156.
- [7] Müller P., Kern R. // Appl. Surf. Sci. 1996. V. 102. P. 6.
- [8] Ratsch C., Zangwill A. // Surf. Sci. 1993. V. 293. P. 123.
- [9] Barabasi A.-L., Albert R. // Phys. Rev. Lett. 1999. V. 79. P. 3708.