Исследование методом сканирующей туннельной микроскопии процессов роста и самоорганизации наноструктур Ge на вицинальных поверхностях Si(111)

© К.Н. Романюк, С.А. Тийс, Б.З. Ольшанецкий

Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия

E-mail: olshan@isp.nsc.ru

(Поступила в Редакцию 15 сентября 2005 г.

В окончательной редакции 10 января 2006 г.)

С помощью сканирующей туннельной микроскопии *in situ* исследованы начальные стадии роста Ge на вицинальных поверхностях Si(111), отклоненных в направлениях [$\bar{1}\bar{1}2$] и [$11\bar{2}$], в интервале температур 350–500°С. Показано, что на поверхностях, отклоненных в направлении [$\bar{1}\bar{1}2$], при низких потоках Ge в диапазоне $10^{-2}-10^{-3}$ BL/min возможно формирование упорядоченных нанопроволок Ge в режиме ступенчато-слоевого роста. Высота нанопроволок Ge составляет одно и три межплоскостных расстояния и задается высотой исходной ступени кремния. Установлено, что в процессе эпитаксии ступени с фронтом по направлению [$1\bar{1}\bar{2}$], в результате чего край ступени принимает зубчатую форму. Поэтому на ступенчатых поверхностях Si(111), отклоненных в направлении [$11\bar{2}$], формирование ровных и однородных по ширине нанопроволок Ge затруднено.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 04-02-16138) и Федеральной программы Министерства образования и науки РФ.

PACS: 61.30.Hn, 61.46.Hk, 68.37.Ef

1. Введение

В связи с потребностями электроники и вычислительной техники существует важная задача создания объектов типа квантовых точек и квантовых проволок с размерами в диапазоне нескольких нанометров. Такие объекты не могут быть приготовлены с помощью современных литографмических методов. Перспективным для решения этой проблемы является использование процессов самоорганизации. Под самоорганизацией понимается формирование упорядоченных металлических и полупроводниковых структур требуемых размеров и формы с определенной плотностью без использования методов литографии, когда свойства наноструктур определяются структурой и морфологией поверхности, воздействием адсорбированных инородных атомов и условиями роста, такими как скорость осаждения, температура подложки и др. Способ самоорганизации является перспективным для создания наноструктур на поверхности кремния [1-7].

Одним из факторов, позволяющих управлять плотностью и размерами получаемых объектов, могут быть атомные ступени на поверхности подложки. В этом случае зарождение нанообъектов может происходить в местах встраивания, например у кромки ступени [8]. В связи с этим перспективным является использование в качестве подложки вицинальных поверхностей, отклоненных на небольшие углы от плоскости Si(111). Грань Si(111) является наиболее стабильной. Она обладает наименьшей поверхностной энергией и наибольшей энергией образования ступеней [9]. При отклонении на небольшие углы от грани Si(111) можно получать вицинальные поверхности, содержащие регулярные ряды ступеней или фасеток [10–13].

Целью настоящей работы является исследование с помощью сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) начальных стадий роста Ge на вицинальных поверхностях Si(111), а также выявление условий формирования на этих поверхностях упорядоченных массивов нанообъектов Ge.

2. Методика эксперимента

Эксперименты проводились на образцах кремния *n*и *р*-типа размером 12 × 3 × 0.4 mm с сопротивлением $10-10^3 \,\Omega \cdot \text{сm}$. Использовались образцы с отклонениями от плоскости (111) в направлениях [112] и [112] на углы 0.3-1°. Получение атомарно-чистой поверхности и осаждение Ge проводилось в вакууме не хуже $2 \cdot 10^{-10}$ Torr на установке фирмы Riber, оснащенной системой СТМ фирмы OMICRON. Условия эксперимента детально описаны в [14]. Рост Ge осуществлялся в интервале температур 350-500°C со скоростями осаждения $10^{-2} - 10^{-3}$ BL/min. За двойной слой или бислой (1 BL) атомов Ge в направлении [111] принималась величина $1.44 \cdot 10^{15} \text{ at/cm}^2$. Изображения поверхности, полученные методом СТМ, регистрировались при комнатной температуре в режиме постоянного тока [15,16]. В качестве зондов СТМ использовались вольфрамовые иглы, полученные электролитическим травлением в растворе щелочи.

Количество осажденного Ge на террасе (111) определялось с помощью СТМ-изображений по объему островков Ge, образовавшихся после роста, методом сложения площадей отдельных слоев островков [14]. Слои островков хорошо различались по уровням яркости на СТМ-изображениях. Общее покрытие определялось как отношение количества Ge в островках на террасе к ее площади.

Для нахождения локального покрытия вблизи ступени и автоматизации метода определения покрытия была написана специальная программа для обработки СТМизображений. Программа позволяла по заданным уровням яркости для конкретного СТМ-изображения определять суммарный объем Ge в островках и кластерах и получать зависимость покрытия Ge от расстояния до ступени. Количество Ge, поглощенного ступенью, мы определяли по разности объемов матриала в островках на участке поверхности, прилегающем к ступени, и на участке такой же площади вдали от ступеней и междоменных границ.

Результаты исследований и их обсуждение

3.1. Рост Ge на поверхностях, отклоненных от Si(111) в направлении [11 $\overline{2}$]. Вицинальные поверхности, отклоненные на углы $0-15^{\circ}$ от плоскости (111) в направлении [11 $\overline{2}$], при температурах выше температуры фазового перехода (830–800°C соответственно) представляют собой систему ступеней высотой в одно межплоскостное расстояние (1 d_{111}) [17].

При температурах ниже температуры фазового перехода на поверхностях с углами отклонения менее 1°, которые использовались в наших экспериментах, система ступеней $1d_{111}$ сохраняется [18]. Длина ступеней между изломами составляла 200–400 nm.

На рис. 1, *а* приведено СТМ-изображение ступени с фронтом по направлению [11 $\overline{2}$] после осаждения 0.18 BL Ge при 380°C. В результате встраивания Ge в ступень ее исходно ровный край стал шероховатым. Вдоль ступени со стороны верхней и нижней террас видны области с пониженной концентрацией островков и кластеров области обеднения. На рис. 1, *b* показана зависимость покрытия Ge от расстояния до ступени. Темные участки, обозначенные как V_u и V_l , соответствуют покрытию Ge в областях обеднения на верхней и нижней террасах. Незакрашенная площадь, обозначенная как V_{st} , соответствует объему Ge, встроившемуся в ступень. Положение исходного края Si-ступени можно было определить по V_{st} .

$$V_{\rm st} + V_l + V_u = L_{\rm st}\Theta.$$
 (1)

Здесь $L_{\rm st}$ — длина области питания ступени в nm, Θ — средняя толщина покрытия Ge на террасе в nm. Один бислой германия имеет толщину 0.326 nm. Величины $V_{\rm st}$,



Distance, nm

Рис. 1. Распределение Ge вблизи ступени $1d_{111}$ с фронтом по $\langle 11\bar{2} \rangle$ после осаждения Ge. *a* — изображение островков и кластеров Ge в окрестности ступени при покрытии 0.18 BL; *b* — зависимость покрытия Ge от расстояния до ступени.

 V_u и V_l представляют собой объемы встроенного германия, приходящиеся на единицу длины ступени, и имеют размерность nm². Границы области питания ступени или зон обеднения на верхней и нижней террасах определялись как точки пересения линии среднего покрытия с графиком зависимости покрытия от расстояния до ступени. На рис. 1, *b* размеры зон обеднения для верхней и нижней террас обозначены как L_u и L_l соответственно. Зная размеры зон обеднения и покрытие Θ , можно определить приходящиеся на единицу длины ступени количества германия V_u^{ad} и V_l^{ad} , поглощенного ступенью с верхней и нижней террасы соответственно,

$$V_u^{\mathrm{ad}} = L_u \Theta - V_u,$$

 $V_l^{\mathrm{ad}} = L_l \Theta - V_l.$



Рис. 2. Изображение ступени с фронтом по $\langle 11\bar{2} \rangle$ после осаждения 0.3 BL Ge со скоростью $1.5 \cdot 10^{-3}$ BL/min при температуре 400°С.

Из СТМ-данных (рис. 1) были получены значения $V_u^{ad} = 0.99 \text{ nm}^2$ и $V_l^{ad} = 0.66 \text{ nm}^2$. Таким образом, из экспериментов следует, что количество материала, поглощенного ступенью со стороны верхней террасы, превосходит количество материала, поглощенного со стороны нижней террасы. Это означает, что эффективная величина барьера Швебеля для встраивания адатомов Ge в ступень со стороны нижней террасы превосходит соответствующую величину для верхней террасы.

С увеличением покрытия возрастает доля участков, ограненных ступенями с фронтом по направлению [112]. После эпитаксии Ge при температуре 400°C исходно ровный край ступени приобретает пилообразную форму из-за увеличения числа участков, ограненных ступенями с фронтом по $\langle \overline{112} \rangle$ (рис. 2). При дальнейшем росте атомы Ge взаимодействуют с участками ступеней с фронтом по $(\bar{1}\bar{1}2)$. Одновременно с формированием пилообразного края ступени наблюдается образование островков Ge высотой 1-2 BL у края ступени со стороны верхней террасы (рис. 2). Вероятнее всего, зарождение островков вблизи края происходит на дефектной границе между исходной ступенью кремния и приросшим слоем германия. Во время роста высота островков Ge на краю ступени ограничивается тремя бислоями относительно нижней террасы.

3.2. Рост Ge на поверхностях, отклоненных от Si(111) в направлении [$\bar{1}\bar{1}2$]. Чистые поверхности кремния, отклоненные на небольшие углы от плоскости (111) в направлении [$\bar{1}\bar{1}2$], содержат ступени высотой в одно ($1d_{111}$) и в три ($3d_{111}$) межплоскостных расстояния. С увеличением угла отклонения от плоскости (111) доля степеней $3d_{111}$ увеличивается [19,20].

В наших экспериментах использовались образцы, отклоненные на 20' от (111) в направлении [112]. Приготовление системы ступеней высотой в $1d_{111}$ с низкой частотой изломов производилось следующим образом. Образец прогревался при 600°С в течение 4 h, затем поверхность очищалась вспышкой при 1250°С в течение 20 s, после чего температура снижалась за 1 min до 1060°С. Далее следовало быстрое охлаждение до 850°С за 3 s, выдержка при 850°С в течение 15 min, охлаждение до 800°С за 15 min и охлаждение до 400°С со скоростью 10°С/min. Чтобы избежать эффектов, связанных с электромиграцией, прогрев образца производился переменным током. Для того чтобы среднее расстояние между изломами на таких образцах было больше 0.5 μ m, точность ориентации поверхности в направлении [$\bar{1}10$] должна быть не ниже 5″. Такая точность не всегда достижима. Поэтому для получения ступеней с меньшим





Рис. 3. Вицинальная Si(111)-поверхность со ступенями $1d_{111}$ до и после эпитаксии Ge. a — исходная атомарно-чистая поверхность; b — поверхность после осаждения 0.3 BL Ge со скоростью $7 \cdot 10^{-3}$ BL/min при температуре 380°C.



Рис. 4. Трехслойные островки Ge на ступенях $1d_{111}$ с фронтом по $\langle \bar{1}\bar{1}2 \rangle$ при осаждении 0.45 GL Ge со скоростью $4 \cdot 10^{-3}$ BL/min при температуре подложки 400°C. *а* — поверхность (111) после эпитаксии Ge; *b* — профиль ступени вдоль светлой горизонтальной линии на части *a*; *с* — схематическое изображение поперечного сечения ступени.

числом изломов создавались мезаструктуры, выполненные в виде канавок, перпендикулярных ступеням с фронтом по $[\bar{1}\bar{1}2]$. Мезаструктуры представляют собой канавки шириной $1\,\mu$ m и глубиной $0.3\,\mu$ m, чередуюциеся с периодом в $11\,\mu$ m. Отжиг мезаструктуры в режиме, описанном выше, позволял получать системы параллельных ступеней с ровными, без изломов краями длиной до $1\,\mu$ m.

На рис. 3, а приведено изображение чистой поверхности Si(111), содержащей ступени с расстоянием между изломами более 400 nm. После осаждения Ge морфологические изменения появляются в первую очередь на краях ступеней высотой в $1d_{111}$. Из рис. 3, *b* видно, что края ступеней декорированы островками. Атомы Ge не только встраиваются в ступень, но и формируют у ее края на верхней террасе треугольные островки с предельной высотой в два межплоскостных расстояния $(2d_{111})$. В результате вдоль ступени формируется пленка Ge высотой в три межплоскостных расстояния. Край ступени при этом преимущественно сохраняет исходную ориентацию [112].

На рис. 4 показаны СТМ-изображение ступени высотой в $1d_{111}$ с фронтом по направлению [$\bar{1}\bar{1}2$] и схема встраивания в нее Ge. Островки высотой в $1d_{111}$ и $2d_{111}$ у края ступени сливаются в протяженные цепочки с огранкой преимущественно ступенями с фронтом по [$\bar{1}\bar{1}2$]. Направление [$\bar{1}\bar{1}2$] на рис. 4, *а* показано стрелкой. Схема



Рис. 5. a — изображение вицинальной поверхности Si(111) с островками Ge на ступенях; b — увеличенный фрагмент изображения ступени 0U, выделенный темной рамкой на части a.





Рис. 6. Ступень 0*U*, образовавшаяся из исходной ступени 2*U* в процессе эпитаксии 0.2 BL Ge при 380°C со скоростью $8 \cdot 10^{-3}$ BL/min. Штриховой линией обозначена дефектная межфазная граница между Si и Ge.

края ступени (рис. 4, c) построена с помощью измеренного профиля ступени, представленного на рис. 4, b.

По СТМ-изображениям с атомным разрешением был проведен статистический анализ. В результате было установлено, что на исходно чистой поверхности образца более 90% ступеней относилось к ступеням группы 2U и несколько процентов от всех ступеней составляют ступени группы 0U. Основные группы и классификация ступеней высотой 1d₁₁₁ для поверхности Si(111) приведены в [21,22]. Поэтому общая статистическая картина определяется ростом на ступенях группы 2U. Ступени группы 0U выделяются на фоне других ступеней. При покрытиях менее 0.2 BL они практически не декорированы островками. На рис. 5, а такая ступень показана стрелкой. Из СТМ-изображений с атомным разрешением (рис. 5, b) видно, что после осаждения Ge эти ступени сохраняют свою структуру и границы между фазами кремния и германия являются бездефектными.

При осаждении Ge вдоль исходной ступени группы 2U прирастающий участок ступени германия имеет конфигурацию 0U (рис. 6) и образуется межфазная граница с дефектами. В экспериментах наблюдалось образование островков на межфазной границе у края ступени 2U со стороны верхней террасы и на порядок меньшее число островков на ступени 0U. На основании этого можно заключить, что межфазные границы, содержащие дефекты, являются основной причиной и местами зарождения островков у края ступени. Важная роль дефектов на межфазных границах при зарождении островков Ge подтверждается не только при сравнении роста на ступенях групп 2U и 0U, но и при росте



Рис. 7. Распределение Ge вблизи ступени $3d_{111}$ после осаждения 0.6 BL Ge при температуре 380° C со скоростью $8 \cdot 10^{-3}$ BL/min. a — изображение поверхности Si(111) со ступенями $1d_{111}$ и $3d_{111}$; b — увеличенный фрагмент с изображением ступени $3d_{111}$, выделенный светлой рамкой на части a, с предполагаемой межфазной границей между Si и Ge (штриховая линия); c — зависимость покрытия от расстояния вблизи ступени $3d_{111}$.

на ступенях группы 2*U* в условиях, более близких к равновесным. Вероятность образования дефектов на межфазной границе между Si и Ge в этом случае становится низкой, и, следовательно, уменьшается вероятность изменения конфигурации ступени от 2*U* к 0*U*. Например, после осаждения 0.12 BL Ge при 500°C со скоростью $8 \cdot 10^{-3}$ BL/min конфигурация степеней 2*U* сохранялась. Островки Ge на краях ступеней и дефекты на межфазной границе отсутствовали. Растущий слой Ge имел высоту $1d_{111}$.

На рис. 7, a приведено изображение ступени $3d_{111}$ после осаждения Ge. Видно, что в отличие от ступеней $1d_{111}$ на краю ступеней $3d_{111}$ островки Ge не образуются. На встраивание Ge в ступень $3d_{111}$ указывают области обеднения со стороны верхней и нижней террас (рис. 7, *a*). В процессе роста Ge ступени $3d_{111}$ являются устойчивыми, их высота и начальная ориентация сохраняются. На рис. 7, *b* показан фрагмент поверхности, выделенный светлой рамкой на рис. 7, а, содержащий ступень 3d₁₁₁. В области обеднения верхней террасы вблизи ступени 3d₁₁₁ дефекты на поверхности приросшего Ge не становятся местом зарождения нового слоя. Это можно объяснить конкуренцией со встраиванием в ступень 3d₁₁₁, являющуюся эффективным стоком для атомов адсорбата. Штриховой линией показана бездефектная межфазная граница между Si и Ge. Ширина сформированной на ступени 3d111 полоски Ge составляет в данном случае 14 nm, что соответствует ширине шести ячеек 7×7 . Она была определена исходя из величины поглощенного ступенью объема германия V_{st}, рассчитанного с использованием зависимости покрытия от расстояния до ступени (рис. 7, с) и соотношения баланса (1).

Таким образом, на начальных стадиях общей особенностью растущих слоев Ge на поверхностях, содержащих ступени 3d₁₁₁ и 1d₁₁₁, является следующее. Высота слоев Ge ограничивается тремя межплоскостными расстояниями, при росте сохраняется преимущественная огранка ступенями с фронтом по (112). Отличительной особенностью ступени $3d_{111}$ (по сравнению со ступенью 1d₁₁₁) является ее более сильная поглощающая способность, препятствующая образованию островков на краю примыкающей к ней верхней террасы на растущем слое Ge, в то время как у края верхней террасы, примыкающей к ступени 1d₁₁₁, имеют место зарождение и рост островков Ge. Более сильная поглощающая способность ступени 3d₁₁₁ по сравнению со ступенью 1d₁₁₁ может быть обусловлена большей эффективной величиной энергии адсорбции и меньшей величиной барьеров Швебеля при встраивании в ступень 3d₁₁₁. Устойчивость ступеней 3d₁₁₁ в процессе роста делает их предпочтительными для использования при формировании нанопроволок Ge. Рост на ступенях $3d_{111}$ менее чувствителен к режимам эпитаксии. Рост полосок Ge высотой в 3d₁₁₁ наблюдался при температурах от 350 до 450°C и потоках от 10^{-2} до 10^{-3} BL/min. На рис. 7, b показано СТМ-изображение ступени кремния с полоской Ge высотой в три межплоскостных расстояния, выращенной при 380°С.

Для обеспечения ступенчато-слоевого роста Ge на поверхностях со ступенями высотой в $1d_{111}$ необходимо не допускать образования междоменных границ во время эпитаксии. Как показали исследования, этого можно достичь, используя подложку, содержащую ступени группы 0U, либо проводя рост Ge в условиях, более близких к равновесным. Это позволяет формировать полоски Ge высотой $1d_{111}$ с шириной, кратной размеру ячейки 7×7 , в режиме ступенчато-слоевого роста вдоль ступеней, поскольку края ступеней стабилизируются по границам ячеек поверхностной структуры 7×7 .

4. Заключение

Непосредственно на вицинальных поверхностях Si(111), отклоненных в направлении [$\bar{1}\bar{1}2$], могут быть сформированы нанопроволоки германия с толщиной в $1d_{111}$ и $3d_{111}$, определяемой высотой ступеней. Их минимальная ширина равна ширине элементарной ячейки структуры Si(111) — 7 × 7, а длина определяется протяженностью ровного участка исходной ступени Si.

Управляя образованием междоменных границ на поверхностях кремния, отклоненных от плоскости (111) в направлении $[\bar{1}\bar{1}2]$, можно на участках со ступенями высотой в одно межплоскостное расстояние переходить от многослойного механизма роста к ступенчато-слоевому росту.

Эффективная величина барьера Швебеля для встраивания адатомов Ge в ступени с фронтом по направлению $[11\overline{2}]$ со стороны нижней террасы больше, чем со стороны верхней террасы. В процессе роста ступени с фронтом по направлению $[11\overline{2}]$ заменяются ступенями с фронтом по $[\overline{1}12]$, что приводит к формированию ступени пилообразной формы.

Список литературы

- О.П. Пчеляков, Ю.Б. Болховитянов, А.В. Двуреченский, Л.В. Соколов, А.И. Никифоров, А.И. Якимов, Б. Файхтлендер. ФТП 34, 11, 1281 (2000).
- [2] А.Г. Макаров, Н.Н. Леденцов, А.Ф. Цацульников, Г.Э. Цырлин, В.А. Егоров, В.М. Устинов, Н.Д. Захаров, Р. Werner. ФТП 37, 2193 (2003).
- [3] Zhenyagn Zhong, A. Halilovic, M. Mühlberger, F. Schäffler, G. Bauer. Appl. Phys. Lett. 82, 445 (2003).
- [4] Zhenyang Zhong, A. Halilovic, T. Fromherz, F. Schäffler, G. Bauer. Appl. Phys. Lett. 82, 4779 (2003).
- [5] Zhenyang Zhong, A. Halolovic, M. Mühlberger, F. Schäffler, G. Bauer. J. Appl. Phys. 93, 6258 (2003).
- [6] В.А. Егоров, Г.Э. Цырлин, А.А. Тонких, В.Г. Талалаев, А.Г. Макаров, Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, N.D. Zakharov, P. Werner. ФТТ 46, 53 (2004).
- [7] H. Lichtenberger, M. Mühlberger, F. Schäffler. Appl. Phys. Lett. 86, 131 919 (2005).
- [8] G. Jin, Y.S. Tang, J.L. Liu, K.L. Wang. Appl. Phys. Lett. 74, 2471 (1999).

- [9] D.J. Eaglesham, A.E. White, L.C. Feldman, N. Moriya, D.C. Jacobson. Phys. Rev. Lett. 70, 1643 (1993).
- [10] B.Z. Olshanetsky, S.A. Teys. Surf. Sci. 230, 184 (1990).
- [11] J.-L. Lin, D.Y. Petrovykh, J. Viernow, F.K. Men, D.J. Seo, F.J. Himpsel. J. Appl. Phys. 84, 255 (1998).
- [12] J. Viernow, J.-L. Lin, D.Y. Petrovykh, F.M. Leibsle, F.K. Men, F.J. Himpsel. Appl. Phys. Lett. 72, 948 (1998).
- [13] A. Kirakosian, R. Bennewitz, J.N. Crain, Th. Fauster, J.-L. Lin, D.Y. Petrovykh, F.J. Himpsel. Appl. Phys. Lett. 79, 1608 (2001).
- [14] S.A. Teys, B.Z. Olshanetsky. Phys. Low-Dim. Struct. 1/2, 37 (2002).
- [15] J.A. Kubby, J.J. Boland. Surf. Sci. Rep. 26, 61 (1996).
- [16] L.E.K. van de Leemput, H. van Kempen. Rep. Prog. Phys. 55, 1165 (1992).
- [17] R.J. Phaneulf, E.D. Williams, N.C. Bartelt. Phys. Rev. B 38, 1984 (1988).
- [18] A.V. Latyshev, A.B. Krasilnikov, A.L. Aseev. Thin Solid Films 306, 205 (1997).
- [19] J. Wei, X.-S. Wang, J.L. Goldberg, N.C. Bartelt, E.D. Williams. Phys. Rev. Lett. 68, 3885 (1992).
- [20] T. Suzuki, H. Minoda, Y. Tanishiro, K. Yagi. Surf. Sci. 496, 179 (2002).
- [21] H. Tochihara, W. Shimada, M. Itoh, H. Tanaka, M. Udagawa, I. Sumita. Phys. Rev. B 45, 11 332 (1992).
- [22] Ya. Wang, T. Tsong. Phys. Rev. B 53, 6915 (1996).