

# САМООРГАНИЗАЦИЯ НАНООСТРОВКОВ ГЕРМАНИЯ ПРИ ИМПУЛЬСНОМ ОБЛУЧЕНИИ ПУЧКОМ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ИОНОВ В ПРОЦЕССЕ ГЕТЕРОЭПИТАКСИИ СТРУКТУР Ge/Si(100)

*Ж. В. Смагина\**, *В. А. Зиновьев*, *А. В. Ненашев*,  
*А. В. Дзуреченский*, *В. А. Армбристер\*\**, *С. А. Тийс\*\**

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

Поступила в редакцию 6 июля 2007 г.

Экспериментально исследовано влияние импульсного (длительностью 0.5 с) облучения пучком низкоэнергетических (50–250 эВ) ионов на зарождение и рост трехмерных островков в процессе гетероэпитаксии структур Ge/Si(100) из молекулярного пучка. Обнаружено, что при определенных значениях интегрального потока ионов (менее  $10^{12}$  см<sup>-2</sup>) импульсное ионное воздействие приводит к увеличению плотности островков, уменьшению их среднего размера и дисперсии по размерам по сравнению с гетероэпитаксией без ионного облучения. Предложена модель наблюдаемых явлений на основе представления об изменении диффузионной подвижности адатомов в результате одномоментной генерации междоузельных атомов и вакансий импульсным ионным облучением. Предполагается, что вакансии и междоузельные атомы создают дополнительную деформацию поверхности, которая изменяет энергию связи адатома. Показано, что при определенных условиях это приводит к формированию мест преимущественного зарождения трехмерных островков в местах столкновения ионов с поверхностью. В модели также учтена возможность аннигиляции вакансий и междоузельных атомов на поверхности растущего слоя. Результаты расчета методом Монте-Карло на основе предложенной модели хорошо согласуются с экспериментальными данными.

PACS: 81.07.Ta, 81.10.Aj, 81.15.Ni

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Проводимые исследования гетероструктур с квантовыми точками в настоящее время можно разделить на два направления: исследования одиночных квантовых точек [1] и изучение их ансамблей [2, 3]. В последнем случае существенными факторами являются коллективные явления, для изучения и применения которых необходим однородный по размерам, форме и составу массив нанокристаллов. Поэтому разработка методов формирования ансамблей нанокристаллов имеет важное научное и практическое значение.

Обнаруженный в конце прошлого столетия эф-

фект самоорганизации в гетероэпитаксиальных системах является основой получения структур с квантовыми точками [2, 4]. Дисперсия по размерам нанокристаллов в таких структурах достигает 20%. В массиве квантовых точек как искусственных атомов одного сорта дисперсия размеров неизбежно приводит к разбросу энергетических уровней связанных состояний носителей заряда, в результате теряются достоинства систем с дискретным спектром состояний. Поэтому актуальной задачей является разработка подходов к улучшению однородности ансамбля квантовых точек.

Другая важная задача заключается в повышении плотности массива нанокристаллов. Эта задача возникает в связи с исследованиями эффектов взаимодействия в системах с высокой плотностью кван-

\*E-mail: smagina@isp.nsc.ru

\*\*V. A. Armbrister, S. A. Teys

товых точек [5], а также с прикладными разработками, требующими высокой плотности квантовых точек [4]. В сочетании с дополнительным требованием на малый размер (менее 10 нм) это приводит к необходимости формирования массивов квантовых точек со слоевой плотностью не менее  $10^{12}$  см $^{-2}$  [4, 6].

В настоящее время развивается несколько подходов, основанных на управлении зарождением и ростом нанокластеров на поверхности в процессе гетероэпитаксии. Зарождение нанокластеров стимулируется предварительным нанесением субмонослойных покрытий примесных элементов (сурьма, кислород) [7–10], созданием напряженного слоя (предварительный рост слоев твердого раствора) [11], формированием мест зарождения при отклонении от сингулярных плоскостей или травлении локальных областей после прецизионных операций литографии [12, 13]. В работах [14, 15] предложен метод повышения однородности массива квантовых точек Ge/Si, основанный на импульсном лазерном воздействии на структуры с квантовыми точками.

Нами был предложен метод создания плотных массивов квантовых точек на основе импульсного облучения собственными низкоэнергетическими (с энергиями около 100 эВ) ионами германия в процессе гетероэпитаксии структур Ge/Si из молекулярных пучков [16, 17]. Установлено, что такой метод обеспечивает повышение однородности островков по размеру, увеличение их плотности, стимулирует переход от двумерного слоевого роста к трехмерному.

Однако механизм импульсного ионного воздействия на самоорганизацию островков германия не был установлен. Моделирование гетероэпитаксии методом Монте-Карло с включением генерации адатомов и поверхностных вакансионных кластеров (ямок моноатомной глубины) как основного механизма импульсного ионного воздействия на кинетику роста островков не дало удовлетворительного согласия с экспериментальными данными [17, 18].

Работа направлена на построение модели ионно-стимулированного роста наноструктур германия на поверхности кремния и выявление основного механизма импульсного ионного воздействия на процесс роста островков.

В работе приведены экспериментальные данные по росту трехмерных островков германия на поверхности Si(100) из ионно-молекулярных пучков в зависимости от температуры подложки, энергии ионов, доли ионизации молекулярного потока. Предложена модель гетероэпитаксии в условиях импульсного ионного облучения. Модель учитывает влияние на поверхностную диффузию как деформаций, возни-

кающих в структуре за счет рассогласования постоянных решеток Ge/Si, так и деформаций за счет генерации ионным пучком вакансий и междоузельных атомов в приповерхностном объеме растущего слоя. Приведены результаты численных расчетов для различных температур подложки, плотностей вакансий и междоузельных атомов, вводимых импульсным ионным облучением. Результаты моделирования сопоставлены с экспериментальными данными.

## 2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

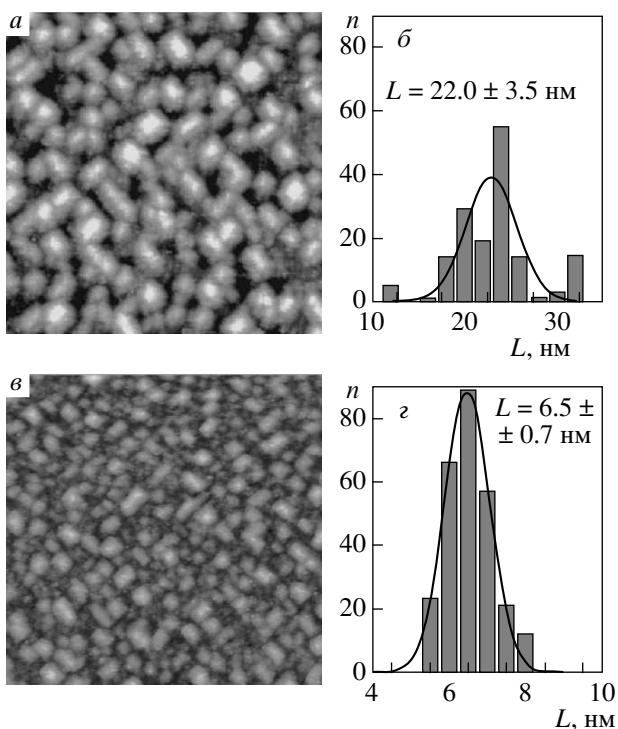
Исследуемые образцы выращивались в установке молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) со встроенным ионно-молекулярным источником германия [16, 17]. Использовались режимы обычной МЛЭ германия на поверхность Si(100) и МЛЭ с импульсным облучением пучком низкоэнергетических ионов Ge $^{+}$ . Энергию  $E$  ионов можно было контролировать, изменяя от 50 до 250 эВ. Импульсное воздействие (длительностью  $\tau \approx 0.5$  с) осуществлялось по завершении осаждения каждого монослоя (МС) германия. Структуры выращивались при скорости осаждения около 0.1 МС/с и температурах подложки  $T = 570$ – $670$  К. Общее количество осаждаемого германия для всех типов экспериментов было одинаковым и составляло 5 МС.

Морфология поверхности была исследована *ex situ* методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ). Исследования образцов проводились при комнатной температуре в режиме постоянного туннельного тока.

## 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 показаны типичные СТМ-изображения поверхности с трехмерными островками, полученные после осаждения 5 МС германия на поверхность Si(100), и соответствующие им распределения островков по размерам для двух типов экспериментов: 1) обычная МЛЭ и 2) МЛЭ с импульсным ионным облучением.

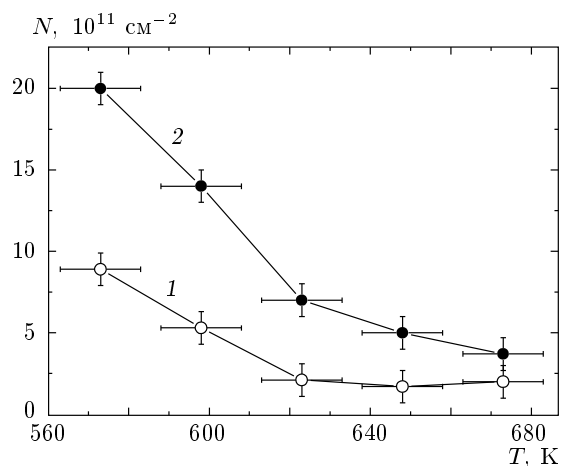
В экспериментах первого типа (рис. 1а,б) плотность трехмерных островков германия оказалась равной  $N = 2.1 \cdot 10^{11}$  см $^{-2}$ , средний размер  $L = 22$  нм, среднеквадратичное отклонение от среднего значения (разброс по размерам)  $\sigma = \pm 3.5$  нм. В экспериментах второго типа (рис. 1в,г) обнаружено увеличение плотности островков приблизительно в четыре раза ( $9 \cdot 10^{11}$  см $^{-2}$ ), уменьшение их среднего



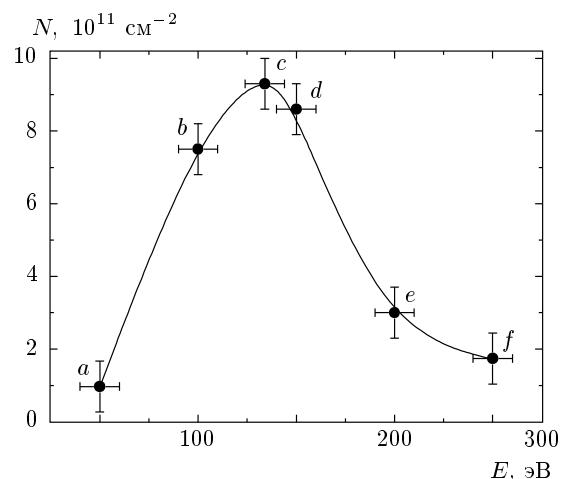
**Рис. 1.** СТМ-изображения (200 × 200 нм) поверхности с трехмерными островками, полученные после осаждения 5 МС германия на подложку Si(100), и соответствующие им распределения островков по размерам ( $n$  — количество островков) для двух типов экспериментов:  $a, б$  — МЛЭ Ge на Si(100);  $в, г$  — МЛЭ с импульсным облучением ионами Ge<sup>+</sup>. Плотность молекулярного потока германия составляет  $7 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , температура подложки  $T = 620 \text{ К}$ , энергия ионов в пучке  $E = 140 \text{ эВ}$ ,  $\tau = 0.5 \text{ с}$ , плотности ионного потока  $I = 3.1 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$

размера ( $L = 6.5 \text{ нм}$ ) и разброса по размерам ( $\sigma = \pm 0.7 \text{ нм}$ ).

На основе СТМ-данных были построены экспериментальные зависимости плотности островков германия от температуры подложки. Получено, что в случае обычной МЛЭ (рис. 2, кривая 1) с повышением температуры подложки от 570 до 620 К плотность островков уменьшается примерно в четыре раза (от  $8.9 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$  до  $2.1 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ ), тогда как в области более высоких температур (620–670 К) наблюдается лишь незначительное изменение плотности островков. Экспериментальная зависимость, полученная для МЛЭ с импульсным ионным облучением (кривая 2 на рис. 2), ведет себя подобным же образом. Однако плотность островков, наблюдаемая в этих экспериментах, всегда превосходит плотность островков, наблюдаемую в экспериментах пер-



**Рис. 2.** Температурная зависимость поверхностной плотности трехмерных островков: 1 — МЛЭ германия на Si(100); 2 — МЛЭ с импульсным (0.5 с) облучением ионами Ge<sup>+</sup> ( $\tau = 0.5 \text{ с}$ ,  $E = 140 \text{ эВ}$ ). Скорость осаждения германия  $v_{dep} = 0.1 \text{ МС/с}$ ; эффективная толщина осажденного слоя германия 5 МС



**Рис. 3.** Зависимость плотности трехмерных островков германия на Si(100) от энергии ионного пучка. Гетероструктуры с островками выращивались методом МЛЭ в условиях импульсного ионного облучения при  $T = 620 \text{ К}$ ,  $\tau = 0.5 \text{ с}$ ;  $n_p = 5$ ;  $v_{dep} = 0.1 \text{ МС/с}$ ; эффективная толщина осажденного слоя германия 5 МС. Экспериментальным точкам на рисунке соответствуют следующие значения плотности ионного потока  $I [\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}]$ :  $0.7 \cdot 10^{11}$  ( $a$ );  $2.2 \cdot 10^{11}$  ( $b$ );  $3.1 \cdot 10^{11}$  ( $c$ );  $3.5 \cdot 10^{11}$  ( $d$ );  $4.8 \cdot 10^{11}$  ( $e$ );  $8.8 \cdot 10^{11}$  ( $f$ )

вого типа, во всем исследуемом температурном диапазоне.

Были проведены исследования размеров и плотности трехмерных островков в зависимости от энергии ионного пучка. Здесь необходимо отметить, что из-за конструктивной особенности экспериментальной установки увеличение энергии ионов приводит к возрастанию доли ионизации молекулярного пучка, что соответствует увеличению плотности ионного потока. Поэтому экспериментальный эффект необходимо связывать не только с изменением энергии ионов, но и с изменением плотности ионного потока. На рис. 3 приведены соответствующие значения плотности ионного потока для каждого значения энергии. Так, для энергии 140 эВ плотность ионного потока  $I = 3.1 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ . Исследования показали, что по мере увеличения энергии ионов плотность  $N$  островков возрастает, достигая максимального значения  $N = 9 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$  при  $E = 140 \text{ эВ}$ , а затем начинает уменьшаться (рис. 3). Характерный размер островков имеет обратную зависимость от энергии, достигая минимума при 140 эВ.

Приведем некоторые оценки, характеризующие процесс ионно-стимулированного зарождения и роста островков германия. Прежде всего нужно отметить, что интегральный поток  $J$  ионов германия (полная доза облучения) можно оценить как  $J = n_p \tau I$ , где  $n_p$  — число ионных импульсов,  $\tau$  — длительность импульса. Для энергии 140 эВ интегральный поток составляет  $J \approx 7.8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ . Полученная величина  $J$  практически совпадает с экспериментально измеренным значением плотности островков германия ( $N = 9 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ ). Следовательно, для выбранных условий эксперимента большинство введенных ионным облучением изменений на поверхности становятся центрами преимущественного зарождения трехмерных островков. Однако при энергии ионов  $E > 140 \text{ эВ}$  и, соответственно, при  $J > 10^{12} \text{ см}^{-2}$  плотность островков германия начинает уменьшаться (рис. 3). Этот результат указывает на то, что наряду с формированием центров зарождения имеет место обратный процесс их разрушения ионным воздействием.

#### 4. МОДЕЛЬ

Характер распределения деформации вдоль поверхности существенным образом сказывается на зарождении и упорядочении трехмерных островков в напряженных гетероструктурах [6, 12, 13, 19]. В частности, неоднородности поверхностной деформации могут служить центрами преимущественного зарождения трехмерных островков, как это наблюда-

ется в многослойных структурах типа стеков квантовых точек [19]. Теоретическое обоснование этого факта заключается в том, что над областями локального растяжения кристалла увеличивается энергия связи адатома с поверхностью [20, 21]. Ионное облучение может существенно влиять на распределение деформации вдоль поверхности, а значит, и на кинетику роста островков. Например, если допустить, что в местах столкновения ионов с поверхностью происходит локальное изменение деформации, то впоследствии данные места могут становиться центрами преимущественного зарождения или диссоциации островков.

Для проверки данной гипотезы в работе была построена модель, учитывающая как деформацию, возникающую за счет рассогласования решеток германия и кремния, так и дополнительную деформацию, возникающую за счет генерации вакансий и междоузельных атомов в приповерхностном слое. Рассматривалось влияние деформаций на поверхностную диффузию адатомов. Процесс роста как последовательность случайных событий осаждения и диффузионных прыжков адатомов моделировали методом Монте-Карло.

Основные положения модели следующие.

1) Рассматривается двумерная кристаллическая решетка, а именно, квадратная решетка с ориентацией поверхности (11). Расчетная область представляет собой прямоугольник размером  $N_x = 500$  атомных слоев по горизонтали (ось  $x$ ) и  $N_z = 50$  атомных слоев по вертикали (ось  $z$ ). Один атомный слой в нашей модели составляет  $1/2$  постоянной решетки в направлениях осей  $x$  и  $z$ . Поэтому при пересчете расстояний из атомных слоев в нанометры толщина атомного слоя принимается равной  $1/2$  постоянной решетки матрицы кремния, т. е. 0.27 нм. Граничные условия выбираются периодическими по оси  $x$ . При расчете деформации два нижних атомных слоя считаются закрепленными.

2) Решетка не содержит дефектов (за исключением специально введенных междоузельных атомов или вакансий, о которых пойдет речь ниже), но допускается искажение решетки за счет упругой деформации. Каждый узел решетки характеризуется тремя переменными: типом атома (кремний, германий или незанятый узел) и двумя координатами,  $x$  и  $z$  (которые из-за деформации могут отличаться от координат узла в идеальной решетке). Координата  $z$  соответствует направлению роста.

3) Координаты узлов решетки (атомов) находятся из условия минимума полной упругой энергии

$E_{el}$ . Выражение для этой энергии выбрано по аналогии с работой Китинга [22].

Упругая энергия решетки записывается в виде

$$E_{el} = \frac{3}{16} \sum_i \sum_j \frac{\alpha_{ij}}{d_{ij}^2} [(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)^2 - d_{ij}^2]^2 + \frac{3}{8} \sum_i \sum_{j>k} \frac{\beta_{ijk}}{d_{ij}d_{ik}} [(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_k) - d_{ij}d_{ik} \cos \theta_{ijk}]^2, \quad (1)$$

где  $\mathbf{r}_i$  — радиус-вектор  $i$ -го узла,  $\alpha_{ij}$ ,  $\beta_{ijk}$  и  $d_{ij}$  — параметры, зависящие от сорта атомов  $i$ ,  $j$  и  $k$ ; индекс « $i$ » пробегает по всем узлам решетки, а индексы « $j$ » и « $k$ » — по ближайшим соседям  $i$ -го узла. Параметры  $\alpha_{ij}$  и  $\beta_{ijk}$  играют роль силовых констант, а  $d_{ij}$  — равновесной длины связи между атомами,  $\theta_{ijk}$  — угол между связями  $i$ - $j$  и  $i$ - $k$ .

После каждого события (осаждения атома на поверхность или диффузионного прыжка атома) пересчитываются координаты того узла, состояние которого изменилось, т. е. упругая энергия  $E_{el}$  минимизируется по отношению к координатам этого узла при неизменных координатах всех остальных узлов. Через каждые 100 шагов пересчитываются координаты всех атомов (за исключением двух самых нижних атомных слоев, которые закреплены в положениях идеальной недеформированной решетки), т. е. энергия  $E_{el}$  минимизируется по отношению к координатам всех атомов. Минимизация энергии производится методом сопряженного градиента [23].

4) Эволюция системы во времени представляла собой последовательность элементарных актов двух типов. Первый тип — это появление нового атома на поверхности кристалла (т. е. осаждение атома из пучка). В модели принято, что события этого типа происходят через одинаковые промежутки времени, равные  $2/N_x v_{dep}$ , где  $v_{dep}$  — скорость осаждения (число атомных слоев, осаждаемых в единицу времени). Место появления нового атома каждый раз выбирается случайным образом. Второй тип события — это прыжок атома из одного узла решетки в близко расположенный незанятый узел. Разрешаются любые прыжки в пределах второй координационной сферы за исключением приводящих к отрыву атома или группы двух атомов от подложки. Частота диффузионных переходов активационным образом зависит от температуры:

$$\nu = \nu_0 \exp\left(\frac{E_a}{kT}\right), \quad (2)$$

где  $\nu_0$  соответствует дебаевской частоте колебаний атомов (порядка  $10^{13} \text{ c}^{-1}$ ),  $E_a$  — энергия активации

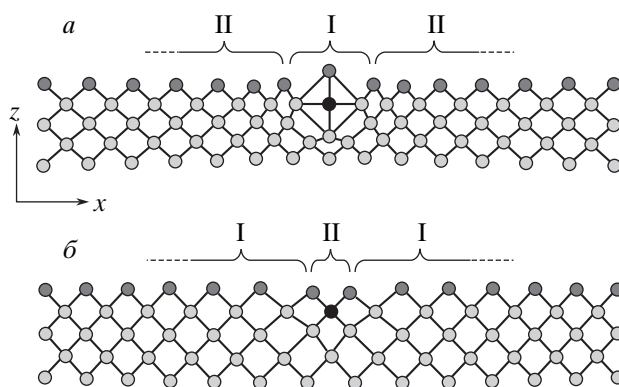


Рис. 4. Схематическое представление искажения кристаллической решетки, индуцированного междуузельным атомом (а) и вакансией (б) в приповерхностной области: I — область растяжения по оси  $x$ ; II — область сжатия; светло-серые кружки — атомы кремния, темно-серые — атомы германия, черные — вакансии и междуузельные атомы

для атома, совершающего прыжок,  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура поверхности. Энергия активации прыжка,  $E_a$ , на поверхности зависит от числа  $n_1$  ближайших соседей атома, числа  $n_2$  его вторых соседей и компоненты  $\varepsilon_{xx}$  тензора деформации:

$$E_a = E_1 n_1 + E_2 n_2 + \gamma \varepsilon_{xx}, \quad (3)$$

где  $E_1$  и  $E_2$  — энергии связи соответственно с первыми и вторыми соседями [24]. Величина  $\varepsilon_{xx}$  для заданного атома вычисляется исходя из положений его ближайших соседей:

$$\varepsilon_{xx} = \frac{1}{n_1} \sum_{i=1}^{n_1} \left( \frac{|x_0 - x_i|}{l_i/\sqrt{2}} - 1 \right), \quad (4)$$

где индекс  $i$  пробегает по ближайшим соседям,  $x_0$  и  $x_i$  — координаты рассматриваемого атома и его  $i$ -го соседа,  $l_i$  — равновесная длина связи между рассматриваемым атомом и  $i$ -м соседом. Множитель  $1/\sqrt{2}$  при  $l_i$  возникает из-за того, что связи развернуты под углом  $45^\circ$  к оси  $x$  (рис. 4).

В модели предполагается, что энергия связи атома с поверхностью увеличивается при деформации растяжения ( $\varepsilon_{xx} > 0$ ), тогда как при деформации сжатия ( $\varepsilon_{xx} < 0$ ) уменьшается. Линейная зависимость энергии связи от величины поверхностной деформации основывается на результатах расчетов *ab initio* [20, 21], значение  $\gamma$  взято равным 3.8 эВ. Вероятность прыжка зависит только от начального состояния (до прыжка) и равна

$$p = p_0 \exp(-E_a/kT). \quad (5)$$

Нормирующий множитель  $p_0$  выбирается таким, чтобы вероятность диффузионного перехода атома на атомарно гладкой поверхности равнялась единице.

5) Каждый диффузионный прыжок в нашей модели выполняется следующим образом. Сначала для всех разрешенных вариантов прыжков вычисляются их вероятности согласно выражению (5). Затем случайно выбирается вариант прыжка (т. е. прыгающий атом и направление прыжка) с учетом отношений вероятностей прыжков. После этого выбранный атом перемещается в другой узел решетки и вычисляются его новые координаты, как было указано в п. 3. Считается, что средний интервал времени от предыдущего до данного прыжка равен  $1/\sum \nu_i$ , где  $\sum \nu_i$  — суммарное число прыжков в единицу времени.

6) Ионное воздействие включено в модель в виде генерации междоузельных атомов и вакансий в кремниевой подложке вблизи границы раздела Ge/Si. Для упрощения расчета деформации вакансии и междоузлия рассматриваются как атомы замещения. Предполагается, что каждый междоузельный атом соединен четырьмя связями с ближайшими соседями. Эти связи обладают теми же коэффициентами жесткости, что и связи в решетке, но имеют в 1.3 раза большую равновесную длину. Каждый междоузельный атом создает над собой область локального растяжения, окруженную областью локального сжатия (рис. 4а). Таким образом, получалось, что пленка германия над кластерами междоузельных атомов более растянута, чем в областях, где их нет.

Вакансия (отсутствие атома в решетке) приводит к другому характеру искажения кристаллической решетки. Атомы в окружении смещаются по направлению к отсутствующему атому, что приводит к локальному сжатию атомного слоя над вакансией (рис. 4б). Деформационное поле вокруг вакансии аналогично деформационному полю от атома, помещенного на место вакансии и имеющего более короткие связи с соседями, чем обычные связи в решетке (0.8 от равновесной длины). Поэтому вакансии моделировались с помощью введения таких атомов. Выбор значений «равновесных» длин связей для вакансий и междоузлий задавался величиной их релаксационных объемов. Под релаксационным объемом понимается изменение объема кристалла при введении в него вакансии или междоузельного атома. В данной работе релаксационный объем был выбран равным  $0.9\Omega$  для междоузельного атома [25, 26] и  $-0.97\Omega$  для вакансии [25], где  $\Omega$  — объем, приходя-

щийся на один атом в равновесной кристаллической решетке кремния.

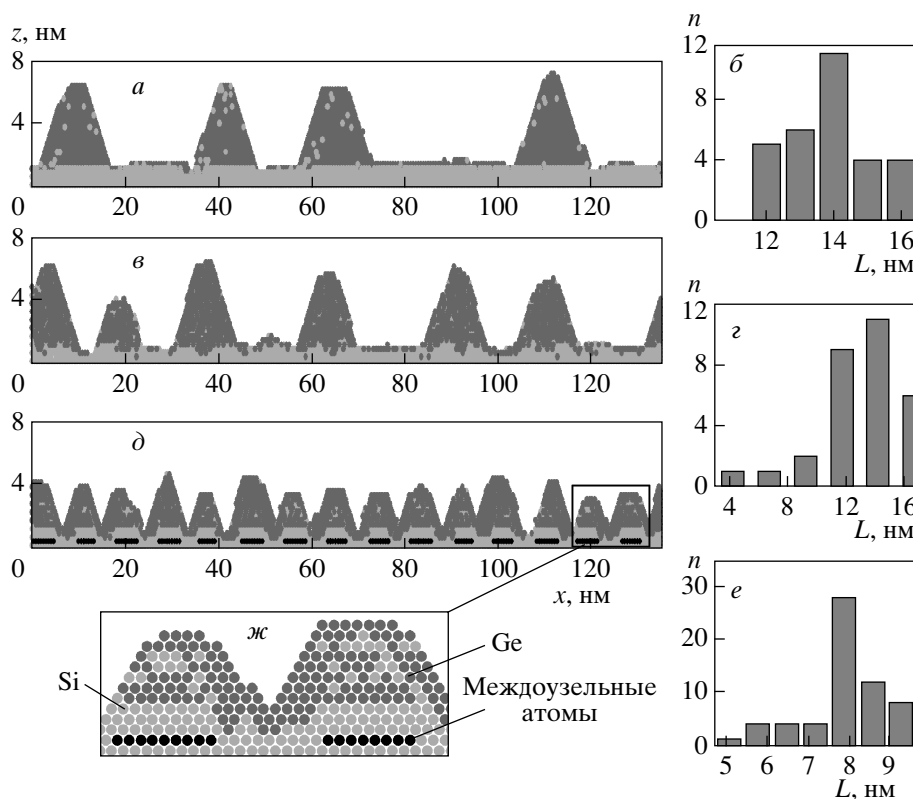
7) В модели учтена аннигиляция вакансий и междоузельных атомов при выходе их на поверхность. Под аннигиляцией подразумевается исчезновение вакансий или выход атома из междоузельных позиций на поверхность кристалла. Возможность такого процесса обусловлена тем, что вакансии и междоузельные атомы наряду с деформациями растяжения создают деформации сжатия (см. рис. 4), которые согласно уравнению (3) облегчают отрыв атомов из приповерхностного слоя. В результате ухода атомов из мест локального сжатия вакансии и междоузлия могут эффективно приблизиться к поверхности и проаннигилировать там. Предполагается, что на поверхности кристалла вакансии становятся ямкой, а междоузельный атом — адатомом.

Основными параметрами процесса роста тонких пленок при молекулярно-лучевой эпитаксии являются температура подложки и скорость осаждения материала. Скорость осаждения германия была выбрана близкой к используемой в эксперименте (0.1 МС/с). Предполагалось, что все атомы, падающие на подложку, остаются на поверхности. Температуру роста выбирали от 550 до 700 К. Был проведен подбор значений энергий связей с первыми и вторыми соседями,  $E_1$  и  $E_2$ . Выбраны значения  $E_1 = 0.5$  эВ и  $E_2 = 0.25$  эВ, при которых достигается наилучшее согласие с экспериментальными данными по морфологии поверхности [17, 27].

Исходная поверхность представляла собой 1-мнослой германия на кремниевой подложке с параметром несовпадения решеток 4%. Междоузельные атомы или вакансии располагались в подложке вблизи границы раздела Ge/Si и были собраны в кластеры. Размер кластера варьировался от 5 до 15 атомов, глубина залегания — от 3 до 5 МС. Такая стартовая конфигурация отвечает экспериментам [16, 17], в которых ионный импульс подавался при завершении роста атомного слоя германия. Количество дефектов, создаваемых ионным облучением, и их удаленность от поверхности выбирались в соответствии с данными расчетов методом молекулярной динамики [28, 29].

## 5. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

На рис. 5 изображены трехмерные островки и соответствующие им распределения по размерам, полученные на основе модельного расчета для следующих случаев: 1) обычная гетероэпитаксия из мо-

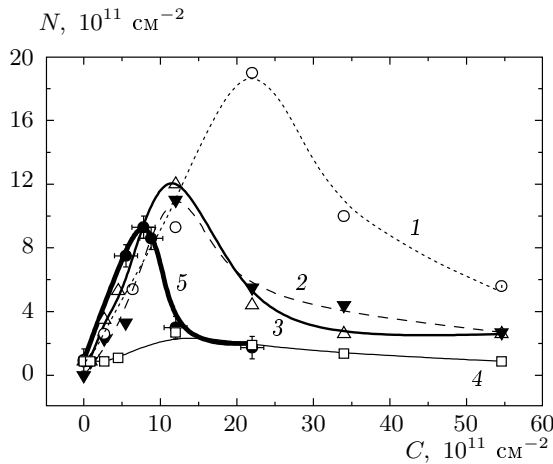


**Рис. 5.** Расчетная морфология поверхности и распределение островков по размерам ( $n$  — количество островков), полученные после моделирования осаждения 5 МС германия при  $T = 620$  К для следующих случаев: *a, б* — обычная МЛЭ; *в, г* — МЛЭ с введением вакансионных кластеров (15 кластеров по 9 вакансий расположенных на глубине 5 МС); *д, е* — МЛЭ с генерацией кластеров междуузельных атомов (15 кластеров по 9 междуузельных атомов на глубине 5 МС); *ж* — фрагмент расчетной структуры для случая *д*. Средний размер  $L$  островков и разброс по размерам составляют  $14.3 \pm 1.3$  нм (*б*),  $12.9 \pm 2.9$  нм (*г*),  $7.9 \pm 0.8$  нм (*е*)

лекулярного пучка; 2) гетероэпитаксия с введением только кластеров междуузельных атомов, 3) гетероэпитаксия с генерацией вакансионных кластеров. Количество осажденного германия для всех случаев составляет 5 МС, температура подложки  $T = 620$  К, что соответствует экспериментальным условиям, при которых эффект импульсного ионного воздействия на кинетику роста островков был наиболее ярко выражен. В приведенных выше примерах размер кластеров был равен девяти атомам, их исходная удаленность от поверхности составляла 5 МС, на расчетную область приходилось 15 кластеров.

Из рис. 5 хорошо видно, что оба типа кластеров являются центрами зарождения трехмерных островков, что способствует увеличению их плотности и уменьшению среднего размера. Однако при прочих равных условиях кластеры междуузельных атомов оказывают на кинетику роста островков

более сильное влияние, чем вакансионные кластеры. Согласно данным моделирования для обычной гетероэпитаксии плотность трехмерных островков  $N = 0.87 \cdot 10^{11}$  см<sup>-2</sup>, средний размер  $L = 14.3$  нм, среднеквадратичное отклонение (разброс по размерам)  $\sigma = 1.3$  нм (рис. 5*а,б*). Отметим, что плотность островков определялась из среднего расстояния  $d$  между островками по формуле  $N = d^{-2}$ . Для эпитаксии в присутствии кластеров междуузельных атомов (рис. 5*д,е*) плотность островков увеличивалась до  $N = 1.2 \cdot 10^{12}$  см<sup>-2</sup>, а средний размер и разброс по размерам уменьшались до  $L = 7.9$  нм и  $\sigma = 0.8$  нм. В случае вакансионных кластеров (рис. 5*в,г*) плотность, средний размер островков и разброс по размерам составили  $N = 1.9 \cdot 10^{11}$  см<sup>-2</sup>,  $L = 12.9$  нм и  $\sigma = 2.9$  нм. Указанные значения оказались близки по величине к значениям, полученным в случае обычной гетероэпитаксии за исключением разброса островков по размерам, который в присут-



**Рис. 6.** Расчетные зависимости плотности  $N$  трехмерных островков от плотности  $C$  введенных ионным пучком кластеров. МЛЭ с кластерами междоузельных атомов: 1 — размер кластера составляет 9 междоузельных атомов, удаленность от исходной поверхности (глубина залегания) 5 МС; 2 — размер кластера 9 междоузельных атомов, глубина залегания 3 МС; 3 — размер кластера 15 междоузельных атомов, глубина залегания 5 МС; 4 — МЛЭ с вакансионными кластерами (кластеры состоят из 9 вакансий и расположены на глубине 5 МС); 5 — экспериментальная зависимость плотности островков от интегрального потока  $J$  ионов, полученная из данных, приведенных на рис. 3 (более детальную информацию см. в тексте). Эффективная толщина осажденного слоя германия 5 МС,  $v_{dep} = 0.1$  МС/с,  $T = 620$  К

ствии вакансионных кластеров оказался почти в два раза больше.

Было установлено, что эффект увеличения плотности трехмерных островков имеет место только в области малой плотности кластеров междоузельных атомов. Так, например, для кластеров размером 9 междоузельных атомов, расположенных на глубине 5 МС от исходной поверхности (рис. 6, кривая 1), эффект возрастания  $N$  наблюдается, только если плотность  $C$  вводимых кластеров не превышает  $2.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ . При  $C = 2.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$  плотность островков достигает максимального значения  $N \approx 1.9 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$  и при  $C > 2.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$  начинает уменьшаться, стремясь к величине, характерной для условий роста без ионного облучения.

Было обнаружено, что положение максимума на кривой  $N(C)$  зависит от глубины залегания и среднего размера кластеров. С уменьшением глубины залегания до 3 МС максимум достигается при бо-

лее низкой концентрации кластеров междоузельных атомов  $C = 1.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$  (рис. 6, кривая 2). Такая же тенденция прослеживается при увеличении размера кластеров (рис. 6, кривая 3).

Для вакансионных кластеров эффект увеличения плотности островков оказался заметно слабее (рис. 6, кривая 4). Так, например, для кластеров, содержащих 9 вакансий, при глубине их залегания 5 МС плотность островков на порядок меньше, чем в аналогичном случае для кластеров междоузельных атомов (рис. 6, кривая 1).

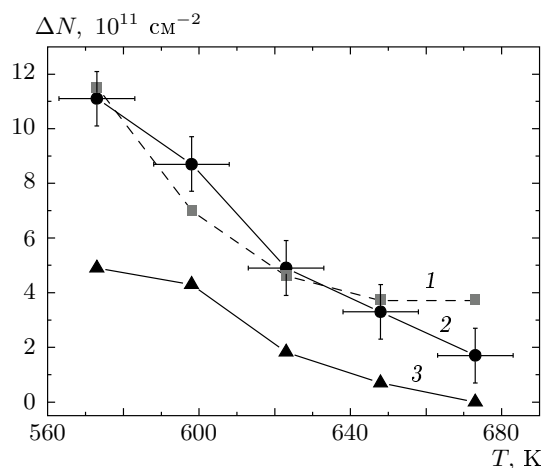
Для проведения количественного сопоставления модельного расчета с экспериментом мы сделали упрощающее допущение, что каждый ион при столкновении с поверхностью формирует в среднем один кластер точечных дефектов. В этом случае плотность  $C$  кластеров, закладываемая в расчет, будет совпадать с интегральным потоком  $J$  ионов, измеряемым в эксперименте. В рамках данного допущения результаты моделирования для случая междоузельных кластеров, содержащих 9 атомов, расположенных на глубине 3 МС (рис. 6, кривая 2), в наибольшей степени согласуются с экспериментальной зависимостью (рис. 6, кривая 5).

Моделирование в области температур от 550 до 700 К показало, что с повышением температуры средний размер островков увеличивается, плотность уменьшается. Было установлено, что в условиях импульсного ионного облучения средний размер островков меньше, а их плотность больше по сравнению со случаем обычной гетероэпитаксии, что согласуется с экспериментом [16, 17].

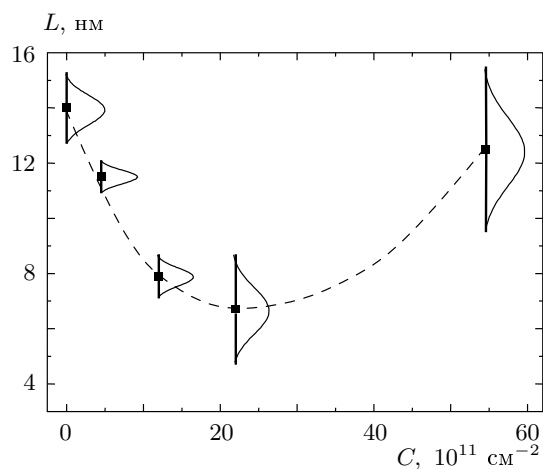
На рис. 7 показана температурная зависимость эффекта возрастания плотности островков в результате импульсного ионного воздействия. Из рисунка хорошо видно, что так же, как в эксперименте (рис. 7, кривая 2), эффект ионного воздействия ослабевает с увеличением температуры роста. Однако при гетероэпитаксии с введением кластеров междоузельных атомов эффект возрастания плотности островков заметно больше (рис. 7, кривая 1), чем при гетероэпитаксии с введением вакансионных кластеров (рис. 7, кривая 3).

На рис. 8 показана расчетная зависимость среднего размера островков  $L$  и разброса по размерам  $\sigma$  от количества введенных ионным пучком кластеров междоузельных атомов. Видно, что с увеличением концентрации кластеров средний размер островков сначала уменьшается и достигает минимума  $L = 6.5$  нм при  $C = 2.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ , после чего начинает увеличиваться. Среднеквадратичное отклонение от среднего размера ведет себя схожим





**Рис. 7.** Температурные зависимости изменения плотности островков в результате импульсного ионного воздействия ( $\Delta N$  — разность между значениями плотности островков, полученных в процессе гетероэпитаксии с импульсным ионным воздействием и гетероэпитаксии без ионного облучения): 1 — расчетная зависимость для гетероэпитаксии с кластерами междоузельных атомов; 2 — экспериментальная зависимость; 3 — расчетная зависимость для гетероэпитаксии с вакансионными кластерами



**Рис. 8.** Зависимости среднего размера  $L$  островков и их разброса по размерам  $\sigma$  от плотности  $C$  введенных кластеров междоузельных атомов. Размер кластера составляет 9 междоузельных атомов, глубина залегания 5 МС,  $T = 620$  К. Вертикальные отрезки на рисунке соответствуют удвоенным значениям среднеквадратичных отклонений от средних размеров островков ( $2\sigma$ )

образом. В отсутствие ионного облучения ( $C = 0$ ) модельный расчет дает  $\sigma = 1.3$  нм. По мере увеличения концентрации кластеров, вводимых ионным пучком,  $\sigma$  уменьшается и достигает значения 0.6 нм при  $C \approx 0.5 \cdot 10^{12}$  см<sup>-2</sup>, а затем начинает возрастать. При  $C \approx 2.2 \cdot 10^{12}$  см<sup>-2</sup> разброс составляет  $\pm 2$  нм, что превосходит  $\sigma$  в условиях обычной эпитаксии без ионного облучения. Из приведенной выше зависимости следует, что улучшения однородности по размерам в результате импульсного ионного воздействия можно ожидать, только если концентрация кластеров междоузельных атомов меньше  $2.2 \cdot 10^{12}$  см<sup>-2</sup>.

### 6. ОБСУЖДЕНИЕ

Возрастание поверхностной плотности трехмерных островков и уменьшение их среднего размера в ростовых экспериментах с импульсным ионным воздействием в процессе гетероэпитаксии структур Ge/Si(100) свидетельствует о том, что ионный импульс создает на поверхности центры преимущественного зарождения островков. Сопоставление результатов экспериментов на поверхностях (100) и (111) и результатов модельных расчетов позволяет сделать вывод о природе этих центров. Проведенные нами ранее эксперименты [16] для поверхности с ориентацией (111) показали, что изменение плотности трехмерных островков германия в результате импульсного ионного воздействия на два порядка меньше, чем удельное количество ионов, упавших на поверхность, тогда как для поверхности с ориентацией (100) плотность островков возрастает до величины того же порядка, что и полная доза ионного облучения. Такое различие в результатах, по-видимому, связано с зависимостью характера производимых ионным пучком нарушений от ориентации поверхности. Плотность упаковки поверхностного атомного слоя для поверхности типа (111) примерно в два раза больше, чем для поверхности типа (100). Различие в плотностях упаковки приводит к тому, что при столкновении низкоэнергетических ионов с гранью (111) они практически не проникают в объем кристалла [29] и, следовательно, производят только поверхностные нарушения. В качестве центров зарождения островков здесь могут выступать, например, кластеры поверхностных вакансий (ямки) и адатомов (выступы), сформированных при столкновении ионов с поверхностью, поскольку на таких нарушениях энергия зародышеобразования уменьшается [30]. Модельный расчет с включением генерации импульсным ионным воздействием

только поверхностных вакансий и адатомов не показал заметного изменения плотности островков. Дело в том, что морфологические нарушения поверхности, вводимые за время действия ионного импульса, практически сразу «залечиваются» после прекращения ионного облучения, слабо меняя поверхностную плотность островков.

В случае поверхности (100) меньшая плотность упаковки в сравнении со случаем поверхности (111) при прочих равных условиях облегчает проникновение налетающих ионов в глубь растущего кристалла, что способствует формированию структурных нарушений в его приповерхностном объеме. Таким образом, центрами зарождения здесь могут служить скопления междоузельных атомов и вакансий, сформированных при внедрении ионов в приповерхностный объем растущего слоя. Такие центры имеют большее время жизни по сравнению с поверхностными нарушениями и могут оказывать более существенное влияние на зарождение и кинетику роста островков. Включение в модельный расчет кластеров междоузельных атомов и объемных вакансий приводит к заметному возрастанию поверхностной плотности островков до величин, сопоставимых с экспериментом (см. рис. 6, кривая 2).

Обсудим обнаруженную в эксперименте неомонотонную зависимость плотности островков от величины ионного потока. Было установлено, что в области малых интегральных потоков облучения ( $J < 10^{12}$  см<sup>-2</sup>) плотность  $N$  островков германия практически линейно зависит от  $J$  (см. рис. 6, кривая 5), причем коэффициент пропорциональности между  $N$  и  $J$  близок к единице. Это свидетельствует в пользу того, что каждый центр зарождения, созданный ударом иона, является стабильным, т.е. вероятность его аннигиляции за время проведения процесса роста пренебрежимо мала. Однако по мере увеличения  $J$  ситуация может поменяться на обратную. Наши эксперименты показали, что при достаточно больших интегральных потоках ( $J > 10^{12}$  см<sup>-2</sup>) плотность островков германия не увеличивается, а напротив, уменьшается с увеличением  $J$  (см. рис. 6, кривая 5). Это может означать, что вероятность аннигиляции центров зарождения становится тем выше, чем больше нарушений вводится ионным пучком. Дело в том, что кластеры междоузельных атомов и вакансий, вводимые ионным пучком в приповерхностный объем кристалла, создают на его поверхности области как локального растяжения, так и сжатия. В областях сжатия энергия связи адатома с поверхностью уменьшается (см. уравнение (3)), и материал начинает эффек-

тивно уходить из этих областей. Это приводит к выходу кластера междоузельных (вакансий) на поверхность и его дальнейшей аннигиляции. При увеличении концентрации вводимых центров их деформационные поля перекрываются, что приводит к увеличению вероятности их выхода на поверхность. Таким образом, после некоторого значения интегрального ионного потока происходит эффективная аннигиляция центров зарождения, приводящая к уменьшению плотности островков (см. рис. 6).

Анализируя результаты расчетов для кластеров междоузельных атомов и вакансий, можно сказать, что вакансионные кластеры оказывают гораздо меньшее влияние на процесс зарождения островков. Оказывается, кластеры междоузельных атомов и вакансий обладают разной скоростью выхода на поверхность благодаря различию в характере деформационных полей, создаваемых над кластером. Над вакансионным кластером создается область сжатия, что облегчает уход материала и выход вакансий на поверхность. У кластера междоузельных атомов область сжатия расположена не непосредственно над кластером, а образует кольцо по краям области растяжения (см. рис. 4). Поэтому выход на поверхность кластера междоузельных атомов затруднен. В результате вакансионные кластеры практически сразу «всплывают» на поверхность и не вносят существенного вклада в процесс зарождения островков (см. рис. 5в). Полученный результат согласуется с данными работы [31], где было показано, что коэффициент взаимодействия вакансий с поверхностью кремния приблизительно на два порядка превышает коэффициент взаимодействия междоузельных атомов. Это приводит к накоплению и кластеризации междоузельных атомов в приповерхностном объеме облучаемого кристалла.

Очевидно, что с увеличением температуры поверхности вероятность аннигиляции кластеров обоих типов будет возрастать, приводя к уменьшению их концентрации. Именно поэтому влияние ионного воздействия на плотность островков ослабевает в области температур выше 620 К (см. рис. 7).

Обнаруженный в эксперименте эффект упорядочения островков по размерам, по-видимому, связан с синхронизацией зарождения островков [32] импульсным ионным облучением. Малая длительность ионного воздействия (около 0.5 с) по сравнению с типичным временем осаждения одного монослоя германия (около 10 с) способствует одномоментному зарождению трехмерных островков, что приводит к сужению распределения островков по размеру. В условиях непрерывного ионного облучения синхронизация

зарождения островков не происходит, а разброс по размерам увеличивается по сравнению со случаем эпитаксии без ионного облучения [17]. Импульсное ионное облучение приводит к сужению распределения по размерам не для всех величин интегрального ионного потока, а только в области  $J < 10^{12}$  см<sup>-2</sup>. Результаты расчетов показывают, что увеличение количества введенных кластеров выше критического может привести к ухудшению однородности по размерам (см. рис. 8). Большая плотность кластеров приводит к перекрытию деформационных полей и увеличению скорости аннигиляции центров зарождения. Но аннигиляция для разных кластеров происходит не одновременно, так как это вероятностный процесс. На одних участках поверхности аннигиляция центров происходит раньше, на других позже. В результате зарождение островков становится не одномоментным и происходит уширение их распределения по размерам. В этих условиях разброс по размерам становится тем больше, чем выше концентрация введенных кластеров.

## 7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены экспериментальные исследования зарождения и роста трехмерных островков при гетероэпитаксии германия на поверхности Si(100) из молекулярного пучка в условиях импульсного ( $\tau = 0.5$  с) облучения низкоэнергетическими ( $E = 50\text{--}250$  эВ) ионами Ge<sup>+</sup>. Показано, что при определенных значениях интегрального потока ионов (менее  $10^{12}$  см<sup>-2</sup>) происходит уменьшение среднего размера трехмерных островков германия, увеличение их плотности и уменьшение разброса островков по размеру по сравнению с обычной МЛЭ. Наблюдаемый в эксперименте эффект упорядочения островков по размерам связан с синхронизацией зарождения островков импульсным ионным облучением.

Предложена модель, объясняющая происходящие процессы тем, что в местах столкновения ионов с поверхностью создаются центры преимущественного зарождения трехмерных островков. Данными центрами служат области локального растяжения, возникающие над кластерами междоузельных атомов или вакансий, введенных ионным облучением. В областях локального растяжения энергия связи адатомов с поверхностью возрастает, что может привести к зарождению трехмерных островков.

Сопоставление основных экспериментальных данных с результатами модельных расчетов позволило сделать вывод, что основной вклад в

увеличение поверхностной плотности островков дают кластеры междоузельных атомов. Вакансии, в отличие от междоузельных атомов, практически сразу выходят на поверхность растущего слоя и аннигилируют там, практически не влияя на зарождение и рост островков. Показано, что ионно-стимулированное зарождение трехмерных островков за счет введения кластеров междоузельных атомов приводит к уменьшению среднего размера островков и способствует сужению их распределения по размерам.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты №№ 06-02-08077, 06-02-16988) и фонда некоммерческих программ «Династия».

## ЛИТЕРАТУРА

1. L. P. Kouwenhoven, D. G. Austing, and S. Tarucha, *Rep. Progr. Phys.* **64**, 701 (2001).
2. Ж. И. Алферов, *ФТП* **32**, 3 (1998).
3. K. Brunner, *Rep. Progr. Phys.* **65**, 27 (2002).
4. Н. Н. Леденцов, В. М. Устинов, В. А. Шуккин и др., *ФТП* **32**, 385 (1998).
5. А. И. Якимов, А. В. Двуреченский, Н. П. Степина и др., *ЖЭТФ* **119**, 574 (2001).
6. О. П. Пчеляков, Ю. Б. Болховитянов, А. В. Двуреченский и др., *ФТП* **34**, 1281 (2000).
7. C. S. Peng, Q. Huang, W. Q. Cheng et al., *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2541 (1998).
8. A. A. Shklyaeв, M. Shibata, and M. Ichikawa, *Phys. Rev. B* **62**, 1540 (2000).
9. A. Barski, M. Derivaz, J. L. Rouvière, and D. Buttard, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3541 (2000).
10. А. И. Никифоров, В. В. Ульянов, О. П. Пчеляков и др., *ФТТ* **46**, 80 (2004).
11. Н. В. Востоков, Ю. Н. Дроздов, З. Ф. Красильник и др., *ФТТ* **47**, 29 (2005).
12. J. Zhu, K. Brunner, and G. Abstreiter, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 620 (1998).
13. J. Stangl, V. Holy, and G. Bauer, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 725 (2004).
14. A. V. Dvurechenskii, A. I. Yakimov, V. A. Volodin et al., in *Proc. 13<sup>th</sup> Int. Symp. «Nanostructures: Physics and Technology»*, St. Petersburg (2005), p. 244.

15. A. I. Yakimov, A. V. Dvurechenskii, V. A. Volodin et al., *Phys. Rev. B* **72**, 115318 (2005).
16. А. В. Двуреченский, В. А. Зиновьев, Ж. В. Смагина, *Письма в ЖЭТФ* **74**, 296 (2001).
17. A. V. Dvurechenskii, J. V. Smagina, V. A. Zinovyev et al., *Surface & Coatings Technology* **196**, 25 (2005).
18. A. V. Dvurechenskii, J. V. Smagina, V. A. Armbrister et al., in *Quantum Dots: Fundamentals, Applications, and Frontiers*, ed. by B. A. Joyce et al., Netherlands (2005), p. 135.
19. J. Tersoff, C. Teichert, and M.G. Lagally. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1675 (1996).
20. P. Kratzer, E. Penev, and M. Scheffler, *Appl. Phys. A* **75**, 79 (2002).
21. L. Huang, Feng Liu, and X. G. Gong, *Phys. Rev. B* **70**, 155320 (2004)
22. P. N. Keating, *Phys. Rev.* **145**, 637 (1966).
23. В. А. Ильина, П. К. Силаев, *Численные методы для физиков-теоретиков*, Изд-во Института компьютерных исследований, Москва–Ижевск (2003), с. 132.
24. Sh. Clarke and D. D. Vvedensky, *Phys. Rev. B* **37**, 6559 (1988).
25. M. Tang, L. Colombo, J. Zhu, and T. Diaz de la Rubia, *Phys. Rev. B* **55**, 14279 (1997).
26. L. Fedina, O. I. Lebedev, G. Van Tendeloo et al., *Phys. Rev. B* **61**, 10336 (2000).
27. А. В. Двуреченский, Ж. В. Смагина, В. А. Зиновьев и др., *Письма в ЖЭТФ* **79**, 411 (2004).
28. К.-Н. Heinig, D. Stock, H. Boettger et al., in *Proc. of MRS Symposium, Materials Research Society, Pittsburgh* (1994), Vol. 316, p. 1035.
29. V. A. Zinovyev, L. N. Aleksandrov, A. V. Dvurechenskii et al., *Thin Solid Films* **241**, 167 (1994).
30. М. Б. Гусева, *Соросовский образовательный журнал* № 10, 106 (1998).
31. Л. И. Федина, *ФТП* **35**, 1120 (2001).
32. В. А. Марков, О. П. Пчеляков, Л. В. Соколов и др., *Поверхность* **4**, 70 (1991).