

04;06;11

## **Влияние упругих взаимодействий на формирование кремниевых нанокристаллитов на некристаллических подложках в плазме СВЧ газового разряда низкого давления**

© Д.В. Нефедов, Р.К. Яфаров

Институт радиотехники и электроники РАН, Саратовский филиал  
E-mail: pirpc@genet.ru

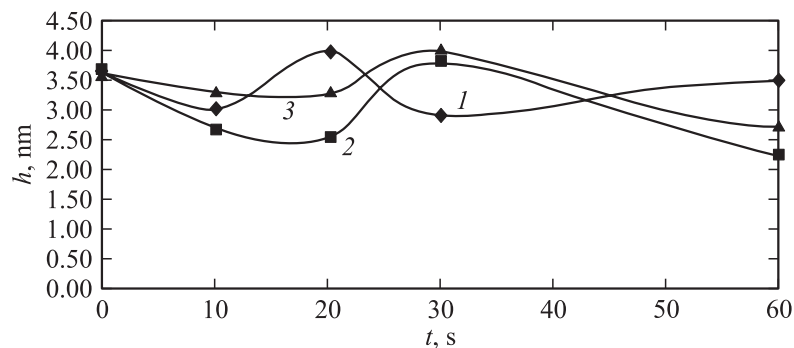
Поступило в Редакцию 5 августа 2006 г.

Исследованы условия получения наноразмерных островков кремния в плазме СВЧ газового разряда низкого давления на некристаллических подложках с различной энергией взаимодействия на межфазной границе. Показано, что формирование островков происходит через зарастивание углублений рельефа поверхности подложки. В оптимальных режимах синтеза размер островков определяется стехиометрическим составом и температурой получения пленки–подложки, на которой эти островки формируются.

PACS: 81.07.Ta, 52.77.-j

Актуальной проблемой современного полупроводникового материаловедения является создание многослойных гетероструктур с размерным квантованием — сверхрешеток, модифицирующих зонные структуры материалов и приводящих к появлению новых полезных электрических и оптических свойств. Наибольший интерес представляют гетероструктуры с квантовыми точками (КТ), обладающими полностью дискретным, как в атомах, энергетическим спектром [1,2].

Формирование КТ в виде нанокристаллитов осуществляется на начальных стадиях гетерогенной кристаллизации пленок. Основным фактором, определяющим этот процесс, является характер взаимодействия на межфазной границе конденсированный материал–подложка. В зависимости от этого реализуются различные механизмы образования, знание которых необходимо для управления процессом и получения наноструктур с заданными свойствами.

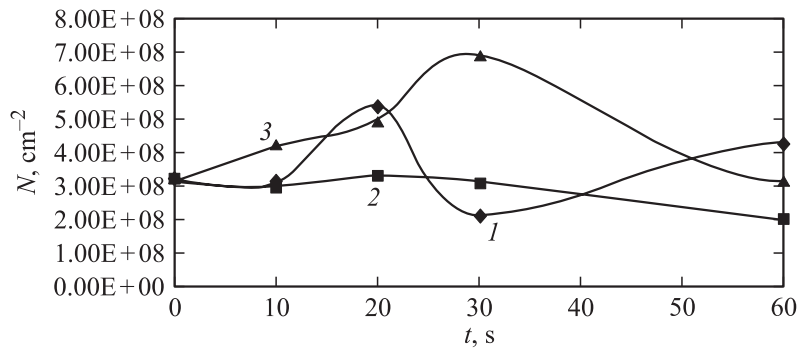


**Рис. 1.** Зависимости среднего размера микровыступов кремния от времени осаждения при различных давлениях моносила в плазме СВЧ газового разряда (1 —  $P = 0.1$  Па; 2 —  $P = 0.5$  Па; 3 —  $P = 1$  Па).

Целью работы было изучение закономерностей самоорганизации кремниевых нанокристаллитов на некристаллических подложках с различной энергией связи на межфазной границе.

Осаждение кремниевых наноразмерных кристаллитов осуществлялось методом разложения моносила в плазме СВЧ газового разряда низкого давления в установке, описанной в работе [3]. СВЧ мощность, вводимая в источник плазмы, составляла 250 W. Толщину осажденных кремниевых пленок определяли с использованием эллипсометрического лазерного ЛЭМ-3М и интерференционного микроскопов МИИ-4. Микрофотографии поверхности изучались с помощью сканирующего атомно-силового микроскопа Р4-SPM-MDT. Исследованы зависимости размеров и поверхностной концентрации кремниевых nanoостровков от материала подложки и параметров режима осаждения: температуры подложки, потенциала на подложкодержателе, давления плазмообразующего газа и времени осаждения.

На рис. 1 и 2 приведены зависимости высоты и поверхностной концентрации наноразмерных кристаллитов кремния от времени осаждения на стеклянную подложку при температуре  $100^{\circ}\text{C}$ , потенциале на подложкодержателе  $+300\text{ V}$  и различных давлениях моносила в плазме СВЧ газового разряда. На приведенных зависимостях точкам с  $t = 0\text{ s}$  соответствуют высота и концентрация наноразмерных выступов исходной стеклянной подложки. Можно видеть, что в зависимости

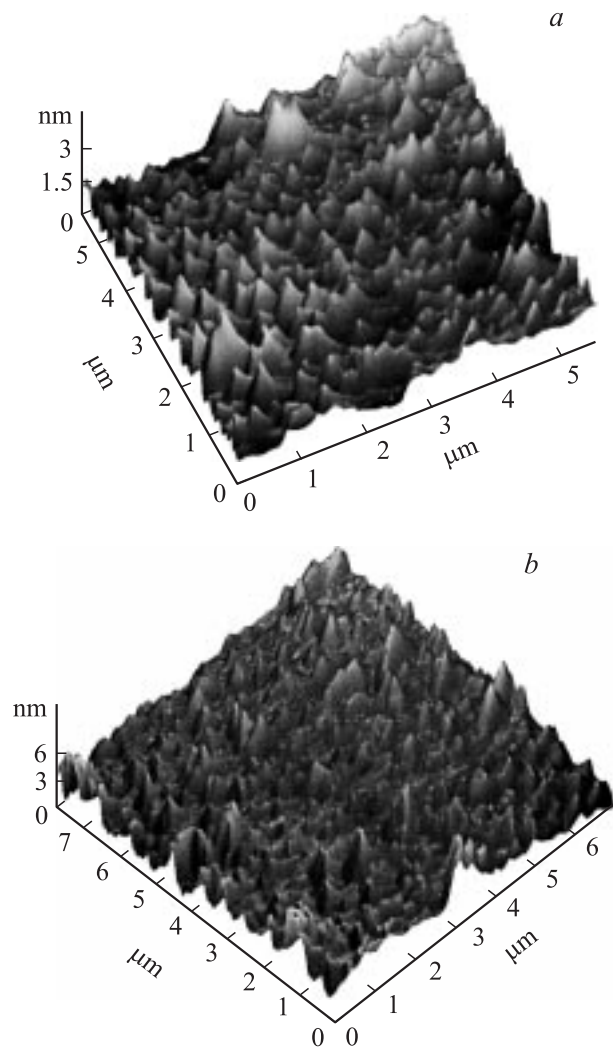


**Рис. 2.** Зависимости поверхностной концентрации микровыступов кремния от времени осаждения при различных давлениях моносилана в плазме СВЧ газового разряда (1 —  $P = 0.1$  Па; 2 —  $P = 0.5$  Па; 3 —  $P = 1$  Па).

от величины пересыщения в газовой фазе в течение первых 10–20 с осаждения кремния высота неровностей поверхности подложки уменьшается от 3.8 до 2.8–3.2 нм, а их концентрация на поверхности практически не изменяется. По истечении этого времени концентрация и размер нановыступов увеличиваются, проходят через максимумы и уменьшаются. Минимальное время задержки нарастания концентрации, а затем наиболее сильный по величине темп ее нарастания наблюдаются для давления моносилана 0.1 Па. Концентрация нановыступов в максимуме достигает величины  $(5-7) \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$ . При этом высота кремниевых кристаллитов составляет около 4 нм и в данном диапазоне давлений практически не зависит от степени пересыщения в газовой фазе.

На рис. 3 представлены типичные АСМ-изображения микротопографии исходной поверхности стекла (а) и наноразмерных кристаллитов кремния, осажденных при давлениях моносилана 0.5 (b), 1 (c) Па в течение 30 с.

На рис. 4 приведены зависимости высоты наноразмерных выступов от времени осаждения кремния на кремниевую пленку при оптимальных температуре и потенциале на подложкодержателе и различных давлениях моносилана в плазме СВЧ газового разряда. Можно видеть, что, в отличие от осаждения на стеклянную подложку, для всех давлений моносилана в плазме СВЧ газового разряда размер нановыступов



**Рис. 3.** АСМ-изображения микротопографии исходной поверхности стекла (*a*) и наноразмерных кристаллитов кремния, осажденных при давлениях моносила-на 0.5 (*b*), 1 (*c*) Па в течение 30 s.

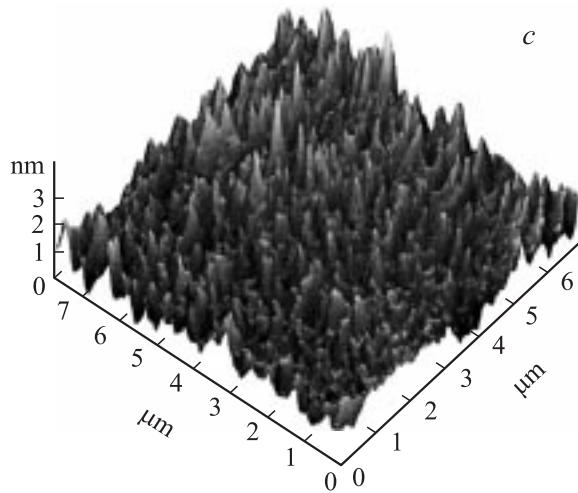
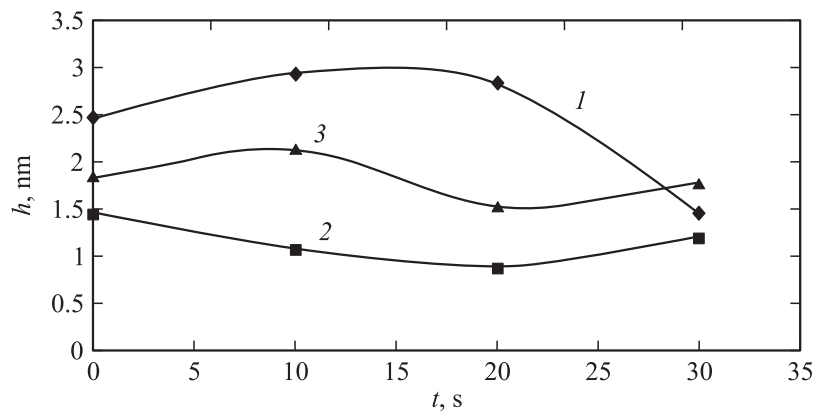


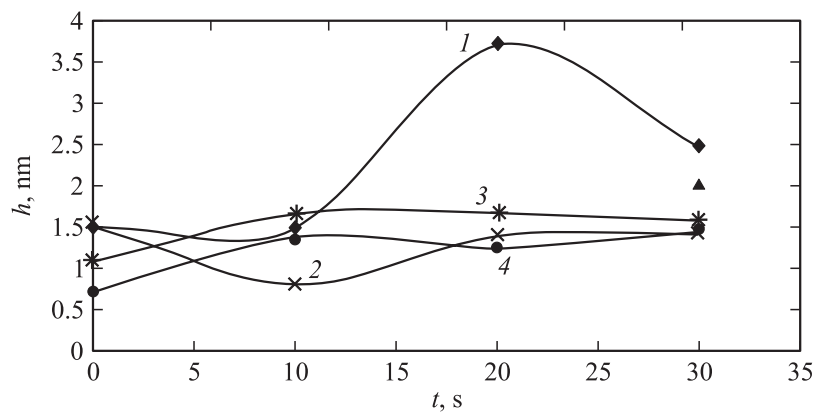
Рис. 3 (продолжение).

кремния на кремниевой пленке не уменьшается в процессе осаждения, а остается практически неизменным или монотонно увеличивается со временем до достижения экстремума и последующего уменьшения. Поверхностная концентрация нановыступов от времени осаждения при этом практически не изменяется. Формирования новых нанокристаллитов в таких сочетаниях материалов пленки и подложки не наблюдается.

На рис. 5 приведены зависимости высоты наноразмерных выступов от времени осаждения кремния на пленки карбида кремния со стехиометрическими составами  $\text{Si}_{0,2}\text{C}_{0,8}$  и  $\text{Si}_{0,6}\text{C}_{0,4}$ , полученными при температурах подложек 100 и 300°C. На этих зависимостях моменту времени  $t = 0$  соответствуют высоты выступов на исходных пленках-подложках карбида кремния. Температура подложек с пленками карбида кремния, потенциал на подложкодержателе и давление моносилана в плазме СВЧ газового разряда в процессе осаждения кремния были постоянными и составляли соответственно 100°C, +300 V и 0.1 Pa. Можно видеть, что зависимости размеров нановыступов от времени осаждения кремния на пленки карбида кремния со стехиометрическим составом  $\text{Si}_{0,2}\text{C}_{0,8}$  имеют такой же характер, как при осаждении на стеклянную подложку, а при осаждении на пленки со стехиометрическим составом



**Рис. 4.** Зависимости высоты наноразмерных выступов от времени осаждения кремния на кремниевую пленку при оптимальных температуре и потенциале на подложкодержателе и различных давлениях моносилана в плазме СВЧ газового разряда (1 —  $P = 0.1$  Па; 2 —  $P = 0.5$  Па; 3 —  $P = 1$  Па).



**Рис. 5.** Зависимости высоты наноразмерных выступов от времени осаждения кремния на пленки карбида кремния со стехиометрическими составами  $\text{Si}_{0.2}\text{C}_{0.8}$  (1, 2) и  $\text{Si}_{0.6}\text{C}_{0.4}$  (3, 4), полученных при температурах подложек 100 (1, 3) и 300 (2, 4).

$\text{Si}_{0,6}\text{C}_{0,4}$  зависимости имеют вид, аналогичный осаждению кремния на пленки кремния (см. рис. 1 и 4 соответственно). При одинаковой температуре получения исходных пленок карбида кремния с различным стехиометрическим составом максимальный размер осажденных нанокристаллитов кремния больше для стехиометрического состава с меньшим процентным содержанием кремния. Для каждого стехиометрического состава максимальный размер осажденных кристаллитов кремния тем больше, чем ниже температура получения исходной пленки карбида кремния. На пленках карбида кремния, полученных при температуре  $300^\circ\text{C}$ , размер осажденных кристаллитов является наименьшим, он находится на уровне средней высоты выступов в этой пленке и составляет  $1\text{--}1.5\text{ nm}$ . На пленках карбида кремния, полученных при температуре  $100^\circ\text{C}$ , размер осажденных кристаллитов наибольший. Для стехиометрического состава с меньшим содержанием кремния он составляет  $3\text{--}3.8\text{ nm}$  и находится на уровне средней высоты выступов, характерных для стеклянной подложки.

В современном представлении процесс зародышеобразования и роста новой фазы при гетерогенной конденсации в различных комбинациях материалов пленки и подложки, в первую очередь, определяется характером взаимодействия на межфазной границе подложка–пленка. Основной тип межатомных взаимодействий на поверхности при осаждении из газовой фазы — электростатическое взаимодействие [4]. При осаждении на шероховатую поверхность адатомы локализуются на центрах адсорбции, соответствующих минимумам потенциальной энергии взаимодействия на межфазной границе. Зарождение островков осуществляется за счет флуктуации плотности двумерного адсорбированного газа. Однако когда островки возникают, вместе с ними возникают поля механических напряжений, которые начинают взаимодействовать с полями упругих напряжений в подложке и влиять на характер протекания процессов на ее поверхности.

Возникающее при образовании зародышей за счет сил поверхностного натяжения со стороны поверхности с положительной кривизной лапласовское давление вызывает увеличение химического потенциала, которое должно стимулировать диффузионный перенос массы в направлении от зародышей к впадинам, т.е. способствовать выравниванию поверхности. Кроме того, нормальное сдавливающее усилие между островком и подложкой, обратно пропорциональное объему островка, способствует лучшему его вдавливанию в подложку. Чем меньше объем островка, тем сильнее островок вдавливается в подложку и сильнее

„чувствует“ ее потенциальный рельеф. Во всех случаях движущей силой процесса является стремление системы к минимуму свободной энергии, основными слагаемыми которой являются поверхностная энергия и энергия упругих деформаций.

В соответствии с этими представлениями результаты зондовых измерений величин наноразмерных выступов на поверхности стеклянной подложки до и после осаждения кремния в плазме СВЧ газового разряда могут быть интерпретированы как „заращивание“ кремниевым конденсатом углублений исходного ее рельефа. Для  $P = 0.5$  и  $1$  Па заращивание происходит в течение 30 с. Прохождение через максимум зависимостей размеров и концентрации от времени обусловлено коалесценцией островков конденсата и, как следует из рис. 2, начало и интенсивность ее зависят от давления в газовой фазе. Наиболее интенсивной и ранней она является для  $P = 0.1$  Па.

Большая интенсивность заращивания углублений рельефа в СВЧ плазме при меньшем давлении обусловлена большей степенью ионизации плазмы. В соответствии с этим при давлении  $0.1$  Па и положительном потенциале на подложкодержателе реализуются наибольшие интенсивность бомбардировки поверхности отрицательными ионами, электронами и возбужденными атомами, скорость и хаотичность зародышеобразования [5]. Увеличение потока частиц в условиях интенсивной ионной и электронной бомбардировки поверхности, так же как понижение температуры роста, ведет к уменьшению диффузионной длины адатомов на подложке. Соответственно область сбора адатомов для одного островка уменьшается, уменьшаются его размеры, а плотность островков возрастает.

В отличие от осаждения на стеклянную подложку, размер нановыступов кремния на кремниевой пленке не уменьшается в процессе осаждения, что могло бы свидетельствовать о заращивании углублений рельефа ее поверхности (см. рис. 4). В данном случае, как и следовало ожидать, реализуется механизм Франка и Ван дер Мерве, характерный для гетерогенной кристаллизации пленки на подложке с сильной связью на межфазной границе. Этот механизм реализуется при осаждении одноименных и родственных материалов с малым несоответствием параметров решеток (металлы на металлах, полупроводники на полупроводниках) [4,6]. Микротопография такой эпитаксиальной пленки определяется структурой и микротопографией исходной поверхности подложки. Образующиеся зародыши становятся мощными стоками для



адсорбированных атомов конденсата. При этом происходит преимущественно латеральное увеличение их размеров без образования новых.

При осаждении кремния на пленки карбида кремния размер нановыступов и характер их зависимостей от времени зависит как от стехиометрического состава, т.е. от рассогласования параметров кристаллических решеток осаждаемого материала и подложки, так и от температуры получения материала подложки. Чем больше различие параметров кристаллических решеток и ниже температура получения материала подложки, т.е. чем выше уровень упругих напряжений на границе раздела, тем больше максимальный размер образующихся нанокристаллитов кремния и тем ближе механизм их формирования к самоорганизации через заращивание углублений потенциального рельефа поверхности. На пленках карбида кремния, полученных в более термодинамически равновесных условиях и имеющих минимальные рассогласования параметров кристаллических решеток с материалом осаждаемых нанокристаллитов, размер формирующихся нанокристаллитов меньше и находится на уровне средней высоты нановыступов этой пленки (см. рис. 5). Таким образом, решающим для самоорганизации и размера нанокристаллита являются величины упругих напряжений в подложке. Поэтому, в частности, при осаждении кремниевых нанокристаллитов на стеклянную подложку (см. рис. 1) их максимальный размер не зависит от пересыщения паров рабочего вещества в плазме СВЧ газового разряда.

## Список литературы

- [1] Леденцов Н.Н., Устинов В.М., Шукин В.А., Копьев П.С., Алфёров Ж.И., Бимберг Д. // ФТП. 1998. Т. 32. В. 4. С. 385–410.
- [2] Williamson A.J. Energy states in quantum dots. International journal of high speed electronics and systems. 2002. V. 12. N 1. P. 15–34.
- [3] Бьлинкина Н.Н., Муштакова С.П., Олейник В.А. и др. // Письма в ЖТФ. 1996. Т. 22. В. 6. С. 43–47.
- [4] Иевлев В.М., Трусов Л.И., Холмянский В.А. Структурные превращения в тонких пленках. М.: Metallurgy, 1982. 247 с.
- [5] Гуляев Ю.В., Яфаров Р.К. // Зарубежная электронная техника. 1997. № 1. С. 77–120.
- [6] Woll A.R., Rugheimer P., Lagally M.G. Self-organized quantum dots. 2002. V. 12. N 1. P. 45–78.