

# Взаимосвязь энергии наностроек SiGe с их формой и размерами

© М.Я. Валах, В.Н. Джаган, З.Ф. Красильник\*, П.М. Литвин, Д.Н. Лобанов\*, Е.В. Моздор, А.В. Новиков\*, В.А. Юхимчук, А.М. Яремко

Институт физики полупроводников Национальной академии наук Украины,  
03028 Киев, Украина

\* Институт физики микроструктур Российской академии наук,  
603950 Нижний Новгород, Россия

E-mail: Valakh@isp.kiev.ua

Теоретически исследовано влияние геометрических и физических параметров самоорганизованных наностроек SiGe на кремниевой подложке на величину их полной энергии. Показано, что температура роста островков и концентрация Si в островках влияют на значение минимума энергии. Результаты численных расчетов сопоставляются с экспериментальными данными по наностройкам, полученными с помощью атомно-силовой микроскопии.

Работа выполнена при поддержке российско-украинской программы „Нанофизика“ и INTAS (проект N 01 0444).

В последние годы интенсивно исследуются самоорганизованные Ge наностройки, формирующиеся в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) германия на кремниевую или  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  подложки. Интерес к таким объектам стимулируется как фундаментальным аспектом проблемы физики нанометровых твердотельных структур, так и возможным прикладным использованием [1].

Несмотря на большое количество работ, посвященных формированию островков, до настоящего времени окончательно не выяснены механизмы, ответственные за формирование островков в виде пирамид или куполов, а также перехода из одной формы в другую. Этот вопрос и является центральным в данном исследовании.

## 1. Методика

Структуры, исследованные в настоящей работе, получены методом МЛЭ на Si(001) подложках с первоначально выращенным буферным кремниевым слоем толщиной 200 nm. Было изготовлено две серии образцов. В образцах первой серии толщина Ge слоя варьировалась от 5.5 до 11 МС, а температура роста была постоянной для всех образцов и составляла 700°C. У второй серии образцов все германиевые слои были одинаковой толщины (9 МС), однако эпитаксия проводилась при разных температурах (600, 700, 750°C). Анализ размеров и форм наностроек осуществлялся с помощью атомного силового микроскопа (АСМ) Nanoscope III-а.

## 2. Экспериментальные результаты

Анализ изображений структур с наностройками, полученных с помощью АСМ, показывает, что в зависимости от температуры роста и количества осажженных монослоев Ge может наблюдаться как бимодальное, так и одномодовое распределение островков по размерам, что связано с формированием на поверхности островков,

имеющих как пирамидальную, так и куполообразную форму или только одну из них. Размеры и форма островков зависят от температуры роста. Рост температуры осаждения Ge приводит как к изменению химического потенциала структуры, так и к возрастанию коэффициента диффузии атомов Si из кремниевой подложки в островки. Анализ изображений, полученных с помощью АСМ, показал, что рост пирамидальных островков происходит с сохранением формы за счет пропорционального увеличения латеральных размеров и высоты островков. При достижении критического объема пирамиды превращаются в куполообразные островки за счет возникновения новых боковых граней, которые имеют больший угол с подложкой по сравнению с боковыми гранями пирамид. Изменения формы островков связаны с более эффективной релаксацией напряжений в островках, которые имеют большее отношение высоты к латеральному размеру [2].

## 3. Теоретический анализ и обсуждение

3.1. Энергия напряженной структуры. В [3,4] было выведено аналитическое выражение для энергии бездислокационного германиевого островка. Изменение его формы может быть проанализировано на основе этого уравнения. При выводе предполагалось, что: а) островок имеет вид усеченной пирамиды высотой  $h$ , основанием которой является прямоугольник с шириной  $s$ , длиной  $t$ ; б) углы между основанием и боковыми гранями островка равны  $\theta$ .

Выражение для полной энергии островка записывается в виде

$$E = E_s + E_r, \quad (1)$$

где  $E_s$  — суммарная энергия поверхности и интерфейса,  $E_r$  — изменение упругой энергии вследствие релакса-

ции. Выражение для  $E_s$  имеет вид

$$E_s = s \cdot t \cdot (\gamma_i + \gamma_t - \gamma_s) + 2 \cdot (s + t) \times [h \cdot \gamma_e \cdot \csc \theta - h \cdot \operatorname{ctg} \theta \cdot (\gamma_t + \gamma_s - \gamma_i)/2], \quad (2)$$

где  $\gamma_s, \gamma_e, \gamma_t, \gamma_i$  — энергия (на единицу площади) поверхности подложки, граней, вершины островка, интерфейса островка-подложка соответственно. В случае роста наностроек по механизму Странского-Крастанова возможно некоторое упрощение уравнения (2), поскольку  $\gamma_t = \gamma_s$ , а  $\gamma_i = 0$  [3].

Энергия релаксации в квазидвумерном приближении ( $s \gg h, t \gg h$ ) имеет следующий вид:

$$E_1 = -2 \cdot c \cdot h^2 \times [s \cdot \ln(t \cdot e^{3/2}/h \cdot \operatorname{ctg} \theta) + t \cdot \ln(s \cdot e^{3/2}/h \cdot \operatorname{ctg} \theta)]; \quad (3)$$

здесь  $c = \sigma_b^2 \cdot (1 - \nu)/2 \cdot \pi \cdot \mu$ ,  $\sigma_b$  — это компоненты тензора напряжений в объемном Ge;  $\nu$  и  $\mu$  — коэффициент Пуассона и модуль сдвига кремниевой подложки соответственно.

Анализируя уравнения (1)–(3), можно сделать вывод, что полная энергия островка не может быть выражена как функция объема, а является достаточно сложной функцией латеральных размеров ( $s, t$ ), высоты ( $h$ ), угла ( $\theta$ ) и объемного ( $c$ ) и поверхностных параметров ( $\gamma_s, \gamma_e$ ) островка. В модели [3] предполагается, что высота  $h$  возрастает медленно по сравнению с параметрами  $s$  и  $t$  и ее можно считать постоянной.

В работах [3,4] энергия  $E$  наностройки проанализирована для двух случаев.

а) Полный объем не фиксирован, и вместо энергии  $E$  проведена минимизация удельной энергии  $E/V$ , давшая значение  $s = t = a_0$ . Однако, из факта существования минимума для  $E/V$  не следует существование минимума для  $E$  при тех же  $s, t$ . Более того, минимум  $E$  может существовать вообще в иной области ( $s, t \neq a_0$ ). Таким образом, сделанные на основании такого анализа физические выводы требуют более детального рассмотрения. Очевидно, это было ясно авторам [4] и они рассмотрели другой случай (б).

б) Минимизация энергии  $E$  проведена в [4] при фиксированном объеме островка. В результате этого минимум  $E$  соответствует величине  $s = t = h \cdot \operatorname{ctg} \theta$ , зависит только от геометрических размеров и не зависит от физических параметров  $c, \gamma_s, \gamma_e$  и т.д., что представляется удивительным. Кроме того, как показано в [5], форма островков должна зависеть не только от энергии, но и от кинетических процессов. В связи с этим мы еще раз обращаемся к проблеме, сформулированной в [3,4], чтобы проанализировать уравнения (1)–(3), принимая во внимание все величины  $s, t, h, \gamma_s, \gamma_e, \theta$ . Варьирование этими параметрами позволяет судить о наличии или отсутствии глобального минимума  $E$  и сделать вывод о влиянии температуры роста, скорости осаждения, количества монослоев Ge на параметры островков.

Уравнения (1)–(3) удобно записать в относительных единицах

$$\tilde{s} = s/h, \quad \tilde{t} = t/h, \quad \tilde{\gamma}_e = \gamma_e/c \cdot h, \quad \tilde{\gamma}_s = \gamma_s/c \cdot h. \quad (4)$$

Полная энергия в этом случае будет иметь вид

$$E = 2 \cdot c \cdot h^3 \left\{ (\tilde{s} + \tilde{t})(\tilde{\gamma}_e \csc \theta - \tilde{\gamma}_s \operatorname{ctg} \theta) - \left( \tilde{s} \ln \left( \frac{\tilde{t}}{\alpha \cdot \operatorname{ctg} \theta} \right) + \tilde{t} \ln \left( \frac{\tilde{s}}{\alpha \cdot \operatorname{ctg} \theta} \right) \right) \right\}, \quad (5)$$

где  $\alpha = e^{-3/2}$ . В этой модели  $h$  — постоянная величина, а произведение  $c \cdot h^3$  имеет размерность энергии, все остальные величины в фигурных скобках выражены в относительных единицах. Эта функция достаточно сложна, и исследовать аналитически ее свойства не представляется возможным. В связи с этим был проведен численный анализ этой функции, результаты которого представлены на рис. 1–3. В результате этого моделирования показано, что минимум для зависимости  $E(\theta)$  может возникнуть при углах  $0 < \theta < \pi/2$ , если значения  $\tilde{\gamma}_s$  и  $\tilde{\gamma}_e$  близки или равны (рис. 1). Необходимо отметить, что в данном случае мы исследовали только математические закономерности зависимости  $E(\theta)$  при варьировании различных параметров, не накладывая при этом физических ограничений. Все физические выводы должны быть связаны с минимумом энергии  $E$ . Численный анализ показывает (рис. 1), что минимум возникает только при не очень малых значениях  $\tilde{\gamma}_s$  и  $\tilde{\gamma}_e$ , в частности в нашем случае при  $\tilde{\gamma}_s$  и  $\tilde{\gamma}_e \geq 5$ . С другой стороны, если  $\tilde{\gamma}_s < \tilde{\gamma}_e$  (кривая 7 на рис. 1), значение  $E_{\min}$  соответствует  $\theta = \pi/2$  и островок в этом случае должен расти в форме призмы. Следует отметить, что  $E_{\min}$  и

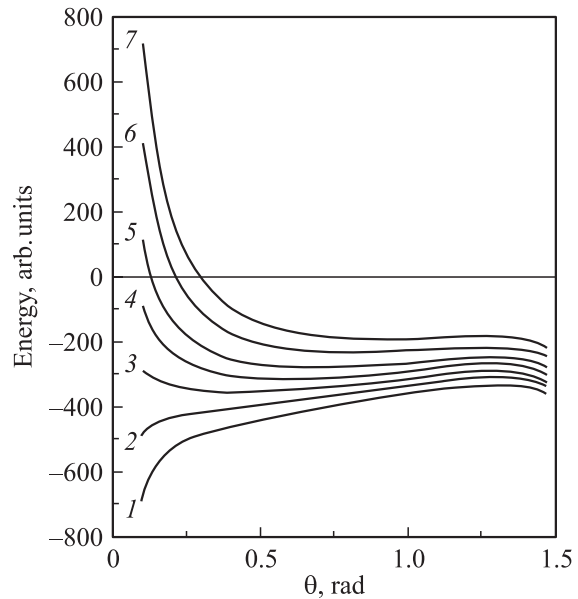
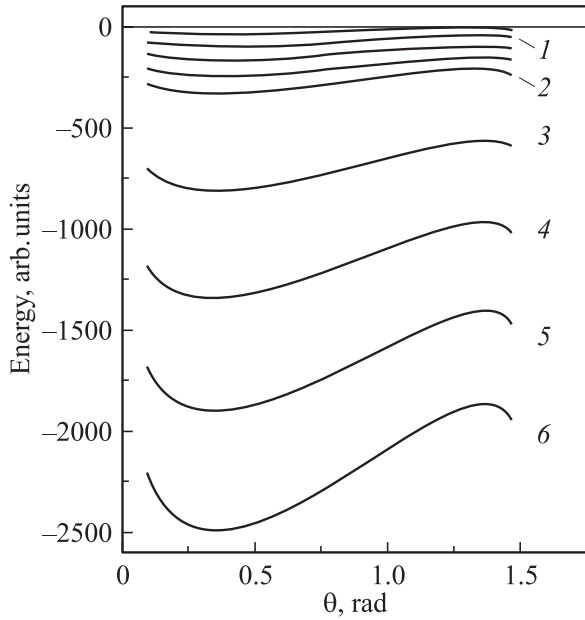


Рис. 1. Зависимость энергии островка от угла  $\theta$  при постоянных  $\tilde{s} = \tilde{t} = 5$  и  $\tilde{\gamma}_s = 5$  и при варьировании величины параметра  $\tilde{\gamma}_e$  от 4.6 (1) до 5.8 (7).



**Рис. 2.** Зависимость энергии островка от угла  $\theta$  при постоянных значениях  $\tilde{\gamma}_s = \tilde{\gamma}_e = 6$  и различных значениях  $\tilde{s}, \tilde{t} (\tilde{s} = \tilde{t})$ : 1 — 10, 2 — 50, 3 — 100, 4 — 150, 5 — 200, 6 — 250.

соответствующее ей значение угла  $\theta$  (рис. 2) зависят от соотношения между  $\tilde{\gamma}_s$  и  $\tilde{\gamma}_e$  (при постоянных  $\tilde{s}, \tilde{t}$ ), что не согласуется с результатами [4]. Анализируя результаты, представленные на рис. 2, можно сделать вывод, что не существует таких значений  $(\tilde{s}, \tilde{t})$ , при которых бы энергия  $E$  имела бы глобальный минимум — чем больше  $\tilde{s}$  и  $\tilde{t}$ , тем меньше энергия системы. Таким образом, теоретически имеет место тенденция к неограниченному увеличению  $s$  и  $t$ .

Из рис. 1 видно, что при данных  $\tilde{s}, \tilde{t}$  и  $\tilde{\gamma}_s = \text{const}$  варьирование  $\tilde{\gamma}_e$  только смещает кривые зависимости  $E(\theta)$ , но не приводит к их пересечению. Однако, такие кривые могут пересекаться с другими кривыми (рисунок не приводится), отвечающим иным значениям  $\tilde{s}, \tilde{t}$  и одинаковым значениям  $\tilde{\gamma}_e$ .

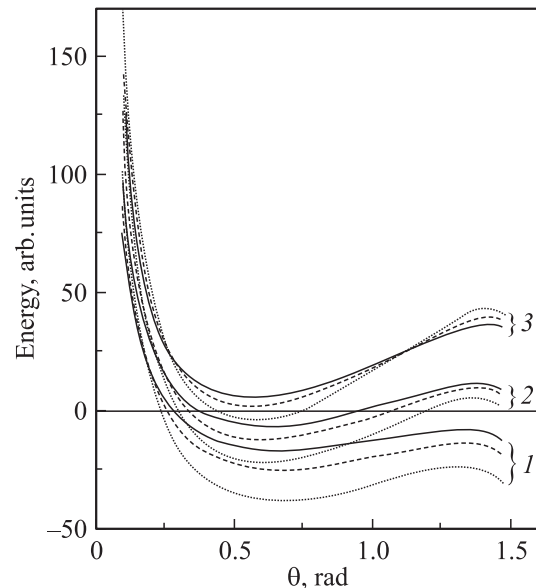
**3.2. Влияние температуры роста и концентрации атомов Si в островках на полную энергию  $E$  островков.** Все приведенные выше рассуждения относятся только к островкам из чистого германия. Экспериментальные результаты, полученные многими авторами, в частности [2], показывают, что в процессе роста германиевых островков на подложке Si имеет место диффузия в них атомов Si. Концентрация атомов Si в островках возрастает при увеличении температуры роста, что подтверждается результатами по КРС [2]. С увеличением концентрации атомов Si в островках несоответствие постоянной решетки островка и подложки уменьшается, и как результат уменьшается величина напряжений. В линейном приближении можно записать:  $\sigma_b = \sigma_{b0}(1 - \alpha_c x)$ ,  $0 < \alpha_c < 1$ , где  $\alpha_c$  — произвольный коэффициент.

Существует еще один фактор, влияющий на величину механических напряжений, связанный с различным значением линейных коэффициентов термического расширения наностроек SiGe и подложки Si. Из термодинамики напряженной системы известно [6], что механическое напряжение равно  $\sigma_b = \sigma_{b0} + K\alpha_T(T - T_0)$ , где  $\sigma_{b0}$  — напряжение при  $T_0$ ,  $K$  — модуль всестороннего сжатия,  $\alpha_T$  — коэффициент термического расширения,  $T - T_0$  — разница температур. Механические напряжения возрастают пропорционально разности  $\alpha_{Si} - \alpha_{Ge}$  с ростом температуры. Для температурного интервала, в котором эта разность постоянна, можно записать

$$\sigma_b = \sigma_{b0} \left[ 1 + \beta_T \left( \frac{T}{T_0} - 1 \right) \right] (1 - \alpha_c x), \quad \beta_T = \frac{K\Delta\alpha_T T_0}{\sigma_{b0}}. \quad (6)$$

Воздействия на величину механического напряжения в островке коэффициента термического расширения  $\alpha_T$  и концентрации кремния ( $x$ ) в определенной области температур противоположны, и величина результирующего напряжения  $\sigma_b$  зависит от того, какое из них преобладает.

На рис. 3 представлена зависимость  $E(\theta)$  для трех наборов  $\tilde{s}, \tilde{t}$  при  $x = 0$  и 0.5. Видно, что при отсутствии Si в островках ( $x = 0$ , серия кривых 1) все зависимости имеют минимум, причем  $E_{\min} < 0$ . При увеличении концентрации Si в островках до 0.5, согласно (4) и зависимости  $c \sim (\sigma_b)^2$ , изменяются значения  $\tilde{\gamma}_s$  и  $\tilde{\gamma}_e$ , что приводит к смещению кривых вверх (серия 3), две из которых имеют  $E_{\min} > 0$ . С физической точки зрения это значит, что зародившиеся островки при таких параметрах будут диссоциировать. Если принять



**Рис. 3.** Зависимость энергии островка от угла  $\theta$  для трех разных наборов параметров: 1 — концентрация Si в островке  $x = 0$ ,  $\beta = 0$ ; 2 —  $x = 0.5$  и  $\beta = 0.3$ ; 3 —  $x = 0.5$  и  $\beta = 0$ . В каждом из трех наборов кривых сплошная линия соответствует  $\tilde{s} = \tilde{t} = 10$ , штриховая —  $\tilde{s} = \tilde{t} = 12$ , пунктирная —  $\tilde{s} = \tilde{t} = 15$ .

в расчет влияние коэффициентов термического расширения ( $\beta \neq 0$ ), можно получить зависимости, которые представлены серией кривых 2. При этом изменение энергии  $E$  происходит не столь быстро, как при  $\beta = 0$ . В этом случае все островки сохраняются, поскольку для всех кривых  $E_{\min} < 0$ , в отличие от двух верхних кривых серии 3. Этот результат показывает, что влияние концентрации Si ( $x$ ) в островках и термических коэффициентов расширения  $\beta$  могут частично компенсировать друг друга, в связи с чем относительные размеры ( $h/t, s$ ) островков не сильно изменятся с ростом температуры. Кроме того, из рис. 3 видно, что состояния с малыми  $\tilde{t}, \tilde{s} = t, s/h$  являются неустойчивыми. Это значит, что при фиксированных  $t, s$  состояния с наибольшими  $h$  будут исчезать в первую очередь.

Таким образом, детальный анализ роста напряженных наностроек SiGe показал, что их размер зависит от температуры, концентрации Si в островках и числа осажденных монослоев Ge. Численный анализ показал, что уменьшение упругой энергии островков обуславливает увеличение их латеральных размеров по сравнению с высотой. Повышение температуры роста сложным образом влияет на соотношение между поверхностными и объемными физическими характеристиками островков, и при данных температуре, концентрации Si в островках и времени роста должно существовать граничное отношение высоты к латеральным размерам, определяющее форму островков.

## Список литературы

- [1] K. Bruner. Rep. Prog. Phys. **65**, 27 (2002).
- [2] Z.F. Krasilnik, P.M. Lytvyn, D.N. Lobanov, N. Mestres, A.V. Novikov, J. Pascual, M.Ya. Valakh, V.A. Yukhymchuk. Nanotechnology **13**, 81 (2002).
- [3] J. Tersoff, R.M. Tromp. Phys. Rev. Lett. **70**, 18, 2782 (1993).
- [4] J. Tersoff, F.K. LeGoues. Phys. Rev. Lett. **72**, 22, 3570 (1994).
- [5] Y.W. Zhang, A.F. Bower. Appl. Phys. Lett. **78**, 18, 2706 (2001).
- [6] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теор. физика. Т. VII. Теория упругости. Наука, М. (1987). С. 28.