

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ
ИНСТИТУТ ФИЗИКИ ПОЛУПРОВОДНИКОВ

на правах рукописи

Смагина Жанна Викторовна

Эффекты низкоэнергетического ионного воздействия
при эпитаксии Ge на Si

специальность: 01.04.10 — физика полупроводников

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
профессор, доктор физико-математических наук
Двуреченский А. В.

Новосибирск – 2008

СПИСОК ОБОЗНАЧЕНИЙ

МЛЭ – молекулярно-лучевая эпитаксия

ДБЭ – дифракция быстрых электронов

СТМ – сканирующая электронная микроскопия

ПЭМ – просвечивающая электронная микроскопия

КРС – комбинационное рассеяние света

EXAFS – растянутая тонкая структура рентгеновского поглощения

РОР – резерфордское обратное рассеяние

ФЛ – фотолюминесценция

ППС – приближение парных столкновений

МД – молекулярная динамика

МК – Монте-Карло

КТ – квантовая точка

2D – двумерный

3D – трёхмерный

МС – монослой

БС – бислой

ЭЛИ – электронно-лучевой испаритель

ДН – дислокации несоответствия

k – постоянная Больцмана

T – температура

D – коэффициент диффузии адатомов

τ – время жизни адатома

τ_i – длительность импульса

F – плотность молекулярного потока

j – плотность ионного потока

J – интегральный поток ионов

E_{ion} – энергия иона

ν_0 – частота тепловых колебаний атомов

a – среднее межатомное расстояние

E_a – энергия активации поверхностной диффузии

n_1, n_2 – число ближайших соседей в первой и второй координационной сфере диффузионного прыжка

E_1, E_2 – энергия связи атома с ближайшими соседями

M_1, Z_1 – масса и атомный номер иона

M_2, Z_2 – масса и атомный номер атома мишени

E_d – порог смещения атома из узла решетки с образованием пары дефектов вакансия-междоузлие

C – концентрация поверхностных вакансионных кластеров

N – плотность островков

θ – степень заполнения поверхностного монослоя

x – содержание материала

χ – выход обратного рассеяния

ϵ – тензор деформации

δ – среднеквадратическое отклонение от среднего размера островка

v_{dep} – скорость осаждения материала

E_{el} – упругая энергия решетки

СОДЕРЖАНИЕ

Введение.....	8
ГЛАВА 1. ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР.....	14
§ 1.1. Формирование гетероструктур Ge/Si	14
1.1.1. Механизмы формирования трёхмерных островков в процессе гетероэпитаксии.....	14
1.1.2. Морфологические перестройки в гетероструктурах Ge/Si	19
1.1.3. Сверхструктурные переходы в процессе эпитаксии Ge на Si(111).....	27
1.1.4. Сверхструктурные переходы в процессе эпитаксии Ge на Si(100).....	30
1.1.5. Способы управления процессом эпитаксии в системе Ge/Si	31
1.1.5.1. Температура и скорость осаждения.....	35
1.1.5.2. Влияние состава осаждаемого материала.....	38
1.1.5.3. Присутствие дополнительных химических элементов	39
1.1.5.4. Предосаждение слоя $Si_{1-x}Ge_x$	40
1.1.5.5. Облучение низкоэнергетическими ионами.....	40
1.1.5.6. Дополнительные пути управления характеристиками массивов самоформирующихся островков	41
§ 1.2. Ионное облучение как способ управления ростом эпитаксиальных пленок.....	43
1.2.1. Физические процессы при взаимодействии ионов с твердым телом.....	43
1.2.1.1. Шкала энергий ионов	44
1.2.1.2. Упругие и неупругие столкновения.....	45
1.2.1.3. Приближение парных столкновений и молекулярная динамика.....	47
1.2.1.4. Локальная модификация поверхности, генерация адатомов	49
1.2.1.5. Сверхструктурные переходы.....	51
1.2.1.6. Стимуляция зародышеобразования.....	51

1.2.1.7. <i>Распыление, создание дефектов в приповерхностном слое, выглаживание</i>	52
1.2.2. Влияние ионного пучка на процесс роста пленок	54
1.2.2.1. <i>Энергия ионного пучка</i>	54
1.2.2.2. <i>Плотность ионного пучка</i>	57
1.2.2.3. <i>Длительность воздействия ионным пучком</i>	60
Заключение по главе 1	67
ГЛАВА 2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТОВ	68
§ 2.1. Установка молекулярно-лучевой эпитаксии.....	68
2.1.1. Сверхвысоковакуумная установка молекулярно-лучевой эпитаксии	68
2.1.2. Электронно-лучевой испаритель кремния	71
2.1.3. Тигельный источник	73
2.1.4. Устройство ионизации	75
2.1.5. Нагреватель подложки и контроль температуры.....	76
2.1.6. Электронная пушка для дифракции быстрых электронов	80
§ 2.2. Формирование эпитаксиальных слоев Si и Ge.....	81
2.2.1. Предэпитаксиальная подготовка поверхности подложки.....	81
2.2.2. Молекулярно-лучевая эпитаксия слоев Si	83
2.2.3. Осаждение слоев германия из ионно-молекулярных пучков	84
§ 2.3. Методики исследования структур	85
2.3.1. Дифракция быстрых электронов	85
2.3.2. Сканирующая туннельная микроскопия	91
2.3.3. Резерфордское обратное рассеяние	95
2.3.4. Просвечивающая электронная микроскопия	101
2.3.5. Комбинационное рассеяние света	104
2.3.6. Дополнительные методы исследования	108

2.3.6.1. Растянутая тонкая структура рентгеновского поглощения (EXAFS)	108
2.3.6.2. Фотолюминесценция	108
Заключение по главе 2	109
ГЛАВА 3. ФОРМИРОВАНИЕ ГЕТЕРОСТРУКТУР Ge/Si ИЗ ИОННО-МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ	
110	
§ 3.1. Эффекты низкоэнергетического ионного воздействия при гетероэпитаксии	
Ge/Si(111) из молекулярного пучка	111
3.1.1. Ионно-стимулированное зарождение островков Ge на Si(111)	111
3.1.2. Упорядочение нанокристаллов Ge на Si(111) при импульсном ионном облучении ..	117
§ 3.2. Гетероструктуры Ge/Si(100) с нанокристаллами Ge, формируемые из ионно молекулярных пучков.....	120
3.2.1. Исследование ионно-стимулированного роста трёхмерных островков Ge на Si(100) методом дифракции быстрых электронов.....	120
3.2.1.1. Смена механизма роста плёнки Ge	120
3.2.1.2. Эволюция механических напряжений плёнки Ge	125
3.2.1.3. Реконструкции поверхности	128
3.2.2. Исследование формы, размера и плотности нанокристаллов Ge, сформированных при гетероэпитаксии Ge/Si(100) из ионно-молекулярных пучков, методом сканирующей туннельной микроскопии.....	132
3.2.2.1. Сравнение непрерывного и импульсного режимов облучения.....	132
3.2.2.2. Зависимость плотности островков от температуры подложки	134
3.2.2.3. Зависимость плотности островков от плотности ионного потока и энергии ионов.....	134
3.2.3. Элементный состав нанокристаллов Ge на Si(100).....	139
3.2.3.1. Комбинационное рассеяние света.....	139

3.2.3.2. EXAFS-спектроскопия	144
3.2.4. Совершенство гетероструктур Ge/Si(100).....	146
3.2.4.1. Резерфордское обратное рассеяние.....	146
3.2.4.2. Просвечивающая электронная микроскопия.....	150
3.2.5. Фотолюминесценция нанокристаллов Ge на Si(100).....	150
Заключение по главе 3	154
ГЛАВА 4. МОДЕЛИРОВАНИЕ ИОННО-СТИМУЛИРОВАННОГО РОСТА Ge	
НАНОКЛАСТЕРОВ НА ПОВЕРХНОСТИ Si	
§ 4.1. Первая модель: воздействие ионного облучения непосредственно на поверхность ...	157
4.1.1. Описание модели	157
4.1.2. Результаты моделирования.....	162
§ 4.2. Вторая модель: ионное воздействие на приповерхностные слои	166
4.2.1. Основные положения модели.....	166
4.2.2. Основные результаты	174
§ 4.3. Сопоставление результатов моделирования и эксперимента.....	181
4.3.1. Сравнение двух моделей.....	181
4.3.2. Зависимость плотности островков от интегрального потока ионов; импульсное и непрерывное облучение	181
4.3.3. Ионно-стимулированный рост на поверхностях (100) и (111).....	184
4.3.4. Сравнение вкладов междоузельных атомов и вакансий	186
Заключение по главе 4	187
ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ.....	
Заключение	190
Литература	194

ВВЕДЕНИЕ

В конце 1980-х годов прогресс в физике и технологии двумерных гетероструктур с квантовыми ямами привлёк внимание многих учёных к изучению систем, обладающих ещё меньшей размерностью — квантовых проволок и квантовых точек (КТ) [1]. Квантовые точки представляют собой предельный случай систем с пониженной размерностью: движение носителей заряда в них ограничено во всех трёх направлениях, а энергетический спектр носителей — дискретный. В настоящее время ведутся работы по созданию новых устройств электроники и оптоэлектроники на основе гетероструктур с квантовыми точками: транзисторов [2, 3], быстродействующих элементов электронной памяти [4, 5], узкополосных светодиодов [6], гетеролазеров с излучением нужного цвета [7], фотоприемников ИК-диапазона [8, 9], квантовых компьютеров [10].

В последние несколько лет наметились перспективы использования полупроводниковых материалов на основе германия и кремния, содержащих нанокристаллы Ge, “встроенные” в матрицу Si. Такие нанокристаллы выступают в роли квантовых точек, т. к. в них происходит локализация носителей заряда во всех трёх направлениях [13]. Интерес к нанокластерам Ge в Si связан с рядом обстоятельств: 1) успехи в разработке технологии получения достаточно однородного по размеру массива нанокластеров Ge; 2) возможность уменьшения размеров нанокластеров до значений, обеспечивающих проявление эффектов размерного квантования и электрон-электронного взаимодействия вплоть до комнатной температуры; 3) совместимость разработанных методов с существующей кремниевой технологией изготовления дискретных приборов и схем.

Для получения гетероструктур Ge/Si с квантовыми точками широко используется метод молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) [12]. Формирование Ge нанокристаллов (квантовых точек) происходит по механизму Странского-Крастанова. 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 КТ.

Другая важная задача заключается в повышении плотности массива нанокристаллов. Данная задача возникает в связи с требованием высокой эффективности лазеров, фотоприемников [13], а также при создании быстродействующих и энергонезависимых элементов памяти [11]. В сочетании с дополнительным требованием на малый размер (<10 нм) это приводит к необходимости формирования массивов КТ со слоевой плотностью не менее 10^{12} см^{-2} [7, 12].

В настоящее время развивается несколько подходов, основанных на управлении зарождением и ростом нанокристаллов на поверхности в процессе гетероэпитаксии. Например, стимулирование зарождения нанокристаллов путем: предварительного нанесения субмонослойных покрытий примесных элементов (сурьма, кислород) [14-17]; создания напряженного слоя (предварительный рост слоев твердого раствора) [18]; формирования мест зарождения при отклонении от сингулярных плоскостей или травлении локальных областей после прецизионных операций литографии [19, 20]. В работе [21] предложен метод повышения однородности массива квантовых точек Ge/Si, основанный на импульсном лазерном воздействии на структуры с КТ.

Независимую возможность в управлении процессом эпитаксии способно дать воздействие частиц, имеющих достаточно большую энергию по сравнению с энергией тепловых частиц (~ 0.1 эВ) в молекулярном пучке, но недостаточную для интенсивной генерации и накопления дефектов в объеме эпитаксиальной пленки и подложки. Моделирование методом молекулярной динамики показывает, что столкновение низкоэнергетического (~100 эВ) иона с поверхностью полупроводников приводит к генерации адатомов за счет выбивания атомов из приповерхностного слоя толщиной 1-3

монослоя и распылению материала [22]. На месте выбитых атомов на поверхности растущего слоя формируется вакансионный и адатомные кластеры, которые могут служить местами преимущественного зарождения островков новой фазы [22, 23]. Кроме того, ионы, сталкиваясь с поверхностью, могут энергетически стимулировать процессы диффузии и фазового перехода [24, 25].

Известно, что использование «сверхтепловых частиц» при осаждении и эпитаксии приводит к сильным изменениям в кинетике роста и результирующих физических свойствах пленок различных материалов, включая элементарные полупроводники [26-30], полупроводниковые соединения [31, 32], металлы [33]. При этом наблюдается ряд физических эффектов: уменьшение глубины рельефа поверхности («выглаживание» поверхности) [34]; снижение температуры эпитаксии полупроводников на несколько сотен градусов [35]; повышение вероятности встраивания элементов при росте из молекулярного пучка [36]; рост совершенных тонких пленок при гетероэпитаксии в условиях большого рассогласования постоянных решеток, при котором в отсутствие низкоэнергетического облучения ионами формируются неупорядоченные системы. Наиболее ярким примером последнего эффекта является рост кристаллической пленки алюминия на кремнии при рассогласовании постоянных решеток до 25% [37].

В ряде работ [38, 24] было показано, что *импульсное* ионное воздействие обеспечивает дополнительные возможности по сравнению с непрерывным облучением. В частности, кратковременное ионное облучение используется для синхронизации зарождения двумерных островков (2D) и способствует росту плёнки по двумерно-слоевому механизму [38]. Применительно к гомоэпитаксии Si было установлено, что импульсное ионное воздействие меняет реконструкции растущей поверхности и существенно влияет на кинетику роста 2D островков [24].

Таким образом, изменение параметров ионного пучка (энергии, плотности, длительности ионного воздействия) дает возможность независимого управления скоростью

основных процессов на поверхности растущей плёнки (скорость зарождения, диффузии). Можно предположить, что ионное воздействие при гетероэпитаксии Ge/Si позволит контролировать процессы, связанные с формированием нанокристаллов Ge, и выявить, какие из процессов являются определяющими, установить природу происходящих изменений.

Цель данной работы заключается в выявлении эффектов низкоэнергетического ионного воздействия при гетероэпитаксии Ge на Si и в разработке метода формирования нанокристаллов Ge из ионно-молекулярных пучков.

В связи с этим, **в настоящей работе решаются следующие задачи:**

1) Исследование морфологии и структуры слоёв германия при гетероэпитаксии Ge/Si из ионно-молекулярных пучков в зависимости от условий их получения (температуры подложки, энергии ионов, доли ионизации молекулярного потока);

2) Исследование распределения островков Ge на поверхности Si по размерам для молекулярно-лучевой эпитаксии Ge на Si с непрерывным и импульсным облучением низкоэнергетическими (50-250 эВ) ионами;

3) Исследование кристаллического совершенства и элементного состава гетероструктур Ge/Si со встроенными нанокристаллами Ge, сформированными при облучении низкоэнергетическими ионами;

4) Построение модели зарождения nanoостровков Ge на поверхности Si при импульсном ионном воздействии в процессе гетероэпитаксии Ge/Si.

Научная новизна настоящей работы заключается в следующем:

1) Обнаружено, что облучение низкоэнергетическими ионами в процессе гетероэпитаксии Ge/Si приводит к уменьшению критической толщины псевдоморфного слоя, при которой происходит переход от двумерно-слоевого к трёхмерному росту островков.

2) Впервые показано, что импульсное ионное воздействие в процессе гетероэпитаксии Ge на Si приводит к уменьшению разброса трёхмерных островков по размеру по сравнению с эпитаксией без ионного облучения.

3) Предложена модель и проведены численные эксперименты, показывающие, что деформационные поля, создаваемые кластерами междоузельных атомов и вакансий в приповерхностной области являются центрами зарождения трёхмерных островков.

Практическая ценность. Предложен метод зарождения и роста однородного массива нанокристаллов Ge на Si с помощью импульсного воздействия собственных низкоэнергетических ионов в процессе осаждения из молекулярных пучков. Данный метод может составить основу управления процессом формирования квантовых точек в полупроводниковых наноструктурах.

На защиту выносятся следующие основные положения и результаты:

1) При облучении низкоэнергетическими ионами в процессе гетероэпитаксии Ge на Si (100) и (111) наблюдается уменьшение на 1-2 атомных слоя критической толщины плёнки Ge, при которой происходит переход от двумерно-слоевого к трёхмерному росту.

2) В условиях импульсного ионного облучения определены режимы роста плёнки Ge (температура подложки 250 – 300°C, плотность молекулярного потока $3 \cdot 10^{13} - 2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, интегральный поток ионов $\leq 10^{12} \text{ см}^{-2}$, энергия ионов 100 – 150 эВ, длительность ионного воздействия 0.5 с), при которых наблюдаются увеличение плотности трёхмерных островков Ge на Si (с 10^{11} см^{-2} до 10^{12} см^{-2}), уменьшение их среднего размера (с 22 нм до 6.5 нм) и дисперсии по размерам (с 16% до 11%).

3) Найдены условия, при которых гетероструктуры со встроенными нанокристаллами $\text{Ge}_{1-x}\text{Si}_x$, сформированные в процессе эпитаксии с импульсным ионным облучением, не содержат протяженных дефектов. При этом доля германия в островках остается той же, что и при эпитаксии без облучения (~75%).

4) Разработан метод формирования однородного массива нанокристаллов Ge на Si посредством гетероэпитаксии из ионно-молекулярных пучков. Метод основан на периодическом, кратковременном – меньше времени роста монослоя – воздействии

собственными низкоэнергетическими ионами Ge^+ на стадии начала роста каждого атомного слоя.

5) Предложена модель ионно-стимулированного зарождения трёхмерных островков в процессе гетероэпитаксии Ge/Si. Модель включает в себя осаждение из молекулярного пучка, поверхностную диффузию адатомов и генерацию вакансий и междоузельных атомов ионным пучком в приповерхностном объёме растущей плёнки. В модели предполагается, что вакансии и междоузельные атомы создают дополнительную деформацию поверхностного слоя, которая изменяет энергию связи адатома с поверхностью. Показано, что области локального растяжения поверхности над вакансиями и междоузельными атомами являются центрами преимущественного зарождения островков.

ГЛАВА 1. ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР

§ 1.1. Формирование гетероструктур Ge/Si

1.1.1. Механизмы формирования трехмерных островков в процессе гетероэпитаксии

На примере гетеросистемы Ge на Si давно изучается переход от послойного роста пленки к образованию трехмерных островков (3D) островков. Для этой гетеросистемы первые публикации появились ещё в 1970-х годах [39, 40]. При относительно низких температурах синтеза (300-500°C) такие островки имеют нанометровые размеры и не содержат дислокаций несоответствия даже после существенного превышения ими критических толщин [41], что позволило таким объектам найти применение в нанoeлектронике.

В гетероэпитаксиальном росте обычно различают три режима [6, 42]:

- 1) Франка – ван дер Мерве (Frank-van der Merve) – реализуется послойный (двумерный) рост материала В на подложке из материала А, материалы А и В согласованы по постоянной решетки;
- 2) Фолмера – Вебера (Volmer-Weber) – имеет место островковый (трехмерный) рост материала В на подложке А;
- 3) Странского – Крастанова (Stranski-Krastanow) – на первых этапах роста реализуется послойный рост материала В на подложке А с образованием смачивающего слоя, а затем, после того, как плёнка В достигнет определённой критической толщины, происходит образование и рост трёхмерных островков из материала В.

В полупроводниковых гетеросистемах при наличии рассогласования по постоянной решетки между осаждаемым материалом и подложкой на первых этапах процесс роста идёт

по двумерно-слоевому механизму, т.е. через последовательное зарождение и срастание двумерных островков с формированием сплошного слоя. При достижении критической толщины плёнки на её поверхности формируются трехмерные островки, здесь реализуется режим роста Странского – Крастанова.

Основные закономерности зарождения объемных островков в эпитаксиальной гетероструктуре с большим ($> 2\%$) рассогласованием параметра решёток определяются балансом поверхностной энергии пленки, а также внутренней энергии объема островка, в которую входит энергия упругой деформации. Свободная энергия вновь образованного зародыша 3D островка на поверхности подложки может быть выражена в виде трех составляющих [12, 43]:

$$\Delta G = - V\Delta\mu + \gamma S + E(V, h/L). \quad (1.1)$$

Здесь первый член – работа образования нового зародыша объема V , $\Delta\mu$ – термодинамическая движущая сила кристаллизации – пересыщение (разность химических потенциалов адатомов и атомов встроенных в пленку); второе слагаемое – работа, необходимая для создания дополнительной поверхности S , γ – поверхностная энергия зародыша. Третье слагаемое представляет дополнительную энергию, возникающую из-за упругой деформации зародыша. Первые два слагаемых выражения представляют классический вариант теории зарождения (см., например, [44, 45]). Причём под поверхностной энергией γS следует понимать выражение [44]:

$$\sum_i \gamma S_i = \gamma S_1 - \gamma S_2,$$

здесь S_1 , S_2 – площадь внешней поверхности островка и площадь контакта островка с подложкой.

В данной формуле не учитывается энергия границы раздела островок – подложка, что может быть существенно при гетероэпитаксии. Однако для гетеросистемы Ge/Si зарождение трёхмерных островков происходит на уже сформированном смачивающем слое германия

(механизм Странского – Крастанова). Поэтому величина энергия границы раздела островок – смачивающий слой много меньше удельной поверхностной энергии и поэтому ей обычно пренебрегают [46].

Последнее слагаемое в (1.1) появляется только в случае выращивания напряженных пленок. Величина этой дополнительной энергии зависит не только от объема зародыша, но и от его геометрической формы. Геометрия зародыша определяется отношением его высоты h к размеру основания L и может играть существенную роль при переходе от 2D к 3D росту островков. Чем больше отношение h/L , тем меньше вклад энергии упругой деформации в его свободную энергию. Считается, что ключевым фактором перехода от двумерно-слоевого к трехмерному островковому росту псевдоморфных пленок является понижение энергии системы из-за упругой релаксации механических напряжений в вершинах трёхмерных островков. Это подтверждается тем, что в случае гомоэпитаксии практически для всех полупроводников трёхмерные островки не образуются, а рост пленки идет либо за счет движения ступеней, либо путем формирования и срастания двумерных островков. В работах [47, 48] было показано, что шероховатая поверхность напряженного слоя имеет меньшую суммарную энергию (энергия напряжений плюс поверхностная энергия) вследствие упругой релаксации напряжений в вершинах выступов. Увеличение поверхностной энергии из-за возрастания площади шероховатой поверхности является фактором, противодействующим развитию рельефа пленки, однако это только частично уменьшает энергетический выигрыш за счет релаксации. Чем больше рассогласование параметра решеток пленки и подложки, тем при меньшей критической толщине псевдоморфной пленки теряется её морфологическая стабильность. Образование островков является крайним проявлением морфологической неустойчивости напряженных пленок и обычно наблюдается в системах с большим рассогласованием параметра решеток пленки и подложки, типичными представителями которых являются Ge-Si и InAs-GaAs.

Для получения островковой пленки пригодной для практических применений определяющим этапом, возможно, является момент созревания кластеров и их дальнейшего развития, поскольку он определяет форму и распределение островков по размерам. Существуют различные модели, описывающие позднюю стадию развития островков. Например, модель Оствальдовского созревания кластеров [45]. В соответствии с этой моделью поздняя стадия развития кластеров определяется их диффузионным взаимодействием внутри пересыщенного "моря" адатомов. При этом островки малых размеров из-за большей кривизны их поверхности в соответствии с эффектом Гиббса-Томсона [45] (зависимость концентрации адатомов на границе с зародышем от кривизны его поверхности) растворяются и пропадают, а большие островки растут. Характерным признаком Оствальдовского созревания является непрерывное увеличение во времени среднего размера островков. Механизм Оствальдовского созревания доминирует, в основном, при росте гомоэпитаксиальных структур.

Многочисленные исследования последних лет привели к выводу о том, что упругие деформации в эпитаксиальных пленках и 3D островках существенно влияют на их морфологию. Возникающие упругие напряжения по периферии островков возрастают с увеличением их размеров, что изменяет закономерности присоединения адатомов к островкам, уменьшая их скорость роста. Считается, что появление и увеличение связанного с этим барьера – одна из главных причин, сужающих распределение островков по размерам. Так, например, Осиповым и др. [49] предложена модель, описывающая зарождение 3D островков и их эволюцию после зарождения. В работе предполагалось, что рост трехмерных островков обусловлен деформациями и/или энергетическим барьером, возникающим при формировании граней островков. Согласно работе [50] зависимость энергетического барьера U от размера островка приблизительно имеет вид:

$$U(R) \sim k_b T_0 (R / \sqrt{D\tau})^p, \quad (1.2)$$

где $T_0 \sim \varepsilon^2$ — характерная температура “самоограниченного” роста островков; τ — время жизни адатомов, D — коэффициент диффузии, p — подгоночный параметр, близкий по значению к 2, R — радиус островка.

Учитывая соотношение (1.2) было получено аналитическое выражение для скорости роста когерентных островков:

$$v_i = 2\pi D n_{eff} \xi f(R/\sqrt{D\tau}), \quad (1.3)$$

где n_{eff} — равновесная концентрация адатомов, ξ — пересыщение, f — функция роста, выраженная через специальные функции. На рисунке 1.1 показана зависимость скорости роста островка от его размера. Хорошо видно, что большие островки растут медленнее, т.к. имеют большой энергетический барьер для встраивания адатомов. Зависимость энергетического барьера встраивания адатомов от размера островка ведет к тому, что размер когерентных островков оказывается ограничен сверху. То есть маленькие островки начинают догонять по размеру большие, что приводит к уменьшению разброса островков по размерам.

В работе Varabasi et al. [51] сформулирована атомная модель для исследования самоорганизации островков в процессе гетероэпитаксиального роста. Показано, что неоднородные поля упругих напряжений вблизи 3D островков действуют, как отталкивающая сила, ведущая к смещению адатомов от островков (см. рис. 1.2) и тем самым замедляющая их рост.

Кроме того, для больших островков энергия упругой деформации на их границах становятся сравнима с энергией связи краевых атомов, тем самым, увеличивая вероятность их отделения от островков. Это способствует диссоциации островков. Согласно данным моделирования такой механизм благоприятствует уменьшению среднего размера островков и их разброса по размерам. Увеличение же количества осажденного материала ведет в

основном к увеличению плотности островков при почти неизменном среднем размере островков.

Вышеизложенный материал указывает на то, что упругие деформации в эпитаксиальных пленках и трехмерных островках являются ключевым фактором, обуславливающим морфологический переход от послойного роста пленки к трехмерному росту островков, и влияющим на последующие этапы роста островков, включая эволюцию их формы, размера и пространственного расположения.

1.1.2. Морфологические перестройки в гетероструктурах Ge-Si

В гетероструктурах Ge/Si экспериментально наблюдают несколько стадий роста островков в процессе увеличения эффективной толщины пленки. Эти стадии различны для подложек с ориентацией поверхности (001) и (111) [12]. На начальной стадии эпитаксии процесс роста идёт по двумерно-слоевому механизму, т.е. через последовательное зарождение и срастание двумерных островков с формированием сплошного (смачивающего) слоя. При достижении критической толщины плёнки Ge на её поверхности формируются трехмерные островки. Считается, что зарождение островков Ge на поверхности Si(111) происходит из атомов, адсорбированных на поверхности смачивающего слоя, а на Si(100) – из атомов самого смачивающего слоя, тем самым, понижая величину упругих напряжений в смачивающем слое [43]. На рисунке 1.3 показана зависимость состояния поверхности пленки Ge на Si(100) от температуры роста и количества осажденного материала в процессе эпитаксии, полученная *in situ* методом дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭ) [52]. Данный рисунок показывает, что после осаждения нескольких (~ 3 – 4) монослоев (МС) происходит переход к росту трехмерных островков. На картинах ДБЭ появление 3D островков сопровождается возникновением тяжёлых, сформированных рассеянием электронов на гранях {105}.

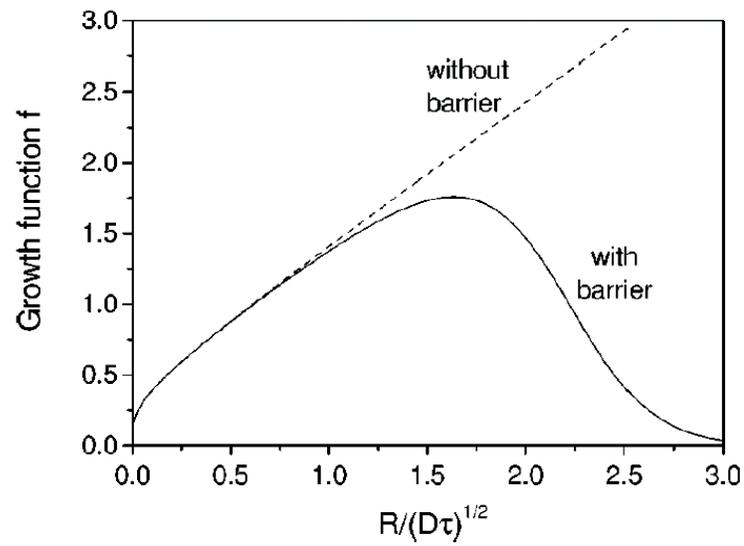


Рис. 1.1. Зависимость функции скорости роста островка от нормированного радиуса $R/\sqrt{(D\tau)}$; сплошная линия, с энергетическим барьером; пунктирная линия, без энергетического барьера [49].

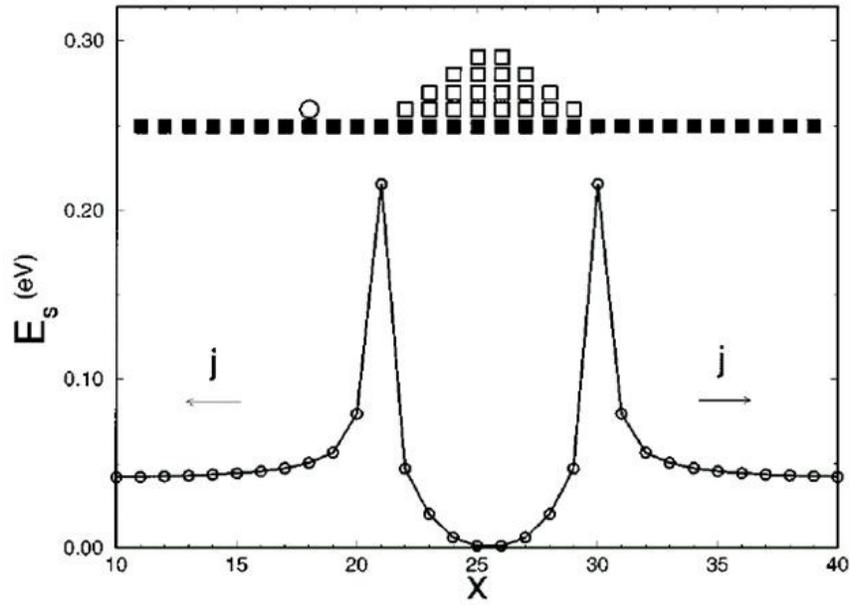


Рис. 1.2. Распределение энергии упругой деформации вокруг островка. Можно видеть, что наибольшие значения энергии упругих деформаций (E_s) возникают на границах островка ($x = 21.30$). E_s уменьшается при движении адатомов от островка, в результате чего формируется дрейфовый поток адатомов $j(x)$, показанный стрелками [51].

Такие островки получили название *hut*-кластеров благодаря своей огранке. Они имеют прямоугольное или квадратное основание, угол наклона боковых граней составляет $\approx 11^\circ$. На рисунке 1.4 приведено изображение *hut*-кластеров на Si(100) из работы [53], полученного с помощью сканирующего туннельного микроскопа (СТМ). *Hut*-кластеры характеризуются размерами основания от 10 до 50 нм [12] и отношением высоты к меньшей стороне прямоугольника, лежащего в основании, ~ 0.1 . Ориентация сторон основания *hut*-кластеров на плоскости определяется направлениями [100] и [010].

С ростом эффективной толщины пленки германия на картине ДБЭ наблюдается возникновение дополнительных тяжей, сформированных рассеянием электронов на гранях {113} и {15 3 23}. Эта стадия роста характеризуется формированием *dome*-кластеров (рис. 1.4,б) [54]. *Dome*-кластеры — более крупные островки (средний размер основания > 50 нм) по сравнению с *hut*-кластерами, огранённые плоскостями типа {113}, {105} и {15 3 23}. Они имеют сложную куполообразную форму и отношение высоты к длине основания больше 0.2. Переход от *hut*-кластеров к *dome*-кластерам сопровождается увеличением степени релаксации механических напряжений. По данным Floro et al. [55], материал в кластерах типа *hut* упруго релаксирован на 20%, тогда как в островках типа *dome* из-за большого отношения высоты к основанию релаксация составляет более чем 50%, при этом островки остаются по-прежнему когерентно сопряженными с подложкой. Последней стадией развития морфологии и структуры островков является образование трёхмерных пластически деформированных островков с дислокациями несоответствия на границе раздела с подложкой (рис. 1.4, в).

Поверхность (100) является уникальной с точки зрения получения приборно-ориентированных гетероструктур с квантовыми точками, потому что только на ней сравнительно легко получить трёхмерные бездислокационные островки размером 10-100 нм. Введение дислокаций несоответствия, снимающих упругие напряжения, на подложке с ориентацией (100) происходит на более поздней стадии роста, чем возникновение и развитие трёхмерных островков.

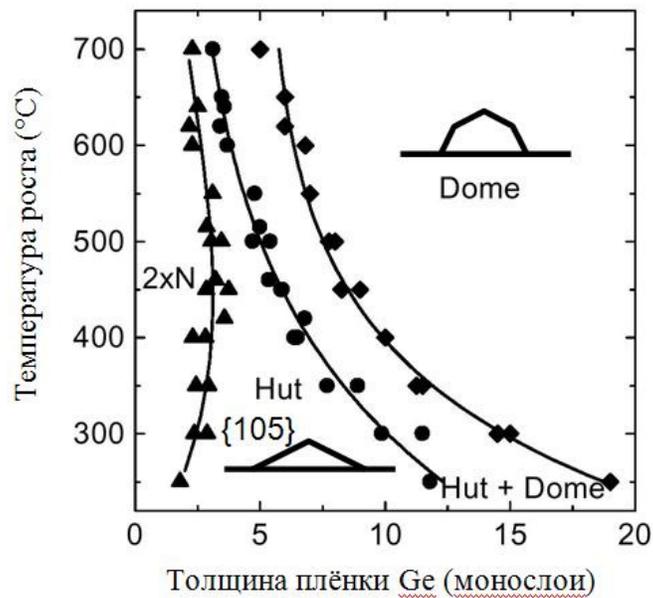


Рис. 1.3. Кинетическая диаграмма структурных переходов в процессе роста Ge плёнки на поверхности Si(100) – из работы А.И. Никифорова и др. [52]. $2 \times N$ – сверхструктура на поверхности Ge, соответствующая двумерно-слоевому росту; *hut* и *dome* – две разновидности Ge островков.

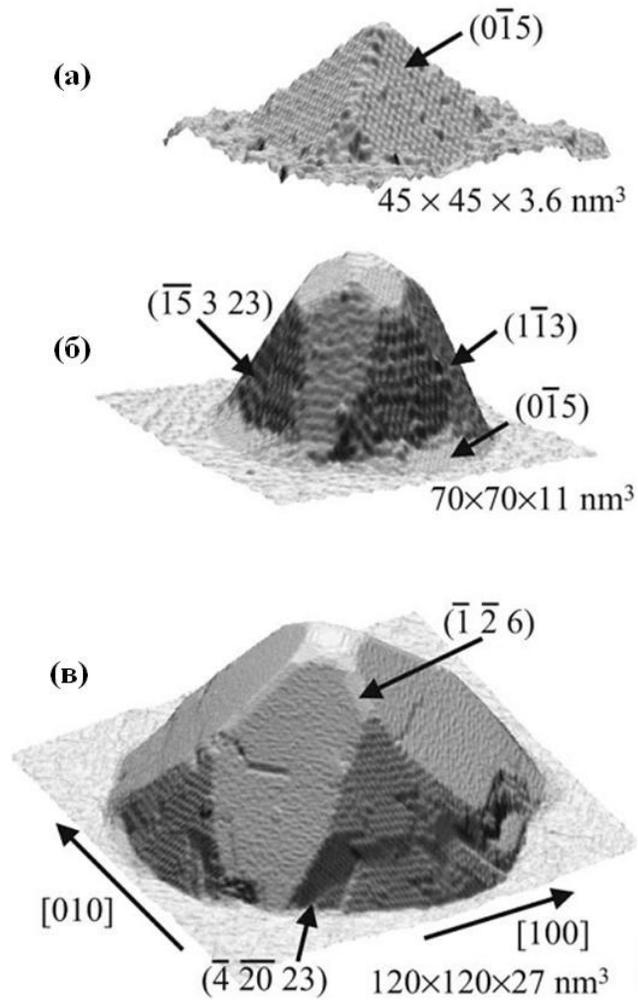


Рис. 1.4. СТМ - изображения островков Ge на подложке Si(100), полученные с помощью сканирующего туннельного микроскопа: (а) - островок в форме *hut*-кластера с длиной основания 40 нм; (б) - островок в форме *dome*-кластера; (в) - *superdome* островок [54]. Масштаб по вертикали увеличен.

Поверхность Si(111) — более устойчивая к морфологическим изменениям [12, 56] по сравнению с поверхностью Si(100). Это, возможно, связано с тем, что энергия формирования ступени на поверхности Si(111) в 5 раз больше, чем на Si(001) [12]. На начальной стадии роста пленки Ge на атомарно-чистой поверхности Si(111) при малых скоростях осаждения ($\sim 10^{10} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$) происходит трёхмерный островковый рост по механизму Фолмера – Вебера, до тех пор пока островки не достигнут высоты в три атомных бислоя (БС) [57-59]. При дальнейшем осаждении германия островки увеличиваются в латеральных размерах, но перестают расти в высоту, и сливаются в сплошной смачивающий слой высотой 3 БС. В случае высоких скоростей осаждения ($\sim 10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$) первоначально рост пленки идет по двумерно-слоевому механизму. После осаждения 3.5 БС псевдоморфного слоя Ge происходит переход к росту 3D островков (механизм Странского-Крастанова). Трёхмерные островки Ge, образующиеся на Si(111), представляют собой трехгранные усеченные пирамиды с плоской вершиной (рис. 1.5) и боковыми гранями {113} отклоненными от плоскости основания островка на 29.5° [60-64]. Верхняя грань пирамид остается той же (111), а высота находится в пределах 0.1-0.13 от их латерального размера. Латеральный размер островков достигает 100 нм. Островки такой формы существенно менее склонны к упругой релаксации напряжений по сравнению с островками типа *hut* и *dome* на поверхности (100). В процессе эпитаксии форма трехгранных пирамид может измениться в многогранные усеченные пирамиды. Поскольку плоскость типа (111) является плоскостью скольжения для дислокаций, то обычно принято считать, что 3D островки Ge сформированные на поверхности Si(111) всегда будут содержать дислокации несоответствия (ДН) [65]. Однако согласно данным работы [61] существует области температур и количества осаждённого Ge, при которых на поверхности Si(111) формируются когерентные 3D островки без ДН.

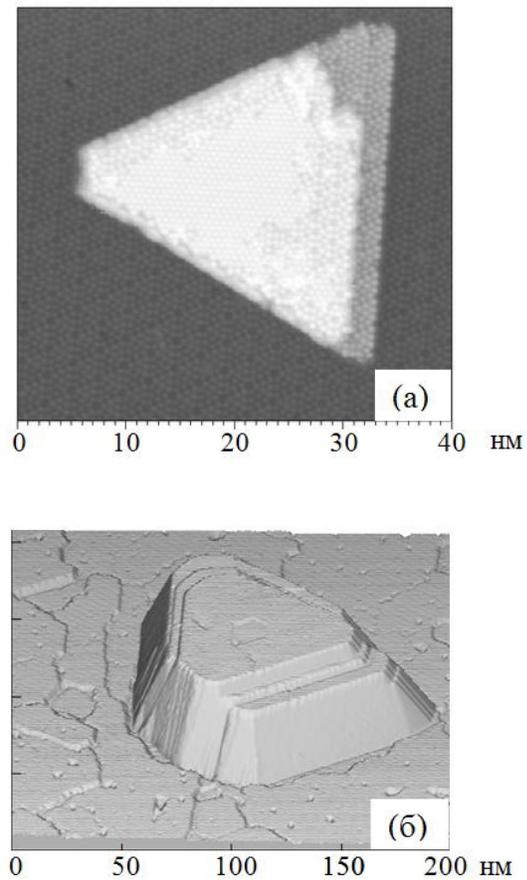


Рис. 1.5. СТМ изображения поверхности Si(111) – 7×7 после эпитаксии Ge при температуре 400°C :

(а) - островок Ge со структурой Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ после осажденных 0.5 БС Ge; (б) - объемное изображение островка Ge высотой ~ 11 нм после осажденных 3.5 БС Ge [57].

1.1.3. Сверхструктурные переходы в процессе эпитаксии Ge на Si(111)

На атомарно-чистой поверхности Si(111) наблюдаются три основные сверхструктуры – (2×1) , (1×1) и (7×7) [66]. Структура (2×1) получается при сколе кристалла Si вдоль плоскости (111) и является метастабильной. Она необратимо переходит в (7×7) при прогреве образца выше 400°C . В свою очередь, структура (7×7) стабильна до температуры, равной примерно 850°C , при которой происходит переход в неупорядоченную структуру (1×1) [66]. Этот переход обратим. Медленное охлаждение приводит к восстановлению сверхструктуры (7×7) .

По данным сканирующей туннельной микроскопии [62-64] в процессе осаждения Ge из молекулярного пучка на поверхность Si(111) при температурах от 250 до 400°C наблюдается изменение типа сверхструктуры поверхности от (7×7) к (5×5) . При осаждении субмонослойных покрытий кремния поверхность подложки Si(111) сохраняет равновесную сверхструктуру (7×7) (что также согласуется с данными, полученными методом ДБЭ, см. рис. 1.6), тогда как поверхность зародившихся двумерных островков германия содержит уже два типа сверхструктурных доменов: (7×7) и (5×5) . Однако после осаждения порядка 1 БС Ge, происходит переход к новому типу реконструкции (5×5) (рис. 1.6). Плоские вершины островков, растущих на начальных стадиях роста по трехмерному механизму и достигающих высоты 3 атомных слоя, как показывают данные СТМ, могут иметь структуры типа: 7×7 , 5×5 и $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ [57, 67]. После образования сплошного смачивающего слоя высотой в 3.5 БС наблюдается рост 3D островков с плоскими вершинами, которые имеют сверхструктуру (7×7) . На поверхности между островками по-прежнему сохраняется структура 5×5 . Таким образом, можно сказать, что в процессе гетероэпитаксии Ge на Si(111) в основном присутствуют два типа сверхструктур: (7×7) и (5×5) , которые последовательно заменяют друг друга ($(7 \times 7) \Rightarrow (5 \times 5) \Rightarrow (7 \times 7)$).

Подобные результаты по сверхструктурным переходам в процессе эпитаксии Ge на Si(111) были получены методом дифракции быстрых электронов.

На рис. 1.6 показана диаграмма структурных переходов на поверхности пленки германия в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(111), полученная с помощью метода ДБЭ в работе [68]. По данной диаграмме видно, что сверхструктура (7×7) формируется при малом количестве Ge на поверхности Si (это также согласуется с данными СТМ). Максимальная температура, при которой эта сверхструктура была стабильна в процессе роста пленки, составляла 950°C.

С увеличением количества осажденного материала при температурах от 250 до 600°C наблюдается сверхструктура (5×5). Её присутствие связывается с псевдоморфным состоянием пленки германия. После того как псевдоморфный рост “срывается”, эта сверхструктура превращается либо в (7×7), либо в (2×8). Последняя характеризует атомарно-чистую поверхность (111) ненапряжённого объемного Ge. Следовательно, структура (5×5) является признаком существования в пленке механических напряжений, релаксация которых может стимулировать формирование островков.

Данные, полученные методами СТМ и ДБЭ, имеют некоторые расхождения. Связано это с разной скоростью осаждения Ge, а также с различными разрешающими способностями обоих методик. Дифракция быстрых электронов на отражение – экспресс-метод, несущий усреднённую информацию об 1-2 атомных слоях пленки. Этот метод позволяет проанализировать атомную структуру достаточно большого участка поверхности порядка поперечных размеров электронного пучка. Более детальную информацию на атомном уровне дает метод СТМ.

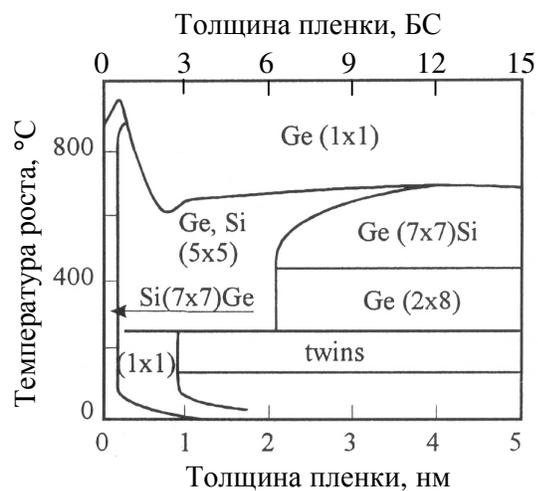


Рис. 1.6. Кинетическая диаграмма структурных переходов на поверхности пленки в процессе гетероэпитаксии германия на поверхности Si(111)-(7×7), полученная методом ДБЭ [68]. В Si(7×7)Ge и Ge(7×7)Si первый химический символ указывает на материал, на поверхности которого наблюдалась данная сверхструктура; второй символ – на материал, который стабилизирует данную сверхструктуру.

1.1.4. Сверхструктурные переходы в процессе эпитаксии Ge на Si(100)

По данным методов ДБЭ и СТМ на чистой поверхности Si(100) наблюдаются димеры, выстроенные в ряды, которые ориентированы параллельно направлению $\langle 110 \rangle$. Такая поверхность имеет периодичность 2×1 . Особенностью этой поверхности является то, что на ней содержится достаточно много дефектов, наиболее распространенными из которых являются димерные вакансии, т.е. отсутствие одного или несколько димеров в ряду. Атомные ступени этой поверхности имеют различную форму в зависимости от того, как ориентированы димеры на террасе. Димерная ориентация на ближайших террасах моноатомных ступеней взаимно перпендикулярна.

В процессе эпитаксии Ge на Si(001) наблюдают следующие структурные переходы: $2 \times 1 \Rightarrow 2 \times N \Rightarrow M \times N \Rightarrow hut$ -кластеры [20, 63, 69-71]. При осаждении субмонослойных покрытий (< 0.3 МС) встраивание Ge в димерные ряды приводит к их искажению с формированием так называемых “изогнутых димеров” (buckled dimers) [20], которые сохраняют реконструкцию (2×1) . С увеличением толщины осажденного слоя Ge (> 0.8 МС) наблюдается переход к новому типу поверхностной реконструкции – $(2 \times N)$, который представляет собой периодическую последовательность, где каждый N -й димер отсутствует. Схематически реконструкция $(2 \times N)$ представлена на рис.1.7 [63]. Ряд пропущенных димеров называют траншеей. Образование траншей энергетически выгодно, т.к. ведет к частичному уменьшению упругих напряжений вблизи траншей. Значение периода реконструкции сильно зависит от стехиометрии смачивающего слоя, т.е. от процентного содержания Ge и Si. Чем меньше содержание Ge в слое, тем больше значение периода поверхностной реконструкции [69]. Период (N) димерных вакансий уменьшается с увеличением количества осажденного материала (см. рис.1.7, экспериментальные данные показаны черными кружочками). Так, например, N быстро уменьшается от 17 при 0.8 МС до 8-9 при 1.5 МС. Начиная с 2 МС (в

области температур $< 400^{\circ}\text{C}$) наблюдается формирование траншей, состоящих из недостающих димерных рядов, расположенных перпендикулярно к $(2 \times N)$ траншеям (рис.1.8). Это ещё один механизм снятия механических напряжений. Образующаяся структура называется “заплаточной” или $(M \times N)$ реконструкцией. Реконструкция $(M \times N)$ существует в коротком диапазоне толщин (рис.1.9) и замещается ростом трехмерных островков в виде *hut*-кластеров [20, 69]. Таким образом, в процессе роста пленки Ge на подложках Si(100) на поверхности обычно присутствуют сверхструктуры: (2×1) на начальной стадии роста (при суб-монослойном покрытии); $(2 \times N)$ с различными значениями периода N (от 17 до 4) в зависимости от количества осаждённого Ge; $(M \times N)$ в коротком диапазоне толщин смачивающего слоя предшествующий росту трехмерных островков.

1.1.5. Способы управления процессом эпитаксии в системе Ge – Si

Основными параметрами, характеризующими массив островков, являются их средний размер, плотность и дисперсия по размерам. Как уже отмечалось во введении, для применения таких структур в оптоэлектронных и электронных приборах необходимо

- уменьшить размеры до величины ~ 10 нм;
- увеличить плотность островков до величин $> 10^{11} \text{ см}^{-2}$;
- свести до минимума дисперсию по размерам.

Немаловажным фактором является взаимное распределение островков, их элементный состав и форма. Для использования в качестве квантовых точек наиболее подходящими являются *hut*- кластеры, поскольку они обладают наименьшими размерами. Однако следует иметь в виду, что более узкое распределение островков по размерам достигается при большем значении их среднего размера.

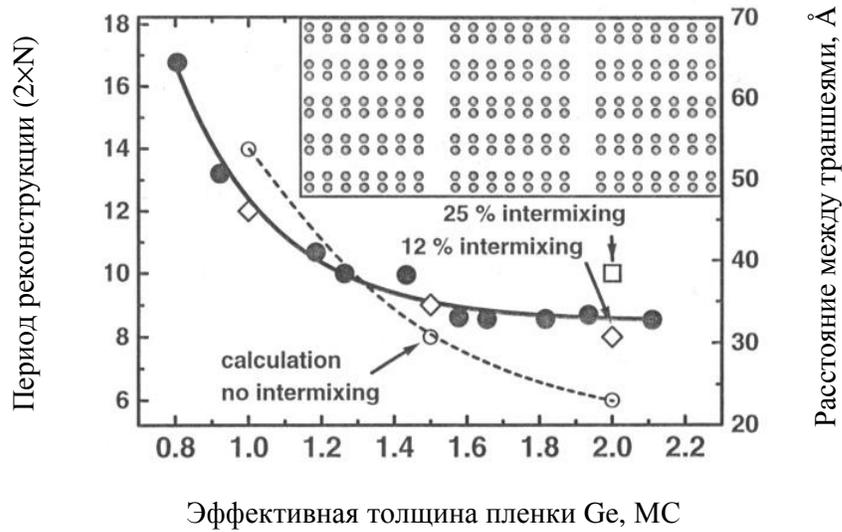


Рис. 1.7. Зависимость периода (N) реконструкции ($2 \times N$) от эффективной толщины пленки Ge, осажженной на подложке Si(001). Экспериментальные данные представлены закрашенными кружками. Не закрашенные символы относятся к результатам моделирования. Линии интерполируют экспериментальные и расчетные данные. В верхнем правом углу схематически представлена вершина реконструкции ($2 \times N$) [63].

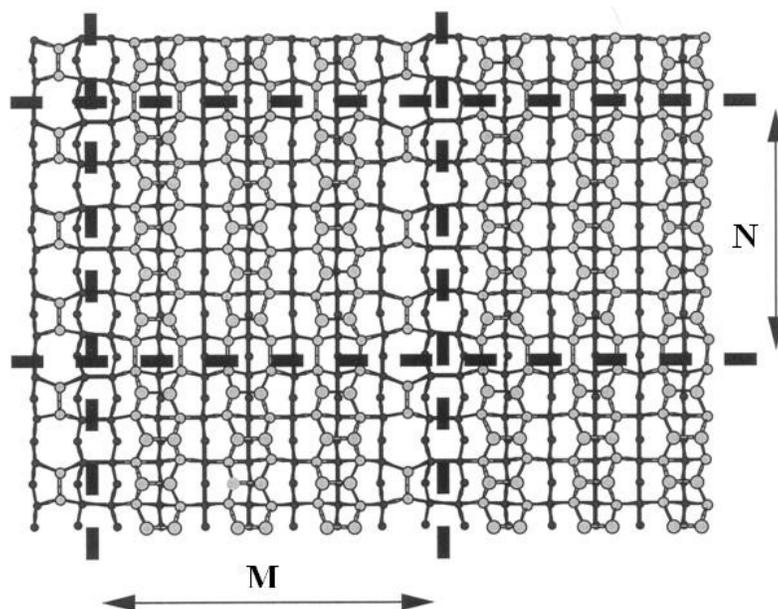


Рис. 1.8. Общий вид поверхностной реконструкции ($M \times N$) для двух слоев Ge на Si. Ge показан серыми кружками. Кружки большего размера соответствуют верхнему слою, меньшего размера второму слою. Si показан черными кружками [70].

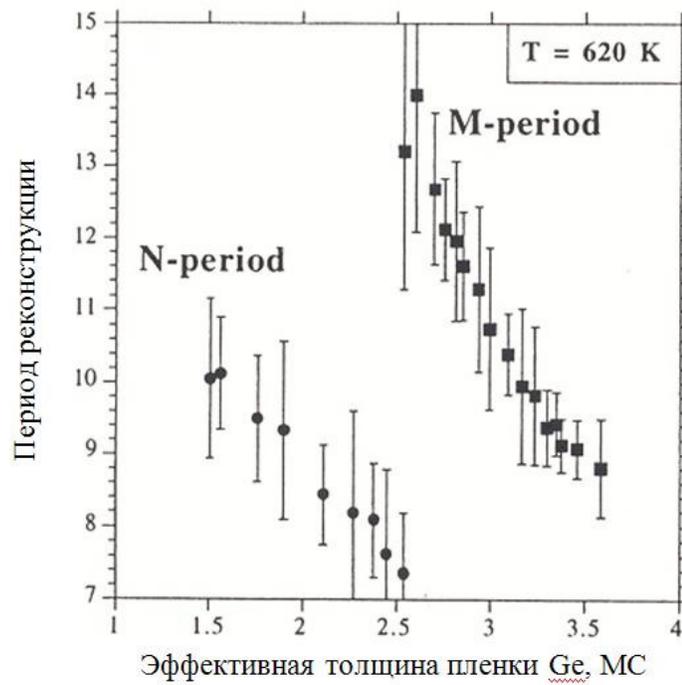


Рис. 1.9. Зависимость периода реконструкции (N и M) от эффективной толщины осажденного Ge. Данные получены в работе [69]. Температура роста пленки Ge 620K.

В этом параграфе будут рассмотрены некоторые методы управления процессом эпитаксии, а также влияние параметров роста на характеристики получаемого массива островков. К основным параметрам, позволяющим контролировать рост плёнок, можно отнести, прежде всего: температуру подложки, скорость осаждения и состав осаждаемого материала. Дополнительные методы воздействия на процесс эпитаксии могут включать в себя: предварительное осаждение различных химических элементов, воздействие ионным пучком, подготовку поверхности путём литографии, и т. д.

1.1.5.1. Температура и скорость осаждения

Изменение температуры роста в процессе эпитаксии Ge/Si приводит к изменению размера, плотности островков, а также содержания атомов Si в островках. Известно, что кластеры, образующиеся при осаждении Ge при 700°C, имеют размеры порядка 100 нм и содержат около 50% кремния [72], в то время как при 300°C формируются островки размером ~ 15 нм [73], близкие по составу к чистому Ge и имеющие форму пирамид с квадратным основанием. В работе [52] показана диаграмма структурных переходов в процессе роста пленки Ge (рис.1.3). На этом рисунке наглядно видно, как влияет температура роста на форму островков. Так, например, при температурах > 400°C диапазон толщин, при которых существуют *hut*- кластеры, значительно меньше, чем при 250-350°C.

Важным параметром, влияющим на форму и размер островков, является скорость осаждения Ge. В работе [74] при той же температуре 300°C, но при скорости роста, на два порядка меньше, чем в [72], наблюдается рост удлинённых *hut*- кластеров (с прямоугольным основанием), причем ширина оснований кластеров оставалась близкой к 15 нм, а длина испытывала значительные вариации от островка к островку.

Авторы работы [75] показали, что с увеличением скорости роста Ge латеральный размер островков уменьшается, а их плотность увеличивается (рис.1.10). Они считают, что одной из причин уменьшения латерального размера островков с увеличением скорости роста Ge,

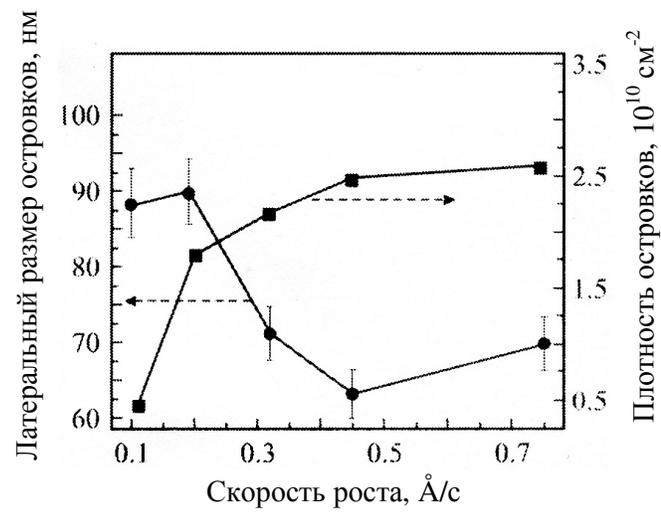


Рис. 1.10. Зависимости поверхностной плотности и среднего латерального размера островков от скорости осаждения Ge [75].

возможно, является изменение состава островков — чем больше скорость роста, тем больше доля германия в островках.

Авторами работы [76] был разработан метод управления ростом путём синхронного зарождения островков. Они показали, как с помощью периодического изменения температуры и молекулярного потока можно управлять механизмом роста плёнки. Ими были проведены эксперименты при гомоэпитаксии Si/Si(111), Ge/Ge(111) из молекулярных пучков. В ходе экспериментов было обнаружено, что в системе, где рост должен происходить преимущественно по двумерно-слоевому механизму, с увеличением толщины осаждаемой плёнки наблюдается увеличение шероховатости её поверхности, и при достаточно низких температурах имеет место смена механизма роста плёнки: с двумерно-слоевого на трёхмерный механизм роста. Авторы [76] предположили, что это связано с наличием у двумерных островков разброса по размерам, который возрастает с каждым последующим осаждённым монослоем. Такой разброс может появляться из-за различия в моментах зарождения двумерных островков. В связи с этим, было предложено синхронизировать моменты зарождения двумерных островков и, таким образом, сохранять двумерно-слоевой механизм роста плёнки. Синхронизация осуществлялась двумя способами: с помощью изменения температуры и скорости осаждения. При понижении температуры происходило массовое одномоментное зарождение островков на поверхности. Тот же эффект достигался при кратковременном увеличении скорости осаждения. Воздействие на систему в обоих случаях проводилось импульсно на начальной стадии роста каждого монослоя, с периодом, равным времени осаждения одного монослоя. Таким образом, удавалось значительно увеличить число монослоёв, выращенных по двумерно-слоевому механизму. Авторы в своей работе [76] отметили, что синхронизация зарождения может быть осуществлена не только предложенными способами, но и действием на поверхность роста импульсами светового потока, заряженными или нейтральными частицами, обеспечивающими либо резкое изменение пересыщения на поверхности, либо формирование поверхностных центров, облегчающих зарождение.

1.1.5.2. Влияние состава осаждаемого материала

Размеры островков существенно зависят от состава осаждаемого твердого раствора $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ [55, 77, 78] на подложке Si. При уменьшении содержания германия (x) в твердом растворе:

- 1) наблюдается увеличение критической толщины, при которой происходит переход от двумерно-слоевого к трехмерному росту;
- 2) наблюдается увеличение размера островков. Так, например, средний размер основания островка твердого раствора $\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.2}$ – 330 нм, а средний размер островка чистого Ge (*hut*-кластера) – 20 нм [55] при той же температуре и скорости роста;
- 3) сохраняется последовательность перехода от двумерно-слоевого роста к трехмерному росту островков в виде *hut*- кластеров, затем *dome*- кластеров;
- 4) после роста *dome*- кластеров наблюдается рост *barn*- кластеров, в которых появляется добавочная грань (111) с углом наклона 54.7° [77].

В качестве основной причины этих изменений обычно указывают снижение уровня деформации в плёнке из-за уменьшения рассогласования постоянных решёток твёрдого раствора и кремниевой подложки при $x \rightarrow 0$. Снижение уровня деформации при уменьшении содержания Ge приводит к увеличению критического объёма V_c для зарождения 3D островка, который может быть рассчитан по следующей формуле [79]:

$$V_c(x) \cong \frac{V_c(1)}{x^6}, \quad (1.4)$$

где x – содержание германия, $V_c(1)$ - критический объём для зарождения 3D островка состоящего из чистого германия ($x=1$). Вследствие этого средний размер 3D островков будет возрастать с уменьшением содержания Ge, как $1/x^2$ [80].

Кроме того Sutter and Lagally [78] утверждают, что при малом содержании Ge ($x < 0.3$) в твердом растворе $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ отсутствует стадия зарождения трехмерных островков. Авторы обнаружили, что по мере роста плёнки твёрдого раствора его поверхность теряет

морфологическую стабильность не скачком, а постепенно. Вначале на поверхности формируются плавные возвышения в форме “бугорков” (mounds) составленных из рядов моноатомных ступеней, которые в дальнейшем трансформируются в трехмерные островки с чётко выраженной огранкой. Подобный механизм постепенного формирования 3D островков наблюдали в другой работе [81], но при более высоком содержании Ge ($x=0.5$).

1.1.5.3. Присутствие дополнительных химических элементов

Управление характеристиками массива островков возможно также за счет использования сурфактантов [14, 17, 82–84]. Так, например, использование **сурьмы** в качестве сурфактанта, уменьшающего диффузионную длину атомов Ge, приводит к тому, что область сбора адатомов для одного островка уменьшается, уменьшаются и его размеры, а плотность возрастает. Этим способом была достигнута величина плотности островков $\sim 5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ [14]. В работе [82] отмечалось, что использование сурьмы в процессе эпитаксии Ge/Si(001) приводит:

- во-первых, к возрастанию плотности островков в 2.5 раза по сравнению с эпитаксией без сурьмы;
- во-вторых, к переходу от бимодального распределения размеров островков к одномодовому, представленному только пирамидальными островками с квадратным основанием;
- в-третьих, к уменьшению дисперсии размеров островков и к упорядочению островков по кристаллографическим направлениям [100] и [010].

Применение **водорода** в процессе эпитаксии Ge/Si приводит к уменьшению коэффициента диффузии адатомов, увеличению эффективной толщины критического слоя Ge, при которой происходит переход к трехмерному росту, и влияет на рост и развитие *hut*- кластеров [83, 84].

Авторами работы [17] была достигнута плотность островков $2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ при росте Ge на поверхности Si, покрытой сверхтонким слоем **оксида кремния**. При этом рост происходит в режиме Фолмера-Вебера (без образования смачивающего слоя). В работе [85] экспериментально показана возможность получения плотных массивов квантовых точек малых размеров (10-15 нм) путем нанесения слоев **фторида кальция**.

1.1.5.4. Предосаждение слоя $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$

Авторы работы [18] исследовали рост Ge(Si) островков на напряженном слое $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ ($0 < x < 20\%$). Было отмечено, что размеры и поверхностная плотность островков увеличиваются с ростом содержания Ge в слое твёрдого раствора $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$. Увеличение поверхностной плотности островков связывалось с возрастанием поверхностной шероховатости после осаждения SiGe слоя. Рост размеров островков объясняется уменьшением толщины смачивающего слоя, которое было вызвано дополнительной упругой энергией, накопленной в SiGe слое, и увеличением диффузии кремния из этого слоя в островки. Увеличение доли поверхности, занятой островками, приводило к большому упорядочению взаимного расположения островков за счёт усиления упругого взаимодействия между ними.

1.1.5.5. Облучение низкоэнергетическими ионами

Применительно к структуре Ge/Si исследовалось зарождение и рост твердых растворов $\text{Ge}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$ на Si(100) из молекулярных пучков при одновременном облучении непрерывным пучком низкоэнергетических (300 эВ) ионов инертных газов [30]. Было показано, что облучение низкоэнергетическими ионами в процессе осаждения приводит к снижению температуры эпитаксии, позволяет получать более гладкие поверхности и существенно улучшать совершенство плёнок. Было обнаружено также, что в области низких температур ($< 300^\circ\text{C}$) критическая толщина пленки (по переходу от двумерно-слоевого к трехмерному

островковому росту) увеличивается в условиях ионного облучения, по сравнению с условиями осаждения без ионного воздействия. Это означает, что в рассогласованных гетероэпитаксиальных системах существуют условия, при которых возможно подавление зарождения трёхмерных островков внешним воздействием пучком низкоэнергетических ионов в процессе роста пленки.

Различные аспекты данного способа управления рассматриваются в работах [22, 23, 91, 97, 102, 105, 108] и др. Подробнее содержание этих работ будет изложено в §2.

1.1.5.6. Дополнительные пути управления характеристиками массивов самоформирующихся островков

В работе [86] экспериментально показано, что процесс формирования нанокластеров предельно малых размеров можно наблюдать на начальной стадии роста псевдоморфного смачивающего слоя германия по двумерно-островковому механизму. Их формой и распределением можно управлять, меняя структуру состояния поверхностного слоя кремния. Было продемонстрировано влияние сверхструктурных переходов поверхности Si(111) 7×7 на формирование нанокластеров металлов (In, Mn, Ag) и Ge, имеющих размеры менее 5 нм.

В определённых условиях упорядочение может происходить самопроизвольно вследствие упругих сил отталкивания между островками [87]. Эту тенденцию самопроизвольного упорядочения можно усилить, выращивая несколько слоёв квантовых точек (один поверх другого), разделённых тонкими слоями материала матрицы. Например, в работе [88] рассматривался рост 20-ти слоёв островков $\text{Si}_{0.25}\text{Ge}_{0.75}$ на Si(001). Было обнаружено, что в первом слое островки располагаются беспорядочно и имеют широкое распределение размеров; в 20-м слое островки образуют подобие квадратной решётки, и разброс их размеров уменьшается в три раза. Другая возможность формирования упорядоченного массива квантовых точек заключается в создании мест преимущественного зарождения островков. Такими местами зарождения могут служить атомные ступени, если

рост происходит на слегка отклонённых от кристаллографической плоскости подложках. Этим методом в работе [19] была получена почти идеальная треугольная решетка Ge островков на vicинальной грани Si(001). В работе [62] для зарождения островков использовалось воздействие сфокусированным пучком электронов. Также для получения островков в заранее определённых местах успешно применяется предварительное создание рисунка на подложке с помощью литографии [20, 89].

В заключение можно сказать, что каждый из выше описанных методов имеет свои плюсы и минусы. Стремясь к наименьшему размеру и большей плотности островков, можно прийти к большому разбросу по размерам, а так же к большей концентрации Si в островках. Уменьшение температуры роста и введение дополнительных компонентов на поверхность может привести к возникновению дефектов в растущей пленке. Во всех предлагаемых методах надо искать оптимальные условия. Имея в своем распоряжении больше информации о различных методах управления процессами эпитаксии, мы можем создать массивы островков с предпочтительными значениями их характеристик для электронных и оптоэлектронных приборов.

§ 1.2. Ионное облучение как способ управления ростом эпитаксиальных пленок

Ионное облучение в процессе эпитаксии является дополнительным способом управления ростом плёнок. В этом случае к существующим параметрам управления ростом добавляются энергия ионного пучка, его плотность и длительность воздействия. Согласно экспериментальным и теоретическим работам ионное облучение приводит к таким элементарным процессам, как распыление материала [34, 90, 91], генерация адатомов [22, 23, 93], междоузельных атомов и вакансий [94–96, 98], увеличению диффузионной подвижности адатомов [92, 97]. Меняя параметры ионного пучка, можно управлять скоростью протекания этих процессов, которые в свою очередь влияют на осаждение, сублимацию, диффузию, зарождение и рост островков. В настоящее время уже установлено, что рост плёнок в присутствии низкоэнергетического ионного облучения характеризуется снижением температуры эпитаксии [35], уменьшением высоты рельефа поверхности [34, 92, 99], сменой механизма роста плёнок [37, 100].

1.2.1. Физические процессы при взаимодействии ионов с твердым телом

Движущийся ускоренный ион при столкновении с кристаллом взаимодействует с частицами среды, что приводит к потере энергии иона – торможению, изменению направления его движения – рассеянию, а также к смещению атомов кристалла из узлов решетки и распылению материала мишени. Характер взаимодействия ускоренного иона с твердым телом определяется энергией иона E_{ion} , массой M_1 и атомным номером Z_1 иона, массой M_2 и атомным номером Z_2 атомов мишени. Помимо этого существенную роль играют направление и угол падения иона на поверхность мишени.

1.2.1.1. Шкала энергий ионов

Энергия ионного пучка — основной параметр, определяющий взаимодействие ионов с поверхностью. Если энергия налетающих частиц мала, порядка энергии физической адсорбции (≤ 0.1 эВ), то их воздействие практически не влияет на рост пленки. При энергиях порядка 1 эВ и выше ионы влияют на протекание химических реакций на поверхности растущей пленки. Начиная с энергии ионов порядка характерной энергии связи атомов в кристалле (~ 10 эВ) становится возможным формирование нарушений кристаллической решетки, влияющих на кинетику роста пленок [101].

Яркой демонстрацией этого является наблюдавшийся авторами работ [26, 101] эффект улучшения кристалличности эпитаксиальной пленки Si, выращенной при низких температурах ($\sim 160^\circ\text{C}$) из ионного пучка. Кристаллическое совершенство изучалось методом резерфордовского обратного рассеяния. Измерялся выход обратного рассеяния He^+ из выращенных плёнок как функция энергии ионов Si^+ (рис. 1.11). Было обнаружено, что в диапазоне энергий от 8 до 20 эВ выход обратного рассеяния уменьшается, а при дальнейшем росте энергии — возрастает. Это свидетельствует об уменьшении доли аморфной фазы в осаждаемой плёнке кремния при энергиях < 20 эВ, т. к. выход обратного рассеяния тем меньше, чем выше доля кристаллической фазы. Следует заметить, что в обычных условиях роста при такой температуре растёт аморфная пленка кремния. Объяснение этого явления основано [102] на существовании двух пороговых энергий ионов: порога проникновения иона в кристаллическую решетку $E_p=8$ эВ и порога для смещения ионом атома из узла кристаллической решетки с образованием пары дефектов вакансия-междоузлие (пары Френкеля) $E_d= 20 - 23$ эВ. По мнению авторов работы [102] при энергиях $E_p < E_{ion} < E_d$ ионы Si^+ начинают проникать под поверхность кристалла формируя значительное количество междоузельных атомов, длина диффузии которых оказывается больше соответствующей диффузионной длины адатомов по растущей поверхности. В этих условиях рост плёнки происходит в основном за счёт диффузии созданных ионным пучком междоузлий к

поверхности растущего кристалла. Это облегчает встраивание осаждаемого Si в правильные кристаллические позиции. При энергиях ионов больше порога смещения $E_{ion} > E_d$ наряду с междоузельными атомами в пленке формируются вакансии обладающие меньшей диффузионной подвижностью по сравнению с междоузлиями. Концентрация вакансий будет возрастать с увеличением энергии ионов, что способствует аморфизации пленки.

Начиная с энергий ~ 100 эВ становится существенным распыление материала ионным пучком. Так в работах [34, 95, 102] были получены данные, свидетельствующие в пользу того, что при облучении поверхности Si ионами Xe^+ с энергией 200-250 эВ происходит её послойное распыление в режиме, подобном двумерно-слоевому росту плёнки.

При достаточно больших энергиях (~ 1000 эВ) воздействие ионов может привести к генерации протяженных дефектов в объеме растущей пленки [103].

Отсюда можно сделать вывод, что диапазон энергий ионов, применяемых при управлении эпитаксиальным ростом, простираются от ~ 0.1 эВ до ~ 1000 эВ.

1.2.1.2. Упругие и неупругие столкновения

Взаимодействуя с атомами кристалла, ионы теряют свою энергию за счет упругих и неупругих столкновений. При упругом столкновении налетающий ион частично передаёт свою энергию атому мишени, смещая его из исходного положения. Полная кинетическая энергия частиц сохраняется. Неупругие столкновения сопровождаются изменением внутреннего состояния частиц, происходит возбуждение и ионизация атомов кристалла.

Авторами работ [104] подробно описано, как соотносятся между собой упругие и неупругие столкновения. Согласно теории Линдхарда – Шарфа – Шиотта, сечения торможения для упругих (S_n) и неупругих (S_e) процессов выражаются следующими формулами:

$$S_n(\epsilon) = 0.5 \cdot \frac{\ln(1 + 1.383\epsilon)}{\epsilon + 0.0132 \cdot \epsilon^{0.212} + 0.196 \cdot \epsilon^{0.5}}; \quad (1.5)$$

$$S_e(\epsilon) = k_e \cdot \sqrt{\epsilon}. \quad (1.6)$$

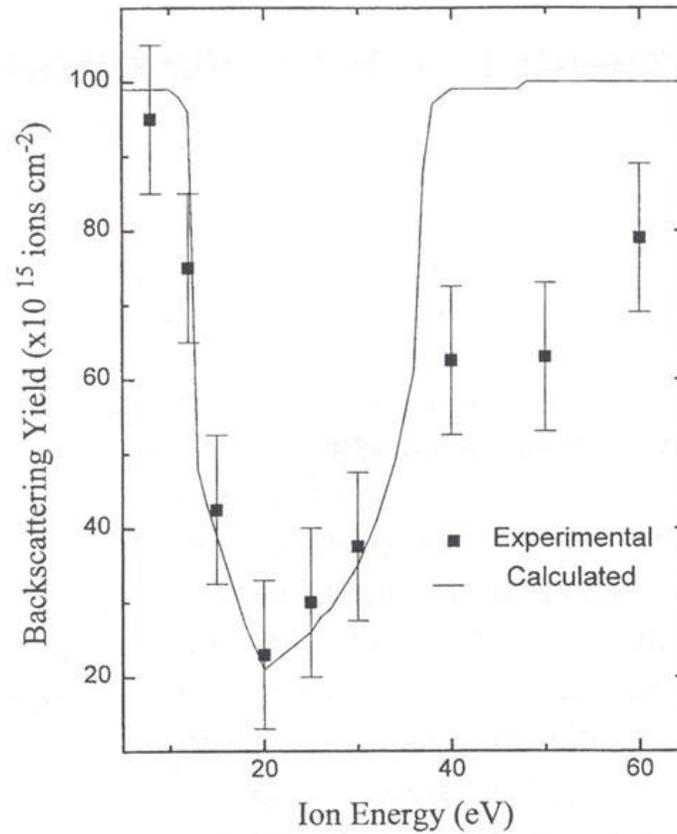


Рис. 1.11 Выход обратно рассеянных ионов Ne^+ от эпитаксиальных пленок Si на Si(100), сформированной осаждением из ионного пучка при температуре подложки 160°C , в зависимости от энергии ионов $^{28}\text{Si}^+$. Точки соответствуют экспериментальным данным, линия – расчетным методом молекулярной динамики [101].

Здесь ε - безразмерная приведенная энергия:

$$\varepsilon = \frac{a \cdot M_2 \cdot E_{ion}}{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2 \cdot (M_1 + M_2)}, \quad (1.7)$$

коэффициент $k_e = 0.08 [Z_1^{1/2} Z_2^{1/2} / (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/4}] [(M_1 + M_2)^{3/2} / M_1^{3/2} M_2^{1/2}] Z_1^{1/6}$,

радиус экранирования $a = 0.8853 a_0 / (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}$, где a_0 – боровский радиус.

Из представленных выражений видно, что торможение при упругом столкновении описывается универсальной функцией $S_n(\varepsilon)$, которая достигает максимального значения при относительно низких энергиях ионов ($E_{ion} < 10$ кэВ [90]), тогда как торможение при неупругих столкновениях как функцию $\sqrt{\varepsilon}$ можно представить семейством прямых, каждая из которых соответствует определенному значению k_e и растет с увеличением E_{ion} . Проведенные теоретические расчеты показали, что при низких энергиях вклад упругих столкновений значительно выше вклада неупругих столкновений [104]. Оценка по формулам (1.5) и (1.6) показывает, что для ионов Ge с энергией порядка 100 эВ и мишени, состоящей из атомов Si и Ge вклад упругих столкновений на порядок выше вклада неупругих столкновений.

1.2.1.3. Приближение парных столкновений и молекулярная динамика

Существует два основных подхода к описанию взаимодействия ионов с твёрдым телом: приближение парных столкновений (ППС) и метод молекулярной динамики (МД). В моделировании, основанном на ППС, движение атомов в твердом теле рассматривается как последовательность парных столкновений, где траекторию движения налетающей частицы и атома отдачи аппроксимируют асимптотами к их действительным траекториям. В отличие от модели парных столкновений молекулярная динамика предусматривает исследование движения атомов в твердом теле как функцию времени, т.е. траектория всех движущихся атомов прослеживается с малым временным шагом, так что столкновения между движущимися атомами учитываются автоматически. В МД рассматривается взаимодействие

налетающей частицы или атома отдачи со всеми соседними атомами. Поэтому её можно назвать моделью многочастичного взаимодействия. Оба описанных подхода успешно используют на практике [90]. Однако приближение парных столкновений нарушается при энергиях ниже ~ 10 эВ [90]. Для низкоэнергетических ионов оказывается принципиально важным учёт взаимодействия налетающих ионов и атомов отдачи со всеми соседними атомами. Это связано с тем, что налетающий ион за характерное время взаимодействия успевает передать энергию и импульс не только атому, с которым испытывает непосредственное столкновение, но и ближайшему атомному окружению. Поэтому задача о движении иона в твердом теле уже не может быть сведена к простому рассмотрению последовательных парных столкновений, как это обычно делается для высокоэнергетических ионных пучков [104, 105, 106].

В рамках модели парного столкновения легко оценить количество созданных ионом дефектов. Максимальная энергии иона, которая может быть передана атому мишени определяется следующей формулой:

$$T_E = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} \cdot E_{ion} . \quad (1.8)$$

Согласно Кинчину и Пизу [107, 108], количество смещённых атомов N_d можно представить в виде:

$$N_d = \frac{T_E}{2E_d} . \quad (1.9)$$

Например, для случая иона Si с энергией 200 эВ и мишени Si ($E_d=20$ эВ) получаем $N=5$. Учитывая, что энергия, требуемая для создания дефектов на поверхности примерно в 2 – 3 раза меньше соответствующей объемной энергии [109], можно предположить, что количество созданных дефектов на поверхности будет в два раза больше, чем в объеме (при той же энергии иона).

1.2.1.4. Локальная модификация поверхности, генерация адатомов

Авторами работ [22, 23] методом МД моделировалось столкновение низкоэнергетических ионов Хе с поверхностью Si(111), (100). На рисунке 1.12 показано состояние поверхности Si(100) после удара ионом Хе. Угол падения ионов от нормали к поверхности составлял 60° , энергия – 225 эВ. Для статистики рассматривалось до 24 столкновений иона с поверхностью. Было обнаружено, что единичный удар иона Хе, приводит к образованию поверхностного вакансионного кластера, в котором вакансии сосредоточены преимущественно в первом атомном слое (вакансионный островок моноатомной глубины), генерации адатомов и распылению материала. Для поверхности Si(111) вакансионный кластер в среднем состоял из 16 поверхностных вакансий, 15 атомов переходили в адатомные позиции. Для поверхности Si(100) средний размер вакансионного кластера составлял 10 вакансий и 9 адатомов выбивалось из поверхностного слоя, что несколько меньше, чем для Si(111). Для обоих случаев среднее число распыленных атомов на одно столкновение иона с поверхностью кремния составляло около 1.

Полученные данные методом МД хорошо согласуются с экспериментальными и теоретическими работами [34, 95], где было обнаружено, что облучение поверхности Si низкоэнергетическими (~ 200 эВ) ионами Хе под углом 60° при температурах ниже 450°C приводит к морфологическим и структурным изменениям в узком приповерхностном слое толщиной 1 – 2 монослоя. Детальный анализ СТМ изображений [110] облученной поверхности показал, что вследствие облучения при температурах ниже 370°C образуются вакансионные и адатомные островки. Причем адатомные островки локализованы в непосредственной близости от границ поверхностных вакансионных кластеров. Подобные результаты по ионно-стимулированному формированию адатомных островков были получены в экспериментах по распылению поверхности Si(111) ионным пучком Ag [98] и Хе [96].

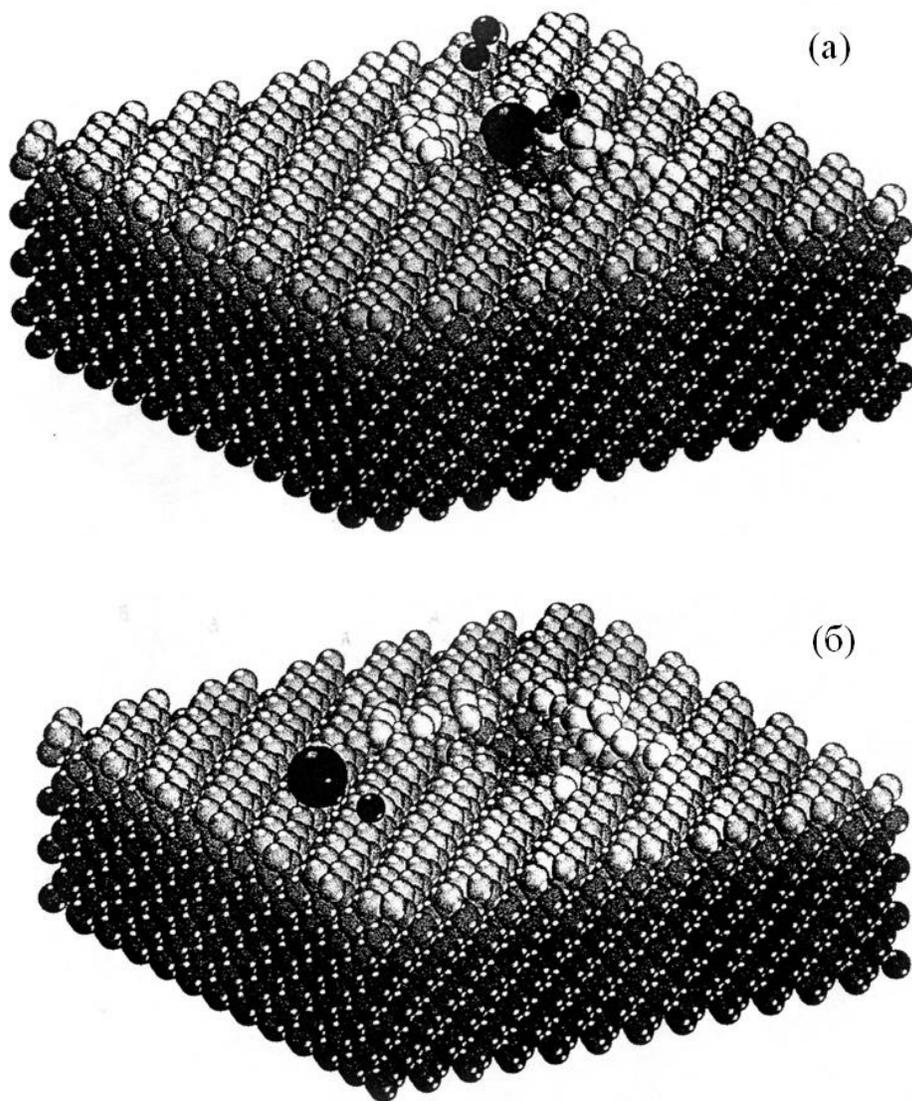


Рис. 1.12. Состояние поверхности Si(100) через (а) 0,4 пс и (б) 100 пс после удара иона Хе параллельно димерным рядам. Энергия иона - 225 эв. Угол падения 60° от нормали к поверхности. Светлые тона соответствуют поверхностным атомам за исключением иона Хе и распыляемых атомов [22].

1.2.1.5. Сверхструктурные переходы

В работах Bedrossian et al. [34, 95] при облучении ионами поверхности Si(100) наблюдали переход от двухдоменного состояния поверхности с чередованием сверхструктур (2x1) и (1x2) на соседних террасах моноатомных ступеней к однодоменному состоянию - (2x1) с формированием ступеней двухатомной высоты с димерными рядами, ориентированными параллельно краю ступени [95]. В случае ионного распыления Si(111) при достаточно низких температурах (250⁰С) исследования методом СТМ [101] показали, что внутри формируемых поверхностных вакансионных кластеров отсутствует реконструкция, а положение атомов близко по структуре к объёмному кристаллу кремния. Промежутки между вакансионными кластерами сохраняли исходную реконструкцию (7x7). После распыления приблизительного одного атомного слоя вся поверхность Si(111) переходила в состояние, характеризуемое отсутствием реконструкции. Данный эффект чрезвычайно важен для низкотемпературной эпитаксии кремния и других ковалентных полупроводников, поскольку, как показывают теоретические исследования [110, 111], именно с формированием нереконструированных участков поверхности значительно снижается барьер встраивания мигрирующих адатомов в растущую плёнку и, таким образом, препятствует её аморфизации.

1.2.1.6. Стимуляция зародышеобразования

В работах Гусевой с соавторами [44] было установлено, что ионное облучение приводит к стимуляции зародышеобразования. Авторы объясняют это с термодинамической точки зрения, основываясь на понятии критического зародыша. Энергия зародышеобразования состоит из двух слагаемых: объёмного и поверхностного (см. формулу 1.1 из § 1). Под действием ионов поверхность становится шероховатой, и в результате энергия зародышеобразования уменьшается за счёт увеличения площади под зародышем.

Прямое экспериментальное подтверждение преимущественного зарождения на дефектах типа вакансионных кластеров было получено методом сканирующей электронной микроскопии в работе Такаока et al. [96]. Так при осаждении субмонослойного покрытия Ge на поверхность Si(111), предварительно облученную низкоэнергетическими ионами Xe^+ , наблюдалось заметное возрастание плотности двумерных островков Ge и уменьшение их среднего размера по сравнению со случаем без ионного облучения. Детальное исследование методом СТМ показало, что преимущественное зарождение островков Ge на облученной поверхности Si(111) происходит либо внутри вакансионных кластеров, либо снаружи в непосредственной близости от их границы [96]. В случае осаждения Ge на предварительно облученную поверхность GaAs(110) также наблюдалось увеличение плотности и уменьшение размера двумерных островков Ge [100]. Это приводило к смене механизма роста плёнки Ge: от трёхмерного к двумерно-слоевому механизму роста. Методом СТМ было показано, что именно небольшие вакансионные кластеры, создаваемые при ударе ионов о поверхность, являются центрами преимущественного зарождения островков Ge.

1.2.1.7. Распыление, создание дефектов в приповерхностном слое, выглаживание

При облучении поверхности низкоэнергетическими ионами, наряду со смещением атомов из регулярных позиций, может иметь место распыление, т.е. выбивание атомов во внешнюю среду. Интенсивность распыления зависит от энергии ионов в пучке, угла его падения и отношения масс иона и атомов подложки [78]. Данный процесс может оказывать заметное влияние на морфологию поверхности в процессе роста плёнки. Так в работах Bedrossian et al. [91, 34] было показано, что облучение поверхности пучком ионов Xe^+ с энергией около 200 эВ в процессе гомоэпитаксии Ge/Ge(100) и Si/Si(100) из молекулярного пучка может приводить к значительному снижению шероховатости ростовой поверхности. Авторы указанных работ анализируют два возможных механизма ионного воздействия, позволяющих объяснить происходящие на поверхности процессы. Первый механизм

включает в себя генерацию поверхностных вакансий ионным пучком, которые затем служат центрами захвата для диффундирующих по поверхности адатомов. По мнению авторов работы, наличие таких стоков на поверхности приводит к подавлению зарождения, а также способствует распаду (диссоциации) уже имеющихся адатомных островков, что делает рельеф поверхности более гладким.

В ряде работ [30, 92, 99] по исследованию ионно-стимулированной гетероэпитаксии полупроводников ($\text{Ge}_{0,5}\text{Si}_{0,5}/\text{Si}(100)$, $\text{GaAs}/\text{Si}(100)$, $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$) наблюдалось явление подавления зарождения трёхмерных островков и, как результат, понижение поверхностного рельефа (планаризация поверхности), по сравнению с обычной гетероэпитаксией из молекулярных пучков. Авторы связывают это с диссоциацией островков в присутствии большой концентрации поверхностных вакансий, создаваемых в процессе распыления материала ионным пучком, или с разрушением трёхмерных островков, вызванным прямым попаданием ионов. Эти процессы могут иметь место только при достаточно высокой плотности ионного потока, которая сравнима с плотностью потока осаждаемых частиц в молекулярном пучке. Такие условия как раз и были реализованы в данных экспериментах (ионный поток составлял около 10^{14} ионов/(см²с)).

Мы видим, что при различных условиях роста и разных параметрах ионного пучка могут наблюдаться самые разные и даже противоположные физические явления: например, стимуляция и подавление роста островков, “выглаживание” и увеличение шероховатости поверхности. Поэтому ионное облучение может явиться полезным инструментом для достижения разнообразных целей.

1.2.2. Влияние ионного пучка на процесс роста пленок

1.2.2.1. Энергия ионного пучка

Как было показано выше, энергия ионов играет определяющую роль при взаимодействии иона с кристаллом. При достаточно больших энергиях воздействие пучком может привести к генерации протяженных дефектов в объеме растущей плёнки, поэтому энергию пучка выбирают меньше определенной критической энергии, но большей по сравнению с «тепловой» энергией частиц, которая определяется характерной температурой источника молекулярного потока и составляет величину порядка 0.1 эВ.

В работах Choi et al. [112] методом дифракции быстрых электронов и просвечивающей электронной микроскопии исследовали морфологию поверхности пленки InAs, выращенной на подложке Si(100) при облучении низкоэнергетическими (~100 эВ) ионами Ag⁺ в процессе эпитаксии. Было показано, что при температуре 380°C рост пленки InAs идет по механизму Странского – Крастанова. Облучение ионами с энергиями 13 – 28 эВ приводит к подавлению трехмерного роста островков, способствует выглаживанию поверхности. Авторы объяснили это тем, что при низких энергиях иона атомам передается незначительная часть энергии, которой достаточно лишь для перемещения их из вышележащего слоя в нижележащий. В результате рост плёнки идет по двумерно-слоевому механизму, что приводит к уменьшению плотности дефектов в растущей плёнке. При дальнейшем увеличении энергии ионов (> 30 эВ) происходит возрастание шероховатости поверхности и уменьшение критической толщины перехода к трехмерному росту. Авторы связывают это с возрастанием диффузионной подвижности адатомов за счет прямой передачи энергии от налетающих ионов. В этих условиях адатомы получают достаточно энергии для перехода в вышележащие слои, что облегчает переход к трехмерному росту.

В этой же работе было показано, что с понижением температуры до 250°C формируется аморфная фаза InAs, тогда как в условиях ионного облучения при энергиях

больше 28 эВ плёнки InAs/Si(100) были кристаллическими. Подобные результаты получены для плёнок GaAs, выращенных на подложке Si(100) при облучении ионами Ar^+ в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии [92].

Авторы работы [113] методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) и эллипсометрии исследовали состояние аморфной пленки Ge, выращенной из электронно-лучевого испарителя при облучении низкоэнергетическими ионами Ar^+ . Было установлено, что зависимость плотности плёнки от энергии ионов имеет немонотонный характер: с увеличением энергии плотность плёнки возрастает, достигая максимального значения при 18 эВ, а затем начинает падать. Полученные результаты авторы объясняют стимуляцией диффузии за счёт непосредственной передачи энергии ионов атомам. Однако с увеличением энергии ионного пучка возрастает концентрация вводимых дефектов вакансионного типа, что приводит к падению плотности плёнки.

В обзоре [103] показано, как с помощью ПЭМ исследовали плёнку Ge, осажденную на поверхности SiO_2 из электронно-лучевого испарителя. Часть образца в процессе роста пленки Ge облучали низкоэнергетическими (150 – 350 эВ) ионами Ar^+ . Было обнаружено, что с возрастанием энергии ионов плотность островков увеличивалась, а их средний размер уменьшался. То же самое происходило и при увеличении плотности ионного потока при фиксированной энергии ионов.

В 1999-2001 годах появились работы [25, 97] по измерению коэффициента ионно-стимулированной диффузии Ge на поверхности Si(111) при облучении ионами инертных газов (Ne^+ , Ar^+ , Xe^+) с энергией от 10 до 65 эВ. Авторы отслеживали диффузионное “размытие” профиля концентрации адатомов Ge, созданного путём осаждения через маску. Концентрация адатомов Ge измерялась оптической методикой, основанной на облучении поверхности лазерными импульсами и детектировании второй гармоники (на отражение). Было получено, что, начиная с энергии ионов 15 эВ, происходит увеличение коэффициента поверхностной диффузии Ge по сравнению со случаем без ионного облучения поверхности (рис. 1.13).

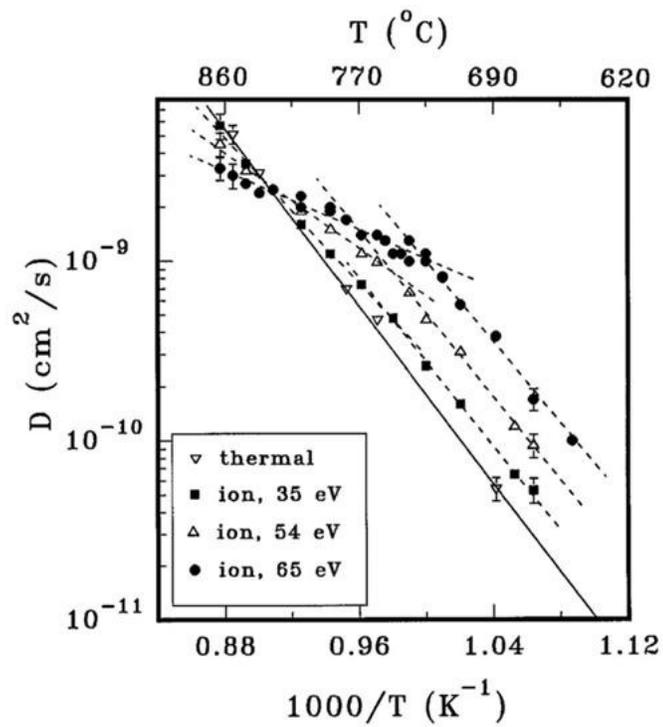


Рис. 1.13. Температурная зависимость коэффициента диффузии Ge на Si(111) при облучении ионами Ar^+ разных энергий ионов [25]. Плотность ионного потока $3 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$.

1.2.2.2. Плотность ионного пучка

Плотность ионного потока – второй параметр, позволяющий эффективно управлять процессами на поверхности и в объеме. В работах Гусевой М.Б и др. [44, 114] методом оптической микроскопии исследовалась начальная стадия роста металлических плёнок Zn на подложках Cu при одновременном облучении пучком Ag^+ с энергией 280 эВ. Изучалось влияние ионного облучения на скорость зародышеобразования. Определяющим параметром эксперимента оказалась плотность ионного потока. Было показано, что скорость зародышеобразования есть немонотонная функция плотности ионного потока. На рисунке 1.14 показана зависимость критического потока (т. е. минимального потока атомов, обуславливающего образование устойчивого конденсата на поверхности) от плотности ионного тока. При плотностях, меньших некоторой критической величины, ионный пучок приводил к стимулированию зарождения островков, а при больших потоках – к подавлению зародышеобразования.

Авторы работы объясняют наблюдаемую немонотонность конкуренцией двух факторов: 1) генерацией ионным пучком точечных дефектов в приповерхностном слое растущей плёнки, служащих центрами конденсации; 2) уменьшением концентрации активных центров конденсации за счет возбуждения колебаний кристаллической решётки (радиационная тряска) при столкновении иона с поверхностью. При больших плотностях начинает превалировать ионно-стимулированный “отжиг” центров зарождения. Другая причина уменьшения концентрации островков может быть связана с разбиванием островков прямым попаданием иона, что тоже проявляется при больших плотностях ионного потока [30].

Следует отметить, что увеличение плотности ионного потока оказывается во многом аналогичным увеличению энергии ионного пучка. Согласно теоретическим оценкам, сделанным в работе Гусевой [44], поверхностная плотность зародышей в условиях ионного облучения даётся формулой:

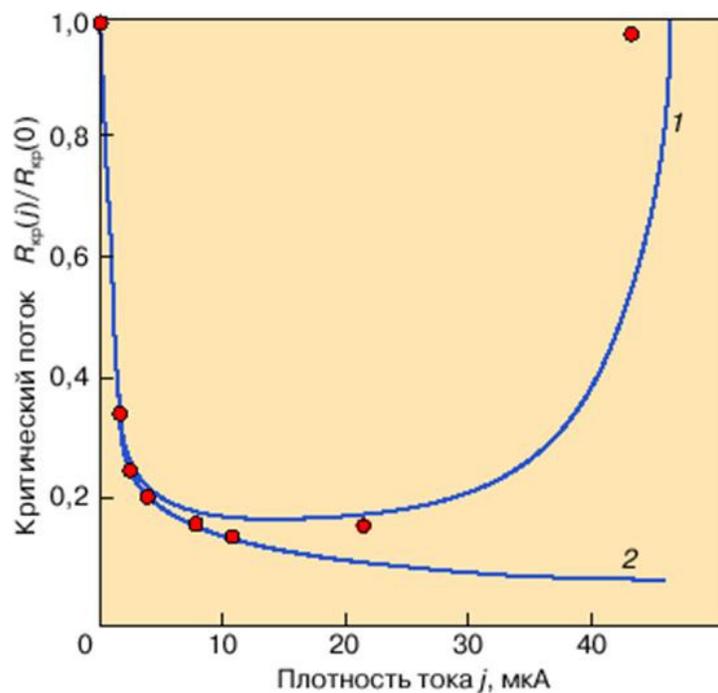


Рис. 1.14. Зависимость критического потока для зародышеобразования Zn на Cu от плотности ионного потока [44]. Кривая 1 соответствует теоретическому расчёту с учётом уменьшения концентрации активных центров зарождения за счёт возбуждения фононов (“радиационная тряска”) при столкновении иона с поверхностью. Кривая 2 – без учёта эффекта “радиационной тряски”.

$$n_3^j = n_3^0 \left(1 + \sqrt{\gamma j E_{ion}}\right) (1 - A j E_{ion}), \quad (1.10)$$

где n_3^0 – поверхностная плотность зародышей в отсутствии ионного облучения; j – плотность ионного потока; E_{ion} – энергия ионов в пучке; γ – коэффициент, учитывающий вероятность генерации и рекомбинации точечных дефектов, создаваемых ионным пучком, A – коэффициент, описывающий «радиационную тряску». На основании полученной в работе закономерности, авторы делают вывод, что управлять процессом зарождения и, следовательно, структурой и свойствами образующейся плёнки на поверхности твёрдых тел можно в одинаковой мере изменением либо плотности ионного потока j , либо энергии ионов E_{ion} . Подобная связь между энергией и плотностью ионного потока наблюдалась в другой работе [115], где методом СТМ исследовалось влияние облучения ионами Ag^+ с энергией, изменяемой в области $0.4 \div 4$ кэВ на зарождение островков при гомоэпитаксии Pt/Pt(111) из молекулярного пучка. С увеличением энергии ионов при фиксированной плотности ионного потока поверхностная плотность островков возрастала. То же самое наблюдалось с увеличением плотности ионного потока при фиксированной энергии ионов.

В работе Tsai et al. [116] проводили низкотемпературный (200 – 450°C) рост пленки $Si_{0.2}Ge_{0.8}$ (~100 нм) на поверхности Ge(100) из молекулярных пучков. В процессе роста плёнки облучались ионами Ag^+ с энергиями 50 – 1500 эВ. Плотность потока ионов меняли от $4 \cdot 10^{12}$ до $3 \cdot 10^{14}$ см⁻²с⁻¹. Методами ДБЭ *in situ* и рентгеновской дифракцией *ex situ* исследовали влияние ионного потока на упругие напряжения пленки.

Было обнаружено, что увеличение плотности ионного потока или энергии ионов приводит к уменьшению упругих напряжений в пленке $Si_{0.2}Ge_{0.8}$, что препятствует зарождению дислокаций в них. Перпендикулярная к поверхности компонента тензора деформации уменьшается на 1.5% при увеличении величины ионного потока в указанном диапазоне. Просвечивающая электронная микроскопия показала, что плёнка $Si_{0.2}Ge_{0.8}$ толщиной 100 нм сформированная при плотности ионного потока $5 \cdot 10^{13}$ см⁻²с⁻¹ не содержат дислокаций.

Авторы работы провели модельные расчеты упругих напряжений пленки в зависимости от количества введенных точечных дефектов на поверхности и в объеме. Было отмечено, что дефекты, введенные на поверхности пленки, практически не влияют на изменения упругих напряжений и быстро отжигаются. Основную роль в процессе модификации упругих напряжений играют точечные дефекты, находящиеся в объеме. Количество введенных дефектов и глубина их залегания в свою очередь сильно зависят от плотности ионного потока и энергии ионов [116].

1.2.2.3. Длительность воздействия ионным пучком

Производимые ионным пучком изменения на поверхности сильно зависят от длительности его воздействия.

Rosenfeld et al. исследовали рост Ag плёнки на поверхности Ag(111) в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии при облучении ионами Ar^+ с энергией 600 эВ. Ионное облучение пленки проводилось как непрерывно, так и импульсно. На рисунке 1.15 представлена эволюция интенсивности отражённого от поверхности теплового пучка He^+ в процессе гомоэпитаксии Ag/Ag(111). Обнаружено, что при непрерывном ионном облучении (рис. 1.15, с), так же как и в случае МЛЭ без ионного облучения (рис. 1.15, а) интенсивность анализирующего пучка монотонно убывает, что указывает на трёхмерный рост. Импульсное облучение ионами Ar^+ приводило к изменению механизма роста плёнки: рост трехмерных островков при эпитаксии Ag из молекулярного пучка сменялся двумерно-слоевым ростом, если импульсное воздействие ионами осуществлялось с периодом, соответствующим осаждению одного монослоя (рис. 1.15, в) [33, 103].

Подобные результаты были получены в металлических системах Pt/Pt(111), Cu/Cu(111), Ni/Cu(111), где рост происходит преимущественно по трёхмерному механизму. Причина этого – высокий барьер межслоевой диффузии. Авторы работ [33, 113, 117, 118] с помощью

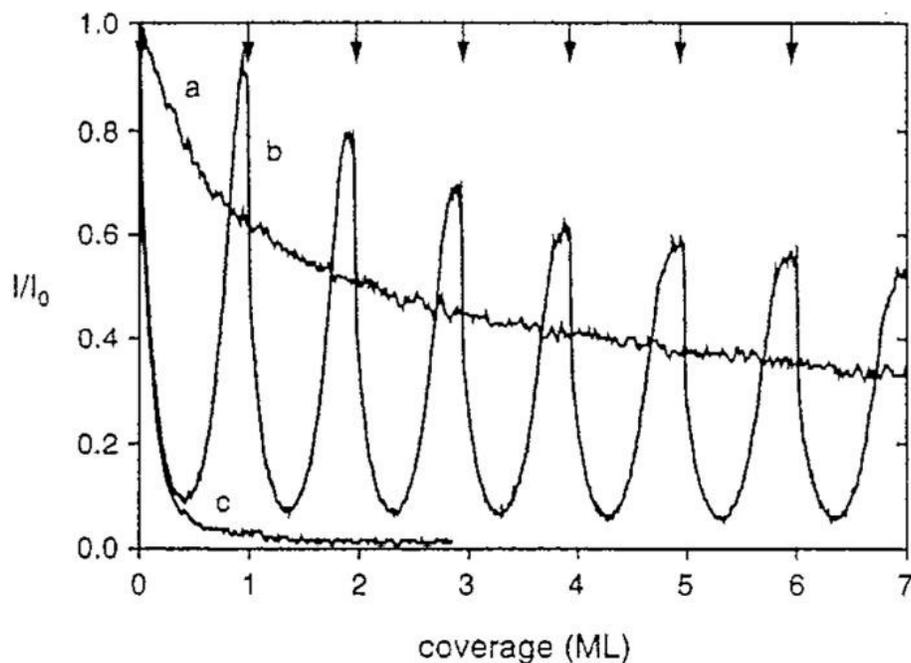


Рис. 1.15. Эволюция интенсивности отражённого от поверхности теплового пучка He в процессе гомоэпитаксии Ag/Ag(111) при температуре 300К. (a) Обычный рост. (b) Рост с одновременным импульсным облучением ионным пучком Ar^+ с энергией 600 эВ. Стрелками отмечены моменты ионного воздействия. Период воздействия соответствует времени осаждения монослоя (ML). (c) Рост при непрерывном облучении ионным пучком Ar^+ . Осцилляции интенсивности I/I_0 соответствуют двумерно-слоевому механизму роста (b), монотонное убывание интенсивности – трёхмерному росту (a, c) [103].

импульсного ионного воздействия стимулировали зарождение двумерных островков на поверхности, что приводило к смене механизма роста.

Смена механизма роста плёнок объясняется тем, что импульсное ионное облучение приводит к одномоментной генерации адатомных кластеров, которые в последствии становятся центрами зарождения двумерных островков [33, 115]. Одномоментное зарождение способствует увеличению плотности островков, уменьшению их размера и сужению распределения по размерам. При малом размере островков уменьшается вероятность прямого осаждения атомов на островки и увеличивается вероятность ухода адатомов с поверхности двумерных островков в нижележащие атомные слои. Размер двумерного островка напрямую связан с плотностью островков на поверхности: чем выше плотность, тем меньше средний размер островка. Увеличение плотности означает, что расстояние между островками сокращается, и они успевают срастаться до начала образования трёхмерных островков. Механизм роста становился двумерно-слоевым.

По мнению авторов, причина стимуляции перехода к трёхмерному росту, в условиях непрерывного ионного облучения, состоит в том, что генерация адатомных кластеров идет не только на поверхности между островками, но и на вершинах двумерных островков [103]. Помимо этого, при непрерывном ионном облучении в отличие от импульсного ионного воздействия нет эффекта одномоментной генерации адатомных кластеров. В результате на поверхности зарождение островков происходит в случайные моменты времени, что приводит к увеличению их разброса по размерам (распределение островков по размерам уширяется). В этих условиях на поверхности всегда присутствуют двумерные островки достаточно большого размера, для которых адатомы имеют большую вероятностью остаться на его поверхности и зародить островок следующего атомного слоя, что приводит к формированию трёхмерных островков.

В работах [24, 28, 119] были проведены экспериментальные и теоретические исследования динамики изменения морфологии и сверхструктуры поверхности кремния в

процессе эпитаксиального роста с одновременным облучением низкоэнергетическими ионами. Импульсное ионное воздействие на поверхность производилось на различных стадиях роста эпитаксиальной плёнки с контролем состояния поверхности *in-situ* методом ДБЭ. Использовались как собственные пучки ионов осаждаемого материала, так и пучки ионов инертных газов. Продолжительность одного импульса составляла 0.5–1 с, энергия ионов — от 80 до 300 эВ.

После импульсного воздействия пучком низкоэнергетических ионов Kr^+ в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии Si(111) в области малых доз ионного облучения ($10^{11} \div 10^{12} \text{см}^{-2}$) был обнаружен эффект усиления интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ, что соответствует уменьшения шероховатости ростовой поверхности (рис. 1.16). Авторы работы [28, 119] также экспериментально зафиксировали сверхструктурный фазовый переход $(5 \times 5) \Rightarrow (7 \times 7)$ на поверхности Si(111) после импульсного ионного воздействия в условиях МЛЭ (рис.1.17).

Авторы отмечают, что одной из причин “выглаживания” поверхности после импульсного ионного воздействия может быть введенная ионным пучком избыточная концентрация поверхностных вакансий. Ионный пучок при столкновении с поверхностью генерирует вакансионные кластеры и адатомы, локализованные вблизи мест столкновения ионов с поверхностью.

Если подвижность адатомов достаточно высока, то можно предположить, что все они достигнут соседних с ними вакансионных кластеров и аннигилируют на них. В этом случае сформируется новая поверхностная конфигурация с более высокой плотностью поверхностных вакансионных кластеров меньшего размера, чем в отсутствии ионного облучения. Вследствие этого при последующем осаждении из молекулярного пучка увеличивается вероятность захвата адатомов на поверхностные вакансии и подавляется зарождение островков нового монослоя до полной застройки предыдущего. В результате, к моменту завершения монослоя плотность островков, успевших зародиться на его

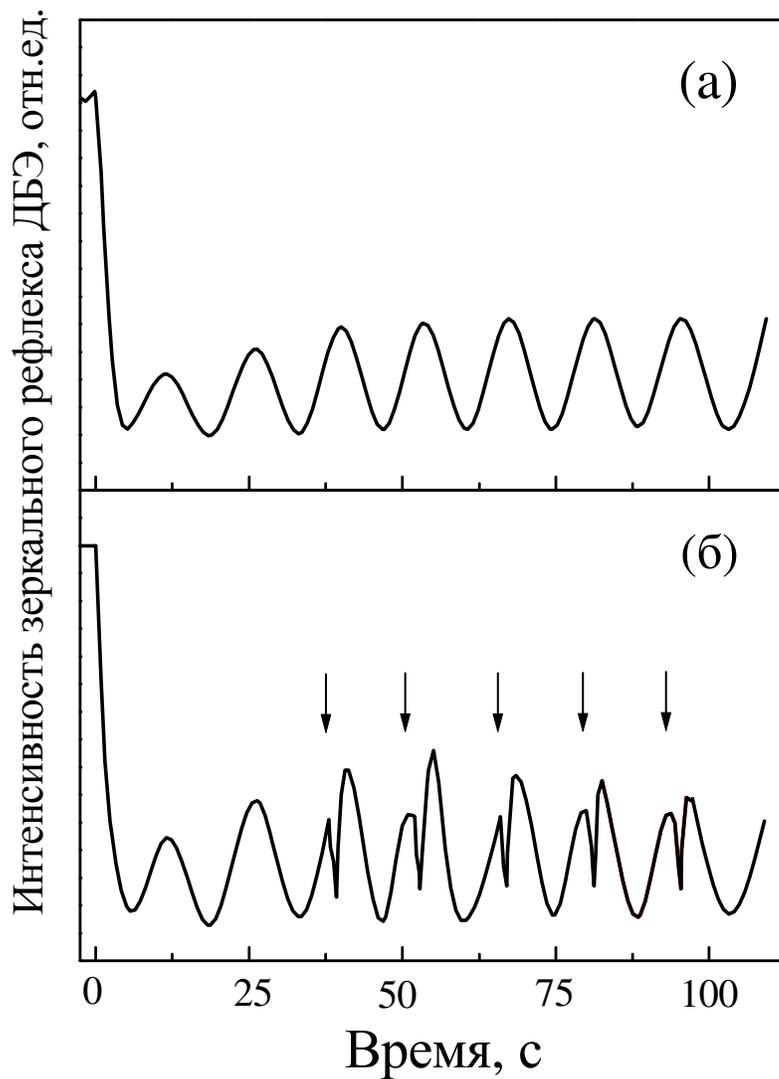


Рис. 1.16. Осцилляции интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ в процессе гомоэпитаксии Si(111) из молекулярного пучка при температуре 400°C : (а) без ионного облучения, (б) при многократном импульсном ионном воздействии на каждый растущий монослой при фиксированной степени его заполнения $\theta \approx 0.8$. Параметры ионного пучка такие же как на подписи к рисунку 22 [122].

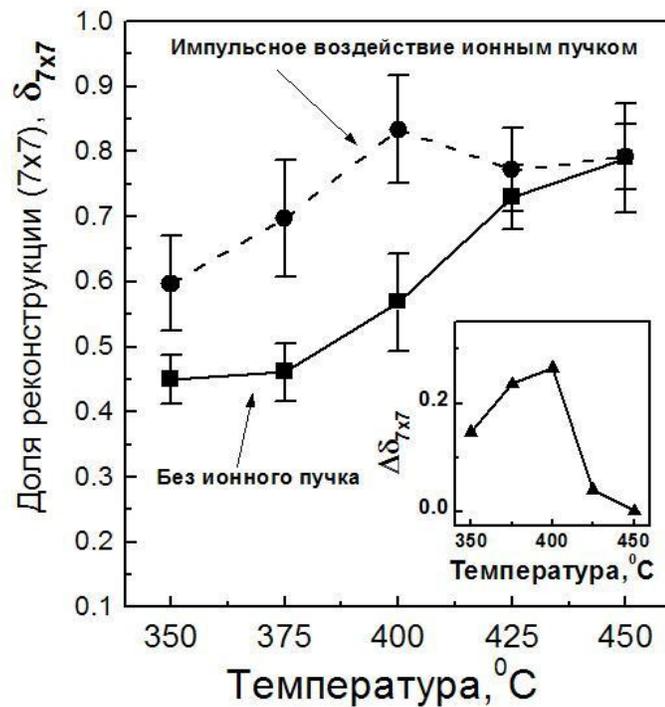


Рис. 1.17. Температурная зависимость доли поверхности занятой сверхструктурой (7×7) после прерывания молекулярного потока кремния и после последующего импульсного ионного воздействия. Вставка: изменение вклада ионно-стимулированной реконструкции $\Delta\delta_{7 \times 7}$ с температурой [122].

поверхности, снижается и, соответственно, можно ожидать уменьшения шероховатости поверхности растущего слоя.

Ещё одной причиной “выглаживания” поверхности может быть изменение реконструкции под действием ионного облучения. Изменение реконструкции влечет за собой изменение потенциального рельефа поверхности, что, соответственно, может привести к изменению скорости диффузионных процессов. Так, например, если на реконструированной ионным пучком поверхности диффузионная подвижность адатомов возрастает, то на завершающей стадии роста атомного слоя это должно привести к “выглаживанию” поверхности за счёт более эффективного заполнения поверхностных вакансий и подавления зарождения островков.

Изменение реконструкции может быть связано с локальным повышением атомной плотности в окрестности удара иона. Известно, что атомная плотность реконструкции (7x7) примерно на 4% превышает атомную плотность поверхности Si (111) без реконструкции, тогда как атомная плотность (5x5) совпадает с последней [63, 120, 121]. Поэтому для формирования (7x7), в отличие от (5x5), требуется наличие дополнительных адатомов, которые могут, например, поставляться за счёт генерации адатомов ионным пучком.

Кроме того, в приповерхностном слое могут содержаться избыточные междоузельные атомы, формируемые в процессе взаимодействия низкоэнергетического иона с поверхностью кремния. Согласно данным расчёта методом молекулярной динамики [23], их количество сравнимо с количеством адатомов, создаваемых ионным пучком. Присутствие междоузлий может локально увеличить атомную плотность и таким образом стимулировать формирование сверхструктуры (7x7) [121].

В работе [123] представлены данные по низкотемпературному росту (250-400°C) плёнки Ge на поверхности SiO₂ в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии при импульсном воздействии пучком ионов Ge⁺ с энергией 200 эВ. Импульсное воздействие включалось после предварительного осаждения 3 монослоев Ge. С помощью ПЭМ было обнаружено, что при осаждении Ge на SiO₂ формируются нанокластеры Ge сферической формы, имеющие

кристаллическую структуру. В случае с импульсного ионного воздействия наблюдалось значительное увеличение плотности нанокристаллов (примерно в 2 раза) по сравнению с обычной МЛЭ. При этом происходит уменьшение размеров нанокристаллов и уменьшение дисперсии нанокристаллов по размерам.

Заключение по главе 1

Метод молекулярно-лучевой эпитаксии широко используется для формирования гетероструктур с квантовыми точками. Формирование нанокристаллов происходит по механизму Странского-Крастанова. Существуют различные методы, с помощью которых можно управлять морфологией растущей плёнки, зарождением и ростом нанокластеров на поверхности в процессе гетероэпитаксии.

Одним из методов является облучение поверхности низкоэнергетическими ионами при эпитаксиальном росте. Ионы с энергией порядка 100 эВ, взаимодействуя с поверхностью полупроводников, приводят к генерации адатомов и распылению материала. Кроме того, ионы, сталкиваясь с поверхностью, могут энергетически подпитывать процессы диффузии и фазового перехода. Ионное облучение приводит к следующим эффектам: «выглаживанию» поверхности; снижению температуры эпитаксии; росту совершенных тонких пленок при гетероэпитаксии в условиях большого рассогласования постоянных решеток.

Было показано, что импульсное ионное воздействие обеспечивает дополнительные возможности по сравнению с непрерывным облучением. В частности, применительно к гомоэпитаксии Si было обнаружено, что импульсное воздействие ионами приводит к изменению реконструкции поверхности и существенно влияет на кинетику роста островков. Также импульсное ионное облучение предоставляет возможность реализовать идею синхронизации зарождения островков.

Таким образом, к началу выполнения диссертационной работы имелись предпосылки для разработки метода управления синтезом нанокластеров Ge на Si посредством ионного воздействия.

ГЛАВА 2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТОВ

§ 2.1. Установка молекулярно-лучевой эпитаксии

Требования к установке и условия проведения эксперимента

Для решения поставленных задач необходима экспериментальная установка, удовлетворяющая целому ряду требований:

- высоковакуумные условия для получения и сохранения в процессе исследования атомарно-чистой поверхности кремния и германия;
- независимое формирование требуемых потоков Si и Ge и их контроль в процессе осаждения;
- контроль и поддержание температуры подложки кремния;
- устройство, позволяющее ионизировать молекулярный поток германия;
- контроль плотности потока ионов;
- возможность изменения энергии ионов германия;
- возможность анализа структуры поверхности Si и Ge;

Всем этим требованиям в достаточной степени удовлетворяла установка молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), разработанная и изготовленная в ИФП СО РАН [126]. Дополнительно в установку было встроено устройство ионизации молекулярного потока, разработанное сотрудниками лаборатории «Неравновесных полупроводниковых систем».

2.1.1. Сверхвысоковакуумная установка молекулярно-лучевой эпитаксии

В ходе проведения исследований по тематике диссертации экспериментальная установка «Ангара», прототип которой представлен в работе [126], подвергалась

модернизации. Это касалось установки ионизирующего устройства. В конечном варианте схема установки представлена на рис.2.1.

Откачка рабочей камеры осуществляется двумя магниторазрядными насосами НМД-0,4 и титановым сублимационным насосом с криопанелью, охлаждаемой жидким азотом. Предельный вакуум в рабочей камере составляет 10^{-7} Па. Установка МЛЭ содержит электронно-лучевой испаритель кремния, над которым расположена заслонка для перекрытия потока. Осаждение пленки германия осуществлялось из тигля, изготовленного из пиролитического нитрида бора, который имеет собственную заслонку. Над тиглем расположен блок ионизации потока германия.

В настоящей установке для проведения эксперимента могут использоваться пластины кремния диаметром до 60 мм. Шлюзовая камера позволяет загружать только одну пластину. Шлюз отделен от рабочей камеры шиберным затвором с витоновым уплотнением и имеет автономную систему откачки. Предельный вакуум в шлюзовой камере без отжига обеспечивается магниторазрядным насосом НМД-0,4 и составляет 10^{-6} Па. Предварительный вакуум порядка $10^{-2} - 10^{-3}$ Па достигается двухступенчатой системой откачки, образованной пластинчато-роторным насосом 2НВР-5ДМ с азотной ловушкой заливного типа и сорбционным насосом погружного типа.

Подложка закрепляется на молибденовом носителе с помощью четырех танталовых усиков. Носитель с подложкой устанавливается на двухступенной манипулятор в шлюзовой камере. Манипулятор представляет собой штангу с постоянным магнитом, перемещающуюся в вакуумном объеме, в трубе из нержавеющей стали. После откачки шлюза до вакуума 10^{-6} Па или выше, шиберный затвор может быть открыт для передачи образца с помощью манипулятора в рабочую камеру, и по завершении роста – обратно в шлюз. В ростовой камере носитель с подложкой закрепляется на пяти-ступенном манипуляторе, содержащем нагреватель. При этом подложка может перемещаться с нагревателем в трех направлениях, вращаться вокруг своей оси и изменять угол наклона.

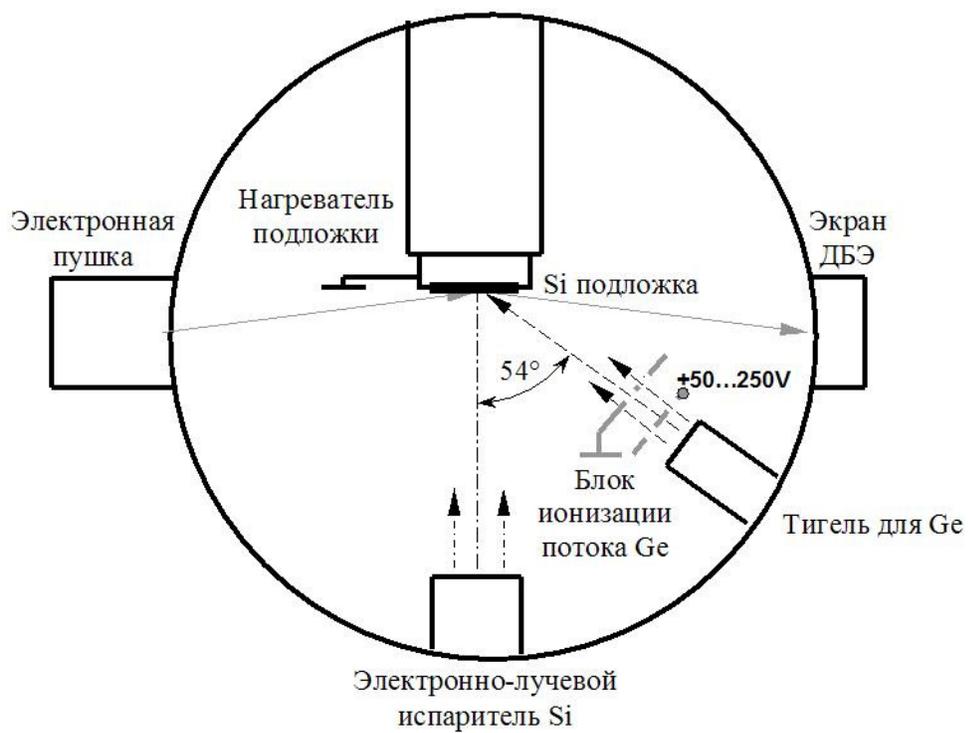


Рис. 2.1. Схема установки молекулярно-лучевой эпитаксии с устройством ионизации потока германия.

Аналитическая часть установки состоит из дифрактометра быстрых электронов. Электронная пушка и люминесцентный экран дифрактометра обеспечивают контроль структуры поверхности подложки на всех стадиях проведения эксперимента.

В процессе роста пленки германия картина дифракции быстрых электронов регистрируется на цифровую видеокамеру. В дальнейшем данные вводятся в компьютер и обрабатываются с помощью разработанной нами программы.

2.1.2. Электронно-лучевой испаритель кремния

Напыление особо чистых материалов целесообразно проводить из автотигля – расплава в твердой оболочке самого материала. Наиболее удобна и проста реализация автотигля при использовании электронной бомбардировки для нагрева области расплава. В свою очередь, для исключения загрязнения продуктами ионного распыления электродов, находящихся под высоким отрицательным потенциалом, необходимо применить систему поворота электронного пучка к мишени магнитным полем. Этим требованиям удовлетворяют электронно-лучевые испарители с магнитной фокусировкой, описанные авторами работы [127].

Корпус ЭЛИ водоохлаждаемый, выполнен из нержавеющей стали. Электронный пучок формируется системой электродов, поворачивается в магнитном поле на угол 270° и фокусируется в пятно диаметром 5-10 мм в центральной части тигля (смотри схему принципа действия электронно-лучевого испарителя рис. 2.2). Необходимая индукция над тиглем (0.015-0.02 Тл) обеспечивается набором постоянных Sm-Co магнитов и магнитопроводом из стали Ст.3. Применение постоянных магнитов повышает надежность ЭЛИ, так как исключается возможность попадания электронного пучка на корпус и арматуру установки при авариях источника питания электромагнита. Расстояние между ЭЛИ и подложкой составляет около 300 мм. Рабочие скорости осаждения материала 0,02 – 1,5 мкм/час, максимальная – около 10 мкм/час. Разброс толщины пленки на диаметре 60 мм не превышает 5%.

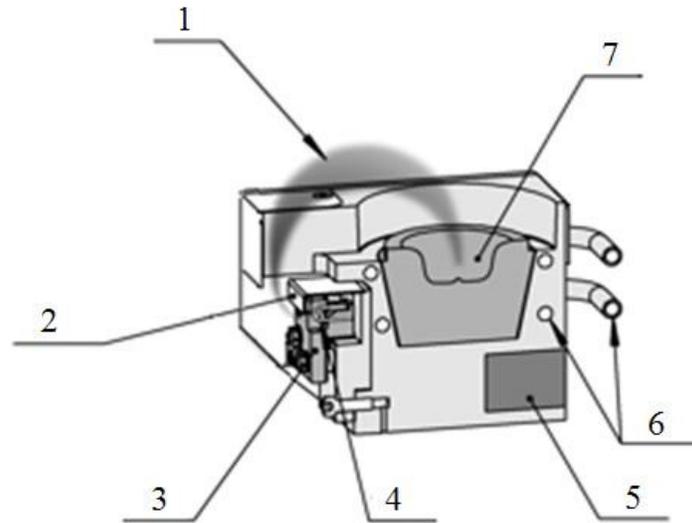


Рис. 2.2. Схема принципа действия электронно-лучевого испарителя.
1 – электронный луч; 2 – вытягивающий электрод; 3 – катодный узел;
4 – катод; 5 – магнит; 6 – трубки водяного охлаждения; 7 – мишень
(испаряемый материал).

2.1.3. Тигельный источник

В качестве источника потока германия используется тигель из пиролитического нитрида бора [128]. Внешний вид типичного тигельного источника представлен на рис. 2.3.

Плотность потока атомов или молекул вдоль осевой линии молекулярного источника на расстоянии L от апертуры тигля определяется в первом приближении выражением:

$$F = 2.6 \cdot 10^{20} \frac{PA}{\pi L^2 \sqrt{MT}}, \quad (2.1)$$

где P – давление насыщенных паров испаряемого материала (Па) при температуре T (К); A – площадь апертуры тигля (см^2); M – масса испаряемых частиц (а.е.м.). По данному выражению можно найти оценочное значение. Действительное значение плотности потока отличается от оценочного, т.к. реальный источник не является равновесным, и давление пара в апертурной плоскости источника отличается от давления насыщенного пара при определённой температуре. Расчетная формула должна содержать поправочный множитель, который не может быть вычислен непосредственно. Таким образом, плотность потока атомов из молекулярного источника зависит от температуры, которая может быть задана с высокой точностью, от степени заполнения тигля (влияет на значения параметров A и L), от его формы (влияет на диаграмму направленности), от площади поверхности испарения, и от многих других. Т.к. все факторы, за исключением температуры тигля, трудноконтролируемые, то требуется периодическая калибровка молекулярного источника. В установке контроль осуществляется путем введения в пучок в непосредственной близости от подложки датчика ионизационного вакуумметра. Калибровка плотности молекулярного потока зачастую осуществляется по осцилляциям ДБЭ, полученным при двумерно-слоевом росте пленки германия. В процессе роста плотность молекулярного потока контролируется по показаниям термопары и току нагревателя тигля. Рабочая плотность формируемого потока германия находится в диапазоне от $10^{12} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ до $10^{15} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$.

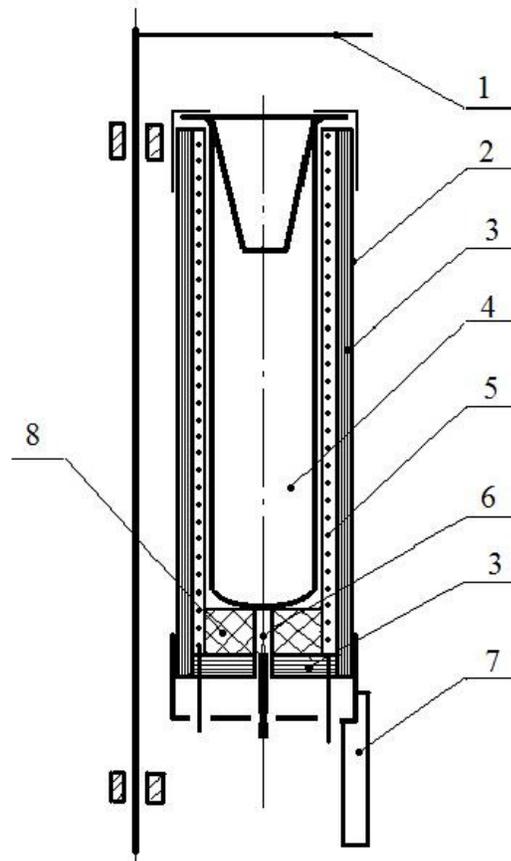


Рис. 2.3. Конструкция тигельного источника: 1 – заслонка; 2 – корпус; 3 – экраны; 4 – тигель; 5 – нагреватель; 6 – термопара; 7 – консоль крепления источника; 8 – опора тигля [128].

2.1.4. Устройство ионизации

Система ионизации и ускорения ионов (рис. 2.4) была изготовлена сотрудником ИФП СО РАН, лаборатории «Неравновесных полупроводниковых систем» В.А. Кудрявцевым. Система располагается в установке МЛЭ над тиглем с германием и закрепляется на экране водяного охлаждения тигельного источника. При прохождении тока через катод (1) вокруг него образуется электронное облако. Эти электроны ускоряются в направлении перпендикулярном молекулярному потоку атомов Ge, сеткой (2), на которую подают положительный потенциал. При столкновении электронов с атомами Ge происходит процесс ионизации. Образующиеся ионы Ge вытягиваются сеткой (3) и летят на подложку, электроны поступают к аноду (2). Энергия ионов зависит от величины ускоряющего напряжения, приложенного на анод, и может варьироваться в пределах от 50 до 250 эВ. Процент ионизации молекулярного потока (0.01 – 0.6%) зависит от нескольких параметров: тока, проходящего через катод (1), приложенного ускоряющего напряжения и плотности молекулярного потока. В связи с этим требуется калибровка ионного источника по коэффициенту ионизации молекулярного потока. Для этого на место подложки закрепляется металлическая пластина, и проводятся измерения ионного тока. Коэффициент ионизации определяется из соотношения плотностей ионного (j) и молекулярного (F) потока: $k_{ion}=j/F$. Плотность ионного потока оценивается выражением:

$$j = \frac{I}{e \cdot S}, \quad (2.2)$$

где I – ионный ток; e – заряд электрона, S – площадь пластины. Так, например, при величине ионного тока 0.06 – 3.7 мкА плотность ионного потока составляет $10^{10} - 10^{12} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$.

На рисунке 2.5 представлена зависимость коэффициента ионизации молекулярного потока от величины ускоряющего напряжения. Видно, что с увеличением значения приложенного напряжения на анод и плотности молекулярного потока коэффициент

ионизации увеличивается. Аналогичная зависимость получается при фиксированном значении плотности молекулярного потока и различных значениях тока, проходящего через катод (рис. 2.6).

Блок коммутации ускоряющего напряжения ионного источника управляется компьютером. Кратковременная подача высокого напряжения на анод (2), позволяет создавать импульсы ионного тока с длительностью от 0.1 с. Длительность и период следования импульсов задаются программно.

2.1.5. Нагреватель подложки и контроль температуры

В современных установках нагрев подложки производится излучением. При этом обеспечивается легкость замены подложки и возможность ее вращения, однако измерение температуры осложняется. Даже в тех случаях, когда вращение не используется, трудно обеспечить надежный и воспроизводимый тепловой контакт термодпары с подложкой. Как правило, ограничиваются измерением температуры внутри нагревателя или на некотором расстоянии от подложки (рис. 2.4). Поэтому показания термодпары отражают температуру подложки с некоторой систематической погрешностью, зависящей от геометрии системы и оптической прозрачности подложки. Результирующая ошибка измерения может быть очень большой – до сотни градусов. Таким образом, необходима калибровка температуры подложки. Контрольной точкой может служить температура перехода $\text{Si}(111)\text{-}7\times 7 \Leftrightarrow \text{Si}(111)\text{-}1\times 1$, которая обычно принимается равной 831°C . Для независимого определения температуры подложки в процессе роста используется также оптический пирометр спектрального отношения, который позволяет проводить измерения от 500°C и выше. Таким образом, температура подложки в диапазоне от 500 до 830°C может быть определена с достаточной точностью, при этом ошибка составляет менее 20 K . В низкотемпературной области температуру подложки (T_s) можно определить экстраполяцией зависимости T_s от

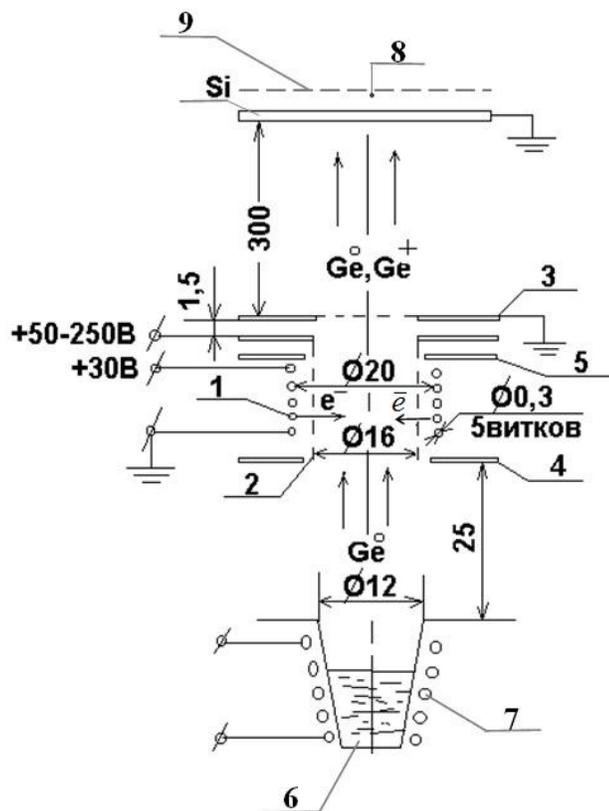


Рис. 2.4. Схема системы ионизации и ускорения ионов германия.

1 – катод (спираль из вольфрамовой проволоки); 2 – сетчатый анод;
 3 – вытягивающий электрод для ионов $I_0 \sim 100 - 250$ мА; электроды
 4 и 5 под свободным потенциалом; 6 – тигель; 7 – нагреватель из
 танталовой проволоки; 8 – термопара; 9 – нагреватель подложки.
 Все размеры в мм.

Расстояние между нагревателем и Si подложкой 5 мм.

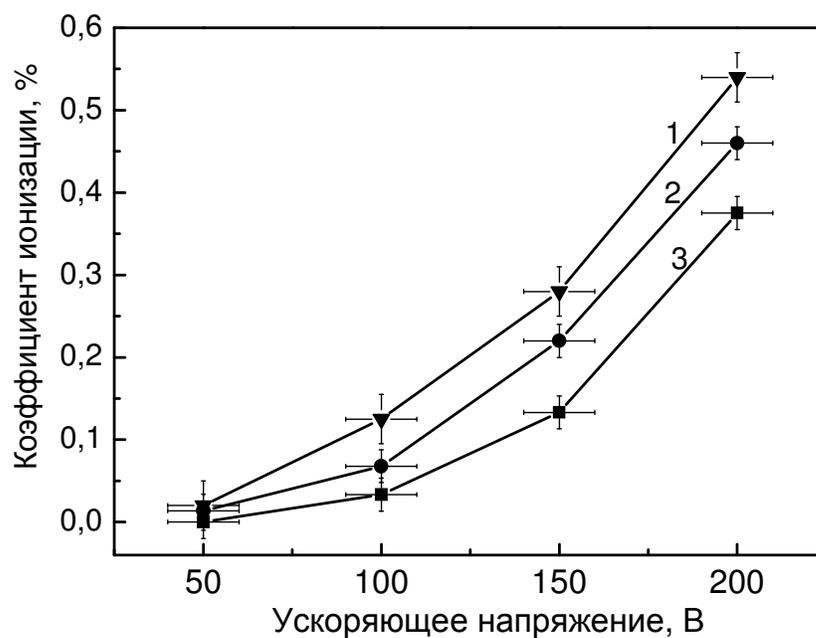


Рис. 2.5. Зависимость коэффициента ионизации молекулярного потока от величины ускоряющего напряжения, приложенного на анод, для разных значений плотности молекулярного потока: 1 – $8.5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$; 2 – $5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$; 3 – $3 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$. Ток катода – 7 А.

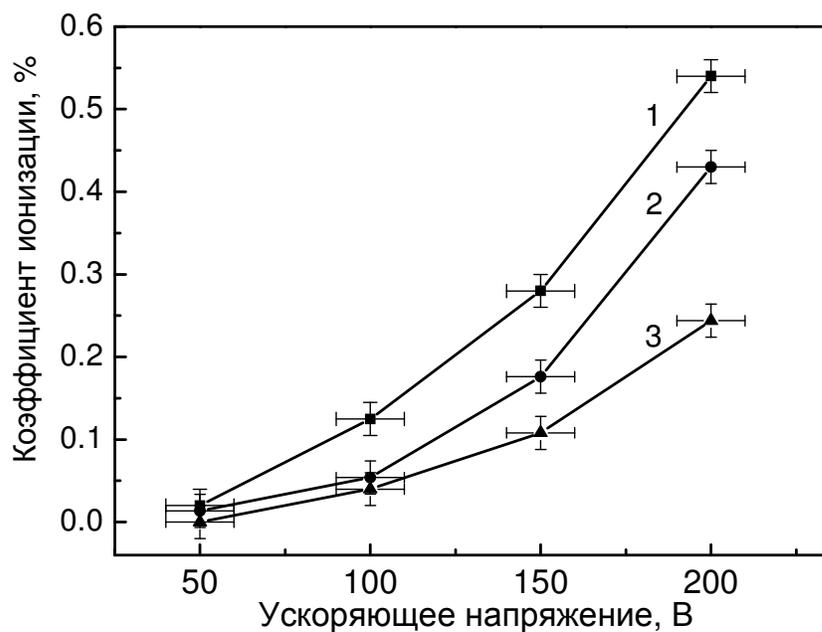


Рис. 2.6. Зависимость коэффициента ионизации молекулярного потока от величины ускоряющего напряжения, приложенного на анод, для разных значений тока катода:

1 – 7 А; 2 – 6.5 А; 3 – 6 А.

Плотность молекулярного потока – $8.5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$.

показаний термопары. Однако это увеличивает погрешность определения температуры подложки до 2 раз. Дополнительную калибровку в низкотемпературной области можно произвести по известным температурам образования эвтектик, например, Si-In, Si-Sn, Si-Bi и др.

2.1.6. Электронная пушка для дифракции быстрых электронов

Система ДБЭ в установках МЛЭ состоит из электронной пушки и люминесцентного экрана, размещенных на диаметрально противоположных фланцах рабочей камеры.

В качестве электронной пушки в нашем случае была использована унифицированная электронная пушка телевизионных кинескопов 61ЛКЗБ и 40ЛК6Б с плоским оксидным катодом косвенного накала [129], позволяющая формировать электронный пучок диаметром менее 0.8 мм с энергией до 40 кэВ.

§ 2.2. Формирование эпитаксиальных слоев Si и Ge

Методика получения эпитаксиальных пленок германия и кремния основана на нескольких физико-технических процессах: подготовка поверхности подложки для эпитаксиального роста, получение пленки Si, рост пленки германия с облучением низкоэнергетическими ионами Ge и без ионного облучения. Все они требуют проведения исследований для их отработки, и поэтому необходимо на каждом процессе остановиться отдельно.

2.2.1. Предэпитаксиальная подготовка поверхности подложки

К качеству подготовки поверхности подложки для МЛЭ предъявляются высокие требования, так как от неё в значительной степени зависит кристаллическое совершенство получаемых слоев. Поверхность пластины имеет слой естественного окисла толщиной 1–2 нм, на котором находится приблизительно монослой влаги и углеводов, адсорбированных из окружающей атмосферы. Если подложку с такой поверхностью нагреть в вакууме, то часть углеводов попадает на поверхность Si, что приведет к образованию термически устойчивого карбида кремния. Кристаллы карбида, в свою очередь, во время эпитаксии станут служить центрами образования структурных дефектов.

Для получения атомарно-чистой поверхности наиболее широкое распространение нашла методика очистки подложки при температурах около 800°C, предложенная авторами работы [130]. Она заключается в создании химическим способом на поверхности кремния тонкого пассивирующего слоя двуокиси кремния с низкой адсорбционной емкостью по отношению к углеводородам. Нагрев подложки с защищенным окислом в ростовой камере при 800°C приводит к восстановлению SiO₂ до монооксида кремния, которая десорбирует с поверхности. Углеводороды десорбируют на начальном этапе нагрева, когда пленка

двуокиси Si ещё сплошная, без взаимодействия с кремнием подложки и образования карбидных частиц. После очистки поверхность кремния свободна от загрязнения и, по данным ДБЭ, имеет сверхструктуру, характерную для чистой поверхности.

В качестве подложек использовались промышленные пластины кремния диаметром 60 мм ориентации (111) и (100). Первым этапом подготовки подложки является обезжиривание пластины. Затем, снятие природного окисла в плавиковой кислоте. Второй этап проводится непосредственно перед вводом подложки в установку МЛЭ. Создается защитный окисел толщиной 2 нм в химическом растворе следующего состава:



После сушки пластины загружаются в шлюзовую камеру и передаются в ростовую. Последний этап в предэпитаксиальной подготовке состоит в десорбции защитного окисла при температуре 800°C в течении 10 мин. С целью снижения времени очистки до 2 мин на поверхность подложки подается поток Si интенсивностью $10^{13}\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$. Этот поток является источником атомов кремния, участвующих в восстановлении SiO_2 , тем самым исключается необходимость диффузии через слой окисла для выхода на поверхность. Такой способ очистки, по данным работы [131], снижает плотность дефектов в эпитаксиальной пленке примерно на порядок.

Процесс очистки поверхности перед ростом контролируется методом ДБЭ. Картина дифракции от окисленной поверхности содержит основные рефлексы и диффузионный фон. После очистки на поверхности подложки формируется сверхструктура, характерная для данного типа подложки.

2.2.2. Молекулярно-лучевая эпитаксия слоев Si

Для максимального выглаживания исходной поверхности пластины Si выращивается тонкий (100 – 300 Å) буферный слой нелегированного Si. В процессе МЛЭ кремния его атомы и кластеры осаждаются на атомарно-чистую поверхность. Реальные скорости роста около 1 мкм/час предполагают, что время получения эпитаксиальной структуры может составлять несколько часов. Атомарно-чистая поверхность может сохраняться в течение указанного времени при давлении 10^{-7} - 10^{-8} Па. Выдержка подобной поверхности в указанных условиях в течение суток может сделать её непригодной для эпитаксии из-за адсорбции углеводородов с парциальным давлением $< 10^{-10}$ Па и образования карбида кремния при последующем нагреве подложки до 600-800 °С.

Минимальная температура роста определяется поверхностной диффузией адатомов кремния к местам встраивания, поэтому для сохранения условий эпитаксии при снижении температуры подложки необходимо снижать скорость роста. Минимальными температурами можно считать 300-400 °С при скорости роста 0.1 мкм/час [132], увеличение скорости роста при низкой температуре приводит к появлению дефектов, обусловленных недостаточной скоростью поверхностной диффузии. Проведение роста в низкотемпературной области требует особого подхода. В большинстве случаев процесс МЛЭ-Si проводится при температуре подложки 600-800 °С. Большие температуры применяются редко из-за диффузионного размытия профиля распределения примеси.

Во время эпитаксии картина ДБЭ практически не меняется и на поверхности роста всегда наблюдается сверхструктура.

2.2.3. Осаждение слоев германия из ионно-молекулярных пучков

Атомы и кластеры германия осаждаются на предварительно выращенный буферный слой Si. Управление процессом эпитаксии осуществляется преимущественно температурой подложки и плотностью молекулярного потока. Так, например, понижение температуры роста, так же как и увеличение потока Ge, ведёт к уменьшению диффузионной длины адатомов Ge на подложке. Что, соответственно, приводит к уменьшению области сбора адатомов для одного островка, уменьшению его размера и увеличению плотности островков. В работе используются низкотемпературные условия роста. Температура подложки варьируется в диапазоне от 250°C до 500°C. Плотность молекулярного потока Ge изменяется в пределах $10^{12} - 10^{15} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$.

Система ионизации и ускорения ионов германия, расположенная над тиглем (рис. 2.4), дает дополнительную возможность в управлении процессом эпитаксии. Ионизация молекулярного потока германия осуществляется поперечным пучком электронов. В процессе роста пленки Ge из ионно-молекулярных пучков варьируются такие параметры, как энергия ионов Ge, доля ионизации молекулярного потока и длительность воздействия ионами. Столкновение низкоэнергетического иона (под углом 54.5°) с поверхностью полупроводника приводит к изменениям морфологии исходной поверхности. Рост пленки германия осуществляется как при включенной системе ионизации молекулярного потока, так и без нее. Действие ионизирующего источника может быть постоянным (непрерывное облучение ионами германия) или импульсным, где ускоряющее напряжение подается кратковременно. Импульсное облучение низкоэнергетическими ионами Ge^+ осуществляется на разных стадиях роста пленки германия по степени заполнения атомного слоя.

В главе 3 будут подробно описаны условия роста пленки германия для каждого эксперимента.

§ 2.3. Методики исследования структур

В процессе работы Ge/Si гетероструктуры исследовались рядом методик, которые в совокупности дают полную информацию о структуре и морфологии поверхности пленки Ge. К ним относятся: метод дифракции быстрых электронов; сканирующая туннельная микроскопия; резерфордское обратное рассеяние (РОР); просвечивающая электронная микроскопия; комбинационное рассеяние света (КРС); растянутая тонкая структура рентгеновского поглощения (EXAFS); фотолюминесценция (ФЛ).

2.3.1. Дифракция быстрых электронов

Метод дифракции быстрых электронов позволяет *in situ* контролировать кристаллическое совершенство и морфологию поверхности растущего слоя в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии. Схема ДБЭ представлена на рисунке 2.6. Пучок электронов с энергией 20 кэВ из электронной пушки (1) направляется на образец (2) под чрезвычайно малым углом скольжения. При этих условиях электроны, рассеянные под малым углом, несут информацию только о верхних 1-2 атомных слоях кристалла. Дифракционная картина наблюдается на люминесцирующем экране (3). Эксперименты по определению характера роста кристалла являются прямыми: мы получаем возможность непосредственно контролировать интенсивность отраженного луча как функцию времени и наблюдать изменения дифракционной картины в процессе роста плёнки. По изменениям интенсивности зеркального рефлекса можно судить о количестве осажденных атомных слоёв, скорости роста пленки, шероховатости поверхности [12, 133–135], составе твердых растворов [68], о переходе от двумерно-слоевого к трехмерному росту [68, 136]. Дифракционные картины отражают изменение морфологии и атомной структуры поверхности растущей пленки [136–141].

На рисунке 2.7 схематически показано рассеяние электронов под углом скольжения на гладкой поверхности (внизу) и на поверхности с трехмерным кристаллическим островком (вверху). Дифракционная картина гладкой поверхности представляет собой систему упорядоченных относительно друг друга рефлексов в виде светлых полос (тяжей), соответствующих стержням обратной решетки образца (рис. 2.8, а), и имеет максимальное значение интенсивности в области зеркально отраженного электронного луча. Трехмерные кристаллические островки сильно изменяют дифракционную картину. За счёт прохождения электронов через объём 3D островков меняется положение и форма ДБЭ рефлексов. В этом случае процесс дифракции больше похож на дифракцию в объемном материале (рис. 2.8, в) [136, 140]. Кроме того, появляются дополнительные тяжи, обусловленные отражением от граней 3D островков.

Авторы работ [136-140] отмечали, что в системе Ge-Si(100) начало образования 3D островков на картинах ДБЭ сопровождается утолщением дифракционных рефлексов и возникновением тяжей V-образной формы, свидетельствующих о фасетировании поверхности, т.е. об образовании регулярно расположенных наклонных граней. Так в процессе роста *hut*-кластеров с гранями {105} наблюдаются дифракционные линии (тяжи), расположенные под углом Θ ($\sim 11.2^\circ$ в азимуте [100]) по отношению к зеркальному рефлексу (рис. 2.8, б). С ростом средней толщины пленки германия дифракционные полосы разрываются, образуя объемные пятна, угол Θ увеличивается ($\geq 18^\circ$). Эта стадия характеризуется как формирование *dome*-кластеров с гранями {113}, {102} (рис. 2.8, в).

В работах [136, 137] проводился сравнительный анализ картин ДБЭ и изображений поверхности, полученных методом сканирующей туннельной микроскопии. Авторами было отмечено, что дифракционные картины с хорошей точностью отображают сверхструктурные изменения поверхности, которые отслеживаются по дифракционным рефлексам и их дублетам (рис. 2.8, г), соответствующим поверхностному расположению атомов. Из соотношения расстояний между основными рефлексам и дублетами можно определить период реконструкции поверхности.

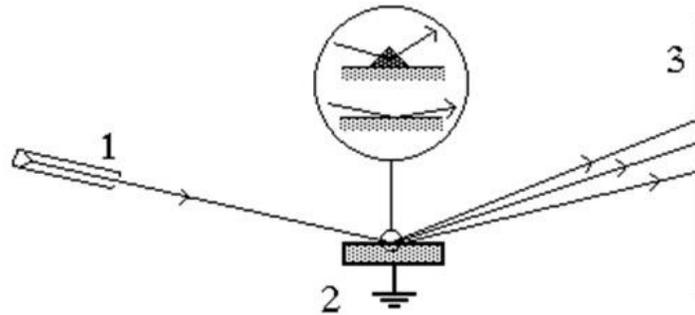


Рис. 2.7. Схема эксперимента для дифракции быстрых электронов: 1 – электронная пушка; 2 – образец; 3 – экран. На вставке изображен угол скольжения: внизу – на гладкой поверхности; вверху – на поверхности с трехмерными островками.

Наиболее широко метод ДБЭ применяется в молекулярно-лучевой эпитаксии для исследования осцилляций интенсивности зеркального рефлекса. Качественную картину возникновения ДБЭ – осцилляций иллюстрирует рисунок 2.9 [133]. Перед началом роста атомных слоев поверхность гладкая, и интенсивность зеркально отраженного электронного луча максимальна. Далее, на поверхность осаждаются атомы, которые сливаются в островки. Электроны рассеиваются на краях островков, и интенсивность зеркально отраженного электронного луча падает. Уменьшение интенсивности происходит до степени заполнения слоя $\theta = 0.5$, а затем интенсивность вновь начинает расти, что связано со срастанием двумерных островков и увеличением вследствие этого гладкости поверхности. При $\theta = 1$, когда поверхность вновь становится атомарно гладкой, интенсивность зеркального рефлекса близка к своему первоначальному значению. Этот цикл изменения интенсивности многократно повторяется по мере роста следующих слоев. Период осцилляций равен времени осаждения одного атомного слоя. По мере роста плёнки осцилляции интенсивности затухают и, начиная с некоторой толщины, интенсивность становится практически постоянной. Это означает, что на поверхности установилось квазиравновесное состояние, характеризующееся стационарной шероховатостью поверхности.

Так, например, при исследовании начальной стадии эпитаксиального роста Ge на Si с помощью анализа осцилляций интенсивности дифрагированного пучка электронов наблюдали затухание осцилляций, а затем и их исчезновение, связанное с достижением критической толщины псевдоморфной пленки Ge и переходом двумерно-слоевого к трёхмерному росту по механизму Странского-Крастанова [68].

В процессе роста гетероструктур особый интерес представляют данные о напряжениях в растущих слоях, которые и являются основной движущей силой морфологических перестроек. Оценить эти напряжения можно по изменению параметра решетки растущей пленки. Изменение параметра решетки может быть установлено из положения рефлексов, соответствующих векторам обратной решетки $(0, \bar{1})$ и $(0, 1)$. Для этого регистрируется изменение интенсивности дифракционной картины вдоль линии, пересекающей тяжи и объемные рефлексы [137, 140, 141].

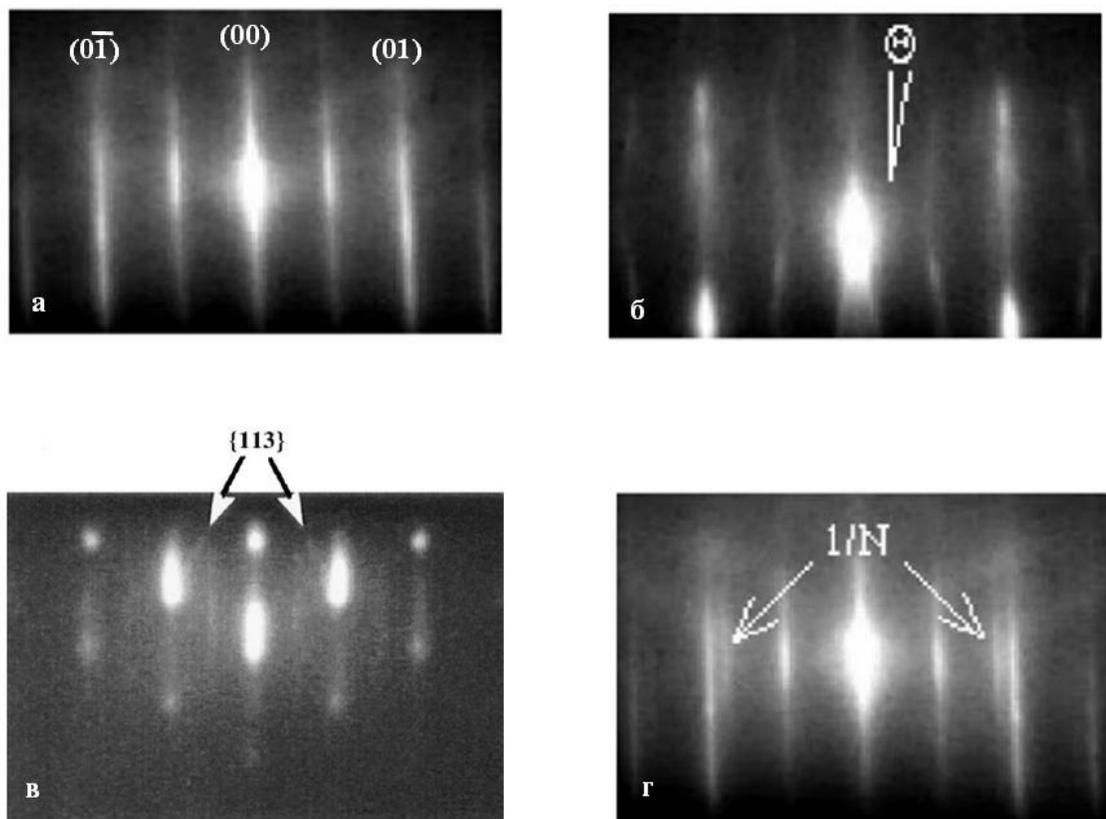


Рис. 2.8. Дифракционные картины, полученные в процессе гетерозпитаксии Ge на Si(100) (в азимуте [110]): а – поверхность Si(100); б – рост *hut*-кластеров, сопровождающийся возникновением тяжей, сформированных на гранях {105} островков [136]; в – формирование *dome* – кластеров с гранями {113}, {102} [137]; г – рост Ge на Si, появление дублетов [136].

Θ – угол между зеркальным рефлексом и тяжем, возникающим из-за рассеяния электронов на гранях трехмерных островков.

N – период реконструированной поверхности Ge.

2.3.2. Сканирующая туннельная микроскопия

Одним из методов исследования морфологии поверхности является сканирующая туннельная микроскопия [142-144]. Достаточно подробное рассмотрение особенностей и возможностей метода СТМ дано в ряде монографий и обзоров (см., например, [20-22]).

Принцип работы СТМ относительно прост (см. рис.2.10). Очень тонкое металлическое остриё, укрепленное на блоке пьезоэлектрического датчика, подводится к исследуемой поверхности настолько близко, что волновые функции «последнего» атома на наконечнике острия и атомов поверхности перекрываются. Величина зазора при этом порядка 5-10 Å. Если приложить напряжение между острием и поверхностью, то через зазор потечет туннельный ток. Плотность этого тока может быть записана в упрощенном виде как:

$$j = D(V) \cdot (V/d) \cdot \exp[-A(\Phi_B^{1/2}) \cdot d], \quad (2.3)$$

где V – приложенное напряжение, $D(V)$ – функция, отражающая плотность электронных состояний, A – константа, Φ_B – эффективная высота барьера туннельного перехода, d – ширина зазора.

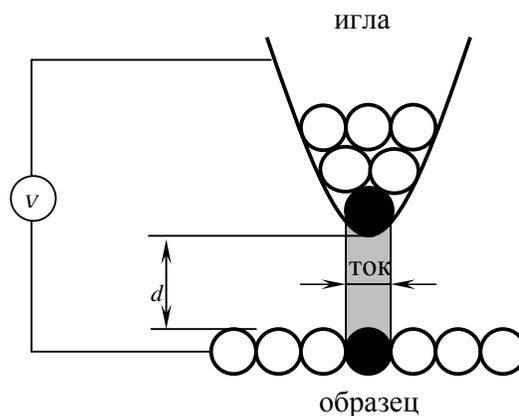


Рис. 2.10. Схема взаимодействия иглы и образца

Как видно, туннельный ток зависит от ширины зазора практически экспоненциально. Именно эта резкая зависимость и определяет исключительно высокое разрешение СТМ «по вертикали». Изменение зазора на 1 \AA приводит к изменению тока на порядок. А если ток поддерживать постоянным с точностью $\sim 2\%$, то величина зазора остается неизменной с точностью $\sim 0.01 \text{ \AA}$.

В СТМ пять основных варьируемых параметров. Это координаты X и Y в плоскости, высота Z , напряжение V и туннельный ток I . По тому, как эти параметры варьируются, выделяют три основных режима работы СТМ:

Режим постоянного тока (constant-current mode). В этом режиме V и I поддерживаются постоянными, X и Y варьируются для сканирования иглой исследуемого участка поверхности, а Z при этом измеряется.

Режим постоянной высоты (constant-height mode). Иногда изображения, получаемые в этом режиме, называют токовыми (current imaging). В этом режиме Z и V поддерживаются постоянными, изменения X и Y служат для сканирования, а I измеряется.

Режим спектроскопии (scanning tunneling spectroscopy). Отличительной чертой этого режима является то, что варьируется V .

Рассмотрим более подробно режим постоянного тока. Этот режим используется наиболее часто. В нем заранее заданное значение туннельного тока поддерживается в ходе сканирования постоянным за счет непрерывной подстройки вертикального положения иглы. На рисунке 2.11 представлен идеализированный пример: сканирование иглы вдоль гладкой горизонтальной поверхности с бугром. Выбранная величина туннельного тока I задаёт величину зазора d . Пока игла движется над горизонтальным участком, зазор остается постоянным, следовательно, остается постоянным и вертикальное положение иглы, и не меняется напряжение V_z на пьезоэлектрическом датчике, контролирующем расстояние между острием и поверхностью. Когда игла оказывается над бугорком, в первый момент зазор уменьшается, и ток возрастает. Следящая система «замечает» изменение тока и

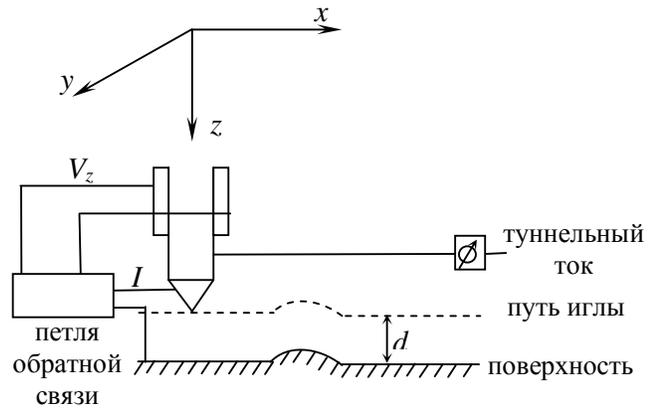


Рис. 2.11. Схема работы СТМ в режиме постоянного тока.

V_z – напряжение, подаваемое на пьезоэлектрический датчик. I – туннельный ток. d – зазор между острием и исследуемой поверхностью.

реагирует на это изменением V_z , игла отодвигается вверх до тех пор, пока ток опять не станет равным исходному значению I . Когда игла проходит бугорок и вновь оказывается над горизонтальным участком, система опускает её вниз для поддержания постоянной величины I . Таким образом, в случае, когда поверхность однородна по своим электронным свойствам, игла при сканировании повторяет все топографические особенности поверхности. Высота особенностей может быть определена по значениям V_z , и в результате получаем высоту рельефа $Z(X,Y)$ как функцию положения иглы. Данные считываются и обрабатываются компьютером, полученное изображение выводится на экран. Примеры получаемых изображений представлены в первой главе (рис. 1.4.- 1.5).

Достоинствами этого режима является возможность работы с неплоскими поверхностями и возможность количественного определения высот по величине V_z и чувствительности пьезоэлемента. Недостаток – ограничение скорости сканирования за счет определенной инерционности цепи обратной связи.

Для диссертационной работы исследования поверхности проводились *ex situ* методом сканирующей туннельной микроскопии на установке STM-MBE “OMICRON-RIBER” при комнатной температуре в режиме постоянного туннельного тока (напряжение 2 В, ток 0.085-0.7 нА, обратная связь 3.76-5.31%).

Обработка экспериментальных данных осуществлялась в следующем порядке:

- 1) Для каждого случая проводили по 5-6 экспериментов. СТМ снимки обрабатывались с использованием специальной программы (WSxM – Image Browser), позволяющей определить распределение островков по размеру и их плотность.
- 2) Из полученных результатов измерений размеров ($X_1, X_2...X_m$) определяли их среднеарифметическое значение \bar{X} и среднеквадратическое отклонение δ по формулам:

$$\bar{X} = \frac{X_1 + X_2 + X_3 + \dots + X_m}{m}, \quad (2.3)$$

$$\delta_m = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^m (\bar{X} - X_i)^2}{m-1}}, \quad (2.4)$$

где m – количество измерений.

3) Для плотности островков вычислялось среднее значение и максимальное отклонение от среднего.

2.3.3. Резерфордовское обратное рассеяние

Резерфордовское обратное рассеяние (POP) – мощный современный метод, позволяющий получать довольно большой объем ценной информации относительно состава исследуемых структур, распределения дефектов и примесей по глубине. Кроме того, эксперименты по каналированию позволяют производить оценку структурного совершенства исследуемого материала. Подробности этого метода хорошо описаны, например, в книге Майера и др. [105].

Для анализа структур обычно используются ионы легких элементов: He^+ , D^+ , ${}^3\text{He}^+$ и ${}^4\text{He}^+$. Энергия анализирующего пучка ионов составляет 0.5-5 МэВ. Ускоренные частицы направляются на образец, закреплённый на гониометре, позволяющем выбирать наклон образца по отношению к падающему пучку. Многоканальный анализатор (детектор) регистрирует частицы, рассеянные на угол θ (рис.2.12). Полученные данные рассчитываются с помощью специальных компьютерных программ и на выходе получают спектры обратного рассеяния. Форма спектра распределения рассеянных частиц по энергиям определяется: 1) упругими процессами рассеяния; 2) неупругими потерями при движении частицы вглубь образца до момента столкновения и при выходе наружу; 3) зависимостью сечения рассеяния от энергии; 4) эффектами каналирования.

Применение метода для нахождения пространственного распределения примесей и дефектов основано на возможности регистрировать разницу в энергии частиц ΔE , рассеянных атомами, находящимися на разной глубине.

Так, проникая в твердое тело, ионы теряют свою первоначальную энергию E_0 вдоль траектории движения со скоростью dE/dl , которая является функцией энергии:

$$\frac{dE}{dl} = S(E). \quad (2.5)$$

Полная потеря энергии ΔE для иона, достигшего глубины x , пропорциональна этой глубине:

$$\Delta E = \int_0^x S(E) dl. \quad (2.6)$$

Энергия частицы, обратно рассеянной под углом θ на глубине x , определяется выражением [105]:

$$E_{\text{набл.}} = \left[E_0 - \int_0^{x/\cos\theta_1} S^*(E) dl_1 \right] \cdot k_s - \int_{x/\cos\theta_2}^0 S(E) dl_2, \quad (2.7)$$

где величина

$$k_s = \left[\frac{M_1 \cos\theta + \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2\theta}}{M_1 + M_2} \right]^2, \quad (2.8)$$

называемая кинематическим фактором, есть отношение энергии после рассеяния к энергии до рассеяния. Первый и второй интегралы в формуле (2.7) дают потерю первоначальной энергии E_0 на участках пути частицы туда и обратно. M_1 и M_2 – массы падающей частицы и атома, с которым происходит столкновение. Величины $S^*(E)$ и $S(E)$ – тормозные способности на пути туда и обратно. θ_1 – угол между направлением падающей частицы и нормалью к поверхности, θ_2 – угол между направлением выхода рассеянной частицы и нормалью к поверхности.

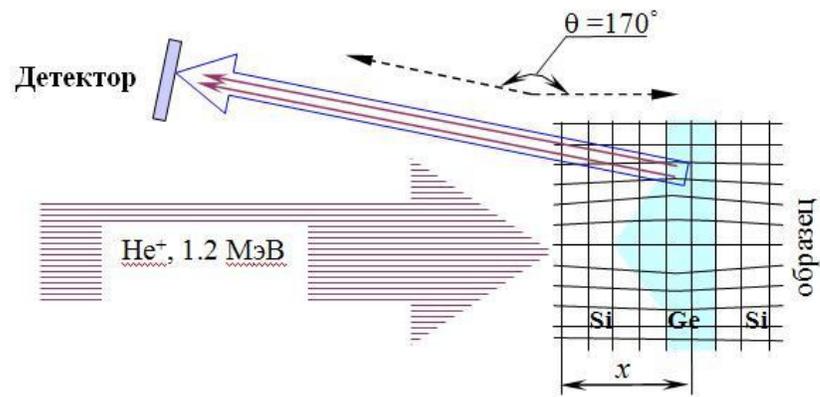


Рис. 2.12. Схема эксперимента резерфордского обратного рассеяния для гетроструктуре Si/Ge/Si с нанокластерами Ge.

Из формулы (2.7) видно, что частица, попадающая в детектор, претерпев акт упругого рассеяния на некоторой глубине x , имеет меньшую энергию, чем частица, рассеянная атомами вблизи поверхности. Это связано, во-первых, с потерями энергии на пути в мишень и из нее, а, во-вторых, из-за различий в потерях энергии при упругом взаимодействии частицы с атомами, находящимися на поверхности и на глубине x .

Из-за различия кинематических факторов для рассеяния на атомах разных химических элементов, разные участки спектра ROP относятся к разным элементам.

Так, например, на рисунке 2.13 показан спектр обратного рассеяния при $\theta = 170^\circ$ для ионов ${}^4\text{He}^+$ с энергией 1.2 МэВ, падающих на гетероструктуру Si/Ge/Si(001) (смотри рисунок 2.12) [145]. Здесь энергетический спектр обратного рассеяния на толстой мишени Si непрерывен в сторону низких энергий и имеет характерный склон. Для слоев Ge наблюдается пик в области больших энергий. Площадь под пиком позволяет определить количество обнаруженного материала.

На рисунке 2.13 представлены спектры обратного рассеяния для случаев, когда пучок ионов параллелен главной кристаллографической оси (пунктирная линия) и когда пучок ионов имеет “случайное” направление (сплошная линия).

Число событий обратного рассеяния, регистрируемых детектором значительно меньше для ориентированного пучка ионов за счет эффекта каналирования.

Эффект каналирования можно наблюдать только в совершенной кристаллической структуре и только при строго определенной ориентации пучка падающих частиц. В кремнии наиболее благоприятными для глубокого проникновения являются низко-индексные кристаллографические направления, обычно $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ или $\langle 111 \rangle$. Если частица входит в один из таких каналов под углом меньше некоторого критического, то далее она движется в нём практически не испытывая ядерных столкновений. Такие частицы имеют большую вероятность остаться в канале в течение всего процесса замедления. Они не могут приблизиться к ряду атомов решетки ближе, чем на $0.1\text{--}0.2 \text{ \AA}$ (расстояние, равное радиусу

экранирования Томаса-Ферми). В тоже время ядерные столкновения возможны с любым атомом подложки, находящимся на расстоянии, большем 0.2 \AA , от атомного ряда. Следовательно, сравнивая выход частиц из кристалла с дефектами с выходом из идеального кристалла, можно оценить его структурное совершенство.

В РОР-спектроскопии качество кристалла оценивают по минимальному выходу обратно рассеянных частиц $\chi = Y_a(E)/Y_r(E)$, где Y_a и Y_r – выход обратного рассеяния для ориентированного и неориентированного относительно основных кристаллографических направлений анализирующего пучка ионов. В совершенных кристаллах Si для ориентации (001) величина $\chi \sim 3\%$ [145].

Измерения структур, представляемых в диссертационной работе, проводилось в Институте ионных пучков и исследования материалов Исследовательского центра г. Россендорфа (Германия) доктором Р. Гретчелом (R. Groetzschel) и профессором А.В. Двуреченским. Для анализа структур использовались ионы He^+ . Энергия анализирующего пучка ионов He^+ составляла 1.8 МэВ.

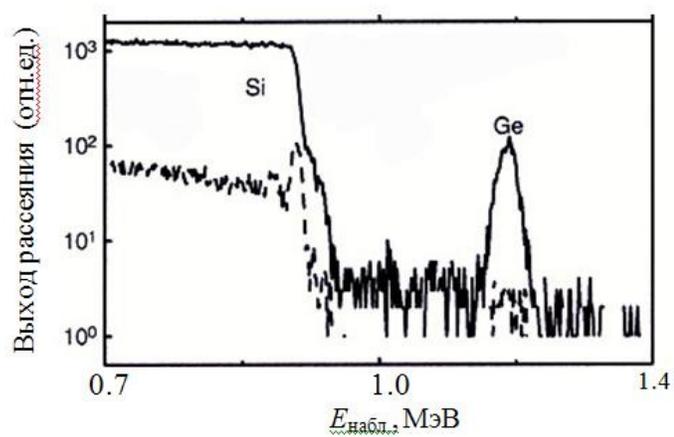


Рис. 2.13. Спектр РОР от гетероструктуры Si/Ge/Si(001) для ориентированного (пунктирная линия) и неориентированного (сплошная линия) пучка ионов He^+ [145].

2.3.4. Просвечивающая электронная микроскопия

Просвечивающая электронная микроскопия (ПЭМ) является прямым методом, позволяющим получить микроскопическое изображение, содержащее информацию о морфологии, размерах и структуре нано-объектов. Кроме микроскопического изображения, этот метод показывает картину дифракции электронов, по которой можно судить о фазовом составе объектов (кристалл, поликристалл, аморфное вещество) [146-149].

Принцип действия электронного микроскопа в чем-то похож на принцип работы оптического микроскопа. Вместо света здесь используются ускоренные электронные пучки, фокусируемые магнитостатическими линзами. Достаточно глубокое изложение принципа действия на основе кинематического и динамического рассмотрения механизмов формирования дифракционного контраста в электронном микроскопе можно найти, например, в книге Хирша и других [148].

Получение изображений в электронном микроскопе схематически представлено на рисунке 2.14. Коллимированный пучок электронов рассеивается образцом. В кристаллическом материале эти рассеянные электроны формируют один или более брэгговских дифрагированных пучков, образующих с падающим пучком малые углы (1-2 градуса). Объективная линза в своей задней фокальной плоскости фокусирует рассеянные пучки в виде электронной дифракционной картины. Апертурная диафрагма, расположенная в фокальной плоскости объективной линзы, позволяет селективно пропустить электронные пучки. Если она пропускает только не рассеянный пучок, как показано на рисунке 2.14, то формируется так называемое *светлопольное* изображение.

Изображение может быть также сформировано любым из дифрагированных пучков или путем смещения диафрагмы в сторону от центрального положения, пока она не пропустит через себя пучок, или наклоном осветительной системы так, чтобы дифрагированный пучок проходил по оси объективной линзы. В результате получают изображение, известное как

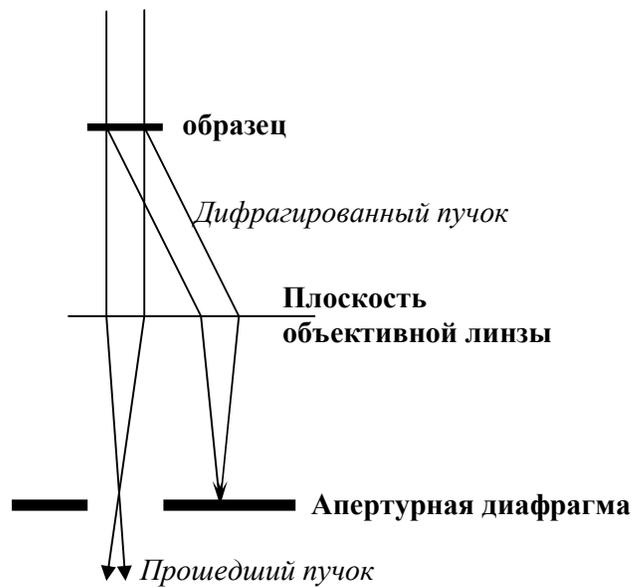


Рис. 2.14. Схема получения изображений в электронной микроскопии (светлое поле). Падающий электронный пучок дифрагирует на образце. Линза фокусирует прошедший и дифрагированные пучки в плоскости апертурной диафрагмы. Диафрагма селектирует один из этих пучков.

темнопольное. Используя эту методику, можно получить на изображении пространственное распределение участков объекта с одинаковыми структурными параметрами, например, распределение той или иной кристаллической фазы в многофазных материалах.

Если через апертурную диафрагму проходит один или несколько дифрагированных и прошедший пучок, то формируется интерференционное изображение, соответствующее, при определенных условиях, проекции потенциала исследуемого объекта, т.е. расположению атомных колонок в веществе. Такие изображения называются высокоразрешающими электронно-микроскопическими изображениями (ВРЭМ - изображения).

При анализе изображений необходимо учитывать полосовой контраст, вызываемый двойниками и муаровым эффектом. Рассмотрим подробнее возникновение муаров. Муаровые полосы (узоры) появляются, когда два кристалла с различающимися параметром решетки или ориентацией кристаллических осей, находясь друг над другом, в результате соединения дважды дифрагированного пучка с неотклоненным пучком создают интерференцию в виде периодически чередующихся полос.

Здесь возможны два варианта: муаровый узор вращения (когда полосы возникают перпендикулярно плоскостям интерферирующих решеток, повернутым друг относительно друга на некоторый малый угол) и параллельный муаровый узор, возникающий тогда, когда плоскости интерферирующих решеток параллельны друг другу, но их периоды слегка различаются. И в том, и в другом случае характерным признаком муарового узора является его периодичность и размытие границ, разделяющих полосы.

Наличие дислокаций в структурах обнаруживается по нарушению периодичности характерного муарового узора. Так, например, на рисунке 2.15, в представлено Plan-View – изображение островковой пленки Ge, выращенной при температуре 500°C на Si(001). На островках наблюдается муаровый узор, свидетельствующий о наличии в гетерогранице Ge/Si дислокаций несоответствия.

Для исследования структур методом ПЭМ, в зависимости от типа исследования, образцы изготавливаются в конфигурациях "Plan-View" (вид сверху), или "Cross-sectional" (поперечный срез) или, в некоторых случаях, в обеих. Как следует из названия, в конфигурации Plan-View (рис.2.15, а, в) проводятся исследования поверхности образца, в то время как информация, связанная с глубиной распределения получается из поперечного среза (рис.2.15, б).

Исследование наших структур проводилось на микроскопе JEM-4000EX с ускоряющим напряжением 200 кэВ А.К. Гутаковским (ИФП СО РАН).

2.3.5. Комбинационное рассеяние света

Комбинационное рассеяние света (КРС) – это рассеяние света веществом, сопровождающееся заметным изменением частоты рассеиваемого света. Если источник испускает линейчатый спектр, то при КРС в спектре рассеянного света обнаруживаются дополнительные линии, число и расположение которых тесно связаны с атомным строением вещества.

На рисунке 2.16 представлена схема установки для наблюдения спектров КРС. Интенсивный пучок света концентрируют на изучаемом объекте. В качестве источника возбуждающего света применяют лазер. Рассеянный свет фокусируется и регистрируется фотоэлектрическим методом.

Данная методика основана на эффекте взаимодействия фотонов с элементарными возбуждениями кристаллической решётки твёрдого тела (фононами). При этом в результате взаимодействия с твёрдым телом фотон может рождать фонон и соответственно уменьшать свою энергию на квант энергии квазичастицы (Стоксов процесс), либо поглощать фонон и увеличивать свою энергию на соответствующий квант энергии (анти-Стоксов процесс) [150].

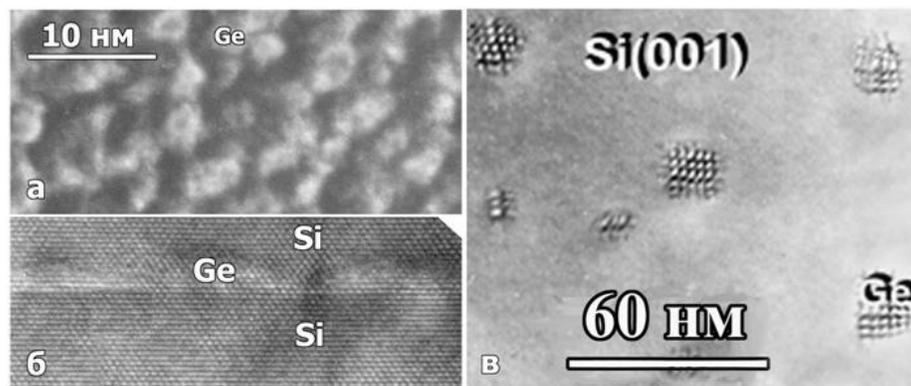


Рис. 2.15. Псевдоморфные (а,б) и релаксированные островки Ge (в) в гетеросистеме Si-Ge-Si(001). Эффективная толщина пленки германия ~ 1 нм; температура подложки при эпитаксии – 300⁰С (а,б) и 500⁰С (в) [149].

Энергия рассеянного фотона, соответственно, определяется разностью или суммой энергий исходного фотона и квазичастицы, участвующей в рассеянии. Регистрируя неупруго рассеянные фотоны и определяя их частоту, находят разницу между энергией исходного монохроматического света и энергией рассеянного света – Рамановский сдвиг.

Спектр КРС представляют в виде зависимости интенсивности рассеяния от сдвига частоты, задаваемого в волновых числах $\nu=1/\lambda$ и измеряемого в обратных сантиметрах.

В кристаллах типа алмаза наблюдается простой вид спектра КРС. В элементарной ячейке таких структур присутствуют два тождественных по химическим свойствам, но неэквивалентных друг другу атома. При этом в кристалле присутствуют три акустических и три оптических типа волн. Оптические и акустические ветви расщепляются на продольную (LO, LA) и поперечную (TO, TA) составляющие. Рассеяние на акустических волнах происходит с небольшим сдвигом частоты ($\nu \leq 1 \text{ см}^{-1}$) и поэтому в данной методике мы их не рассматриваем. Для КРС основное значение имеет оптическая ветвь колебаний кристалла.

Таким образом, в спектре КРС наблюдаются пики, положение которых зависит от энергий оптически активных фононов. Интенсивность КРС ($I_{\text{крс}}$) пропорциональна квадрату амплитуды рассеянной электромагнитной волны.

Известно, что в гетероструктурах, состоящих из материалов в которых оптические фононные ветви разнесены по энергии, наблюдается эффект локализации оптических фононов в соответствующих материалах [151]. Вследствие локализации, в фононном спектре объектов пониженной размерности возникают новые моды собственных колебаний – стоячие волны, моды с соответствующим набором собственных частот. Частоты оптических мод зависят от волновых векторов и определяются толщиной слоя и глубиной затухания. Фононный спектр подобных гетероструктур чувствителен даже к небольшим изменениям параметров слоев. Так, например, в Ge/Si структурах, содержащих квантовые точки Ge, необходимо различать влияние механических напряжений и локализации фононов на частоту линии КРС фононами Ge. Локализация фононов вызывает низкочастотный сдвиг

линии оптического фонона Ge относительно его объемного значения, в то время как механические напряжения в КТ приводят к высокочастотному сдвигу. Частоты собственных оптических колебаний в данных объектах определяются их размерами, что позволяет определить размер нанокристаллов из положения пика КРС на локализованных оптических модах [152, 153]. В случае, когда имеются механические напряжения, коэффициент жёсткости несколько отличается от значения в ненапряжённом материале. Это приводит к смещению частоты фононов при наличии напряжений. Таким образом, спектр КРС дает информацию о структурных свойствах квантово-размерных объектов.

В данной работе спектры КРС регистрировались при комнатной температуре на автоматизированной установке на базе спектрометра ДФС-52 (ЛОМО, Санкт-Петербург) при возбуждении КР Ag лазером ($\lambda = 514.5$ нм).

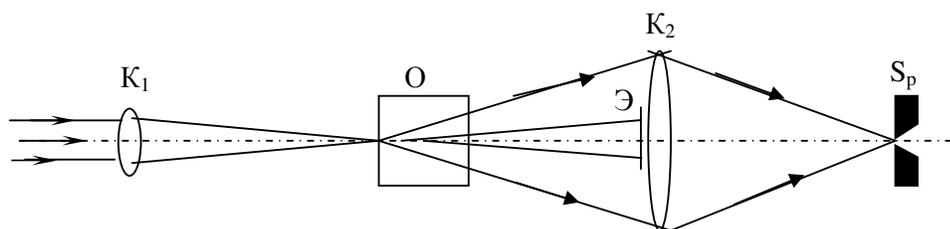


Рис. 2.16. Схема установки для наблюдения КРС при использовании лазеров K_1, K_2 – линзы, O – объект, S_p – входная щель спектрографа, \mathcal{E} – экран для устранения возбуждающего излучения.

2.3.6. Дополнительные методы исследования

2.3.6.1. Растянутая тонкая структура рентгеновского поглощения (EXAFS)

Дополнительно Ge/Si структуры были исследованы методом EXAFS (extended X-ray absorption fine structure – растянутая тонкая структура рентгеновского спектра поглощения). Изучались осцилляции поглощения рентгеновского излучения при изменении энергии падающего излучения в интервале, простирающемся на 1кэВ выше К-края поглощения. Осцилляции возникают из-за интерференционных эффектов при рассеянии выбитых электронов на соседних атомах. Этот метод позволяет определить параметры локального окружения атомов: межатомные расстояния, координационные числа, симметрию окружения и типы атомов окружения, факторы Дебая-Уоллера, а также определить сдвиги электронных уровней и оценить зарядовые состояния атомов [105]. В EXAFS измерениях используется мощное синхротронное излучение (СИ). Исследования структур Ge/Si методом спектроскопии EXAFS были проведены в ИЯФ СО РАН к.ф.-м.н. С.Б. Эренбургом.

2.3.6.2. Фотолюминесценция

Фотолюминесценция (ФЛ) – свечение тела, состояние которого стало неравновесным в результате поглощения им фотонов. Этот метод широко применяется в исследовании полупроводниковых структур. Спектр ФЛ полупроводников определяется излучательной рекомбинацией созданных светом неравновесных электронов и дырок, даёт информацию об энергетических уровнях вещества [154].

Фотолюминесценция является одним из основных методов характеристики низкоразмерных структур. Энергия фотона, соответствующая линии фотолюминесценции, несёт информацию о положении основного состояния дырки в Ge нанокластерах. Причём, хотя объёмные кремний и германий являются непрямозонными материалами, и безфононная рекомбинация электрона и дырки в них запрещена законом сохранения квазиимпульса, в

низко-размерных Ge/Si структурах этот запрет ослабляется и фотолюминесценция без участия фононов становится возможной. С помощью фотолюминесценции можно подтвердить факт формирования Ge трёхмерных кластеров в исследуемых эпитаксиальных структурах [155].

Заключение по главе 2

Таким образом, для решения поставленных задач в ходе работы использовалась высоковакуумная установка молекулярно-лучевой эпитаксии «Ангара», оснащенная ионизирующим устройством и дифрактометром. Для исследования морфологии и реконструкции поверхности пленки Ge использовали метод дифракции быстрых электронов на отражение и сканирующей туннельной микроскопии. Совершенство и элементный состав гетероструктур Ge/Si исследовали методами ПЭМ, POP, EXAFS-спектроскопии и КРС. С помощью фотолюминесценции получили подтверждение того, что в исследуемых эпитаксиальных структурах формируются Ge трёхмерные кластеры.

ГЛАВА 3. ФОРМИРОВАНИЕ ГЕТЕРОСТРУКТУР Ge/Si ИЗ ИОННО-МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ

Для решения задачи формирования нанокристаллов Ge при облучении низкоэнергетическими ионами в условиях МЛЭ Ge на Si подложках проведены исследования морфологических и структурных изменений поверхности пленки германия при различных параметрах ионного пучка, молекулярного потока, а также при вариации температуры подложки.

Ионное облучение растущей плёнки проводилось в двух режимах: непрерывном и импульсном. Импульсный режим заключался в периодическом кратковременном (~ 0.5 с) включении ионного потока при завершении роста каждого атомного слоя.

Эксперименты проводились на двух типах поверхности Si: (111) и (100). Первоначально были выполнены исследования на Si(111), поскольку данная поверхность морфологически устойчива (см. п. 1.2). Это позволяло ожидать более выраженных эффектов ионного воздействия. Однако поверхность Si(100) обладает такими преимуществами, как высокая плотность островков и возможность получения бездислокационных островков малого размера. Это делает данную поверхность привлекательной с точки зрения получения приборно-ориентированных гетероструктур. Поэтому основная часть исследований выполнена на поверхности Si(100).

§ 3.1. Эффекты низкоэнергетического ионного воздействия при гетероэпитаксии Ge/Si(111) из молекулярного пучка

3.1.1. Ионно-стимулированное зарождение островков Ge на Si(111)

На первом шаге проводились исследования морфологических изменений поверхности пленки Ge при импульсном (длительностью 0.5 с) и непрерывном облучении собственными низкоэнергетическими (~200 эВ) ионами в процессе гетероэпитаксии Ge на Si(111) [156]. Эксперименты были выполнены в высоковакуумной установке, подробно описанной в главе 2. Температуру подложки меняли в диапазоне от 200 до 550°C, плотность потока Ge варьировалась в пределах $10^{12} - 10^{15} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$. Процесс роста пленки Ge контролировался методом дифракции быстрых электронов. С помощью специальной программы записывались осцилляции интенсивности зеркального рефлекса при послойном росте пленки. Период осцилляции равен времени осаждения одного биатомного слоя для Si(111) ($1 \text{ БС} = 1.56 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$).

Было обнаружено, что облучение непрерывным пучком ионов с долей ионизации молекулярного потока 0.1% приводит к уменьшению числа ДБЭ осцилляций интенсивности зеркального рефлекса (рис. 3.1 (б), кривая 2) при гетероэпитаксии в области температур 200–250°C по сравнению с эпитаксией без облучения (рис. 3.1 (б), кривая 1) и с импульсным ионным воздействием (рис. 3.1 (б), кривая 3). Это результат интерпретируется, как уменьшение критической толщины [135], при которой происходит переход от двумерно-слоевого к трехмерному росту. При более высоких температурах для той же доли ионизации молекулярного пучка практически не меняется интенсивность зеркального рефлекса, число осцилляций такое же, как и при обычной эпитаксии (рис. 3.1 (а)). Повышение температуры, по видимому, способствует отжигу центров зарождения трехмерных островков Ge, вводимых ионным облучением, и следовательно, уменьшению их вклада в кинетику роста.

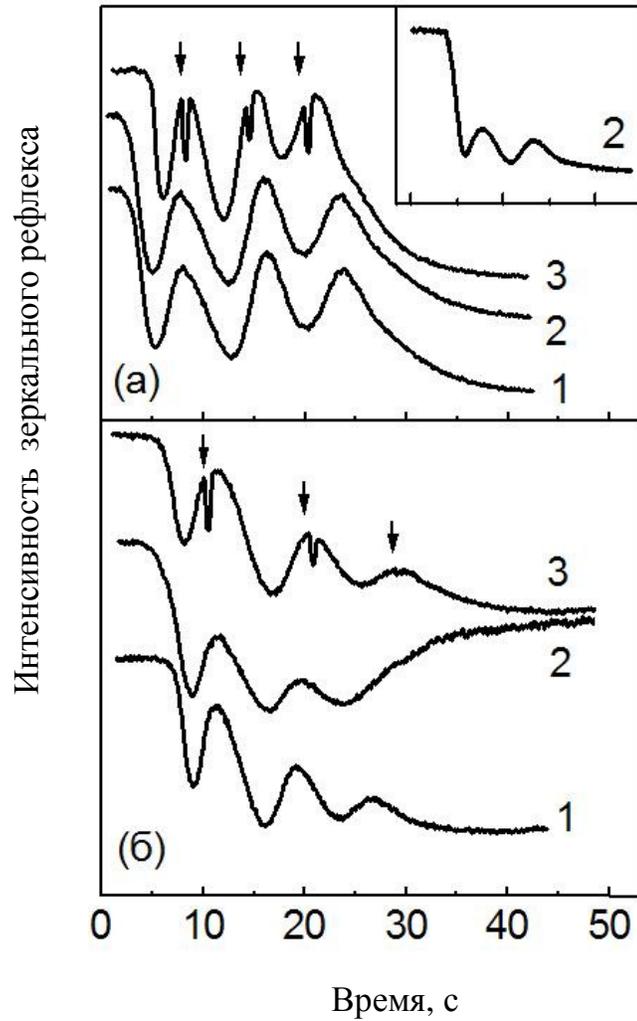


Рис. 3.1. Изменение интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(111) из молекулярного пучка (1), при одновременном непрерывном (2) и импульсном (3) воздействии пучком низкоэнергетических ионов для различных температур подложки: а) 350°C, б) 250°C. Плотность молекулярного потока Ge $2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, степень ионизации 0.1%, энергия ионов Ge⁺ в пучке – 230 эВ, длительность ионного тока – 0.5 с. Стрелками отмечены моменты импульсного воздействия.

Вставка: степень ионизации 0.5% [156].

Увеличение доли ионов в молекулярном пучке приводит к уменьшению числа ДБЭ осцилляций в области более высоких температур. Так, данное уменьшение для температуры 350°C наблюдается при доле ионизации молекулярного пучка 0.5%, в отличие от случая доли ионизации 0.1% (рис.3.1 (а), вставка). Это можно связать с тем, что темп генерации центров зарождения растёт с увеличением плотности ионного потока. Поэтому естественно ожидать изменения кинетики роста при тех же температурах подложки, для которых эффекты ионного воздействия не проявлялись при доле ионизации 0.1%.

Обнаружено, что в определённых условиях роста (скорость осаждения ≥ 0.1 БС/с, температура подложки 300–350°C) после импульсного воздействия возрастает интенсивность зеркального рефлекса ДБЭ (рис. 3.2), если воздействие проводится перед максимумом осцилляции, когда степень заполнения биатомного слоя больше половины. Эти данные свидетельствуют об уменьшении центров рассеяния пучка электронов на поверхности пленки в результате импульсного облучения, т.е. возможно идет уменьшение рельефа (выглаживание) растущей поверхности.

В целях подтверждения обнаруженного эффекта ионно-стимулированного зарождения трехмерных островков при облучении низкоэнергетическими ионами в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(111) были выращены три типа структур, которые ex-situ исследовали с помощью сканирующей туннельной микроскопии: 1) обычная эпитаксия из молекулярного пучка; 2) облучение непрерывным пучком ионов Ge⁺ в процессе эпитаксии; 3) облучение импульсным пучком ионов в моменты времени, соответствующие окончанию заполнения слоя при двумерно-слоевом росте [157].

Условия роста пленки Ge выбирали такими, чтобы при обычной эпитаксии сохранялся двумерно-слоевой механизм роста (3 БС при T=350°C). По периоду ДБЭ осцилляций определяли скорость роста пленки. Выбранная толщина пленки Ge, температура подложки и плотность потока Ge оставались фиксированными для всех трёх типов структур.

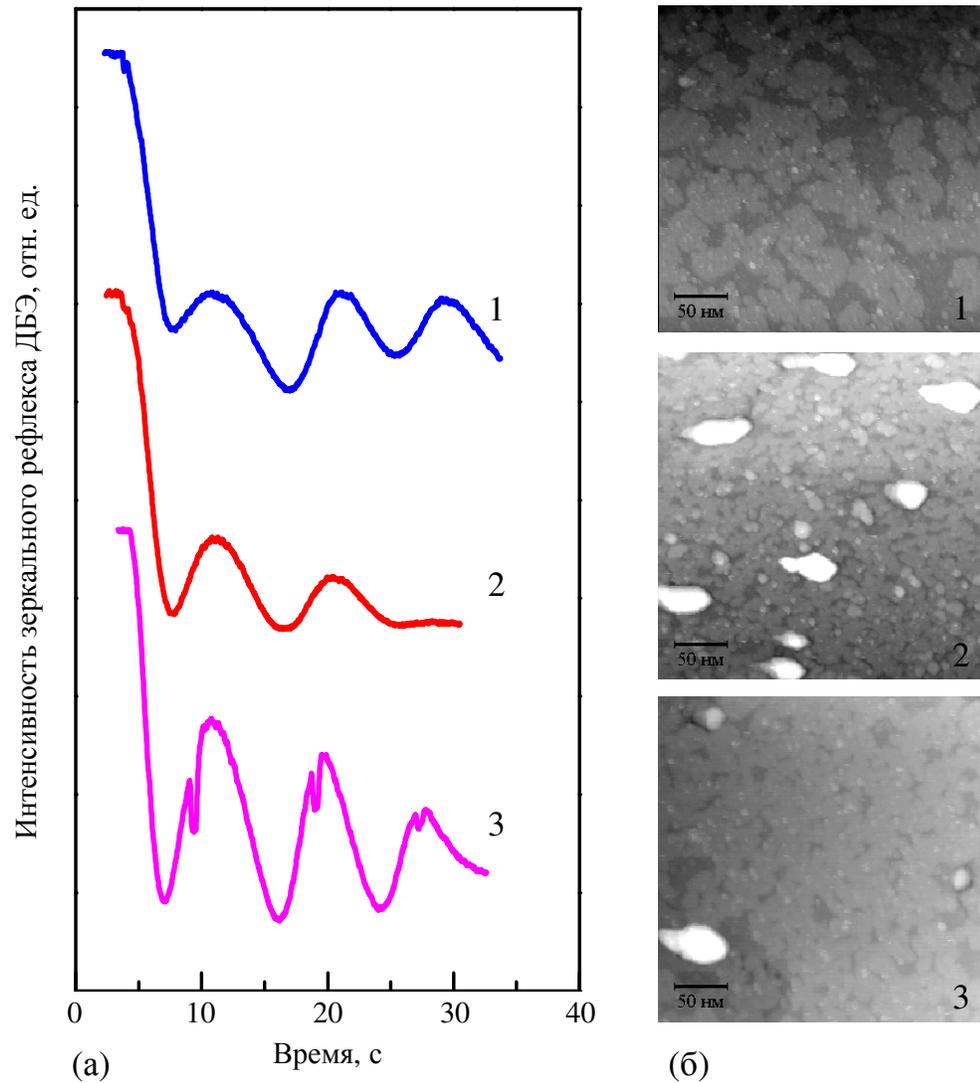


Рис. 3.2. Осцилляции интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ (а) и снимки участков поверхности (300×300 нм), полученных *ex situ* методом СТМ (б):

1 – обычная эпитаксия из молекулярного пучка; 2 – облучение непрерывным пучком ионов германия в процессе эпитаксии; 3 – облучение импульсным пучком ионов в процессе эпитаксии. Температура роста 350°C , плотность молекулярного потока $2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, степень ионизации 0.5%, энергия ионов Ge^+ в пучке – 230 эВ, длительность ионного тока – 0.5 с.

По данным ДБЭ в таких условиях роста для структур типа 1 наблюдалось три осцилляции интенсивности дифрагированного пучка электронов, для структур типа 2 – две осцилляции, амплитуды которых близки к амплитудам осцилляций на структурах типа 1, и для структур типа 3 – три осцилляции, амплитуда которых возрастала после импульсного воздействия пучком ионов.

Исследования методом СТМ показали, что поверхность структуры типа 1 содержит островки Ge высотой в один бислой (двумерные островки) (рис. 3.2 (а)). На структурах типа 2 и 3 были обнаружены трёхмерные островки (рис. 3.2. (б) и (в)), формирующиеся на поверхности плёнки Ge(111) и имеющие форму усеченных пирамид, огранённых преимущественно плоскостями типа {113}. Отношение высоты к размеру основания пирамиды находилось в пределах 0.05 – 0.15. Средний размер основания пирамиды составлял 30 нм. Плотность 3D островков Ge на поверхности структур типа 2 на порядок превышала плотность островков на структурах типа 3 и составляла примерно $2 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$.

Полученные методом СТМ данные явились прямым свидетельством того, что облучение непрерывным пучком собственных ионов в процессе роста плёнки Ge на Si приводит к уменьшению критической толщины пленки германия, при которой происходит переход от двумерно-слоевого к трёхмерному росту. Анализ СТМ изображений различных участков поверхности исследуемых образцов показал, что предпочтительными местами для зарождения 3D островков являются границы поверхностных вакансионных кластеров, возникающие на месте удара ионом Ge по поверхности.

В случае импульсного ионного облучения, как отмечалось выше, по данным ДБЭ наблюдается возрастание интенсивности зеркального рефлекса, что говорит о выглаживании поверхности. В то же время, по данным СТМ, на поверхности плёнки после импульсного ионного облучения обнаружены 3D островки Ge. Объяснение этих, противоречивых на первый взгляд, результатов заключается, по-видимому, в различных вкладах от 3D островков в рассеяние электронного пучка для структур сформированных в условиях

непрерывного (тип 2) и импульсного (тип 3) ионного облучения. Вклад от 3D островков в рассеивание электронов оказывается меньше для структур типа 3, поскольку плотность 3D островков для структур этого типа на порядок меньше, чем для структур типа 2. Можно предположить, что в этих условиях основной вклад в рассеяние пучка электронов для структур типа 3 дает шероховатость поверхности смачивающего слоя Ge между 3D островками. С таким представлением хорошо согласуются СТМ изображения поверхности и данные по изменению интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ полученные на структурах типа 1, 2 и 3 (рис. 3.2).

При импульсном ионном воздействии, помимо введения 3D островков, происходит изменение сверхструктуры поверхности растущей плёнки. Если при изменении сверхструктуры понижается энергия активации диффузии адатомов, то, согласно работам [119], должно происходить уменьшение шероховатости поверхности в процессе роста плёнки по двумерно-слоевому механизму. В результате интенсивность зеркального рефлекса возрастает. Таким образом, наблюдаемый эффект увеличения осцилляций интенсивности ДБЭ после импульсного воздействия пучком низкоэнергетических ионов в процессе гетероэпитаксии Ge на Si можно связывать с реконструкцией поверхности, приводящей к увеличению подвижности адатомов.

3.1.2. Упорядочение нанокристаллов Ge на Si(111) при импульсном ионном облучении

Методом сканирующей туннельной микроскопии было исследовано упорядочение по размерам 3D островков, формирующихся в экспериментах двух видов при гетероэпитаксии Ge на Si(111): 1) обычный процесс молекулярно-лучевой эпитаксии; 2) импульсное облучение ионами Ge с энергией 200 эВ в моменты времени, соответствующие степени заполнения ≈ 0.8 для каждого осаждённого бислоя. Результаты экспериментов, приведены на рисунке 3.3.

Установлено, что после осаждения 5 БС Ge в условиях импульсного ионного облучения распределение 3D островков по размерам становится более однородным (уменьшается ширина функции распределения по размерам в сравнении с эпитаксией без ионного облучения). Плотность островков увеличивается, а их средний размер уменьшается. Например, при плотности потока Ge $2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, плотности ионного потока $5.5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, температуре подложки 350°C и количестве осажденного Ge 5 МС в экспериментах без ионного облучения плотность островков составила $7.3 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$, средний размер $L=63 \pm 9$ нм (неоднородность по размеру 14%). Тогда как, в экспериментах с импульсным ионным облучением плотность островков составила $1.2 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$, их средний размер $L=43 \pm 4$ нм (неоднородность по размеру 9%).

Представляет интерес привести некоторые оценки, характеризующие процесс зарождения и роста островков Ge при ионном облучении поверхности. Прежде всего, нужно отметить, что интегральный поток ионов Ge можно оценить как $J = n_p \tau I$, где n_p – число ионных импульсов, τ_i – длительность импульса, j – плотность ионного потока, т.е. $J = 0.5 \cdot 5 \cdot 5.5 \cdot 10^{11} \approx 1.4 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$. Величина J практически на два порядка превышает экспериментально полученное значение плотности 3D островков Ge. Следовательно, для выбранных условий роста большинство введенных ионным облучением вакансионных

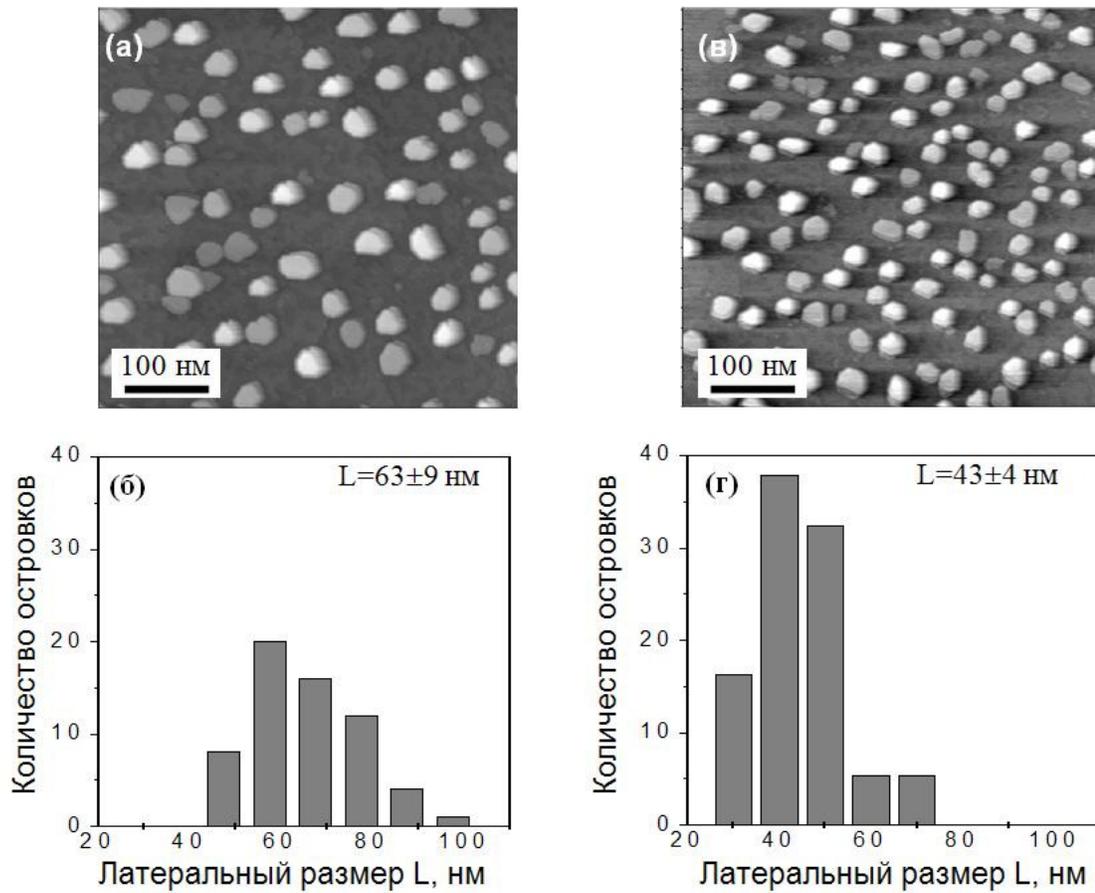


Рис. 3.3. Снимки участков поверхности 1000×1000 нм, полученные *ex situ* методом СТМ после гетероэпитаксии Ge/Si(111) при температуре 350°C (осаждено 5 БС) и распределения островков Ge по размеру.

(а), (б) – без облучения ионами;

(в), (г) – в условиях импульсного облучения ионами Ge^+ с энергией 200 эВ [159].

образований, являющихся центрами зарождения островков [24, 119], на поверхности слоя Ge заглаживается в результате взаимодействия с атомами, поступающими из молекулярного потока. Лишь малая часть вакансионных кластеров созданных ионным пучком служит, по-видимому, центрами зарождения 3D островков. Не исключено, что в экспериментах второго вида при выбранном количестве осажденного Ge в 5 БС (больше критической толщины для 2D-3D перехода) определённый вклад в образование островков вносит, так же, механизм Странского-Крастанова [12].

Эксперименты, описанные выше, при меньших значениях осажденного Ge (~ 3 БС), показали, что вклад процесса ионно-стимулированного образования островков Ge является определяющим. Процесс упорядочения островков Ge по размеру, по-видимому, связан с одномоментным (в пределах длительности ионного импульса) зарождением островков Ge после завершения роста каждого слоя и последующего разрачивания островков.

§ 3.2. Гетероструктуры Ge/Si(100) с нанокристаллами Ge, формируемые из ионно-молекулярных пучков

Поскольку в системе Ge/Si(111) трудно получить бездислокационные 3D островки Ge [65], то мы перешли к системе Ge/Si(100). В этой системе, так же как и в предыдущей, был обнаружен эффект уменьшения среднего размера островков Ge, увеличение их плотности, уменьшение среднеквадратичного отклонения от среднего значения по сравнению с аналогичными величинами в экспериментах по обычной эпитаксии из молекулярных пучков.

3.2.1. Исследование ионно-стимулированного роста трёхмерных островков Ge на Si(100) методом дифракции быстрых электронов

Методом дифракции быстрых электронов на отражение проведено экспериментальное исследование эволюции механических напряжений, сверхструктуры и формы трёхмерных островков Ge в процессе гетероэпитаксии Ge на Si(100) из ионно-молекулярных пучков. Исследуемые структуры выращивались в режимах обычной МЛЭ (1) и эпитаксии с импульсным облучением ионами Ge^+ (2) с энергией 100 – 200 эВ. Импульсное воздействие осуществлялось в моменты завершения каждого монослоя ($1 \text{ МС} = 6.8 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$). Эксперименты выполнялись при плотности потока осаждаемого Ge $\sim 7 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ и температурах подложки 300-400°C. Степень ионизации молекулярного потока составляла $\sim 0.1\%$.

3.2.1.1. Смена механизма роста плёнки Ge

Было обнаружено, что импульсное облучение растущей поверхности Ge на Si(100) ионным пучком приводит к уменьшению критической толщины 2D-3D перехода и вызывает изменение огранки 3D островков (переход от *hut*- к *dome*-кластерам) на более ранних стадиях роста по сравнению с МЛЭ без ионного облучения.

Так, например, на рисунке 3.4 представлены последовательные картины ДБЭ, отражающие изменение морфологии растущей пленки германия в процессе гетероэпитаксии Ge на Si(100). Эти дифракционные картины несут информацию о морфологии поверхности, а также об изменении постоянной решетки на поверхности [136, 137]. Параллельные вытянутые рефлексы соответствуют дифракции от гладкой поверхности (рис. 3.4 (а)). Переход к трехмерному росту на картине ДБЭ характеризуется появлением точечных рефлексов, связанных с дифракцией электронного пучка при прохождении через объем трехмерных островков (рис. 3.4 (в)). Смена формы островков от *hut* к *dome* сопровождается дополнительными рефлексами в виде тяжей, отклоненных на угол около 20° от вертикали (рис. 3.4 (г)).

Видно, что в условиях импульсного ионного облучения переход от двумерно-слоевого роста к росту 3D островков в форме *hut*-островков происходил при толщине пленки Ge около 3МС, тогда как для обычной МЛЭ этот переход имел место при толщине 4МС (рис. 3.4 (а) и (в)). Что касается *dome*-кластеров, то в условиях импульсного ионного воздействия переход к их росту наблюдался после осаждения 6 МС (рис. 3.4 (г)). В отсутствие ионного облучения *dome*-кластеры появлялись только после осаждения 7МС.

Уменьшение эффективной толщины пленки Ge на Si(100), при которой происходит переход от послойного роста к росту 3D островков в форме *hut*-островков в условиях ионного облучения, можно связать с ионно-стимулированным зарождением 3D островков. Согласно экспериментальным работам [26, 34, 95, 96] ионы создают в приповерхностном объеме растущего слоя вакансии и междоузельные атомы, которые понижают энергию формирования трёхмерного зародыша и являются центрами зарождения. Помимо этого, при

облучении ионами происходит прямая передача энергии и импульса атомам при столкновении ионов с поверхностью, идет локальный разогрев поверхности вблизи мест

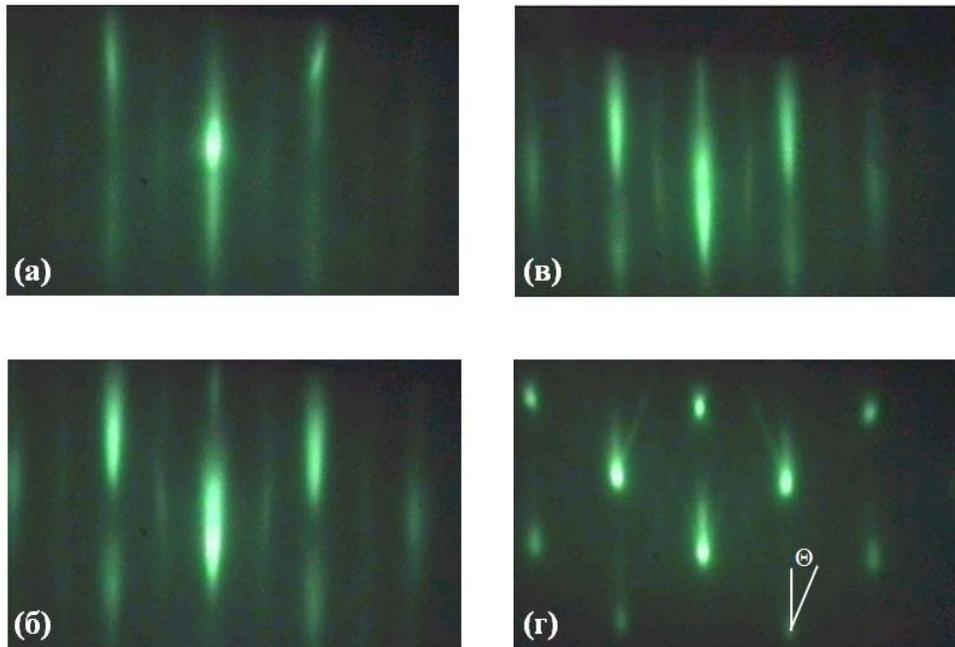


Рис. 3.4. Дифракционные картины, полученные в процессе гетероэпитаксии Ge на Si(100) (в азимуте [110]): (а), (б) – без ионного облучения; (в), (г) – с импульсным (0.5 с) облучением ионами Ge^+ с энергией ~ 100 эВ. Температура подложки – 350°C . Эффективная толщина осажденного Ge: (а), (в) – 3 МС и (б), (г) – 6 МС. Картины ДБЭ соответствуют: (а) – атомарно гладкой поверхности Si(100); (б), (в) – формированию *hut*-островков с гранями {105}; (г) – росту островков в форме *dome*. Θ – угол между зеркальным рефлексом и тяжем, возникающим из-за рассеяния электронов на гранях {113} островков.

падения ионов, что так же способствует формированию 3D островков [103, 106] (подробнее см. в главе 1, п. 2.1).

Согласно данным СТМ, *dome*-кластеры формируются на базе уже существующих *hut*-кластеров [158]. Поэтому более раннее формирование *hut*-кластеров может рассматриваться как фактор, способствующий переходу от *hut*- к *dome*-кластерам при меньшей эффективной толщине осаждённого материала. Так же как в случае *hut*-кластеров, ионное облучение может приводить к увеличению диффузионной подвижности адатомов, тем самым, ускоряя формирование *dome*-кластеров. С другой стороны, внедрение вакансий и междоузельных атомов вызывает увеличение средней деформации в растущем слое, что в свою очередь приводит к уменьшению эффективной толщины осаждённого германия, при которой происходит переход от *hut*- к *dome*-кластерам.

На основе полученных данных была построена кинетическая диаграмма фазовых состояний пленки Ge в процессе гетероэпитаксии Ge на Si(100) из ионно-молекулярных пучков (рис. 3.5), где показаны области послойного роста, роста *hut*- и *dome*-кластеров в зависимости от температуры подложки и толщины осаждённого Ge. Обнаружено, что эффект ионно-стимулированного зарождения и роста островков проявляется при температурах ниже 400°C. С увеличением температуры может иметь место отжиг центров зарождения островков, созданных ионным облучением [159].

Из рисунка 3.5 видно, что с понижением температуры возрастает критическая толщина, при которой происходит 2D – 3D переход. Это можно объяснить тем, что при низких температурах роста происходит подавление диффузионного массопереноса, необходимого для формирования 3D островков [25].

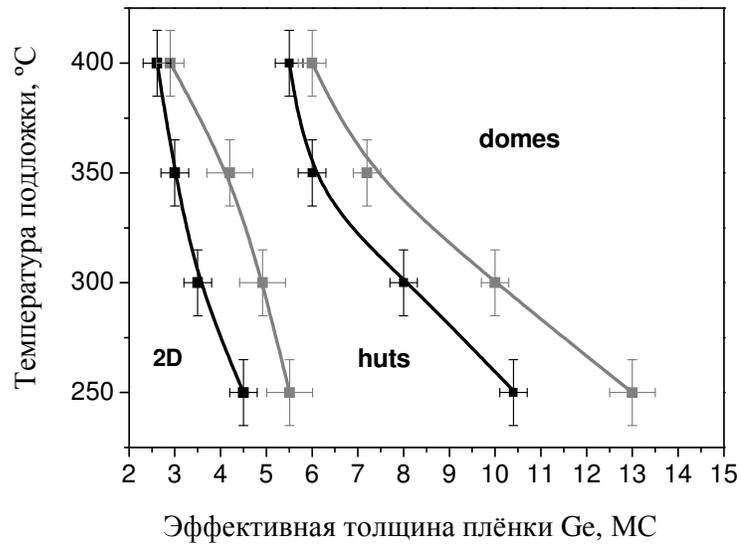


Рис. 3.5. Кинетическая диаграмма фазовых состояний пленки Ge в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100). Серые линии – молекулярно-лучевая эпитаксия; черные – МЛЭ с импульсным ионным облучением. Энергия ионов 100 эВ.

3.2.1.2. Эволюция механических напряжений плёнки Ge

Для исследования эволюции механических напряжений регистрировалось изменение интенсивности дифракционной картины вдоль линий, пересекающей тяжи и объемные рефлексы [160]. Расстояние между рефлексами $(0\bar{1})$ и (01) соответствует обратному межатомному расстоянию $a_{||}$ в плёнке Ge в кристаллографическом направлении $\langle 110 \rangle$ (рис. 3.6.). Изменения размера элементарной поверхностной ячейки (в процентах по отношению к значению a_{Si} для поверхности чистого кремния) в процессе осаждения Ge на Si(100) для случая 1 и 2 представлены на рисунке 3.7. Сопоставляя полученную зависимость с данными по изменению морфологии пленки германия в процессе роста, видим, что на этапе двумерно-слоевого роста рассогласование параметров решетки Ge и Si возрастает примерно до 1.5%. Затем, следует область образования и роста упруго релаксированных 3D островков Ge в форме *hut*-островков. На стадии роста *hut*-островков параметр решетки $a_{||}$ существенно не меняется. Рассогласование решеток сохраняется на уровне ~1.5%. При переходе от *hut*-кластеров к *dome*-кластерам наблюдается заметное возрастание $a_{||}$. При эффективной толщине осажденного Ge порядка 10 МС, как в условиях ионного облучения, так и без него, величина $(a_{||}-a_{Si})/a_{Si}$ достигает 4% и совпадает с рассогласованием постоянных решеток Ge и Si. Начало процесса неупругой релаксации имеет место в области роста *dome*-кластеров. Из выше изложенного видно, что изменение формы трёхмерных островков сопровождается значительным увеличением параметра решётки растущей плёнки Ge. В условиях ионного облучения процесс упругой релаксации механических напряжений в растущей плёнке германия происходит при меньших эффективных толщинах осажденного Ge, по сравнению с обычной МЛЭ.

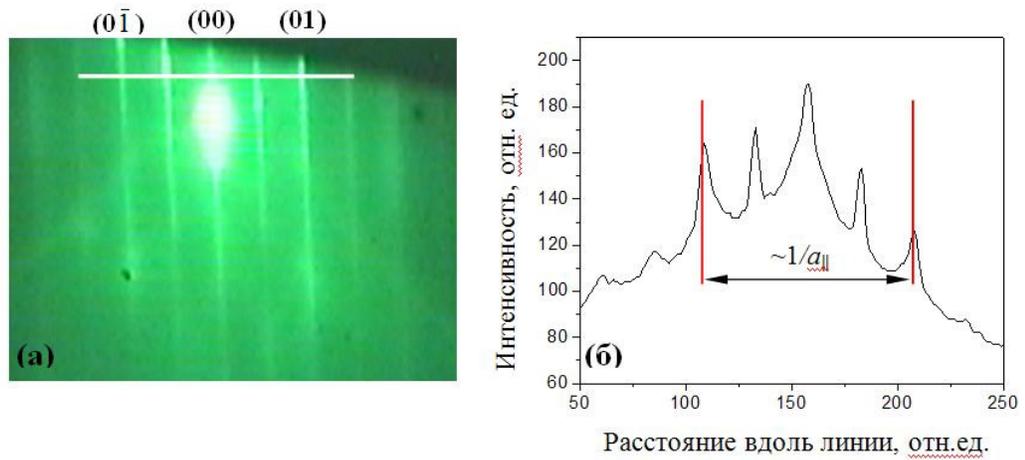


Рис. 3.6. Дифракционная картина, полученная в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100) (а) и профиль интенсивности зеркальных рефлексов для этой картины (б). a_{\parallel} – межатомное расстояние плёнки Ge в плоскости (100), которое соответствует расстоянию между дифракционными рефлексами $(0\bar{1})$ и (01) . Азимут $[110]$.

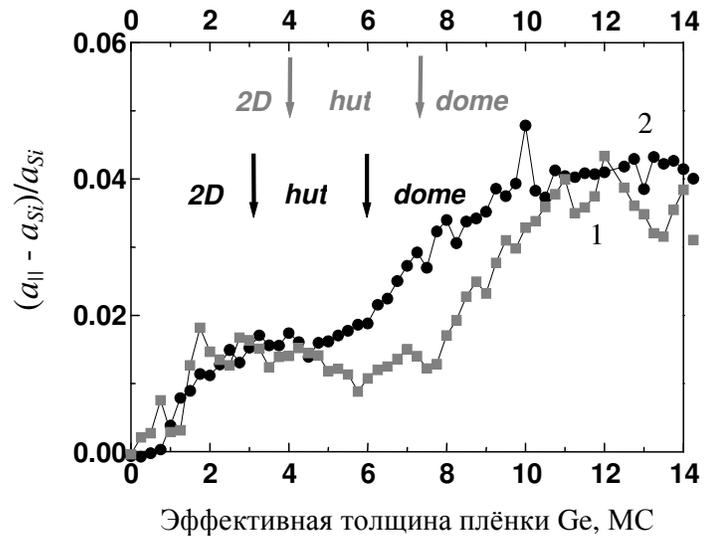


Рис.3.7. Эволюция параметра решетки германия $a_{||}$ в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100) при температуре 350°C.

1 – молекулярно-лучевая эпитаксия; 2 – МЛЭ при импульсном облучении ионами Ge^+ с энергией 100 эВ. Стрелками отмечены области перехода $2D \Rightarrow hut \Rightarrow dome$ (серые стрелки соответствуют кривой 1, черные – кривой 2)

Увеличение энергии ионного пучка от 100 до 200 эВ приводит к стимуляции перехода от *hut* к *dome* нанокристаллам при еще меньших эффективных толщинах осажденного Ge. На рисунке 3.8 представлены изменения параметра решетки пленки германия в процессе ионно-стимулированной гетероэпитаксии Ge/Si(100) при различных энергиях ионного пучка. В случае, когда энергия иона составляет 200 эВ (рис. 3.8, кривая 2), толщина плёнки германия, при которой происходит переход от *hut* к *dome* нанокристаллам, уменьшается до 4 МС. Появление островков в форме *dome* совпадает с резким возрастанием параметра решетки пленки Ge по сравнению с Si. Рассогласование решеток достигает 6%.

Данная избыточная деформация растяжения (~2%) может быть связана с генерацией междоузельных атомов в приповерхностном слое Ge при увеличении энергии ионного пучка.

3.2.1.3. Реконструкции поверхности

В ходе работы были исследованы сверхструктурные изменения поверхности, которые отслеживались в процессе роста по основным дифракционным рефлексам и их дублетам [69] (см. главу 2, рис. 1.9), соответствующим поверхностному расположению атомов. Из соотношения расстояний между основными рефlekсами и дублетами определялся период реконструкции поверхности.

На рисунке 3.9 показано изменение параметра решетки растущей плёнки (а) и периода реконструкции поверхности (б). Видно, что при температуре 300°С наблюдается максимум в зависимости параметра решётки $a_{||}$. Этот максимум совпадает по положению с моментом смены типа реконструкции поверхности от $(2 \times N)$ к $(M \times N)$. Это свидетельствует о том, что смена реконструкции приводит к уменьшению деформаций в плёнке ($a_{||}$ становится ближе к постоянной решётки ненапряжённого Ge слоя). В ходе дальнейшего осаждения Ge наблюдается увеличение деформации вплоть до момента начала зарождения 3D островков. С этого момента параметр решетки плёнки Ge начинает возрастать (деформация уменьшаться) за счет упругой релаксации деформаций в вершинах 3D островков.

При более высоких температурах (350-400°С) зависимость $a_{||}$ монотонна (рис. 3.9), что говорит о постепенном снятии деформаций в растущем слое.

Немонотонный характер зависимости $a_{||}$ можно связать со сменой реконструкции поверхности растущей пленки при изменении её толщины и состава. По мере осаждения Ge на Si(100) эффективное содержание Ge в приповерхностном слое возрастает [160]. При составе, близком к чистому Ge, происходит смена типа реконструкции от $(2 \times N)$ к $(M \times N)$ [69, 70]. Наши результаты по изменению периода реконструкции с увеличением эффективной толщины осажденного Ge (рис. 3.9) подтверждают данное предположение.

При более высоких температурах роста происходит диффузионное перемешивание Ge и Si и элементный состав плёнки уже не соответствует чистому Ge. В этих условиях переход от $(2 \times N)$ к $(M \times N)$ не наблюдается. Поэтому для температур $\geq 350^{\circ}\text{C}$ особенности в зависимости $a_{||}$ не наблюдаются.

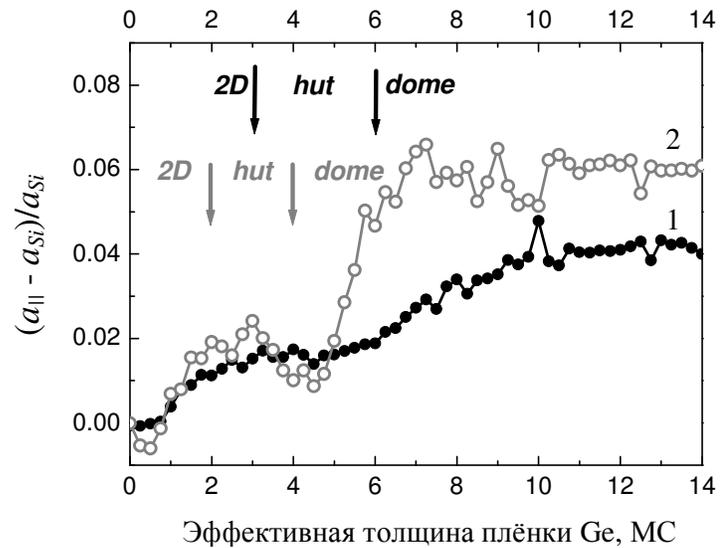


Рис. 3.8. Эволюция параметра решетки германия $a_{||}$ в процессе гетероэпитаксии Ge на Si(100) при импульсном облучении ионами Ge^+ с энергией 100 эВ (1) и 200 эВ (2). Температура подложки 350°C. Стрелками отмечены области перехода $2D \Rightarrow hut \Rightarrow dome$ (черные стрелки соответствуют кривой 1, черные – кривой 2)

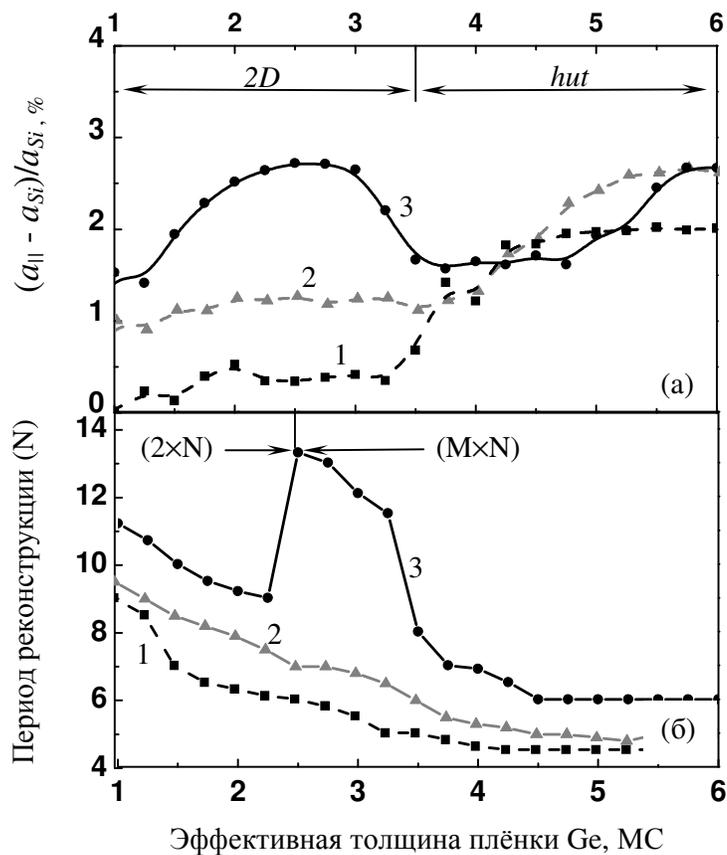


Рис. 3.9. Влияние температуры роста на изменение параметра решетки Ge $a_{||}$ (а) и периода поверхностной реконструкции (б) при эпитаксии Ge на Si(100) из ионно-молекулярных пучков. Энергия ионов 100 эВ.

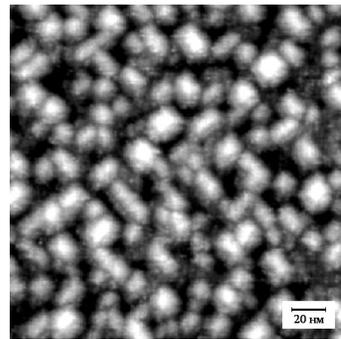
1 – 400°C; 2 – 350°C; 3 – 300°C.

Области существования реконструкций $(2 \times N)$ и $(M \times N)$, а также двумерного роста и роста hut – кластеров отмечены стрелками и соответствуют температуре 300°C.

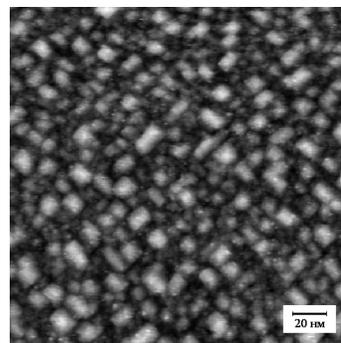
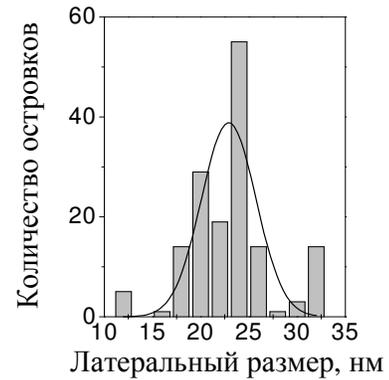
3.2.2. Исследование формы, размера и плотности нанокристаллов Ge, сформированных при гетероэпитаксии Ge/Si(100) из ионно-молекулярных пучков, методом сканирующей туннельной микроскопии

3.2.2.1. Сравнение непрерывного и импульсного режимов облучения

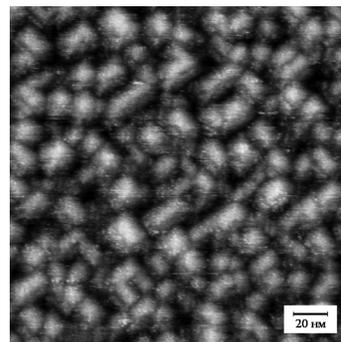
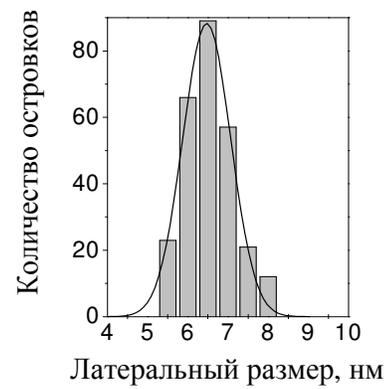
Методом СТМ исследовалась форма, размер и плотность трёхмерных островков Ge, формируемых при гетероэпитаксии Ge на Si(100) из молекулярных пучков с одновременным облучением низкоэнергетическими (~100 эВ) ионами. Было найдено, что при росте в условиях ионного облучения островки сохраняют огранку плоскостями типа {105}, характерную для эпитаксии из чисто молекулярного пучка. Установлено, что при импульсном ионном воздействии (0.5с) на стадии зарождения островков их распределение по размерам становится более однородным (уменьшается ширина функции распределения по размерам), плотность островков Ge увеличивается, а их средний размер уменьшается. Например, при плотности потока германия $7 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$, температуре подложки 350°C и эффективной толщине осаждённого германия 5 МС в экспериментах без ионного облучения (рис. 3.10, а) плотность островков составила 10^{11} см^{-2} , средний размер основания островка $L=22 \text{ нм}$ (неоднородность по размеру 16%). Тогда как, в экспериментах с импульсным ионным облучением (рис. 3.10, б) плотность островков составила $6.8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, их средний размер $L=6.5 \text{ нм}$ (неоднородность по размеру 11%). При осаждении Ge на Si(100) подложку в условиях непрерывного ионного облучения (рис. 3.10, в) плотность островков составила $\sim 2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, а средний разброс по размерам – 30%. Уменьшение разброса по размеру 3D островков Ge, выращенных при импульсном ионном облучении свидетельствует об упорядочении ансамбля нанокристаллов Ge по размеру. Подобный эффект наблюдался нами при гетероэпитаксии Ge/Si(111) в результате импульсного облучения пленки германия собственными низкоэнергетическими ионами (см. п. 3.1.2) [160].



(а)



(б)



(в)

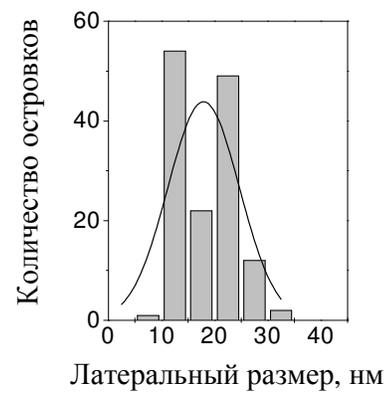


Рис. 3.10. СТМ – изображения (200×200 нм) поверхности с 3D островками, полученные после осаждения 5 МС германия на подложку Si(100) при температуре 350°C , и соответствующие им распределения островков по размерам для трёх типов: (а) – МЛЭ; (б) – МЛЭ с импульсным ионным облучением; (в) – МЛЭ с непрерывным ионным облучением. Энергия ионов 140 эВ.

3.2.2.2. Зависимость плотности островков от температуры подложки

На основе данных, полученных методом СТМ, были построены экспериментальные зависимости плотности 3D островков Ge от температуры подложки. Получено, что в случае обычной МЛЭ Ge на Si(100) (рис. 3.11, кривая 1) с повышением температуры подложки от 250 до 350°C плотность островков уменьшается примерно в 4 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 от 350 до 400°C наблюдается лишь незначительное изменение плотности островков. Экспериментальная зависимость, полученная для МЛЭ с импульсным ионным облучением (кривая 2 на рис. 3.11) ведёт себя подобным же образом. Однако плотность островков, наблюдаемая в экспериментах второго типа, всегда превосходит плотность островков, наблюдаемую в экспериментах первого типа, во всем исследуемом температурном диапазоне. Эффект ионного воздействия на плотность островков ослабевает в области высоких температур $>350^\circ\text{C}$, что может быть связано с отжигом (аннигиляцией) центров зарождения островков, вводимых ионным облучением.

Зависимость размеров островков от температуры обратная для обоих типов экспериментов. Так например, в экспериментах с импульсным ионным облучением при увеличении температуры от 300 до 400°C размер островков возрастает с 6 до 14 нм.

3.2.2.3. Зависимость плотности островков от плотности ионного потока и энергии ионов

На рисунке 3.12 представлены экспериментальные зависимости плотности 3D островков от энергии ионов. 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 (см. п. 2.1.4). Поэтому экспериментальный эффект (рис. 3.12, штриховая кривая) нужно связывать не только с изменением энергии ионов, но и с изменением плотности ионного потока.

Чтобы выделить эффект от увеличения энергии ионов на процесс роста островков, необходимо скомпенсировать зависимость коэффициента ионизации молекулярного потока от энергии ионов (рис. 2.5). Это было сделано путём варьирования тока катода (рис. 2.4), а именно, для больших значений энергии ионов применялась меньшая величина тока катода. Тем самым удалось получить постоянную плотность ионного потока для разных энергий ионов в диапазоне 50 – 250 эВ. Сплошная кривая на рисунке 3.12 получена при постоянной плотности ионного потока.

Исследования показали, что по мере увеличения энергии ионов плотность островков возрастает, достигая максимального значения при энергии 140 эВ, а затем начинает падать (рис. 3.12). Характерный размер островков имеет обратную зависимость от энергии, достигая минимума при 140 эВ.

Немонотонная зависимость плотности островков от энергии ионов, вероятно, связана с существованием некоторой оптимальной энергии, при которой вводятся центры зарождения. Как показывают расчеты на основе программы межатомных столкновений TRIM (см. п. 2.1), с увеличением энергии ионов Ge^+ возрастает их характерная глубина проникновения в кристалл Si. Для используемого диапазона энергий характерная глубина проникновения оказалась прямо пропорциональна величине энергии иона. Так, при экспериментальном значении угла падения ионов Ge^+ к поверхности Si подложки ($\sim 55^\circ$) расчёт показал, что в области энергий 50-100 эВ глубина проникновения ионов меняется от 1 до 3 МС. В этих условиях налетающие ионы создают только поверхностные нарушения, которые быстро залечиваются в процессе осаждения Ge и слабо влияют на зарождение 3D островков. При увеличении энергии (до ~ 140 эВ) ионы проникают в приповерхностный объём на глубину 4 – 5 МС, создавая там междоузельные атомы и вакансии, которые в последствии становятся центрами зарождения островков, за счет введения дополнительных деформаций в растущую плёнку [159, 161]. Дальнейшее увеличение энергии ионов (170 – 250 эВ) способствует формированию междоузельных атомов и вакансий на всё большей глубинах (6 – 9 МС), что

приводит к тому, что искажение деформационного поля на поверхности ослабевает. По-видимому, это и является причиной уменьшения плотности островков.

В условиях, когда достигается максимум плотности 3D островков ($20 \cdot 10^{11} \text{см}^{-2}$, сплошная кривая; $9 \cdot 10^{11} \text{см}^{-2}$ – штриховая кривая), изменение плотности островков в результате ионного воздействия по порядку величины совпадает с интегральным потоком ионов упавших на поверхность ($7.5 \cdot 10^{11} \text{см}^{-2}$ соответствует сплошной кривой; $7.8 \cdot 10^{11} \text{см}^{-2}$ – штриховой). Следовательно, для выбранных условий эксперимента большая часть введённых ионным облучением изменений на поверхности и в приповерхностном объёме становятся центрами преимущественного зарождения трёхмерных островков.

Плотность островков на сплошной кривой выше, чем на штриховой кривой. Это связано с тем, что в первом случае скорость осаждения в 2 раза выше, а эффективная толщина осажденного Ge на 1 МС больше, чем в первом случае.

Заметим, что соотношение между плотностью островков и потоком ионов для поверхности Si(100) на 2 порядка больше, чем на поверхности Si(111) (сравни п. 3.1.2). По нашему мнению, причиной этого различия является разная плотность упаковки поверхностей (100) и (111), которая приводит к разной глубине проникновения ионов. Подробнее этот вопрос обсуждается в параграфе 4.3 с привлечением результатов моделирования.

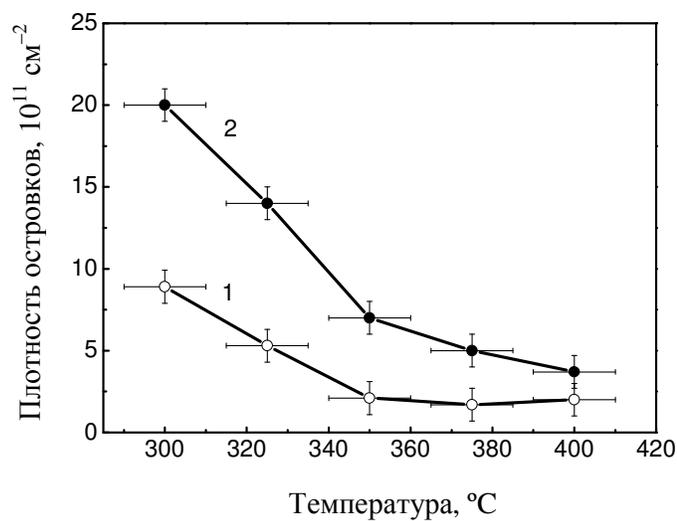


Рис. 3.11. Температурная зависимость поверхностной плотности трёхмерных островков: 1 – МЛЭ Ge на Si(100); 2 – МЛЭ с импульсным (0.5с) облучением ионами Ge⁺ с энергией 140 эВ. Скорость осаждения Ge 0.1 МС/с. Эффективная толщина осаждённого слоя Ge 5 МС.

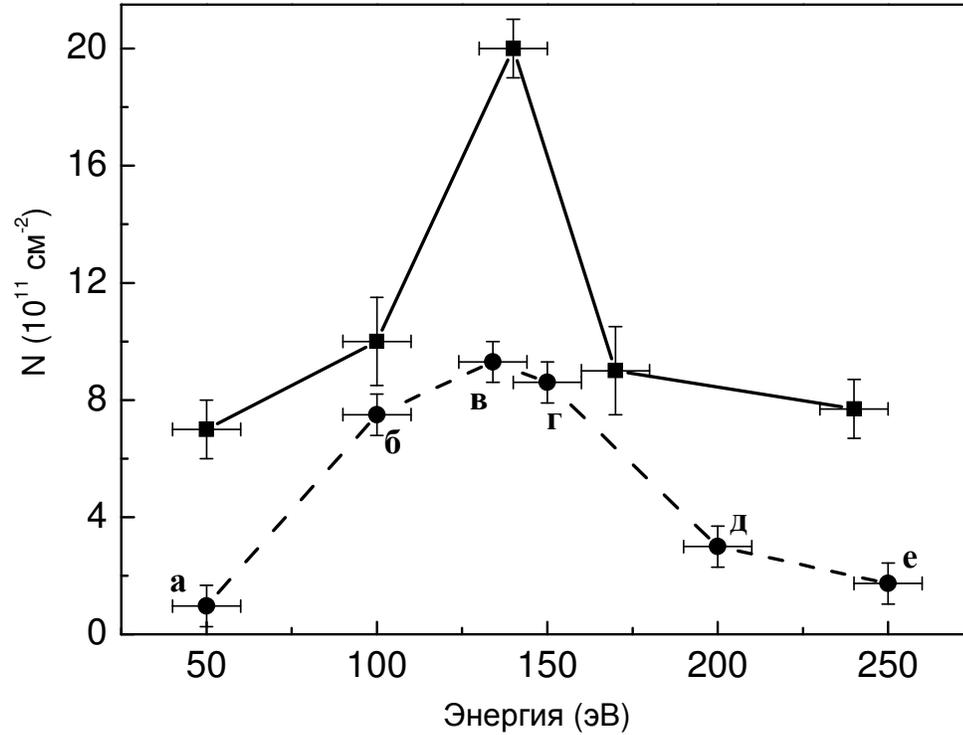


Рис. 3.12. Зависимость плотности N трёхмерных островков Ge на Si(100) от энергии ионного пучка. Гетероструктуры с 3D островками выращивались методом МЛЭ в условиях импульсного ионного облучения при температуре 350°C.

Сплошная кривая соответствует скорости осаждения 0.22 МС/с, количество осажденного материала 6 МС, плотность ионного потока $3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$.

Штриховая кривая соответствует скорости осаждения Ge – 0.1 МС/с, количество осаждённого материала – 5 МС. Каждой экспериментальной точке на штриховой кривой отвечают следующие значения плотности ионного потока: (а) $0.7 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$; (б) $2.2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$; (в) $3.1 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$; (г) $3.5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$; (д) $4.8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$; (е) $8.8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$.

3.2.3. Элементный состав нанокристаллов Ge на Si(100)

3.2.3.1. Комбинационное рассеяние света

Методом спектроскопии комбинационного рассеивания света были определены упругие деформации и элементный состав в структуре Si/Ge/Si(100) с нанокристаллами Ge. Исследуемые структуры формировались двумя методами: 1) МЛЭ Ge на Si; 2) импульсное облучение ионами Ge⁺ с энергией 100 эВ в процессе МЛЭ. Плотность молекулярного потока Ge составляла $7 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, температура подложки 350°C. Каждым методом выращивались структуры двух видов, отличающиеся количеством осажденного германия: 4 и 7 МС. Поверх осажденной пленки Ge выращивался слой Si толщиной 50 нм. Процедура последовательного роста Ge/Si повторялась 10 раз. Схема многослойной структуры представлена на рисунке 3.13.

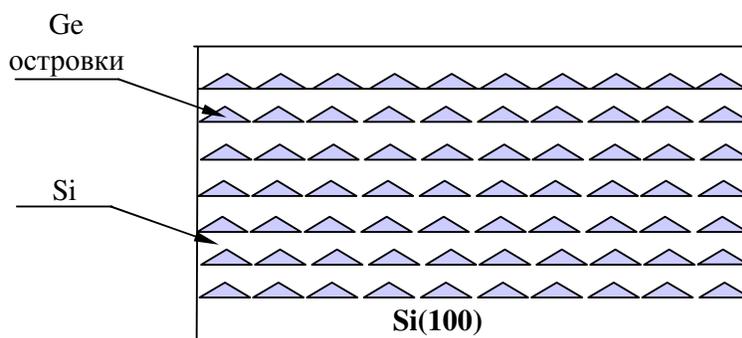


Рис. 3.13. Схема многослойной структуры Si/Ge/Si(100) с нанокристаллами Ge.

Многослойные структуры Si/Ge/Si обеспечивали достаточно интенсивный сигнал КРС. Спектры регистрировались при комнатной температуре с помощью автоматизированной установки на базе спектрометра ДФС-52. В качестве источника возбуждения использовали лазер Ar^+ ($\lambda=514.5$ нм). Применялась следующая поляризационная геометрия рассеяния: вектор поляризации падающего излучения был направлен вдоль кристаллографического направления структур $\langle 100 \rangle$, рассеянный свет регистрировался в поляризации $\langle 010 \rangle$. Это позволяет избавиться от сложностей в интерпретации спектров КРС [163]. Подробно метод КРС описан в главе 2, п. 2.3.5.

На рисунке 3.14 представлены экспериментальные спектры КРС. На всех спектрах присутствует пик с положением от 307 до 315 см^{-1} , соответствующий КРС на оптических колебаниях Ge-Ge – связей. Уменьшение толщины слоя Ge смещает данный пик в сторону меньших частот, деформация сжатия приводит к смещению пика в сторону больших частот. Во всех спектрах присутствует низкочастотное «крыло», обусловленное как вкладом в рассеяние от локализованных мод более высокого порядка, так и вкладом от смачивающего слоя германия. Наблюдаемые пики в промежутке от 370 до 430 см^{-1} соответствуют КРС на оптических колебаниях связей Ge-Si [163, 165].

Для определения характеристик наноструктур Ge-Si на основе данных КРС были проведены численные расчеты [166] собственных частот и собственных векторов колебаний в приближении Борна-фон-Кармана. Расчет проводился в рамках одномерного приближения, поскольку латеральные размеры трёхмерных островков, формируемых в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100), обычно много больше их высоты. Из расчета следует, что при уменьшении толщины германия происходит уменьшение частот активных в КРС колебаний Ge-Ge связей. В случае плоского (ненапряженного) слоя Ge толщиной 4 МС, частота основного Ge-Ge пика составляет 290 см^{-1} , для 7 МС – 294 см^{-1} , для 10 МС – 298 см^{-1} .

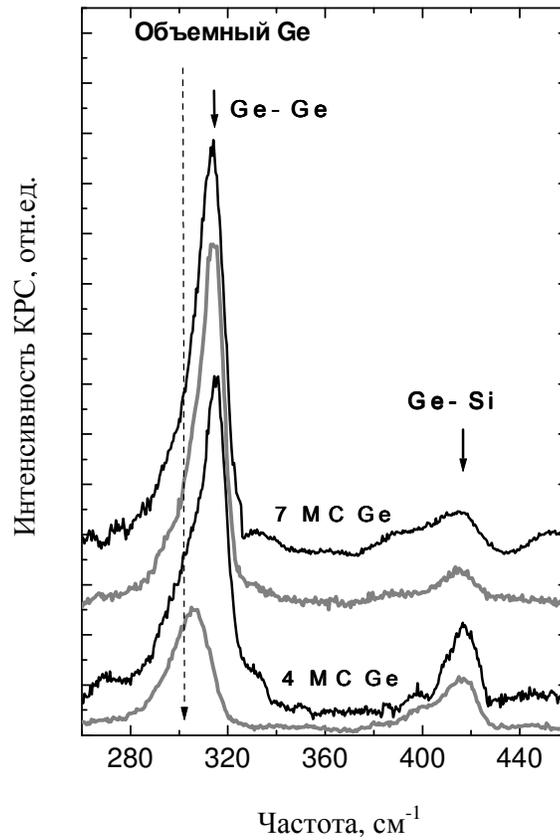


Рис. 3.14. Спектры КРС от многослойных гетероструктур Si/Ge/Si(100) для двух толщин осажденного германия: 4 и 7 МС. Серые линии соответствует структурам, полученным при обычной МЛЭ, черные линии – МЛЭ с импульсным ионным облучением [164].

Упругие деформации в расчет не закладывались, но их влияние можно учесть посредством сдвига всех частот на величину, пропорциональную напряжениям, как это было сделано в работах [167, 168]. По нашим оценкам, смещение пика КРС для Ge-Ge – связей за счет упругих деформаций в напряжённых островках Ge в Si (вследствие различий в постоянной решетки на 4%) достигает 17 см^{-1} относительно частоты оптического фонона в ненапряженном объемном Ge (302 см^{-1}). Для структур с эффективной толщиной Ge 4 МС, выращенных обычной МЛЭ, экспериментально определенное положение пика составляет 307.5 см^{-1} (рис. 3.14). Расчетное значение частоты колебаний для однородной по толщине ненапряженной плёнки Ge (4 МС) составляет 290 см^{-1} . Отклонение положения пика от расчетного значения составляет 17.5 см^{-1} , что хорошо согласуется с приведенными оценками смещения, вызванного упругой деформацией. Согласно данным ДБЭ, в этой структуре отсутствуют 3D островки Ge, поэтому сравнение с расчетом для 2D плёнки обоснованно.

В спектре образцов с такой же средней толщиной осажденного германия, выращенных с импульсным ионным облучением, положение максимума сигнала КРС Ge-Ge – связей составляет 315 см^{-1} . В этом случае разница между экспериментальным и расчетным положениями пиков составляет 25 см^{-1} . Такой сдвиг уже нельзя интерпретировать как эффект механических напряжений. Очевидно, в этом случае германиевый слой не является двумерным, а содержит 3D островки, в которых толщина германия намного больше средней толщины. И действительно, изменение положения и формы рефлексов ДБЭ в условиях роста с импульсным ионным облучением свидетельствует о появлении трёхмерных островков в форме *hut* – кластеров (рис. 3.4 (а) и (в)). Согласно данным СТМ и ДБЭ (см. п. 3.2.1 и 3.2.2), суммарная высота 3D островков и подлежащего смачивающего слоя Ge в этом случае составляет примерно 10 МС. Для островковой структуры таких размеров расчетное положение пика КРС без учёта деформации равно 298 см^{-1} . Разница расчетного и экспериментального положений пиков составляет 17 см^{-1} , что близко к максимально возможному сдвигу за счет механических напряжений. Этот результат указывает на то, что в

3D островках, полученных в условиях ионного облучения, пластическая релаксация механических напряжений отсутствует.

С увеличением средней толщины осажденного германия до 7 МС спектральные различия КРС между образцами, выращенными в условиях импульсного облучения ионами Ge^+ и обычной МЛЭ, практически исчезают (рис. 3.14). Это согласуется с данными ДБЭ (рис. 3.4), где наблюдается рост *dome* – кластеров в образцах обоих типов.

Из соотношения интенсивностей пиков, относящихся к возбуждению колебаний Si-Ge – и Ge-Ge – связей, были проведены оценки содержания германия в исследуемых структурах. В образцах с эффективной толщиной 4 МС, выращенных обычной молекулярно-лучевой эпитаксией, отношение интегральных интенсивностей ($I_{\text{SiGe}}/I_{\text{GeGe}}$) пиков составляет 0.43. Для структур с такой же средней толщиной осажденного германия, полученных в условиях импульсного ионного облучения, отношение $I_{\text{SiGe}}/I_{\text{GeGe}}$ уменьшается и составляет 0.2. С увеличением эффективной толщины плёнки до 7 МС наблюдается дальнейшее уменьшение интенсивности пиков КРС на оптических колебаниях Si-Ge – связей по сравнению с интенсивностью пиков от Ge-Ge – связи (рис.). Основываясь на отношении интенсивностей пиков Si-Ge и Ge-Ge, сделана оценка отношения количества связей кремния и германия ($N_{\text{SiGe}}/N_{\text{GeGe}}$) в слоях:

$$\frac{N_{\text{SiGe}}}{N_{\text{GeGe}}} \approx B \frac{I_{\text{SiGe}}}{I_{\text{GeGe}}},$$

где $B \approx 3.2$ [165].

В структурах с эффективной толщиной 4 МС, выращенных в условиях импульсного ионного облучения, отношение $N_{\text{SiGe}}/N_{\text{GeGe}}$ составляет 0.64. В структурах 7 МС это отношение уменьшается до 0.5. Из отношения числа связей проведена оценка доли содержания германия x :

$$\frac{N_{\text{SiGe}}}{N_{\text{GeGe}}} = \frac{2(1-x)}{x}.$$

Действительно, в случайной (некоррелированной) смеси атомов Ge и Si количество связей Ge-Ge пропорционально x^2 , а количество связей Ge-Si – пропорционально $2x(1-x)$. Для структур, выращенных из ионно-молекулярного пучка, по этой формуле получено, что $x > 0.75$. Поскольку островки Ge находятся в окружении Si и вклад в N_{SiGe} могут давать связи Si-Ge на границе раздела фаз, то приведенная оценка является нижним пределом содержания Ge.

Таким образом, данные КРС показывают, что в гетероструктурах, полученных эпитаксией из ионно-молекулярных пучков, доля Si в нанокристаллах не превышает 25%.

3.2.3.2. EXAFS-спектроскопия

С применением EXAFS-спектроскопии исследовано влияние облучения низкоэнергетическими ионами Ge^+ в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100) на упругие деформации в плёнке Ge и перемешивание атомов Si и Ge [169]. Для исследования брали такие же образцы, как и для КРС: образцы №1 и №2 с эффективной толщиной плёнки Ge 4 МС, №3 и №4 – 7 МС. Образцы №2 и №4 синтезированы методом молекулярно-лучевой эпитаксии без ионного облучения, №1 и №3 – с импульсным облучением ионами Ge^+ с энергией 100 эВ.

Измерения EXAFS-спектров для гетероструктур Ge/Si (100) проводились с использованием синхротронного излучения накопителя ВЭПП-3 Института ядерной физики СО РАН. Измеряли зависимость коэффициента поглощения рентгеновского излучения от частоты излучения вблизи порога ионизации основного уровня атома Ge (К-оболочка). Полученные EXAFS-спектры были обработаны с использованием программного пакета EXCURV92, который позволил получить данные о межатомных расстояниях, координационных числах Ge по Si и Ge по Ge.

Экспериментально установлено, что межатомные расстояния (Ge-Ge) уменьшаются во всех тонких пленках и структурах с квантовыми точками на $\sim 0.04 \text{ \AA}$ по сравнению с

объемным Ge и составляют 2.41 Å. Расстояния (Ge-Si) уменьшается на 0.03 Å по сравнению с суммой ковалентных радиусов Ge и Si и составляют 2.37 Å.

Обнаружено, что для всех образцов перемешивание атомов на границе раздела Ge/Si существенно. В структурах, выращенных в условиях импульсного облучения собственными низкоэнергетическими ионами, наблюдается уменьшение доли Ge-Si связей ($N_{\text{GeSi}}/N_{\text{GeGe}}=0.74$ для 7 МС и $N_{\text{GeSi}}/N_{\text{GeGe}}=1.67$ для 4 МС) по сравнению со структурами, выращенными в условиях обычной молекулярно-лучевой эпитаксии ($N_{\text{GeSi}}/N_{\text{GeGe}}=0.9$ для 7 МС и $N_{\text{GeSi}}/N_{\text{GeGe}}=3.44$ для 4 МС). Это связано, по-видимому, с тем, что для образцов, выращенных в условиях ионного облучения, толщина смачивающего слоя меньше по сравнению с образцами, выращенными без ионного облучения (смотри в п. 3.2.1 и 3.2.2 результаты ДБЭ [162] и СТМ [159]). Чем меньше толщина смачивающего слоя (при одинаковом количестве Ge), тем большее количество Ge находится внутри 3D островков. Атомные связи Si-Ge находятся, в основном, в смачивающем слое и в области границ островков. Тем самым уменьшение толщины смачивающего слоя должно проявляться в уменьшении долей связей Si-Ge по отношению к связям Ge-Ge.

3.2.4. Совершенство гетероструктур Ge/Si(100)

3.2.4.1. Резерфордовское обратное рассеяние

Методом POP в режиме каналирования анализирующего пучка ионов He^+ исследовалось кристаллическое совершенство гетероструктур Si/Ge/Si(100) со встроенными слоями квантовых точек, выращенных из ионно-молекулярных пучков. Сам метод POP подробно описан в главе 2, п. 2.3.3. Там же представлена схема эксперимента резерфордовского обратного рассеяния рис. 2.12. Рост исследуемых образцов проводился в два этапа. Сначала методом молекулярно-лучевой эпитаксии при температурах 300–500°C на поверхности Si формировался слой с нанокристаллами Ge в условиях облучения ионами с энергией 140 – 240 эВ. Использовались как импульсный, так и непрерывный режимы облучения. Эффективная толщина плёнки Ge варьировалась в пределах от 2 до 10 МС. На следующем этапе поверх 3D островков Ge наращивался слой Si толщиной 150 нм при температуре 500°C.

По полученным спектрам POP анализировалась минимальная величина нормированного выхода обратного рассеяния χ .

Было получено, что выход обратного рассеяния (доля неканализованных частиц) от слоев кремния для выбранных условий роста имеет величину 3%, близкую к тому, что должно наблюдаться в совершенном кристалле Si с ориентацией (100). Этот результат свидетельствует о том, что при осаждении Si поверх островков Ge формируются совершенные по кристаллической структуре слои кремния.

Иная ситуация наблюдается для слоев германия (рис. 3.15). В структурах с эффективной толщиной Ge менее 4 МС, полученных как с использованием ионного пучка, так и без него, выход обратного рассеяния от слоев Ge не превышал 3%. При увеличении толщины слоя Ge выход обратного рассеяния возрастает. Наиболее совершенные кристаллические структуры с выходом 2.5% были получены в режиме импульсного облучения

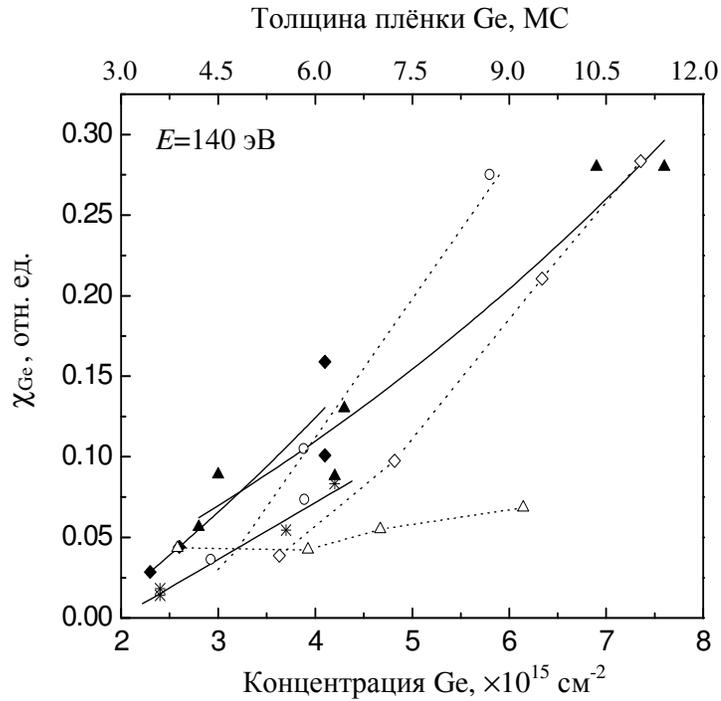


Рис. 3.15. Зависимость доли неканализованных частиц для слоёв Ge (χ_{Ge}) от эффективной толщины осаждённого Ge для различных температур роста и режимов облучения низкоэнергетическими ионами.

- ▲ - 300°C, МЛЭ при импульсном ионном облучении;
- * - 350°C, МЛЭ при импульсном ионном облучении;
- ◆ - 350°C, МЛЭ при непрерывном ионном облучении;
- △ - 300°C, МЛЭ;
- ◇ - 400°C, МЛЭ;
- - 500°C, МЛЭ.

с эффективным числом осажденных слоев Ge ≤ 5 МС при температуре 350°C (рис. 3.15). В аналогичных структурах, выращенных при более низкой температуре (300°C), χ_{Ge} превосходит 5%, что, по-видимому, связано накоплением дефектов вводимых ионным облучением в плёнку Ge в из-за снижения эффективности их отжига в области низких температур [26, 101]. С повышением температуры синтеза Ge/Si структур до 400 – 500°C доля неканалированных частиц так же возрастает. Полученный результат, может быть связан с возрастанием величины упругих деформаций в формируемой Ge/Si структуре из-за образования 3D островков типа *dome* с более высоким отношением высоты к размеру основания по сравнению с *hut* – кластерами [20].

Было обнаружено, что увеличение длительности воздействия ионами и их энергии приводит к возрастанию доли неканалированных частиц. Так, χ_{Ge} для структур, полученных в режиме непрерывного ионного воздействия больше, чем χ_{Ge} в условиях импульсного облучения, при всех прочих равных условиях роста (рис. 3.15).

На рисунке 3.16 представлены спектры РОР для слоев Ge, выращенных в условиях импульсного облучения ионами Ge с разными энергиями при температуре 350°C. На их основе, получены следующие значения доли неканалированных частиц: $\chi_{\text{Ge}}=3.5\%$ при энергии ионов 140 эВ, $\chi_{\text{Ge}}=15\%$ при энергии ионов 240 эВ.

Возрастание доли неканалированных частиц с увеличением длительности воздействия ионами и их энергии, по-видимому, связано с введением в плёнку Ge большего количества вакансий и междоузельных атомов. Помимо этого, как показывают данные ДБЭ, с увеличением энергии ионов переход к росту *dome* – островков происходит на более ранних стадиях роста по количеству осаждённого Ge, что так же способствует возрастанию χ из-за возрастания величины упругих деформаций в исследуемой структуре. Увеличение доли неканалированных частиц при увеличении длительности ионного облучения может быть так же связано с образованием протяжённых дефектов (дислокаций) в 3D островках, что согласуется с данными полученными методом просвечивающей электронной микроскопии.

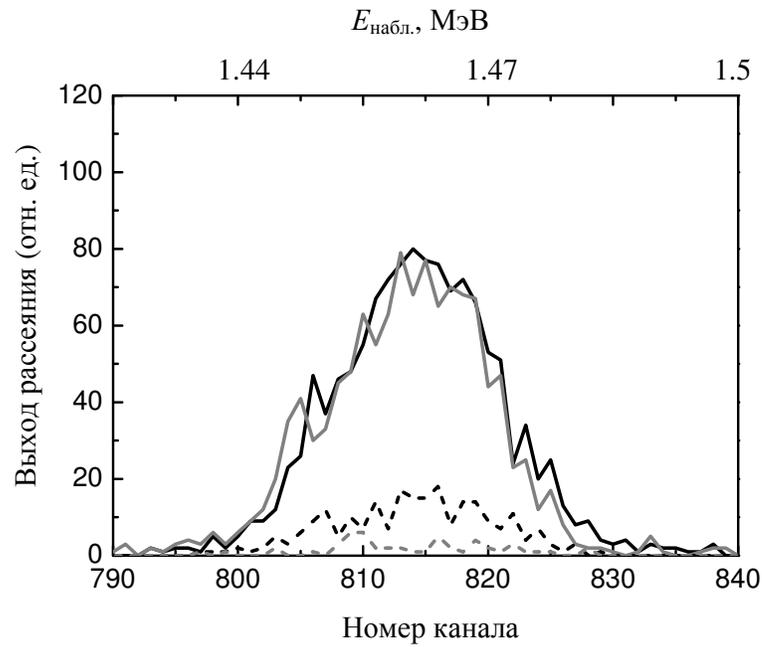


Рис. 3.16. Спектры ROP для ориентированного (пунктирная линия) и неориентированного (сплошная линия) пучка ионов He^+ от слоев Ge, выращенных в процессе гетероэпитаксии Si/Ge/Si(100) с импульсным ионным облучением при температуре 350°C. Серые линии для экспериментов с энергией ионов 140 эВ, черные – 240 эВ. Эффективная толщина слоя Ge – 5 МС.

3.2.4.2. Просвечивающая электронная микроскопия

Данные РОР хорошо согласуются с результатами, полученными методом просвечивающей электронной микроскопии. Исследование методом ПЭМ структур Ge/Si(100) структур показали, что островки Ge, выращенные в условиях импульсного ионного облучения при температуре 350°C с эффективной толщиной слоя Ge 5 МС имеют симметричную “дискообразную” форму и не содержат дислокаций (рис. 3.17, а). При этих же параметрах роста пленки (температура, скорость осаждения) в условиях непрерывного ионного облучения островки имеют больший размер и содержат дислокации по краям островков (рис. 3.17, б).

3.2.5. Фотолюминесценция нанокристаллов Ge на Si(100)

Исследовались многослойные структуры Si/Ge/Si, выращенные при температуре 350°C в условиях: 1) обычной МЛЭ; 2) МЛЭ с импульсным ионным облучением. Рост проводился послойно с чередованием слоев Ge толщиной 6 МС и Si – 15 нм (рис. 3.13). Процесс осаждения Ge на Si повторялся 8 раз. Часть образцов была пассивирована атомами водорода при температуре 250°C в течении 30 мин в реакторе химического осаждения из паровой фазы. Использовали следующую нумерацию образцов: №1 – МЛЭ, №2 – МЛЭ с импульсным ионным облучением, №1.1 – МЛЭ плюс обработка водородом, №2.1 – МЛЭ с импульсным ионным облучением плюс обработка водородом.

Спектры ФЛ образцов показаны на рисунке 3.18. Все спектры были нормированы на спектральную чувствительность Ge детектора. Для образцов №1 и №2 наблюдались два широких пика с центрами 0.75 эВ и 0.84 эВ (кривые 1 и 2). Пик при 0.75 эВ мы связываем с бесфононной излучающей рекомбинацией носителей заряда – электронов, локализованных вблизи Ge нанокристаллов. В связи с тем, что структуры Ge/Si – гетероструктуры второго типа, то дырки захватываются внутрь Ge островков, в то время как электроны расположены в

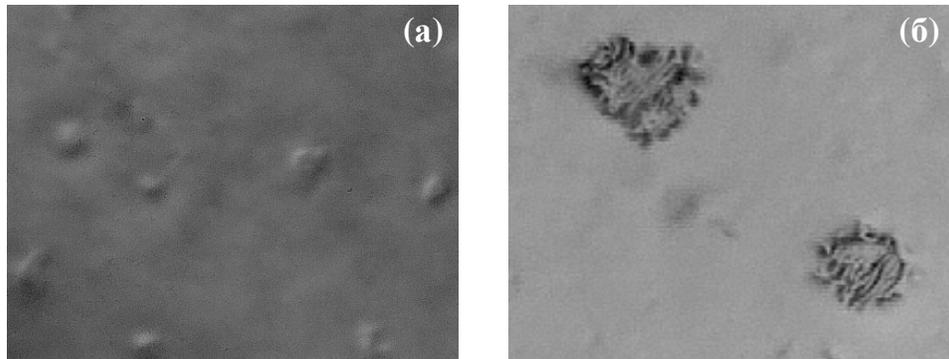


Рис. 3.17. ПЭМ – изображения (Plan-view, 150×50 нм) гетероструктур Si/Ge/Si(100) со встроенными нанокристаллами Ge. Нанокристаллы Ge, выращенные в режиме импульсного (а) и непрерывного (б) ионного облучения.

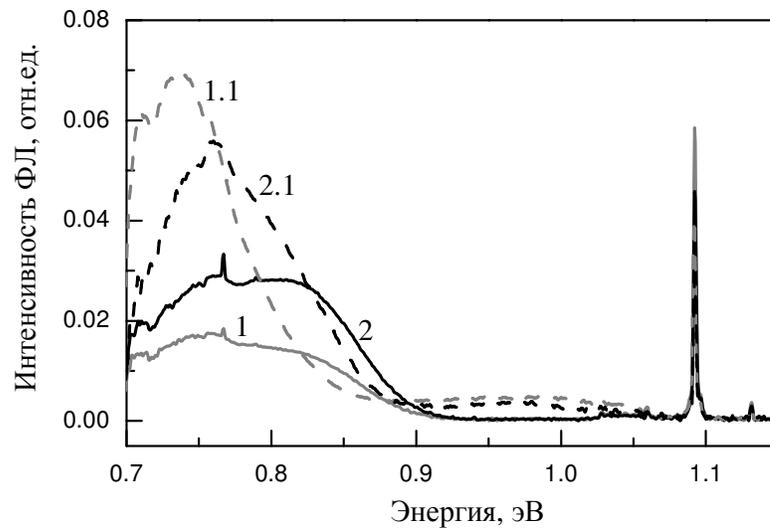


Рис. 3.18. Спектры ФЛ для структур Ge/Si(100), выращенных в условиях обычной МЛЭ (серые линии) и МЛЭ с импульсным ионным облучением (черные линии). 1 – 2 для образцов, выращенных при температуре 350°C. Энергия ионов 140 эВ, толщина осажденного материала 6 МС. 1.1 – 2.1 – те же образцы, обработанные в плазме водорода при температуре 250°C. Фотолюминесценция возбуждалась излучением аргонового лазера с длиной волны 457.9 нм при $T=5\text{K}$.

деформированных слоях Si вблизи островков. Несмотря на то, что данный переход является непрямым в k -пространстве, сила осциллятора достаточно велика из-за проникновения волновой функции электрона внутрь Ge точки.

После обработки структур в атомарном водороде наблюдалось увеличение интенсивности ФЛ (пики на 0.75 эВ) для обоих образцов (рис. 3.18, кривые 3 и 4), что свидетельствует о пассивации центров безызлучательной рекомбинации, связанных с дефектами. В образцах, подвергшихся водородной обработке, пассивация подавляет интенсивность пика на 0.84 эВ, что свидетельствует о связи этого пика с дефектами. Однако этот пик в образце №2.1 исчезает не полностью и связано это, по-видимому, с частичной пассивацией дефектов, вводимых ионным облучением.

Кроме того, обработка водородом приводит к появлению неразрешенных полос между 0.9 и 1.05 эВ, которые можно связать со смачивающим слоем. Так как ФЛ в двумерных структурах чувствительнее к дефектам, чем ФЛ в квантовых точках [170], то пассивация дефектов роста приводит не только к усилению ФЛ в КТ, но так же к появлению излучения от смачивающего слоя.

Образец №2.1 демонстрирует “синее” смещение на 20 – 25 мэВ пика ФЛ, связанного с нанокристаллами Ge (рис. 3.18), по сравнению с образцом №1.1. Этот сдвиг можно объяснить несколькими причинами: 1) уменьшением размеров островков в образцах, выращенных при импульсном облучении (см. п. 3.2.2); 2) перемешиванием Ge и Si из-за усиленной облучением диффузии; 3) изменением деформации в структурах.

Для ответа на вопрос, какая из причин является основной, эти же структуры исследовались с помощью метода КРС. Откуда были определены средняя доля германия в квантовых точках ($x=0.65\pm 0.5$) и различие в деформации для всех исследуемых образцов, которое не превысило 6%. Это означает, что “синее” смещение ФЛ для образца №2.1 вызвано, скорее всего, меньшим размером 3D островков, полученных в режиме импульсного ионного облучения, чем при обычной эпитаксии.

Согласно результатам расчётов [171], изменение латерального размера Ge квантовой точки на 1 нм приводит к смещению энергетического уровня основного состояния дырки на ~25 мэВ. При этом уровень электрона изменяется гораздо слабее, поэтому ожидаемый сдвиг линии ФЛ составляет ~25 мэВ/нм для квантовых точек из чистого Ge. Так как в наших экспериментах островки имеют состав приблизительно $\text{Ge}_{0.65}\text{Si}_{0.35}$, то следует ожидать меньшего смещения пика ФЛ: ~15 мэВ/нм, т. е. «синему» смещению на 25 мэВ соответствует изменение размеров квантовых точек ~1.5 нм.

Однако, исследование методом СТМ показало, что импульсное ионное облучение при температуре эпитаксии 350°C приводит к уменьшению размеров островков на 5–6 нм, что, на первый взгляд, противоречит приведённым выше оценкам, основанным на расчётах энергетических уровней. Это противоречие может быть связано с тем, что данные СТМ относятся к незакрытым островкам, а данные ФЛ — к островкам, закрытым кремнием при 400°C. Известно [20], что в процессе закрытия германия кремнием размеры и плотность островков могут меняться.

Заключение по главе 3

Предложен и разработан метод зарождения и роста однородного массива нанокристаллов Ge на Si с помощью импульсного (0.5 с) воздействия собственных низкоэнергетических ионов в процессе осаждения из молекулярных пучков.

Методом СТМ в сочетании с методом ДБЭ обнаружено, что кратковременное ионное облучение пленки Ge в моменты времени, соответствующие окончанию заполнения поверхностного монослоя при двумерно-слоевом росте, приводит к следующим эффектам:

- Ионно-стимулированному зарождению трёхмерных nanoостровков Ge на Si. Наблюдается уменьшение критической толщины пленки германия, при которой происходит переход от двумерно-слоевого к трехмерному росту;
- Улучшению однородности нанокристаллов по размерам (уменьшается ширина функции распределения по размерам в сравнении с эпитаксией без ионного облучения);

- Увеличению плотности и уменьшению среднего размера нанокристаллов Ge;

Показано, что импульсное облучение растущей поверхности ионным пучком вызывает изменение огранки 3D островков (переход от *hut*- к *dome*-островкам) на более ранних стадиях роста по сравнению с МЛЭ без ионного облучения. Этот эффект усиливается с увеличением энергии ионного пучка.

Определены условия, при которых можно получить совершенные кристаллические структуры Ge/Si с плотным массивом нанокристаллов Ge (плотность 3D островков 10^{12} см^{-2} , средний размер островков 10 нм): температура подложки 300 – 350°C; энергия ионов в диапазоне 130 – 150 эВ; интегральная плотность ионного потока порядка 10^{12} см^{-2} .

По данным РОР, наиболее совершенные кристаллические структуры с выходом обратного рассеяния 2.5% были получены в режиме импульсного облучения с эффективным числом осажденных слоев Ge ≤ 5 МС при температуре 350°C. Доля неканализованных частиц возрастает для структур выращенных при энергиях ионов свыше 140 эВ.

Методом просвечивающей электронной микроскопии было показано, что 3D островки, выращенные в условиях импульсного ионного облучения, имеют размер ≤ 10 нм и не содержат дислокаций. При этих же ростовых параметрах (температура, скорость осаждения) в условиях непрерывного ионного облучения формируются 3D островки большего размера содержащие дислокации несоответствия.

Исследования методами КРС и EXAFS-спектроскопии показали, что импульсное ионное облучение в процессе роста гетероструктур не приводит к существенному перемешиванию слоев Ge и Si в исследованной области температур.

Получена фотолюминесценция от структур Ge/Si с нанокластерами Ge. Показано, что уменьшение латерального размера нанокластеров, выращенных при импульсном ионном облучении, приводит к высокоэнергетическому сдвигу пика ФЛ.

ГЛАВА 4. МОДЕЛИРОВАНИЕ ИОННО-СТИМУЛИРОВАННОГО РОСТА Ge НАНОКЛАСТЕРОВ НА ПОВЕРХНОСТИ Si

Данная глава посвящена моделированию наблюдаемых в эксперименте эффектов ионно-стимулированного роста Ge островков на поверхности Si. Согласно экспериментальным и теоретическим работам [23, 122, 124], облучение поверхности низкоэнергетическими ионами может приводить к следующим элементарным процессам: 1) *распылению материала*; 2) *генерации адатомов*; 3) *увеличению диффузионной подвижности адатомов*; 4) *генерации междоузельных атомов и вакансий в приповерхностном слое, приводящей к дополнительной деформации поверхности*.

Возможны две точки зрения на то, как низкоэнергетическое (~100эВ) ионное облучение воздействует на зарождение и рост островков. Первая точка зрения заключается в том, что ионы малых энергий воздействуют непосредственно на поверхность пленки Ge, приводя к генерации адатомов и поверхностных вакансионных кластеров в виде ямок моноатомной глубины, которые в свою очередь становятся центрами зарождения островков [22, 96, 98]. Вторая заключается в том что, наряду с указанными процессами, облучение низкоэнергетическими ионами приводит к генерации междоузельных атомов и вакансий на глубине нескольких атомных слоев от поверхности, которые создают дополнительную деформацию поверхности, тем самым влияя на зарождение и рост островков [125].

Для того чтобы выяснить, какая из указанных точек зрения верна и какой процесс даёт определяющий вклад, были предложены модели эпитаксиального роста Ge на Si в условиях импульсного ионного облучения и приведены вычислительные эксперименты.

§ 4.1. Первая модель:

воздействие ионного облучения непосредственно на поверхность

Для разъяснения влияния ионного облучения на переход от двумерно-слоевого роста к трехмерному была предложена модель формирования когерентно напряженных 3D островков при воздействии пучком низкоэнергетических ионов на поверхность пленки Ge в процессе гетероэпитаксии Ge/Si [156]. В модели предполагалось, что наличие упругих деформаций вблизи границ островков на поверхности уменьшают энергию связи краевых атомов и повышает вероятность диффузионных переходов в вышележащие атомные слои, что может приводить в определённых условиях роста к трансформации 2D островков в 3D островки.

Наряду с поверхностной диффузией и осаждением атомов из молекулярного пучка в модель были включены следующие элементарные процессы, вызванные облучением низкоэнергетическими ионами: 1) *распыление материала*; 2) *генерация адатомов и поверхностных вакансионных кластеров*; 3) *ионно-стимулированное увеличение диффузионной подвижности адатомов*.

4.1.1. Описание модели

Послойный рост германия из молекулярного пучка рассматривался на основе модели, разработанной Vvedenskii et al. [172] и Hanson et al. [133] с коллегами для численного моделирования методом Монте-Карло полупроводниковых кристаллов с алмаза подобным строением кристаллической решётки. В данной модели эпитаксиальный рост полностью контролируется двумя кинетическими процессами: осаждением атомов из молекулярного пучка и поверхностной диффузией.

Процесс диффузии представляется как последовательность случайных переходов адатомов на соседние не занятые места, которые соответствуют регулярным позициям на поверхности кристалла кремния. Частота таких переходов активационным образом зависит от температуры:

$$\nu = \nu_0 \exp\left(\frac{E_a}{kT}\right), \quad (4.1)$$

где ν_0 – дебаевская частота колебаний атомов, k – постоянная Больцмана, T – температура поверхности.

В модели предполагается, что энергия активации (E_a) диффузионного прыжка адатома зависит от числа его ближайших соседей в первой (n_1) и второй (n_2) координационной сфере и упругой энергии (E_{strain}), приходящейся на один атом: $E_a = n_1 E_1 + n_2 E_2 - E_{strain}$. Здесь E_1 – энергия связи атома с первым ближайшим соседом, E_2 – энергия связи со вторым ближайшим соседом. Среди вторых соседей учитываются только атомы, расположенные в плоскости роста (111) ($0 \leq n_2 \leq 6$). Вакансии в объёме кристалла и нависания атомов над полостью в данной модели запрещены. Величина E_{strain} предполагалась зависящей только от размеров островка (смотри рис. 4.1).

Энергию упругой деформации, относящуюся к атомам вблизи краёв островков, предварительно рассчитывали с помощью потенциала Китинга [173]. Результаты этих расчетов показали, что максимум упругих деформаций локализуется на границах островка и зависит от их размера. Увеличение размера островка вызывает возрастание энергии упругой деформации на границе 2D островков, что в свою очередь облегчает переход краевых атомов в вышележащие атомные слои и стимулирует формирование 3D островков [11, 20] (рис. 4.1).

В модели рассматривалась трехмерная кристаллическая решётка типа алмаза; направление роста (ось Z) соответствовало оси [111]. Вычислительный алгоритм строился на двумерной сетке ($N_x \times N_y$) = (147 × 147), описывающей поверхность кристалла. Атомы, находящиеся в объёме, тем самым исключаются из алгоритма, что сохраняет затраты

машинного времени. Координаты X и Y атомов определяются их номерами (i,j) в сетке; координаты Z хранятся в массиве $h_{i,j}$. Каждый поверхностный атом мог совершать диффузионный прыжок с вероятностью

$$P = p_0 \exp\left[-\frac{E_a}{kT}\right], \quad (4.2)$$

где p_0 – нормирующий множитель, который выбран так, чтобы вероятность диффузионного перехода атома на атомарно гладкой поверхности равнялась 1. Конечная позиция диффузионного прыжка выбиралась случайным образом среди соседних незанятых позиций. При этом были запрещены переходы, в результате которых атом не имеет ни одного соседа в первой координационной сфере. В пределах одного итерационного цикла производилось сканирование по всем поверхностным атомам. Временной интервал, отвечающий одному такому циклу, соответствовал $\Delta t = p_0/\nu_0$. Вероятность осаждения атома из молекулярного пучка в регулярную позицию на поверхности кристалла бралась равной $P_A = F \Delta t / (N_X N_Y)$, где F – плотность молекулярного потока. Испарением пренебрегали, что является хорошим приближением в типичных условиях роста из молекулярного пучка [174].

Сохранив исходные положения моделей Введенского и Хансона, мы обобщили модель на случай эпитаксии из ионно-молекулярных пучков включением в неё двух факторов, присущих взаимодействию низкоэнергетических ионов с поверхностью Si(111) [118]: генерация адатомов и поверхностных вакансионных кластеров в местах столкновения ионов с поверхностью; увеличение подвижности адатомов.

Для учёта морфологических изменений поверхности Si(111), вводимых облучением низкоэнергетическими ионами, нами были использованы результаты моделирования на основе метода молекулярной динамики [22, 23]. Согласно этим результатам, столкновение низкоэнергетического иона (под углом $\leq 60^\circ$) с поверхностью Si(111) приводит к генерации одного вакансионного кластера, адатомов и распылению материала [23]. Нами было принято, что данные результаты сохраняются и для Ge(111). Выбраны следующие параметры: размер

вакансионного кластера равен 10 поверхностным вакансиям; количество возбужденных адатомов – 9; один распыленный атом.

В модели принималось, что ионное облучение в процессе эпитаксии приводит к увеличению поверхностного коэффициента диффузии в 10 раз по сравнению с эпитаксией без ионного облучения. Данные об увеличении коэффициента диффузии были взяты из экспериментальной работы [25].

Указанные факторы ионного воздействия включались в модельный расчёт как непрерывно (в процессе всего роста пленки германия), так и импульсно (по завершению осаждения каждого атомного слоя).

Моделирование гетероэпитаксии Ge на Si(111) проводилось методом Монте-Карло с использованием циклических граничных условий. Численные параметры модели были следующие: $E_1=1.2$ эВ, $E_2=0.1$ эВ, $\nu_0=10^{13}$ Гц, $T=350^\circ\text{C}$, плотность ионного потока $5.5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, скорость осаждения Ge 0.12 бислоев/с.

Для характеристики изменения морфологии поверхности Ge в процессе роста рассчитывалась поверхностная плотность ступеней S , определяемая как доля атомов на вертикальных участках поверхности. По смыслу эта величина характеризует число атомов по периметру островков и вакансионных кластеров, поэтому она очень чувствительна к изменению морфологии ростовой поверхности. Как было показано в работах [174, 175, 133], в Брэгговских дифракционных условиях (конструктивная дифракция) величина $(I-S)$ прямо пропорциональна интенсивности отраженного электронного пучка. В данной работе S определяется следующим образом:

$$S = \frac{1}{4N_x N_y} \sum_{i=1}^{N_x} \sum_{j=1}^{N_y} \left[|h_{i,j} - h_{i+1,j}| + |h_{i,j} - h_{i,j+1}| \right].$$

Такое определение S позволяет учесть различную высоту поверхностных ступеней, а значит, и их различную рассеивающую способность при ДБЭ.

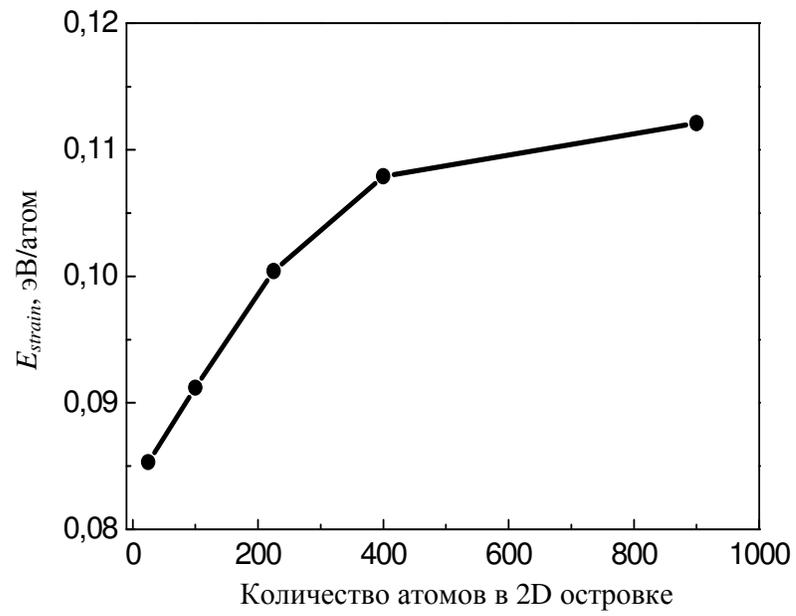


Рис. 4.1. Зависимость энергии упругой деформации (E_{strain}) на границе островков от размера островков.

4.1.2. Результаты моделирования

На первом шаге моделировалась гетероэпитаксия Ge на Si(111) без ионного облучения. В процессе модельного роста фиксировались изменение средней шероховатости поверхности и морфология поверхности пленки германия на различных стадиях роста по количеству осаждённого материала. Расчеты показали, что рост идет в двух режимах: двухмерный послойный рост, где наблюдаются осцилляции S с периодом равным времени заполнения атомного слоя, и трехмерный рост, где осцилляции прекращаются (рис. 4.2, а).

Следующим шагом в модели рассматривалась гетероэпитаксия с ионным облучением. Выделялось два механизма ионного воздействия, которые могут отвечать за наблюдаемые в эксперименте эффекты ионно-стимулированного роста:

- 1) генерация дополнительных адатомов и вакансионных кластеров ионным пучком;
- 2) увеличение подвижности адатомов.

В данной модели оказалось, что существенное влияние на рост Ge островков ионное облучение имеет место только при непрерывном характере воздействия.

Для случая, где главным механизмом ионного воздействия была выбрана генерация адатомов и поверхностных вакансионных кластеров (ямок моноатомной глубины) (рис.4.2, b), переход от 2D к 3D росту происходит на более ранних стадиях по количеству осажденного материала, чем при обычной эпитаксии (рис.4.2, а). Свидетельством ионно-стимулированного 2D \Rightarrow 3D перехода является сокращение числа осцилляций от 3 до 2.

На рисунке 4.3 показано изменение морфологии поверхности в зависимости от выбранных условий модельного роста. Тёмно-серые пятна соответствуют 2D островкам, белые – зародышам 3D островков. Из рисунка видно, что генерация адатомов и вакансионных кластеров приводит к уменьшению среднего размера островков (L) и увеличению их плотности (N) практически в два раза (рис.4.3, b) по сравнению с плотностью в процессе эпитаксии без ионного облучения (рис. 4.3, а). Причиной наблюдаемого эффекта

являются генерируемые ионным облучением добавочные адатомы, которые посредством диффузии скапливаются на вершинах имеющихся 2D островков, способствуя 3D росту.

При гетероэпитаксии с ионным облучением, где главным механизмом является увеличение подвижности адатомов, наблюдается уменьшение критической толщины пленки Ge, при которой происходит переход от 2D к 3D росту (рис. 4.2, с), средний размер островков увеличивается, а их плотность падает (рис. 4.3, с).

В этом случае увеличение поверхностной диффузии приводит к увеличению среднего размера 2D островков. Как следствие, возрастает энергия упругой деформации и атомы, находящиеся на краях 2D островков, перемещаются к их вершинам, способствуя зарождению 3D островков.

Из вышеописанных расчетных экспериментов видно, что оба механизма играют роль в стимулированном зарождении 3D островков. Поэтому при совместном включении двух механизмов критическая толщина пленки Ge уменьшилась до 1 БС (рис. 4.2, d), а плотность и размер зародышей 3D островков незначительно увеличивается по сравнению с обычной эпитаксией (рис. 4.3, d, где 3D островки – светлые пятна на 2D темно-серых островках).

Данная модель показала, что генерация адатомов и увеличение диффузионной подвижности адатомов приводит к облегчению $2D \Rightarrow 3D$ перехода в процессе роста. Причем генерация адатомов и поверхностных вакансионных кластеров является основным механизмом воздействия непрерывного ионного облучения, изменяющим кинетику роста островков. В этом случае наблюдалось уменьшение размера островков и увеличение их плотности по сравнению с эпитаксией без ионного облучения, что согласуется с данными экспериментов по гетероэпитаксии Ge/Si(111) из ионно-молекулярных пучков.

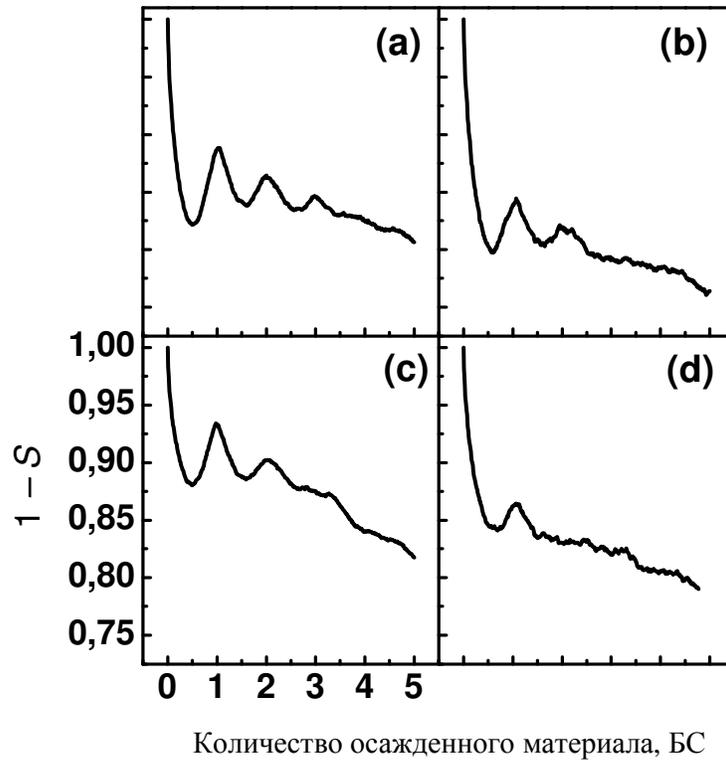


Рис. 4.2. Расчётные осцилляции плотности ступеней (S) в процессе гетероэпитаксии Ge на Si(111) без ионного облучения (a) и с ионным облучением (b), (c), (d).

Представлены механизмы ионного воздействия: (b) – генерация дополнительных адатомов и вакансионных кластеров ионным пучком; (c) – увеличение подвижности адатомов; (d) – генерация дополнительных адатомов ионным пучком и увеличение подвижности адатомов.

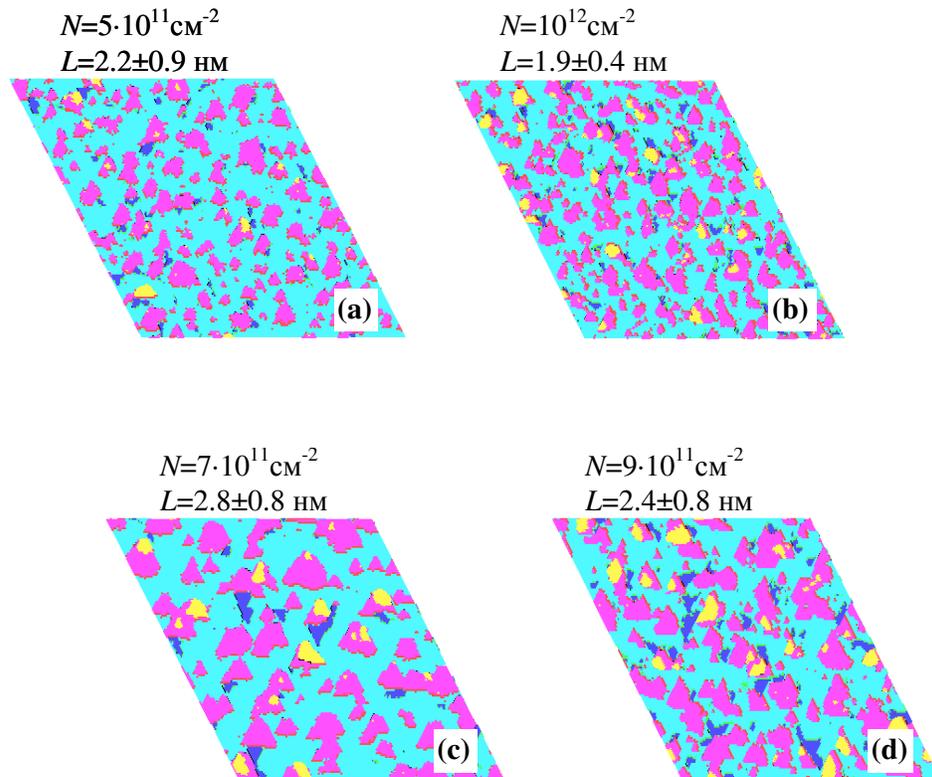


Рис. 4.3. Изображения поверхности гетероструктуры Ge/Si, полученные на основе данных моделирования. Темно-серые пятна соответствуют 2D островкам, белые пятна – 3D островкам. Фрагменты соответствуют: (a) – молекулярно-лучевой эпитаксии без облучения; (b) – МЛЭ с генерацией дополнительных адатомов и вакансионных кластеров ионным пучком; (c) – МЛЭ с увеличенной подвижностью адатомов; (d) – МЛЭ с генерацией дополнительных адатомов ионным пучком и увеличенной подвижностью адатомов. Размер модельной ячейки (52 нм × 52 нм).

§ 4.2. Вторая модель:

ионное воздействие на приповерхностные слои

Известно, что характер распределения деформации вдоль поверхности существенным образом сказывается на зарождении и упорядочении трёхмерных островков в напряжённых гетероструктурах [12, 19, 20, 125]. В частности, неоднородности поверхностной деформации могут служить центрами преимущественного зарождения трёхмерных островков, как это наблюдается в многослойных структурах типа стеков квантовых точек [125]. Теоретическое обоснование этого факта заключается в том, что над областями локального растяжения кристалла увеличивается энергия связи адатома с поверхностью [176, 177]. Ионное облучение может существенно влиять на распределение деформации вдоль поверхности [116], 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 счёт рассогласования решёток Ge и Si, так и дополнительную деформацию, возникающую за счёт *генерации вакансий и междоузельных атомов в приповерхностном слое*. Рассматривалось влияние деформаций на поверхностную диффузию адатомов. Процесс роста моделировали методом Монте-Карло, как последовательность случайных событий осаждения и диффузионных прыжков адатомов.

4.2.1. Основные положения модели

Рассматривается двумерная кристаллическая решётка, а именно, квадратная решётка с ориентацией поверхности (11). Расчётная область представляет собой прямоугольник размером $N_x=500$ атомных слоёв по горизонтали (ось X) и $N_z=50$ атомных слоёв по вертикали

(ось Z). Один атомный слой в нашей модели составляет $\frac{1}{2}$ постоянной решётки в направлениях осей X и Z. Поэтому при пересчёте расстояний из атомных слоёв в нанометры толщина атомного слоя принимается равной $\frac{1}{2}$ постоянной решётки Si матрицы, т. е. 0.27 нм. Граничные условия выбираются периодическими по оси X. При расчёте деформации два нижних атомных слоя считаются закреплёнными.

Решётка не содержит дефектов (за исключением специально введённых междоузельных атомов или вакансий, о которых пойдёт речь ниже), но допускается искажение решётки за счёт упругой деформации. Каждый узел решётки 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 решётке). Координата z соответствует направлению роста.

Координаты узлов решётки (атомов) находятся из условия минимума полной упругой энергии E_{el} . Выражение для этой энергии выбрано по аналогии с работой Китинга [173].

Упругая энергия решётки записывается в виде:

$$E_{el} = \frac{3}{16} \sum_i \sum_j \frac{\alpha_{ij}}{d_{ij}^2} \cdot ((\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)^2 - d_{ij}^2)^2 + \frac{3}{8} \sum_i \sum_{j>k} \frac{\beta_{ijk}}{d_{ij} \cdot d_{ik}} \cdot ((\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_k) - d_{ij} d_{ik} \cos \theta_{ijk})^2, \quad (4.3)$$

где \mathbf{r}_i — радиус-вектор i -го узла, α_{ij} , β_{ijk} и d_{ij} — параметры, зависящие от сорта атомов i, j и k ; индекс i пробегает по всем узлам решётки, а индексы j и k — по ближайшим соседям i -го узла. Параметры α_{ij} и β_{ijk} играют роль силовых констант, а d_{ij} — равновесной длины связи между атомами, θ_{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 слоёв, которые

закреплены в положениях идеальной недеформированной решётки), т. е. энергия E_{el} минимизируется по отношению к координатам всех атомов. Минимизация энергии производится методом сопряжённого градиента [178].

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 $2/(v_{dep} N_x)$, где v_{dep} — скорость осаждения (число атомных слоёв, осаждаемых в единицу времени), N_x — горизонтальный размер модельной ячейки, выраженный в атомных слоях. Место появления нового атома каждый раз выбирается случайным образом. Второй тип события — это прыжок атома из одного узла решётки 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 рассчитывается по формуле (4.1).

В данной модели принято, что энергия активации прыжка E_a на поверхности зависит от числа ближайших соседей атома n_1 , числа его вторых соседей n_2 и компоненты тензора деформации ϵ_{xx} [179]:

$$E_a = E_1 n_1 + E_2 n_2 + \gamma \epsilon_{xx}, \quad (4.4)$$

Величина ϵ_{xx} для заданного атома вычисляется, исходя из положений его ближайших соседей:

$$\epsilon_{xx} = \frac{1}{n_1} \sum_{i=1}^{n_1} \left(\frac{|x_0 - x_i|}{l_i / \sqrt{2}} - 1 \right), \quad (4.5)$$

где индекс i пробегает по ближайшим соседям, x_0 и x_i — x -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 развёрнуты под углом 45° к оси X (см. рис.4.4).

В модели предполагается, что энергия связи атома с поверхностью увеличивается при деформации растяжении ($\epsilon_{xx} > 0$), тогда как при деформации сжатия ($\epsilon_{xx} < 0$) уменьшается. Линейная зависимость энергии связи от величины поверхностной деформации основывается на результатах расчётов *ab initio* [176, 177], значение γ взято равным 3.8 эВ. Вероятность прыжка зависит только от начального состояния (до прыжка) и считается по формуле (4.2).

Каждый диффузионный прыжок в нашей модели выполняется следующим образом. Сначала для всех разрешённых вариантов прыжков вычисляются их вероятности согласно (4.2). 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 решётки, и вычисляются его новые координаты, как было указано выше. Считается, что средний интервал времени от предыдущего до данного прыжка равен $1/\sum v_i$, где $\sum v_i$ — суммарное число прыжков в единицу времени.

Ионное воздействие включено в модель в виде генерации междоузельных атомов и вакансий в Si подложке вблизи с границей раздела Ge/Si. Для упрощения расчёта деформации, вакансии и междоузлия рассматриваются как атомы замещения. Предполагалось, что каждый междоузельный атом соединен четырьмя связями с ближайшими соседями. Эти связи обладают теми же коэффициентами жесткости, что и связи в решётке, но имеют в 1.3 раз большую равновесную длину. Каждый междоузельный атом создаёт над собой область локального растяжения, окруженную областью локального сжатия (рис. 4.4, а). Таким образом, получалось, что Ge пленка над кластерами междоузельных атомов более растянута, чем в областях, где их нет.

Вакансия (отсутствие атома в решётке) приводит к другому характеру искажения кристаллической решётки. Атомы в окружении смещаются по направлению к отсутствующему атому, что приводит к локальному сжатию атомного слоя над вакансией (рис. 4.4 б). Деформационное поле вокруг вакансии аналогично деформационному полю от атома, помещенного на место вакансии и имеющего более короткие связи с соседями, чем обычные связи в решётке (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 объёмов. Под релаксационным объёмом понимается изменение объёма кристалла при введении в него вакансии или междоузельного атома. В данной работе релаксационный объём для междоузельного атома был выбран равным 0.9Ω [124, 180], для вакансии -0.97Ω [180], где Ω есть объём, приходящийся на один атом в равновесной кристаллической решётке Si.

В модели была 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 (рис. 4.4), которые согласно уравнению (4.4) 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 вакансия становится ямкой, а междоузельный атом – адатомом.

Основными параметрами процесса роста тонких плёнок при молекулярно-лучевой эпитаксии являются температура подложки и скорость осаждения материала. Скорость осаждения Ge 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 300 до 400 °С. Был проведен подбор значений энергий

связей с первыми и вторыми соседями E_1 и E_2 . На рисунке 4.5 показаны изменения морфологии поверхности в зависимости от значения E_2 при $E_1 = 0.5$ эВ. Светлые символы соответствуют атомам кремния, тёмные – атомам германия. Из рисунка видно, что при выборе параметра E_2 меньше чем 0.25 эВ наблюдается перемешивание атомов Ge и Si, увеличение плотности островков. Смещение значения энергии связи в большую сторону от 0.25 эВ приводит к шероховатой поверхности и росту сплошного слоя Ge. Варьирование энергии E_1 слабее влияет на морфологию поверхности по сравнению с 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 [159, 162].

Исходная поверхность представляла собой 1 монослой Ge на Si подложке с параметром несовпадения решёток 4%. Междоузельные атомы или вакансии располагались в Si 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 (смотри главу 3, § 3.2 [158, 160]), в которых ионный импульс подавался при завершении роста атомного слоя Ge. Количество дефектов, создаваемых ионным облучением, и их удалённость от поверхности выбирались в соответствии с данными расчётов методом молекулярной динамики [22, 23].

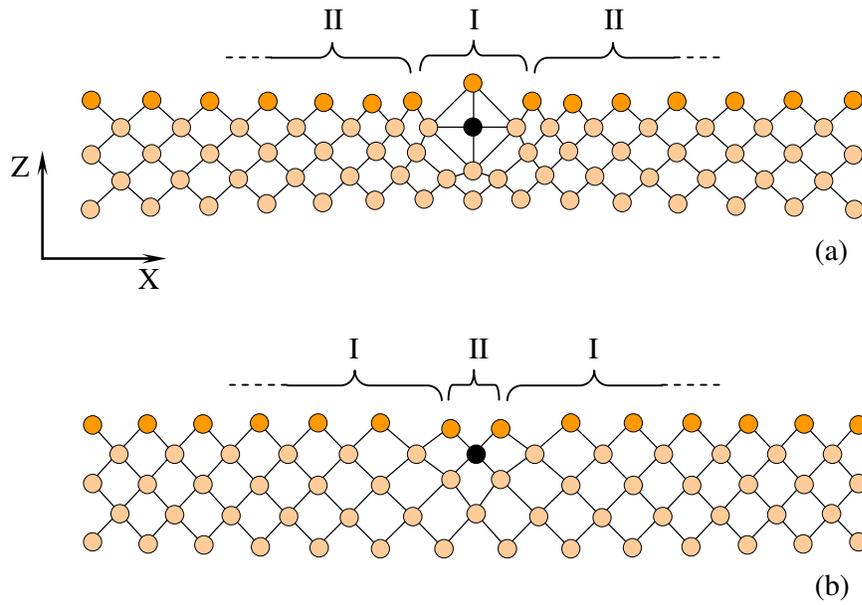


Рис. 4.4. Схематическое представление искажения кристаллической решетки, индуцированного междуузельным атомом (a) и вакансией (b) в приповерхностной области. Цифрой I обозначена область растяжения по оси X, цифрой II – область сжатия.

Светлые символы соответствуют атомам Si, тёмные атомам Ge, чёрные – вакансиям и междуузельным атомам.

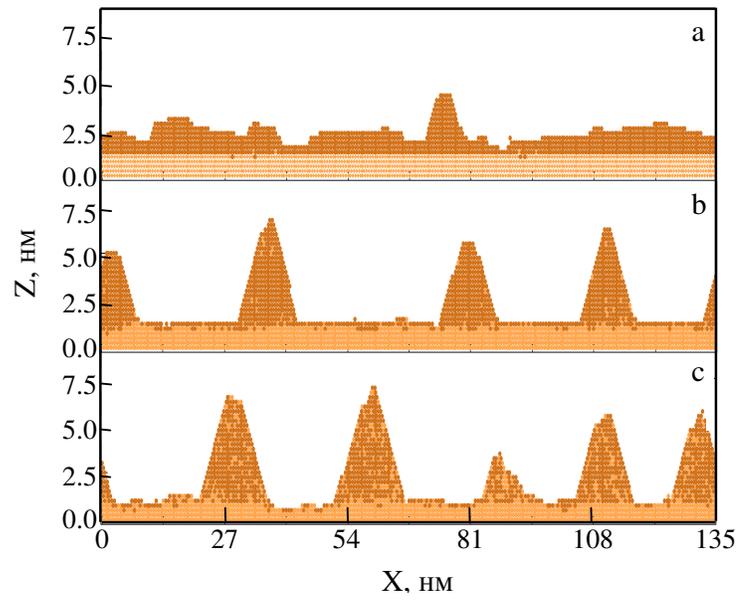


Рис. 4.5. Изменение морфологии поверхности при варьировании параметра E_2 : (a) $E_2=0.30$ эВ, (b) $E_2=0.25$ эВ, (c) $E_2=0.20$ эВ. Значение $E_1=0.5$ эВ, температура роста 350 °С.

4.2.2. Основные результаты

На рисунке 4.6 показаны изображения трёхмерных островков и соответствующие им распределения по размерам, полученные на основе модельного расчёта для следующих случаев: 1) обычная гетероэпитаксия из молекулярного пучка; 2) гетероэпитаксия с введением только кластеров междоузельных атомов, 3) гетероэпитаксия с генерацией вакансионных кластеров. Количество осажденного Ge для всех случаев составляет 5 МС, температура подложки $T=350^{\circ}\text{C}$, что соответствует экспериментальным условиям, при которых эффект импульсного ионного воздействия на кинетику роста островков был наиболее ярко выражен. В приведённых выше примерах размер кластеров был равен 9 атомам, их исходная удалённость от поверхности составляла 5 МС, на расчётную область приходилось 15 кластеров.

Из рисунка хорошо видно, что оба типа кластеров являются центрами зарождения трёхмерных островков, что способствует увеличению их плотности и уменьшению среднего размера. Однако при прочих равных условиях кластеры междоузельных атомов оказывают более сильное влияние на кинетику роста островков, чем вакансионные кластеры. Согласно данным моделирования для обычной гетероэпитаксии, плотность трёхмерных островков составляет $0.87 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, средний размер 14.3 нм, среднеквадратичное отклонение (разброс по размерам) $\sigma = 1.3 \text{ нм}$ (рис.4.6 а, б). Отметим, что плотность островков определялась из среднего расстояния d между островками по следующей формуле: $N=d^{-2}$. Для эпитаксии в присутствии кластеров междоузельных атомов (рис.4.6 д, е) плотность островков увеличивалась до $N=1.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$, а средний размер и разброс по размерам уменьшались до $L=7.9$ и $\sigma = 0.8 \text{ нм}$. В случае вакансионных кластеров (рис. 4.6 в, г) плотность, средний размер островков и разброс по размерам составили: $N = 1.9 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, $L = 12.9 \text{ нм}$ и $\sigma = 2.9 \text{ нм}$. Указанные значения оказались близки по величине к значениям, полученным в случае

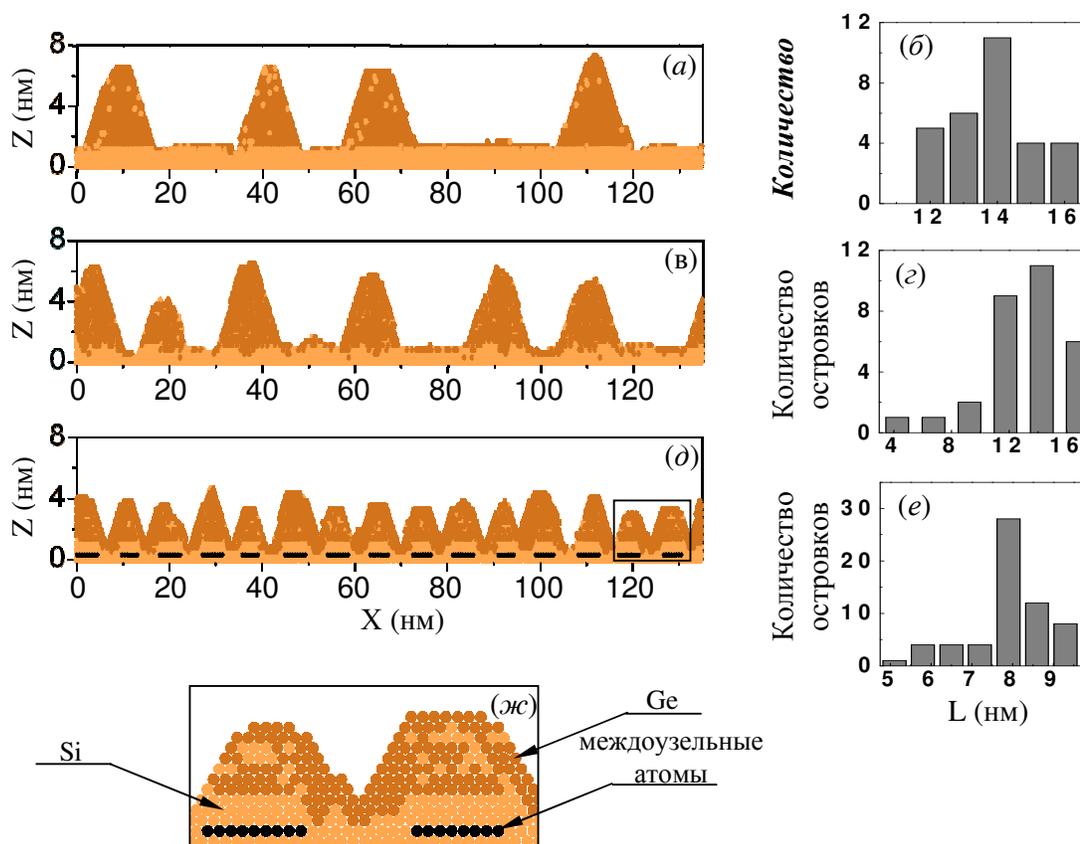


Рис. 4.6. Расчётная морфология поверхности и распределение островков по размерам, полученные после моделирования осаждения 5 МС Ge при $T=350\text{ }^{\circ}\text{C}$ для следующих случаев: (а), (б) – обычная МЛЭ; (в), (г) – МЛЭ с введением вакансионных кластеров (15 кластеров по 9 вакансий на глубине 5 МС); (д), (е) – МЛЭ с генерацией кластеров междоузельных атомов (15 кластеров по 9 междоузельных атомов на глубине 5 МС); (ж) – фрагмент расчётной структуры для МЛЭ с кластерами междоузельных атомов. Светлые символы соответствуют атомам Si, тёмные атомам Ge, чёрные – вакансиям и междоузельным атомам. Средний размер островков (L) и разброс по размерам составляют: (в) 14.3 ± 1.3 нм, (г) 12.9 ± 2.9 нм, (е) 7.9 ± 0.8 нм.

обычной гетероэпитаксии, за исключением разброса островков по размерам, который в присутствии вакансионных кластеров оказался почти в два раза больше.

Было установлено, что эффект увеличения плотности трёхмерных 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.4.7, кривая 1) эффект возрастания N наблюдается только если плотность вводимых кластеров (C) 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 падать, 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 кластера. С уменьшением глубины залегания до 3 МС, максимум достигается при более низкой концентрации кластеров междоузельных атомов $C = 1.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ (рис.4.7, 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.4.7, кривая 4). Так, например, для кластеров, состоящих из 9 вакансий, при глубине их залегания 5 МС, плотность островков на порядок меньше, чем в аналогичном случае для кластеров междоузельных атомов (рис.4.7, кривая 1).

Для проведения количественного сопоставления модельного расчёта с экспериментом мы сделали упрощающее допущение, что каждый ион при столкновении с поверхностью формирует в среднем один кластер точечных дефектов. В этом случае плотность кластеров C , закладываемая в расчёт, будет совпадать с интегральным потоком ионов J , измеряемым в эксперименте. В рамках данного допущения результаты моделирования для случая междоузельных кластеров, содержащих 9 атомов, расположенных на глубине 3 МС (рис.4.7,

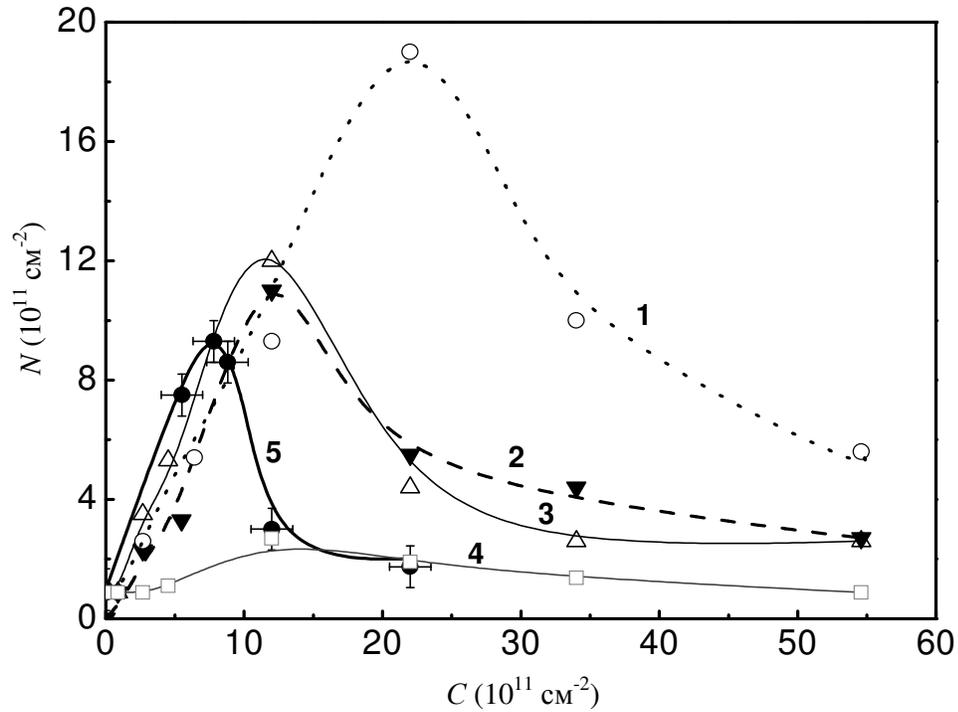


Рис. 4.7. Расчётные зависимости плотности трёхмерных островков N от количества ведённых ионным пучком кластеров C . МЛЭ с кластерами междоузельных атомов: (1) размер кластера составляет 9 междоузельных атомов, удалённость от исходной поверхности (глубина залегания) 5 МС; (2) размер кластера 9 междоузельных 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 ионов J , полученная из данных, приведённых на рис.3 (более детальная информация присутствует в тексте статьи). Эффективная толщина осаждённого слоя Ge 5 МС, скорость осаждения 0.1 МС/с, температура поверхности 350 °С.

кривая 2), в наибольшей степени согласуются с экспериментальной зависимостью (рис.4.7, кривая 5).

Моделирование в области температур от 300 до 400 °С 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 (смотри главу 3, п. 3.2.2).

На рисунке 4.8 показана температурная зависимость эффекта возрастания плотности островков в результате импульсного ионного воздействия. Из рисунка хорошо видно, что так же, как в эксперименте (рис. 4.8, 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. 4.8, кривая 1), чем при гетероэпитаксии с введением вакансионных кластеров (рис. 4.8, кривая 3).

На рисунке 4.9 показана расчётная зависимость среднего размера островков L и разброса по размерам σ от количества введённых ионным пучком кластеров междоузельных атомов. Температура поверхности составляет 350 °С, размер кластера – 9 атомов, глубина залегания – 5 МС. Из рисунка 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 ведёт себя схожим образом. В отсутствии ионного облучения ($C=0$) модельный расчёт даёт $\sigma = 1.3$ нм. По мере увеличения концентрации кластеров, вводимых ионным пучком, σ уменьшается и достигает 0.6 нм при $C \approx 0.5 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$, а затем начинает возрастать. При $C \approx 2.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ разброс составляет ± 2 нм, что превосходит σ в условиях обычной эпитаксии без ионного облучения. Из приведённой выше зависимости следует, что улучшения однородности по размерам в результате импульсного ионного воздействия можно ожидать только при концентрациях кластеров междоузельных атомов $< 2.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$.

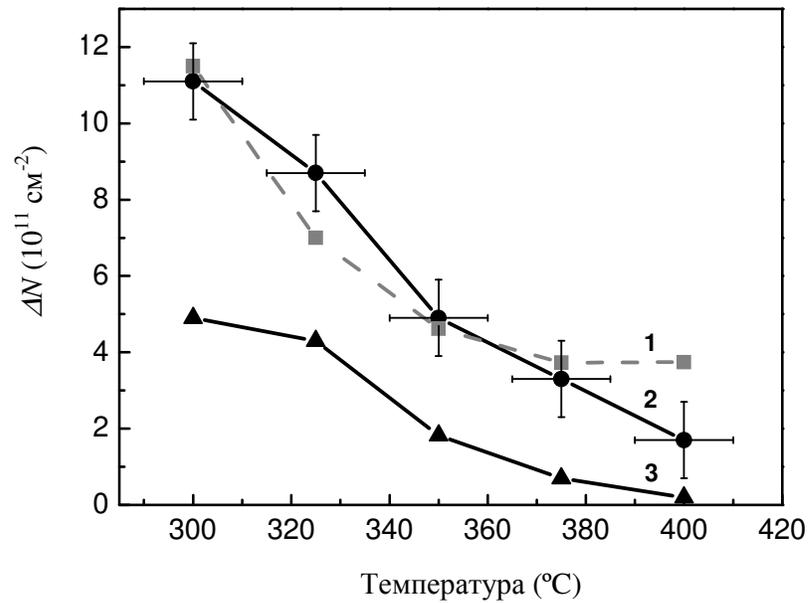


Рис. 4.8. Температурные зависимости изменения плотности островков в результате импульсного ионного воздействия. ΔN – разность между значениями плотности островков, полученных в процессе гетероэпитаксии с импульсным ионным воздействием и гетероэпитаксии без ионного облучения. 1 – расчётная зависимость для гетероэпитаксии с кластерами междоузельных атомов; 2 – экспериментальная зависимость; 3 – расчётная зависимость для гетероэпитаксии с вакансионными кластерами.

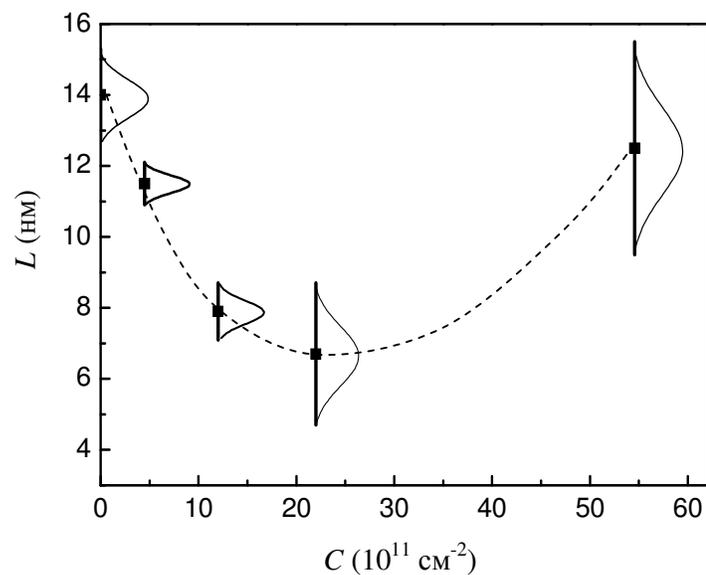


Рис. 4.9. Зависимость среднего размера L островков и их разброса по размерам σ от количества введённых кластеров междоузельных атомов C . Размер кластера составляет 9 междоузельных атомов, глубина залегания – 5 МС. Температура поверхности – 350 °С. Вертикальные отрезки на рисунке соответствует удвоенным значениям среднеквадратичных отклонений от средних размеров островков (2σ).

§ 4.3. Сопоставление результатов моделирования и эксперимента

4.3.1. Сравнение двух моделей

В таблице 4.1 приведены результаты моделирования (§4.1, §4.2) и эксперимента (глава 3) для одинаковой температуры роста 350°C. Из таблицы видно, что обе модели качественно воспроизводят наблюдаемые эффекты ионного воздействия в эксперименте. В частности, средние размеры островков уменьшаются в 2 – 4 раза, их плотность возрастает в 4 – 10 раз. Таким образом, как воздействие ионами на поверхность, так и на приповерхностный объём растущего слоя может обеспечить наблюдаемые изменения морфологии.

Однако из сопоставления данных моделирования становится ясно, что механизм ионного воздействия на приповерхностные слои в несколько раз сильнее изменяет морфологию. Отсюда можно сделать вывод, что основной причиной увеличения плотности островков и уменьшения их размеров является внедрение междоузельных атомов или вакансий на глубину в несколько монослоев, как предполагалось во второй модели. Дело в том, что морфологические нарушения поверхности, вводимые (в первой модели) за время действия ионов, практически сразу залечиваются после прекращения действия ионного облучения, слабо меняя поверхностную плотность островков. Поэтому в дальнейшем основное внимание мы будем уделять результатам, полученным во второй модели.

4.3.2. Зависимость плотности островков от интегрального потока ионов;

импульсное и непрерывное облучение

Обсудим немонотонную зависимость плотности островков от величины ионного потока. Было установлено, что в области малых интегральных потоков облучения ($J < 10^{12} \text{ см}^{-2}$) плотность Ge островков N практически линейно зависит от J (рис.4.7, кривая 5), причем коэффициент пропорциональности между N и J близок к единице. Это свидетельствует в пользу того, что каждый центр зарождения, созданный ударом иона,

Таблица 4.1. Сопоставление результатов моделирования и эксперимента

Условия роста		Интегральный поток облучения, см^{-2}	L , нм	N , см^{-2}	σ , нм
Эксперимент (Ge/Si(111))	Молекулярно-лучевая эпитаксия	0	63	$7.3 \cdot 10^9$	± 9
	МЛЭ с непрерывным ионным облучением	$2 \cdot 10^{13}$	35	$2.5 \cdot 10^{10}$	± 5
	МЛЭ с импульсным ионным облучением	$2 \cdot 10^{12}$	43	$1.2 \cdot 10^{10}$	± 4
Эксперимент (Ge/Si(100))	Молекулярно-лучевая эпитаксия	0	22	$1 \cdot 10^{11}$	± 3.5
	МЛЭ с непрерывным ионным облучением	$2 \cdot 10^{13}$	18	$2 \cdot 10^{11}$	± 5.4
	МЛЭ с импульсным ионным облучением	$7.8 \cdot 10^{11}$	6.5	$6.8 \cdot 10^{11}$	± 0.7
Первая модель	Молекулярно-лучевая эпитаксия	0	2.2	$5 \cdot 10^{11}$	± 0.9
	МЛЭ с непрерывным ионным облучением	$3 \cdot 10^{13}$	1.9	$1 \cdot 10^{12}$	± 0.4
	МЛЭ с импульсным ионным облучением	10^{12}	-	$5 \cdot 10^{11}$	-
Вторая модель	Молекулярно-лучевая эпитаксия	0	14.3	$0.87 \cdot 10^{11}$	± 1.3
	МЛЭ с импульсным ионным облучением	$2 \cdot 10^{12}$	7	$6.7 \cdot 10^{11}$	± 2.0
		$7.8 \cdot 10^{11}$	7.9	$1 \cdot 10^{12}$	± 0.8
		$5.5 \cdot 10^{12}$	12.5	$2.5 \cdot 10^{11}$	± 3.0

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 ($J > 10^{12} \text{см}^{-2}$) плотность Ge островков не увеличивается, а напротив, уменьшается с увеличением J (рис. 4.7, 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 объём кристалла, создают на его поверхности как области локального растяжения, так и сжатия. В областях сжатия энергия связи атома с поверхностью уменьшается (см. уравнение (4.3)), и материал начинает эффективно уходить из этих областей. Это приводит к выходу кластера междоузлий (вакансий) на поверхность и его дальнейшей аннигиляции. При увеличении концентрации вводимых центров их деформационные поля перекрываются, и это приводит к увеличению вероятности их выхода на поверхность. Таким образом, после некоторого значения интегрального ионного потока происходит эффективная аннигиляция центров зарождения, приводящая к падению плотности островков (рис.4.7).

Импульсный режим ионного облучения отличается от непрерывного, во-первых, на порядок меньшим интегральным потоком облучения и, во-вторых, тем, что воздействие производится кратковременно (длительность облучения ~ 0.5 с) на определенной фазе роста – на стадии завершения очередного атомного слоя.

Поэтому всё сказанное выше о зависимости плотности островков от интегрального потока можно применить и к сравнению импульсного и непрерывного воздействия. Т.е. меньшая плотность островков в режиме непрерывного облучения (по сравнению с импульсным режимом) может быть связана с эффективной аннигиляцией центров зарождения. Отметим, что в первой модели, наоборот, импульсное облучение практически не дает эффекта из-за малого времени жизни центров зарождения, находящихся непосредственно на поверхности.

Вторая особенность импульсного режима – облучение на определенных стадиях двумерно-слоевого роста – может быть ответственна за сужение распределения островков по размерам. Это явление, по-видимому, связано с синхронизацией зарождения островков [76] импульсным ионным облучением. Малая длительность ионного воздействия (~ 0.5 с) по сравнению с типичным временем осаждения одного монослоя Ge (~ 10 с) способствует одномоментному зарождению трёхмерных островков, что приводит к сужению распределения островков по размеру. Тогда как в условиях непрерывного ионного облучения синхронизации зарождения островков не происходит, и разброс по размерам увеличивается по сравнению со случаем эпитаксии без ионного облучения (см. главу 3, п. 3.2.2 [160]). Импульсное ионное облучение приводит к сужению распределения по размерам не для всех величин интегрального ионного потока, а только в области $J < 10^{12}$ см⁻². Результаты расчётов показывают, что увеличение количества введённых кластеров выше критического может привести к ухудшению однородности по размерам (рис. 4.9). 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. Для одних участков 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 введённых кластеров.

4.3.3. Ионно-стимулированный рост на поверхностях (100) и (111)

Возрастание поверхностной плотности трёхмерных островков и уменьшение их среднего размера в ростовых экспериментах с импульсным ионным воздействием в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100) свидетельствует о том, что ионный импульс создаёт 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. Проведённые нами эксперименты (см. главу 3) для поверхности с ориентацией (111) показали, что изменение плотности трёхмерных Ge островков 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 2 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 объём кристалла [23] 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 [44].

В случае поверхности (100) меньшая плотность упаковки в сравнении с (111), при прочих равных условиях, облегчает проникновение налетающих ионов вглубь растущего кристалла, что способствует формированию структурных нарушений в его приповерхностном объёме. Таким образом, центрами зарождения здесь могут служить скопления междоузельных атомов и вакансий, сформированных при внедрении ионов в приповерхностный объём 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 расчёт кластеров междоузельных атомов и объёмных вакансий приводит к заметному возрастанию поверхностной плотности островков до величин, сопоставимых с экспериментом (кривая 2 на рис. 4.7).

4.3.4. Сравнение вкладов междоузельных атомов и вакансий

Анализируя результаты расчётов 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 (рис. 4.4). 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 (рис. 4.6 с). Полученный результат согласуется с данными работы [181], 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 объёме облучаемого кристалла.

Очевидно, что с увеличением температуры поверхности вероятность аннигиляции кластеров обоих типов будет возрастать, приводя к уменьшению их концентрации. Именно поэтому эффект ионного воздействия на плотность островков ослабевает в области высоких температур $> 350\text{ }^{\circ}\text{C}$ (рис. 4.8).

Заключение по главе 4

Предложены две модели ионно-стимулированного роста Ge на Si. Первая модель рассматривает ионное облучение как фактор, модифицирующий поверхность растущей плёнки. Во второй модели учитываются структурные изменения в объёме растущего слоя в результате генерации междоузельных атомов и/или вакансий (на глубине 2-5 монослоев).

На основании данных моделирования в сопоставлении с экспериментом выяснено, что основной причиной изменения морфологии пленки (увеличение поверхностной плотности островков и уменьшение их размеров) под действием импульсного ионного облучения является генерация междоузельных атомов. Показано, что кластеры междоузельных атомов могут служить центрами зарождения трехмерных островков. Над междоузельными атомами образуются области локального растяжения поверхности, где энергия связи атомов возрастает, что и приводит к увеличению вероятности зарождения 3D островков.

Моделирование показало, что вакансии, в отличие от междоузельных атомов, выходят на поверхность растущего слоя и аннигилируют там, практически не влияя на зарождение и рост островков. Установлено, что ионно-стимулированное зарождение 3D островков за счёт введения кластеров междоузельных атомов приводит к уменьшению критической толщины пленки германия, при которой происходит переход от двумерно-слоевого к трехмерному росту островков, уменьшению среднего размера островков и способствует сужению их распределения по размерам.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

1. Предложен метод зарождения однородного массива нанокристаллов Ge на Si с помощью импульсного воздействия в определённые моменты времени (по степени заполнения атомного слоя) собственными низкоэнергетическими (~100 эВ) ионами Ge⁺ при осаждении из молекулярных пучков.

2. Методом сканирующей туннельной микроскопии в сочетании с дифракцией быстрых электронов обнаружено, что ионное облучение поверхности при эпитаксии Ge на Si (100) и (111) приводит к уменьшению критической толщины плёнки Ge на 1-2 атомных слоя, при которой происходит переход от двумерно-слоевого к трёхмерному росту.

3. Экспериментальные исследования зарождения и роста трёхмерных островков при гетероэпитаксии Ge на Si из молекулярных пучков в условиях импульсного облучения низкоэнергетическими ионами Ge⁺ показали, что при определённых значениях интегрального потока ионов ($\leq 10^{12}$ см⁻²) и энергии ионов (100 – 150 эВ), температуры подложки (250 – 400°C) происходит:

- уменьшение среднего размера островков Ge ≤ 10 нм,
- увеличение плотности островков Ge $\geq 10^{12}$ см⁻²,
- уменьшение дисперсии по размеру до 10%.

4. Обнаружено, что импульсное ионное облучение растущей поверхности в области температур 250 - 350°C вызывает изменение огранки трёхмерных островков (переход от *hut*-к *dome*-островкам) при меньших эффективных толщинах осаждённого материала, по сравнению с МЛЭ без ионного облучения.

5. Найдены условия, при которых импульсное ионное облучение, используемое при осаждении Ge, не приводит к формированию протяженных дефектов. По данным метода резерфордского обратного рассеяния, наиболее совершенные кристаллические структуры с нанокластерами Ge_xSi_{1-x} были получены в режиме импульсного облучения с эффективным

числом осажденных слоев Ge ≤ 5 при температуре 350°C, энергии ионов в диапазоне 100 – 150 эВ. Содержание Ge в нанокластерах составляет около 75% (по данным комбинационного рассеяния света).

6. Предложена модель ионно-стимулированного роста nanoостровков Ge на поверхности Si, включающая в себя: осаждение из молекулярного пучка; поверхностную диффузию адатомов; генерацию междоузельных атомов и вакансий ионным пучком в приповерхностном объеме растущего слоя. Предполагалось, что поверхностная деформация изменяет энергию связи адатома с поверхностью. В модели учитывалась как деформация, возникающая за счет рассогласования решеток Ge и Si, так и дополнительная деформация, обусловленная генерацией вакансий и междоузельных атомов в приповерхностном слое.

Расчёт на основе предложенной модели показал, что в местах столкновения ионов с поверхностью формируются центры преимущественного зарождения трёхмерных островков. Такими центрами служат области локального растяжения, возникающие над кластерами междоузельных атомов или вакансий введенных ионным воздействием.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Работа проводилась в ИФП СО РАН в лаборатории неравновесных полупроводниковых систем под руководством зав. лаб. д. ф.-м. н., проф. А. В. Двуреченского. Содержание диссертации отражено в 9 публикациях:

1. Двуреченский А. В., Зиновьев В. А., Кудрявцев В. А., Смагина Ж. В. *Эффекты низкоэнергетического ионного воздействия при гетероэпитаксии Ge/Si из молекулярных пучков.* – Письма в ЖЭТФ, 2000, т. 72, вып. 3, с. 190-194.
2. Двуреченский А. В., Зиновьев В. А., Смагина Ж. В. *Эффекты самоорганизации ансамбля nanoостровков Ge при импульсном облучении низкоэнергетическими ионами в процессе гетероэпитаксии на Si.* – Письма в ЖЭТФ, 2001, т. 74, вып. 5, с. 296-299.
3. Dvurechenskii A. V., Zinovyev V. A., Kudryavtsev V. A., Smagina J. V., Novikov P. L., and Teys S. A. *Ion-Beam Assisted Surface Islanding During Ge MBE on Si.* – Phys. Low-Dim. Struct., 2002, 1/2, p. 303-314.
4. Двуреченский А. В., Смагина Ж. В., Зиновьев В. А., Армбристер В. А., Володин В. А., Ефремов М. Д. *Элементный состав нанокластеров, формируемых импульсным облучением низкоэнергетическими ионами в процессе эпитаксии Ge/Si.* – Письма в ЖЭТФ, 2004, т. 79, вып. 7, с. 411-415.
5. Dvurechenskii A. V., Smagina J. V., Zinovyev V. A., Teys S. A., Gutakovskii A. K., Groetzschel R. *Modification of Growth Mode of Ge on Si by Pulsed Low-Energy Ion-Beam Irradiation.* – Intern. J. Nanoscience, 2004, v. 3, N 1&2, p. 19-27.
6. Dvurechenskii A. V., Smagina J. V., Armbrister V. A., Zinovyev V. A., Novikov P. L., Teys S. A., Groetzschel R. *Ge/Si nanostructures with quantum dots grown by ion-beam-assisted heteroepitaxy.* – In: Quantum Dots: Fundamentals, Applications and Frontiers, ed. B. Joyce, P.

- Kelires, A. Naumovets, and D. Vvedensky, Kluwer Academic Publishers, Netherlands, 2005, p. 135-144.
7. Dvurechenskii A. V., Smagina J. V, Groetzschel R., Zinoviev V. A., Armbrister V. A., Novikov P. L., Teys S. A., Gutakovskii A. K. *Ge/Si quantum dot nanostructures grown with low-energy ion beam-epitaxy*. – Surface & Coating Technology, 2005, v.196, No. 1-3, p. 25-29.
 8. Эренбург С. Б., Бауск Н. В., Двуреченский А. В., Смагина Ж. В., Ненашев А. В., Никифоров А. И., Мансуров В. Г., Журавлев К. С., Торопов А. И. *Применение XAFS-спектроскопии для исследования микроструктуры и электронного строения квантовых точек*. – Поверхность: Рентгеновские, Синхронные и Нейтронные Исследования, 2007, № 1, с. 31-40.
 9. Смагина Ж. В., Зиновьев В. А., Ненашев А. В., Двуреченский А. В. Армбристер В. А., Тийс С. А. *Самоорганизация Ge наностроек при импульсном облучении пучком низкоэнергетических ионов в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100)*. – ЖЭТФ, 2008, т. 133, вып. 3, с. 593.

Результаты, полученные в данной работе, докладывались и обсуждались на: 3-ей Международной конференции по Физике Низкоразмерных Структур (3rd Conference on Physics of Low- Dimensional Structures, Chernogolovka, October, 2001), V Российской конференции по физике полупроводников (Нижний Новгород, сентябрь, 2001), 25-ой Международной конференции по физике полупроводников (25th International Conference on the Physics of Semiconductors, Osaka, Japan, September, 2000), 2-м российско-украинском семинаре ("Нанопизика и наноэлектроника", Киев, 2000), «Кремний-2002» (Новосибирск), 15-й Международной конференции по ионно-лучевым аналитическим методам (15th International Conference on Ion Beam Analysis, Cairns, Australia, 2001), 5-м Международном Уральском Семинаре по Радиационной Физике Металлов и Сплавов (Снежинск, 2003), 27-ой Международной конференции по физике полупроводников (27 th International Conference on

the Physics of Semiconductors, Flagstaff, Arizona, USA, July, 2004), Кремний – 2004 (Иркутск), VII всероссийском семинаре «Физические и физико-химические основы ионной имплантации» (Нижний Новгород, октябрь, 2004), VI Международном Уральском Семинаре по Радиационной физике металлов и сплавов (Снежинск, 2005), Международной конференции по взаимодействию ионов с поверхностью ВИП-2005 (Звенигород, август), V Национальной конференции по применению Рентгеновского, Синхротронного излучений, Нейтронов и Электронов для исследования наноматериалов и наносистем (Москва, 2005), VII Всероссийской конференции "Физикохимия ультрадисперсных (нано) систем" (Звенигород, 2005), Международной конференции по Микро- и нанoeлектронике (International Conference "Micro- and nanoelectronics 2005", October, Zvenigorod), 14-й Международной конференции «Наноструктуры: физика и технология» (14th international symposium "Nanostructures: physics and technology", June, St Petersburg, 2006), 15-м Международном симпозиуме «Наноструктуры: физика и технология» (15th Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology", Novosibirsk, June, 2007), 5-ой Международной конференции по кремниевой эпитаксии и гетероструктурам (5th International Conference on Silicon Epitaxy and Heterostructures, Marseille, 2007), Международной конференции «Микро- и нанoeлектроника – 2007, Zvenigorod, October, 2007), VIII Российской конференции по физике полупроводников (Екатеринбург, 2007).

Работа выполнялась в рамках проектов: РФФИ №99-02-17196, №02-02-16020, № 06-02-08077, INTAS №2001-0615, федеральной НТП (контракт 40.012.1.1.1153) и программы «Поверхностные атомные структуры», проект № 4.2.99.

В заключение автор считает своим долгом выразить искреннюю благодарность научному руководителю д. ф.-м. н, профессору А. В. Двуреченскому за руководство и постоянную помощь в работе.

Автор признателен к. ф.-м. н. В.А. Зиновьеву за всестороннюю помощь в работе и полезное и конструктивное обсуждение основных результатов проводимых исследований; к. ф.-м. н. А.В. Ненашеву — за помощь в проведении численных экспериментов и участие в подготовке диссертационной работы; В.А. Кудрявцеву и В.А. Армбристеру — за помощь в проведении экспериментальных работ, к. ф.-м. н. С.А. Тийсу — за получение СТМ-изображений изучаемых структур, д. ф.-м. н. А.К. Гутаковскому, к. ф.-м. н. Н.П. Стёпиной, к. ф.-м. н. В.А. Володину, к. ф.-м. н. С.Б. Эренбургу (Институт неорганической химии СО РАН) и д-ру Р. Грёцшелю (исследовательский центр Россендорф, Германия) — за характеризацию образцов методами ПЭМ, ФЛ, КРС, EXAFS и POP.

Автор благодарен к. ф.-м. н. Л.В. Соколову за интерес к работе и полезное обсуждение ряда вопросов, связанных с экспериментальными методиками.

Автор выражает благодарность всем сотрудникам лаборатории неравновесных полупроводниковых систем за участие в обсуждении результатов работы и создание творческой атмосферы при решении поставленных задач.

ЛИТЕРАТУРА

1. Алферов Ж. И. *История и будущее полупроводниковых гетероструктур*. – ФТП, 1998, т.32, вып. 1, с. 3-17.
2. Zhuang L., Guo L., Chou S. Y., *Silicon single-electron quantum dot transistor switch operating at room temperature*. – Appl. Phys. Lett., 1998, v. 72, № 10, p. 1205-1207.
3. Dilger M., Haug R. J., Eberl K., von Klitzing K. *Single-electron transistors with a self-assembled quantum dot*. – Semicond. Sci. Technol., 1996, v. 11, p. 1493-1497.
4. Tiwari S., Rana F., Hanafi H., Harstein A., Crabbe E. F., Chan K. *A silicon nanocrystals based memory*. – Appl. Phys. Lett., 1996, v. 68, №10, p. 1377-1379.
5. Guo L., Leobandung E., Chou S. Y. *A room-temperature silicon single-electron metal-oxide-semiconductor memory with nanoscale floating-gate and ultranarrow channel*. – Appl. Phys. Lett., 1997, v. 70, № 7, p. 850-852.
6. Vescan L., Stoica T. *Room-temperature SiGe light-emitting diodes*. – Journal of Luminescence, 1999, v.80, p. 485-489.
7. Леденцов Н. Н., Устинов В. М., Щукин В. А., Копьев П. С., Алферов Ж. И., Бимберг Д. *Гетероструктуры с квантовыми точками: получение, свойства, лазеры*. – ФТП, 1998, 32, вып. 4, с. 385-410.
8. Miesner C., Röthig O., Brunner K., Abstreiter G. *Mid-infrared photocurrent measurements on self-assembled Ge dots in Si*. – Physica E, 2000, v. 7, p. 146-150
9. Liu H. C. Gao M., McCaffrey J., Wasilevski Z. R., Fafard S. *Quantum dot infrared photodetectors*. – Appl. Phys. Lett., 2001, v. 78, №1, p. 79-81.
10. Loss D., DiVincenzo D. P. *Quantum computation with quantum dots*. – Phys. Rev. A, 1998, v. 57, № 1, p. 120-126.
11. King Y. C., King T. J., and Hu C. *Charge-trap memory device fabricated by oxidation of $Si_{1-x}Ge_x$* . – IEEE Trans. Electron Devices, 2001, v. 48, p. 696.

12. Пчеляков О. П., Болховитянов Ю. Б., Двуреченский А. В., Никифоров А. И., Якимов А. И., Фойхтлендер Б. *Кремний-германиевые наноструктуры с квантовыми точками: механизмы образования и электрические свойства.* – ФТП, 2000, т. 34, вып. 11, с. 1281-1299.
13. Якимов А. И., Двуреченский А. В., Степина Н. П., Никифоров А. И., Ненашев А. В. *Эффекты электрон-электронного взаимодействия в оптических свойствах точек Ge/Si.* – ЖЭТФ, 2001, т.119, вып. 3, с. 574 – 589.
14. Peng C. S., Huang Q., Cheng W. Q., Zhou J. M., Zhang Y. H., Sheng T. T., Tung C. H. *Improvement of Ge self-organized quantum dots by use of Sb surfactant.* – Appl. Phys. Lett., 1998, v. 72, № 20, p. 2541-2543.
15. Shklyayev A. A., Shibata M., Ichikawa M. *High-density ultrasml epitaxial Ge islands on S(111) surfaces with a SiO₂ coverage.* – Phys. Rev. B, 2000, v. 62, №3, p. 1540 - 1543.
16. Barski A., Derivaz M., Rouvière J. L., and Buttard D. *Epitaxial growth of germanium dots on Si(001) surface covered by a very thin silicon oxide layer.* – Appl. Phys. Lett., 2000, v. 77, №22, p. 3541 – 3543.
17. Никифоров А. И., Ульянов В. В., Пчеляков О. П., Тийс С. А., Гутаковский А. К. *Рост и структура nanoостровков Ge на атомарно-чистой поверхности окиси Si.* – ФТТ, 2004, т.46, № 1, с. 80-82.
18. Востоков Н. В., Дроздов Ю. Н., Красильник З. Ф., Лобанов Д. Н., Новиков А. В., Яблонский А. Н., Stoffel M., Denker U., Schmidt O. G., Горбенко О. М., Сошников И. П. *Влияние предосаждения Si_{1-x}Ge_x слоя на рост SiGe/Si(001) самоформирующихся островков.* – ФТТ, 2005, том. 47, вып. 1, с. 29-32.
19. Zhu J., Brunner K., Abstreiter G. *Two-dimensional ordering of self-assembled Ge islands on vicinal Si(001) surfaces with regular ripples.* – Appl. Phys. Lett., 1998, v. 73, № 5, p.620-622.
20. Stangl J., Holy V., Bauer G. *Structural properties of self-organized semiconductor nanostructures.* – Reviews of Modern Physics, 2004, v. 76, p. 725-783.

21. Yakimov A. I., Dvurechenskii A. V., Volodin V. A., Efremov M. D., Nikiforov A. I., Mikhalyov G. Yu., Gatskevich E. I., and Ivlev G. D. *Effect of pulsed laser action on hole-energy spectrum of Ge/Si self-assembled quantum dots.* – Phys. Rev. B, 2005, v.72, p. 115318.
22. Heinig K.-H., Stock D., Boettger H., Zinovyev V. A., Dvurechenskii A. V., Aleksandrov L. N. *Formation of double-height Si(100) steps by sputtering with Xe ions – a computer simulation.* – Proceeding of MRS Symposium, Materials Research Society, Pittsburgh, 1994, v.316, p. 1035-1040.
23. Zinovyev V. A., Aleksandrov L. N., Dvurechenskii A. V., Heinig K.-H., Stock D. *Modelling of layer-by-layer sputtering of Si(111) surfaces under irradiation with low-energy ions.* – Thin solid Films, 1994, v.241, p.167-170.
24. Двуреченский А. В., Зиновьев В. А., Марков В. А., *Механизм структурных изменений поверхности кремния импульсным воздействием низкоэнергетическими ионами при эпитаксии из молекулярного пучка.* – ЖЭТФ, 1998, т. 67, с 2055-2064.
25. Ditchfield R., Seebauer E. G. *Semiconductor surface diffusion: Effects of low-energy ion bombardment.* – Phys. Rev. B, 2001, v. 63, p. 125317-1 – 125317-9.
26. Rabalais J. W., Al-Bayati A.H., Boyd K. J., Matron D., Kulik J., Zhang Z., and Chu W. K. *Ion effects in silicon-beam epitaxy.* – Phys. Rev. B., 1996, v.53, №16, p. 10781-10792.
27. Murty M. V. R., Atwater H. A. *Crystal-state-amorphous-state transition in low-temperature silicon homoepitaxy.* – Phys. Rev. B., 1994, v. 49, №12, p.8483 – 8486.
28. Двуреченский А. В., Зиновьев В. А., Марков В. А., Кудрявцев В. А. *Сверхструктурный фазовый переход, индуцированный импульсным ионным воздействием при молекулярно-лучевой эпитаксии Si(111).* – Неорганические материалы, 1999, т.35, №6, с. 646-649.
29. Lee N.-E., Tomash G. A., and Greene J. E. *Low-temperature Si(100) epitaxy using low-energy ($\langle E \rangle \cong 18$ eV) Si atoms.* – Appl. Phys. Lett., 1994, v.65, №25, p. 3236 – 3238.
30. Park S. W., Shim J. Y., Baik H. K. *Growth mode of epitaxial Si_{0.5}Ge_{0.5} layer grown on Si(100) by ion-beam-assisted deposition.* – J. Appl. Phys., 1995, v. 78, №10, p. 5993-5999.

31. Ghose S. K., Robinson I. K., Averbak R. S. *Defect formation in Si(111)7x7 surfaces due to 200 eV Ar⁺ ion bombardment.* – Phys. Rev. B, 2003, v. 68, p. 165342 – 165350.
32. Marton D., Boyd K. J., Al-Bayati, Todorov S. S., Rabalais J. W. *Carbon nitride deposited using energetic species: a two-phase system.* – Phys. Rev. Lett., 1994, v. 73, №1, p.118-121.
33. Rosenfeld G., Servaty R., Teichert C., Poelsema B., Comsa G. *Layer-by layer growth of Ag on Ag(111) induced by enhanced nucleation: A model study for surfactant-mediated growth.* Phys. – Rev. Lett., 1993, v. 71, №6, p. 895-898.
34. Bedrossian P., Houston J. E., Tsao J. Y., Chason E., Picraux S. T. *Layer-by-layer Sputtering and Epitaxy of Si (100).* - Phys. Rev. Lett., 1991, v. 67, №1, p. 124-127.
35. Zalm P. C. and Beckers L. J. *Ion beam epitaxy of silicon on Ge and Si at temperatures of 400 K.* – Appl. Phys. Lett., 1982, v. 41, №2, p. 167-169.
36. Hasan M. A., Knall J., Barnett S. A., Sundren J.-E. et al. *Incorporation of accelerated low-energy (50-500 eV) In⁺ ions in Si(100) films during growth by molecular-beam epitaxy.* – J. Appl. Phys., 1989, v. 65, № 1, p. 172-179.
37. Yamada I., Usui H., Tanaka S., Dahmen U. and Westmacott K. H. *Atomic Resolution of the structure and Interface of Aluminum Films Deposited Epitaxially on Silicon by Ionized Cluster Beam Method.* – J. Vac. Sci. Technol. A, 1990, v. 8, № 3, p. 1443-1446.
38. Ensinger W. *Low energy assist during deposition – an effective tool for controlling thin film microstructure.* – Phys. Rev. B., 1997, v. 127/128, p. 796-808.
39. Cullis A. G., Booker G. R. *The epitaxial growth of silicon and germanium films on (111) silicon surface using UHV sublimation and evaporation techniques.* – J. of Crystal Growth, 1971, v. 9, p. 132-138.
40. Aleksandrov L. N., Lovyagin R. N., Pchelyakov O. P., Stenin S. I. *Heteroepitaxy of germanium thin films on silicon by ion sputtering.* – J. of Crystal Growth, 1974, v.24/25, p. 298-301.
41. Eaglesham D. J., Cerullo M. *Dislocation-free Stranski-Krastanow growth of Ge on Si(100).* – Phys. Rev. Lett., 1990, v. 64, №16, p. 1943-1946.

42. Шик А. Я., Бакуева Л. Г., Мусихин С. Ф., Рыков С. А. *Физика низкоразмерных систем.* – СПб., Наука, 2001, 160 с.
43. Кукушкин С. А., Осипов А. В., Schmitt F., Hess P. *Зарождение когерентных полупроводниковых островков при росте по механизму Странского-Крастанова, индуцированное упругими напряжениями.* – ФТП, 2002, т.36, вып.10, с. 1177-1185.
44. Гусева М. Б. *Ионная стимуляция в процессах образования тонких пленок на поверхности твердого тела.* – Соросовский образовательный журнал, 1998, №10, с.106-112.
45. Кукушкин С. А., Осипов А. В. *Процессы конденсации тонких пленок.* – УФН, 1998, том 168, №10, с. 1083-1116.
46. Tersoff J., LeGoues F. K. *Competing Relaxation Mechanisms in Strained Layers.* – Phys.Rev. Lett., 1994, v. 72, №22, p.3570-3573.
47. Asaro R. J., Tiller W. A. *Interface morphology development during stress corrosion cracking: part 1. Via surface diffusion.* – Metall. Trans., 1972, v. 3, p. 789-798.
48. Гринфельд М. А. *Неустойчивость границы раздела между негидростатически напряженным упругим телом и расплавом.* – ДАН СССР, 1986, т. 290, вып. 6, 1358-1363.
49. Osipov A. V., Kukushkin S. A., Schmitt F., and Hess P. *Kinetic model of coherent island formation in the case self-limiting growth.* – Phys. Rev. B, 2001, v. 64, 205421.
50. Chen Y., and Washburn J. *Structural transition in large-lattice-mismatch heteroepitaxy.* – Phys. Rev. Lett., 1996, v.77, № 19, p. 4046-4049.
51. Barabasi A-L. *Self-assembled island formation in heteroepitaxial growth.* – Appl. Phys. Lett., 1997, v. 70, №19, p. 2565-2567.
52. Nikiforov A. I., Cherepanov V. A., Pchelyakov O. P., Dvurechenskii A. V., Yakimov A. I. *In-situ RHEED control of self-organized Ge quantum dots.* – Thin Solid Films, 2000, v. 380, №1-2, p. 158-163.
53. Mo Y.-W., Savage D. E., Swartzentruber B. S., Lagally M. G. *Kinetic Pathway in Stranski-Krastanov Growth of Ge on Si(001).* – Phys. Rev. Lett., 1990, v. 65, № 8, p. 1020-1023.

54. Rastelli A., Hans von Känel. *Surface evolution of faceted islands*. – Surf. Sci. Lett., 2002, v. 515, p. 493 – 498.
55. Floro J. A., Chason E., Freund L. B., Twisten R. D., Hwang R. Q., Lucadamo G. A. *Evolution of coherent islands in $Si_{1-x}Ge_x/Si(001)$* . – Phys. Rev. B, 1999, v. 59, № 3, p. 1990-1998.
56. Berbezier I., Gallas B., Ronda A., Derrien J. *Dependence of SiGe growth instabilities in stabilities on Si substrate orientation*. – Surf. Sci., 1998, v. 412/413, p. 415-429.
57. Никифоров А. И., Ольшанецкий Б. З., Пчеляков О. П., Соколов Л. В., Тийс С. А., Черепанов В. А., Фойхтлендер Б. *Изменения структуры, микрорельефа и упругой деформации поверхности при МЛЭ смачивающего слоя Ge на Si*. – Известия АН, Серия Физическая, 2002, т. 66, № 2, с. 171-174.
58. Талочкин А. В., Тийс С. А. *Оптические фононы в квантовых точках Ge, полученных на Si(111)*. – Письма в ЖЭТФ, 2002, №75, с. 314-317.
59. Teys S. A. and Olshanetsky B. Z. *Formation of the wetting layer in Ge/Si(111) epitaxy at low growth rates studied with STM*. – Phys. Low-Dim. Structures, 2002, 1/2, p. 37-46.
60. Pintus S. M., Stenin S. I., Toropov A. I. et al. *Morphological transformations of thin heteroepitaxial films*. – Thin Solid Films, 1987, v. 151, p. 275-288.
61. Shklyaeв A., Shibata M., Ichikava M. *Ge islands on Si(111) at coverages near the transition from two-dimensional to three-dimensional growth*. – Surf. Sci., 1998, v. 419, p. 192-199.
62. Shklyaeв A., Shibata M., Ichikava M. *Instability of 2D Ge layer near the transition to 3D islands on Si(111)*. – Thin Solid Films, 1999, v. 343/344, p. 532-536.
63. Voigtländer B. *Fundamental processes in Si/Si and Ge/Si epitaxy studied by scanning tunneling microscopy during growth*. – Surface Science Report, 2001, v. 43, p. 127-254.
64. Voigtländer B., Zinner A. *Simultaneous molecular beam epitaxy growth and scanning tunneling microscopy imaging during Ge/Si epitaxy*. – Appl. Phys. Lett., 1993, v. 63, I. 22, № 29, p. 3055-3057.

65. Александров Л. Н., Ловягин Р. Н., Пчеляков О. П., Стенин С. И. *Начальные стадии эпитаксии германия на кремнии при ионном распылении.* – В кн.: Рост и легирование полупроводниковых кристаллов и пленок, ч. 2. Новосибирск: Наука, 1997, с. 139-149.
66. Латышев А. В. *Атомные ступени на поверхности кремния в процессах сублимации, эпитаксии и фазовых переходов.* – Диссертация на соискание ученой степени доктора физико-математических наук, ИФП СО РАН, Новосибирск, 1998, с. 229-248.
67. Köhler U., Jusko O., Pietsch G., Müller and Henzler M. *Strained-layer growth and islanding of germanium on Si(111)-(7×7) studied with STM.* – Surface Science, 1991, v. 248, p. 321-331.
68. Pchelyakov O. P., Markov V. A., Nikiforov A. I., Sokolov L. V. *Surface processes and phase diagrams in MBE growth of Si/Ge heterostures.* – Thin Solid Films, 1997, v. 306, p. 299-306.
69. Goldfarb I, Owen J. H. G., Hayden P. T., Bowler D. R., Miki K., Briggs G. A. D. *Gas-source growth of group IV semiconductors: III. Nucleation and growth of Ge/Si(001).* – Surf. Sci., 1997, v. 394, p. 105-118.
70. Li K., Bowler D. R., Gillan M. J. *Tight binding studies of strained Ge/Si(001) growth.* - Surface Science, 2003, v. 526, p. 356-366.
71. Liu F., Lagally M. G. *Interplay of Stress, Structure and Stoichiometry in Ge- Covered Si(001).* - Phys. Rev. Lett, 1996, v. 76, №17, p. 3156-3159.
72. Востоков Н. В., Гусев С. А., Долгов И. В., Дроздов Ю. Н., Красильник З. Ф., Лобанов Д.Н., Молдавская Л. Д., Новиков А. В., Постников В. В., Филатов Д. О. *Упругие напряжения и состав самоорганизующихся наноостровков GeSi на Si(001).* – ФТП, 2000, т. 34, №1, с.8-12.
73. Yakimov A. I., Dvurechenskii A. V., Proskuryakov Yu.Yu., Nikiforov A. I., Pchelyakov O. P., Teys S. A., Gutakovskii A. K. *Normal-incidence infrared photoconductivity in Si p-I-n diode with embedded Ge self-assembled quantum dots.* – Appl. Phys. Lett., 1999, v.75, №10, p.1413-1415.
74. Kästner M., Voigtländer B. *Kinetically Self-Limiting Growth of Ge Islands on Si(001).* – Phys. Rev. Lett., 1999, v. 82, № 13, p. 2745-2748.

75. Востоков Н. В., Красильник З. Ф., Лобанов Д. Н., Новиков А. В., Шалеев М. В., Яблонский А. Н. *Влияние скорости осаждения Ge на рост и фотолюминесценцию самоформирующихся островков Ge(Si)/Si(001)*. – ФТТ, 2005, том. 47, вып. 1, с.41-43.
76. Марков В. А., Пчеляков О. П., Соколов Л. В., Стенин С. И., Стоянов С. *Молекулярно-лучевая эпитаксия с синхронизацией зарождения*. – Поверхность. Физика, химия, механика, 1991, №4, с. 70-75.
77. Sutter E., Sutter P., Bernard J. E. *Extended shape evolution of low mismatch $Si_{1-x}Ge_x$ alloy islands on Si(100)*. – Appl. Phys. Letters, 2004, v. 84, № 13, p. 2262-2264.
78. Sutter P. and Lagally M. G. *Nucleationless Three-Dimensional Island Formation in Low-Misfit Heteroepitaxy*. – Phys. Rev. Letters, 2000, v. 84, № 20, p. 4637-4640.
79. Rastelli A., Kummer M., H. von Känel. *Reversible Shape Evolution of Ge Islands on Si(001)*. – Phys. Rev. Lett., 2001, v. 87, № 25, 256101.
80. De Seta M., Capellini G., and Evangelisti F. *Intermixing-promoted scaling of Ge/Si(100) island sizes*. – J. Appl. Phys., 2002, v. 92, № 1, p. 614-619.
81. Tersoff J., Spencer B. J., Rastelli A, H. von Kanel. *Barrierless Formation and Faceting of SiGe Islands on Si(001)*. – Phys. Rev.Lett, 2002, v. 89, 196104.
82. Тонких А. А. *Полупроводниковые гетероструктуры с Ge/Si квантовыми точками для излучающих приборов на основе Si*. – Автореферат диссертации на соискание ученой степени к.ф.-м.н., ФТИ имени А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, 2005, с.3-20.
83. Kahng S.-J., Park J.-Y., Kuk Y. *Atomic view of Ge on the monohydride Si(001)-(2x1) surface*. – Phys. Rev. B, 1999, v. 60, № 24, p. 16558-16562.
84. Akira Sakai and Toru Tatsumi. *Ge growth on Si using atomic hydrogen as a surfactant*. – Appl. Phys. Lett., 1994, v. 64, № 1, p. 52-54.
85. Yakimov A.I., Derjabin A.S., Sokolov L.V., Pchelyakov O.P, Dvurechenskii A.V., Moiseeva M.M., Sokolov N.S. *Growth and characterization of $CaF_2/Ge/CaF_2/Si(111)$ quantum dots for*

resonant tunneling diodes operating at room temperature. – Appl. Phys. Lett., 2002, v. 81, № 3, p. 499-501.

86. Болховитянов Ю. Б., Кривошапов С. Ц., Никифоров А. И., Ольшанецкий Б. З., Пчеляков О. П., Соколов Л. В., Тийс С. А. *Пути получения упорядоченных гетероструктур Ge-Si с германиевыми нанокластерами предельно малых размеров.* – ФТТ, 2004, том. 46, вып. 1, с. 67-69.

87. Yakimov A. I., Markov V. A., Dvurechenskii A. V., Pchelyakov O. P. *Coulomb staircase in Si/Ge structure.* – Phil. Mag., 1992, v. 65, № 4, p.701-705.

88. Liu F., Lagally M. G. *Self-organized nanoscale structures in Si/Ge films.* – Surf. Sci., 1997, v. 386, p. 169-181.

89. Zhong Z., Halilovic A., Fromherz T., Schäffler F., Bauer G. *Two-dimensional periodic positioning of self-assembled Ge islands on prepatterned Si(001) substrates.* – Appl. Phys. Lett., 2003, v. 82, № 26, p. 4779-4781.

90. Экштайн В. *Компьютерное моделирование взаимодействия частиц с поверхностью твёрдого тела.* / Пер. с англ. Под ред. Е.С. Машковой, М.: Мир, 1995, 321 с.

91. Chason E., Bedrossian P., Horn K. M., Tsao J. Y., Picraux S. T. *Ion-Beam Enhanced Epitaxial Growth of Ge(001).* – Appl. Phys. Lett., 1990, v. 57, p. 1793-1803.

92. Choi C.-H., Al R., Barnett S.A. *Suppression of Three-Dimensional Island Nucleation during GaAs growth on Si(100).* – Phys. Rev. Lett., 1991, v.67, № 20, p. 2826-2829.

93. Кинчин Г. Н. и Пиз Р. С. *Смещение атомов в твердых телах под действием излучения.* – УФН, 1956, т. 60, вып. 4, с. 591-615.

94. Ni W.-X., Hansson G. V., Buyanova I. A., Henry A., Chen W. M., and Momemmar B. *Influence of ion bombardment on Si and SiGe films during molecular beam epitaxy growth.* – Appl.Phys. Lett., 1996, v. 68, № 2, p. 238-240.

95. Bedrossian P., Klistner T. *Anisotropic Vacancy Kinetics and Single-Domain Stabilization on Si(100)-2x1.* – Phys. Rev. Lett., 1992, v. 68, № 5, p. 646-649.

96. Takaoka G. H., Seki T., Tsumura K., Matsuo J. *Scanning tunneling microscope observations of Ge deposition on Si(111)7×7 surfaces irradiated by Xe ions.* – Thin Solid Films, 2002, v. 405, p. 141-145.
97. Ditchfield R., Seebauer E. G. *Direct Measurement of Ion-Influenced Surface Diffusion.* – Phys. Rev. Lett., 1999, v.82, № 6, p. 1185-1188.
98. Yoneyama K., Ogawa K. *Scanning Tunneling Microscope Studies on Recovery Processes of Sputter-Induced Surface Defects on Si(111)-7x7.* – Jpn. J. Appl. Phys., 1996, v. 35, № 6B, p. 3719-3723.
99. Millunchick J. M. and Barnett S. A. *Suppression of strain relaxation and roughening of InGaAs on GaAs using ion-assisted molecular beam epitaxy.* – Appl. Phys. Lett., 1994, v. 65, № 9, p. 1136-1138.
100. Brake J., Wang X.-S., Pechman R. J., Weaver J. H. *Enhanced epitaxial growth on substrates modified by ion sputtering: Ge on GaAs(110)* – Phys. Rev. Lett., 1994, v. 72, № 22, p. 3570-3573.
101. Marton D., Boyd K. J., Rabalais J.W. *Synergetic effects in ion beam energy and substrate temperature during hyperthermal particle film deposition.* – J. Vac. Sci. Technol. A, 1998, v. 16, № 3, p. 1321-1326.
102. Bedrossian P., Klistner T. *Surface reconstruction in layer-by-layer sputtering of Si(111).* Phys. Rev. B., 1991, v. 44, № 24, p. 13783-13786.
103. Ensinger W. *Low energy assist during deposition – an effective tool for controlling thin film microstructure.* – Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B., 1997, v. 127/128, p. 796-808.
104. Грибков В. А., Григорьев Ф. И., Калинин Б. А., Якушин В. Л. *Перспективные радиационно-пучковые технологии обработки материалов.* М.: Круглый год, 2001, 528 с.
105. Фелдман Л., Майер Д. *Основы анализа поверхности и тонких пленок: Пер. с англ.* – М.: Мир, 1989, 344 с.
106. Marton D. *Film deposition from low-energy ion beams.* In: Low Energy Ion-Surface Interactions, ed. by Rabalais J.W., Wiley & Sons, 1994, 524p.

107. Кинчин Г. Н. и Пиз Р. С. *Смещение атомов в твердых телах под действием излучения.* – УФН, 1956, т. 60, вып. 4, с. 591-615.
108. *Физические процессы в облученных полупроводниках.* Ютв. ред. Л.С. Смирнов. – Новосибирск: Наука, Сибирское отделение, 1977, 254 с.
109. Chose S. K., Robinson I. K., and Averback R. S. *Defect formation in Si(111)7×7 surfaces due to 200 eV Ar⁺ ion bombardment.* – Phys. Rev. B, 2003, v. 68, p. 165342.
110. Kitabatake K., Greene J. E. *Molecular dynamic and quasidynamics simulations of low-energy particle bombardment effects during vapor-phase crystal growth: Production and annihilation of defects due to 50 eV Si incident on (2x1)-terminated Si(001).* – J. Appl. Phys., 1993, v. 73, № 7, p. 3183-3194.
111. Strickland B., Roland C. *Low-temperature growth and ion-assisted deposition.* – Phys. Rev. B, 1995, v.51, № 8, p.5061-5064.
112. Choi C.-H., Hultman L., and Barnett S. A. *Ion-irradiation-induced suppression of free-dimensional island formation during InAs growth on Si(100).* – J.Vac.Sci.Technol. A, 1990, v. 8, № 3, p. 1587 – 1592.
113. Yehoda J. E., Yang B., Vedam K., and Messier R. *Investigation of the void structure in amorphous germanium thin films as a function of low-energy ion bombardment.* – J. Vac. Sci. Technol. A, 1988, v. 6, №3, p. 1631-1635.
114. Бабаев В. Г., Гусева М. Б. *Адсорбция паров металла в присутствии ионного облучения.* – Известия Академии Наук (сер. физ.), 1973, т.27, № 12, с. 2596-2602.
115. Esch S., Breeman M., Morgenstern M., Michely T., Comsa G. *Nucleation and morphology of homoepitaxial Pt(111)-films grown with ion beam assisted deposition.* – Surf. Sci., 1996, v. 365, p. 187-204.
116. Tsai C. J., Atwater H. A., and Vreeland T. *Strain modification in coherent Ge and Si_xGe_{1-x} epitaxial films by ion-assisted molecular beam epitaxy.* – Appl.Phys.Lett., 1990, v. 57, №22, p. 2305-2307.

117. Wulfhenkel W., Lipkin N. N., Kliewer J., Rosenfeld G., Jorritsma L. C., Poelsema B., Comsa G. *Conventional and manipulated growth of Cu/Cu(111)*. – Surf. Sci., 1996, v. 348, p. 227-242.
118. Wulfhenkel W., Beckmann I., Lipkin N. N., Rosenfeld G., Poelsema B., Comsa G. *Manipulation of growth modes in heteroepitaxy: Ni/Cu(111)*. – Appl. Phys. Lett., 1996, v.69, №23, p. 3492-3494.
119. Dvurechenskii A. V., Zinovyev V. A., Markov V. A., Kudryavtsev V. A. *Surface reconstruction induced by low-energy ion-beam pulsed action during Si(111) molecular beam epitaxy*. – Surface Science, 1999. v. 425, № 2-3, p. 185-194.
120. Qian G.-X., Chadi D.J. *Total-energy calculations on Takayanagi model for the Si(111)7x7 surface*. – J. Vac. Technol. B, 1986, v. 4, № 4, p.1079-1082.
121. Yang N. Y., Williams E. D. *Domain-boundary-induced metastable reconstructions during epitaxial growth of Si/Si(111)*. – Phys. Rev. B, 1995, v. 51, № 19, p.13238-13243.
122. Зиновьев В.А. *Процессы на поверхности кремния при низкоэнергетическом ионном воздействии в условиях молекулярно-лучевой эпитаксии*.- Автореф. дис. к.ф.-м.н. – Новосибирск, 2004, 22с.
123. Stepina N. P., Dvurechenskii A. V., Armbrister V. A., Kesler V. G, Novikov P.L., Gutakovskii A. K., Kirienko V. V. and Smagina Zh. V. *Pulsed ion-beam induced nucleation and growth of Ge nanocrystals on SiO₂*. – Appl. Phys. Lett., 2007, 90, p. 133120.
124. Fedina L., Lebedev O. I., G. Van Tendeloo, J. Van Landuyt, Mironov O. A., and Parker E. H. C. *In situ HREM irradiation study of point-defect clustering in MBE – grown strained Si_{1-x}Ge_x(001)Si structure*. – Phys. Rev. B, 2000, v. 61, p. 10336-10345.
125. Tersoff J., Teichert C. and Lagally M. G. *Self-Organization in Growth of Quantum Dot Superlattices*. – Phys. Rev. Lett. **76**, 1675 (1996).
126. Кантер Б. З., Мошегов Н. Т., Стенин С. И., Тийс С. А. *Сверхвысоковакуумная установка для молекулярно-лучевой эпитаксии кремния*. – ПТЭ, 1988, № 2, с.171-173.

127. Кантер Б. З., Никифоров А. И. *Электронно-лучевые испарители для эпитаксии элементарных полупроводников.* – ПТЭ, 1990, № 2, с.156-159.
128. Соколов Л. В. *Исследование структуры поверхности германия и кремния методами эллипсометрии и дифракции электронов при эпитаксии из молекулярного пучка.* – Диссертация на соискание степени кандидата физико-математических наук, ИФП СО РАН, Новосибирск, 1990, 160 с.
129. Кантер Б. З., Никифоров А. И. *Применение электронной пушки с оксидным катодом в системе дифракции быстрых электронов на отражение.* – ПТЭ, 1990, № 5, с. 156-159.
130. Ishizaka A., Nakagawa K., and Shiraki Y. *Low-temperature surface cleaning of silicon and it's application to silicon MBE.* – Pros. of MBE-CST-2, Tokyo, 1983, p. 183-186.
131. Tatsumi T., Aizari N. and Tsuya H. *Advanced techniques to decrease defect density in molecular beam epitaxy.* – Jap. J. Appl. Phys., 1985, v. 24, №4, p. L227-L229.
132. Rzhhanov A. V., Stenin S. I., Pchelyakov O. P. and Kanter B. Z. *Molecular beam epitaxial growth of germanium and silicon films: surface structure, film defects and properties.* – Thin Solid Films, 1986, v. 139, p. 169-175.
133. Hansson G. V., Larsson M. I. *Initial stages of Si molecular beam epitaxy on Si(111) studied with reflection high-energy electron-diffraction intensity measurements and Monte Carlo simulation.* – Surf. Sci., 1994, v.321, p.1255-1260
134. Sakamoto T., Kawai N. J., Nakagawa T., Ohta K., Kojima T., and Hashiguchi G. *RHEED intensity oscillations during silicon MBE growth.* – Surf. Sci., 1986, v. 174, p. 651-657.
135. Марков В. А., Пчеляков О. П. *Молекулярная эпитаксия пленок Ge_xSi_{1-x} на Si(111): исследование методом дифракции быстрых электронов.* – ФТП, 1996, том.38, №10, с. 3152-3160.
136. Goldfarb I., Briggs G. A. D. *Comparative STM and RHEED studies of Ge/Si(001) and Si/Ge/si(001) surfaces.* – Surf. Sci., 1999, v. 433-435, p. 449-454.

137. Dentel D., Bischoff J. L., Kubler L., Werckmann J., Romeo M. *Surface smoothing induced by epitaxial Si capping of rough and strained Ge or Si_{1-x}Ge_x morphologies: a RHEED and TEM study.* – Journal of Crystal Growth, 1998, v. 191, p. 697-710.
138. Cimalla V., Zekentes K., Vouroutzis N. *Control of morphological transitions during heteroepitaxial island growth by reflection high-energy electron diffraction.* – Materials Science and Engineering, 2002, B88, p. 186-190.
139. Markov V. A., Cheng H. H., Chih-ta Chia, Nikiforov A. I., Cherepanov V. A., Pchelyakov O.P., Zhuravlev K. S., Talochkin A. B., McGlynn H. M. O. *RHEED studies of nucleation of Ge islands on Si(001) and optical properties of ultra-small Ge quantum dots.* – Thin Solid Films, 2000, v. 369, p. 79-83.
140. Никифоров А. И., Черепанов В. А., Пчеляков О. П. *Исследование процесса роста пленки Ge на поверхности Si(100) методом регистрирующей дифрактометрии.* – ФТП, 2001, том 35, вып. 9, с. 1032-1035.
141. Turban P., Henet L., Andrieu S. *In-plane lattice spacing oscillatory behaviour during the two-dimensional hetero- and homoepitaxy of metals.* – Surf. Sci., 2000, v. 446, p. 241-253
142. Flemming Besenbacher. *Scanning tunneling microscopy studies of metal surfaces.* Rep. Prog. Phys. 59, 3, 1996, p. 1737-1802.
143. Киселев В. Ф., Козлов С. Н., Зотеев А. В. *Основы физики поверхности твердого тела.* – Москва, Издательство МГУ, 1999, 287 с.
144. Праттон М. *Введение в физику поверхности.* – Ижевск: НИЦ Регулярная и хаотическая динамика, 2000, 256 с.
145. Yakimov A. I., Nikiforov A. I., Dvurechenskii A. V., Ulyanov V. V., Volodin V. A. and Groetzschel R. *Effect of growth rate on the morphology and structural properties of hut-shaped Ge islands in Si(001).* – Nanotechnology, 2006, v. 17, p. 4743-4747.
146. Bakker H., Bleeker A., Mul P. *Design and performance of an ultra-high-resolution 300kV microscope.* – Ultramicroscopy, 1996, v. 64, №1, p. 17-34.

147. Спенс Дж. *Экспериментальная электронная микроскопия высокого разрешения*. Перевод с англ. под редакцией Рожанского В. Н. – М.: Наука, 1986, с. 320.
148. Хирш П., Хови А., Николсон Р., Пэшли Д., Уэлан М. *Электронная микроскопия тонких кристаллов*. – Москва: Мир, 1968, с. 574.
149. Гутаковский А. К., Асеев А. Л. *Исследование полупроводниковых гетеросистем современными методами просвечивающей электронной микроскопии*. – Нанотехнологии в полупроводниковой электронике, Новосибирск: Издательство СО РАН, 2004, с.154-179.
150. *Рассеяние света в твердых телах: проблемы прикладной физики*. Под редакцией Кардоны М. – М.: Мир, 1979, 392 с.
151. Mowbray D. J., Cardona M., and Ploog K. *Confined LO phonons in GaAs/AlAs superlattices*. – Phys. Rev. B, 1991, v.43, n.2, p. 1598 – 1603.
152. Iqbal Z., and Veprek S. *Raman scattering from hydrogenated microcrystalline and amorphous silicon*. – J. Phys. C: Solid State Phys., 1982, v.15, n.2, p.377 – 393.
153. Милёхин А. Г., Никифоров А. И., Ладанов М. Л., Пчеляков О. П., Шульце Ш., Цан Д. Р. Т. *Резонансное комбинационное рассеяние света напряженными и релаксированными Ge – квантовыми точками*. – ФТТ, 2004, т. 46, вып. 1, с. 94 – 97.
154. Агемян В. Ф. *Фотолюминесценция полупроводниковых кристаллов*. – Соросовский образовательный журнал, 2000, т. 6, №10, с. 101-107.
155. Бурбаев Т. М., Курбатов В. А., Погосов А. О., Рзаев М. М., Сибельдин Н. Н., Цветков В. А. *Фотолюминесценция Si/Ge – наноструктур, выращенных при низких температурах молекулярно-пучковой эпитаксии*. – ФТТ, 2004, т. 46, вып. 1, с.74-76.
156. Двуреченский А. В., Зиновьев В. А., Кудрявцев В. А., Смагина Ж. В. *Эффекты низкоэнергетического ионного воздействия при гетероэпитаксии Ge/Si из молекулярных пучков*. – Письма в ЖЭТФ, 2000, т. 72, вып. 3, с. 190-194.
157. Dvurechenskii A. V., Zinovyev V. A., Kudryavtsev V. A, Smagina J. V., Novikov P. L., and

- Teys S. A. *Ion-Beam Assisted Surface Islanding During Ge MBE on Si*. – Phys. Low-Dim. Struct., 2002, 1/2, p. 303-314.
158. Montalenti F., Raiteri P., Migas D. B., von Känel H., Rastelli A., Manzano C., Costantini G., Denker U., Schmidt O. G., Kern K., and Leo Miglio. *Atomic-Scale Pathway of the Pyramid – to – dome Transition during Ge Growth on Si(001)*. – Phys. Rev. Lett., 2004, v. 93, №21, 216102
159. Смагина Ж. В., Зиновьев В. А., Ненашев А. В., Двуреченский А. В. Армбристер В. А., Тийс С. А. *Самоорганизация Ge nanoостровков при импульсном облучении пучком низкоэнергетических ионов в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100)*. – ЖЭТФ, 2008, т. 133, вып. 2.
160. Dvurechenskii A. V., Smagina J. V, Groetzschel R., Zinoviev V. A., Armbrister V. A., Novikov P. L., Teys S. A., Gutakovskii A. K. *Ge/Si quantum dot nanostructures grown with low-energy ion beam-epitaxy*. – Surface & Coating Technology, 2005, v.196, No. 1-3, p. 25-29.
161. Yuhai Tu and Tersoff J. *Origin of Apparent Critical Thickness for Island Formation in Heteroepitaxy*. – Phys. Rev. Lett., 2004, v. 93, № 21, 216101.
162. Двуреченский А. В., Зиновьев В. А., Смагина Ж. В. *Эффекты самоорганизации ансамбля nanoостровков Ge при импульсном облучении низкоэнергетическими ионами в процессе гетероэпитаксии на Si*. – Письма в ЖЭТФ, 2001, т. 74, вып. 5, с. 296-299.
163. Kolobov A. V. *Raman scattering from Ge nanostructures grown on Si substrates: Power and limitations*. – J. Appl. Phys., 2000, v. 87, Is. 6, p. 2926-2930.
164. Двуреченский А. В., Смагина Ж. В., Зиновьев В. А., Армбристер В. А., Володин В. А., Ефремов М. Д. *Элементный состав нанокластеров, формируемых импульсным облучением низкоэнергетическими ионами в процессе эпитаксии Ge/Si*. – Письма в ЖЭТФ, 2004, т. 79, вып. 7, с. 411-415.
165. Tan P. H., Brunner K., Bougeard D., and Abstreiter G. *Raman characterization of strain and composition in small-sized self-assembled Si/Ge dots*. – Phys. Rev. B, 2003, v. 68, 125302.

166. Nelin G. and Nilsson. *Phonon Density of States in Germanium at 80 K Measured by Neutron Spectrometry*. – Phys. Rev. B, 1972, v. 5, p. 3151-3160.
167. Cerdeira F., Buchenauer C. J., Fred H. Pollak, and Manuel Cardona. *Stress-Induced Shifts of First-Order Raman Frequencies of Diamond- and Zinc-Blend-Type Semiconductors*. – Phys. Rev. B, 1972, v. 5, p. 580-593.
168. Groenen J., Carles R., Christiansen S., Albrecht M., Dorsch W., Strunk H. P., Wawra H., and Wagner G. *Phonons as probes in self-organized SiGe islands*. – Appl. Phys. Lett., 1997, v. 71, Is. 26, p. 3856-3858.
169. Эренбург С. Б., Бауск Н. В., Двуреченский А. В., Смагина Ж. В., Ненашев А. В., Никифоров А. И., Мансуров В. Г., Журавлев К. С., Торопов А. И. *Применение XAFS-спектроскопии для исследования микроструктуры и электронного строения квантовых точек*. – Поверхность: Рентгеновские, Синхронные и Нейтронные Исследования, 2007, № 1, с. 31-40.
170. Fonseca A., Sobolev N. A., Leitão J. P., Alves E., Carmo M. C., Zakharov N. D., Werner P., Tonkikh A. A., Cirlin G. E. *Influence of defects on the optical and structural properties of Ge dots embedded in an Si/Ge superlattice*. – J. Luminescence, 2006, v. 121, Is. 2, p. 417-420.
171. Dvurechenskii A. V., Nenashev A. V., and Yakimov A. I. *Electronic structure of Ge/Si quantum dots*. – Nanotechnology, 2002, v. 13, p. 72-80.
172. Vvedensky D. D., Clarke S. *Recovery kinetics during interrupted epitaxial growth*. – Surf. Sci., 1990, v.225, p.373–389.
173. Keating P. N. *Effect of Invariance Requirements on the Elastic Strain Energy of Crystals with Application to the Diamond Structure*. – Phys. Rev., 1966, v. 145, № 2, p. 637–645.
174. Shitara T., Vvedensky D. D., Wilby M. R., Zhang J., Neave J. H., Joyce B. A. *Step-density variations and reflection high-energy electron-diffraction intensity oscillations during epitaxial growth on vicinal GaAs(001)*. – Phys. Rev. B, 1992, v.46, № 15, p.6815-6824.

175. Ditchfield R and Seebauer E. G. *Semiconductor surface diffusion: Effects of low-energy ion bombardment*. – Phys. Rev. B, 2001, v.63, p. 125317
176. Kratzer P., Penev E., Scheffler M. *First-principles studies of kinetics in epitaxial growth of III-V semiconductors*. – Appl. Phys. A, 2002, v. 75, p. 79-88
177. Huang L., Feng Liu, and Gong X. G. *Strain effect on adatom binding and diffusion in homo- and heteroepitaxies of Si and Ge on (001) Surfaces*. – Phys. Rev. B, 2004, v. 70, p. 155320.
178. Ильина В. А., Силаев П. К. *Численные методы для физиков-теоретиков. I* – Москва – Ижевск: Институт компьютерных исследований, 2003, 132 с.
179. Clarke Sh. and Vvedensky D. D. *Growth mechanism for molecular-beam epitaxy of group-IV semiconductors*. – Phys. Rev. B, 1988, v. 37, № 11, p. 6559-6562.
180. Tang M., Colombo L., Zhu J. and T. D. de la Rubia. *Intrinsic point defects in crystalline silicon* : – Phys. Rev. B, 1997, v. 55, p.14279 - 14289.
181. Федина Л. И. *О рекомбинации и взаимодействии точечных дефектов с поверхностью при кластеризации точечных дефектов*. – ФТП, 2001, т. 35, с. 1120-1127.