

СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК
ИНСТИТУТ ФИЗИКИ ПОЛУПРОВОДНИКОВ

На правах рукописи

Зиновьев Владимир Анатольевич

**Процессы на поверхности кремния при низкоэнергетическом ионном
воздействии в условиях молекулярно-лучевой эпитаксии**

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 - 2004

СПИСОК ОСНОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ И ИСПОЛЬЗУЕМЫХ СОКРАЩЕНИЙ

МЛЭ – молекулярно-лучевая эпитаксия

ДБЭ – дифракция быстрых электронов

НИО – низкоэнергетическое ионное облучение

СТМ – сканирующая электронная микроскопия

МД – молекулярная динамика

МК – Монте-Карло

k – постоянная Больцмана

T – температура

D – коэффициент диффузии адатомов

R – плотность молекулярного потока

J – плотность ионного потока

МС – монослой

ν_0 – частота тепловых колебаний атомов

a – среднее межатомное расстояние

E_D – энергия активации поверхностной диффузии

n_s – коэффициент распыления

n_v – количество вакансий в поверхностном вакансионном кластере

C – концентрация поверхностных вакансионных кластеров

N – концентрация адатомов

θ – степень заполнения поверхностного монослоя

N_{eq} – равновесная концентрация адатомов на поверхности

n_0 – поверхностная плотность атомов

V – скорость движения моноатомных ступеней

β – кинетический коэффициент встраивания адатомов в ступень

q – кинетический коэффициент отрыва адатомов от ступени

n_k - плотность изломов на ступени (шероховатость ступени)

R_{ad} – скорости генерации адатомов ионным пучком

R_c – скорость генерации вакансионных кластеров ионным пучком

K_{ad} – коэффициент аннигиляции адатомов

K_c – коэффициент аннигиляции поверхностных вакансионных кластеров

СОДЕРЖАНИЕ

Введение	7
ГЛАВА 1. ЭПИТАКСИЯ ИЗ ИОННО-МОЛЕКУЛЯРНЫХ ПУЧКОВ. (ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ)	15
§1.1. Физические предпосылки для управления процессом роста плёнок с помощью ионных пучков	15
1.1.1. Энергия ионного пучка	15
1.1.2. Плотность ионного потока	20
1.1.3. Длительность воздействия ионным пучком	23
§1.2. Физические процессы лежащие в основе ионного воздействия на рост плёнок	30
1.2.1. Ионно-стимулированное зарождение	30
1.2.2. Ионно-стимулированная диссоциация островков	34
1.2.3 Ионно-стимулированная диффузия	41
1.2.4. Формирование упорядоченных метастабильных фаз	44
1.2.5. Ионно - стимулированная реконструкция поверхности	46
§1.3. Феноменологические модели эпитаксии из ионно-молекулярных пучков	48
1.3.1. Модель Ванкоувенберга	50
1.3.2. Модель Бойда	55
1.3.3. Недостатки феноменологических моделей	56
§1.4 Моделирование методами молекулярной динамики эпитаксии из ионных пучков	57
1.4.1. Моделирование микроскопических процессов при взаимодействии низкоэнергетических ионов с поверхностью кремния	58
1.4.2 Моделирование ионно-стимулированного роста плёнок	62
§1.5 Заключение по главе 1	69

ГЛАВА 2. ИССЛЕДОВАНИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ИОНОВ С ПОВЕРХНОСТЬЮ КРЕМНИЯ МЕТОДОМ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ	72
§2.1. Экспериментальные данные и модельные представления об эволюции морфологии поверхности кремния в условиях низкоэнергетического ионного облучения	72
§2.2. Исследование взаимодействия низкоэнергетических ионов Хе с поверхностью кремния методом молекулярной динамики	76
2.2.1. Описание модельной структуры и некоторых особенностей реализации метода молекулярной динамики	77
2.2.2. Основные результаты моделирования взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью кремния	80
А) Поверхность Si(111)	80
Б) Поверхность Si(100)	84
Выводы к главе 2	87
ГЛАВА 3. ИССЛЕДОВАНИЕ ЭВОЛЮЦИИ ПОВЕРХНОСТИ КРЕМНИЯ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ИОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА ОСНОВЕ РЕШЕНИЯ ДИФФУЗИОННОЙ ЗАДАЧИ	88
§3.1. Постановка задачи	88
А) Поверхность Si(111)	89
Б) Поверхность Si(100)	92
§3.2. Выбор параметров задачи	96
§3.3. Результаты моделирования послойного распыления вицинальной поверхности кремния пучком низкоэнергетических ионов	99
А) Поверхность Si(111)	100
Б) Поверхность Si(100)	109
Заключение по главе 3	112

ГЛАВА 4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ЭФФЕКТОВ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО ИОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА ПРОЦЕСС ГОМОЭПИТАКСИИ Si(111) ИЗ МОЛЕКУЛЯРНОГО ПУЧКА	113
§4.1. Методика эксперимента	114
§4.2. Экспериментальные результаты	116
4.2.1. Импульсное ионное воздействие на атомарно-гладкую поверхность	116
4.2.2. Импульсное ионное воздействие на поверхность Si(111) в процессе гомoeпитаксии из молекулярного пучка	117
4.2.3. Исследование ионно-стимулированной реконструкции поверхности	127
§4.3. Обсуждение возможных механизмов ионного воздействия на рост эпитаксиальных слоёв кремния	130
4.3.1. Ионно-стимулированное выглаживание поверхности	130
4.3.2. Ионно-стимулированная реконструкция	135
Выводы к главе 4	138
ГЛАВА 5. МОДЕЛИРОВАНИЕ ЭФФЕКТОВ ИМПУЛЬСНОГО ИОННОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ ПРИ ГОМОЭПИТАКСИИ Si(111) ИЗ МОЛЕКУЛЯРНОГО ПУЧКА	139
§5.1. Описание модели	139
§5.2. Результаты моделирования	144
Выводы по главе 5	152
ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ ПО ДИССЕРТАЦИИ	153
Заключение	156
Литература	160

Введение.

Осаждение полупроводниковых плёнок с использованием ионных пучков возникло на стыке двух больших научно-технологических направлений: ионной имплантации и молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ). Ионная имплантация в настоящее время является базовой технологией легирования полупроводниковых плёнок. Для ионного легирования, как правило, используют энергии ионного пучка от 10КэВ до 1 МэВ. Использование такого диапазона энергий определяется требованиями технологического характера, связанными с необходимостью формирования модифицированных ионным пучком слоёв кристалла на определённых глубинах от поверхности. Однако, как показывают многочисленные исследования, при таких энергиях формируется высокая плотность дефектов кристаллической структуры (см. например монографии [1,2,3] и ссылки в них). Поэтому существует проблема восстановления структурных свойств кристалла после ионного облучения. Эту проблему традиционно решают отжигом дефектов при высоких температурах. Однако, при высоких температурах происходит диффузионное размытие концентрационных профилей легирования, сформированных ионной имплантацией, что является нежелательным эффектом при создании приборных структур для микро- и нанoeлектроники. Если ионное легирование проводить прямо в процессе осаждения плёнок, то можно существенно снизить энергию ионного пучка до величин порядка 100 эВ и ниже [4,5], поскольку в этом случае ионам достаточно внедрится в узкий приповерхностный слой растущей плёнки. Использование низких энергий обеспечивает малый уровень дефектности легированных плёнок, и необходимость в последующем высокотемпературном отжиге отпадает. В ходе выполнения исследовательских работ по ионному легированию растущих плёнок было обнаружено, что ионы легирующей примеси, обладая избыточной энергией, могут существенно влиять на кинетику роста и результирующие свойства эпитаксиальных плёнок [6]. В результате возникла идея использования низкоэнергетических (≤ 1 КэВ) ионных пучков для управления процессом роста плёнок. Применительно к

полупроводниковым плёнкам пионерские работы в данном направлении были выполнены в 70-х годах в Японии Itoh T. et al [7] и в СССР Лютовичем А.С. [8] и Александровым Л. Н. с коллегами [9, 10, 11]. В указанных работах была показана связь между значением энергии ионов в пучке и различными процессами на поверхности при гомоэпитаксии кремния, такими, как разрушение окисного слоя, физическая адсорбция и хемосорбция, поверхностная диффузия. Это позволило сделать выводы о возможных механизмах действия ионного пучка на зарождение и рост эпитаксиальных слоев. Было показано, что в местах соударения иона с кристаллизующейся поверхностью образуются точечные дефекты и локальные области возбуждения атомов, которые становятся центрами зарождения островков новой фазы. Ионы, сталкиваясь с центрами трехмерного роста, могут разрушать их, обеспечивая условия для двумерного роста. Кроме того, ионный пучок энергетически подпитывает процессы диффузии и фазового перехода [11]. Интерес к ионно-стимулированной эпитаксии обусловлен тем, что исследование роста кристаллов в условиях внешних воздействий способствует лучшему пониманию элементарных актов этого процесса и выяснению условий его оптимизации.

В настоящее время считается установленным, что рост плёнок в присутствии низкоэнергетического ионного облучения (НИО) характеризуется снижением температуры эпитаксии, уменьшением высоты рельефа поверхности, увеличением коэффициента встраивания примеси в растущую плёнку, сменой механизма роста плёнки. НИО успешно применяется для контролируемого изменения механических, оптических, электрических и структурных свойств тонких плёнок различных материалов [12]. В кремниевой технологии НИО используется для ионной очистки и планаризации поверхности [13], для низкотемпературной эпитаксии кремния [14,15] и нанесения диэлектрических покрытий [16], для ионного легирования непосредственно в процессе осаждения плёнок [4,5]. Исследования показывают, что при оптимальном выборе энергии и плотности ионного потока удается получать структурно совершенные слои при температурах значительно меньших, чем в

традиционных способах получения плёнок. Но, несмотря на достаточно широкое использование НИО, его роль в процессах плёнокообразования остаётся мало изученной. Это связано с тем, что ионное воздействие сопровождается целым комплексом сложных физических процессов, происходящих одновременно в приповерхностной области растущей плёнки и взаимно влияющих друг на друга.

Компьютерное моделирование, которое позволяет учесть одновременно действие нескольких факторов ионного воздействия и их взаимосвязь, является незаменимым в решении данной проблемы. Однако, здесь возникает трудность совместного рассмотрения процессов, вызванных ионным облучением, и процессов, активируемых температурой. Дело в том, что при температурах и скоростях осаждения плёнок, используемых в эксперименте, характерные времена протекания этих процессов могут различаться на 12-15 порядков [17], что сильно ограничивает возможности проведения модельных расчётов в реальном масштабе времени.

К нерешённым проблемам низкотемпературной эпитаксии полупроводников из ионных пучков можно отнести вопрос о механизмах увеличения поверхностной подвижности атомов в условиях ионного облучения. На основе представлений о баллистическом массопереносе или локальном нагреве поверхности не удаётся объяснить экспериментальные зависимости коэффициента поверхностной диффузии от параметров ионного облучения [18]. Другой важной проблемой, требующей решения, является вопрос о роли реконструкции поверхности и, в частности, ионно-стимулированной реконструкции [19] в процессах эпитаксиального роста.

Существенное продвижение в понимании процессов, происходящих при эпитаксии из ионно-молекулярных пучков, может обеспечить импульсное воздействие пучком низкоэнергетических ионов [20]. Кратковременное ионное воздействие в процессе роста плёнок даёт ряд возможностей по сравнению с непрерывным ионным облучением, а именно:

- в выбранные моменты времени менять скорости основных процессов на поверхности растущей плёнки (скорости зарождения, диффузии);
- не вводя значительных нарушений, передавать атомам поверхности дополнительную энергию;
- исследовать эффекты последствия.

Таким образом, импульсное ионное воздействие может стать тем инструментом, который позволит выявить, какой процесс в данный момент является определяющим на поверхности растущей плёнки, и тем самым установить природу происходящих изменений на поверхности.

Цель диссертационной работы состоит в выявлении основных физических процессов, определяющих рост кремниевых слоев при низкоэнергетическом ионном воздействии в условиях эпитаксии из молекулярных пучков.

Для достижения указанной цели в работе решались следующие **задачи**:

1. Установить методом компьютерного моделирования характер морфологических перестроек поверхности кремния с ориентацией (111) и (100) при взаимодействии с низкоэнергетическими ионами.
2. Провести экспериментальные исследования морфологии и реконструкции поверхности кремния при импульсном воздействии низкоэнергетическими ионами в процессе гомоэпитаксии из молекулярного пучка в зависимости от степени заполнения поверхностного монослоя, соотношения ионного и молекулярного потоков, температуры подложки.
3. Изучить механизмы морфологических перестроек на поверхности кремния, вызванных импульсным воздействием пучком ускоренных частиц в процессе роста из молекулярного пучка.
4. Разработать модель гомоэпитаксии кремния из молекулярного пучка в условиях облучения низкоэнергетическими ионами.

Научная новизна настоящей работы заключается в следующем:

1. Решена нестационарная задача морфологической перестройки поверхности кремния с ориентацией (111) и (100), вызванной ударом низкоэнергетического иона Хе (энергия 225 эВ, угол падения относительно нормали к поверхности 60^0) в области температур 700-1000 К. Установлено, что единичное воздействие приводит к образованию вакансионного кластера, в котором вакансии сосредоточены преимущественно в первом атомном слое, генерации адатомов и распылению материала.

2. Проведено исследование динамики морфологических изменений поверхности кремния при облучении низкоэнергетическими ионами на основе решения систем дифференциальных уравнений, учитывающих диффузию и взаимодействие адатомов с вакансионными кластерами, вводимыми ионным пучком. Впервые предсказано, что при распылении вицинальной поверхности кремния в определенной области температур, которая зависит от плотности ионного потока, должны наблюдаться осцилляции скорости движения моноатомных ступеней. Установлено, что эти осцилляции обусловлены взаимодействием ступеней с поверхностными вакансионными кластерами, вводимыми ионным облучением.

3. Развита методика к экспериментальному исследованию изменения морфологии/сверхструктуры поверхности в процессе эпитаксии из ионно-молекулярных пучков, заключающийся в импульсном ионном воздействии на поверхность на различных стадиях роста по количеству осаждённого материала с *in situ* контролем состояния поверхности методом дифракции быстрых электронов (ДБЭ). На основе данного подхода впервые экспериментально обнаружен эффект уменьшения шероховатости поверхности растущего слоя после импульсного воздействия пучком низкоэнергетических ионов в процессе эпитаксии Si(111) из молекулярного пучка.

4. Впервые экспериментально обнаружен сверхструктурный фазовый переход $(5 \times 5) \Rightarrow (7 \times 7)$ под действием импульсного ионного воздействия в условиях эпитаксии Si(111) из молекулярного пучка.

5. Предложена модель морфологических изменений на поверхности Si(111) при импульсном воздействии пучком низкоэнергетических ионов в процессе гомоэпитаксии из молекулярного пучка. В основе модели лежит представление об увеличении коэффициента поверхностной диффузии адатомов в результате ионно-стимулированной реконструкции от (5x5) к (7x7).

Практическая значимость работы.

Исследованный класс явлений фактически обеспечивает развитие метода молекулярно-лучевой эпитаксии с синхронизацией структурных превращений импульсным ионным воздействием. Этот метод позволяет получать более резкие границы при росте модулированных структур, а также управлять размерами островков при гетероэпитаксии, например Ge на Si при создании структур с квантовыми точками [21].

Полученные в работе результаты моделирования морфологических перестроек поверхности кремния под действием ионного облучения могут быть полезны при рассмотрении процессов плазмо-химического и ионного травления поверхности кремния, а также эпитаксии из ионно-молекулярных пучков. Созданный пакет программ позволяет моделировать процессы на поверхности при ионно-стимулированной эпитаксии и выделять определяющие факторы при различных условиях ионного облучения. Это дает возможность проводить предварительное моделирование экспериментальной ситуации и оптимизировать условия воздействия ионным пучком в процессе МЛЭ.

На защиту выносятся:

1. Развитый подход к экспериментальному исследованию изменения морфологии/сверхструктуры поверхности кремния в процессе эпитаксиального роста с одновременным облучением низкоэнергетическими ионами, заключающийся в импульсном ионном воздействии на различных стадиях заполнения поверхностного монослоя с контролем *in situ* состояния поверхности с помощью метода дифракции быстрых электронов.

2. Эффект снижения шероховатости ростовой поверхности под действием кратковременного (0.5-1 с) воздействия пучком низкоэнергетических (80-145 эВ) ионов Kr^+ в процессе МЛЭ Si(111) в области малых доз ионного облучения ($10^{11} \div 10^{12} \text{ см}^{-2}$) и экспериментальные результаты по зависимости обнаруженного эффекта от степени заполнения поверхностного монослоя, температуры подложки и количества осаждённых монослоёв:

- шероховатость поверхности растущего слоя уменьшается, если импульсное ионное воздействие проводится при степени заполнения поверхностного монослоя θ в области от 0.5 до 1. Максимальный эффект достигается при $\theta \approx 0.8$. Для начальных стадий заполнения монослоя ($\theta < 0.5$) эффект отсутствует;
- эффект усиливается с ростом температуры до 400°C , а затем - ослабляется и при температуре выше 500°C эффект практически исчезает;
- по мере увеличения числа осаждённых монослоёв эффект сглаживания рельефа поверхности растущей плёнки импульсным ионным воздействием ослабевает.

3. Обнаружение сверхструктурного фазового перехода на поверхности Si(111) под действием импульсного ионного воздействия от смеси сверхструктур (5x5) и (7x7) к преимущественно одной сверхструктуре (7x7) в условиях МЛЭ и экспериментальные результаты по зависимости ионно-стимулированной реконструкции от температуры:

- доля поверхностной фазы (7x7), вводимая ионным облучением, увеличивается с ростом температуры и достигает максимума при 400⁰С, выше этой температуры относительный вклад ионно-стимулированной реконструкции уменьшается.

4. Модель морфологической перестройки поверхности Si(111) под действием импульсного воздействия пучком низкоэнергетических ионов в процессе гомоэпитаксии из молекулярного пучка. Модель учитывает генерацию адатомов и поверхностных вакансионных кластеров и изменение поверхностной сверхструктуры в результате ионного облучения поверхности. В основе модели лежит представление об увеличении коэффициента поверхностной диффузии адатомов в результате ионно-стимулированной реконструкции (5x5)⇒(7x7).

5. Результаты моделирования распыления вицинальной поверхности кремния низкоэнергетическими ионами:

- в определенной области температур, зависящей от плотности ионного потока, наблюдаются осцилляции скорости движения моноатомных ступеней и степени заполнения поверхностного слоя;
- осцилляции скорости движения ступеней и степени заполнения поверхностного слоя обусловлены взаимодействием ступеней с поверхностными вакансионными кластерами, вводимыми ионным облучением.

Глава 1. Эпитаксия из ионно-молекулярных пучков.

(Обзор литературы).

§ 1.1. Физические предпосылки для управления процессом роста плёнок с помощью ионных пучков.

Традиционный способ управления морфологическими и структурными свойствами растущих плёнок, получаемых осаждением из газовой фазы или молекулярных пучков, состоит в изменении температуры подложки и скорости осаждения материала [22,23,24]. Есть дополнительные возможности управления в рамках стандартных способов роста плёнок: осаждение на ростовую поверхность примеси со специальными свойствами (сурфактантов) [24,25,26], использование в качестве подложек вицинальных поверхностей с различной плотностью моноатомных ступеней [24,27,28]. Однако развитие современной микроэлектроники требует дополнительных, более прецизионных методов управления процессом роста.

Независимую возможность в управлении процессом роста плёнки способно дать воздействие пучком ионов на её поверхность во время эпитаксии. [14,15,29,30,31,32]. При этом к уже существующим параметрам управления добавляются энергия ионного пучка, его плотность и длительность воздействия. Меняя эти параметры, можно эффективно влиять на процессы на поверхности растущей плёнки.

1.1.1. ЭНЕРГИЯ ИОННОГО ПУЧКА.

Энергия ионного пучка – основной параметр, определяющий взаимодействие ионов с поверхностью. При достаточно больших энергиях воздействие пучком может привести к генерации протяженных дефектов в объёме 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 0.1эВ. Использование «сверхтепловых» частиц при осаждении плёнок приводит к ускорению диффузии и к эффективному “отжигу” дефектов кристаллической структуры в растущих плёнках в области низких температур. Требование к понижению температуры эпитаксии возникает при выращивании многослойных полупроводниковых структур с максимально резкими профилями легирования и границами раздела между слоями.

В работах Рабалайса и др. (Rabalais et al.) [14,15] методами обратного резерфордовского рассеивания, просвечивающей электронной микроскопии и дифракции быстрых электронов исследовалась зависимость степени кристалличности плёнок кремния, выращиваемых методом прямого осаждения из ионного пучка на Si(100) подложку от энергии ионов и температуры подложки. Было установлено, что при энергии ионного пучка близкой к 20 эВ наблюдается наибольший эффект в снижении температуры эпитаксии кремния. При данном значении энергии рост совершенных кристаллических плёнок кремния наблюдался вплоть до температуры 160° С. Авторы отмечают, что для той же температуры в отсутствии низкоэнергетического ионного облучения наблюдается рост полностью разупорядоченных аморфных слоёв кремния. Для сравнения, температура аморфизации кремния при обычной эпитаксии из молекулярного пучка составляет около 350°С [33]. Зависимость эффекта кристаллизации от энергии ионного пучка достаточно сильна. При отклонении энергии от оптимального значения (20 эВ) на величину больше 10 эВ наблюдается существенное уменьшение доли кристаллической фазы в выращиваемых слоях кремния. При повышении температуры требование к точности задания энергии пучка ослабляется.

Значение оптимальной энергии напрямую связано с зависимостью процесса дефектообразования от энергии ионов (см. рис.1). С увеличением энергии ионного пучка концентрация вводимых дефектов растёт, причем зависимость имеет сильно немонотонный характер. При достижении некоторой пороговой энергии скорость введения дефектов быстро возрастает. Для низкотемпературной эпитаксии Si величина оптимальной энергии

оказывается близкой по величине к пороговой энергии смещения, то есть к энергии, необходимой для формирования стабильной пары дефектов вакансия – междоузлие (пары Френкеля) [34,35].

Энергия ионного пучка влияет не только на кристаллическую структуру, но и на морфологию поверхности выращиваемых плёнок. Исследования с помощью метода ДБЭ процесса гомоэпитаксии кремния из ионного пучка, выполненные в работе [14], показали, что при оптимальной энергии ионов высота поверхностного рельефа минимальна, и рост происходит по двумерно-слоевому механизму. Тогда как для энергий ионного пучка больше и меньше оптимального значения поверхность характеризуется трёхмерным рельефом, высота которого быстро возрастает по мере осаждения кремния.

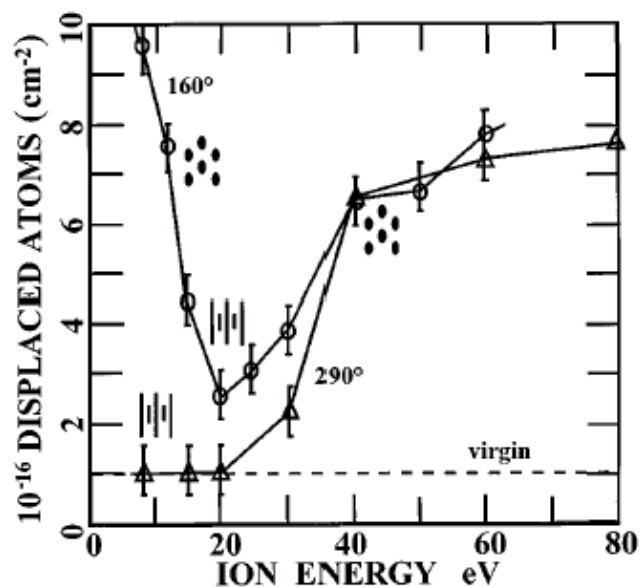


Рис. 1. Плотность дефектов кристаллической структуры в эпитаксиальных плёнках Si на Si(100), сформированных осаждением из ионного пучка при двух температурах подложки: 160⁰C и 290⁰C, в зависимости от энергии ионов ²⁸Si⁺. Толщина осаждённого слоя кремния во всех случаях составляла 20 нм. Число дефектов определялось методом обратного резерфордского рассеивания и соответствовало числу атомов, смещённых из узловых положений кристаллической решётки кремния [14].

Полученные результаты по влиянию энергии ионного пучка на морфологию поверхности авторы объясняют стимуляцией поверхностной диффузии за счёт непосредственной передачи энергии ионов атомам поверхности. При энергиях ионного пучка меньше, чем энергия связи для кремния (≈ 8 эВ), число смещений поверхностных атомов мало, и в условиях низкой диффузионной подвижности адатомов рост происходит по трёхмерному механизму. С увеличением энергии ионного пучка (>10 эВ) подвижность адатомов на поверхности возрастает, что способствует встраиванию адатомов в границы ступеней и росту плёнки по двумерно-слоевому механизму. Однако, при достаточно больших энергиях ионного пучка (>35 эВ) кристаллическая структура приповерхностного слоя сильно нарушается, что способствует зарождению трёхмерных островков, накоплению дефектов и переходу к аморфной фазе по мере осаждения плёнки.

В работе Дегрута и др. (Degroote B. et al) [31] было также показано, что энергия ионного пучка сильно влияет на характерные размеры и плотность трёхмерных островков, формируемых на поверхности в процессе эпитаксиального роста. Исследования морфологии поверхности проводились методом сканирующей электронной микроскопии. Осаждение ионов Co^+ на подложку Ag(111) производилось при различных энергиях в диапазоне: 5 - 30 эВ. Было установлено, что по мере увеличения энергии ионного пучка плотность островков вначале возрастает, достигая максимума при энергии 10 эВ, а затем начинает падать. При энергии 10 эВ плотность островков составляла $8.7 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$, что примерно в 4 раза превышало поверхностную плотность островков, формируемых при осаждении из обычного молекулярного пучка (энергия ~ 0.1 эВ). При энергии 30 эВ плотность островков уменьшалась и составляла около $4 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$. Что касается размеров островков, то здесь зависимость от энергии была обратной. С увеличением энергии от 5 до 10 эВ средний размер основания и высота островков уменьшались, достигая минимальных значений при 10 эВ, а затем при энергиях > 10 эВ они начинали увеличиваться. На основе анализа микроскопических изображений поверхности был предложен ряд механизмов ионного

воздействия, позволяющих объяснить наблюдаемое изменение размеров и поверхностной плотности островков. По мнению авторов работы, при низких энергиях (≤ 10 эВ) определяющими процессами являются: во-первых, фрагментация островков, то есть разбивание островков на более мелкие островки при попадании в них ускоренных частиц; во-вторых, создание мест преимущественного зарождения островков прежде всего за счёт внедрения ионов Co^+ в приповерхностный слой подложки Ag(111). Оба эти процесса способствуют возрастанию плотности островков и уменьшению их размеров. Тогда как для более высоких энергий ионного пучка (> 10 эВ) начинает преобладать процесс диссоциации островков, вызванный прежде всего полным разрушением островков при попадании в них ионов и локальным нагревом поверхности вблизи мест падения ионов. Эффективность данного процесса возрастает с увеличением энергии ионного пучка. Уменьшение плотности островков и, соответственно, увеличение их размеров можно также объяснить увеличением длины миграции адатомов вдоль поверхности за счёт передачи им части энергии ионного пучка [36].

1.1.2. ПЛОТНОСТЬ ИОННОГО ПОТОКА.

Плотность ионного потока – второй параметр, позволяющий эффективно управлять процессами на поверхности, в частности, контролировать зарождение на поверхности. В работах Гусевой М.Б и др. [37,38] методом оптической микроскопии исследовалась начальная стадия роста металлических плёнок Zn на подложках Cu при одновременном облучении пучком Ar^+ 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 (рис.2). При плотностях, меньших некоторой критической величины, ионный пучок приводил к стимулированию зарождения островков, а при больших потоках – к подавлению зародышеобразования.

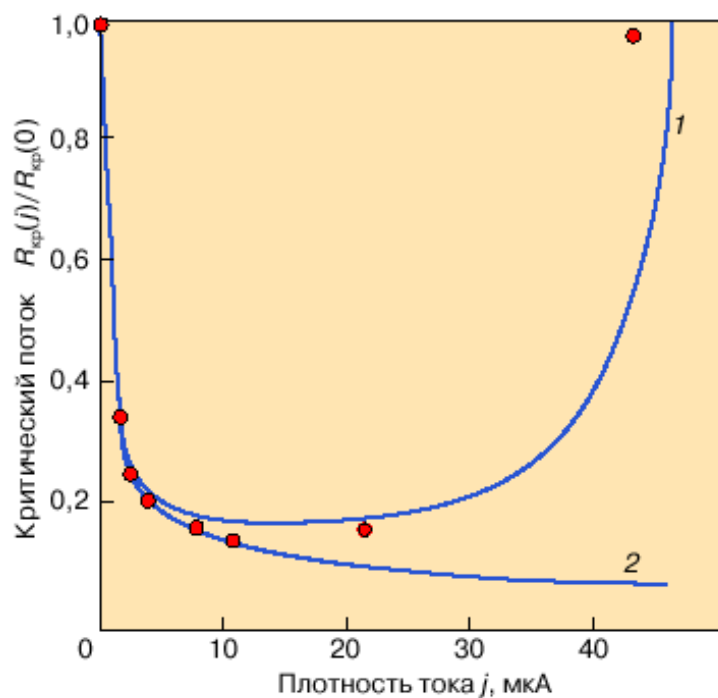


Рис. 2. Зависимость критического потока для зародышеобразования Zn на Cu от плотности ионного потока [37]. Кривая 1 соответствует теоретическому расчёту с учётом уменьшения концентрации активных центров зарождения за счёт возбуждения фононов (“радиационная тряска”) при столкновении иона с поверхностью. Кривая 2 – без учёта эффекта “радиационной тряски”.

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 [39].

Следует отметить, что увеличение плотности ионного потока оказывается во многом аналогичным увеличению энергии ионного пучка. Согласно теоретическим оценкам, сделанным в работе Гусевой [37], поверхностная плотность зародышей в условиях ионного облучения даётся формулой:

$$n_3^j = n_3^0 (1 + \sqrt{\gamma j E_{ion}}),$$

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. 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 [36], 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. Однако, характер полученных в работе зависимостей был скорее линейным, чем корневым. Это указывало на то, что в выбранных условиях эксперимента рекомбинация поверхностных дефектов сильно подавлена, и практически все поверхностные нарушения, служащие центрами преимущественного зарождения островков, сохраняются. Действительно, анализ микрорельефа поверхности, выполненный методом СТМ, показал, что центрами преимущественного зарождения островков являются небольшие кластеры адатомов, формируемые ионным пучком за счёт выбивания атомов из поверхности подложки. Причём концентрация адатомных кластеров, созданных ионным облучением в отсутствие осаждения из молекулярного пучка, сохранялась практически неизменной в процессе отжига поверхности вплоть до температуры 450K.

1.1.3. ДЛИТЕЛЬНОСТЬ ВОЗДЕЙСТВИЯ ИОННЫМ ПУЧКОМ.

Производимые ионным пучком изменения на поверхности зависят не только от энергии и плотности ионного пучка, но и длительности его воздействия. Импульсное воздействие дает дополнительные возможности влиять на кинетику роста, менять в выбранные моменты времени скорости основных процессов на поверхности растущей плёнки (скорости зарождения, диффузии), и, тем самым, изменять соотношение вкладов определяющих процессов на поверхности плёнки.

Воздействие импульсами заряженных частиц было использовано для управления механизмами роста металлических плёнок Ag/Ag(111) [20,40], Cu/Cu(111) [20,41], Pt/Pt(111) [36], Ni/Cu(111) [42].

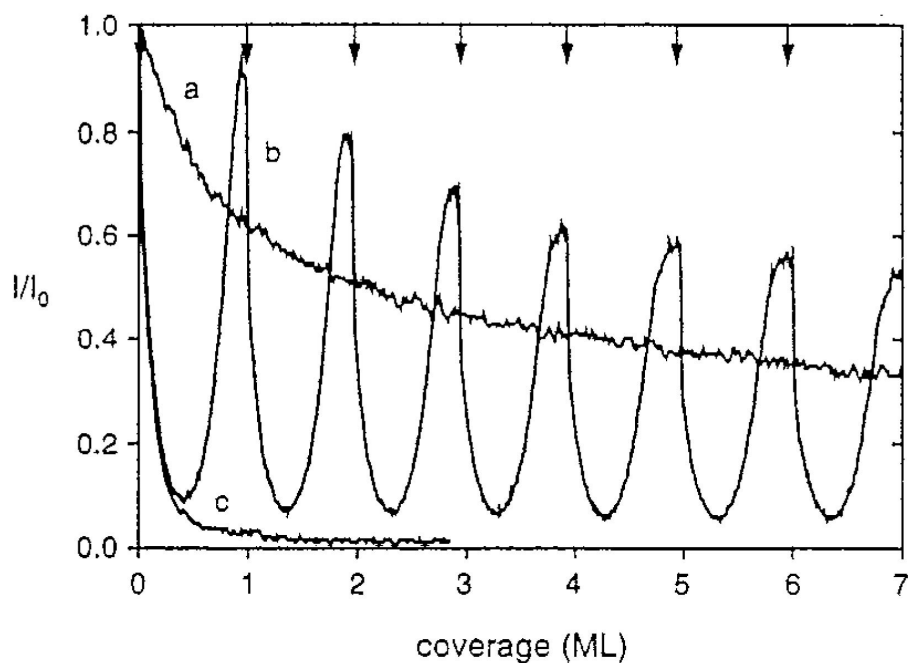


Рис. 3. Эволюция интенсивности отражённого от поверхности теплового пучка He в процессе гомоэпитаксии Ag/Ag(111) при температуре 300K. (a) Обычный рост. (b) Рост с одновременным импульсным облучением ионным пучком Ar^+ с энергией 600 эВ. Стрелками отмечены моменты ионного воздействия. Период воздействия 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) [20].

Так, применение импульсного пучка ионов Ag^+ с энергией 600 эВ при непрерывном осаждении Ag на поверхности Ag(111) приводило к изменению механизма роста плёнки: рост трехмерных островков при эпитаксии Ag из молекулярного пучка изменялся на двумерно-слоевой рост, если импульсное воздействие ионами осуществлялось с периодом, соответствующим осаждению одного монослоя (рис.3).

Для объяснения полученных результатов авторы указанных работ используют кинетическую модель эпитаксиального роста плёнок [43]. Эта модель имеет важное значение для интерпретации многих экспериментов по росту плёнок, поэтому здесь приводятся её основные положения.

Модель эпитаксиального роста .

Согласно этой модели, механизм роста плёнки полностью контролируется двумя кинетическими процессами: зарождением островков и межслоевой атомной диффузией. Рост может идти либо по двумерно-слоевому механизму, либо по трехмерному механизму в зависимости от типа островков, формирующих эпитаксиальный слой. Если эпитаксиальный слой полностью формируется только за счёт зарождения и разрастания двумерных островков высотой в один монослой, то это двумерно-слоевой механизм роста. Если на поверхности двумерных островков зарождаются островки следующего атомного слоя ещё до завершения предыдущего, то есть появляются трёхмерные островки, то считается, что рост идет по трехмерному механизму. Вероятность появления трехмерного островка зависит от среднего размера двумерного островка и барьера перехода адатома с поверхности двумерного островка на поверхность нижележащего завершённого слоя. Чтобы продемонстрировать, что эти два параметра определяют вероятность появления трёхмерного островка, рассмотрим один из адатомов, осажденный на поверхность эпитаксиального слоя (см. рис.4).

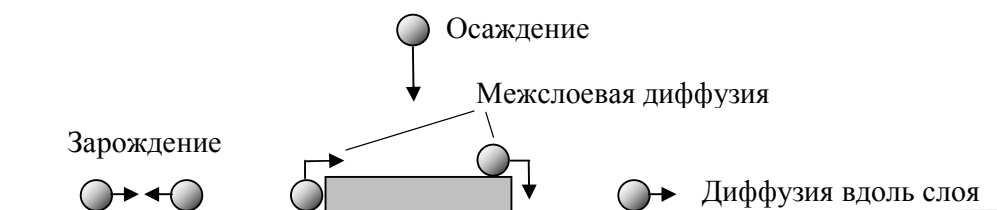


Рис. 4. Схема основных элементарных процессов, сопутствующих эпитаксиальному росту плёнки.

С некоторой вероятностью адатом может попасть на поверхность двумерного островка, либо за счёт прямого осаждения из молекулярного пучка, либо за счёт диффузионного перехода из нижележащего атомного слоя. Причем, чем больше размер двумерного островка, тем эта вероятность больше. Если размер островка мал, то адатом может быстро пересечь его поверхность и подойти к краю. Далее существует две возможности: отразиться от края островка и остаться на его поверхности или «соскочить» с островка на поверхность нижележащего атомного слоя. Вероятность этих двух событий определяется барьером перехода через границу островка, называемым барьером Швёбеля [44]. Если этот барьер намного выше барьера диффузии на гладкой поверхности, то адатом с большей вероятностью останется на поверхности двумерного островка, что может в дальнейшем привести к зарождению трехмерного островка. Если барьер перехода не так высок, то адатом может «соскочить» с края двумерного островка, продолжив диффузию по поверхности нижележащего слоя, и участвовать в формировании двумерных островков на его поверхности.

Теперь покажем, как механизм роста плёнки зависит от процесса зарождения двумерных островков. Возможность перехода адатома через границу островка напрямую зависит от размера двумерного островка: чем меньше островок, тем больше попыток у адатома преодолеть границу островка. Размер двумерного островка напрямую связан с плотностью

островков на поверхности: чем выше плотность, тем меньше средний размер островка. То есть, чем больше островков зарождается на поверхности, тем меньше их средний размер, тем легче адатомам, попавшим на поверхность двумерных островков, уйти с их поверхности в нижележащие атомные слои. Таким образом, чем выше плотность двумерных островков, тем менее вероятно образование трехмерного островка.

Зарождение островков на поверхности контролируется диффузионной длиной адатомов, под которой понимается средняя длина миграции адатома до акта взаимодействия с другим адатомом или с каким-либо структурным нарушением поверхности. Отсюда можно вывести понятие критического размера зародыша для трёхмерного островка. Существует некоторый критический размер двумерного островка, зависящий от барьера Швёбеля и от диффузионной длины адатомов на поверхности, начиная с которого возможно образование трёхмерного островка и переход к трёхмерному росту.

Итак, вероятность появления трехмерных островков зависит от барьера межслоевой диффузии и от плотности двумерных островков (или от их среднего размера). Управляя этими параметрами, можно эффективно контролировать механизм роста. Так, например, Швёбель предлагал использовать для этих целей примесь, внедряя её в границы островков или ступеней, и, тем самым, контролируемо изменять барьер межслоевой диффузии [44].

В металлических системах Pt/Pt(111), Ag/Ag(111), Cu/Cu(111), Ni/Cu(111) рост происходит преимущественно по трёхмерному механизму. Причина этого – высокий барьер межслоевой диффузии. Авторы работ [20,36,40,41,42] с помощью импульсного ионного воздействия стимулировали зарождение двумерных островков на поверхности, то есть увеличивали их плотность и уменьшали их средний размер. Уменьшение среднего размера приводило к увеличению вероятности ухода адатомов с поверхности двумерных островков. Увеличение плотности означало, что расстояние между островками сокращалось, и они успевали срастаться до начала образования трёхмерных островков. Механизм роста становился двумерно-слоевым.

Тот же самый эффект наблюдался при модуляции температуры подложки. В момент зарождения островков температура подложки понижалась, что приводило к увеличению скорости зарождения островков. Затем температура повышалась, что обеспечивало поддержку двумерно-слоевого механизма роста осаждаемой плёнки. Для объяснения наблюдаемых эффектов, в работе [45] была предложена концепция двух диффузионных подвижностей. По мнению авторов, смена механизма роста происходит из-за того, что подвижность адатомов (или их диффузионная длина) на стадии зарождения островков оказывается меньше диффузионной подвижности на последующих стадиях роста плёнки. Эту же концепцию авторы применили к объяснению эффекта импульсного воздействия ионным пучком на механизм роста плёнки. В рамках предложенной концепции, авторы также проверили возможность управления механизмом роста с помощью изменения скорости осаждения материала [20].

Для полупроводниковых систем возможность управления механизмом роста плёнки с помощью модуляции температуры и молекулярного потока была успешно продемонстрирована в пионерских работах [46,47]. Эксперименты проводились при гомоэпитаксии Si/Si(111), Ge/Ge(111) из молекулярных пучков. Контроль состояния поверхности и количества осаждённого материала осуществлялся с помощью дифракции быстрых электронов на отражение с фиксированием осцилляций интенсивности зеркального рефлекса при двумерно-слоевом механизме роста плёнки. В используемых экспериментальных условиях, период ДБЭ - осцилляций почти точно совпадал со временем осаждения одного монослоя [48]. В таких полупроводниковых системах, в отличие от рассмотренных выше металлических систем, рост происходит преимущественно по двумерно-слоевому механизму, то есть через последовательное зарождение и срастание двумерных островков. Однако, по мере увеличения толщины осаждаемой плёнки, происходит увеличение шероховатости её поверхности и при достаточно низких температурах может иметь место смена механизма роста плёнки: с двумерно-слоевого на

трёхмерный механизм роста. Для трёхмерного механизма роста осцилляции интенсивности отражённого электронного пучка исчезают и наблюдается монотонное уменьшение его интенсивности по мере осаждения плёнки. Авторы [46] 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. Последнее связано с тем, что на ростовой поверхности всегда присутствуют несовершенства, такие как, ступени, незаполненные участки поверхности, границы сверхструктурных доменов и др., скорость зарождения вблизи которых заметно отличается от скорости зарождения на атомарно гладкой поверхности [49,50]. Островки, которые зародились раньше, успевают вырасти до большего размера, чем те которые зародились позже. После определенного количества осаждённых монослоёв разброс увеличивается настолько, что для некоторых двумерных островков достигается критический размер, при котором становится возможным формирование трёхмерного островка, и происходит переход к трёхмерному росту. 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 [46] отмечают, 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.

Суммируя выше сказанное, можно заключить, что кратковременное изменение параметров ростовой системы, будь то температура, скорость осаждения или поток ионов, в моменты времени, соответствующие началу формирования каждого атомного слоя, стимулирует зарождение двумерных островков, увеличивая их плотность и однородность по размерам, и, таким образом, способствует росту по двумерно-слоевому механизму.

§ 1.2. Физические процессы лежащие в основе ионного воздействия на рост плёнок.

В основе влияния ионного облучения на рост и свойства эпитаксиальной плёнки лежат следующие процессы: ионно-стимулированное зарождение (и диссоциация островков), ионно-стимулированная диффузия, ионно-стимулированная реконструкция поверхности, разогрев поверхности, генерация и отжиг дефектов. В зависимости от параметров ионного облучения любой из указанных процессов может стать определяющим для результирующих свойств плёнки. Проблема выделения определяющего фактора при тех или иных условиях облучения является основной для понимания физических причин влияния ионного пучка на рост плёнок. Особенность данной проблемы состоит в том, что она может быть решена, только комплексно с учётом взаимосвязи факторов ионного воздействия.

1.2.1. ИОННО-СТИМУЛИРОВАННОЕ ЗАРОЖДЕНИЕ.

В упомянутых в § 1.2 работах Гусевой с соавторами [37,38] было установлено, что ионное облучение приводит к стимуляции зародышеобразования. Авторы объясняют это с термодинамической точки зрения. Для формирования зародыша необходимо затратить энергию, равную алгебраической сумме работы для образования поверхности и объема кристаллита.

Для размеров зародышей, меньших критического, поверхностный член превышает объёмный, система неустойчива, образование зародыша маловероятно. При размерах больше критического картина меняется: образование зародыша становится энергетически выгодным благодаря выигрышу в объёмной свободной энергии, поскольку увеличение поверхностной энергии пропорционально квадрату, а объёмной - кубу размера зародыша. Поэтому образование островка размером большим критического сопровождается уменьшением полной свободной энергии системы.

Поверхностная энергия зародыша на подложке записывается в виде:

$$\Sigma_i \sigma_i S_i = \sigma_1 S_1 + \sigma_{12} S_2 - \sigma_2 S_2, \quad (1.1)$$

здесь S_1 , S_2 – площадь внешней поверхности островка и площадь контакта островка с подложкой; σ_1 , σ_2 , σ_{12} – удельные свободные энергии поверхностей раздела: конденсат – пар; подложка – пар; конденсат – подложка (см. рис.5). Член $\sigma_2 S_2$ входит в выражение (1.1) со знаком минус, поскольку при образовании зародыша исчезает участок свободной поверхности подложки площадью S_2 .

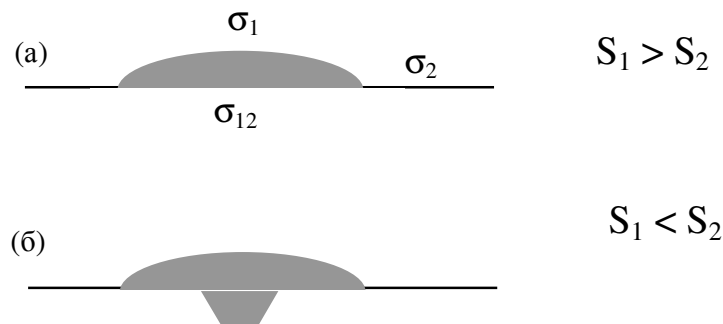


Рис.5. Образование зародыша на плоской поверхности (а) и на поверхностном дефекте – полости (б).

Как правило $\sigma_{12} < \sigma_2$, поэтому, если на поверхности присутствует некая неоднородность в виде ямки или выступа, то энергия зародышеобразования уменьшается за счет увеличения площади поверхности под зародышем S_2 (рис.5 б). То есть, на шероховатой поверхности зародышеобразование более энергетически выгодно, чем на идеальной гладкой поверхности.

Прямое экспериментальное подтверждение преимущественного зарождения на дефектах типа вакансионных кластеров было получено методом сканирующей электронной микроскопии группой Голдфарба и др. (Goldfarb et al.) из Оксфорда [51] при исследовании гетероэпитаксии Ge/Si(100). В процессе роста они наблюдали зарождение трехмерных островков на ямках, присутствующих на поверхности. Дело в том, что Ge имеет постоянную решётки на 4% большую, чем у Si, поэтому в процессе роста плёнки Ge на подложке Si(100) в ней возникают напряжения несоответствия, приводящие к повышению свободной энергии системы. Система стремится понизить свою энергию либо за счёт изменения атомной структуры и геометрии (морфологии) поверхности, либо за счёт введения дислокаций в объём растущей плёнки. Исследования показывают, что на первом этапе происходит переход от димеризованной поверхности (2×1) к поверхности с реконструкцией типа $(2 \times N)$, содержащей димерные вакансии. Затем происходит второй переход $(2 \times N) \rightarrow (M \times N)$. В результате на поверхности формируется двумерная $(M \times N)$ сетка димерных вакансий. Наличие рядов поверхностных вакансий способствует частичной релаксации упругой энергии плёнки Ge. На следующем этапе система понижает свою энергию за счёт формирования ямок на поверхности. В принципе, на этом этапе понижение энергии может происходить и за счёт формирования трехмерных островков, но как показывают теоретические расчёты [52], в случае формирования ямок выигрыш в энергии оказывается несколько большим. И уже после формирования ямок при дальнейшем осаждении материала на поверхности появляются трёхмерные островки. Детальные исследования методом СТМ в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100) показали, что трёхмерные островки зарождаются

преимущественно на тех ямках, за счёт которых система понижала энергию на предыдущих этапах роста.

Микроскопические исследования [20,36,53], а также расчёты методом молекулярной динамики [54,55] показывают, что облучение низкоэнергетическими ионами поверхности твердого тела формирует на ней дефекты специального вида, а именно, поверхностные вакансионные кластеры (ямки) и адатомные скопления (выступы), средний размер и форма которых зависят от энергии, массы ионов и угла их падения к поверхности. Из общего рассмотрения следует, что именно такие поверхностные дефекты могут служить центрами преимущественного зарождения островков при росте плёнки. Результаты исследований эпитаксиального роста на предварительно облучённых поверхностях полностью подтверждают это.

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 [32]. В случае осаждения Ge на предварительно облучённую поверхность GaAs(110) также наблюдалось увеличение плотности и уменьшение размера двумерных островков Ge [56]. 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. Подобные исследования, выполненные для гомоэпитаксиальных систем Pt/Pt(111), Ag/Ag(111) и Cu/Cu(111) [20,36], показали, что центрами преимущественного зарождения островков служат адатомные кластеры, формируемые при облучении низкоэнергетическими ионами инертных газов.

Стабильность формируемых ионным пучком адатомных кластеров оказывается сильно зависящей от температуры [36]. При исследовании гомоэпитаксии Si/Si(100) [53] было обнаружено, что облучение ионами Xe^+ с энергией 225 эВ, приводит к формированию на поверхности как адатомных, так и вакансионных кластеров, если облучение проводить при температурах ниже 370°C . Тогда как для более высоких температур формирования адатомных кластеров в процессе облучения не наблюдалось. Это указывает на то, что при достаточно высоких температурах роста эффект ионно-стимулированного зарождения может и не наблюдаться.

1.2.2. ИОННО-СТИМУЛИРОВАННАЯ ДИССОЦИАЦИЯ ОСТРОВКОВ.

А) Ионно-стимулированный распад двумерных островков.

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 [57,58]. Как показывают исследования, данный процесс может оказывать заметное влияние на морфологию поверхности в процессе роста плёнки. Так в работах Бедроссиана и др. (Bedrossian et al.) [59,60] 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. Исследования проводились методом ДБЭ, который позволял анализировать атомную структуру и морфологию ростовой поверхности. При осаждении из молекулярного пучка наблюдались осцилляции интенсивности зеркального рефлекса с периодом, равным времени осаждения одного монослоя, что указывало на двумерно-слоевой механизм роста плёнки. В выбранных дифракционных условиях увеличение интенсивности отраженного электронного пучка соответствовало уменьшению шероховатости ростовой поверхности и наоборот. Максимум осцилляции интенсивности соответствовал моменту завершения формирования монослоя,

когда поверхность наиболее гладкая, тогда как минимум соответствовал заполнению монослоя примерно на половину (рис.6). По мере осаждения плёнки осцилляции интенсивности затухали и, начиная с некоторой толщины, интенсивность становилась практически постоянной. Это означало, что на поверхности установилось квазиравновесное состояние, характеризуемое стационарной шероховатостью поверхности.

В работе [59] исследовалась эволюция морфологии поверхности Ge(100) в зависимости от соотношения между плотностями молекулярного и ионного потоков. Оказалось, что существует оптимальное соотношение, при котором отражение электронного пучка от поверхности наибольшее, а шероховатость поверхности, соответственно, наименьшая. Было установлено, что это оптимальное соотношение соответствует условиям, при которых скорость осаждения материала в точности равняется скорости распыления поверхности ионным пучком.

Авторы указанной работы 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. Процесс диссоциации адатомных островков вблизи поверхностных вакансионных кластеров, созданных низкоэнергетическим (600 эВ) ионным пучком Ag^+ , наблюдался напрямую методом СТМ на поверхности Ag(111) [20]. Очевидно, что чем выше концентрация поверхностных вакансий, тем эффективней будет работать данный механизм. Это условие хорошо выполняется при распылении, поскольку в этом случае скорость генерации поверхностных вакансий превышает скорость генерации адатомов ионным пучком. Действительно, в проводимых экспериментах коэффициент распыления составлял ≈ 1 .

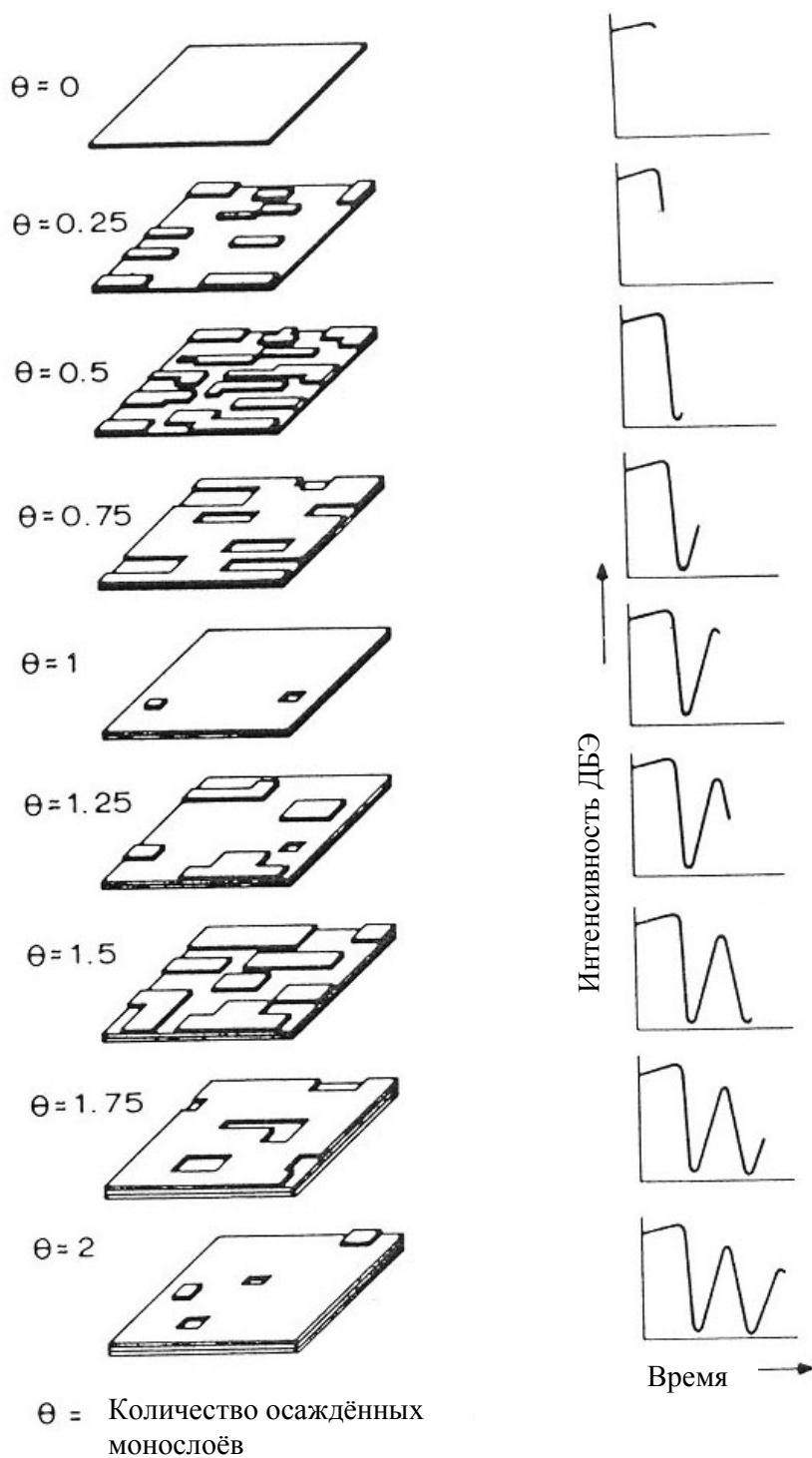


Рис.6 Соответствие между поверхностной морфологией и осцилляциями интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ на различных стадиях роста по количеству осаждённого материала при двумерно-слоевом механизме роста плёнки [135].

Второй механизм включает в себя процесс удаления адсорбированных атомов примеси либо за счёт прямой передачи им энергии налетающих ионов, либо за счёт локального разогрева поверхности вблизи мест падения ионов. Дело в том, что на поверхности при любой степени очистки всегда присутствует некоторое количество загрязняющих примесей, наличие которых способствует гетерогенному зарождению трёхмерных островков и, соответственно, увеличению шероховатости ростовой поверхности. Авторы отмечают, что ионная очистка поверхности в процессе роста плёнки наиболее эффективна в области низких температур, когда термостимулированная десорбция примесных атомов сильно затруднена.

Установленная в работе [59] зависимость стационарной шероховатости поверхности от соотношения молекулярного и ионного потоков позволила авторам сделать вывод, что первый из предложенных механизмов является определяющим. Поскольку второй механизм ионного воздействия на морфологию ростовой поверхности (эффект “выглаживания” поверхностного рельефа) зависел бы только от скорости удаления примеси, то есть, от плотности ионного потока и не зависел бы от скорости осаждения.

«Обратная» эпитаксия.

В работе [60] был также обнаружен другой интересный эффект, отражающий характер взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью твёрдого тела. В отсутствие осаждения из молекулярного пучка при облучении поверхности Si(100) ионами Xe^+ с энергией 200 эВ наблюдались осцилляции интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ, по виду очень похожие на осцилляции интенсивности при двумерно-слоевом механизме роста плёнки (см. рис.7). Период осцилляций был равен времени распыления одного монослоя поверхности Si(100).

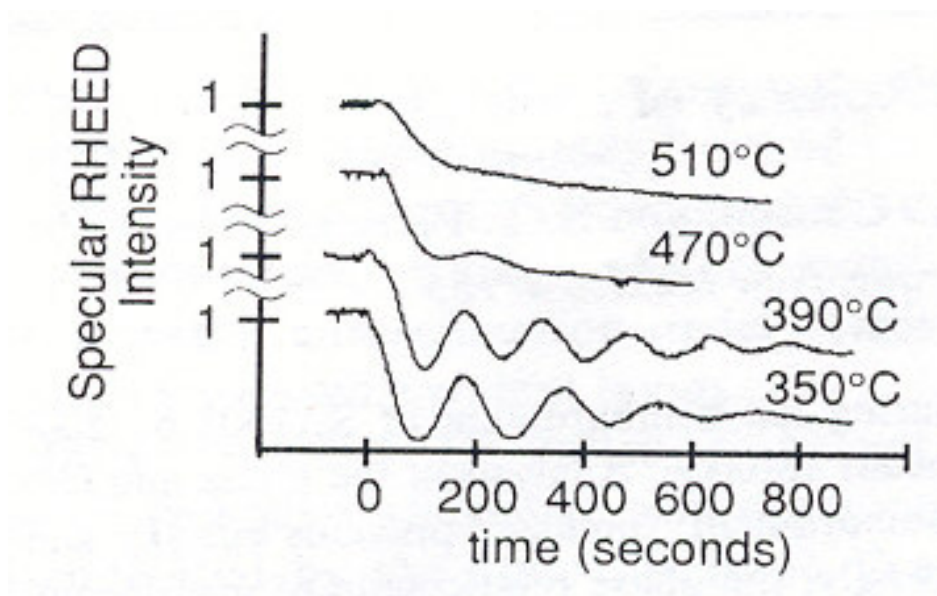


Рис. 7. Осцилляции интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ в процессе послойного распыления поверхности Si(100) пучком ионов Xe^+ с энергией 200 эВ [60].

Это могло означать, что при облучении низкоэнергетическим ионным пучком поверхности полупроводника происходит её послойное распыление в режиме подобном двумерно-слоевому росту плёнки. Температурная зависимость обнаруженных осцилляций также указывала в пользу данной аналогии. Это явление получило название «обратной эпитаксии» и впервые было обнаружено на поверхности металлов [61]. Считается, что низкоэнергетические ионы при взаимодействии с твердым телом производят структурные изменения преимущественно в поверхностном слое толщиной 1-2 монослоя, оставляя практически неизменной объемную часть материала. Наблюдаемые на поверхности Si(100) изменения авторы [60] объясняли диффузией и взаимодействием одиночных поверхностных вакансий, которые при определённых условиях по температуре и скорости распыления ионным пучком могли формировать на поверхности двумерные вакансионные островки аналогично зарождению двумерных адатомных островков при эпитаксии из молекулярного пучка. Предполагалось, что подвижность поверхностных вакансий в точности равна диффузионной подвижности адатомов. Дальнейшие исследования [53,62,63] методом СТМ подтвердили, что, действительно, послойное удаление кремния низкоэнергетическим ионным пучком инертного газа может происходить посредством образования и последующего срастания поверхностных вакансионных кластеров моноатомной глубины. Причём плотность и, соответственно, размер вакансионных островков зависели от температуры поверхности подобно плотности и размеру двумерных адатомных островков, формируемых в процессе осаждения из молекулярного пучка. Следует заметить, что предположение авторов [60] о равенстве подвижностей вакансий и адатомов является дискуссионным и требующим дополнительного обоснования. Тем более, что для поверхности Si(100) методом СТМ было получено прямое экспериментальное подтверждение о более низкой подвижности поверхностных вакансий [64]. Однако, в данной работе исследовалась миграция равновесных (генетических) поверхностных вакансий, которые формируются в результате тепловых флуктуаций. Тогда как в работах Бедроссиана

поверхностные вакансии создавались в процессе ионного облучения, то есть, являлись неравновесными, и поэтому их подвижность могла существенно отличаться от подвижности равновесных вакансий, как это наблюдается для вакансий объёме кристалла [34,65].

Б) Ионно-стимулированный распад трёхмерных островков.

В ряде работ [39,66,67] 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.

Казалось бы, данный результат можно объяснить ионной стимуляцией зарождения двумерных островков, которая, как было показано в §1.1.3, может приводить к уменьшению среднего размера двумерного островка до размера меньше критического, когда формирование трёхмерного островка оказывается невозможным. Однако, в условиях непрерывного ионного облучения этот механизм уменьшения поверхностной шероховатости может не работать. Во-первых, непрерывное ионное облучение в процессе роста плёнки вызывает формирование центров преимущественного зарождения на всей поверхности, включая поверхность уже зародившихся двумерных островков, что способствует появлению трёхмерных островков на базе двумерных островков, размер которых меньше критического. Во-вторых, облучение поверхности на всех стадиях роста плёнки, а не только на стадии зарождения двумерных островков, будет приводить к десинхронизации зарождения и, следовательно, к «уширению» распределения островков по размерам по мере роста плёнки, что также способствует переходу к трёхмерному росту. Так, в процессе гомоэпитаксии $\text{Ag}/\text{Ag}(111)$ [20] непрерывное облучение низкоэнергетическими ионами способствовало росту трёхмерных островков (рис. 3с). Тогда как импульсное облучение в моменты,

соответствующие зарождению двумерных островков следующего монослоя, приводило к росту плёнки по двумерно-слоевому механизму (рис. 3b).

Следовательно, должен быть другой механизм непрерывного ионного воздействия на процесс роста плёнки, приводящий к подавлению зарождения трёхмерных островков. Для случая гетероэпитаксии $\text{Ge}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Si}(100)$ [39] с одновременным облучением ионами Ar^+ с энергией 300 эВ, таким механизмом может быть диссоциация островков в присутствии большой концентрации поверхностных вакансий, создаваемых в процессе распыления материала ионным пучком, или разрушение трёхмерных островков, вызванное 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 данном эксперименте (ионный поток составлял около 10^{14} ионов/(см²с)). Возможно, что при меньших плотностях ионного потока вступили бы в силу другие факторы ионного воздействия, и результирующая картина могла быть иной. Увеличение диффузионной подвижности адатомов, вызванное ионным облучением, должно было бы приводить к обратному эффекту, а именно, к стимуляции образования трёхмерных островков в процессе гетероэпитаксии. Ионная стимуляция зарождения трёхмерных островков наблюдалась при гетероэпитаксии $\text{Ge}/\text{Si}(111)$ [21], где плотность ионного потока составляла около 10^{12} ионов/(см²с).

1.2.3 ИОННО-СТИМУЛИРОВАННАЯ ДИФфуЗИЯ.

Поверхностная диффузия является одним из определяющих процессов при эпитаксиальном росте плёнки. Обычно коэффициент поверхностной диффузии описывается Аррениусовским законом:

$$D = D_0 \exp(-E_D/kT), \quad (1.2)$$

где $D_0 = \nu_0 \exp(\Delta S/k)$. Здесь ΔS , E_D – энтропия и энергия активации диффузии, а множитель ν_0 имеет смысл частоты попыток поверхностных атомов совершить диффузионный переход.

Диффузионный массоперенос по поверхности может включать в себя совокупность следующих процессов:

- 1) миграцию адатомов по гладкой поверхности;
- 2) захват адатомов на границы островков, ступеней или поверхностных вакансионных кластеров (обратных островков);
- 3) отрыв адатомов из связанного положения на границах островков, ступеней, либо из приповерхностного слоя.

Каждый процесс характеризуется своей энергией активации и энтропией. Как правило, наиболее энергозатратный процесс – это процесс отрыва атомов из приповерхностного слоя. Поэтому при понижении температуры число таких событий быстро уменьшается. Ионное облучение может облегчить выход адатомов из связанного состояния, либо напрямую выбивая атомы на поверхность, либо возбуждая колебания кристаллической решетки и, тем самым, повышая вероятность отрыва. При достаточно больших плотностях ионного пучка облучение может привести к поверхностному нагреву кристалла, что также способствует преодолению энергетического барьера. В ряде работ отмечается, что действие ионного пучка проявляется только после того, как энергия пучка превысит пороговое значение [14,18,68]. Это свидетельствует о том, что ионное облучение влияет именно на выход адатомов из приповерхностного слоя. При дальнейшем повышении энергии ионы могут передать избыточную энергию напрямую выбиваемым атомам. Адаом приобретает дополнительный импульс, что приводит к повышению коэффициента диффузии при его миграции по поверхности (баллистическая диффузия) [69, 70]. Изменение коэффициента поверхностной диффузии может происходить также вследствие структурной перестройки поверхности под действием ионного облучения [19, 71].

Работ по прямому определению изменения коэффициента поверхностной диффузии под действием ионного пучка немного. В 1999-2001 годах появилось две работы [18,68] 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. С помощью оптической методики авторы отслеживали “размытие” диффузионного профиля Ge при различных температурах поверхности. Было получено, что, начиная с пороговой энергии ионов 15 эВ, происходит увеличение коэффициента поверхностной диффузии Ge по сравнению со случаем без ионного облучения поверхности. Зависимость коэффициента ионно-стимулированной диффузии от температуры хорошо описывалась Аррениусовским законом. Были обнаружены два температурных режима диффузии, отличающихся энергией активации поверхностной диффузии. В низкотемпературном режиме ионно-стимулированная диффузия характеризуется такой же энергией активации, как и поверхностная диффузия в отсутствие облучения ионами, и различие состоит только в предэкспоненциальном множителе D_0 . Высокотемпературный режим характеризуется меньшей энергией активации и меньшим коэффициентом ионно-стимулированной диффузии по сравнению с диффузией без ионного облучения. Поведение при высоких температурах объяснялось появлением на облучаемой поверхности долгоживущих вакансионных кластеров, являющихся местами преимущественного захвата для адатомов Ge, что приводило к эффективному замедлению поверхностной диффузии. Для низкотемпературного режима простой и ясной модели, объясняющей поведение коэффициента диффузии, авторы работ [18,68] выдвинуть не смогли. Первоначально авторы объясняли наблюдаемое возрастание коэффициента диффузии увеличением длины прыжка адатомов вдоль поверхности за счёт прямой передачи им части энергии ионного пучка в процессе столкновения, то есть, предполагался баллистический механизм диффузии адатомов [68]. Однако, впоследствии в другой работе [18] авторы отказались от этой точки зрения, поскольку результаты моделирования методом молекулярной динамики показали, что вклад баллистический диффузии (изменение длины прыжка) должен проявляться при гораздо больших ионных потоках, чем были использованы в экспериментах. Характер температурной зависимости коэффициента ионно-стимулированной диффузии указывает на

изменение активационной энтропии [72], определяющей величину предэкспоненциального множителя D_0 в выражении (1.2). По мнению авторов работы [18], такое изменение коэффициента диффузии может быть вызвано появлением протяженных участков метастабильной поверхностной фазы под действием ионного облучения. По-видимому, на таких изменённых участках поверхности энтропия активации диффузии может быть иная, чем на остальной поверхности. Однако, вопрос, к какому процессу относится это изменение в энтропии: к отрыву ли из приповерхностного слоя или к миграции адатомов вдоль поверхности, остался невыясненным. Другим недостатком данной работы является то, что прямых (таких как исследования методом СТМ) доказательств существования таких протяженных дефектов авторы не приводят. В подтверждение своей гипотезы авторы приводят результаты СТМ исследований другой экспериментальной группы [73] и косвенные результаты исследований методом дифракции медленных электронов. По-нашему мнению, в данной ситуации было бы эффективно применить импульсное ионное облучение и исследовать эффекты последействия. Таким образом, можно было бы ответить на вопрос, связано ли наблюдаемое изменение коэффициента диффузии с процессами, происходящими при взаимодействии ионов с поверхностью или же с последующей миграцией адатомов по измененной ионным воздействием поверхности.

1.2.4. ФОРМИРОВАНИЕ УПОРЯДОЧЕННЫХ МЕТАСТАБИЛЬНЫХ ФАЗ.

Другим ярким примером влияния ионного облучения на структуру растущих плёнок является выращивание алмазных плёнок [74,75,76]. Основная идея метода состоит в том, чтобы, используя энергию ионного пучка, осуществить перестройку электронной конфигурации sp^2 , которой обладают атомы равновесной фазы углерода, в электронную конфигурацию sp^3 , свойственную для атомов метастабильной фазы алмаза.

Группа исследователей во главе с Рабалайсом [74,75] провела систематическое исследование процесса перехода от sp^2 к sp^3 гибридизации атомов углерода в зависимости от

энергии ионного пучка. Большинство экспериментов проводилось при комнатной температуре. В качестве подложек использовались Ni, Au и Si. Было установлено, что, начиная с энергии 10 эВ и выше, происходит формирование алмазосодержащих слоёв углерода. При таких энергиях ионы внедряются в приповерхностный слой. В результате имеет место пересыщение поверхностного слоя междоузлиями и увеличение плотности материала. Часть избыточной энергии ионов передаётся валентным электронам окружающих атомов углерода, что способствует перестройке их электронной конфигурации и появлению метастабильной алмазной фазы. С увеличением энергии ионов доля алмазной фазы возрастала, достигая максимальных значений ~ 80% в области энергий от 50 до 600 эВ. Однако при дальнейшем увеличении энергии ионов до 2000 эВ наблюдалось снижение содержания алмазной фазы до 50% и, соответственно, увеличение содержания равновесной фазы в sp^2 конфигурации.

Для объяснения полученных результатов Лифшиц и др. (Lifshitz et al) предложили модель субимплантации [74]. Поскольку некоторые аспекты модели важны и для интерпретации других экспериментов с ионным воздействием здесь приводятся её основные положения.

Модель субимплантации.

Основная идея, заложенная в модель, состоит в том, что процесс эпитаксиального роста из ионного пучка проходит через две основные стадии. На первой стадии происходит имплантация ионов в очень узкий приповерхностный слой в позиции междоузельных атомов. На этой стадии могут формироваться и другие типы дефектов, например вакансии, что будет приводить к деградации свойств материала. Интенсивность этого процесса зависит прежде всего от энергии ионного пучка. На второй стадии происходит объёмная диффузия междоузлий, часть из которых может выходить на поверхность твёрдого тела, приводя к эффективному росту плёнки. При этом подвижность междоузлий должна превышать подвижность вакансий, что является справедливым для большинства твёрдых тел. По

мнению авторов, необходимым условием для формирования алмазной фазы является увеличение плотности растущего слоя за счёт введения междоузлий ионным пучком. Авторы отмечают, что для успешной реализации данного требования необходимы низкие температуры. Причина этого – высокая диффузионная подвижность междоузельных атомов. При достаточно высоких температурах междоузлия будут «разбегаться», уходить в объём и на поверхность. При этом уплотнение материала при облучении ионным пучком не происходит, и алмаз не образуется. Немонотонный характер зависимости доли алмазной фазы от энергии ионного пучка объясняется конкуренцией двух факторов. С одной стороны, увеличение энергии в ионном пучке приводит к возрастанию удельной энергии, которая может быть передана валентным электронам атомов углерода, и, соответственно, эффективность перехода $sp^2 \rightarrow sp^3$ возрастает. С другой стороны, увеличение энергии ионов приводит к усилению нагрева растущего слоя за счёт передачи атомам среды энергии ионного пучка, что может приводить к отжигу метастабильной алмазной фазы с переходом её к равновесной фазе углерода, то есть к обратному переходу $sp^3 \rightarrow sp^2$. Существует некоторая характерная энергия ионов, начиная с которой процесс ионно-стимулированного отжига алмазной фазы начинает преобладать.

1.2.5. ИОННО - СТИМУЛИРОВАННАЯ РЕКОНСТРУКЦИЯ ПОВЕРХНОСТИ.

Ещё одним важным эффектом ионного воздействия на кинетику роста плёнок является ионно - стимулированная реконструкция поверхности. В работе Тейчерта и др. (Teichert et al.) [19] методом СТМ было обнаружено, что облучение исходно нереконструированной поверхности Pt(111) ионами Xe^+ с энергией 5 КэВ в области температур 150-300 К приводит к появлению участков реконструкции, локализованных в области мест столкновения ионов с поверхностью. При последующем осаждении атомов Pt из молекулярного пучка доля участков поверхности, занятых реконструкцией, увеличивалась. Детальный анализ реконструкции, формируемой ионным пучком, показал, что она полностью аналогична

реконструкции, формируемой в процессе обычной гомоэпитаксии Pt/Pt(111) при температурах $\geq 400\text{K}$ [77]. Поверхностный слой многих металлов растянут по отношению к объёму, что связано с перераспределением электронной плотности, происходящей при образовании поверхности. Реконструкция на таких поверхностях, как правило, имеет дислокационную природу. На поверхности при некоторой избыточной концентрации адатомов, осаждаемых из молекулярного пучка или пара, формируется упорядоченная система дислокационных петель. Это происходит за счёт проникновения части адатомов в объём твёрдого тела, в междоузельные позиции, с последующим образованием дислокаций. Движущей силой этой реконструкции является стремление системы понизить энергию упругой деформации поверхности [78].

Исследования показали [79], что данная реконструкция поверхности Pt(111) оказывает существенное влияние на механизм роста плёнки. Так на реконструированной поверхности рост происходит преимущественно через зарождение и срастание двумерных островков, тогда как на нереконструированной поверхности наблюдается рост трёхмерных островков пирамидальной формы. Переход к двумерно-слоевому росту объясняется следующим образом. Во-первых, реконструкция поверхности вызывает уменьшение диффузионной подвижности адатомов, что приводит к увеличению плотности островков и уменьшению их среднего размера. Во-вторых, поверхность двумерных островков оказывается нереконструированной, и подвижность адатомов на их поверхности оказывается выше, чем на поверхности с реконструкцией. Такое различие в подвижностях, как было установлено [20, 79], обеспечивает переход к двумерно-слоевому механизму роста.

В области низких температур ($< 400\text{K}$) реконструкция поверхности Pt(111) в процессе осаждения из молекулярного пучка не происходит, и указанное различие в подвижностях отсутствует, поэтому рост происходит по трёхмерному механизму. Однако, как показали эксперименты, в условиях ионного облучения реконструкция поверхности становится возможной, что способствует двумерно-слоевому росту при низких температурах.

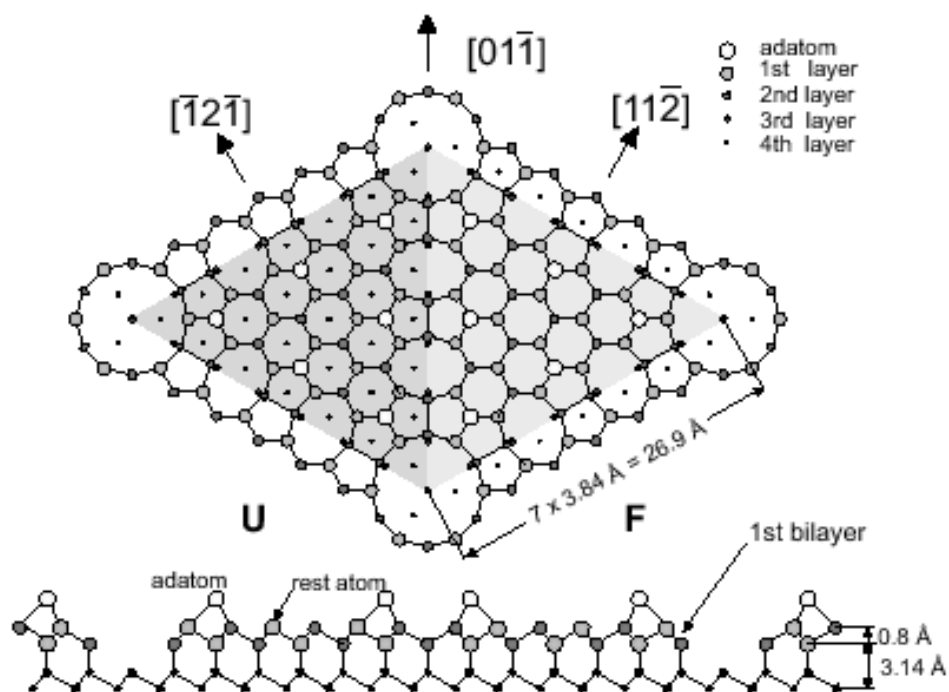


Рис.8 Геометрическое расположение атомов в элементарной ячейке (7×7) поверхностной реконструкции Si(111). F – подъячейка с дефектом упаковки, U – без дефекта упаковки. Димеры, адатомы и дефекты упаковки (DAS) – структурные элементы реконструкции Si(111) [23].

Согласно модельным представлениям, развитым в работе [19], механизм ионно-стимулированной реконструкции заключается в следующем. Облучение ионным пучком создаёт в приповерхностном слое избыточную концентрацию междоузлий, что способствует зарождению дислокационных петель вблизи мест падения ионов. После того, как зародыши новой реконструкции (поверхностной фазы) созданы, они могут разрастаться в процессе осаждения при более низких температурах вплоть до 150K [19] .

Для полупроводников, также как для металлов, было отмечено изменение реконструкции поверхности в процессе осаждения из молекулярного пучка. Так на начальных стадиях гомоэпитаксии Si(111) из молекулярного пучка при температурах ниже 550⁰C наблюдается изменение типа реконструкции или сверхструктуры поверхности от (7x7) к (5x5) [49,80]. При осаждении суб-монослойных покрытий поверхность подложки Si(111) сохраняет равновесную сверхструктуру (7x7) (рис.8), тогда как поверхность зародившихся двумерных островков кремния содержит уже два типа сверхструктурных доменов: (7x7) и (5x5). Наблюдаемое изменение в реконструкции приводит к тому, что диффузионная подвижность адатомов на вершинах двумерных островков оказывается меньше их подвижности между островками. Такое различие в подвижностях вызывает рост трёхмерных островков на начальных стадиях гомоэпитаксии. Однако после осаждения 2-3 монослоёв переход к новому типу реконструкции происходит на всей поверхности растущего слоя, и различие в диффузионных подвижностях исчезает. В результате рост плёнки начинает происходить по двумерно-слоевому механизму.

К моменту постановки настоящей работы для полупроводниковых систем возможность ионно-стимулированной реконструкции не была подтверждена экспериментально. Впервые, данный эффект был обнаружен нами при проведении экспериментов по ионно-стимулированной гомоэпитаксии Si/Si(111) [81], которые легли в основу данной диссертационной работы. Автор диссертационной работы принимал непосредственное участие в постановке и проведении экспериментов, позволивших выявить эффект ионно-

стимулированной реконструкции поверхности кремния. В опубликованных на эту тему работах [71,81,82,83] исследовалось изменение морфологии и сверхструктуры ростовой поверхности Si(111) при импульсном облучении низкоэнергетическими ионами Kr^+ . Было обнаружено, что кратковременное ионное воздействие вызывает реконструкцию поверхности от (5x5) к (7x7). Было показано, что на реконструированной ионным пучком поверхности диффузионная подвижность адатомов возрастает. На определённых стадиях роста по степени заполнения поверхностного монослоя это приводит к снижению шероховатости поверхности растущего слоя.

§ 1.3 Феноменологические модели эпитаксии из ионно-молекулярных пучков.

1.3.1 МОДЕЛЬ ВАНКОУВЕНБЕРГА.

Для объяснения экспериментальных результатов по ионно-стимулированному росту полупроводниковых плёнок в ряде работ были предложены феноменологические модели. Группа исследователей Ванкоуенберга и д.р. (Vancouwenberghe et al) разработала модель роста полупроводниковых плёнок, основанную на представлениях о генерации, аннигиляции и диффузии точечных дефектов при осаждении из ионных пучков [84].

Авторы модели предложили рассматривать ионно-стимулированный рост в трёх временных масштабах. На первом временном масштабе $< 10^{-13}$ с рассматривается процесс взаимодействия ускоренных частиц с твёрдым телом и включает два основных эффекта: нетермическую генерацию точечных дефектов и распыление. На втором временном масштабе, сравнимом с периодом колебания кристаллической решётки $\sim 10^{-12}$ с, рассматривается процесс рекомбинация вакансий и междоузлий. На третьем временном масштабе $> 10^{-9}$ с рассматривается процесс термоактивируемой диффузии точечных дефектов.

Модель была применена к гомоэпитаксии Si(100) и гетероэпитаксии Ge/Si(100) из пучка низкоэнергетических ионов (40 - 200 эВ) в области температур 300К - 700К [30,85]. Статистические данные о генерации и пространственном распределении точечных дефектов, а также о распылении атомов ионным пучком рассчитывались на основе приближения парных столкновений с помощью программы TRIM [57,86]. В рамках данного приближения процесс взаимодействия ионов с твёрдым телом представляется как цепочка последовательных парных столкновений ускоренных частиц с атомами мишени. Если в процессе столкновения атому мишени передавалась энергия больше пороговой энергии E_d , то это приводило к выходу атома в междоузельное положение и формированию вакансии. Для описания дефектообразования вблизи поверхности в модели предполагалось, что энергия связи атомов уменьшается по линейному закону по мере приближения к поверхности. Так как силы межатомного взаимодействия зависят от присутствия вторых и третьих соседей, то можно было ожидать, что влияние поверхности на энергию связи будет сказываться до нескольких монослоёв в глубину. Наилучшее совпадение расчётных данных по распылению и дефектообразованию с данными эксперимента для Si(100) были получены, если эта глубина выбиралась равной трём монослоям.

При выбивании атома в междоузельное положение в кристалле возникают силы упругой деформации, которые стремятся вернуть атом в исходное положение. Поэтому возможен обратный процесс взаимной упругой рекомбинации вакансии и междоузлия. Этот процесс даёт заметный вклад в изменение концентрации точечных дефектов. Расчёты показывают, что до 70% всех созданных ионным пучком точечных дефектов аннигилирует в течение времени, соответствующем периоду нескольких колебаний кристаллической решетки. Выживают только те пары вакансий и междоузлий, расстояние между которыми превышает несколько атомных радиусов. Поскольку генерация и рекомбинация являются быстрыми процессами по отношению к термоактивируемой диффузии точечных дефектов, то в первом приближении их можно рассматривать независимо от диффузии. Полученные на основе

статистических расчётов скорости генерации точечных дефектов использовались как входные данные при моделировании диффузионного массопереноса точечных дефектов при облучении ионным пучком. Базовая система дифференциальных уравнений, используемая в модели для описания эпитаксиального роста из ионного пучка была следующая:

уравнение диффузии вакансий

$$\frac{\partial C_V}{\partial t} = D_V \frac{\partial^2 C_V}{\partial^2 Z} + G_V(Z) \Phi_{ion} - k_{V-I} C_V C_I \quad (1.3)$$

уравнение диффузии междоузлий

$$\frac{\partial C_I}{\partial t} = D_I \frac{\partial^2 C_I}{\partial^2 Z} + G_I(Z) \Phi_{ion} - k_{V-I} C_V C_I \quad (1.4)$$

уравнение для скорости движения поверхности плёнки

$$\frac{1}{\Omega} \frac{\partial Z_s}{\partial t} = G_m + J_I(Z_s) - J_V(Z_s) \quad (1.5)$$

Здесь C_V , C_I – концентрации вакансий и междоузлий; G_V , G_I – скорости генерации точечных дефектов ионным пучком; k_{V-I} – коэффициент взаимной рекомбинации; D_I , D_V – коэффициенты диффузии вакансий и междоузлий; Z – расстояние отсчитанное от поверхности в глубь объёма; J_V , J_I – диффузионные потоки точечных дефектов, рекомбинирующих на поверхности (Z_s); Φ_{ion} – плотность ионного потока; G_m – плотность молекулярного потока; Ω – удельный объём кристалла, приходящийся на один атом. Предполагалось, что поверхность является идеальным стоком для точечных дефектов, т.е. на поверхности растущего кристалла реализуется условие: $C_V(Z_s) = 0$; $C_I(Z_s) = 0$.

Диффузионная подвижность вакансий предполагалась много меньше диффузионной подвижности междоузлий. Это условие является справедливым для Si и большинства полупроводниковых кристаллов, в которых реализуется ковалентный тип связи. В работе использовались следующие экспериментально установленные температурные зависимости коэффициентов диффузии точечных дефектов:

$$D_V = 0.1 \exp(-2 \text{ эВ/кТ}); D_I = 10^{-5} \exp(-0.4 \text{ эВ/кТ}).$$

Уравнение (1.5) записано для общего случая, когда наряду с ионным пучком в процессе роста присутствует осаждение из молекулярного пучка. Такое сочетание двух методов

получения плёнок в едином процессе, как было показано работе [29], даёт новые возможности в управлении диффузионной подвижностью осаждаемых частиц и способствует преодолению многих технологических ограничений каждого из указанных методов.

Основываясь на результатах моделирования в рамках предложенной модели, процесс роста из ионного пучка можно представить следующим образом. Под действием ионного облучения в узком приповерхностном слое создаётся избыточная концентрация вакансий и междоузлий. Причем пространственное распределение точечных дефектов таково, что междоузлия находятся на большем удалении от поверхности, чем вакансии. Междоузлия, обладая более высокой диффузионной подвижностью по сравнению с вакансиями, легко достигают поверхности, что приводит к эпитаксиальному росту плёнки. Данный механизм эпитаксиального роста плёнки оказывается во многом аналогичен механизму предложенному ранее Лившицем в модели суб-имплантации [74]. Тогда как вакансии при типичных температурах эпитаксии остаются практически неподвижными и накапливаются в растущем слое в непосредственной близости от поверхности. При определённых условиях роста и параметрах ионного пучка это может приводить к аморфизации приповерхностного слоя.

В процессе диффузии к поверхности междоузлия могут также рекомбинировать с вакансиями. Поскольку первоначально концентрация вакансий невелика, то почти все междоузлия могут достигать поверхности. По мере роста плёнки концентрация вакансий растёт, что приводит к усилению взаимной рекомбинации вакансий и междоузлий. В результате скорость роста плёнки уменьшается, достигая стационарного значения, при которой скорость рекомбинации равна скорости генерации вакансий ионным пучком. На этом этапе роста количество вакансий в растущей плёнке сохраняется постоянным. Кроме того, сравнительно небольшое количество междоузлий диффундирует в объём подложки. Это приводит к накоплению междоузлий в глубине кристалла, что соответствует

наблюдаемому в эксперименте образованию дислокационных петель на глубине от 25 до 400 нм [84].

Высокая подвижность междоузельных атомов, созданных ионным пучком, по мнению авторов модели, является главной причиной, которая может приводить к заметному снижению температуры эпитаксии кристаллически совершенных полупроводниковых плёнок. Другой причиной, облегчающей рост при низких температурах, может быть то, что осаждение материала происходит не на поверхность твёрдого тела, а как бы под его поверхность, и в дальнейшем эпитаксиальный рост плёнки идёт за счёт притока междоузельных атомов из объёма, тем самым исключается влияние поверхностных загрязнений на структурные свойства растущей плёнки.

Данная модель, несмотря на свою упрощенность в описании процесса роста из ионного пучка, позволяет получить практически важные данные о структурных свойствах выращиваемых плёнок в зависимости от параметров ионного пучка и температуры процесса. Особенно важно то, что эти данные допускают прямое сравнение с экспериментом и, следовательно, экспериментальную проверку основных положений предложенной модели. Например, на основе данной модели могут быть получены данные о дефектном составе и пороговых энергиях аморфизации растущей плёнки.

Однако в модель не включены процессы, определяющие морфологию ростовой поверхности, такие как поверхностная диффузия и зарождение островков. Авторы модели концентрируют своё внимание на процессах, протекающих в объёме твердого тела, и совершенно не рассматривают поверхностные процессы. Поверхность для них – это просто место стока для точечных дефектов. Такой подход является отчасти оправданным упрощением физической картины, однако многие практически важные вопросы, связанные с эволюцией морфологии ростовой поверхности в условиях ионного облучения, остаются без ответа.

1.3.2 МОДЕЛЬ БОЙДА.

В модели, предложенной Бойдом и др. (Boyd et al.) [87], в отличие от предыдущей модели предполагается, что ионы могут проникать в твердое тело при энергиях значительно ниже пороговой энергии смещения, занимая там междоузельные позиции без формирования вакансий. А затем имплантированные междоузлия мигрируют к поверхности, приводя к её росту. В связи с этим в модель вводится представление о пороговой энергии внедрения иона под поверхность E_p . Согласно данным расчётов, выполненных из первых принципов [87], для ионов Si^+ , внедряемых в $\text{Si}(100)$ подложку, величина пороговой энергии E_p составляет 7-8 эВ, тогда как величина энергии смещения E_d лежит в пределах 20-25 эВ [34,35]. В данной модели предполагается линейная связь между количеством вводимых дефектов и энергией иона. Такое допущение фактически соответствует приближению парных столкновений и даёт количественные результаты близкие к статистическим расчётам с помощью программы TRIM [86].

Согласно предложенной модели, оптимальными энергиями для низкотемпературной эпитаксии кристаллически совершенных плёнок из ионных пучков, являются энергии, при которых ионы могут проникать в твёрдое тело ($>E_p$), но при этом они ещё не формируют стабильных пар дефектов: вакансия-междоузлие ($<E_d$). Этот вывод хорошо согласуется с результатами исследований структурных свойств плёнок Si, полученных при различных энергиях ионного пучка [14].

Механизмы атомных процессов, приводящих к снижению температуры эпитаксии при осаждении из ионного пучка, до сих пор остаются не вполне ясными. В более ранних моделях в качестве такого механизма предлагалось увеличение скорости поверхностной диффузии за счёт прямой передачи ионного импульса адатомам или генерации поверхностных смещений [88]. В модели Бойда возможность таких процессов не учитывалась. Авторы аргументируют это тем, что если бы кинетическая энергия падающего иона напрямую тратилась на увеличение диффузионной подвижности поверхностных

атомов, то тогда эффект снижения температуры эпитаксии при осаждении из ионного пучка должен был бы наблюдаться при энергиях заметно ниже порога внедрения в твёрдое тело E_p , что не согласуется с экспериментом.

Также как и в модели Ванкоуенберга основным фактором, приводящим к снижению температуры эпитаксиального роста кристалла, является высокая диффузионная подвижность междоузельных атомов, созданных ионным пучком. Эта подвижность, согласно ряду экспериментальным данных [89], может быть сравнима и даже превышать диффузионную подвижность адатомов на атомарно-гладкой поверхности полупроводника [90]. Однако, возможно и обратное соотношение, поскольку эффективный коэффициент диффузии междоузельных атомов сильно зависит от структурных свойств конкретного кристалла (предыстории кристалла), то есть от его дефектности и содержания примесей [34, 65]. По-видимому, в большинстве случаев низкотемпературной эпитаксии реализуется ситуация, когда эффективная подвижность адатомов оказывается меньше эффективной подвижности междоузельных атомов. Это связано с тем, что в области низких температур на поверхности растущего кристалла формируется высокая плотность поверхностных несовершенств (типа границ ступеней, островков и вакансионных кластеров), которые служат центрами преимущественного захвата для адатомов, что приводит к значительному снижению их эффективной подвижности. Тогда как в объёме кристалла плотность дефектных мест, служащих центрами прилипания для междоузлий, оказывается существенно меньшей чем на поверхности и слабее зависящей от условий роста.

1.3.3 НЕДОСТАТКИ ФЕНОМЕНОЛОГИЧЕСКИХ МОДЕЛЕЙ.

Таким образом, основным недостатком существующих феноменологических моделей ионно-стимулированного роста является то, что в них не учитывается влияние ионного облучения на морфологию ростовой поверхности. Другим принципиальным ограничением, является то, что в данных моделях используется приближение парных столкновений для

анализа взаимодействия иона с твёрдым телом, которое перестаёт выполняться при энергиях ниже 50 эВ [35,84]. Это связано, прежде всего, с тем, что при таких энергиях ионов становятся существенными многочастичные эффекты, учёт которых оказывается весьма проблематичен в рамках приближения парных столкновений. Однако, именно этот диапазон энергий наиболее интересен с практической точки зрения, поскольку в нём реализуются оптимальные условия для эпитаксии из ионных пучков. Поэтому для получения более достоверных данных о структурных изменениях, производимых ионным пучком, и влиянии этих изменений на процесс роста плёнки, необходимо использовать теоретические подходы, дающие детальное описание многочастичного взаимодействия низкоэнергетических ионов с твёрдым телом. В наибольшей степени этому требованию удовлетворяет микроскопическое описание, основанное на методе молекулярной динамики.

§ 1.4 Моделирование методами молекулярной динамики эпитаксии из ионных пучков.

Метод молекулярной динамики (МД) обеспечивает возможность слежения за траекторией движения частиц внутри объёма твёрдого тела и за его пределами [57]. В основе данного метода лежит интегрирование по времени системы уравнений Ньютона для ансамбля сильно взаимодействующих частиц:

$$\frac{d\vec{r}_i}{dt} = \vec{V}_i; \quad M_i \frac{d\vec{V}_i}{dt} = \sum_{i \neq j} \left(\frac{dU(r)}{dr} \right)_{r=r_{ij}} \frac{\vec{r}_{ij}}{r_{ij}} = \vec{F}_i$$

где, $\vec{r}_i$, $\vec{V}_i$ и M_i – положение (радиус вектор), скорость и масса i -атома; $U(r)$ -потенциал межатомного взаимодействия; $\vec{F}_i$ - результирующая сила, действующая на i -атом со стороны всех остальных атомов. Силы, действующие на атомы в кристалле, определяются видом потенциала межатомного взаимодействия. Для моделирования различных физических процессов в кремнии и других полупроводниковых кристаллах с ковалентным типом связи обычно используют эмпирические потенциалы Стиллинджера-Вебера (Stillinger-Weber) [91]

или Терсофа (Tersoff) [92], которые учитывают парное и трёхчастичное взаимодействие. Существуют и другие методы описание движения частиц в твёрдом теле без использования эмпирических потенциалов. Это так называемые методы расчёта из первых принципов (*ab initio*), в которых силы межатомного взаимодействия определяются на основе квантовомеханических расчётов электронной структуры взаимодействующих атомов [93]. В настоящее время методы квантовой динамики успешно используются для наиболее полного и точного описания атомных и электронных процессов в объёме и на поверхности ковалентных полупроводников [94, 95, 96, 87]. Однако применимость данных методов сильно ограничена из-за огромного объёма требуемых вычислений [94].

1.4.1. МОДЕЛИРОВАНИЕ МИКРОСКОПИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ИОНОВ С ПОВЕРХНОСТЬЮ КРЕМНИЯ.

Большинство работ, посвящённых теоретическому исследованию эпитаксии из ионных пучков методом молекулярной динамики, ограничиваются рассмотрением только самых начальных стадий процесса. Как правило, в этих работах исследуются детали микроскопических процессов, вызванных падением иона на поверхность твёрдого тела, и делаются оценки их возможного влияния на рост плёнки. Рассмотрим прежде всего работы, посвящённые низкотемпературной эпитаксии кремния.

В работе Б. Добсона (Dobson) [97] методом МД исследовались микроскопические процессы при осаждении из пучка низкоэнергетических (10-100 эВ) ионов Si^+ на $\text{Si}(111)$ подложку. Межатомное взаимодействие моделировалось с помощью модифицированного потенциала Терсофа. Исследуемая поверхность $\text{Si}(111)$ не содержала реконструкции, но была подвергнута упругой релаксации, в результате которой свободная энергия поверхности понижалась на 0.12 эВ/атом, что находилось в хорошем согласии с данными расчётов

ab initio [98]. Рассматривались различные углы падения ионного пучка по отношению к поверхности. Для нормального падения ионного пучка Si с энергией 10 эВ было получено, что около 70% ионов проникают под поверхность Si(111) в позиции междоузельных атомов между первым и вторым биатомными слоями и только 30% ионов остаются на поверхности в регулярных позициях кристалла, что есть занимают эпитаксиальные позиции. Причём образования вакансий в объёме и на поверхности кристалла не наблюдалось. Если же ионный пучок был направлен к поверхности под углом 60° , то количество проникающих в объём ионов снижалось до 50%. Оставшиеся на поверхности ионы могли совершать прыжки на расстояние до 10 ангстрем от места столкновения с поверхностью. При дальнейшем уменьшении угла падения ниже некоторого критического значения ионы могли проходить над поверхностью значительно большие расстояния в диапазоне от сотен до нескольких тысяч ангстрем вдоль определённых выделенных направлений. Это явление было названо поверхностным каналированием и согласно данным моделирования было обусловлено конкурирующим действием дальнодействующих сил притяжения и короткодействующих сил отталкивания со стороны атомов поверхности. По мнению автора работы [97] формирование подвижных междоузлий и увеличение длины свободного пробега адатомов при осаждении из ионного пучка, наклонённого к поверхности, должно способствовать росту структурно совершенных плёнок в области низких температур. Кроме того, было обнаружено, что ионное воздействие приводит к возбуждению интенсивных упругих колебаний кристаллической решётки, локализованных в непосредственной близости от мест падения ионов. Так для нормального падения ионного пучка с энергией 10 эВ, характерный радиус области возбуждения составлял величину $4\text{\AA}$, а средняя энергия приходящаяся на атом (локальная “температура”) - 0.3 эВ/атом через 0.02 пс после столкновения иона с поверхностью. По истечении 0.08 пс размер области возбуждения увеличивался примерно вдвое, а локальная “температура” понижалась до 0.1 эВ/атом. На основании полученных данных в работе делается вывод, что возбуждённые ионным пучком упругие колебания

атомов, распространяясь по кристаллу, могут способствовать аннигиляции дефектов, формируемых в процессе роста.

В работах М. Kitabatake et al. [99,100] методами молекулярной динамики и квазидинамики исследовалась генерация, аннигиляция и диффузия точечных дефектов, формируемых в процессе гомоэпитаксии Si на подложках с ориентацией (100) из пучка низкоэнергетических ионов. Исходная поверхность Si(100) имела реконструкцию типа (2x1), представляющую собой ряды димеров, ориентированных в направлении $\langle 110 \rangle$. Осаждение ионов Si^+ производилось под нормальным углом падения к поверхности в 36 позиций элементарной поверхностной ячейки. Для энергии ионов 10 эВ было получено что в 15 из 36 модельных экспериментов наблюдалось разрушение димеров; в 10 – эпитаксиальный рост; в 14 – формирование объёмных междоузлий [99]. Генерация междоузлий наблюдалась вплоть до 6-ого монослоя в глубину. Один из 36 падающих ионов испытывал обратное отражение от поверхности. Ни в одном из модельных экспериментов не наблюдалось формирования объёмных вакансий и распыления поверхности. При увеличении энергии до 50 эВ, статистика дефектообразования заметно изменялась [100]. Так 36 столкновений иона с поверхностью приводило к формированию 63 междоузлий и 36 вакансий в объёме кристалла. Генерация междоузлий наблюдалась вплоть до 14-ого монослоя в глубину от поверхности, тогда как генерация вакансий происходила на меньших глубинах вплоть до 7-ого монослоя. Облучение также приводило к разрушению (раскрытию) 42 димеров и в 13 случаях наблюдался эпитаксиальный рост, причём в основном за счёт выбивания поверхностных атомов в эпитаксиальные позиции на поверхности. В одном случае наблюдалось удаление поверхностного атома в вакуум (распыление). Обратного отражения падающих ионов не наблюдалось.

В указанных работах отмечается, что разрушение поверхностной реконструкции низкоэнергетическим ионным облучением, является важнейшим механизмом облегчающим эпитаксиальный рост в области низких температур. Это связано с тем, что разрушение

димеров с формированием нереконструированных участков поверхности значительно снижает барьер встраивания мигрирующих адатомов в растущую плёнку. Из приведённых выше данных следует, что для ионного пучка с энергией 50 эВ этот механизм будет работать с большей эффективностью, чем для ионного пучка с энергией 10 эВ.

Другим важным следствием увеличения энергии ионного пучка является то, что доля событий, связанных с замещением атомов кристалла внедряемыми ионами, возрастает. При энергии 50 эВ количество замещённых атомов составляло 27, то есть 75% ионов встраивалось в позиции кристаллической решётки с координационным числом >2 . Тогда как при энергии 10 эВ эта доля составляла только 25%. Этот процесс может существенно повысить вероятность встраивания легирующих примесей в растущую плёнку, что находит прямое экспериментальное подтверждение при ионном легировании в процессе МЛЭ Si [4,5,15].

Моделирование методом квазидинамики [99] процесса термоактивируемой диффузии точечных дефектов, созданных ионным пучком, показало, что энергия активации диффузии междоузельных атомов (E_I^m) уменьшается по мере приближения к поверхности. В результате этого происходит преимущественная миграция междоузлий по направлению к поверхности и аннигиляция их на поверхности, тогда как диффузия в обратном направлении оказывается существенно затрудненной. Поэтому поверхность Si(100) является практически идеальным стоком для междоузлий. Что касается вакансий, то здесь ситуация обратная. Энергия активации диффузии вакансий (E_V^m) возрастает по мере приближения к поверхности, что препятствует их миграции в направлении к поверхности. Кроме того, моделирование показало, что объёмные вакансии имеют гораздо более низкую диффузионную подвижность по сравнению с междоузлиями ($E_V^m = 1.6$ эВ; $E_I^m \cong 1$ эВ). В силу перечисленных причин поверхностная аннигиляция вакансий оказывается сильно затрудненной. Более вероятным оказывается процесс взаимной аннигиляции вакансий с

междоузлиями, которые формируются на больших глубинах, чем вакансии, а затем мигрируют по направлению к поверхности. Таким образом, высокая подвижность междоузлий и их преимущественная диффузия к поверхности могут являться ключевыми факторами, способствующими росту кристаллически совершенных плёнок из ионного пучка в области низких температур. Тогда как низкая подвижность вакансий будет препятствовать этому. Поэтому для проведения эпитаксии из ионного пучка энергия 50 эВ оказывается менее предпочтительной, чем энергия 10 эВ.

1.4.2 МОДЕЛИРОВАНИЕ ИОННО-СТИМУЛИРОВАННОГО РОСТА ПЛЁНОК.

Работ, посвящённых непосредственному моделированию процесса осаждения из ионного пучка методом молекулярной динамики, сравнительно немного. Это связано отчасти с ограничениями, присущими данному методу. Дело в том, что шаг интегрирования по времени для уравнений движения не может превышать характерное время передачи энергии между атомами твёрдого тела ($\sim 10^{-15}$ с), что делает практически невозможным проведение модельных расчётов для типичных скоростей осаждения плёнок 0.01 - 1 монослоя в секунду. Кроме того, метод молекулярной динамики оказывается также малоэффективен для рассмотрения диффузионных процессов, поскольку характерные времена, затрачиваемые на один диффузионный переход атома на поверхности находятся в пределах от 10^{-9} до 10^{-6} с.

В работе Гилмера и Роланда (Gilmer H.G. and Roland C.) [101] методом молекулярной динамики исследовалась низкотемпературная эпитаксия кремния из ионных пучков на подложках с ориентациями (100) и (111). Взаимодействие атомов описывалось с помощью эмпирического потенциала Стиллинджера-Вебера [91]. Эпитаксия кремния проводилась из «теплого» (энергия 0.17 эВ) и ионного (энергия 5 эВ) пучков с использованием очень больших скоростей осаждения материала порядка 10^{10} монослоёв в секунду. Это позволяло проводить осаждение плёнок кремния за время, сопоставимое с характерным временным масштабом ($1 \div 10$ нс), используемым в методе молекулярной динамики. Однако, даже при

таких нереально больших скоростях осаждения слоёв кремния они успевали сформироваться кристаллическими при типичных температурах роста.

Моделирование показало, что при осаждении из «теплового» пучка эпитаксиальный рост кристаллической плёнки на Si(100) наблюдался вплоть до температуры 450K. Тогда как для поверхности Si(111) эта температура была выше и составляла около 550K. Ниже указанных температур в процессе роста происходил переход к формированию аморфной фазы кремния. Использование для осаждения пучка ускоренных ионов с энергией 5 эВ приводило к снижению температуры эпитаксии примерно на 200 K. Согласно данным моделирования локальный нагрев поверхности в области мест падения ионов являлся основной движущей силой происходящих изменений. Время существования теплового возбуждения не превышало 10 пс, однако, за это время часть атомов в дефектных позициях кристаллической решётки успевала сместиться в позиции, соответствующие совершенному кристаллу. Иными словами, происходил локальный отжиг дефектов кристаллической структуры, формируемых в процессе низкотемпературного роста, что препятствовало аморфизации плёнки. Другой причиной, приводящей к стимуляции кристаллического роста в области низких температур, являлось разрушение ионным пучком поверхностных димеров. Моделирование роста на поверхности Si(100) показало, что именно неразомкнутые димерные связи поверхностных атомов служат центрами преимущественного зарождения аморфной фазы кремния.

Согласно данным моделирования плёнки, осаждаемые на поверхность Si(111), имели повышенную плотность краевых дислокаций, которые служили центрами зарождения аморфной фазы. Отжиг дислокаций является более энергозатратным процессом, чем, например, разрушение поверхностных димеров, и для его успешной реализации необходима более высокая подвижность атомов. Именно поэтому на поверхности Si(111) кристаллизация требует более высоких температур, чем на поверхности Si(100) независимо от того, осаждается плёнка из «теплового» или ионного пучков.

В работе Стрикленда и Роланда (Strickland B. and Roland C.) [102] методом молекулярной динамики было показано, что облучение пучком низкоэнергетических ионов ($5 \div 20 \text{ эВ}$) Ag^+ в процессе гомоэпитаксии $\text{Si}/\text{Si}(100)$ из «теплового» пучка также приводит к эффекту снижения температуры эпитаксии. Как и в предыдущей работе, основной механизм ионного воздействия на процесс роста плёнки состоял в локальном тепловом возбуждении поверхностных атомов вблизи мест падения ионов. Отличие состояло в том, что для достижения того же эффекта по увеличению доли кристаллической фазы требовалась большая энергия ионного пучка Ag^+ ($>5 \text{ эВ}$). Время существования теплового возбуждения в этом случае составляло около 10 пс. За это время атомы успевали преодолеть локальный потенциальный барьер для встраивания атомов в кристаллическую решётку кремния. В работе также было показано, что увеличение энергии ионного пучка во многом аналогично увеличению его плотности. То и другое приводило к возрастанию доли кристаллической фазы кремния в процессе низкотемпературного осаждения из молекулярного пучка.

В последнее время появился ряд работ [17,103], в которых эпитаксия из ионных пучков детально моделируется при реальных скоростях осаждения плёнок на основе комбинации двух мощных расчётных методов: метода Монте-Карло (МК) и метода молекулярной динамики. Метод Монте-Карло основан на вероятностном описании физических процессов и идеально подходит для моделирования диффузии, зарождения и других процессов, сопутствующих росту плёнок в реальном масштабе времени [104,105,106]. Однако, он плохо применим к описанию атомных процессов, происходящих при взаимодействии низкоэнергетических ионов с поверхностью твёрдых тел, когда существенны многочастичные эффекты, и необходимо точно решать задачу многих тел [57]. С другой стороны, метод молекулярной динамики лишён этих недостатков, но при этом, как уже отмечалось выше, ему присущи ограничения во временном масштабе. Суть предлагаемого в работах подхода состоит в том, чтобы после каждого «осаждения» иона производить расчёт происходящих изменений в атомной структуре поверхности методом молекулярной

динамики в течение времени требуемого для «термализации» ($\sim 10^{-11}$ с) локального возбуждения кристалла, созданного ионом, а затем полученные данные о геометрическом расположении атомов использовать в качестве входных при проведении расчётов термоактивируемой диффузии методом МК. Таким образом, в рамках такого подхода удаётся совместить детальное описание «быстрых» нетермических процессов ($< 10^{-12}$ с), связанных с взаимодействием низкоэнергетического иона с твёрдым телом, с одновременным рассмотрением «медленных» термоактивируемых процессов ($> 10^{-9}$ с), связанных с ростом плёнки.

Данный метод был апробирован на трёх модельных системах Ag/Ag(111), Pt/Pt(111) [17], Cu/Cu(111) [103]. Было показано, что механизм роста плёнок зависит от энергии ионного пучка. Так, например, при гомоэпитаксии Ag/Ag(111) с увеличением энергии ионного пучка до 25 эВ наблюдался переход от трёхмерного к двумерно-слоевому механизму роста. Однако, при дальнейшем увеличении энергии ионного пучка имел место обратный переход к трёхмерному росту. Детальный анализ производимых ионным пучком изменений поверхности позволил выделить два основных микроскопических механизма, ответственных за данный эффект. Первый механизм состоял в ионной стимуляции переходов атомов в нижележащие атомные слои, тогда как второй механизм был связан с переходами в вышележащие атомные слои. Первый механизм реализуется, когда ион падает на поверхность вблизи с краем ступени со стороны верхней террасы. В этом случае может произойти прямое встраивание иона в подлежащий атомный слой без выбивания адатома в вышележащие слои, при этом окружающие атомы сдвигаются вдоль поверхности, приводя к изменению формы ступени (см. рис. 9).

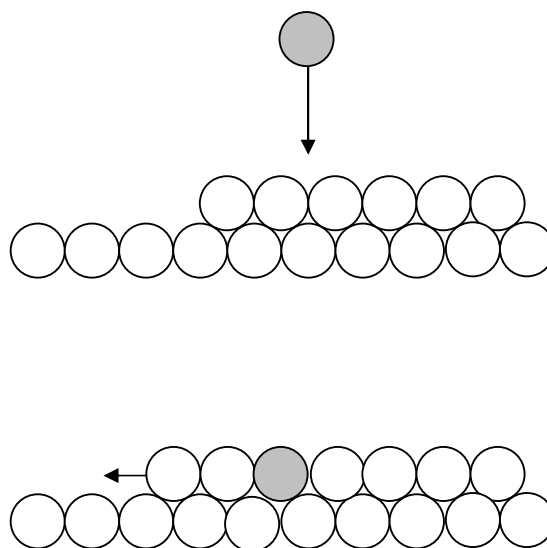


Рис. 9. Схематичное представление атомных перестроек, вызванных падением иона вблизи моноатомной ступени со стороны верхней террасы. Механизм перехода в нижележащий атомный слой.

Второй механизм реализуется, когда ион падает вблизи с краем ступени, но со стороны нижней террасы. В этом случае ион внедряется на место атома на нижней террасе, сдвигая его на место соседа, тот сдвигает следующего соседа, и так цепочка сдвигов распространяется вдоль поверхности, доходя до края ступени. Здесь атом на конце цепочки может перейти на место слабо связанного атома на границе ступени и вытолкнуть его на верхнюю террасу ступени в позицию адатома (см. рис.10). Форма ступени при этом процессе может оставаться неизменной. То есть можно сказать, что имеет место формирование цепочек замещающих атомных столкновений, которые заканчиваются на границе ступеней.

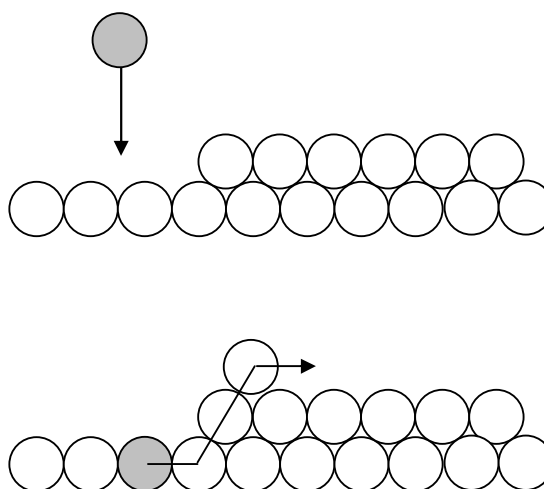


Рис. 10. Схематичное представление атомных перестроек, вызванных падением иона вблизи моноатомной ступени со стороны нижней террасы. Механизм перехода в вышележащий атомный слой.

Наблюдаемые здесь процессы оказываются во многом аналогичны формированию ионным облучением динамических краудионов в объёме твёрдого тела [58,65], которые приводят к эстафетной передаче энергии и импульса вдоль атомных цепочек. В некотором смысле, можно говорить о формировании ионным пучком поверхностных краудионов, которые, двигаясь вдоль поверхности, могут рассеиваться на ступенях с образованием адатомов. Согласно данным моделирования, при энергии ионного пучка около 25 эВ вклад первого механизма в изменение поверхностной морфологии оказывается определяющим, что способствует двумерно-слоевому росту. Тогда как при увеличении энергии ионного пучка до 32 эВ, вклад второго механизма начинает преобладать, что приводит к переходу к трёхмерному росту. Следует заметить, что ситуация с гомоэпитаксией Ag/Ag(111) из ионного пучка, оказалась во многом аналогична ситуации с низкотемпературной

гомоэпитаксией Si/Si(100) из ионного пучка [14]. Там также наблюдалось оптимальное значение энергии ионного пучка кремния (20 эВ), при которой шероховатость поверхности была минимальна, и рост происходил по двумерно-слоевому механизму. При отклонении от оптимального значения в большую сторону шероховатость поверхности возрастала, и рост начинал происходить по трёхмерному механизму. По мнению авторов работы [17], данный эффект имеет общий характер, хотя для конкретных систем условия его наблюдения не вполне определены. Так для системы Pt/Pt(111) в исследуемом диапазоне энергий переход к трёхмерному росту с увеличением энергии ионного пучка не наблюдался. Детальный анализ происходящих событий в процессе осаждения из ионного пучка показал, что переходы адатомов, индуцированные ионным воздействием, в вышележащие атомные слои практически не происходят, то есть второй механизм не реализуется. Это может быть связано отчасти с тем, что энергия связи атомов Pt-Pt выше, чем Ag-Ag.

В работах [17,103] были также выделены другие микроскопические процессы, которые могут быть ответственны за изменения морфологии поверхности в условиях осаждения из ионного пучка. Это, прежде всего, генерация вакансионно-адатомных пар, разрушение (фрагментация) островков, увеличение горизонтальной подвижности атомов, изменение формы границы ступеней. Моделирование показало, что вклад каждого из процессов изменяется с увеличением энергии ионного пучка. Так, например, начиная с энергии 20 эВ и выше, генерации пар вакансия-адатом начинает существенно влиять на поверхностную морфологию, поскольку стимулирует зарождение двумерных островков и увеличивает поверхностную плотность ступеней. Наибольший эффект стимуляции зарождения двумерных островков наблюдался в моделировании при энергии 100 эВ для системы Cu/Cu(111) [103]. На основании полученных результатов авторы предложили импульсно изменять энергию ионного пучка с 20 эВ до 100 эВ в моменты, соответствующие началу зарождения островков следующего атомного слоя, тем самым дополнительно стимулируя рост по двумерно-слоевому механизму. Эта идея во многом созвучна с экспериментами по

управлению механизмом роста плёнки с помощью импульсного ионного воздействия [20,40,41,42] с той лишь разницей, что в них импульсно изменялась интенсивность ионного пучка, тогда как в работе [103] предлагается менять энергию ионного пучка. Таким образом, моделирование на основе предложенного метода воспроизводит многие экспериментальные результаты по осаждению плёнок из ионных пучков и, что наиболее важно, данный метод позволяет выявить основные микроскопические механизмы ионного воздействия на процесс роста плёнки. Безусловно, за этим методом большое будущее. Однако, применимость данного метода, как отмечают сами авторы, сильно ограничена из-за гигантского объёма требуемых вычислений [17].

§ 1.5 Заключение по главе 1.

В настоящее время считается установленным, что рост плёнок в присутствии низкоэнергетического ионного облучения характеризуется снижением температуры эпитаксии, уменьшением высоты рельефа ростовой поверхности, увеличением коэффициента встраивания примеси в растущую плёнку, изменением механизма роста плёнки от трёхмерного к двумерно-слоевому росту. Все эти эффекты можно условно отнести к макроскопическим, поскольку они характеризуют результирующее влияние ионного облучения на рост плёнок, не вдаваясь в детали происходящих процессов.

К другой группе эффектов ионного воздействия на рост плёнок можно отнести ионно-стимулированное зарождение и диссоциацию островков; ионно-стимулированную диффузию; ионно-стимулированную реконструкцию поверхности. Эти эффекты относятся к микроскопическим, поскольку, во-первых, они детально характеризуют производимые ионным пучком изменения на поверхности и, во-вторых, их проявление ограничено некоторой локальной областью кристалла, размер которой сопоставим с атомарным масштабом. Существует взаимосвязь макроскопических и микроскопических проявлений ионного воздействия. В некотором смысле, данные микроскопические эффекты лежат в

основе наблюдаемых макроскопических эффектов. Например, макроскопический эффект изменения механизма роста плёнки от трёхмерного к двумерно-слоевому под действием импульсного ионного облучения объясняется увеличением поверхностной плотности двумерных островков, вызванным стимуляцией зарождения ионным пучком, что приводит к уменьшению среднего размера островков до размера меньше критического, необходимого для зарождения трёхмерного островка. Однако, такое объяснение наблюдаемого явления нельзя назвать вполне удовлетворительным. Поскольку, как показывают имеющиеся литературные данные, причины, по которым происходит ионная стимуляция зарождения, могут быть самыми разными, зависящими от свойств конкретной эпитаксиальной системы и условий роста. То же самое можно сказать и о других микроскопических эффектах. Таким образом, для более глубокого понимания природы наблюдаемых эффектов, требуется дальнейшая детализация микроскопических процессов, вызванных ионным облучением при росте плёнок. Эта задача может быть решена двумя путями. Во-первых, разработкой новых экспериментальных подходов и методов, позволяющих получать более детальную информацию о производимых ионным пучком изменениях на поверхности и в объёме растущей плёнки, и во-вторых, проведением модельных расчётов, учитывающих все детали взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью растущей плёнки.

К нерешённым проблемам низкотемпературной эпитаксии полупроводников из ионных пучков можно отнести вопрос о механизмах увеличения поверхностной подвижности атомов в условиях ионного облучения. Имеющие экспериментальные данные [18,68] указывают на то, что в рамках традиционных представлений о механизмах ионной стимуляции диффузии, связанных с баллистическим массопереносом или локальным нагревом поверхности, не удаётся объяснить экспериментально установленные зависимости изменения коэффициента поверхностной диффузии от температуры, энергии ионного пучка, плотности ионного потока и массы налетающего иона. Здесь требуются новые подходы к теоретическому описанию ионного воздействия на поверхностную диффузию.

Другой важной проблемой, требующей решения, является вопрос о роли реконструкции поверхности и, в частности, ионно-стимулированной реконструкции в процессах эпитаксиального роста на поверхности полупроводников. В настоящее время общеизвестно, что именно реконструкция поверхности в значительной степени определяет зарождение и диффузию на поверхности полупроводников и ряда металлов [49,50,79,107]. Это связано прежде всего с тем, что геометрическое расположение поверхностных атомов определяет потенциальный рельеф поверхности, а значит и скорости всех основных термоактивируемых процессов, сопутствующих росту плёнки [95,108,109]. Поэтому, если в результате внешних воздействий (температура, молекулярный поток или ионное облучение) реконструкция поверхности изменяется, то, соответственно, можно ожидать и изменения в кинетике роста плёнки. Однако, в настоящее время, вопросы о механизмах изменения поверхностной реконструкции под действием ионного облучения, а также о влиянии этих изменений на рост плёнки остаются мало изученными. Хотя есть основания полагать, что именно ионно-стимулированной реконструкцией можно объяснить многие экспериментальные результаты по ионному облучению поверхности полупроводников.

Следует также заметить, что большинство работ, посвящённых моделированию эпитаксии из ионных пучков, не уделяют должного внимания вопросу о влиянии ионного облучения на поверхностные процессы, составляющие рост плёнки. Это связано, отчасти, с трудностью совместного рассмотрения процессов, вызванных ионным облучением, и процессов активируемых температурой. Дело в том, что при температурах и скоростях осаждения плёнок, используемых в эксперименте, характерные времена протекания этих процессов могут различаться на 12-15 порядков [17], что сильно ограничивает возможности проведения модельных расчётов в реальном масштабе времени. Поэтому, например, вопрос о соотношении вкладов ионно-стимулированных и термо-стимулированных процессов в изменение морфологии растущей плёнки остаётся до сих пор открытым.

Глава 2. Исследование взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью кремния методом молекулярной динамики.

К началу проведения диссертационной работы, вопрос о механизмах влияния ионного облучения на рост полупроводниковых плёнок был изучен довольно слабо. Требовалось проведение детальных исследований атомных процессов, происходящих в объёме и на поверхности полупроводника при облучении низкоэнергетическими ионами в условиях осаждения плёнок.

На первом этапе работы ставилась задача проведения теоретических исследований взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью полупроводникового кристалла с целью выявления основных закономерностей изменения атомной структуры и морфологии поверхности в условиях ионного облучения. Интерес к исследованию изменения морфологии поверхности под действием ионного облучения был обусловлен также тем, что результирующая структура эпитаксиальных плёнок является производной поверхностной морфологии, формируемой в процессе роста.

В качестве модельной системы для проводимых исследований был выбран кремний, поскольку данный полупроводниковый материал наиболее хорошо изучен с точки зрения его физических свойств, и в тоже время кремний остаётся одним из наиболее широко используемых материалов в современной микро- и нанoeлектронике.

§ 2.1. Экспериментальные данные и модельные представления об эволюции морфологии поверхности кремния в условиях низкоэнергетического ионного облучения.

Динамика изменения морфологии поверхности в условиях ионного облучения, а также локальные нарушения, производимые ионным пучком, наиболее подробно изучены в экспериментах по ионному распылению. Важной особенностью данных исследований является то, что они позволяют в наиболее чистом виде выделить вклад ионно-

стимулированных процессов в изменение поверхностной морфологии, поскольку вклад, связанный с осаждением из молекулярного пучка, здесь отсутствует.

Так в работе [60] методом ДБЭ исследовалась динамика изменения морфологии при распылении поверхности Si(100) отклонённым от нормали ионным пучком Xe^+ с энергией 200 эВ. Угол падения ионного пучка составлял 60° . Выбор массы, энергии и угла падения ионов основывался на проведённых ранее теоретических расчётах [88], которые показали, что именно при таких параметрах ионного пучка отношение поверхностных атомных смещений к объёмным смещениям максимально. То есть были основания считать, что ионный пучок будет взаимодействовать преимущественно с поверхностью кремния, практически не затрагивая его объёма, а значит количество вводимых в объём дефектов будет минимальным. Эксперименты полностью подтвердили данный теоретический прогноз. Было обнаружено, что в отсутствии осаждения из молекулярного пучка при ионном облучении поверхности наблюдаются осцилляции интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ по виду очень похожие на осцилляции интенсивности при двумерно-слоевом механизме роста плёнки [46]. Период осцилляций был равен времени распыления одного монослоя поверхности Si(100) (см. рис.7 в разделе §1.2.2).

Полученные в работе [60] данные свидетельствовали в пользу того, что при облучении низкоэнергетическими ионами поверхности кремния происходит её послойное распыление в режиме подобном двумерно-слоевому росту плёнки. Выполненные впоследствии методом СТМ исследования [62,63] для вицинальных поверхностей Si(100) и Si(111) показали, что процесс послойного удаления кремния ионным пучком происходит посредством двух механизмов. Первый механизм состоит преимущественно в удалении атомов из краёв моноатомных ступеней, что приводит к их движению в направлении обратном росту, второй - в образовании и последующем срастании поверхностных вакансионных кластеров моноатомной глубины. Причём вклад первого механизма в изменение поверхностной морфологии с увеличением температуры возрастает и, начиная с некоторой температуры

($\approx 500^{\circ}\text{C}$), становится определяющим. Было также установлено, что плотность и, соответственно, размер вакансионных «островков» зависит от температуры, подобно плотности и размеру двумерных островков, формируемых в процессе осаждения из молекулярного пучка. Наблюдаемое явление получило название «обратной эпитаксии» из-за близкой аналогии с эпитаксиальным ростом плёнок, что фактически отражает тот экспериментальный факт, что низкоэнергетические ионы производят структурные изменения только в узком приповерхностном слое толщиной 1-2 монослоя, оставляя практически неизменной объёмную часть кристалла.

При исследовании распыления поверхности кремния ионным пучком, был получен ряд интересных экспериментальных результатов, указывающих на то, что с помощью ионного воздействия можно контролируемо изменять не только морфологию, но и атомную структуру (реконструкцию) поверхности. Так, в процессе распыления поверхности Si(100) ионным пучком Xe^+ с энергией 225 эВ при температуре 450°C и выше наблюдался 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 [62]. В случае ионного распыления поверхности Si(111) при достаточно низких температурах (250°C) исследования методом СТМ [63] показали, что внутри формируемых поверхностных вакансионных кластеров поверхность не реконструирована, а положение поверхностных атомов близко по структуре к объёмному кристаллу кремния. Поверхность между вакансионными кластерами сохраняла исходную реконструкцию (7x7). После распыления приблизительного одного атомного слоя вся поверхность Si(111) переходила в состояние, характеризующееся отсутствием реконструкции. То есть происходило разрушение поверхностной реконструкции ионным пучком. Данный эффект чрезвычайно важен для низкотемпературной эпитаксии кремния и других ковалентных полупроводников, поскольку, как показывают теоретические

исследования [100,102], именно разрушение реконструкции с формированием нереконструированных участков поверхности значительно снижает барьер встраивания мигрирующих адатомов в растущую плёнку и, таким образом, препятствует её аморфизации.

Основываясь на наблюдаемой в эксперименте аналогии между эпитаксиальным ростом и послойным распылением кремния ионным пучком, Бедроссиан и др. (Bedrossian et al.) [60,62,63] предложили модель происходящих на поверхности изменений. В основу модели было положено предположение о высокой диффузионной подвижности поверхностных вакансий, создаваемых ионным пучком. Диффузионная подвижность таких вакансий предполагалась в точности равной диффузионной подвижности адатомов. В полной аналогии с эпитаксиальным ростом наблюдаемые на поверхности изменения авторы модели объясняли диффузией и взаимодействием одиночных поверхностных вакансий, которые при определённых условиях по температуре и скорости распыления ионным пучком могли встраиваться в моноатомные ступени, вызывая их движение, или формировать на поверхности двумерные вакансионные «островки», аналогично зарождению адатомных островков при эпитаксии из молекулярного пучка.

Однако, достоверность базового допущения модели о равенстве диффузионных подвижностей поверхностных вакансий и адатомов вызывает большие сомнения, поскольку даже из геометрических соображений понятно, что подвижности указанных квазичастиц должны быть различны. Более того, имеется ряд экспериментальных работ [64,110,111], свидетельствующих в пользу чрезвычайно низкой подвижности поверхностных вакансий, по сравнению с подвижностью адатомов [90].

Кроме того, указанная выше аналогия между эпитаксиальным ростом и ионным распылением может нарушиться при понижении температуры поверхности. Было обнаружено [53], что облучение низкоэнергетическим (~ 200 эВ) ионным пучком Xe^+ поверхности Si(100) при температурах ниже 370°C приводит к образованию как вакансионных, так адатомных островков. Причём детальный анализ СТМ изображений

облучённой поверхности показал, что 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 Ar^+ [73]. В этом случае энергия ионов составляла 1 КэВ. Таким образом, имеющиеся экспериментальные данные указывают на то, что наряду с распылением и генерацией вакансий на поверхности имеет место заметная генерация адатомов ионным пучком, которая при определённых условиях по температуре и параметрам ионного пучка может давать значительный вклад в изменение поверхностной морфологии. Генерация адатомов является одним из ключевых факторов ионного воздействия, который позволяет объяснить многие экспериментальные результаты по ионно-стимулированному росту плёнок. Однако, данный процесс не был включен в модель Бедроссиана, что, по нашему мнению, сильно ограничивает её применимость.

§ 2.2. Исследование взаимодействия низкоэнергетических ионов Хе с поверхностью кремния методом молекулярной динамики.

Для низкоэнергетических ионов оказывается принципиально важным учёт взаимодействия налетающих ионов и атомов отдачи со всеми соседними атомами. Это связано с тем, что налетающий ион (ускоренная частица) за характерное время взаимодействия успевает передать энергию и импульс не только атому, с которым испытывает непосредственное столкновение, но и ближайшему атомному окружению. 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 [57]. Полезно дать простую оценку характерной энергии ионов, ниже которой многочастичные эффекты в твердом теле становятся определяющими.

Характерное время, в течение которого налетающий ион испытывает взаимодействие с неподвижным атомом мишени, зависит от скорости иона и может быть найдено из следующего выражения $t_1 = 2R_A / (2E/M)^{1/2}$, где R_A – атомный радиус атома мишени; E , M – энергия и масса иона. Характерное время передачи энергии между соседним атомами мишени определяется скоростью распространения упругих волн в среде (скоростью звука), и может быть найдено как $t_2 = 2R_A / (K/\rho)^{1/2}$, где K – модуль упругости, ρ – плотность материала мишени. Тогда из условия $t_1/t_2 = 1$ находим характерную энергию $E^* = M/2 (K/\rho)$, начиная с которой процесс взаимодействия иона с атомами твердого тела уже нельзя рассматривать адиабатически.

Для кристалла кремния, облучаемого ионами Хе, данная оценка даёт характерную энергию E^* порядка 100 эВ. Понятно, что полученная величина E^* является оценкой снизу, поскольку учитывает только начальную энергию иона. В действительности, ион двигаясь в твердом теле, быстро теряет свою энергию за счёт столкновений с атомами мишени. Спустя некоторое число столкновений энергия иона становится порядка E^* , и взаимодействие иона приобретает существенно многочастичный характер.

Как уже отмечалось в литературном обзоре (см. § 1.4), для проведения детального исследования взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью полупроводникового кристалла наиболее подходящим является метод молекулярной динамики, основанный на численном решении уравнений движения для ансамбля сильно взаимодействующих частиц. Именно поэтому в нашей работе метод молекулярной динамики был выбран в качестве базового метода для теоретических исследований.

2.2.1. Описание модельной структуры и некоторых особенностей реализации метода молекулярной динамики.

Взаимодействие между атомами кремния (Si-Si) моделировалось с помощью составного эмпирического потенциала [55], вид которого зависел от взаимного расположения атомов,

что в свою очередь определяло величину энергии взаимодействия (рис.11). За начало отсчёта энергии здесь принималась энергия покоящегося атома кремния, удалённого из кристалла в вакуум. Если энергия взаимодействия была > 30 эВ, то взаимодействие моделировалось с помощью универсального потенциала парного взаимодействия или потенциала Зиглера (Ziegler), Бирзака (Biersack) и Литтмарка (Littmark) (ZBL) [86], который хорошо работает при энергиях заметно выше энергии связи атомов. Если потенциальная энергия атома была < 0 эВ (то есть при достаточно больших межатомных расстояниях), то взаимодействие моделировалось с помощью трёхчастичного потенциала Стиллинджера-Вебера [91], который хорошо воспроизводит все основные физико-химические свойства кремния. В промежуточной области энергий от 0 до 30 эВ потенциал атомного взаимодействия аппроксимировался кубическим сплайном, что позволяло осуществить плавный переход от одного типа атомного потенциала к другому. Взаимодействие низкоэнергетического иона ксенона с атомами кремния (Xe-Si) моделировалось с помощью потенциала ZBL во всем исследуемом диапазоне энергий, что является достаточно хорошим приближением при описании взаимодействия ионов инертного газа с атомами кремния [86], поскольку силами взаимного притяжения указанных частиц с хорошей точностью можно пренебречь.

Модельная ячейка представляла собой кластер атомов кремния в форме прямоугольного или косоугольного параллелепипеда. Размер атомного кластера мог меняться от одного модельного эксперимента к другому, но всегда был больше 5000 атомов, что позволяло адекватно воспроизводить структурные, тепловые, механические и другие свойства кристаллического кремния. Верхняя граница ячейки считалась свободной, то есть никаких дополнительных ограничений на движение атомов не накладывалось. На нижней границе ячейки атомы фиксировались в регулярных позициях, соответствующих кристаллической решётке кремния. В следующих двух монослоях скорости движения атомов нормировались в соответствии с выбранной температурой исследуемого образца. Данная процедура удержания нижней границы при постоянной температуре обеспечивала диссипацию энергии,

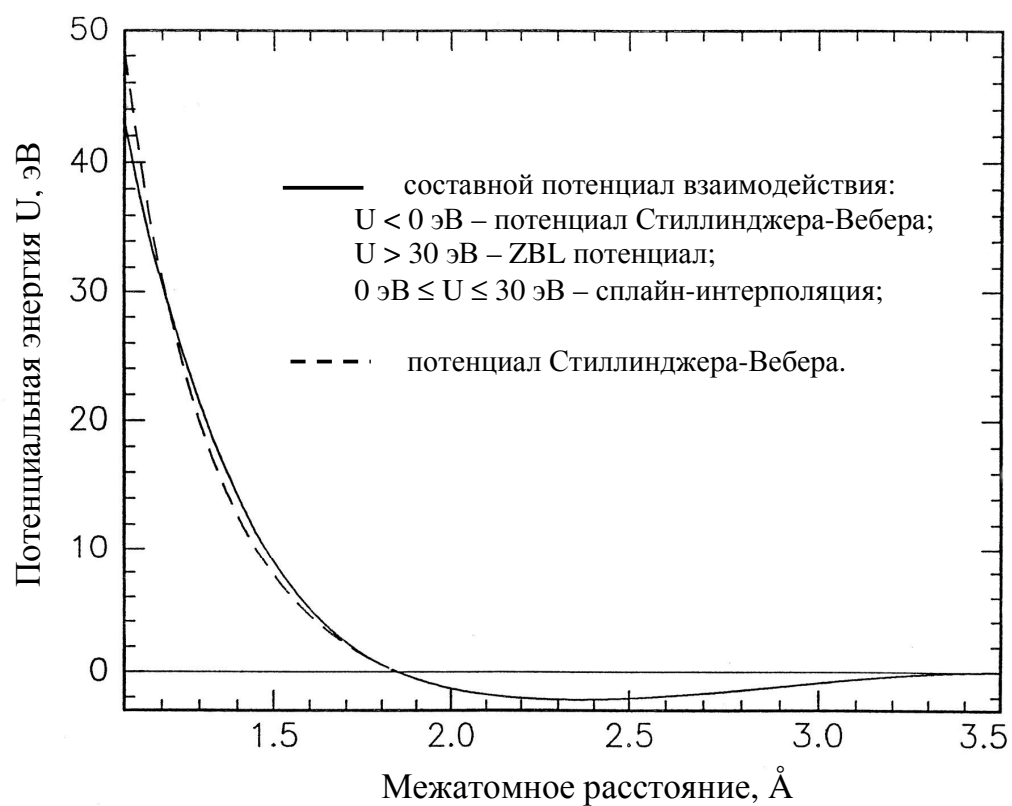


Рис. 11. Вид составного эмпирического потенциала межатомного взаимодействия, используемого в расчётах методом молекулярной динамики [55, 113].

выделяемой при столкновении низкоэнергетических ионов с поверхностью. Кроме того, это позволяло проводить расчёты при различных температурах мишени, используемых в экспериментах по ионному воздействию. На боковые границы накладывались циклические граничные условия. Уравнения движения для каждого атома в модельной ячейке интегрировались по времени с использованием численного алгоритма Верлета [112]. Типичный шаг интегрирования составлял $4 \cdot 10^{-16}$ с. Выбор величины шага основывался, прежде всего, на том, что он должен был быть заметно меньше характерного времени передачи энергии между соседними атомами в кристаллической решётке кремния, которое определяется упругими свойствами среды и составляет величину порядка 10^{-14} с. Для проверки точности метода были проведены модельные расчёты при меньшем шаге интегрирования (10^{-16} с), которые не показали зависимости результатов моделирования от величины шага.

2.2.2. Основные результаты моделирования взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью кремния.

Моделирование процесса взаимодействия низкоэнергетических ионов с кремнием проводилось для двух основных ориентаций поверхности: (111), (100) [55,113]. Для статистики рассматривалось до 24 столкновений ионов с поверхностью. Угол падения ионов от нормали к поверхности составлял 60° , энергия - 225 эВ. Используемые в расчётах параметры ионного пучка, а также температуры кремниевой мишени полностью соответствовали условиям экспериментов по послойному распылению поверхности кремния низкоэнергетическим пучком ионов Xe^+ [60,62,63].

А) Поверхность Si(111).

Исходная поверхность Si(111) не имела реконструкции, но была подвергнута упругой релаксации, в результате которой свободная энергия поверхности понижалась [97].

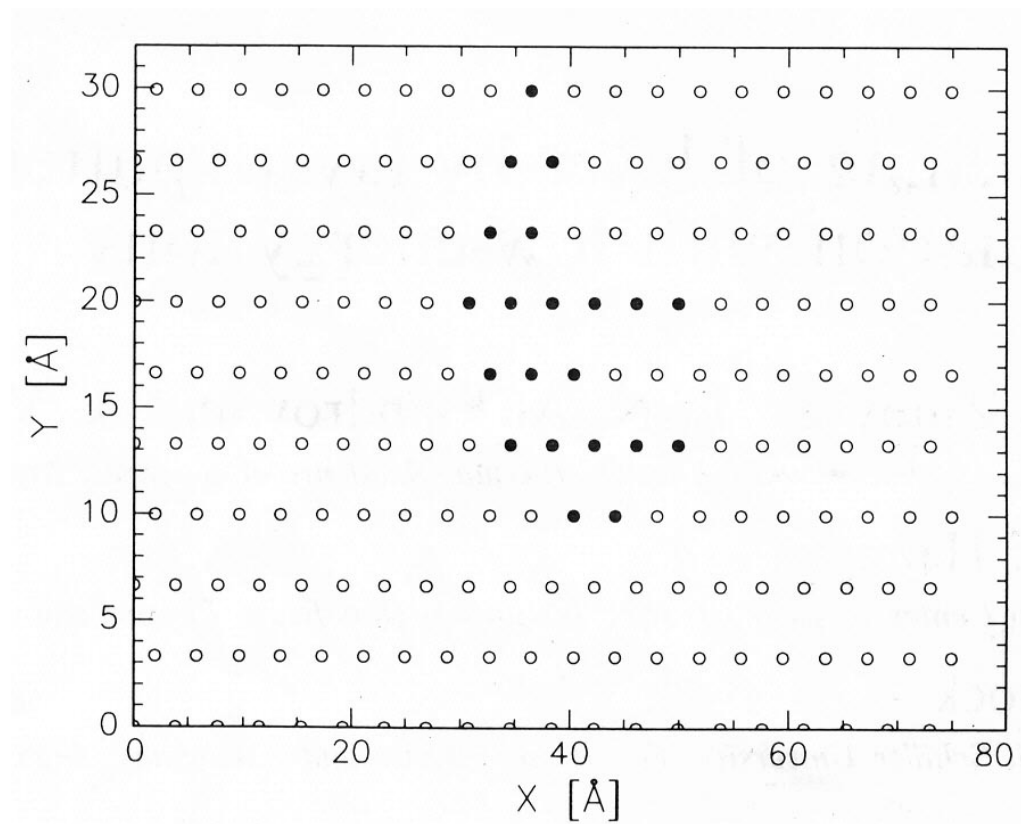


Рис. 12. Типичное распределение поверхностных вакансий по истечении 2 пс от момента столкновения низкоэнергетического иона Хе с поверхностью Si(111), полученное на основе расчёта методом молекулярной динамики [55]. Энергия иона составляла 225 эВ, угол падения по отношению к нормали к поверхности - 60° . Температура мишени - 530°C . Позиции поверхностных вакансий отмечены черным цветом и соответствуют узлам кристаллической решётки нереконструированной поверхности Si(111).

На рисунке 12 показано типичное пространственное распределение поверхностных вакансий, созданных при столкновении иона Хе с поверхностью Si(111). Исходная температура ячейки составляла 530⁰С. Позиции поверхностных вакансий отмечены черным цветом и соответствуют узлам кристаллической решётки нереконструированной поверхности Si(111). Из полученного распределения хорошо видно, что в результате столкновения иона с поверхностью на ней формируется кластер геометрически связанных поверхностных вакансий, тогда как одиночных поверхностных вакансий не наблюдается. В непосредственной близости от границы поверхностного вакансионного кластера моноатомной глубины располагаются одиночные адатомы и небольшие островки размером не более 4 адатомов (см. рис. 13). Стабильность образовавшихся адатомных скоплений в дальнейшем определяется температурой поверхности. При достаточно высоких температурах они распадаются, а при низких температурах они могут сохраняться и служить центрами зарождения и роста нового атомного слоя.

Было получено, что среднее количество распылённых атомов в расчёте на один ион Хе (коэффициент распыления) составляет 1.3. Вакансионный кластер в среднем содержал 16 поверхностных вакансий, 15 атомов выбивались из поверхностного монослоя в адатомные позиции. Что касается объёмных вакансий и междоузельных атомов, то их число в начальные моменты времени после столкновения иона с поверхностью (≤ 1 пс) заметно превышало число поверхностных вакансий и адатомов. Однако по истечении приблизительно 20 пс число объёмных дефектов резко уменьшалось за счёт их взаимной аннигиляции, в то время как количество поверхностных дефектов практически не менялось.

Следует отметить, что данные результаты получены без учёта реальной реконструкции поверхности Si(111). Это связано с принципиальным ограничением используемого подхода к исследованию. Дело в том, что на основе любого из известных в настоящее время эмпирических атомных потенциалов не удаётся получить геометрическое расположение атомов (рис.8), соответствующее реконструкции (7x7), характерной для поверхности Si(111).

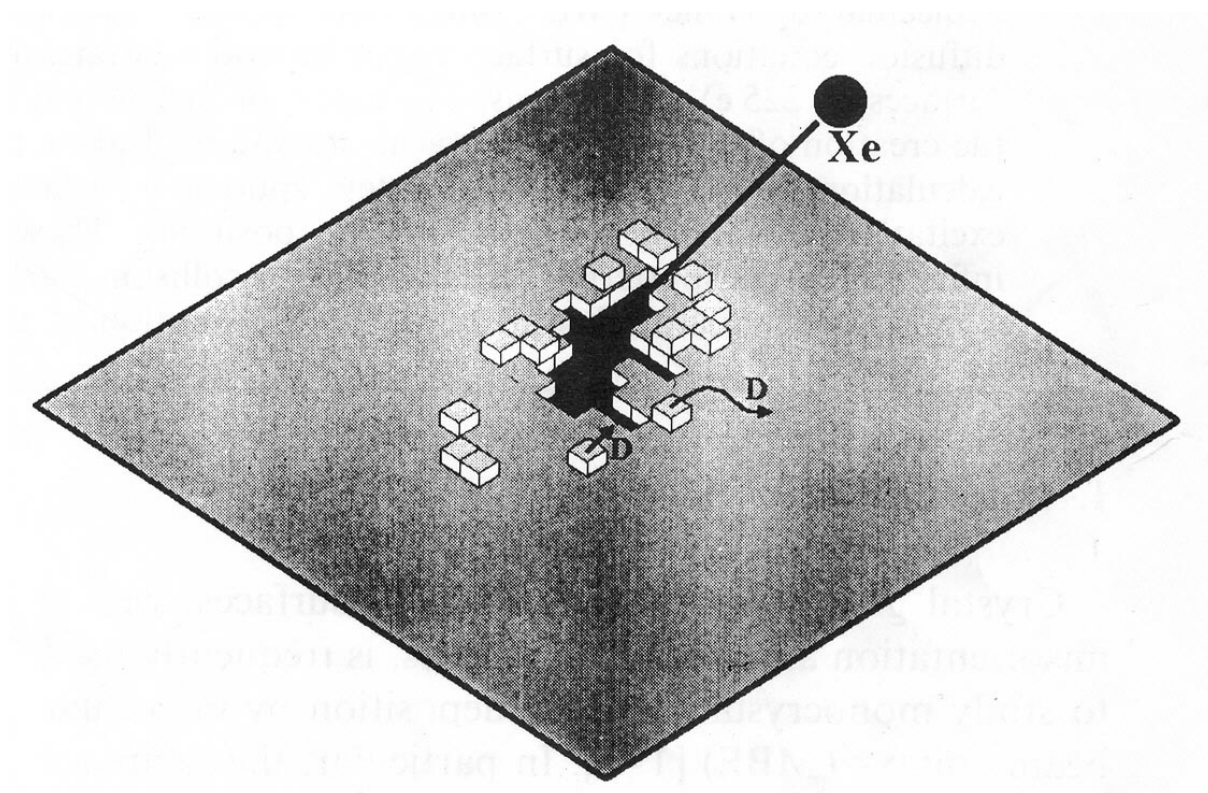


Рис. 13. Морфологические изменения поверхности Si(111), вызванные падением низкоэнергетического иона Xe для тех же параметров модельного расчёта, что указаны в подписи к рис.12. Позиции поверхностных вакансий и адатомов изображены в соответствии с данными МД [55].

Согласно литературным данным [94,114], данная проблема может быть решена только методами квантовой динамики, в которых силы межатомного взаимодействия определяются на основе квантово-механических расчётов электронной структуры взаимодействующих атомов. К сожалению, возможность использования данных методов для проведения исследований взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью кремния сильно ограничена из-за гигантского объёма требуемых вычислений.

Однако, у нас есть все основания считать, что основные результаты по скорости генерации и пространственному распределению дефектов сильно не изменятся при учёте реальной реконструкции поверхности Si(111), поскольку различие в средней энергии связи в расчёте на атом реконструированной и нереконструированной поверхности не превышает 15% (~ 0.2 эВ) [94,114,115], и в первом приближении им можно пренебречь.

Б) Поверхность Si(100).

Модельная поверхность Si(100) лишена указанного выше недостатка, поскольку используемый в расчётах потенциал Стиллинджера-Вебера с высокой точностью воспроизводит реконструкцию (2x1), характерную для реальной поверхности Si(100) [108].

Были проведены исследования морфологической перестройки реконструированной поверхности Si(100), вызванной падением иона Хе параллельно и перпендикулярно димерным рядам [113]. Исходная температура поверхности составляла 450°C. Рисунок 14 соответствует случаю, когда ион Хе с энергией 225 эВ падает параллельно димерным рядам под углом 60° от нормали к поверхности точно посередине между двумя димерными рядами. Более светлые тона на рисунке соответствуют поверхностным атомам, за исключением иона Хе и двух распыляемых атомов Si, которые помечены чёрным цветом. По истечении 0.4 пс после ионного удара на поверхности формируется вакансионный кластер состоящий из 10 вакансий (рис.14 а). По периферии поверхностного вакансионного кластера 8 атомов выходят в адатомные позиции. При этом два атома кремния, имея нулевую

потенциальную энергию, покидают поверхность (распыляются). Созданные ионным воздействием адатомы не являются равновесными, поскольку их средняя кинетическая энергия составляет 0.92 эВ, что заметно выше энергии теплового движения атомов кристалла ($\sim kT$). Большинство из адатомов выбиваются на поверхность из первого монослоя и около 30% -из второго монослоя. По прошествии приблизительно 5 пс релаксация поверхностных нарушений в основном заканчивается, и размер вакансионного кластера перестаёт меняться. Проведённые расчёты по эволюции поверхности в течение 100 пс показывают лишь незначительные изменения в положении адатомов и слабую модификацию формы вакансионного кластера (рис.14 б).

При падении иона Хе перпендикулярно димерным рядам ситуация оказалась существенно отличной от предыдущей. Во-первых, при прохождении иона Хе сквозь димерные ряды выбиваются не отдельные атомы, а целые участки димерных рядов (кластеры) с характерным количеством атомов в кластере до 5. Во-вторых, ион Хе взаимодействует преимущественно с первым атомным монослоем, почти не затрагивая второй. В результате формируется вакансионный кластер в точности моноатомной глубины. Рядом с вакансионным кластером располагаются адатомные островки, содержащие более двух адатомов.

Таким образом, в результате проведённых модельных расчётов, было установлено, что столкновение низкоэнергетического иона Хе с поверхностью Si(111) и Si(100) приводит к образованию одиночного вакансионного кластера, в котором вакансии сосредоточены преимущественно в первом монослое (вакансионный островок моноатомной толщины), генерации адатомных скоплений и распылению материала. Среднее число распыленных атомов на одно столкновение иона с поверхностью составляет около 1. Для некоторых столкновений распыление вообще не происходит, в других случаях распыляется 2 или 3 атома.

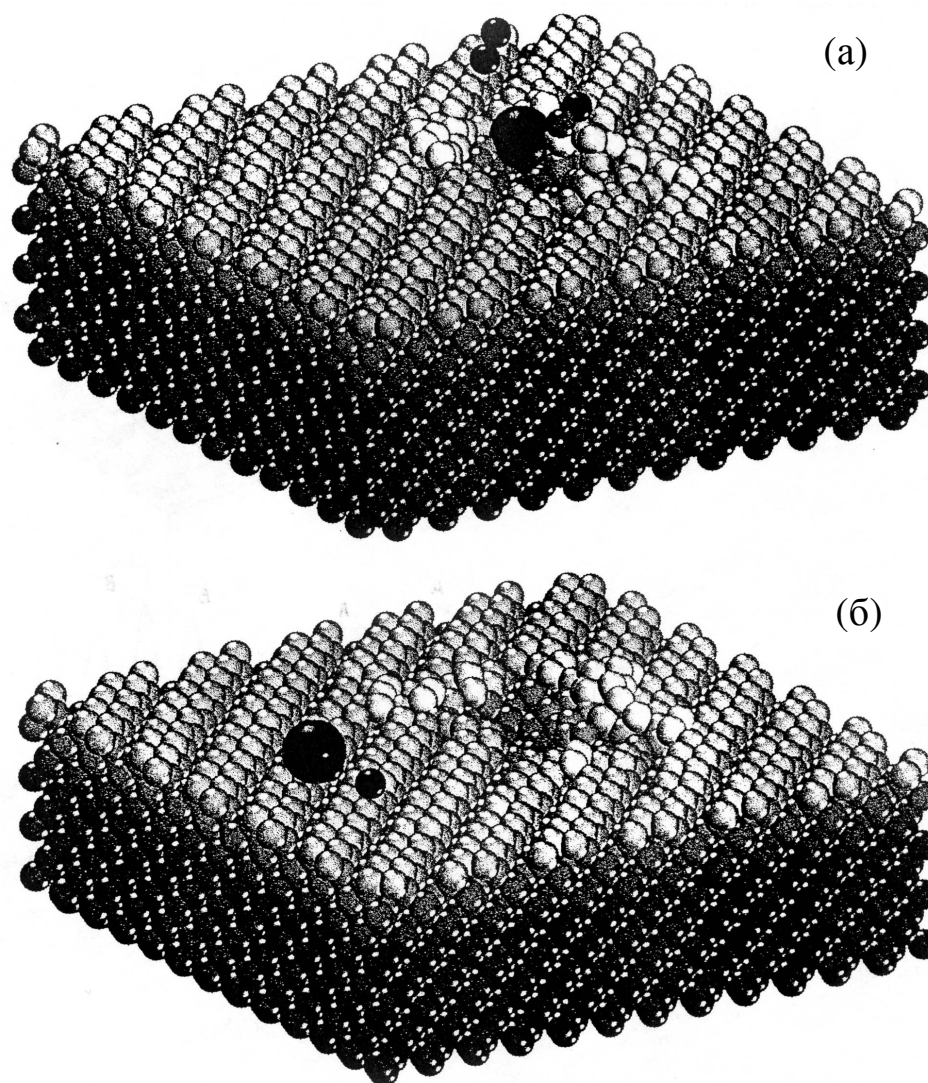


Рис.14. Состояние поверхности Si(100) через (а) 0.4 пс и (б) 100 пс после удара иона Хе параллельно димерным рядам. Энергия иона - 225 эв. Угол падения иона - 60° от нормали к поверхности. Начальная температура поверхности – 450°C [113].

Для поверхности Si(100) в среднем вакансионный кластер состоит из 9 вакансий, и 10 адатомов оказываются на поверхности в возбужденном состоянии. Это примерно в 1.5 раза меньше, чем для поверхности Si(111). Такая разница в скоростях генерации поверхностных дефектов объясняется различием в плотностях упаковки поверхностного атомного слоя, которая для поверхности Si(111) примерно в 2 раза больше, чем для поверхности Si(100). Различие в плотностях приводит к тому, что при столкновении иона с поверхностью Si(111) он практически не проникает в объём кристалла и, следовательно, производит больше поверхностных нарушений, чем в случае поверхности Si(100).

Выводы по главе 2.

Суммируя полученные результаты, можно заключить, что морфологическая перестройка поверхности Si(111) и Si(100), вызванная единичным ударом низкоэнергетического иона Хе, приводит к образованию поверхностного вакансионного кластера, в котором вакансии сосредоточены преимущественно в первом атомном слое, генерации адатомных скоплений и распылению материала. Оказалось, что скорость генерации поверхностных вакансий и адатомов ионным пучком значительно (почти на порядок) превышает скорость распыления. Эта характерная особенность поверхностного дефектообразования имеет принципиальное значение для построения адекватной модели эволюции морфологии поверхности в условиях низкоэнергетического ионного облучения. Создание ионным пучком локально высоких пересыщений адатомов и вакансий может значительно изменить скорости поверхностных процессов, сопутствующих росту плёнок.

Другой важный вывод из полученных результатов состоит в том, что при построении модели эволюции поверхности в условиях облучения низкоэнергетическими ионами нет необходимости отдельно рассматривать зарождение двумерных вакансионных островков за счёт диффузии и взаимодействия одиночных вакансий, поскольку вакансионные островки формируются уже на стадии столкновения иона с поверхностью. Таким образом, кинетика происходящих на поверхности изменений будет определяться в основном диффузией и взаимодействием подвижных адатомов с неподвижными вакансионными кластерами, созданными ионным пучком.

Глава 3. Исследование эволюции поверхности кремния под действием ионного облучения на основе решения диффузионной задачи.

Расчёты методом молекулярной динамики ограничиваются временным интервалом до 100 пс, исходя из вычислительных возможностей современных рабочих станций. Поскольку изменения поверхности продолжаются и по истечении 100 пс, то дальнейшая эволюция поверхности исследовалась на основе решения диффузионной задачи.

§ 3.1. Постановка задачи.

При решении диффузионной задачи данные метода молекулярной динамики являлись исходными для определения последующих изменений на поверхности кремния. Эти данные позволяют считать, что поверхностные вакансии сосредоточены в неподвижных вакансионных кластерах, а подвижными являются только адатомы. Причем имеющиеся экспериментальные данные свидетельствуют о том, что адатомы в исследуемом нами температурном интервале не образуют скоплений на поверхности, а остаются одиночными [53]. Подвижные адатомы взаимодействуют с вакансионными кластерами и со ступенями на поверхности. Наряду с генерацией адатомов ионным пучком, рассчитывается термическая генерация адатомов путём отрыва от краёв моноатомных ступеней. На основе предлагаемой модели, как будет показано позже, удаётся описать основные закономерности изменения морфологии поверхности, наблюдаемые в экспериментах по ионному распылению. При этом нет необходимости допускать высокую диффузионную подвижность поверхностных вакансий, как это, например, делалось в работах [53,60,62,63].

При формулировке задачи мы воспользовались стандартной кинетической моделью роста кристаллов Бартона-Кабрера-Франка (БКФ) [116], обобщённой в работах Введенского с соавторами (Vvedensky et al.) [117,118,119] на случай сильно неравновесных условий роста, которые реализуются при эпитаксии из молекулярных пучков.

А) Поверхность Si(111).

Для вицинальной поверхности Si(111) задача сводится к одномерной [120], и модельная система уравнений, включающая взаимодействие подвижных адатомов со ступенями и вакансионными кластерами, созданными ионным пучком, имеет следующий вид:

$$\frac{\partial N}{\partial t} = D \frac{\partial^2 N}{\partial x^2} + V \frac{\partial N}{\partial x} + R_{ad} - K_{ad} CN, \quad (2.1)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = R_c + V \frac{\partial C}{\partial x} - K_c NC. \quad (2.2)$$

Здесь x - расстояние вдоль террасы между соседними ступенями (см. рис. 15); t - время облучения; V - скорость движения эшелона ступеней; N , C - концентрации адатомов и вакансионных кластеров на террасе между ступенями, D - коэффициент термоактивируемой диффузии адатомов; R_{ad} , R_c - скорости генерации адатомов и вакансионных кластеров; K_{ad} , K_c - коэффициенты аннигиляции адатомов и вакансионных кластеров.

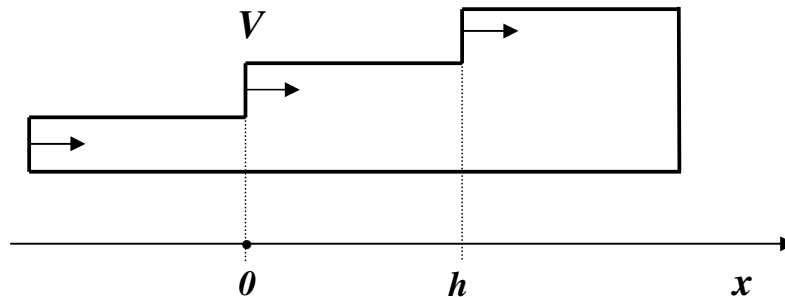


Рис. 15. Схематичное представление вицинальной поверхности Si(111). Стрелками показано направление движения эшелона ступеней при распылении поверхности пучком низкоэнергетических ионов.

Начальные и граничные условия задачи выбираются следующими:

$$N(x, t = 0) = N_{eq}, \quad (2.3)$$

$$C(x, t = 0) = 0, \quad (2.4)$$

$$D \frac{\partial N}{\partial x}(x = 0, t) = q n_k - \beta N(x = 0, t), \quad (2.5)$$

$$D \frac{\partial N}{\partial x}(x = h, t) = q n_k - \beta N(x = h, t), \quad (2.6)$$

$$\frac{\partial C}{\partial x}(x = h, t) = 0. \quad (2.7)$$

Скорость движения ступени на вицинальной поверхности Si(111) определяется путём самосогласованного решения уравнения баланса, которое наряду с диффузионными потоками адатомов со стороны нижней и верхней террасы учитывает встраивание (конвективный поток) вакансионных кластеров в ступень при её движении вдоль поверхности:

$$V n_0 = D \frac{\partial N}{\partial x}(x = 0, t) - D \frac{\partial N}{\partial x}(x = h, t) + V n_v C(0, t). \quad (2.8)$$

Здесь N_{eq} – равновесная концентрация адатомов на поверхности; β , q – кинетические коэффициенты встраивания и отрыва адатомов от ступеней; n_k – плотность изломов на ступени (шероховатость ступени); h – ширина террасы между ступенями; n_0 – поверхностная плотность атомов; n_v – среднее число вакансий в кластере.

Граничное условие (2.7) фактически означает отсутствие диффузионного потока вакансионных кластеров в ступень, что соответствует модельному допущению о неподвижности вакансионных кластеров. Никаких других ограничений на изменение концентрации вакансионных кластеров вблизи со ступенью не накладывается.

Усреднённый коэффициент аннигиляции адатомов на вакансионных кластерах задаётся простым выражением:

$$K_{ad} = zD,$$

где $z = \frac{\alpha}{2} \sqrt{n_v}$ – среднее число посадочных мест для адатомов вокруг вакансионного кластера, α – параметр, учитывающий форму кластера. Корневая зависимость от n_v предполагает, что поверхностный вакансионный кластер имеет компактную форму. Это допущение хорошо согласуется с данными расчёта методом молекулярной динамики (см. рис.12). Усреднённый коэффициент аннигиляции поверхностных вакансионных кластеров задаётся следующим выражением:

$$K_c = \frac{K_{ad}}{n_v}.$$

Такая форма записи для K_c отражает используемое модельное упрощение, которое состоит в том, что процесс аннигиляции рассматривается как последовательная цепочка встраиваний адатомов в поверхностный вакансионный кластер вплоть до его полного исчезновения. При этом не учитывается возможность обратного процесса, а именно отрыва адатома от границы кластера. Это упрощение отчасти оправдано тем, что граница поверхностного вакансионного кластера характеризуется отрицательной кривизной. Исходя из соотношения Гиббса-Томпсона [121], можно показать, что вероятность отрыва адатома от границы такого кластера будет заметно меньше, чем, например, от границы линейной ступени или адатомного островка. Кроме того, вклад указанного выше процесса в коэффициент аннигиляции можно учесть соответствующим выбором параметра α . Следует, также заметить, что используемое в модели упрощение не является следствием каких-то принципиальных ограничений используемого подхода.

Другие величины, используемые в уравнениях (2.1-2.8), определяются следующими выражениями:

$$R_{ad} = (n_v - n_s) R_c,$$

$$D = a^2 v_0 \exp(-E_D / kT),$$

$$\beta = a v_0 n_k / n_0 \exp(-E_a / kT),$$

$$q = \alpha v_0 n_k / n_0 \exp(-E_d / kT),$$

$$N_{eq} = q n_k / \beta = n_k \exp(-(E_d - E_a) / kT).$$

Здесь n_s – коэффициент распыления; E_a , E_d – барьеры для встраивания и отрыва адатомов от ступеней.

Система уравнений (2.1-2.8) была решена стандартным численным методом, используемым для решения систем дифференциальных уравнений в частных производных [122]. В расчёт закладывались следующие значения параметров, определяющих кинетику поверхностных процессов при облучении низкоэнергетическими ионами:

$$E_D = 1 \text{ эВ}; E_a = 1 \text{ эВ}; E_d = 1.9 \text{ эВ} [123], n_v = 16, n_s = 1 [55]$$

Выбор значений параметров E_D и E_a основывался на литературных данных [26,124], согласно которым истинное значение энергии активации поверхностной диффузии адатомов для Si(111), по-видимому, лежит в пределах от 0.75 эВ до 1.3 эВ.

Б) Поверхность Si(100).

Для вицинальной поверхности Si(100) диффузионная задача также сводится к одномерной [113]. Однако здесь принципиально важным оказывается учёт различных кинетических свойств соседних ступеней и террас между ними, что обусловлено особенностью атомного строения данной поверхности. Дело в том, что вицинальная поверхность Si(100), при угле разориентации $< 2^\circ$ [125], является димеризованной с чередованием поверхностных сверхструктур (1x2) и (2x1) на соседних террасах ступеней моноатомной высоты. Такое строение поверхности Si(100) приводит к существенной анизотропии её физических свойств. Следуя Chadí [126], моноатомная ступень, на верхней террасе которой димеры ориентированы перпендикулярно краю ступени (реконструкция (2x1)), обозначается как S_A (см. рис.16). Соседняя с ней моноатомная ступень, на верхней террасе которой димеры ориентированы параллельно краю ступени (реконструкция (1x2)), обозначается как S_B . Соответственно, террасы, имеющие реконструкции двух типов: (2x1) и (1x2), обозначаются как T_A и T_B . На основании

экспериментальных данных [62, 111, 127, 128, 129, 130] и теоретических расчётов [109, 131] принимается, что кинетические коэффициенты встраивания/отрыва адатомов для ступени S_B больше, чем для ступени S_A . Система дифференциальных уравнений, описывающих эволюцию вицинальной поверхности Si(100) в условиях ионного облучения, имеет следующий вид:

$$\frac{\partial N_j}{\partial t} = D \frac{\partial^2 N_j}{\partial x^2} + V_A \frac{\partial N_j}{\partial x} + R_{ad} - K_{ad}^j N_j C_j, \quad (2.9)$$

$$\frac{\partial C_j}{\partial t} = R_c^j + V_A \frac{\partial C_j}{\partial x} - K_c^j N_j C_j, \quad (2.10)$$

$$j = [A, B].$$

Здесь x - расстояние вдоль террас между соседними ступенями (см. рис. 16); t - время облучения; V_A - скорость движения S_A ступени; N_j , C_j - концентрации адатомов и вакансионных кластеров на террасах двух типов: T_A , T_B ; D_j - коэффициент термоактивируемой диффузии адатомов; $R_{ad}^j, R_c^j, K_{ad}^j, K_c^j$ - скорости генерации и коэффициенты аннигиляции адатомов и вакансионных кластеров на террасах.

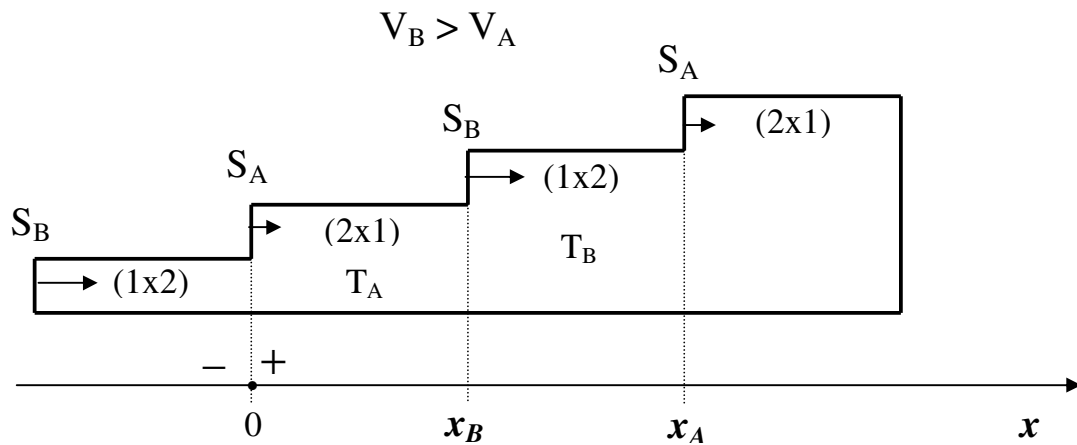


Рис. 16. Схематичное представление вицинальной поверхности Si(100) с углом разориентации $< 2^\circ$. Стрелками показано направление движения S_A и S_B -ступеней при распылении поверхности пучком низкоэнергетических ионов.

Начальные и граничные условия задачи выбираются следующими:

$$N_j(x, t = 0) = N_{eq}^j, \quad (2.11)$$

$$C_j(x, t = 0) = 0, \quad (2.12)$$

$$D_A \frac{\partial N_A}{\partial x}(x = 0^+, t) = q_A^+ n_{k,A} - \beta_A^+ N_A(x = 0^+, t), \quad (2.13)$$

$$D_A \frac{\partial N_A}{\partial x}(x = x_B^-, t) = -q_B^- n_{k,B} + \beta_B^- N_A(x = x_B^-, t), \quad (2.14)$$

$$D_B \frac{\partial N_B}{\partial x}(x = x_B^+, t) = q_B^+ n_{k,B} - \beta_B^+ N_B(x = x_B^+, t), \quad (2.15)$$

$$D_B \frac{\partial N_B}{\partial x}(x = 0^-, t) = -q_A^- n_{k,A} + \beta_A^- N_B(x = 0^-, t) \quad (2.16)$$

$$\frac{\partial C_A}{\partial x}(x = 0^+, t) = 0, \quad (2.17)$$

$$\frac{\partial C_B}{\partial x}(x = x_B^+, t) = 0, \quad (2.18)$$

Скорости движения S_A и S_B ступеней определяется из решения уравнений баланса:

$$V_A n_0 = D_A \frac{\partial N_A}{\partial x}(x = 0^+, t) - D_B \frac{\partial N_B}{\partial x}(x = 0^-, t) + V_A n_v C_A(0^+, t) \quad (2.19)$$

$$V_B n_0 = D_B \frac{\partial N_B}{\partial x}(x = x_B^+, t) - D_A \frac{\partial N_A}{\partial x}(x = x_B^-, t) + V_B n_v C_B(x_B^+, t) \quad (2.20)$$

Положение «быстрой» S_B ступени относительно «медленной» S_A ступени определяется интегрированием по времени:

$$x_B(t) = x_B(0) + \int_0^t (V_B - V_A) dt \quad (2.21)$$

Здесь $\beta_j^{+(-)}$, $q_j^{+(-)}$ – кинетические коэффициенты встраивания и отрыва адатомов со стороны верхней (+) и нижней (-) террасы ступени типа S_j ; $n_{k,j}$ – плотность изломов на

ступени типа S_j (шероховатость ступени); V_B – скорость движения ступени типа S_B ; N_{eq}^j – равновесная концентрация адатомов на террасе типа T_j ; $C_A(0^+, t)$, $C_B(x_B^+, t)$ – концентрация вакансионных кластеров со стороны верхней террасы S_A - и S_B -ступеней (см. рис. 16).

Коэффициент поверхностной диффузии, кинетические коэффициенты ступеней и равновесные концентрации адатомов на террасах между ступенями определяются следующими выражениями:

$$D_j = a^2 v \exp(-U_j / kT), \quad (2.22)$$

$$\beta_A^{+(-)} = avn_{k,A} / n_0 \exp(-E_a^{A,+(-)} / kT) \quad (2.23)$$

$$\beta_B^{+(-)} = avn_{k,B} / n_0 \exp(-E_a^{B,+(-)} / kT) \quad (2.24)$$

$$q_A^{+(-)} = avn_{k,A} / n_0 \exp(-E_d^{A,+(-)} / kT) \quad (2.25)$$

$$q_B^{+(-)} = avn_{k,B} / n_0 \exp(-E_d^{B,+(-)} / kT) \quad (2.26)$$

$$N_{eq}^A = (q_A^+ n_{k,A} + q_B^- n_{k,B}) / (\beta_A^+ + \beta_B^-) \quad (2.27)$$

$$N_{eq}^B = (q_B^+ n_{k,B} + q_A^- n_{k,A}) / (\beta_B^+ + \beta_A^-) \quad (2.28)$$

Здесь U_j – энергия активации диффузии адатомов на террасе типа T_j ; $E_a^{j,+(-)}$, $E_d^{j,+(-)}$ – барьеры для встраивания и отрыва адатомов со стороны верхней (+) и нижней (-) террасы ступени типа S_j .

В целях упрощения задачи считалось, что параметры R_{ad}^j , R_c^j , K_{ad}^j , K_c^j не зависят от типа террасы (T_j) и их средние значения вычислялись по тем же формулам, как для поверхности Si(111).

§3.2. Выбор параметров задачи.

В рамках используемой модели кинетические коэффициенты ступеней зависят от плотности изломов и барьеров встраивания/отрыва адатомов на их границах (см. выражения (2.23)-(2.26)). Постараемся выяснить, какой из указанных модельных параметров даёт

определяющий вклад в различие скоростей движения соседних ступеней в условиях послойного распыления вицинальной поверхности Si(100) пучком низкоэнергетических ионов.

Согласно данным микроскопических исследований [132] S_B -ступень характеризуется повышенной плотностью изломов по отношению к S_A -ступени. Это факт уже сам по себе может приводить к значительному различию кинетических коэффициентов и, соответственно, к различию скоростей движения соседних ступеней. Плотность изломов на ступенях в условиях близких к термодинамическому равновесию определяется следующим выражением [116]:

$$n_{k,j} = n_0 \exp(-\varepsilon_{k,j} / kT),$$

здесь $\varepsilon_{k,j}$ – энергия требуемая для формирования излома на ступени типа S_j .

Из приведённого выше соотношения следует, что ступень типа S_B должна характеризоваться меньшей энергией формирования излома, чем ступень типа S_A . Действительно, статистический анализ тепловых флуктуаций формы ступени, проведённый методом высокотемпературной СТМ [132], показал, что средняя энергия, требуемая для формирования излома на S_B -ступени, составляет 0.11 эВ, тогда как на S_A -ступени – 0.17 эВ. Используя полученные значения энергий и полагая, что плотность изломов не сильно отличается от равновесной, можно оценить относительное различие плотностей изломов на соседних ступенях как $n_{k,B} / n_{k,A} \approx \exp(-0.06 / kT)$.

Сопоставим теперь данное отношение с относительным различием скоростей движения S_B - и S_A -ступеней, которое наблюдается в экспериментах по ионному распылению. Для этого воспользуемся данными работы [111], в которой методом отражательной электронной микроскопии были измерены скорости движения моноатомных ступеней при распылении поверхности Si(100) пучком низкоэнергетических ионов Ar^+ . В этой работе было

установлено, что в условиях ионного распыления поверхности при температуре 689°C S_B -ступени двигались примерно в 1.8 раз быстрее S_A -ступеней.

Для той же температуры поверхности, отношение плотностей изломов, вычисленное по формуле (2.30), составляет 2.06, что, как можно видеть, близко по величине к отношению скоростей S_B - и S_A -ступеней (V_B/V_A). Согласно данным другой работы [62], отношение скоростей V_B/V_A составляло около 3, если ионное распыление поверхности Si(100) проводилось при более низкой температуре 450°C . Для этой температуры отношение плотностей изломов $n_{k,B}/n_{k,A}$ составляет 2.62, что также оказывается довольно близко к экспериментально наблюдаемому отношению скоростей.

Из проведённого выше сравнения следует, что различие в кинетических коэффициентах S_B - и S_A -ступеней связано главным образом с различной плотностью изломов на их границах. Что касается энергетических барьеров для встраивания/отрыва адатомов, то их вклад в различие скоростей перемещения ступеней в условиях ионного распыления поверхности, по-видимому, несущественен. Данное заключение становится вполне очевидным, если принять во внимание тот факт, что атомная конфигурация излома на S_A -ступени не сильно отличается от атомной конфигурации излома на S_B -ступени [129, 132, 133]. Другими словами, в структурном отношении оба типа изломов практически идентичны, поскольку в их строении всегда присутствуют участки характерные как для S_A -, так и для S_B -ступеней. Соответственно, если процессы встраивания и отрыва адатомов происходят преимущественно на изломах ступеней, то тогда величины эффективных энергий активации этих процессов должны слабо зависеть от типа моноатомных ступеней.

При решении диффузионной задачи абсолютные значения энергетических барьеров, характеризующих кинетические свойства поверхности, были взяты преимущественно из работ К. Роланда и Д. Гилмера [108,109]. В этих работах методом молекулярной динамики был проведён расчёт потенциального поля поверхности Si(100), в котором движется одиночный адатом кремния. Согласно полученным данным, энергия активации

поверхностной диффузии адатома в направлении вдоль димерных рядов составляет 0.67 эВ, тогда как перпендикулярно димерным рядам — 0.76 эВ. Вычисленные значения энергий находятся в хорошем согласии с экспериментом [90].

В указанных работах были также рассмотрены различные конфигурации моноатомных ступеней и потенциальный рельеф вблизи их границ. Для S_A -ступени барьер встраивания с верхней террасы был равен барьеру диффузии на этой террасе и составлял 0.67 эВ. Барьер встраивания с нижней террасы также определялся барьером диффузии и был равен 0.76 эВ. Дополнительных барьеров для встраивания адатома в S_A -ступень не было обнаружено. Тогда как для S_B -ступени такие барьеры существуют. На нижней террасе дополнительный барьер для встраивания составлял 0.84 эВ, а на верхней террасе 1 эВ. Однако здесь необходимо отметить, что в процессе роста или травления поверхности Si(100) данный тип ступени может легко переходить в другую поверхностную конфигурацию, а именно S'_B -ступень, в которой отсутствует нижний ряд атомов и которая в отличие от S_B -ступени характеризуется отсутствием дополнительных барьеров для встраивания.

Величины основных минимумов энергии вблизи S_A -ступени и S_B -ступени оказались всего на 0.16 эВ глубже, чем величина глобального минимума на сингулярной поверхности Si(100), то есть указанные типы ступени можно считать относительно слабыми стоками для адатомов. Напротив S'_B -ступень является хорошим стоком для адатомов, поскольку вблизи неё имеются места, где адатомы могут легко встраиваться в кристалл и иметь энергию связи примерно на 0.8 эВ больше, чем на поверхности террасы между ступенями. Эти данные позволяют нам оценить величину барьеров отрыва от S'_B -ступени на нижнюю террасу, как $0.76+0.8=1.56$ эВ и на верхнюю террасу $0.67+0.8=1.47$ эВ. Полученные величины барьеров хорошо соответствуют экспериментальному значению эффективной энергии активации, требуемой для отрыва адатома от ступеней на поверхности Si(100), которая составляет около 1.5 эВ [129].

Таким образом, имеющиеся в нашем распоряжении данные позволяют считать, что процессы встраивания и отрыва адатомов происходят преимущественно на изломах ступеней, причём средние значения энергий активации этих процессов слабо зависят от типа моноатомных ступеней. Отношение скоростей движения S_B - и S_A -ступеней в условиях ионного распыления поверхности Si(100) определяется в основном отношением плотностей изломов на их границах. При решении диффузионной задачи энергетические параметры изломов предполагались близкими к параметрам S'_B -ступени. В расчёт закладывались следующие значения параметров:

$$U_B=0.67 \text{ эВ}; U_A=0.76 \text{ эВ};$$

$$E_a^{B,+} = E_a^{A,-} = 0.67 \text{ эВ}; E_a^{B,-} = E_a^{A,+} = 0.76 \text{ эВ};$$

$$E_d^{B,+} = E_d^{A,-} = 1.47 \text{ эВ}; E_d^{B,-} = E_d^{A,+} = 1.56 \text{ эВ};$$

$$\varepsilon_{kB}=0.11 \text{ эВ}; \varepsilon_{kA}=0.17 \text{ эВ};$$

§ 3.3. Результаты моделирования послойного распыления вицинальной поверхности кремния пучком низкоэнергетических ионов.

При проведении модельных расчётов параметры ионного пучка и температура поверхности выбирались в соответствии с условиями экспериментов по послойному распылению поверхности кремния низкоэнергетическим пучком ионов Xe^+ [60,62,63].

Состояние поверхности в условиях ионного облучения характеризовалось степенью заполнения поверхностного монослоя:

$$\theta = 1 - \int_0^h n_v C / (h n_0) dx \quad (2.29).$$

Выбор этой величины в качестве характеризующего параметра не случаен, поскольку, согласно данным кинематической теории дифракции [117], изменение θ может быть

сопоставлено с изменением интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ¹ в процессе роста и ионного распыления поверхности [60].

А) Поверхность Si(111).

Моделирование послойного распыления вицинальной поверхности Si(111) пучком низкоэнергетических ионов Хе [120] показало, что в определенной области температур, которая зависит от интенсивности ионного потока, наблюдаются периодическое изменение (осцилляции) скорости движения ступеней и степени заполнения поверхностного монослоя, с периодом приблизительно равным времени распыления одного монослоя. На рисунке 17 показаны расчётные изменения скорости движения ступеней и степени заполнения поверхностного монослоя θ в процессе ионного облучения при различных температурах поверхности. Осцилляции степени заполнения θ (рис 17, правая панель) происходят в противофазе к осцилляциям скорости движения ступеней (рис. 17, левая панель). Из рисунка хорошо видно, что существует некоторая критическая температура поверхности, ниже которой скорость движения ступеней и степень заполнения монослоя осциллируют со временем. Тогда как при температурах выше критической осцилляции не наблюдаются, и указанные величины изменяются монотонным образом.

Для того, чтобы понять природу возникновения осцилляций, рассмотрим, как меняется скорость движения ступеней и концентрация вакансионных кластеров.

В предлагаемой модели (2.1-2.8) скорость движения ступени определяется не только диффузионными потоками адатомов, но и конвективным потоком вакансионных кластеров, которые встраиваются в ступень при её движении вдоль поверхности. Причём скорость ступени самосогласованным образом зависит от концентрации кластеров. С одной стороны увеличение концентрации вакансионных кластеров приводит к увеличению конвективного

¹ В анти - Брегговских дифракционных условиях интенсивность отражённого от поверхности электронного луча пропорциональна $(1-2\theta)^2$.

потока, а значит и к возрастанию скорости ступени. С другой стороны возрастание скорости движения ступени вызывает уменьшение концентрации вакансионных кластеров за счёт более интенсивного поглощения их ступенью. Именно эта взаимозависимость может приводить в определённых условиях к периодическому изменению скорости движения ступеней.

Для того чтобы продемонстрировать механизм возникновения осцилляций, рассмотрим эволюцию распределения вакансионных кластеров между ступенями в процессе распыления поверхности ионным пучком. Вначале процесса распыления скорость генерации вакансионных кластеров ионным пучком заметно превышает скорость их аннигиляции за счёт взаимодействия с подвижными адатомами и ступенями. Следовательно, имеет место накопление вакансионных кластеров на террасах между ступенями.

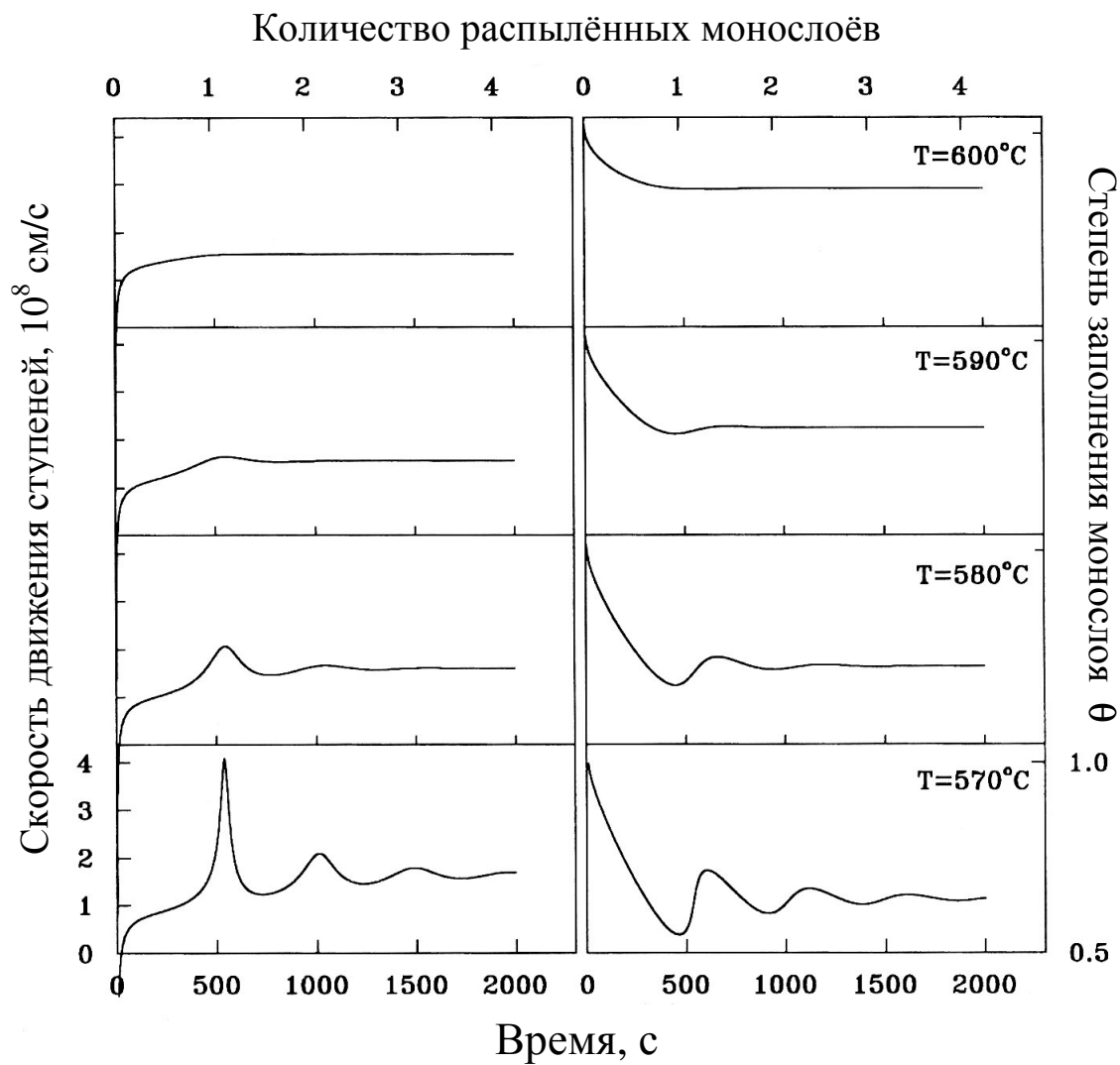


Рис. 17. Изменение скорости движения моноатомных ступеней (левая панель) и степени заполнения поверхностного монослоя θ (правая панель) при распылении поверхности Si(111) пучком низкоэнергетических ионов. Ширина террас между ступенями $h=70$ нм, плотность ионного потока $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, коэффициент распыления $n_s = 1$ [55, 120].

Максимум концентрации вакансионных кластеров расположен вблизи центра террасы между ступенями (рис.18 (а), правая панель). Ступень, двигаясь за счет термического выброса адатомов и поглощения неподвижных вакансионных кластеров, постепенно подходит к максимуму первоначального распределения дефектов и, пройдя половину террасы, достигает его местоположения. Данный момент времени соответствует удалению одного монослоя.

После удаления одного монослоя распределение дефектов, вводимых ионным облучением, существенно изменяется. Максимум концентрации вакансионных кластеров оказывается смещенным в направлении, противоположном движению ступеней (рис.18 (б), правая панель). Ступени проходят область поверхности террасы с повышенной плотностью вакансионных кластеров, и их скорость резко возрастает за счёт увеличения поглощения этих кластеров (рис.18 (б), левая панель). Это в свою очередь снижает концентрацию вакансионных кластеров на террасах (рис.18 (в), правая панель) и приводит к последующему замедлению движения ступеней (рис.18 (в), левая панель). Уменьшение скорости движения ступеней происходит до тех пор, пока скорость генерации вакансионных кластеров ионным пучком не превысит скорость их аннигиляции на террасах и ступенях. Далее процесс периодически повторяется (рис.18 (г-д)), но с меньшей амплитудой. Затухание осцилляций со временем связано с установлением стационарного состояния на поверхности, когда число вакансионных кластеров, поставляемых ионным пучком в единицу времени, уравнивается их аннигиляцией на террасах и ступенях. В этих условиях скорость движения ступеней выходит на стационарное значение, определяемое скоростью удаления материала ионным пучком.

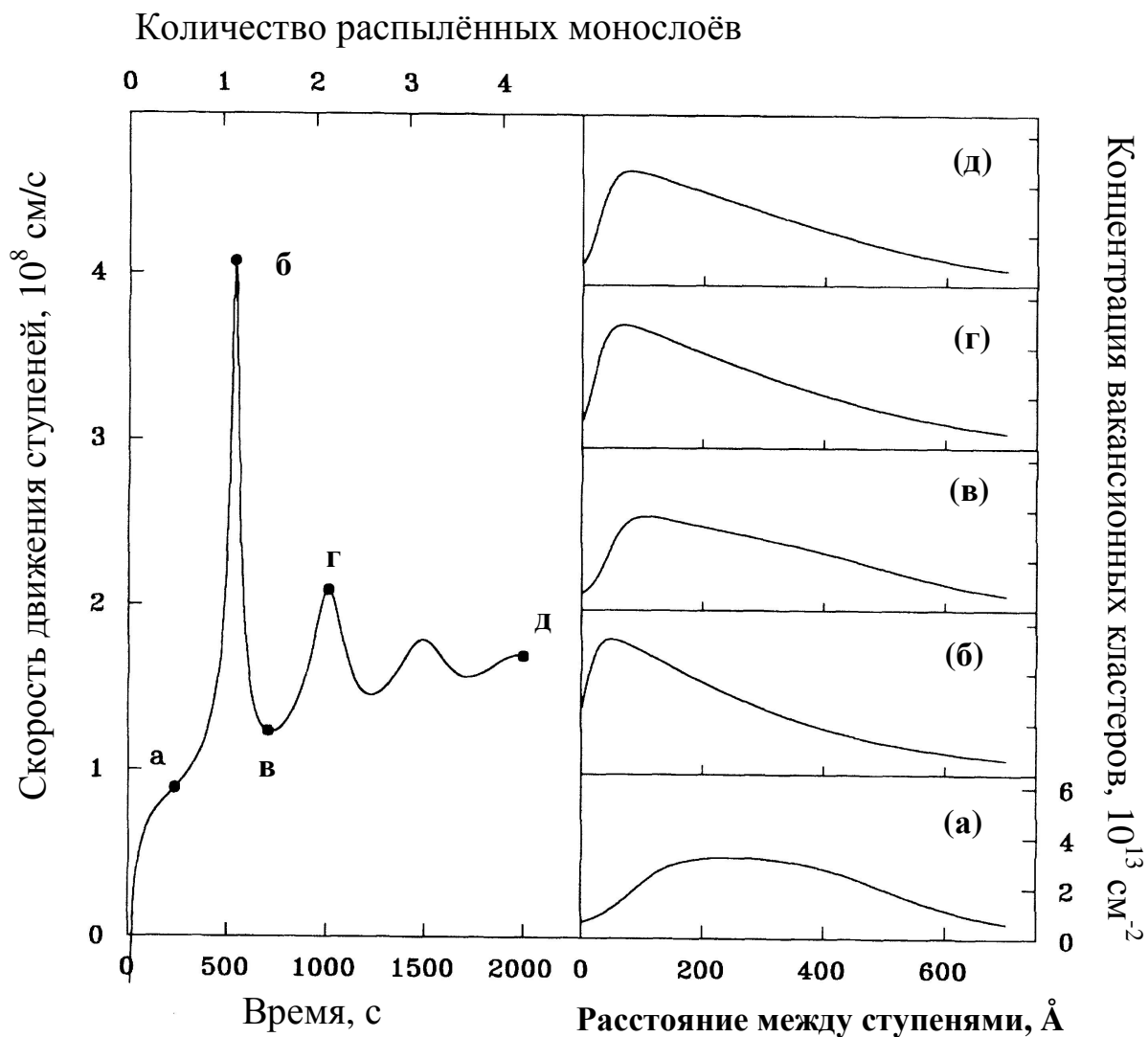


Рис. 18. Расчётное изменение скорости движения ступеней (левая панель) и концентрации вакансионных кластеров на террасах между ступенями (левая панель) в процессе распыления поверхности пучком низкоэнергетических ионов [120]. Температура поверхности 570°C , плотность ионного потока $2 \times 10^{12} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, коэффициент распыления $n_s = 1$, ширина террасы $h=70$ нм.

Таким образом, данные осцилляции можно рассматривать как переходный процесс установления стационарного состояния на поверхности после сильного отклонения системы из равновесного состояния в результате включения ионного облучения.

Из проведённого выше рассмотрения следует, что изменение средней концентрации вакансионных кластеров на террасах совпадает по фазе с изменением скорости движения ступеней. Именно это приводит к тому, что степень заполнения поверхностного монослоя, определяемая выражением (2.8), осциллирует в противофазе к скорости движения ступеней (рис.17).

Необходимо также отметить, что сразу после включения ионного облучения существует короткий период времени, когда скорость ступеней отрицательна, что соответствует росту ступеней. Это связано с тем, что в начальные моменты времени ионного облучения адатомы, выбиваемые из поверхности кремния, встраиваются главным образом в моноатомные ступени, а не в вакансионные кластеры, так как в начале облучения их плотность пренебрежимо мала. По мере накопления вакансионных кластеров на террасах эффективность процесса аннигиляции адатомов на кластерах возрастает, что приводит к уменьшению числа адатомов, которые могут встраиваться в ступени. Наступает момент, когда поток адатомов от ступеней за счёт теплового отрыва становится больше потока адатомов, встраивающихся в ступени, и направление движения ступеней меняется.

Таким образом, в нашей модели травление поверхности в условиях ионного распыления происходит в рамках единого механизма – движения ступеней. Движение ступеней происходит за счёт термического отрыва адатомов от ступеней с последующей их аннигиляцией на неподвижных поверхностных вакансионных кластерах, создаваемых ионным пучком. При достаточно высокой концентрации кластеров на террасах движение ступеней приобретает осциллирующий характер. Осцилляции обусловлены неоднородным пространственным распределением дефектов, вводимых ионным облучением, и способностью ступеней поглощать их при движении вдоль поверхности.

Данные осцилляции можно наблюдать только в определенном диапазоне температур и величин плотностей ионных пучков. Например, при достаточно высоких температурах количество адатомов, поставляемых ступенью, может оказаться достаточным, чтобы практически сразу установилось стационарное состояние (см. например рис. 17, $T=600^{\circ}\text{C}$), когда число вакансионных кластеров, поставляемых ионным пучком в единицу времени, уравнивается их аннигиляцией на террасах и ступенях. То же самое относится к величине плотности ионного потока. С уменьшением плотности ионного потока концентрация вводимых вакансионных кластеров может стать недостаточной, для того чтобы оказывать существенное влияние на движение ступеней, и их скорость будет определяться лишь термическим выбросом адатомов.

Таким образом, температура, соответствующая исчезновению осцилляций скорости движения ступеней и степени заполнения поверхностного монослоя (критическая температура T_c), напрямую связана с величиной плотности ионного пучка (кривая 1, рис.19). Было получено, что T_c растет по логарифмическому закону с увеличением плотности ионного потока. Это связано с термо-активационным характером процесса отрыва адатомов от ступеней, а также процессов диффузии и аннигиляции адатомов на вакансионных кластерах, вводимых ионным облучением. Причём диффузия является здесь определяющим процессом, поскольку величина T_c прямо пропорциональна энергии активации поверхностной диффузии адатомов. Было установлено, что зависимость критической температуры от плотности ионного потока J хорошо аппроксимируется выражением следующего вида:

$$T_c = \frac{E_D}{k} \left[\ln \left(\frac{\nu \alpha_c}{J h^2} \right) \right]^{-1},$$

где α_c – параметр, учитывающий уменьшение диффузионной длины адатомов за счёт захвата на неподвижные вакансионные кластеры, формируемые в процессе облучения поверхности ионным пучком.

Аналогичная связь между критической температурой смены механизмов роста (от двумерно-слоевого к ступенчато-слоевому росту) и плотностью молекулярного потока была установлена в работе [119] для случая эпитаксии из молекулярных пучков. В этом случае J соответствует плотности молекулярного потока, а параметр α_c учитывает уменьшение диффузионной длины адатомов за счёт взаимодействия с неподвижными адатомными островками, формируемыми в процессе осаждения из молекулярного пучка.

Область температур ниже кривой 1 на рис. 19 соответствует режиму распыления, когда наблюдаются осцилляции скорости движения ступеней. При понижении температуры образца поток адатомов от ступеней за счёт теплового возбуждения уменьшается, и при некоторой температуре происходит накопление и перекрытие (коалесценция) вакансионных кластеров. Под перекрытием вакансионных кластеров подразумевается геометрическое перекрытие площадей поверхности, занимаемых соседними вакансионными кластерами с формированием вакансионных кластеров большего размера. Начиная с этого момента, одномерная диффузионная модель, используемая в нашей работе, оказывается неприменима, поскольку в области перекрытия характерный размер вакансионного кластера становится много больше межатомного расстояния и его уже нельзя рассматривать, как точечный объект. Для корректного описания процессов становится необходимым решать двумерную диффузионную задачу. В данном случае травление поверхности определяется уже не движением ступеней, а процессом накопления и разрастания вакансионных кластеров. Если проводить аналогию с процессом роста, то можно сказать, что происходит переход от механизма травления посредством движения ступеней к механизму травления путём формирования и разрастания вакансионных кластеров моноатомной глубины. Было найдено, что температура смены механизма травления также зависит от плотности ионного пучка по логарифмическому закону (кривая 2, рис.19).

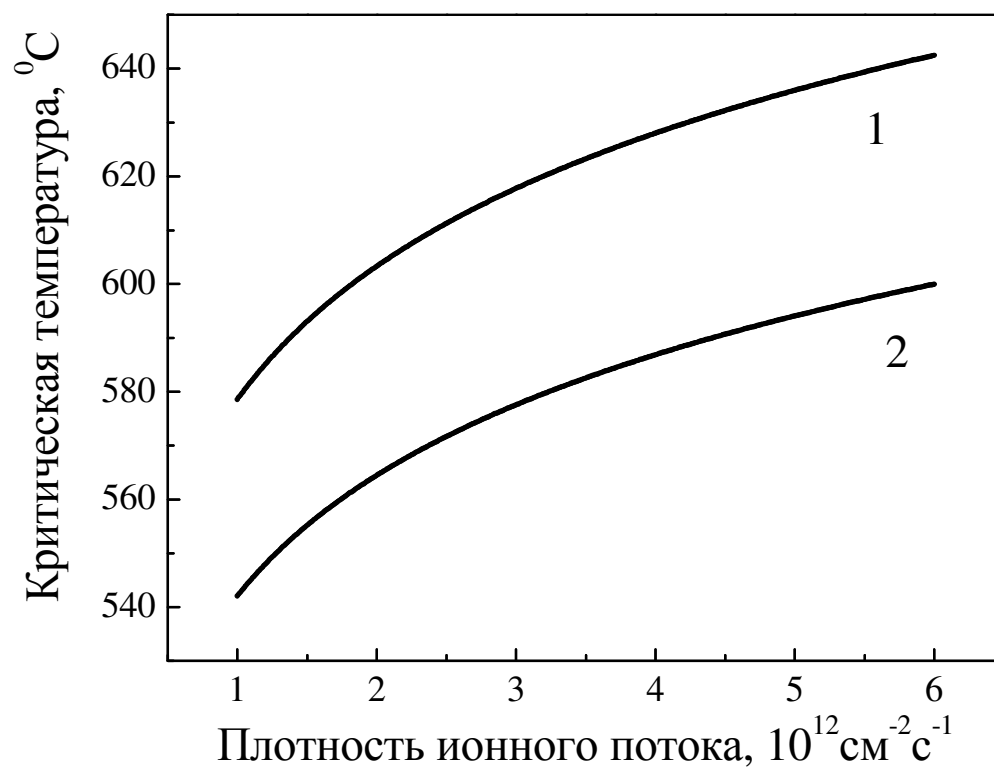


Рис. 19. Зависимость критической температуры T_c исчезновения осцилляций скорости движения ступеней от плотности ионного потока J (кривая 1). Кривая 2 ограничивает область, ниже которой происходит смена механизма травления поверхности ионным пучком: переход от механизма травления посредством движения ступеней (выше кривой 2) к механизму травления за счёт накопления и перекрытия поверхностных вакансионных кластеров (ниже кривой 2).

Б) Поверхность Si(100).

При решении задачи о морфологической перестройке поверхности Si(100) под действием облучения пучком низкоэнергетических ионов учитывалась анизотропия коэффициента поверхностной диффузии на соседних террасах и различие в коэффициентах встраивания и отрыва адатомов для ступеней S_A и S_B . Предполагалось, что кинетический коэффициент термического отрыва атома от ступени S_B больше, чем для ступени S_A . На основе решения задачи [113] были получены сведения о распределении адатомов и вакансионных кластеров на поверхности Si(100). Максимум концентрации вакансионных кластеров оказался смещенным в сторону S_A -ступени со стороны её верхней террасы (рис.20). Положение максимума соответствовало месту на террасе, где в условиях эксперимента [62] наблюдается появление вытянутых вдоль ступеней ямок моноатомной глубины (вакансионных островков, рис.21 (b)). По данным моделирования, скорости движения соседних ступеней различаются приблизительно в три раза, что по истечении некоторого времени приводит к формированию состояния поверхности со ступенями двухатомной высоты. То есть в моделировании воспроизводится переход от двухдоменной поверхности Si(100) с чередованием сверхструктур (1x2) и (2x1) на соседних террасах ступеней к однодоменной поверхности с одним типом реконструкции (2x1) под действием распыления ионным пучком. Полученные данные хорошо согласуются с экспериментами по послойному распылению поверхности Si(100) низкоэнергетическими ионами [60,62] и важны с точки зрения подготовки поверхности для последующей эпитаксии, особенно при эпитаксии полупроводниковых соединений, требующих встраивания в ступень сразу двух атомов.

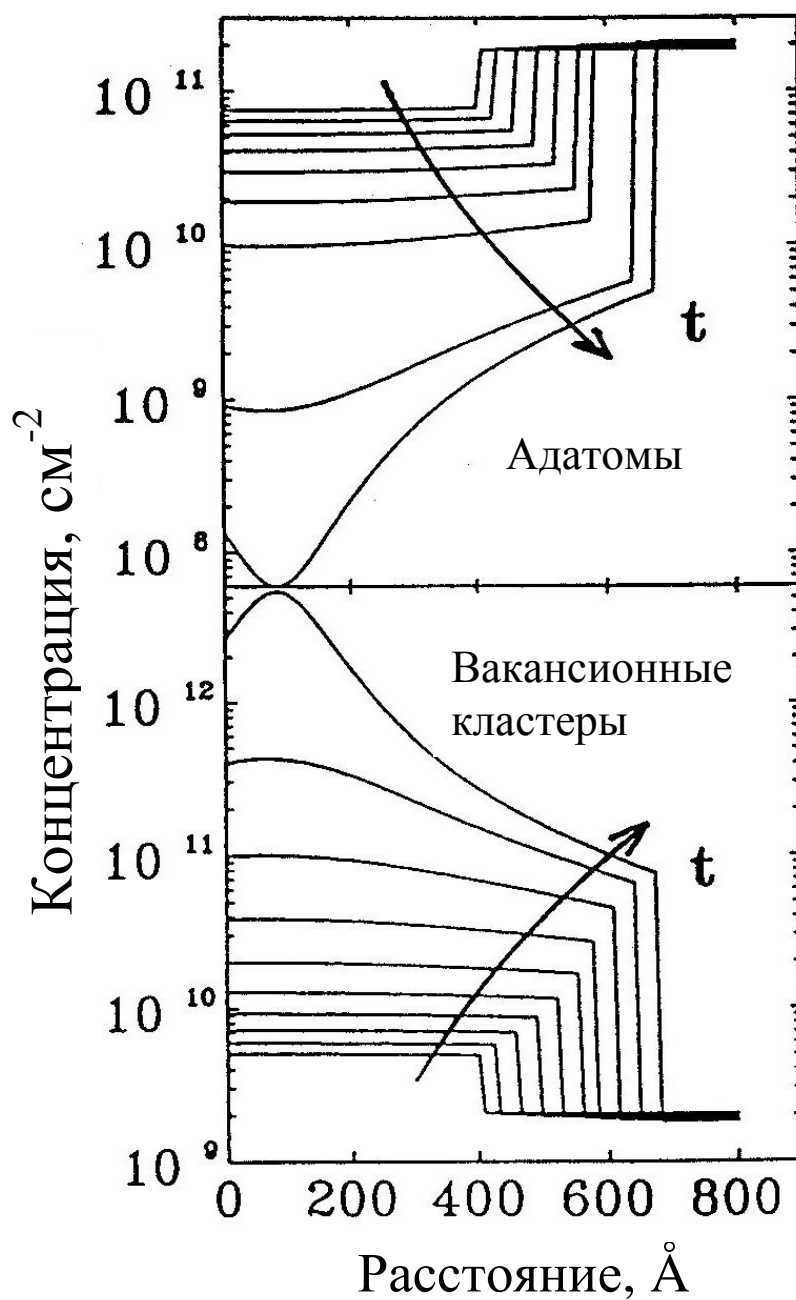


Рис. 20. Эволюция концентрационных профилей адатомов и вакансионных кластеров в процессе распыления поверхности Si(100) пучком низкоэнергетических ионов Хе [113]. Плотность ионного потока $2 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$. Коэффициент распыления $n_s=1$. Температура поверхности – 450°C . Расстояние между двумя соседними S_A -ступенями составляет 800 Å . Начальное положение S_B -ступени относительно S_A -ступени – 400 Å .

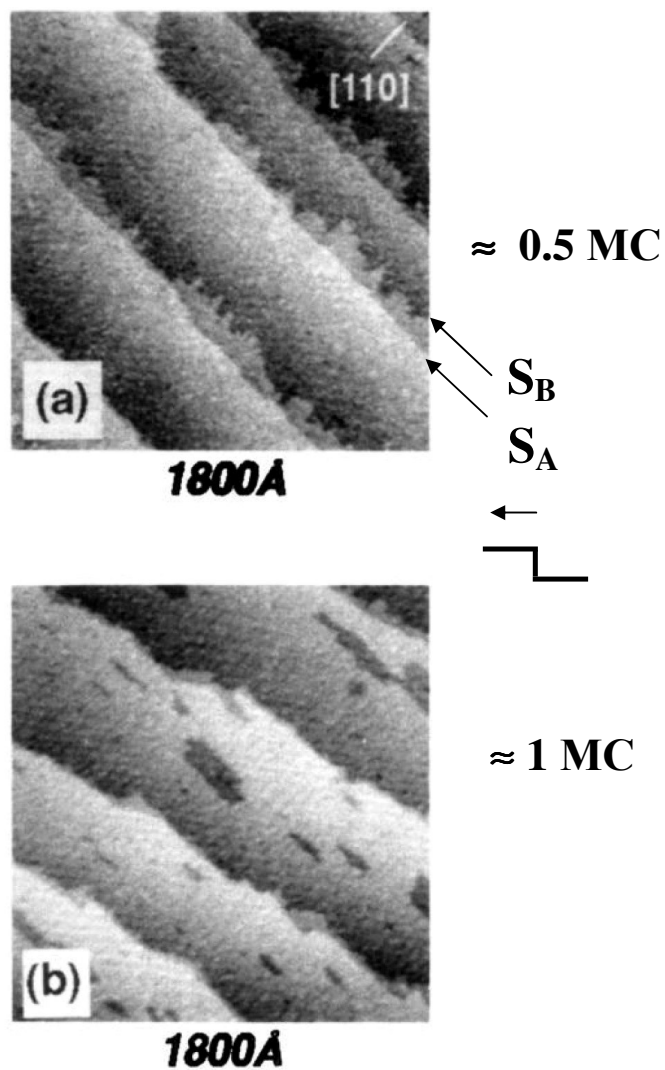


Рис. 21. Морфологическое состояние поверхности Si(100), согласно данным работы [62], после распыления 0.5 монослоя (а) и 1 монослоя (б) кремния пучком низкоэнергетических ионов Xe^+ . Энергия ионов Xe^+ - 225 эВ, угол падения 60° от нормали к поверхности. Плотность ионного тока $\approx 0.33 \text{ мкА/см}^2$. Температура поверхности $T=450^\circ\text{C}$.

Заключение по главе 3.

Предложена модель эволюции вицинальной поверхности кремния при облучении низкоэнергетическими ионами, основанная на представлении о взаимодействии адатомов с неподвижными вакансионными кластерами, создаваемыми при столкновении иона с поверхностью. Согласно данной модели, при температурах выше критической травление поверхности в условиях ионного распыления происходит в рамках единого механизма – движения ступеней. Движение моноатомных ступеней происходит за счёт термического отрыва адатомов от ступеней с последующей их аннигиляцией на неподвижных поверхностных вакансионных кластерах, создаваемых ионным пучком. При достаточно высокой концентрации кластеров на террасах движение ступеней приобретает осциллирующий характер. Установлено, что осцилляции скорости движения ступеней обусловлены захватом неподвижных вакансионных кластеров ступенями при их движении вдоль поверхности. Происходят так же осцилляции степени заполнения поверхностного монослоя, которые аналогичны ДБЭ-осцилляциям, наблюдаемым в эксперименте по послойному распылению кремния пучком низкоэнергетических ионов [60].

Полученная в результате моделирования критическая температура перехода от механизма травления посредством движения ступеней к механизму травления за счёт перекрытия вакансионных кластеров находится в хорошем согласии с экспериментом [63]. В рамках предложенной модели удаётся описать переход от двухдоменного состояния поверхности Si(100) с чередованием сверхструктур (2x1) и (1x2) на соседних террасах моноатомных ступеней к однодоменному состоянию - (2x1) с формированием ступеней двухатомной высоты в процессе ионного облучения поверхности Si(100) [62].

На основании полученных результатов можно заключить, что предложенная модель адекватно описывает основные закономерности поведения системы, наблюдаемые в эксперименте.

Глава 4. Экспериментальное исследование эффектов низкоэнергетического ионного облучения на процесс гомоэпитаксии Si(111) из молекулярного пучка.

К одной из важнейших проблем низкотемпературной эпитаксии кремния из ионно-молекулярных пучков следует отнести понимание природы поверхностной подвижности атомов в условиях ионного облучения. Экспериментальные работы на эту тему [18,68] свидетельствуют о том, что в рамках традиционных представлений, связанных с баллистическим массопереносом и локальным разогревом поверхности в местах падения ионов не удаётся объяснить экспериментально наблюдаемое изменение коэффициента поверхностной диффузии в зависимости от температуры, плотности ионного потока, энергии и массы ионов.

Другой важной проблемой является вопрос о роли реконструкции поверхности, и в частности, ионно-стимулированной реконструкции в процессах эпитаксиального роста на поверхности полупроводниковых кристаллов. Известно, что именно реконструкция поверхности в значительной степени определяет зарождение и диффузию на поверхности полупроводников [49,50,107], поэтому если в результате внешних воздействий (температура, молекулярный поток или ионное облучение) реконструкция поверхности изменяется, то, соответственно, можно ожидать и изменения в кинетике роста плёнки. Однако, вопросы о механизмах изменения поверхностной реконструкции под действием ионного облучения, а также о влиянии этих изменений на рост плёнки практически не исследовались.

Для решения указанных выше проблем необходима разработка новых экспериментальных методов и подходов к исследованию, позволяющих получать более детальную информацию о производимых ионным пучком изменениях на поверхности и в объёме растущей плёнки.

Существенное продвижение в понимании микроскопических механизмов на поверхности твердого тела при эпитаксии из ионно-молекулярных пучков способно обеспечить импульсное воздействие пучком низкоэнергетических ионов [20,40].

Применительно к исследованию гомоэпитаксии кремния из ионно-молекулярных пучков этот метод был реализован нами в работах [71,81,82,83].

Основная идея проводимых исследований состояла в том, чтобы использовать дополнительные возможности, которые даёт кратковременное ионное облучение:

- влиять на кинетику роста, а именно менять в выбранные моменты времени скорости основных процессов на поверхности растущей плёнки (скорости зарождения, диффузии);
- не вводя значительных нарушений, передавать атомам поверхности дополнительную энергию;
- исследовать эффекты последствия.

Таким образом, импульсное ионное воздействие может стать тем инструментом, который позволит выявить, какой процесс в данный момент является определяющим на поверхности растущей плёнки и, тем самым, установить природу происходящих изменений на поверхности.

§ 4.1. Методика эксперимента.

Эксперименты проводились в сверхвысоковакуумной камере с давлением остаточным газов $< 10^{-8}$ Па. Кремниевые пластины имели ориентацию (111) в пределах 0.1° согласно данным рентгеновской дифракции. Источником молекулярного потока кремния служил блок электронно-лучевого испарения Si. Плотность потока управлялась с помощью изменения области расплава кремния и составляла 10^{14} - 10^{15} атомов/(см² с). В сверхвысоковакуумную камеру был встроен натекаль газа СНА-2, управляемый прикладываемым внешним электрическим полем. Внутри камеры располагалась система ионизации напускаемого газа и ускорения ионизованных частиц путем подачи ускоряющего напряжения до 200 В. Блок

импульсной подачи газа позволял варьировать длительность импульса ионного тока от 0.25 с (нижний предел, определяющийся инерционностью системы открывания щели натекания) до 1 с (верхний предел, определяющий условия сохранения высокого вакуума в системе после импульсного воздействия). Угол падения ионного пучка составлял около 54° . К блоку подачи газа подключался баллон со спектрально чистым инертным газом - криптоном. Контроль чистоты газа осуществлялся с помощью масс - анализатора, встроенного в камеру роста. Плотность ионного тока могла варьироваться в области 0.1-0.6 мкА/см². Интегральный поток ионов за время действия импульса мог контролируемо меняться в пределах от 10^{11} до 10^{12} см⁻². Для регистрации *in-situ* структурного и морфологического состояния поверхности была использована техника дифракции быстрых электронов на отражения с наблюдением осцилляций интенсивности зеркального рефлекса при двумерно-слоевом механизме роста плёнки кремния [46]. Период осцилляций интенсивности был равен времени осаждения одного атомного слоя. Для случая поверхности Si(111) завершённый атомный слой является двухатомным по толщине (1 монослой = 1.57×10^{15} атомов/см²) [49]. Импульсное воздействие ионами K⁺ производилось в разные фазы осцилляций интенсивности зондирующего электронного пучка, что соответствовало различной степени заполнения поверхностного монослоя. Измерения проводились в Брегговских дифракционных условиях, которые очень чувствительны к изменению морфологии поверхности за счёт рассеяния электронов на границах ступеней, островков и других поверхностных дефектах. В этих условиях наблюдается однозначное соответствие между минимумом шероховатости поверхности и максимумом интенсивности отраженного электронного пучка [134, 135].

Перед началом экспериментов образцы подвергались химической очистке и затем прогревались в высоковакуумной камере при температуре 900°C. Далее на пластинах выращивался буферный слой кремния толщиной около 200 нм при температуре 610°C. Последующий прогрев при 770°C проводился до появления четких сверхструктурных

рефлексов (7×7) на дифракционной картине ДБЭ, что свидетельствовало о формировании атомарно чистой поверхности Si(111).

§ 4.2. Экспериментальные результаты.

4.2.1. Импульсное ионное воздействие на атомарно-гладкую поверхность.

На первом шаге исследования были проведены эксперименты по ионному воздействию на исходную атомарно гладкую поверхность Si(111) в отсутствие осаждения из молекулярного пучка [81]. Было получено, что в области температур 200-600⁰С импульсное (0.25-1с) воздействие пучком низкоэнергетических (80-150 эВ) ионов приводит к уменьшению интенсивности зеркального рефлекса в течение времени, соответствующему длительности импульса, с последующим восстановлением интенсивности до уровня, близкого к исходному значению. Разница между исходным значением интенсивности рефлекса и конечным, после ионного воздействия, возрастала при увеличении энергии ионов в пучке, и уменьшалась при повышении температуры подложки. Это согласуется с представлением об увеличении шероховатости поверхности кремния за счёт введения поверхностных дефектов ионным пучком и их последующем отжиге, причем эффективность отжига, естественно, возрастает с ростом температуры. Согласно данным расчётов методом молекулярной динамики (см. §2.2), к таким дефектам можно отнести поверхностные вакансионные кластеры и адатомные островки, созданные за счёт выбивания поверхностных атомов ионным пучком. С увеличением температуры поверхности эффективность процесса аннигиляции данных дефектов возрастает, прежде всего, за счёт увеличения диффузионной подвижности адатомов.

Для того, чтобы выяснить не являются ли наблюдаемые изменения поверхностной морфологии результатом осаждения примесных атомов или молекул из потока инертного газа, были проведены эксперименты по импульсному воздействию на поверхность кремния при выключенной системе ионизации газа. Эксперименты показали, что интенсивность

зеркального рефлекса сохраняется на исходном уровне после импульсного воздействия потоком инертного Кг как для одиночного импульса, так и при многократном воздействии. Иными словами, в отсутствии ионизации газового потока изменений в поверхностной морфологии не наблюдалось. Полученные результаты указывают на то, что изменения поверхностной шероховатости связаны, прежде всего, с введением точечных дефектов ионным пучком, а не с осаждением примеси на поверхности кремния.

Что касается структурных изменений поверхности, то согласно данным ДБЭ, реконструкция (7x7), характерная для атомарно-чистой поверхности Si(111), сохранялась практически неизменной. Хотя необходимо отметить, что в момент ионного воздействия и некоторое время после него наблюдалось незначительное уменьшение интенсивности сверхструктурных рефлексов по сравнению с исходной, что, скорее всего, связано с частичным разрушением реконструкции поверхности ионным пучком [63,73].

4.2.2. Импульсное ионное воздействие на поверхность Si(111) в процессе гомоэпитаксии из молекулярного пучка.

На следующем этапе проводилось исследование динамики изменения морфологии поверхности в процессе гомоэпитаксии кремния при одновременном импульсном облучении низкоэнергетическими ионами [71,81,82,83]. Для используемых в экспериментах температур подложки и плотностей молекулярного потока рост кремния происходил по двумерно-слоевому механизму, то есть через последовательное зарождение и срастание двумерных островков с формированием сплошного атомного слоя. Об этом свидетельствовали осцилляции интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ, которые наблюдались нами в области температур 250-600°C, что находится в хорошем соответствии с известными литературными данными [135]. При температурах выше 600⁰C осцилляции интенсивности исчезали, что было связано с переходом к росту плёнки Si(111) по механизму движения моноатомных ступеней.

Здесь важно отметить, что при температурах ниже 500°C , согласно данным ДБЭ, наблюдалось изменение типа реконструкции ростовой поверхности Si(111). После осаждения из молекулярного пучка от одного до двух монослоёв кремния, исходная сверхструктура (7×7) поверхности Si(111) переходила в смесь сверхструктур (5×5) и (7×7).

В этих же условиях наблюдалось заметное уменьшение амплитуды первой ДБЭ-осцилляции по сравнению с остальными (см. рис.22 а). Эта особенность в эволюции ДБЭ-осцилляций обусловлена увеличением шероховатости ростовой поверхности за счёт формирования трёхмерных островков на начальных стадиях гомоэпитаксии Si(111).

Согласно данным СТМ [49] при осаждении суб-монослойных покрытий поверхность подложки Si(111) сохраняет исходную реконструкцию (7×7), тогда как поверхность зародившихся двумерных островков кремния характеризуется другой реконструкцией, представляющей собой смесь сверхструктурных доменов: (5×5) и (7×7). Наблюдаемое изменение в реконструкции приводит к тому, что диффузионная подвижность адатомов на поверхности двумерных островков оказывается меньше, чем диффузионная подвижность между островками. В результате на поверхности двумерных островков задолго до окончания формирования первого монослоя успевают зародиться островки следующего монослоя, то есть, происходит формирование многоуровневых (трёхмерных) островков на начальных стадиях гомоэпитаксии. Однако, после осаждения 1-2 монослоёв переход к новому типу реконструкции происходит на всей поверхности растущего слоя и различие в диффузионных подвижностях исчезает. В результате рост плёнки начинает происходить преимущественно по двумерно-слоевому механизму, о чём свидетельствует увеличение амплитуды ДБЭ-осцилляций для последующих осаждённых слоёв кремния (рис.22 а).

Было обнаружено, что импульсное воздействие пучком низкоэнергетических ионов Kr^+ при определённых условиях роста приводит к усилению интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ, что соответствует уменьшению шероховатости поверхности растущего слоя (сглаживанию поверхности).

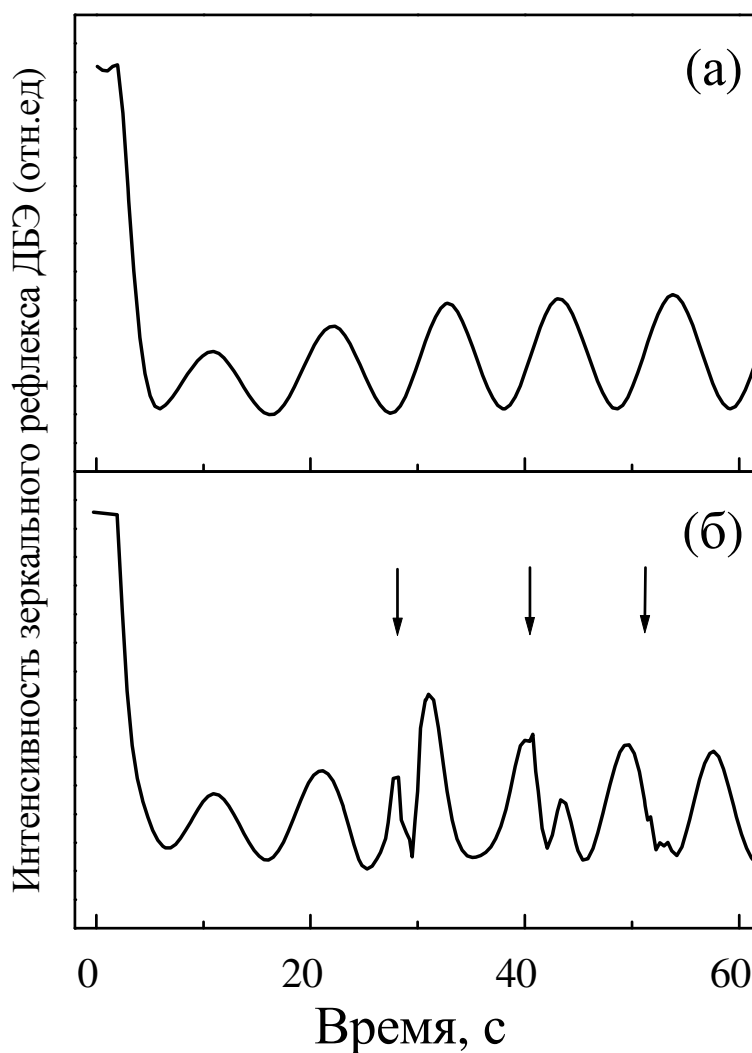


Рис. 22. Изменение интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии Si(111): (а) - без ионного облучения, (б) - при импульсным воздействием пучком низкоэнергетических ионов Kr^+ на различных стадиях роста по степени заполнения поверхностного монослоя [81,83]. Стрелками показаны моменты импульсного ионного воздействия. Плотность ионного потока $\approx 0.12 \text{ мкА/см}^2$. Энергия ионов - 145 эВ, угол падения от нормали к поверхности $\approx 54^\circ$. Длительность ионного воздействия не превышает 1 с. Температура подложки - 400°C .

Было установлено, что данный эффект сильно зависит от степени заполнения поверхностного монослоя и температуры подложки. На рис. 22 б показано типичное изменение интенсивности дифрагированного электронного пучка при двумерно-слоевом росте Si(111) с одновременным импульсным облучением пучком ионов Kr^+ с энергией 145 эВ в различные фазы осцилляций интенсивности ДБЭ, что соответствует различной степени заполнения поверхностного монослоя (см. рис. 6). В момент ионного воздействия наблюдалось резкое падение интенсивности регистрируемого сигнала, которое, по-видимому, было вызвано двумя причинами: во-первых, рассеиванием анализирующего пучка электронов на пучке положительно заряженных ионов Kr^+ и, во-вторых, увеличением поверхностной шероховатости за счёт введения точечных дефектов ионным облучением, которые затем быстро “залечиваются” в процессе эпитаксиального роста плёнки. После прекращения ионного облучения изменение интенсивности сигнала ДБЭ сильно зависело от степени заполнения поверхностного монослоя. При степени заполнения монослоя θ в области $0.5 < \theta < 1$ интенсивность сигнала ДБЭ возрастала и превосходила уровень, характерный для обычных условий роста. Тогда как на начальных стадиях роста поверхностного монослоя ($\theta < 0.5$) усиление интенсивности не наблюдалось. Наибольшее возрастание интенсивности зеркального рефлекса имело место при импульсном ионном воздействии непосредственно перед максимумом ДБЭ-осцилляции, когда степень заполнения поверхностного монослоя была близка к 0.8.

Для выяснения природы обнаруженного эффекта были выполнены эксперименты по импульсному воздействию ионным пучком на поверхность Si(111) сразу после прерывания молекулярного потока на различных стадиях по степени заполнения поверхностного монослоя. Было установлено, что в этих условиях увеличение интенсивности зеркального рефлекса после ионного воздействия не происходит для любой степени заполнения поверхностного монослоя (рис.23).

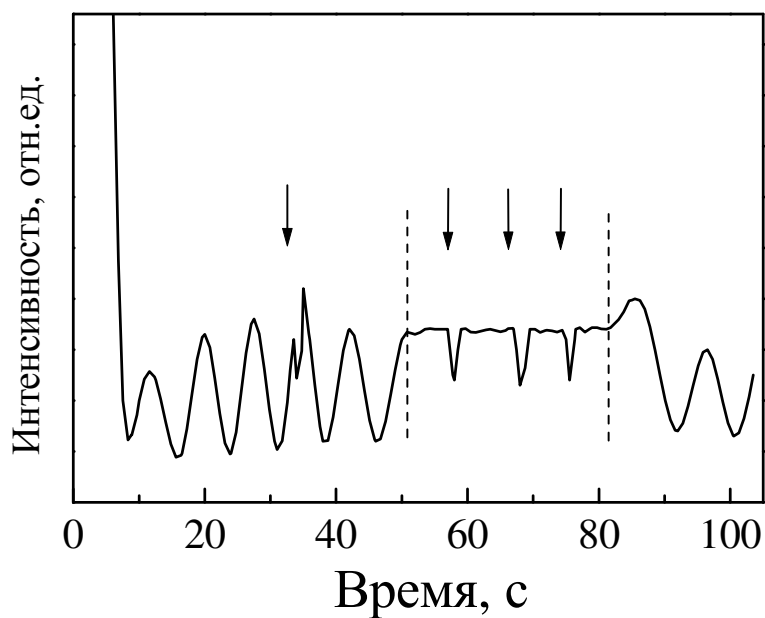


Рис. 23. Изменение интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ при импульсном воздействии низкоэнергетическим пучком ионов Kr^+ на поверхность Si(111) после остановки эпитаксиального роста при степени заполнения поверхностного монослоя $\theta \approx 0.8$. Штриховые линии на рисунке ограничивают область, где отсутствует поток кремния. Температура поверхности - 400°C . Стрелками показаны моменты импульсного ионного воздействия. Плотность ионного потока $\approx 0.12 \text{ мкА/см}^2$, энергия ионов 145 эВ, угол падения ионов от нормали к поверхности $\approx 54^\circ$, длительность воздействия около 1 с.

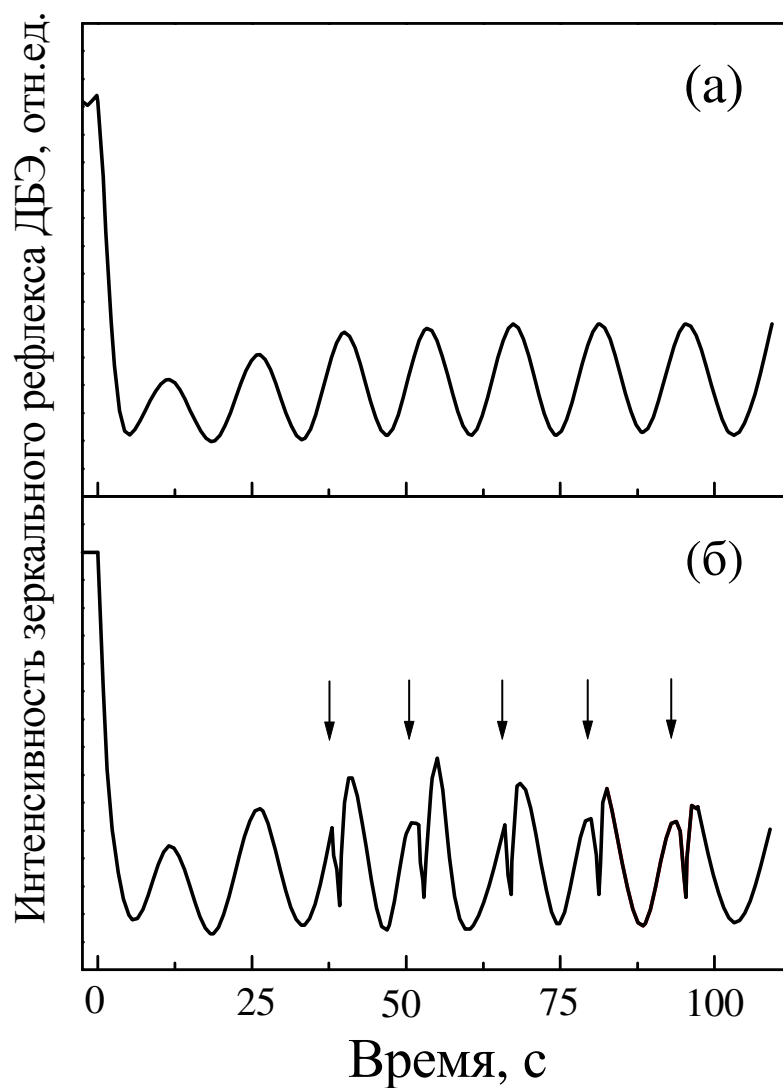


Рис. 24. Осцилляции интенсивности зеркального рефлекса ДБЭ в процессе гомоэпитаксии Si(111) из молекулярного пучка при температуре 400⁰С: (а) - без ионного облучения, (б) - при многократном импульсном ионном воздействии на каждый растущий монослой при фиксированной степени его заполнения $\theta \approx 0.8$. Параметры ионного пучка такие же как на подписи к рисунку 22.

В момент подачи импульса ионного тока интенсивность уменьшалась, а затем возвращалась к исходной величине за время, сравнимое с длительностью импульса (рис.22). Следовательно, обнаруженный нами эффект имел чисто кинетическую природу, поскольку в отсутствии роста плёнки он не наблюдался. Кроме того, полученные данные свидетельствовали о том, что дифракционные условия после ионного воздействия сохраняются неизменными, и обнаруженный эффект не является результатом изменения условий наблюдения.

Эксперименты по многократному ионному воздействию на каждый растущий слой при фиксированной степени его заполнения ($\theta \approx 0.8$) показали, что величина приращения амплитуды осцилляции интенсивности ДБЭ зависит от количества осаждённых монослоёв (рис. 24). Здесь необходимо отметить, что при импульсном воздействии перед максимумами первой и второй ДБЭ-осцилляций эффект усиления интенсивности зеркального рефлекса практически не наблюдался. Заметный эффект усиления появлялся только при импульсном воздействии перед максимумом третьей и последующих ДБЭ-осцилляций. Было установлено, что наибольшее возрастание интенсивности происходит при ионном воздействии перед максимумом четвёртой ДБЭ-осцилляции. Тогда как при дальнейшем увеличении числа осаждённых монослоёв приращение амплитуды ДБЭ-осцилляций, вызванное импульсным воздействием, уменьшалось.

Кристаллическая структура и состав плёнок кремния, выращенных при многократном импульсном воздействии пучком низкоэнергетических ионов Kr^+ , исследовались с помощью спектроскопии обратного резерфордского рассеивания. Было установлено, что плёнки, выращенные в условиях ионного облучения, имеют совершенную кристаллическую структуру, поскольку выход обратного рассеивания в режиме каналирующего ионного пучка не превышает 3% (рис. 25 а), и содержат небольшое количество атомов Kr , которое составляет примерно 20% (рис. 25 б) от общей дозы ионного облучения ($\approx 10^{14}$ ионов/см²).

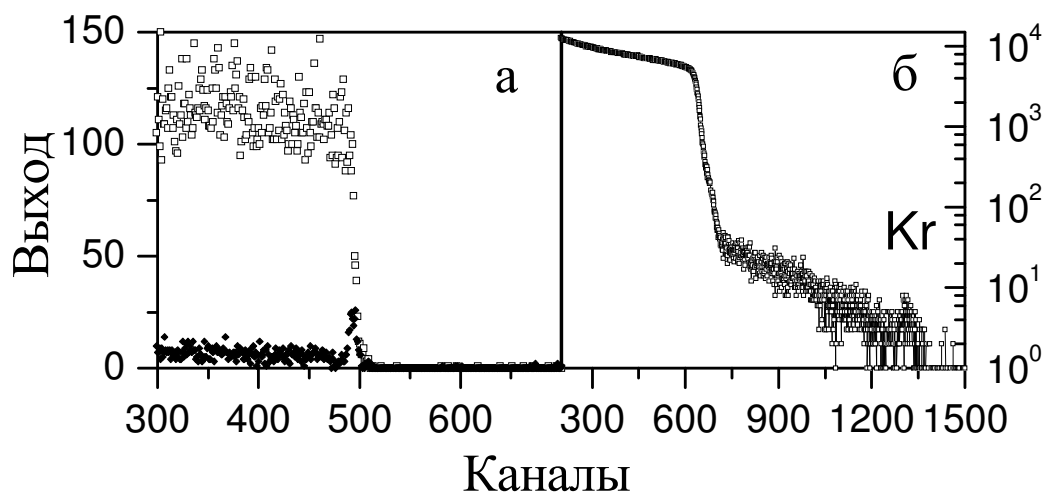


Рис. 25. Спектры обратного резерфордского рассеяния от плёнок Si, эпитаксиально выращенных при температуре 400°C из молекулярного пучка при многократном импульсном ионном воздействии перед максимумами ДБЭ-осцилляций; а - ориентированный ($\square$) и неориентированный ($\blacksquare$) спектры рассеянных ионов He с энергией 1.2 МэВ; б – неориентированный спектр рассеянных ионов Li с энергией 10 МэВ [83].

Исследования температурной зависимости приращения амплитуды ДБЭ осцилляции ΔI за счёт ионного воздействия проводились при фиксированной степени заполнения монослоя ($\theta \sim 0.8$) перед максимумом третьей ростовой осцилляции для каждой температуры подложки. Эксперименты показали, что величина ΔI увеличивается с ростом температуры до 400°C , а затем уменьшается, и при температуре более 500°C эффект усиления интенсивности рефлекса практически не наблюдается (рис.26).

Исследовалась также зависимость обнаруженного эффекта от соотношения ионного и молекулярного потоков. Было установлено, что наибольший эффект сглаживания рельефа поверхности наблюдается при соотношении ионного и молекулярного потоков ≈ 0.01 . При увеличении соотношения до величины порядка 0.1 эффект ослаблялся примерно в два раза.

В ходе выполнения экспериментов было замечено, что эффект усиления интенсивности зеркального рефлекса (уменьшения поверхностной шероховатости) в результате импульсного ионного воздействия наблюдается только в области температур, в которой имеет место смена типа реконструкции поверхности Si(111) в процессе эпитаксиального роста. Это указывает на то, что должна существовать определённая взаимосвязь между обнаруженным эффектом и изменением реконструкции ростовой поверхности.

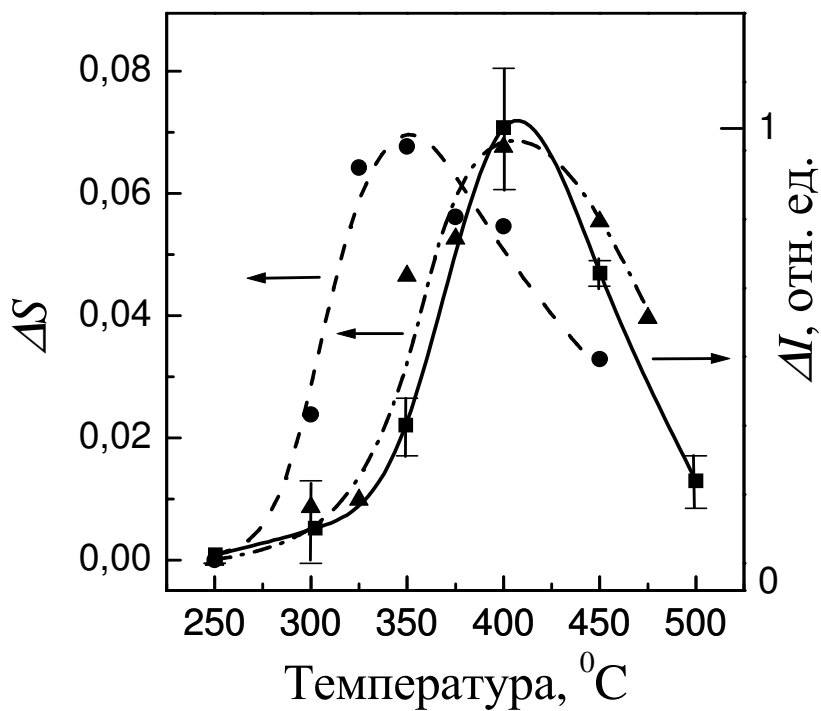


Рис. 26. Температурная зависимость приращения амплитуды ростовых осцилляций интенсивности зеркального рефлекса (ΔI) и расчётной плотности ступеней (ΔS) после импульсного ионного воздействия при $\theta \approx 0.8$ в процессе гомоэпитаксии Si(111) из молекулярного пучка. Экспериментальные данные (■) и результаты модельного расчёта для двух значений энергий активации поверхностной диффузии адатомов на Si(111): 1.1 эВ (●) и 1.2 эВ (▲) [81].

4.2.3. Исследование ионно-стимулированной реконструкции поверхности.

Было выполнено исследование влияния ионного облучения на реконструкцию поверхности Si(111), сформированную в процессе осаждения из молекулярного пучка [71,82]. Исследования проводились методом ДБЭ сразу после прерывания молекулярного потока, после осаждения 3-4 монослоёв кремния при температурах $< 500^{\circ}\text{C}$. В этих условиях поверхность Si(111) характеризуется переходом к метастабильной реконструкции, представляющей собой смесь сверхструктурных доменов преимущественно двух типов: (5x5) и (7x7) [72]. Дифракционные картины от поверхности Si(111) фиксировались на фотокамеру после прерывания молекулярного потока при степени заполнения поверхностного монослоя θ близкой к 0.8, а также непосредственно перед импульсным ионным воздействием и сразу после него.

Интервал времени от момента остановки роста до момента импульсного ионного воздействия не превышал 1 минуты и определялся конструктивными особенностями ростовой установки. За это время изменений в положении и интенсивности сверхструктурных рефлексов не отмечалось во всём исследуемом температурном диапазоне ($250\text{--}450^{\circ}\text{C}$), что указывает на то, что изменением реконструкции за счёт температурного отжига поверхности в наших условиях можно пренебречь. Эти результаты согласуются с экспериментальными исследованиями низкотемпературной эпитаксии Si(111) [136], согласно которым даже при температуре 500°C характерные размеры сверхструктурных доменов (5x5) и (7x7) остаются практически неизменными в течение длительного отжига поверхности (более получаса) после остановки роста.

Однако, в присутствии ионного облучения структурное состояние поверхности существенно изменялось. Сравнение дифракционной картин до и после импульсного ионного облучения ростовой поверхности Si(111) позволило нам зафиксировать увеличение поверхностной доли сверхструктуры (7x7) и уменьшение доли сверхструктуры (5x5). Таким

образом, импульсное воздействие пучком низкоэнергетических ионов Kr^+ вызывает сверхструктурный фазовый переход $(5 \times 5) \Rightarrow (7 \times 7)$.

Для установления связи этого явления с воздействием пучком ускоренных частиц проводились аналогичные эксперименты при импульсном воздействии потоком газа Kr при выключенной системе ионизации и снятом ускоряющем напряжении. В этом случае изменений в дифракционной картине ДБЭ не наблюдалось.

Температурная зависимость поверхностной доли сверхструктуры (7×7) $\delta_{7 \times 7}$ показана на рисунке 27. Сплошная линия на рисунке соответствует $\delta_{7 \times 7}$ после прерывания молекулярного потока, пунктирная линия - после последующего импульсного ионного воздействия. На вставке рисунка показана разница между вторым и первым случаями, что соответствует приращению доли сверхструктуры (7×7) за счёт импульсного ионного воздействия.

Видно, что доля поверхностной фазы (7×7) , вводимая ионным облучением, увеличивается с ростом температуры и достигает максимума в области 400°C . Выше этой температуры относительный вклад ионно-стимулированной реконструкции уменьшается и при температурах выше 450°C стремится к нулю. В этой области температур доля сверхструктуры (7×7) оказывается близкой к величине, характерной для обычных условий роста без ионного облучения.

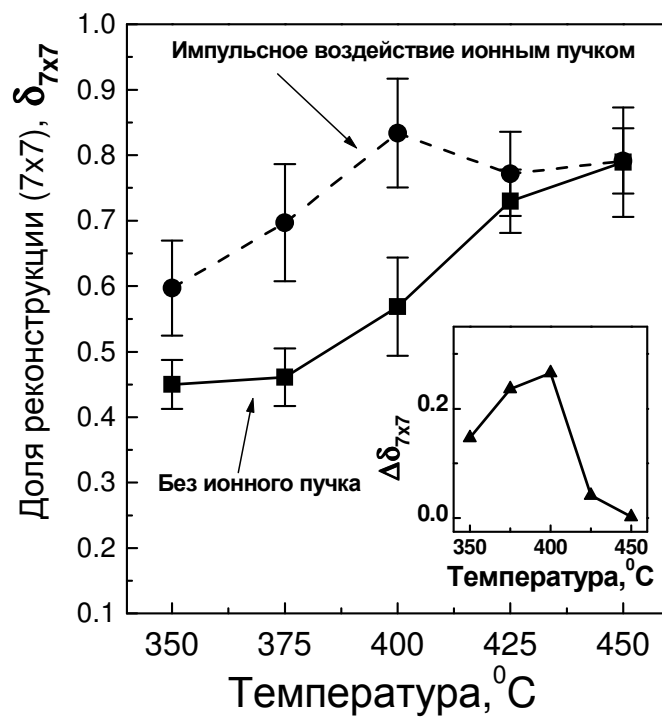


Рис. 27. Температурная зависимость доли поверхности занятой сверхструктурой (7×7) после прерывания молекулярного потока кремния (λ) и после последующего импульсного ионного воздействия (ν). Вставка: изменение вклада ионно-стимулированной реконструкции $\Delta\delta_{7 \times 7}$ с температурой (σ) [71,82].

§4.3. Обсуждение возможных механизмов ионного воздействия на рост эпитаксиальных слоёв кремния.

4.3.1. Ионно-стимулированное выглаживание поверхности.

Возрастание интенсивности дифрагированного электронного пучка после импульсного ионного воздействия в процессе гомоэпитаксии Si(111) из молекулярного пучка указывает на то, что поверхностная плотность мест рассеяния электронов, которыми являются границы островков, вакансионных кластеров и других дефектов поверхности, уменьшается.

Существует ряд факторов, с которыми может быть связано обнаруженное снижение шероховатости ростовой поверхности в результате облучения низкоэнергетическими ионами:

- 1) распыление поверхности ионным пучком;
- 2) нагрев поверхности в местах столкновения ионов с поверхностью;
- 3) баллистический массоперенос за счёт прямой передачи адатомам части кинетической энергии ионов;
- 4) осаждение примеси на растущую поверхность;
- 5) генерация ионным пучком адатомов и поверхностных вакансий;
- 6) ионно-стимулированная реконструкция поверхности.

Распыление поверхности ионным пучком фактически соответствует уменьшению эффективного потока атомов, осаждаемых из молекулярного пучка. Это приводит к подавлению зарождения и распаду уже существующих островков, что в конечном счёте способствует снижению шероховатости ростовой поверхности (см. подробнее §1.2.2). Согласно экспериментальным данным, полученным в работе [60], максимальный эффект снижения шероховатости поверхности в процессе эпитаксии кремния в условиях низкоэнергетического ионного облучения наблюдается, когда скорость осаждения кремния в точности равна скорости распыления поверхности ионным пучком. Если взять коэффициент

распыления близким к 1, то для наших экспериментальных условий оценка даёт, что уменьшение эффективного потока кремния за счёт распыления не превышает 1%. Отсюда можно заключить, что вклад ионного распыления в изменение поверхностной морфологии, по-видимому, несущественен.

Рассмотрим роль нагрева поверхности. Согласно данным молекулярной динамики [89,94], время существования термического возбуждения после столкновения низкоэнергетического иона с поверхностью кремния τ составляет 5-10 пс. Размер области нагрева поверхности за это время можно оценить как удвоенную длину распространения тепла $2a_T\sqrt{\tau}$, где a_T - коэффициент температуропроводности. Если взять теплофизические параметры вблизи точки плавления кремния, то a_T будет приблизительно равен $0.01 \text{ см}^2/\text{с}$ [137]. Тогда оценка характерного размера² области термического возбуждения поверхности от удара единичного иона даёт 10-20 нм. При дозах облучения, используемых в наших экспериментах, среднее расстояние между местами падения ионов составляет около 10 нм, и, казалось бы, можно ожидать разогрева всей поверхность растущего кристалла. Однако этого не происходит из-за малой плотности ионного потока, которая составляет в нашем случае $\cong 10^{12}$ ионов/(см²с). Интервал времени, разделяющий два события попадания иона в выделенную область возбуждения (10-20 нм), составляет порядка 1 с для исследуемых потоков частиц. Это несравнимо больше времени существования термического возбуждения, поэтому можно считать, что каждый последующий ион взаимодействует с поверхностью, остывшей до температуры исходной подложки.

Диффузионная длина адатомов $\lambda = \sqrt{D\tau}$ за характерное время термического возбуждения не превышает 0.1 нм для максимального коэффициента поверхностной диффузии D вблизи точки плавления. Таким образом, в наших экспериментальных условиях локальный нагрев

² Поверхностная ячейка, которая использовался нами для моделирования методом МД взаимодействия с низкоэнергетическими ионами Xe^+ с кремнием имела размер 6.5 нм x 6.5 нм. Мониторинг энергии атомов показал, что нагрев испытывали все атомы поверхностной ячейки.

поверхности ионным пучком не может привести к заметному диффузионному массопереносу вдоль поверхности.

С другой стороны, остаётся возможным процесс увеличения длины прыжка адатомов за счёт прямой передачи им части энергии ионов при столкновении иона с поверхностью, то есть баллистический механизм диффузии адатомов. Однако, результаты моделирования методом молекулярной динамики процесса взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью кремния, выполненные в работах [18,68], указывают на то, что вклад баллистической диффузии в массоперенос на поверхности должен проявляться при гораздо больших ионных потоках, чем те, которые использовались в наших экспериментах.

Осаждение примеси на растущую поверхность способно увеличить коэффициент поверхностной диффузии кремния и таким образом способствовать “выглаживанию” ростовой поверхности. Согласно литературным данным [26], осаждение элементов III (In, Ga) и IV (Sn, Pb) групп в процессе эпитаксии Si из молекулярных пучков приводит к увеличению коэффициента диффузии атомов кремния на ростовой поверхности. Перечисленные элементы, образуя связи с атомами кремния, фактически изменяют механизм поверхностной диффузии. Однако для инертных газов не отмечалось какого-либо влияния на процесс эпитаксии.

Следует отметить одну важную деталь. Анализ полученных результатов показал, что интенсивность зеркального рефлекса ДБЭ возрастает после прекращения действия ионного облучения. То есть имеет место эффект последействия. Это означает, что импульсный ионный пучок вносит на растущую поверхность Si(111) определённые изменения, которые сохраняются после прекращения действия ионного облучения и влияют на кинетику роста двумерного слоя.

К таким изменениям можно отнести формирование поверхностных вакансионных кластеров и адатомов, локализованных вблизи мест столкновения ионов с поверхностью. Так, например, создание локально высоких пересыщений адатомов подачей импульса

ионного потока в момент завершения формирования монослоя может стимулировать одномоментное зарождение островков следующего атомного слоя (синхронизация зарождения), и таким образом способствовать росту плёнки по двумерно-слоевому механизму [40,46]. В результате амплитуда ДБЭ-осцилляций и время их затухания должны возрасти, по сравнению со случаем роста без синхронизации зарождения островков. Однако, наши эксперименты с импульсным ионным воздействием точно в максимумах ДБЭ-осцилляций, то есть на стадии зарождения островков следующего монослоя, не показали заметного увеличения амплитуды ДБЭ-осцилляций и времени их затухания, что указывало на отсутствие синхронизации зарождения ионным пучком. Причина этого, возможно, кроется в сравнительно малой плотности ионного потока, используемого в наших экспериментах, которая оказалась недостаточной для проявления эффекта ионно-стимулированного зарождения островков. На такую возможность указывают данные работы [41], в которой было показано, что существует критическое значение ионного потока, ниже которого вклад ионно-стимулированного зарождения в изменение морфологии поверхности становится несущественным.

Заметный эффект возрастания интенсивности зеркального рефлекса и, соответственно, амплитуды ДБЭ-осцилляций наблюдался только в условиях импульсного ионного воздействия незадолго до окончания формирования поверхностного атомного слоя при степени его заполнения θ около 0.8 (перед максимумом ДБЭ-осцилляций, рис. 22 б). Однако, этот эффект скорее всего не связан с ионно-стимулированным зарождением островков. На этой стадии роста поверхность ещё не содержит двумерных островков нового монослоя и характеризуется наличием незаполненных участков или поверхностных вакансионных кластеров, которые формируются в процессе срастания двумерных островков в сплошной слой при $\theta > 0.5$.

Ионное воздействие вызывает генерацию адатомов и поверхностных вакансионных кластеров. 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 поверхности, снижается и, соответственно, можно ожидать уменьшения шероховатости поверхности растущего слоя. Таким образом, изменение кинетики роста монослоя за счёт введения ионным пучком избыточной концентрации поверхностных вакансий может являться одной из причин “выглаживания” поверхности после импульсного ионного воздействия.

Рассмотрим теперь роль ионно-стимулированной реконструкции поверхности. Изменение реконструкции под действием ионного облучения меняет потенциальный рельеф поверхности и, 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. Другое альтернативное предположение об уменьшении диффузионной подвижности адатомов не согласуется с нашими экспериментальными результатами, поскольку в этом случае эффект снижения шероховатости растущего слоя после импульсного ионного воздействия перед максимумом ДБЭ-осцилляции (на завершающей стадии роста поверхностного монослоя) не должен наблюдаться. Иными словами, анализ полученных экспериментальных результатов даёт основание для предположения об увеличении коэффициента поверхностной диффузии

адатомов за счёт изменения поверхностной реконструкции в результате импульсного ионного воздействия.

4.3.2. Ионно-стимулированная реконструкция.

При взаимодействии низкоэнергетического иона с поверхностью могут происходить следующие процессы: а) генерация поверхностных и объёмных дефектов; б) возбуждение упругих колебаний, распространяющихся от мест падения ионов; в) локальный нагрев поверхности. В принципе, каждый из этих процессов может привести к изменению реконструкции поверхности под действием ионного облучения. Рассмотрим теперь возможные механизмы наблюдаемой в эксперименте смены поверхностной реконструкции.

Во-первых, к смене реконструкций может привести локальный нагрев поверхности кремния, вызванный передачей части энергии иона поверхностным атомам. Дело в том, что сверхструктура (5x5) является метастабильной и характеризуется избытком свободной энергии по отношению к равновесной сверхструктуре (7x7) [106]. Поэтому нагрев поверхности должен приводить к трансформации (5x5) в (7x7) с понижением свободной энергии поверхности [138]. Для оценки примем, что время перехода определяется формулой:

$t = t_0 \cdot \exp(E_a / kT)$, где t_0 имеет смысл периода тепловых колебаний поверхностной кристаллической решётки, E_a — энергия активации сверхструктурного перехода от (5x5) к (7x7). Согласно литературным данным [139, 140], энергия активации сверхструктурных перестроек на поверхности Si(111) может лежать в пределах от 1 до 2 эВ. Используем следующие значения $t_0 = 10^{-13} \text{ с}^{-1}$, $E_a = 1 \text{ эВ}$. Если теперь принять, что энергия, переданная кристаллической решётке в процессе столкновения с иона с поверхностью, составляет порядка 100 эВ, то для размера возбужденной области в 10 межатомных расстояний при равном распределении энергии между атомами на каждый атом будет приходиться примерно 0.25 эВ. Эффективная температура в возбужденной области составит около 3000К. В таких условиях для перестройки рассматриваемой области необходимо около 4 пс, что

меньше характерного времени существования термического возбуждения после столкновения иона с поверхностью. Поскольку одновременно идёт распространение возбуждения и за пределы рассматриваемой области за счёт теплопроводности или прямой передачи кинетической энергии, то данная оценка дает нижний предел размеров перестраиваемой области, который равен 3-4 нм. При используемых дозах ионного облучения $\sim 10^{12} \text{ см}^{-2}$ это может дать ионно-стимулированную реконструкцию на одной третьей части всей поверхности кристалла.

Во-вторых, изменение атомной структуры поверхности может происходить за счёт прямой передачи кинетической энергии посредством распространения упругой волны сжатия от места падения иона. В работе [140] методом СТМ в режиме реального времени исследовались сверхструктурные перестройки на поверхности Si(111), и был выявлен детальный механизм перехода от (5x5) к (7x7). Оказывается, что для реализации данного перехода необходимо только передвинуть димерный ряд (стенку), разделяющую две подъячейки сверхструктуры (5x5), на два межатомных расстояния. При этом не требуется перестройки внутри самой подъячейки (5x5). В результате такой передвижки формируется подъячейка сверхструктуры (7x7). Упругая волна, распространяющаяся от места падения иона, может передвинуть данную стенку за счёт прямой передачи кинетической энергии атомам. Поскольку амплитуда смещения атомов, вызванного распространением волнового фронта велика (сравнима с межатомным расстоянием), то оказывается возможен разрыв межатомных связей и их перезамыкание, что может привести к перемещению стенки, разделяющей две подъячейки сверхструктуры (5x5) с формированием подъячейки (7x7). Для формирования целой ячейки (7x7) (см. рис.8) требуется дополнительная передвижка боковых стенок, ограничивающих соседнюю подъячейку. Это более энергозатратный процесс, и он должен происходить более медленно. Возможно, что механизм смещения стенки сверхструктурной ячейки, по сути, подобен механизму скольжения дислокаций в объемном полупроводнике. Однако, даже если упругая волна вызовет только переход от подъячейки

(5x5) к подъячейке (7x7), то и в этом случае эти изменения приведут к возрастанию поверхностной доли реконструкции (7x7), что найдёт отражение в изменении дифракционной картины поверхности, наблюдаемой в эксперименте.

Следующим фактором, который может способствовать переходу от одного типа реконструкции к другому, является локальное повышение 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 [23, 141, 142]. 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 [55], их количество сравнимо с количеством адатомов, создаваемых ионным пучком. Присутствие междоузлий может локально увеличить атомную плотность поверхности и таким образом стимулировать формирование сверхструктуры (7x7) [142].

Определённую роль в наблюдаемых изменениях структуры поверхности Si(111) может играть изменение зарядового состояния поверхности полупроводникового кристалла, вызванное ионным облучением. Существующие в литературе данные [143] свидетельствуют о возможности изменения реконструкции поверхности полупроводника за счёт перераспределения заряда электронов, локализованных на поверхностных состояниях под действием внешних воздействий, таких как осаждение примеси, лазерное облучение и др.

Выводы по главе 4.

Предложен новый подход к экспериментальному исследованию динамики изменения морфологии/сверхструктуры поверхности в процессе эпитаксиального роста с облучением низкоэнергетическими ионами, заключающийся в импульсном ионном воздействии на поверхность растущей плёнки на различных стадиях заполнения поверхностного монослоя и количества осаждённых монослоёв с контролем *in situ* методом ДБЭ.

На основе данного подхода впервые экспериментально обнаружен эффект уменьшения шероховатости растущего слоя после импульсного (0.5 - 1с) воздействия пучком низкоэнергетических (80-145 эВ) ионов Kr^+ процессе эпитаксии Si(111) из молекулярного пучка. Установлена зависимость обнаруженного эффекта от температуры подложки, степени заполнения поверхностного монослоя и количества осаждённых монослоёв.

Впервые экспериментально зафиксирован сверхструктурный фазовый переход $(5 \times 5) \Rightarrow (7 \times 7)$ на поверхности Si(111) в результате импульсного ионного воздействия. Установлена температурная зависимость изменения доли поверхностной фазы (7×7) , вводимой ионным воздействием.

Исследованный класс явлений фактически обеспечивает развитие метода молекулярно-лучевой эпитаксии с синхронизацией структурных превращений импульсным ионным воздействием. Этот метод позволяет получать более резкие границы при росте модулированных структур, а также управлять размерами островков при гетероэпитаксии, например, Ge на Si при создании структур с квантовыми точками [21].

Глава 5. Моделирование эффектов импульсного ионного воздействия при гомоэпитаксии Si(111) из молекулярного пучка.

Данная глава посвящена моделированию эффектов импульсного ионного воздействия на морфологию поверхности Si(111) в процессе гомоэпитаксии из молекулярного пучка. Анализ экспериментальных данных, проведённый в главе 4, позволяет нам выделить два основных фактора, с которыми может быть связан обнаруженный в эксперименте эффект снижения шероховатости ростовой поверхности кремния в результате импульсного воздействия пучком низкоэнергетических ионов Kr^+ .

Первый фактор включает в себя генерацию поверхностных вакансий и адатомов ионным пучком. Второй – изменение диффузионной подвижности адатомов за счёт ионно-стимулированной реконструкции поверхности.

Для того чтобы выяснить, какой из указанных выше факторов даёт определяющий вклад, построена модель процесса эпитаксиального роста кремния в условиях импульсного ионного облучения и проведены вычислительные эксперименты.

§5.1. Описание модели.

Для описания послойного роста кремния из молекулярного пучка мы воспользовались стандартной моделью, разработанной Введенским (Vvedenskii et al.) [144] и Хансоном (Hanson et al.) [135] с коллегами для численного моделирования методом Монте-Карло эпитаксии кремния и других полупроводниковых кристаллов с алмазоподобным 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:

$$\nu(E_D, T) = \nu_0 \exp(-E_D/kT),$$

В модели предполагается, что энергия активации диффузионного прыжка адатома E_D аддитивным образом зависит от числа его ближайших соседей в первой (n_1) и второй (n_2) координационной сфере: $E_D(n_1, n_2) = n_1 E_1 + n_2 E_2$. 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.

Как уже отмечалось в главе 3, важнейшей особенностью начальной стадии эпитаксиального роста Si(111) является изменение типа поверхностной реконструкции в процессе осаждения кремния из молекулярного пучка. При $T < 550^\circ\text{C}$ равновесная сверхструктура (7×7) не успевает сформироваться на всей ростовой поверхности. В результате, наряду с (7×7), образуется ряд метастабильных поверхностных фаз: (5×5), (9×9), (2×1) и др., которые характеризуются избытком свободной энергии по отношению к (7×7) [49,142]. В этих условиях подвижность адатомов на поверхности эпитаксиального слоя оказывается существенно ниже подвижности на исходной поверхности со сверхструктурой (7×7). Для учёта этой особенности роста в модели Хансона [127] эффективная энергия активации поверхностной диффузии модифицируется следующим образом: $E_D(n_1, n_2, n_3) = n_1 E_1 + n_2 E_2 + n_3 E_3$. Здесь $n_3 E_3$ – добавка к энергии связи адатома, учитывающая изменение структуры поверхности эпитаксиального слоя, n_3 – число соседей в подлежащем слое ($1 \leq n_3 \leq 7$): один из них является первым соседом, шесть остальных занимают позиции третьих соседей. При нахождении адатома на границе ступени число соседей $n_3 < 7$, что даёт более высокую диффузионную подвижность на границе островка или вакансионного кластера. Для исходной поверхности со сверхструктурой (7×7) (рис.8) принимается, что

параметр энергии связи $E_z=0$. В процессе роста первого монослоя величина $n_z E_z$ будет возрастать, моделируя постепенный переход к новой поверхностной фазе с более высокой энергией активации поверхностной диффузии адатомов.

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) [71,81]. Первый фактор включает в себя генерацию адатомов и поверхностных вакансионных кластеров в местах столкновения ионов с поверхностью, второй фактор учитывает изменение поверхностной реконструкции в результате ионного облучения поверхности.

Для учёта морфологических изменений поверхности Si(111), вводимых облучением низкоэнергетическими ионами, нами были использованы результаты моделирования на основе метода молекулярной динамики [55], которые подробно изложены в главе 2 данной диссертации. Согласно этим результатам, падение иона с энергией около 200 эВ приводит в среднем к распылению одного атома мишени. На месте падения иона образуется поверхностный вакансионный кластер, преимущественно моноатомной глубины (16 вакансий). Атомы мишени выходят в адатомные позиции и располагаются вокруг вакансионного кластера на некотором удалении от его краев (15 адатомов). Полученные с помощью МД данные использовались в качестве исходных при проведении численного моделирования процесса эпитаксиального роста Si(111) в условиях импульсного облучения низкоэнергетическими ионами.

В нашей модели принималось, что обнаруженный экспериментально сверхструктурный фазовый переход $(5\times 5) \Rightarrow (7\times 7)$, вызванный импульсным ионным воздействием, приводит к увеличению коэффициента поверхностной диффузии адатомов. При проведении модельных расчётов было сделано упрощающее допущение, что в результате ионного воздействия вся поверхность переходит к одному типу сверхструктуры (7×7) . В рамках модели этому соответствует уменьшение энергии активации поверхностной диффузии, поскольку добавка

к поверхностной энергии связи адатома за счёт изменения реконструкции E_3 обращается в нуль. При проведении расчётов принималось, что импульсное воздействие представляет собой процесс мгновенного изменения морфологии поверхности в результате взаимодействия ионов с поверхностью. При используемых нами интегральных потоках вероятность попадания двух ионов в одно место пренебрежимо мала. Предполагалось также, что реконструкция (7×7) трансформировалась в другую поверхностную фазу после нарастания одного атомного слоя. То есть каждый последующий эпитаксиальный слой, выросший после ионного воздействия, имеет метастабильную реконструкцию типа смеси сверхструктурных доменов (5×5) и (7×7) и, соответственно, характеризуется меньшим коэффициентом поверхностной диффузии.

Вычислительный алгоритм строился на двумерной сетке $(N_X \times N_Y) = (147 \times 147)$, узлы которой соответствовали регулярным позициям атомов в кристаллической структуре Si(111). Поверхностная конфигурация атомов задавалась матрицей, в которую в качестве элементов входили значения высот атомов $h_{i,j}$ над исходной поверхностью (поверхность до начала осаждения), индексы (i,j) определяют положение атомов в плоскости. Каждый поверхностный атом мог совершать диффузионный прыжок с вероятностью $P(n_1, n_2, n_3, T) = p_0 \exp(- (n_1 E_1 + n_2 E_2 + n_3 E_3) / kT)$, где $p_0 = \exp(E_1 / kT)$ – нормирующий множитель, который выбран так, чтобы вероятность диффузионного прыжка на свободной поверхности со сверхструктурой (7×7) 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 $P_A = R \Delta t / (N_X N_Y)$, где R –

плотность молекулярного потока. Испарением пренебрегали, что является хорошим приближением в типичных условиях роста из молекулярного пучка [144].

Моделирование гомоэпитаксии Si(111) проводилось методом Монте-Карло с использованием циклических граничных условий. Численные параметры модели были следующие: $E_1=1.1\div 1.3$ эВ, $E_2=0.2$ эВ, $E_3=0.02$ эВ, $\nu_0=10^{13}$ Гц. Для характеристики изменения морфологии поверхности Si(111) 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 [134, 135, 144], в Брегговских 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.

§5.2 Результаты моделирования.

Моделирование эпитаксиального роста методом МК с учётом только генерации поверхностных вакансий и адатомов ионным пучком, не выявило заметного влияния на кинетику роста поверхностного монослоя для всех температур, скоростей осаждения и плотностей ионного потока, используемых в эксперименте. Объяснение этого факта заключается, по-видимому, в относительно слабом изменении поверхностной морфологии за счёт генерации поверхностных дефектов импульсным ионным облучением вследствие малой плотности ионного потока по сравнению с потоком атомов в молекулярном пучке.

На рис. 28 а показан модельный фрагмент поверхности в процессе эпитаксиального роста Si(111) при температуре 400°C и степени заполнения поверхностного монослоя θ около 0.8, который содержит незаполненные участки (вакансионные кластеры) глубиной в один-два монослоя и островки следующего атомного слоя. Темные тона на рисунке соответствуют принадлежности областей более глубоким атомным слоям. Рис. 28 (б) демонстрирует незначительное изменение морфологии поверхности в результате импульсного ионного воздействия.

Модельный расчёт даёт хорошее соответствие с экспериментом, только в случае предположения об увеличении поверхностной подвижности адатомов за счёт изменения поверхностной реконструкции под действием ионного облучения. При последующем осаждении из молекулярного пучка это может приводить к эффективному заполнению вакансионных кластеров и снижению плотности островков (рис. 28 г), что соответствует уменьшению поверхностной плотности ступней S по сравнению с эпитаксией без импульсного ионного воздействия (рис. 28 в, см. так же рис. 29 а)).

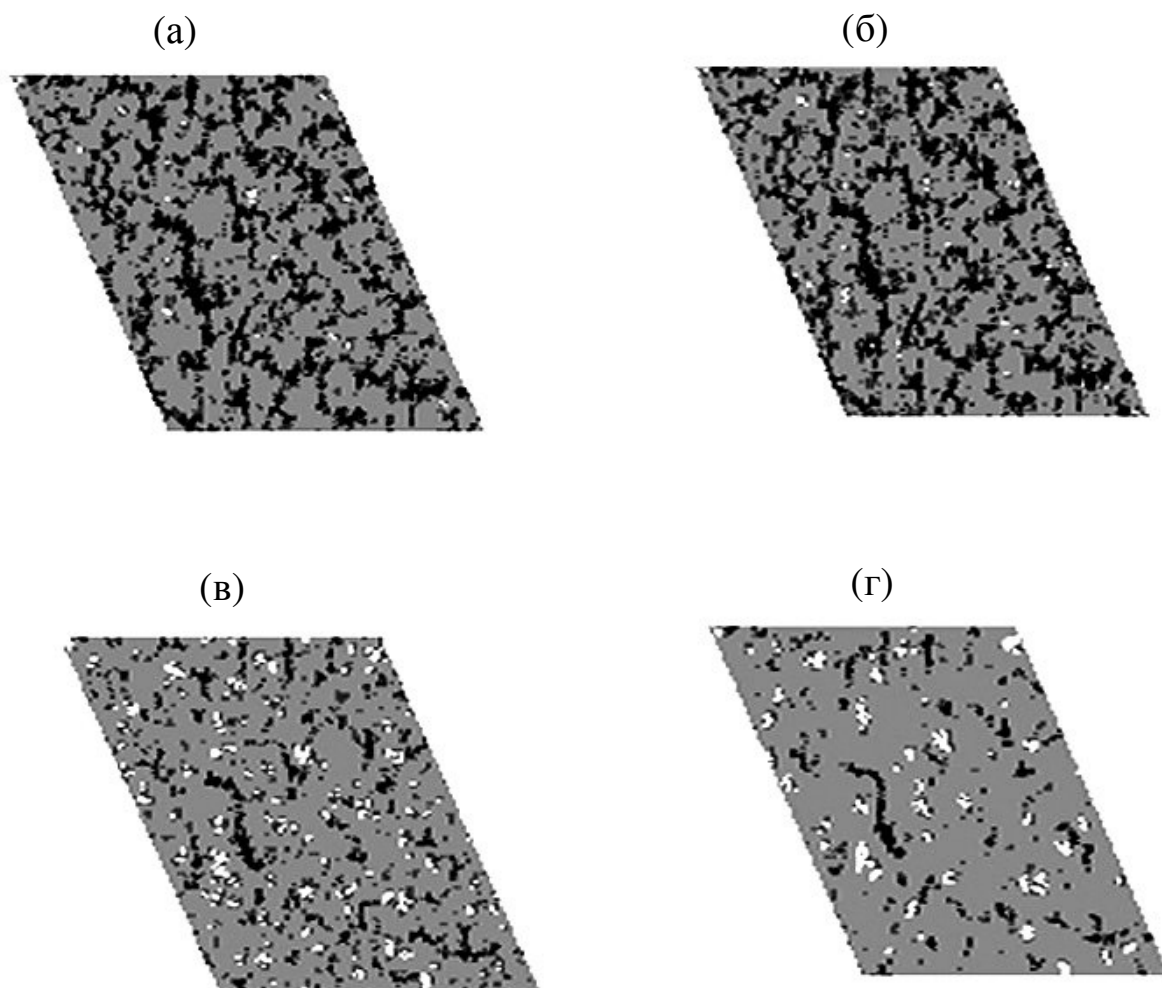


Рис.28. Изображения поверхности Si(111), полученные на основе данных моделирования методом МК гомоэпитаксии кремния из молекулярного пучка [71]. Более темные тона на рисунке соответствуют принадлежности более глубоким атомным слоям. Фрагменты (а) и (б) соответствуют состоянию поверхности до и после импульсного ионного воздействия при количестве осаждённого кремния равного 2.8 монослоя. Фрагменты (в) и (г) соответствуют состоянию поверхности после осаждения 0.2 монослоя кремния на поверхность Si(111): (а) не модифицированную и (б) модифицированную импульсным ионным воздействием. Температура поверхности - 400°C. Скорость осаждения - 0.1 МС/с. Интегральный поток ионов - 10^{12} см^{-2} . Размер модельной ячейки - (52нм × 52нм).

Моделирование показало, что S уменьшается спустя некоторое время после прекращения ионного воздействия (рис.29). То есть в моделировании проявляется эффект, аналогичный “выглаживанию” поверхности растущего слоя ионным пучком (рис.22). Также как в эксперименте, полученный результат зависел от того, при какой степени заполнения поверхностного монослоя производится ионное воздействие. Полный ход расчётной зависимости эффекта от степени заполнения поверхностного монослоя показан на рисунке.

При степени заполнения ($\theta < 0.5$), эффект практически не наблюдается, поскольку в данном случае шероховатость поверхности определяется только количеством зародившихся островков. Импульсное воздействие не приводит к эффективному уменьшению их числа, поскольку в подлежащем слое уже нет вакансионных кластеров, в которые мог бы переместиться материал с поверхности. В данном случае проявляется эффект последствия, который заключается в увеличении величины ($I-S$) в минимуме расчётных осцилляций (рис.29 б). Эффект последствия вызван увеличением диффузионной подвижности на перестроенной поверхности после ионного воздействия, что приводит к увеличению среднего размера островка и, соответственно, к уменьшению доли вертикальных участков поверхности.

Если импульсное воздействие производится при степени заполнения $\theta \geq 0.5$, то также как в эксперименте наблюдается эффект возрастания амплитуды ростовой осцилляции после импульсного ионного воздействия (рис.29 а). На этой стадии роста поверхность практически не содержит двумерных островков нового монослоя и характеризуется наличием незаполненных участков (вакансионных кластеров), которые формируются в процессе срастания двумерных островков в сплошной слой. Импульсное воздействие переводит всю поверхность в состояние с реконструкцией (7x7), что соответствует в нашей модели повышению диффузионной подвижности адатомов. При этом эффективно начинают зарастать открытые участки нижнего подлежащего слоя, что способствует снижению шероховатости поверхности.

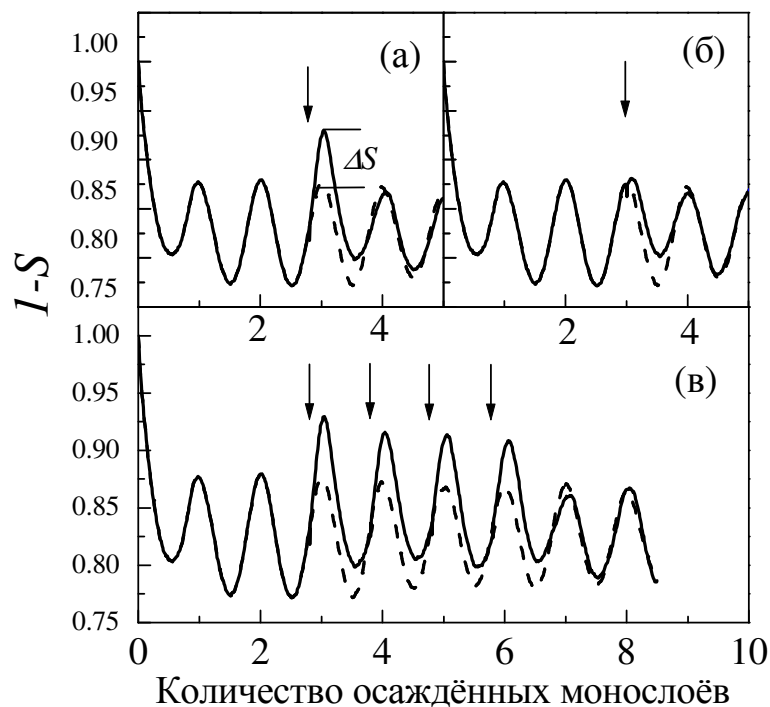


Рис. 29. Расчётные осцилляции плотности ступеней (S) в процессе эпитаксиального роста кремния из молекулярного пучка (а, б) при однократном импульсном ионном воздействии: (а) для степени заполнения поверхности $\theta = 0.8$, (б) для $\theta \approx 1$; (в) при многократном импульсном воздействии для фиксированной степени заполнения поверхностного монослоя $\theta = 0.8$. Температура поверхности - 400°C . Скорость осаждения - 0.1 МС/с . Интегральный поток ионов в каждом ионном импульсе составляет 10^{12} см^{-2} . Пунктирной линией на рисунке показано изменение плотности ступеней в процессе двумерно-слоевого роста без ионного облучения.

Однако одновременно с этим на месте поверхностных вакансионных кластеров формируются участки поверхности с метастабильной реконструкцией, которая имеет более низкий коэффициент диффузии адатомов, чем реконструкция (7×7) . К моменту завершения формирования монослоя ($\theta \approx 1$) на участках поверхности с метастабильной реконструкцией успевают зародиться островки нового монослоя, что заметно ослабляет эффект “выглаживания” поверхностного рельефа.

Минимальная шероховатость и, следовательно, максимальная величина $(I-S)$ достигается при импульсном ионном воздействии при θ около 0.75, что оказалось достаточно близко к экспериментальному значению заполнения поверхностного монослоя, при котором наблюдалось наибольшее усиление интенсивности зеркального рефлекса при ДБЭ.

В заключении необходимо отметить, что небольшие отклонения результатов моделирования от экспериментальных результатов, по-видимому, объясняются предположением о переходе всей поверхности в состояние с реконструкцией (7×7) в результате ионного воздействия, тогда как в эксперименте наблюдалось лишь частичное увеличение доли поверхности, занятой реконструкцией (7×7) .

Методом компьютерного моделирования, была также исследована зависимость температурная зависимость эффекта (рис.26). Было установлено, что приращение амплитуды расчётных осцилляций ΔS (рис. 29 а) после импульсного ионного воздействия с изменением температуры ведет себя подобно приращению амплитуды ДБЭ - осцилляций ΔI в эксперименте (рис. 26). Положение максимума расчётной температурной зависимости эффекта определялось одним модельным параметром E_I , которому соответствует энергия активации поверхностной диффузии адатомов на атомарно-гладкой поверхности Si(111) с реконструкцией (7×7) . Наилучшее совпадение расчётной и экспериментальной зависимостей наблюдалось при $E_I = 1.2$ эВ (см. рис.26). Эта значение хорошо соответствует энергии активации поверхностной диффузии адатомов, определяемой из других экспериментов (см., например [124, 145]). При уменьшении E_I максимум расчётной температурной

зависимости ΔS смещается в область более низких температур без существенного изменения функционального хода кривой.

Немонотонный характер температурной зависимости эффекта уменьшения шероховатости поверхности после импульсного ионного воздействия (см. рис.26) связан, по-видимому, с проявлением двух факторов:

- 1) с ростом температуры возрастает диффузионная длина адатомов, при этом относительный вклад ионно-стимулированной реконструкции в изменение коэффициента поверхностной диффузии на гладких участках поверхности уменьшается пропорционально $1 - \exp(-n_3 E_3/kT)$. Этим обусловлено заметное ослабление эффекта при $T > 500^\circ\text{C}$;
- 2) с понижением температуры усиливается зарождение островков следующего монослоя до окончания формирования предыдущего, что приводит к развитию рельефа поверхности [46]. В этих условиях диффузионная длина адатомов определяются в основном захватом адатомов на границах островков и поверхностных вакансионных кластеров, а не типом реконструкции поверхности. В результате при $T < 300^\circ\text{C}$, согласно данным моделирования, вклад ионно-стимулированной реконструкции в изменение эффективной диффузионной подвижности адатомов стремится к нулю.

Для фиксированной степени заполнения монослоя $\theta = 0.8$ и температуры подложки $T = 400^\circ\text{C}$ было рассчитано изменение шероховатости после однократного импульсного ионного воздействия на поверхность эпитаксиальной плёнки при различной толщине осажденного материала (рис. 30). Сопоставление результатов проведенных расчётов позволяет сделать вывод, что наибольший эффект сглаживания рельефа поверхности импульсным ионным воздействием (наименьшая плотность ступеней) достигается в условиях роста первых нескольких монослоёв. По мере увеличения числа выращенных слоев эффект сглаживания поверхности ионным пучком ослабевает.

Многократное импульсное воздействие моделировалось путём последовательного включения ионного пучка на каждом следующем растущем монослое в моменты времени,

соответствующие одинаковой степени заполнения слоёв (рис.29 в). Также как в случае однократного воздействия, наименьшая плотность ступеней после ионного воздействия достигается при росте первых нескольких монослоёв.

Обнаруженная зависимость эффекта сглаживания поверхности ионным воздействием от количества осаждённых монослоёв, по-видимому, связано с развитием рельефа ростовой поверхности [46]. Моделирование показало, что в процессе эпитаксиального роста из молекулярного пучка происходит накопление возникающих отклонений от планарной поверхности с увеличением толщины эпитаксиального слоя. В результате при любой степени заполнения поверхностного монослоя его поверхность будет содержать достаточно высокую плотность островков и вакансионных кластеров. В этих условиях, также как при низких температурах, эффективный коэффициент диффузии адатомов начинает определяться плотностью границ поверхностных ступеней, которые служат местами преимущественного захвата адатомов, а не типом реконструкции поверхности на гладких участках поверхности.

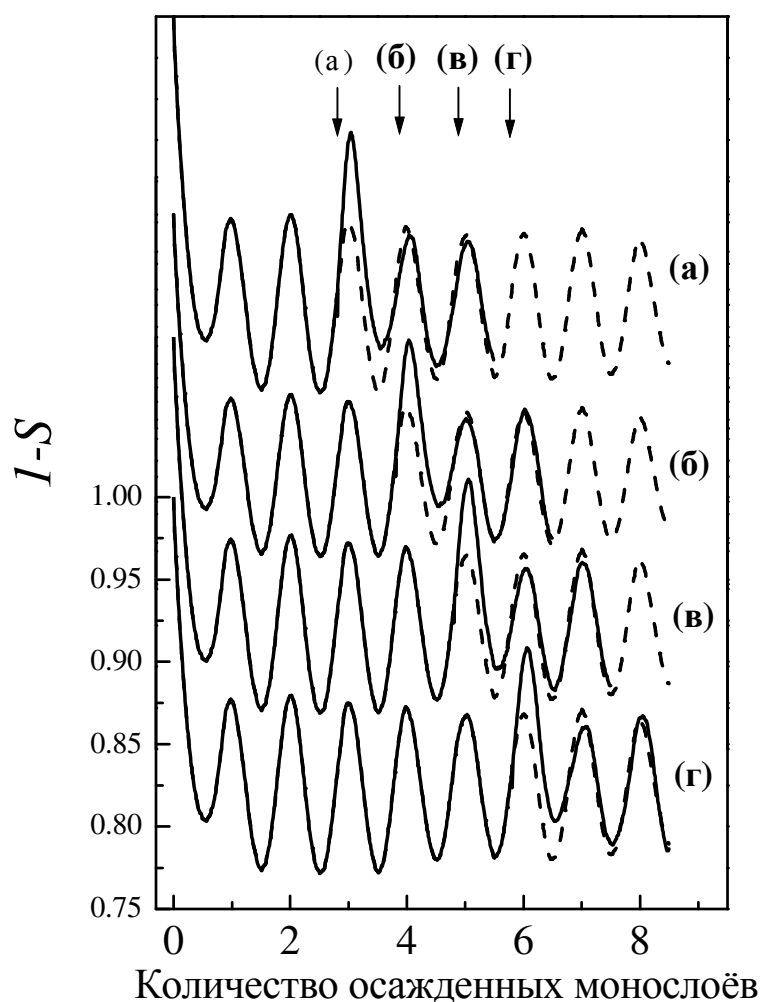


Рис.30. Расчётное изменение плотности ступеней (S) в процессе МЛЭ Si(111) при однократном импульсном ионном воздействии на растущую поверхность для степени заполнения поверхностного монослоя $\theta \approx 0.8$. Количество осаждённых монослоев кремния составляет: (а) – 2.8 МС; (б) – 3.8 МС; (в) – 4.8 МС; (г) – 5.8 МС. Температура поверхности - 400°C . Скорость осаждения – 0.1 МС/с. Интегральный поток ионов в каждом ионном импульсе составляет 10^{12}см^{-2} . Пунктирной линией на рисунке показано изменение плотности ступеней без ионного облучения.

Выводы по главе 5.

Предложена модель морфологических изменений на поверхности Si(111) при импульсном воздействии пучком низкоэнергетических ионов в процессе гомоэпитаксии из молекулярного пучка.

В модель были включены два фактора, присущих взаимодействию низкоэнергетических ионов с поверхностью: 1) генерация адатомов и поверхностных вакансионных кластеров в местах столкновения ионов с поверхностью; 2) изменение поверхностной реконструкции, вызванное ионным облучением поверхности.

Моделирование эпитаксиального роста с учётом только генерации поверхностных вакансий и адатомов ионным пучком, не выявило заметного влияния на кинетику роста. Модельный расчёт даёт хорошее соответствие с экспериментом в предположении об увеличении поверхностной подвижности адатомов за счёт изменения поверхностной реконструкции под действием ионного облучения. При последующем осаждении из молекулярного пучка это может приводить к эффективному заполнению вакансионных кластеров и снижению плотности островков, что соответствует снижению шероховатости поверхности.

В рамках данной модели удаётся объяснить экспериментальную зависимость эффекта сглаживания рельефа поверхности растущей плёнки кремния импульсным ионным воздействием от степени заполнения поверхностного монослоя, температуры подложки и количества осаждённых монослоёв.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ.

1. Методом молекулярной динамики (МД) проведено моделирование взаимодействия низкоэнергетических ионов Хе (энергия 225 эВ, угол падения - 60° от нормали к поверхности) с поверхностью кремния с ориентацией (111) и (100) на начальных стадиях процесса 0 - 100 пс. Установлено, что морфологическая перестройка поверхности, вызванная единичным ударом иона Хе, приводит к образованию поверхностного вакансионного кластера, в котором вакансии сосредоточены преимущественно в первом атомном слое, 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, 9 адатомов выбивалось из поверхностного слоя. Для обоих случаев средний коэффициент распыления составлял ≈ 1 .

2. На основе результатов расчёта методом МД развита модель эволюции вицинальной поверхности кремния при непрерывном облучении низкоэнергетическими (~ 100 эВ) ионами. Согласно данной модели существует критическая температура, выше которой травление поверхности происходит путём движения моноатомных ступеней за счёт термического отрыва адатомов от границ ступеней с последующей диффузией и аннигиляцией на поверхностных вакансионных кластерах, формируемых ионным пучком. С помощью компьютерного моделирования впервые предсказано, что в определенной области температур, которая зависит от интенсивности ионного пучка, должны наблюдаться осцилляции скорости движения ступеней при послойном распылении вицинальной поверхности Si(111) низкоэнергетическими ионами. Установлено, что осцилляции обусловлены взаимодействием ступеней с поверхностными вакансионными кластерами. В рамках предложенной модели удаётся описать переход от двухдоменного состояния поверхности Si(100) с чередованием сверхструктур (2x1) и (1x2) на соседних террасах к

однодоменному состоянию - (2×1) с формированием ступеней двухатомной высоты в процессе ионного облучения поверхности Si(100).

3. Развита новый подход к экспериментальному исследованию динамики изменения морфологии/сверхструктуры поверхности в процессе эпитаксиального роста с одновременным облучением низкоэнергетическими ионами, заключающийся в импульсном ионном воздействии на поверхность на различных стадиях роста эпитаксиальной плёнки с контролем состояния поверхности *in-situ* методом ДБЭ. На основе данного подхода впервые экспериментально обнаружен эффект уменьшения шероховатости ростовой поверхности после импульсного (0.5-1 с) воздействия пучком низкоэнергетических (80-145 эВ) ионов Kr^+ в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии Si(111) в области малых доз ионного облучения ($10^{11} \div 10^{12} \text{ см}^{-2}$). Установлены следующие закономерности проявления обнаруженного эффекта в зависимости от заполнения поверхностного монослоя, температуры подложки и количества осаждённых монослоёв:

- шероховатость поверхности растущего слоя уменьшается, если импульсное ионное воздействие проводится при степени заполнения поверхностного монослоя θ в области $0.5 < \theta < 1$. Максимальный эффект достигается при $\theta \approx 0.8$. Для начальных стадий заполнения монослоя ($\theta < 0.5$) эффект отсутствует;
- эффект усиливается с ростом температуры до 400°C , а затем - ослабляется и при температуре более 500°C практически исчезает;
- по мере увеличения числа осаждённых слоёв эффект сглаживания рельефа поверхности растущего слоя импульсным ионным воздействием ослабевает.

4. Впервые экспериментально зафиксирован сверхструктурный фазовый переход $(5 \times 5) \Rightarrow (7 \times 7)$ на поверхности Si(111) после импульсного ионного воздействия в условиях МЛЭ. Установлено, что доля поверхностной фазы (7×7) , вводимая ионным облучением,

увеличивается с ростом температуры и достигает максимума в области 400°C . Выше этой температуры относительный вклад ионно-стимулированной реконструкции уменьшается.

5. Предложена модель морфологических изменений на поверхности Si(111) при импульсном воздействии пучком низкоэнергетических ионов в процессе гомоэпитаксии из молекулярного пучка. В основе модели лежит представление об увеличении коэффициента поверхностной диффузии адатомов в результате ионно-стимулированной реконструкции $(5\times 5)\Rightarrow(7\times 7)$. Данная модель позволяет объяснить экспериментальную зависимость эффекта сглаживания рельефа поверхности растущей плёнки кремния импульсным ионным воздействием от степени заполнения поверхностного монослоя, температуры подложки и количества осаждённых монослоёв.

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 14 публикациях:

1. 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.
2. 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*. – Proceedings of MRS Symposium, Materials Research Society, Pittsburgh, 1994, v.316, p. 1035-1040.
3. Зиновьев В.А., Александров Л.Н., Двуреченский А.В., Хайниг К.-Х., Шток Д. *Моделирование послойного распыления поверхности (111)Si при облучении низкоэнергетическими ионами*. – Сб. «Полупроводники», Новосибирск: ИФП, 1994, с. 115-117.
4. Dvurechenskii A.V., Zinovyev V.A., Faizullina A.F. *Oscillation of step velocity at sputtering of Si(111) vicinal surfaces by low-energy Xe ions*.- Surf. Sci. 1996, v.347, p. 111-116.
5. Двуреченский А. В., Зиновьев В.А., Марков В.А., Грёцшель Р., Хайниг К.-Х. *Эффекты импульсного воздействия ионами низких энергий при гомоэпитаксии кремния из молекулярного пучка*. Письма ЖЭТФ, 1996, т. 64, р. 689-694.
6. Dvurechenskii A.V., Markov V.A., Zinovyev V.A., Zinovyeva A.F., Groetzschel R., Heinig K.-H. *Effect of pulse action with low-energy ions on (111) Si surface during Si MBE layer-by-layer growth*. – Proceedings of 23th Intern. Conf. on Phys. Semicond., Berlin, 1996, v.2, p. 1127-1130.

7. Dvurechenskii A.V., Zinovyev V.A., Zinovyeva A.F. *Modelling of layer-by-layer sputtering of (111)Si by low-energy ions*. – Тезисы докладов 9-ой Международной конференции по радиационной физике и химии неорганических материалов «РФХ-9», Томск, 1996, с.126.
8. Двуреченский А.В., Зиновьев В.А., Шелиховская С.В. *Эпитаксия кремния из молекулярных пучков при импульсном облучении ионами низких энергий*. – Тез. док. I Всероссийской конференция по материаловедению и физико-химическим основам технологий получения легированных монокристаллов кремния «Кремний-96», Москва, 1996, с.241-241.
9. Двуреченский А.В., Зиновьев В.А., Кудрявцев В. А. *МЛЭ с синхронизацией структурных превращений на поверхности кремния импульсным ионным воздействием*. – Тез. док. III Всероссийской конференции по физике полупроводников «Полупроводники 97», Москва, 1997, с. 273-273.
10. Двуреченский А.В., Зиновьев В.А., Марков В.А., Кудрявцев В. А. *Реконструкция поверхности Si(111) при импульсном облучении ионами низких энергий в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии*. – Тез. док. IV Всероссийского Семинара по физическим основам ионной имплантации, Нижний Новгород 1998, с.32-33.
11. 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.
12. Dvurechenskii A.V., Zinovyev V.A., Markov V.A., Kudryavtsev V.A. *Phase transitions induced by low-energy ion actions during Si(111) molecular beam epitaxy*. - Abstract of First International Workshop on Nucleation and Non-Linear Problems in the First-Order Phase Transitions, St. Petersburg, 1998, p.16-17.

13. 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*. – Surf. Sci., 1999, v.425, p. 185-194.
14. 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, с. 646-649.

Результаты, полученные в данной работе, докладывались и обсуждались на Международной конференции по материаловедению (Materials Research Society, Питтсбург, 1994), на 23-ей Международной конференции по физике полупроводников (Берлин, 1996), на первой Всероссийской конференции по материаловедению и физико-химическим основам технологии получения легированных монокристаллов кремния «Кремний-96» (Москва, 1996), на 9-ой Международной конференции по радиационной физике и химии неорганических материалов «РФХ-9» (Томск, 1996), на 3-ей Всероссийской конференции по физике полупроводников «Полупроводники-97» (Москва, 1997), на IV-ом Всероссийском семинаре по физическим основам ионной имплантации (Нижний Новгород, 1998), на 1-ом Международном симпозиуме «Зарождение и проблемы нелинейности в фазовых переходах первого рода» (Санкт-Петербург, 1998).

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

Автор признателен д. ф.-м. н. О.П. Пчелякову за полезное и конструктивное обсуждение основных результатов проводимых исследований, д. ф.-м. н, профессору Л.С. Смирнову — за интерес к работе и полезное обсуждение ряда вопросов, связанных с механизмами ионного воздействия на поверхность кремния, к. ф.-м. н. В.А. Маркову — за помощь в постановке методики *in-situ* контроля морфологии и сверхструктуры поверхности кремния в

процессе эпитаксиального роста, а также за многочисленные обсуждения экспериментальных результатов и участие в написании научных статей, В.А. Кудрявцеву — за помощь в проведении экспериментальных работ, А. Ф. Зиновьевой — за участие в подготовке диссертационной работы.

Автор благодарен немецким коллегам из института ионных пучков исследовательского центра Россендорф: доктору К.-Х. Хайнигу за помощь в проведении расчётов методом молекулярной динамики взаимодействия низкоэнергетических ионов с поверхностью кремния, доктору Р. Грёцшелю за исследования методом обратного резерфордовского рассеяния кристаллической структуры и состава плёнок кремния, выращенных в условиях ионного облучения.

Автор считает своим долгом выразить искреннюю благодарность безвременно ушедшему от нас профессору Л.Н. Александрову за научное руководство и всестороннюю помощь в работе.

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. *Вопросы радиационной технологии полупроводников.* Под ред. Л.С. Смирнова, Новосибирск, Наука, 1980, 294с.
2. *Ion Implantation: Science and Technology*, 2-nd Edition, Ed. By J.F. Ziegler, Boston, Academic Press, 1988, 498p.
3. Комаров Ф.Ф., Новиков А.П., Соловьёв В.С., Ширяев С.Ю. *Дефекты структуры в ионно-имплантированном кремнии.* Минск, Университетское изд., 1990, 320с.
4. Ni W.-X., Knall J., Hasan M. A., Hansson G.V., Sundgren J.-E., Barnett S.A., Market L. C., Greene J.E. *Kinetics of dopant incorporation using a low-energy antimony ion beam growth of Si(100) films by molecular-beam epitaxy.* – Phys. Rev. B, 1989, v. 40, № 15, p. 10449-10459.
5. Шенгуров В. Г. *Молекулярно-лучевая эпитаксия кремния, стимулированная ионным облучением.* – Автореф. дис. доктора физ.-мат. наук. – Нижний Новгород, 2002, - 46с.
6. Takagi T. *Role of ions in ion-based film formation.* – Thin Solid Films, 1982, v.92, p.1-17.
7. Itoh T., Nakamura T. *Low Temperature Silicon Epitaxy assisted by Ion Implantation.* – Radiation Effects, 1971, v. 9, p. 1-4.
8. Арифов У.А., Лютович А.С., Клименко К.Ф. *Исследование процесса низкотемпературной кристаллизации эпитаксиальных слоёв кремния из ионно-молекулярных пучков.* – В кн.: XIV Всесоюз. Конф. по эмиссионной электронике. Ташкент: ФАН, 1970, с. 110-111.
9. Александров Л.Н., Ловягин Р.Н., Криворотов Е.А., Дождикова Н.Е. *Эпитаксия кремния при катодном распылении.* – Кристаллография, 1970, т. 15, с. 203-205.
10. Pchelyakov O.P., Lovyagin R.N., Krivorotov E.A., Toropov A.I., Aleksandrov L.N., Stenin S.I. *Silicon Homoepitaxy With Ion Sputtering. I. Mechanism of Growth* – Phys. Stat. Sol (a), 1973, v.17, p.339-351.
11. Aleksandrov L. N., Ljutovich A. S., Belorusets E. D. *The Mechanism of Silicon Epitaxial Layer Growth from Ion Molecular Beams.* – Phys. Stat. Sol. (a), 1979, v.54, p. 463-469.

12. Ahmed N.A.G. *An improved ion assisted deposition technology for the 21st century*. – Surface and Coatings Technology, 1995, v.71, p.82-87.
13. Ramm J., Beck E., Zuger A., Dommann A., Pixley R.E. *Low-temperature in situ cleaning of silicon wafers with ultra high vacuum compatible plasma source*. – Thin Solid Films, 1992, v.222, p.126-131.
14. 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.
15. Wagner T.A., Oberbeck L., Bergmann R.B. *Low-temperature epitaxial silicon films deposited by ion-assisted deposition*. – Material Science and Engineering B, 2002, v. 89, p. 319-322.
16. Al-Bayati A. H., Todorov S.S., Boyd K. J., Matron D, Zhang Z., Rabalais J.W., Kulik J. *Homoepitaxy and controlled oxidation of silicon at low temperatures using low-energy ion beam*. – J. Vac. Sci. Technol. B, 1995, v.13, №4, p. 1639-1644.
17. Jacobsen J., Cooper B.H., Sethna J. P. *Simulations of energetic beam deposition: From picoseconds to seconds*. – Phys. Rev. B, 1996, v.58, № 23, p. 15847-15865.
18. 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.
19. Teichert C., Hohage M., Michely T., Comsa G. *Nuclei of the Pt(111) Network Reconstruction created by single Ion Impacts*. – Phys. Rev. Lett., 1994, v. 72, № 11, p. 1682-1685.
20. Rosenfeld G., Lipkin N.N., Wulfhekel W., Kliewer J., Morgenstern K., Poelsema B., Comsa G. *New concepts for controlled homoepitaxy*. – Appl. Phys. A., 1995, v.65, p. 455-466.
21. 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, № 5, с. 296-299.
22. Venables J.A., Spiller G.D.T. and Hanbucken M. *Nucleation and Growth of Thin Films*. – Rep. Prog. Phys., 1984, v. 47, p. 399-459.

-
23. Voigtlander B. *Fundamental processes in Si/Si and Ge/Si epitaxy studied by scanning tunneling microscopy during growth*. – Surface Science Reports, 2001, v. 43, p. 127-254
24. Пчеляков О.П., Болховтянов Ю.Б., Двуреченский А.В., Соколов Л.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.
25. Copel M., Reuter M.C., Kaxiras E., Tromp R.M. *Surfactants in Epitaxial Growth*. – Phys. Rev. Lett., 1989, v. 63, № 6, p. 632-635.
26. Voigtländer B., Zinner A., Weber T., and Bonzel H. P. *Modification of growth kinetics in surfactant-mediated epitaxy*. – Phys. Rev. B., 1995, v.51, № 12, p. 7583-7591.
27. Латышев А.В., Асеев А.Л. *Моноатомные ступени на поверхности кремния*. – УФН, 1998, т.168, № 10, с. 1117-1127.
28. Omi H., Ogino T. *Self-organization of Ge islands on high-index Si substrates*. – Phys. Rev. B., 1998, v. 59, № 11, p. 7521-7528.
29. Herbots N., Hellman O.C., Cullen P.A. and Vancauwenberghe O. *Semiconductor-based heterostructure formation using low-energy ion beams: Ion Beam Deposition (IBD) & Combined Ion and Molecular Beam Deposition (CIMD)*. – In: Deposition and Growth: Limits for Microelectronics. ed. by Rubloff G.W. American Vacuum Society Series 4, American Institute of Physics, Conference Proceedings №167, New York, 1988, 459p.
30. Marton D. *Film deposition from low-energy ion beams*. In: Low Energy Ion-Surface Interactions, ed. by Rabalais J.W., Wiley & Sons, 1994, 524p.
31. Degroote B., Vantomme A., Pattyn H., Vanormelingen K. *Hyperthermal effects on nucleation and growth during low-energy ion deposition*. Phys.Rev. B., 2002, v. 65, p.195401-1-195401-11.

-
32. Takaoka G.H., Seki T., Tsumura K., Matsuo J. *Scanning tunneling microscope observations of Ge deposition on Si (111)-7x7 surfaces irradiated by Xe ions.* – Thin Solid Films, 2002, v. 405, p.141–145.
33. Eaglesham D., Gossmann H.J., and Cerullo M. *Limit thickness h_{epi} for epitaxial growth and room-temperature Si growth on Si(100).* – Phys. Rev. Lett., 1990, v.65, №10, p.1227-1230.
34. *Физические процессы в облучённых полупроводниках.* Под ред. Л.С. Смирнова, Новосибирск, Наука, 1977, 256 с.
35. 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. 1321-11326.
36. 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.
37. Гусева М.Б. *Ионная стимуляция в процессах образования тонких плёнок на поверхности твёрдого тела.* – Соросовский образовательный журнал, 1998, № 10, с. 106-112.
38. 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.
39. Park S.W., Shim J.K., 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.
40. 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.
41. Wulfhenkel W., Lipkin N.N., Kliwer 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.

-
42. 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.
43. Rosenfeld G., Poelsema B., Comsa G. *Epitaxial growth modes far from equilibrium*. – In: Growth and Properties of Ultrathin Epitaxial Layers. Ed. by King D.A., Woodruff D.P., New York, Elsevier Science, 1997, 500p.
44. Schwoebel R. *Step Motion on crystal surfaces*. – J. Appl. Phys., 1966, v. 37, № 10, p. 3682-3687.
45. Rosenfeld G., Poelsema B., Comsa G. *The concept of two mobilities in homoepitaxial growth*. – J. Crys. Growth, 1995, v. 151, p.230-233.
46. Марков В.А., Пчеляков О.П., Соколов Л.В., Стенин С.И., Стоянов С. *Молекулярно-лучевая эпитаксия с синхронизацией зарождения*. – Поверхность, 1991, № 4, с.70-76.
47. Markov V.A., Pchelyakov O.P., Sokolov I.V., Stenin S.I., Stoyanov S. *Molecular beam epitaxy with synchronization of nucleation*. – Surf. Sci. 1991, v. 250, p. 229-234.
48. Nikiforov A.I., Markov V.A., Pchelyakov O.P., Yanovitskaya Z.Sh. *The Influence of the Epitaxial Growth Temperature on the Period of RHEED Oscillations*. – Phys. Low-Dim. Struct., 1997, v.7, p.1-10.
49. Köhler U., Demuth J.E., Hamers R.J. *Scanning tunneling microscopy study of low-temperature epitaxial growth of silicon on Si(111)-7x7*. – J. Vac. Sci. Technol. A, 1989, v.7, № 7, p. 2860-2867.
50. Teys S.A., Olshanetsky B.Z. *Formation of the Wetting Layer in Ge/Si(111) Epitaxy at Low Growth Rates Studied with STM*. – Phys. Low-Dim. Struct., 2002, v.1/2, p.37-36.
51. Goldfarb I., Hayden P.T., Owen J.H.G., Briggs G.A.D. *Nucleation of “Hut” Pits and Clusters during Gas-Source Molecular-Beam Epitaxy of Ge/Si(001) in In-Situ Scanning Tunneling Microscopy*. – Phys. Rev. Lett. 1997, v.78, № 20, p. 3959-3962.
52. Tersoff J., LeGoues F.K. *Competing Relaxation Mechanisms in Strained Layers*. – Phys. Rev. Lett., 1994, v. 72, № 22, p. 3570-3573.

-
53. Bedrossian P. *Generation and healing of low-energy ion-induced defects on Si(100)-2x1*. – Surf. Sci., 1994, v.301, p.223-232.
54. Feil H., Zandvliet H.J.W., Tsai M.-H., Dow J.D., Tsong I.S.T. *Random and Ordered Defects on Ion-Bombarded Si(100)-(2x1) Surfaces*. Phys. Rev. Lett., 1992, v. 69, № 21, p. 3076-3079.
55. 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, Iss.1-2, p.167-170.
56. 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.
57. Экштайн В. *Компьютерное моделирование взаимодействия частиц с поверхностью твёрдого тела.*/ Пер. с англ. Под ред. Е.С. Машковой, М.: Мир, 1995, 321 с.
58. Плешивцев Н.В. *Катодное распыление*. М., Атомиздат, 1968, 347с.
59. 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.
60. 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.
61. Poelsema B., Verheij L.K., Comsa G. *“Two-Layer” Behavior of the Pt(111) Surface during Low-Energy Ar⁺ - Ion Sputtering at High Temperature*. – Phys. Rev. Lett., 1984, v.53, № 23, p. 2500-2503.
62. 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.
63. Bedrossian P., Klistner T. *Surface reconstruction in layer-by-layer sputtering of Si(111)*. Phys. Rev. B., 1991, v. 44, № 24, p. 13783-13786.

-
64. Kitamura N., Lagally M.G., Webb M.B. *Real Time Observations of Vacancy Diffusion on Si(0010)-(2x1) by Scanning Tunneling Microscopy*. – Phys. Rev. Lett., 1993, v.71, № 13, p.2082-2085.
65. Винецкий В.Л., Холодарь Г.А. *Радиационная физика полупроводников*. Киев: Наукова Думка, 1979, 336 с.
66. 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.
67. 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.
68. Ditchfield R., Seebauer E. G. *Direct Measurement of Ion-Influenced Surface Diffusion*. – Phys. Rev. Lett., 1999, v.82, № 6, p. 1185-1188.
69. DeLuca P.M., Ruthe K.C., Barnett S.A. *Glancing-Angle Ion Enhanced Surface on GaAs(001) during Molecular Beam Epitaxy*. – Phys. Rev. Lett., 2001, v. 86, № 2, p. 260-263.
70. Dobson B.W. *Atomistic simulation of silicon beam deposition*. – Phys. Rev. B, 1987, v. 36, № 2, p.1068-1074.
71. 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*. – Surf. Sci., 1999, v. 425, №2-3, p. 185-194.
72. C. E. Allen, R. Ditchfield, and E. G. Seebauer. *Surface diffusion of Ge on Si(111): Experiment and simulation*. – Phys. Rev. B, 1997, v. 56, № 19, p. 13304-13313.
73. 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.

-
74. Lifshitz Y., Kasi S.R., Rabalais J.W., Eckstein W. *Subplantation model for film growth from hyperthermal species*. – Phys. Rev. B, 1990, v. 41, № 15, p.10468-10480.
75. Kulik J., Lempert G.D., Grossman E., Marton D., Rabalais J.W., Lifshitz Y. *sp^3 content of mass-selected ion-beam-deposition carbon films determined by inelastic and elastic electron scattering*. – Phys. Rev. B, 1995, v. 52, № 22, p. 15812-15822.
76. Zhao J. P., Chen Z. Y. *Sandwich atomic structure in tetrahedral amorphous carbon: Evidence of subplantation model for film growth from hyperthermal species*. – Phys. Rev. B, 2001, v. 63, p. 115318-1 – 115318-9.
77. Bott M., Michael H., Michely T., Comsa G. *Pt(111) Reconstruction Induced by Enhanced Pt Gas-Phase Chemical Potential*. – Phys. Rev. Lett., 1993, v. 70, № 10, p. 1489-1492.
78. Jacobsen J., Jacobsen K.W., Stoltze P. *Nucleation of the Pt(111) reconstruction: a simulation study*. – Surf. Sci., 1994, v. 317, p. 8-14.
79. Michely T., Michael H., Esch S., Comsa G. *The effect of surface reconstruction on the growth mode in homoepitaxy*. – Surf. Sci. Lett., 1996, v. 349, p. L89-L94.
80. Hoegen M. H., Falta J., Henzler M. *The initial stages of growth of silicon on Si(111) by slow position annihilation Low-Energy Electron Diffraction*. – Thin Solid Films, 1989, v. 183, p. 213-220.
81. 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.114, вып.12, с.2055-2064.
82. 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.1-4.

-
83. Двуреченский А.В., Зиновьев В.А., Марков В.А., Грецшель Р., Хайниг К.-Х. *Эффекты импульсного воздействия ионами низких энергий при гомоэпитаксии кремния из молекулярного пучка.* – Письма в ЖЭТФ, 1996, т.64, вып.10, с. 690-695.
84. Vancauwenberghe O., Herbots N., Hellman O.C. *A quantitative model of point defect diffusivity and recombination in Ion Beam Deposition (IBD) & Combined Ion and Molecular Deposition (CIMD).* – J. Vac. Sci. Tech. B, 1991, v.9, p.2027-2033.
85. Herbots N., Appleton B.R., Noggle T.S., Zuhr R.A., Pennycook S.J. *Ion-solid interactions during ion beam deposition of ^{74}Ge and ^{30}Si on Si at very low ion energies (0-200eV range).* – Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 1986, v. 13, p.250-258.
86. Ziegler J.F., Biersack J.P, Littmark U. *The stopping and Range of Ions in Solids.* – New York: Pergamon Press, 1985.
87. Boyd K.J., Marton D., Rabalais J.W., Uhlmann S., Frauenheim Th. *Semiquantitative subplantation model for low energy ion interactions with surfaces. III Ion beam homoepitaxy of Si.* – J. Vac. Sci. Technol. A, 1998, v. 16, № 2, p. 463-471.
88. Tsao J.Y., Chason E., Horn K.M., Brice D.K., Picraux S.T. *Low-energy ion beams, molecular beam epitaxy, and surface morphology.* – Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 1989, v. 39, p.72-80.
89. Kyuno K., Cahill D. G., Averback R.S., Taurus J., Nordlund K. *Surface Defects and Bulk Defect Migration Produced by Ion Bombardment of Si(001).* – Phys. Rev. Lett., 1999, v. 83, № 23, p. 4788-4791.
90. Mo Y.W., Kleiner J., Webb M.B., Lagally M.G. *Activation Energy for Surface Diffusion of Si on Si(001): A Scanning-Tunneling-Microscopy study.* – Phys. Rev. Lett., 1991, v. 66, №15, p. 1998-2001.
91. Stillinger F.K., Weber T.A. *Computer simulation of local order in condensed phases of silicon.* – Phys. Rev. B, 1985, v. 31, № 8, p.5262-7271.

-
92. Tersoff J. *New Empirical Model for the Structural Properties of Silicon*. – Phys. Rev. Lett., 1986, v.56, № 6, p.632-635.
93. Car R., Parrinello M. *Unified approach for Molecular Dynamics and Density-Functional Theory*. Phys. Rev. Lett., 1985, v. 55, № 22, p. 2471-2477.
94. Brommer K. D., Needels M., Larson B.E., Joannopoulos J.D. *Ab Initio Theory of the Si(111) – (7x7) Surface Reconstruction: A Challenge for Massively Parallel Computation*. – Phys. Rev. Lett., 1992, v. 68, № 9, p.1355-1358.
95. Cho K., Kaxiras E. *Diffusion of adsorbate atoms on the reconstructed Si(111) surface*. – Surf. Sci., 1998, v.396, p. L261-L266.
96. Brocks G., Kelly P. J. *Dynamics and Nucleation of Si Ad-dimers on the Si(100) Surface*. – Phys. Rev. Lett., 1996, v. 76, № 13, p. 2362-2365.
97. Dobson B.W. *Atomistic simulation of silicon beam deposition*. – Phys. Rev. B, 1987, v. 36, № 2, p. 1068-1074.
98. Dobson B.W. *Development of a many-body Tersoff-type potential for silicon*. – Phys. Rev. B, 1987, v. 35, № 6, p. 2795-2798.
99. Kitabatake K., Fons P., Greene J.E. *Molecular dynamic simulations of low-energy ion/surface interactions during vapor phase crystal growth: 10 eV Si incident on Si(001)-(2x1)*. – J. Vac. Sci. Technol. A, 1991, v.9, p. 91-96.
100. 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.
101. Gilmer H.G., Roland C. *Simulation of crystal growth: Effects of atomic beam energy*. – Appl. Phys. Lett., 1994, v. 65, № 7, p. 824-826.

-
102. Strickland B., Roland C. *Low-temperature growth and ion-assisted deposition*. – Phys. Rev. B, 1995, v.51, № 8, p.5061-5064.
103. Pomeroy M. J., Jacobsen J., Hill C. C., Cooper B.H., Sethna J. P. *Kinetic Monte-Carlo – molecular dynamics investigations of hyperthermal copper deposition on Cu(111)*. – Phys. Rev. B, 2002, v.66, p. 235412-1 - 235412-8.
104. Зверев А.В., Неизвестный И.Г., Шварц Н.Л., Яновицкая З.Ш. *Моделирование процессов эпитаксии, сублимации и отжига в трёхмерном приповерхностном слое кремния*. – ФТП, 2001, т.35, вып. 9, с. 1067-1074.
105. Wilby M.R., Clarke S., Kawamura T., Vvedensky D. D. *Anisotropic kinetics and bilayer epitaxial growth of Si(001)*. – Phys. Rev. B, 1986, v.40, № 15, p.10617-10620.
106. Jacobsen J., Nørskov J.K., Jacobsen K.W. *Island shapes in homoepitaxial growth of Pt(111)*. – Surf. Sci., 1996, v.359, p.37-44.
107. Sato T., Kitamura S., Iwatsuki M. *Initial adsorption process of Si atoms on an Si(111)7x7 surface studied by scanning tunneling microscopy*. – Surf. Sci., 2000, v. 445, p.130-132.
108. Roland C., Gilmer G.H. *Epitaxy on surfaces to vicinal Si(001). I. Diffusion of silicon adatoms over the terraces*. – Phys. Rev. B, 1992, v.46, № 20, p. 13428-13436.
109. Roland C., Gilmer G.H. *Epitaxy on surfaces to vicinal Si(001). II. Growth properties of Si(001) steps*. – Phys. Rev. B, 1992, v.46, № 20, p. 13437-13451.
110. Watanabe H., Ichikawa M. *Kinetics of vacancy diffusion on Si(111) surfaces studied by scanning reflection electron microscopy*. – Phys. Rev. B, 1996, v.54, №8, p.5574-5580.
111. Watanabe H., Ichikawa M. *Anisotropic kinetics of vacancy diffusion and annihilation on Si(001) surfaces studied by scanning reflection electron microscopy*. – Phys. Rev. B, 1997, v.55, №15, p.9699-9705.
112. Verlet L. *Computer “Experiment” on Classical Fluids. I. Thermodynamical Properties of Lennard-Jones Molecules*. – Phys. Rev., 1967, v.159, p.98.

-
113. Heinig K.-H., Stock D., Zinovyev V.A., Aleksandrov L.N., Dvurechenskii A.V. *Formation of double – height (100)Si steps by sputtering with Xe ions – a computer simulation.* – MRS Proceeding, 1994, v.316, p.1035-1040.
 114. Stich I., Payne M.C., King-Smith, Lin J.-S., Clarke L.J. *Ab Initio Total-Energy Calculation for Extremely Large Systems: Application to the Takayanagi Reconstruction of Si(111).* – Phys. Rev. Lett., 1992, v.68, №9, p.1351-1354.
 115. Meade D.R., Vanderbilt D. *Adatoms on Si(111) and Ge(111) surfaces.* – Phys. Rev. B, 1989, v.40, №6, p.3905-3913.
 116. Бартон В., Кабрера Н., Франк Ф. *Рост кристаллов и равновесная структура их поверхностей.* В книге: *Элементарные процессы роста кристаллов* / Пер. под ред. Г.Г. Леммлейна, А.А. Черенкова, М.: Изд. Иностранной литературы, 1959. - 300 с.
 117. Myers-Beaghton A.K., Vvedensky D.D. *Generalized Burton-Cabrera-Frank theory for growth and equilibration on stepped surfaces.* – Phys. Rev. A., 1991, v.44, №4, p.2457-2468.
 118. Myers-Beaghton A.K., Vvedensky D.D. *Step dynamics on vicinal Si(001) during epitaxial growth.* – Appl. Phys. Lett., 1991, v.59, №16, p.2013-2015.
 119. Myers-Beaghton A.K., Vvedensky D.D. *Nonlinear equation for diffusion and adatom interactions during epitaxial growth on vicinal surfaces.* – Phys. Rev. B, 1990, v.42, №9, p.5544-5554.
 120. Dvurechenskii A.V., Zinovyev V.A., Faizullina A.F. *Oscillations of step velocity at sputtering of Si(111) vicinal surfaces by low-energy Xe ions.* – Surf. Sci., 1996, v.247, p. 111-116.
 121. McLean J. G., Krishnamachart B., Peale D.R, Chason E., Sethna P. J., Cooper B.H. *Decay of isolated surface features driven by the Gibbs-Thomson effect in an analytic model and a simulation.* – Phys. Rev. B, 1997, v. 55, №3, p.1711-1823.
 122. Самарский *Введение в численные методы.* – М.: Наука, 1987. – 288 с.

-
123. Latyshev A.V., Krasilnikov A.B., Aseev A.L., Stenin S.I. *Transformations on clean Si(111) stepped surface during sublimation*. – Surf. Sci., 1989, v.227, p. 157.
124. Latyshev A.V., Krasilnikov A.B., Aseev A.L. *Self-diffusion on Si(111) surfaces*. – Phys. Rev. B, 1996, v. 54, №4, p.2586-2589.
125. Zandvliet H.J.W. *Energetics of Si(001)*. – Reviews of Modern Physics, 2000, v.72, №2, p.593-602.
126. Chadi D.J. *Stabilities of Single-Layer and Bilayer Steps on Si(001) Surfaces*. – Phys. Rev. Lett., 1987, v.59, №15, p.1691-1694.
127. Hoeven A.J., Lenssinck J.M., Dijkkamp D., van Loenen E.J., Dieleman J. *Scanning-Tunneling-Microscopy of single-Domain Si(001) Surfaces Grown by Molecular-Beam Epitaxy*. – Phys. Rev. Lett., 1989, v.63, №17, p.1830-1832.
128. Voigtlander B., Weber T., Smilauer P., Wolf D.E. *Transition from Island Growth to Step-Flow Growth for Si/Si(100) Epitaxy*. – Phys. Rev. Lett., 1997, v.78, №11, p.2164-2167.
129. N. Kitamura, Swartzentruber B. S., Lagally M.G., Webb M.B. *Variable-temperature STM measurements of step kinetics on Si(001)*. – Phys. Rev. B, 1993, v.48, №8, p.5704-5707.
130. Swartzentruber B.S., Schacht M. *Kinetics of atomic-scale fluctuations of steps on Si(001) measured with variable-temperature STM*. – Surf. Sci., 1995, v.322, p.83-89.
131. Zhang Q.-M., Roland C., Boguslawski P., Bernhole J. *Ab Initio studies of Diffusion Barriers at Single-height Si(100) Steps*. – Phys. Rev. Lett. 1995, v. 75, №1, p.101-104.
132. Swartzentruber B.S., Mo Y.-W., Kariotis R., Lagally M.G., and Webb M.B. *Direct Determination of Step and Kink Energies on Vicinal Si(001)*. – Phys. Rev. Lett., 1990, v.65, №15, p.1913-1916.
133. Bowler D.R., Bowler M.G. *Step structures and kinking on Si(001)*. – Phys. Rev. B, 1998, v. 57, №24, p.15385-15391.

134. 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.
135. 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.
136. Nakahara H., Ichimiya A. *Silicon deposition on Si(111) surface at room temperature and effects of annealing*. – J. Cryst. Growth, 1990, v.99, p.514-519
137. Dargys A., Kundrotas J. *Handbook on physical properties of Ge, Si, GaAs and InP*, Vilnius, Science and Encyclopedia Publishers, 1994, 264 c.
138. Feenstra R.M., Lutz M.A. *Formation of the 5x5 reconstruction on cleaved Si(111) surface studied by scanning tunneling microscopy*. – Phys. Rev. B., 1990, v.42, № 8, p.5391-5394.
139. Nakahara H., Ichimiya A. *Structural study of Si growth on a Si(111) 7x7 surface*. – Surf. Sci., 1991, v.241, p.124-134.
140. Ishimaru T., Shimada K., Hoshino T., Yamawaki T., Ohdomari I. *Size changes of $n \times n$ stacking-fault half units of dimer-adatom-staking-fault structures on quenched Si(111) surfaces*. – Phys. Rev. B., 1999, v.60, № 19, p.13592-13597.
141. 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.
142. 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.
143. Большов Л.А., Вещунов М.С. К теории реконструкции поверхности полупроводниковых кристаллов. – ЖЭТФ, 1986, т.90, вып.2, с.569-580.
144. Vvedensky D.D., Clarke S. *Recovery kinetics during interrupted epitaxial growth*. – Surf. Sci., 1990, v.225, p.373–389.

-
145. Voigtlander B., Kastner M., Smilauer P. *Magic Islands in Si/Si(111) Homoepitaxy*. – Phys. Rev. Lett., 1998, v.81, № 4, p.858-861.