

Особенности атомных процессов при формировании смачивающего слоя и зарождении трехмерных островков Ge на ориентациях (111) и (100) Si

С. А. Тийс¹⁾

Институт физики полупроводников им. Ржанова СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 7 ноября 2012 г.

С помощью метода СТМ исследовались промежуточные стадии формирования смачивающего слоя Ge на поверхностях (111) и (001) Si в квазиравновесных условиях роста. Продемонстрированы процессы перераспределения атомов Ge и релаксации напряжений несоответствия посредством формирования поверхностных структур пониженной плотности и граней, отличных от ориентации подложки. Проведен анализ мест зарождения новых трехмерных островков Ge после образования смачивающего слоя. Показаны как принципиальные отличия, так и общие тенденции протекания атомных процессов при формировании смачивающих слоев на поверхностях (111) и (100) Si. Плотность трехмерных зародышей на Si(111) определяется изменившимися условиями поверхностной диффузии адатомов Ge после смены поверхностной структуры. На грани Si(100) переход к трехмерному росту определяется зарождением одиночных граней {105} на шероховатой поверхности Ge(100).

Рост по механизму Странского–Крастанова давно считается характерным свойством процесса эпитаксии Ge на Si [1–4]. Этот классический механизм подразумевает послойный рост так называемого смачивающего слоя (СС) с последующим переходом к образованию трехмерных островков. Распространенное объяснение перехода от послойного роста СС к трехмерному за счет изменения энергии растущей пленки по мере накопления напряжений несоответствия [5] далеко не полностью отражает природу этого явления. Во-первых, это всего лишь констатация ранее установленного экспериментального факта именно такого поведения системы Ge–Si [1]. Во-вторых, экспериментально измерить, а следовательно, проверить величину энергии невозможно. Можно только рассчитать ее в рамках той или иной модели роста. В-третьих, это объяснение не раскрывает реальной более сложной последовательности атомных процессов в рамках механизма Странского–Крастанова.

Успешное использование метода сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) [6] способствовало накоплению дополнительной информации о различных стадиях роста в гетеросистеме Ge–Si на атомном уровне. В частности, появились новые данные по механизмам формирования псевдоморфного состояния фазы Ge и изменению структуры поверхности растущего слоя Ge на разных поверхностях Si [7–12].

Цель данной работы – продемонстрировать особенности атомных процессов на поверхностях Si (111)

и (100) при формировании СС в условиях квазиравновесного роста.

Получение атомарно-чистой поверхности Si и рост Ge проводились в условиях сверхвысокого вакуума в установке СТМ производства OMICRON. Образцы кремния размером $12 \times 3 \times 0.4 \text{ мм}^3$ вырезались из кремниевых шайб *n*-типа с сопротивлением $0.5 \text{ Ом}\cdot\text{см}$. Отклонение поверхности от плоскостей (111) и (100) не превышало 0.5 градуса. Перед установкой в камеру СТМ образцы обрабатывались в водном растворе смеси азотной кислоты и перекиси водорода для формирования тонкого защитного окисла. Последующее удаление окисла в вакууме позволяло получать атомарно-чистую поверхность. В вакуумной камере образцы обезгаживались не менее 4 ч при температуре около 600°C . Затем поверхность кремния очищалась прогревом при 1250°C в течение нескольких секунд при давлении не более $2 \cdot 10^{-10} \text{ Торр}$. Образец прогревался прямым пропусканием тока, что позволяло быстро нагревать и охлаждать его поверхность. Калибровка температуры образца проводилась с помощью оптического пирометра. Обычно охлаждение образца в процессе предэпитаксиальной подготовки осуществлялось путем ступенчатого понижения тока накала со скоростью $50^\circ\text{C}/\text{мин}$ в диапазоне температур $900\text{--}350^\circ\text{C}$. Охлаждение образца после стадии роста происходило со скоростями в десятки градусов в секунду за счет отключения нагревающего тока. Это позволяло “замораживать” мгновенную картину роста (в отличие от инерционных систем косвенного нагрева образца).

¹⁾ e-mail: teys@isp.nsc.ru

В качестве источника Ge был использован испаритель в виде полоски вольфрама с закрепленной навеской Ge. В силу специфики кристаллической решетки алмазоподобных полупроводников эпитаксиальный рост на поверхности Si(111) осуществляется двойными атомными слоями – бислоями (BC), а на Si(100) – монослоями (MC). Один бислой Ge – $1BC_{111}$, содержит $1.44 \cdot 10^{15}$ ат./ cm^2 , что составляет $2.3 MC_{100}$ из-за отличия поверхностной плотности атомов разных граней. Скорость напыления варьировалась в диапазоне $10^{-3} - 10^{-1}$ BC/мин, что обеспечивало квазиравновесные условия роста. Величина покрытия калибровалась по объему двумерных трехбислойных островков Ge на Si(111) [10], образовавшихся на террасах вдали от ступеней и междоменных границ поверхностной структуры 7×7 . Рост осуществлялся при температурах подложки $300 - 550^\circ C$.

Изображения СТМ поверхности записывались при комнатной температуре. Для всех изображений СТМ светлые участки на рисунках соответствуют выступающим частям рельефа поверхности, а темные – углублениям. В качестве СТМ-зонда применялись вольфрамовые иглы, полученные электролитическим травлением в растворе щелочи. При анализе и обработке изображений СТМ использовалось свободно распространяемое программное обеспечение WSxM 4.0 [13, 14].

Существует несколько особенностей структурного состояния Ge на начальных стадиях роста псевдоморфной фазы Ge на Si(111) в режиме молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ). Первой особенностью формирования CC на грани Si(111) является аккумуляция Ge в виде нанокластеров (рис. 1) в треугольных половинах элементарных ячеек поверхностной структуры Si(111)- 7×7 [7–10]. Из экспериментальных данных [10, 15] следует, что полуячейки 7×7 представляют собой промежуточные мелкие потенциальные ямы, в которых происходит первичное накопление Ge в виде нанокластеров. В квазиравновесных условиях роста нанокластеры Ge сначала интенсивно формируются в полуячейках 7×7 (рис. 2а), а затем полностью исчезают (рис. 2б) после зарождения и разрастания двумерных островков Ge на ровных террасах [15, 16]. На рис. 2а показан промежуточный момент роста с плотностью нанокластеров и островков $3.7 \cdot 10^{12}$ и $2.5 \cdot 10^{11} cm^{-2}$ соответственно. Хорошо видно, что вокруг крупных островков нанокластеры отсутствуют (рис. 2а). После увеличения количества осажденного Ge в три раза нанокластеры не наблюдаются (рис. 2б). При этом плотность островков ($2.4 \cdot 10^{11} cm^{-2}$) практически не изменяется. Распад кластеров в присутствии островков Ge

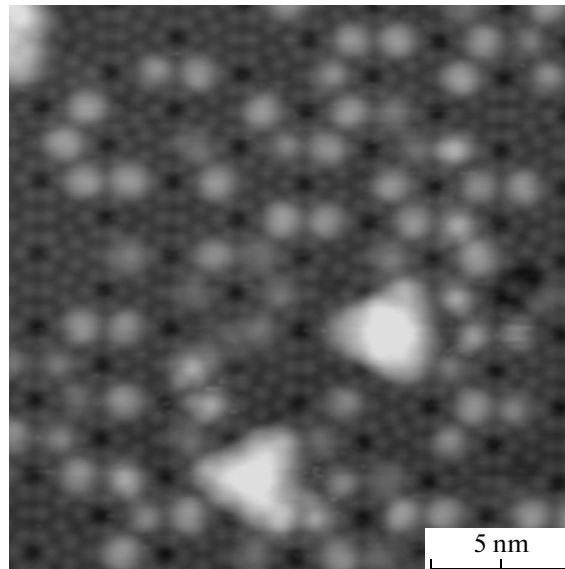


Рис. 1. Изображение СТМ нанокластеров и островков минимального размера после осаждения 0.1 BC Ge при температуре $350^\circ C$ со скоростью 6×10^{-3} BC/мин

также происходит в процессе отжига образцов при температуре роста [10, 17]. Разрушение нанокластеров начинается из-за перехода атомов Ge в более глубокие потенциальные ямы E_c , соответствующие позициям атомов на краях ступеней островков высотой в один бислой. Подобные места встраивания расположены и вдоль исходных бислойных ступеней Si, поскольку в процессе роста вдоль ступеней формируются свободные от нанокластеров и островков участки поверхности, названные зонами обеднения [18]. Преимущественный сток адатомов Ge в процессе роста на края ступеней препятствует накоплению атомов в полуячейках 7×7 , зарождению нанокластеров и формированию островков вблизи ступеней.

При температурах роста более $500^\circ C$ адатомы Ge не задерживаются в мелких потенциальных ямах E_k полуячеек 7×7 , преодолевают значительные расстояния и встраиваются в более глубокие потенциальные ямы E_c на краях ступеней и дефектах междоменных границ. Уменьшение температуры роста и повышение скорости осаждения Ge увеличивают вероятность образования кластеров в полуячейках 7×7 на террасах. При этом их плотность стремится к максимально возможной величине $3.2 \cdot 10^{13} cm^{-2}$. С увеличением скорости осаждения также повышается плотность двумерных островков (рис. 3). Плотность островков не может превышать предельного значения $4 \cdot 10^{12} cm^{-2}$ для массива с минимальными размерами островков в две элементарные ячейки 7×7 . Островки минимального размера хорошо видны в нижней час-

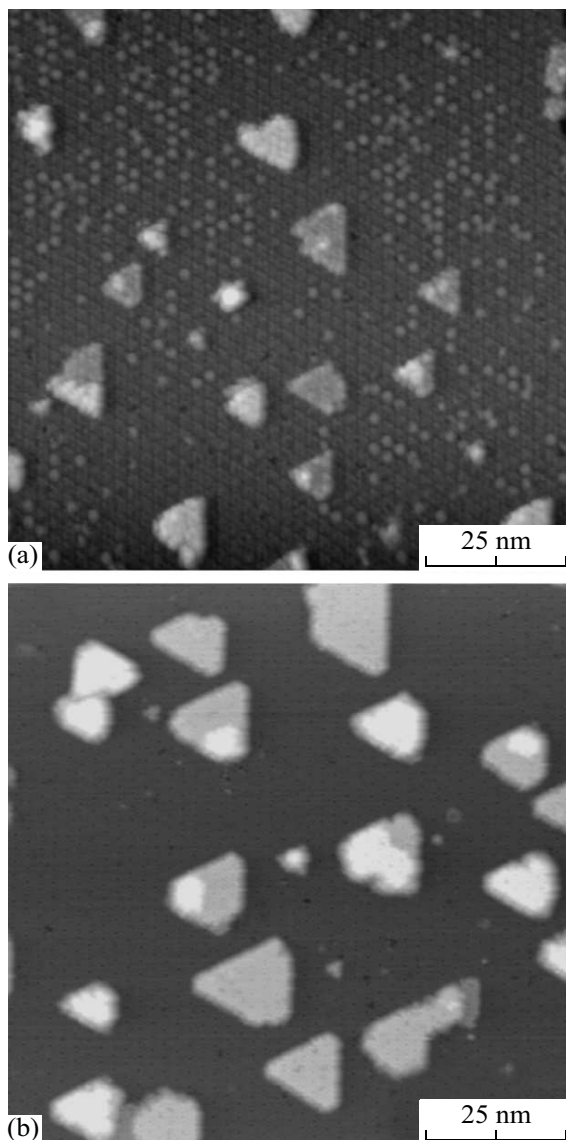


Рис. 2. Изображения СТМ поверхности Si(111) после эпитаксии Ge при температуре 380 °С со скоростью $4 \cdot 10^{-3}$ БС/мин. (а) – С нанокластерами и островками после осаждения 0.14 БС Ge. (б) – Только с островками после осаждения 0.5 БС Ge

ти рис. 1. Для обычных режимов МЛЭ, далеких от равновесных условий роста, с высокими скоростями осаждения Ge плотность двумерных островков должна значительно возрастать. Результат экстраполяции экспериментальной зависимости плотности островков в область скоростей осаждения МЛЭ (рис. 3) выглядит довольно неожиданно. Из данной экстраполяции следует, что наблюдаемые осцилляции зеркально отраженного пучка электронов (см. вставку к рис. 3) [19] соответствуют области плотностей выше предельно возможной плотности двумерных остров-

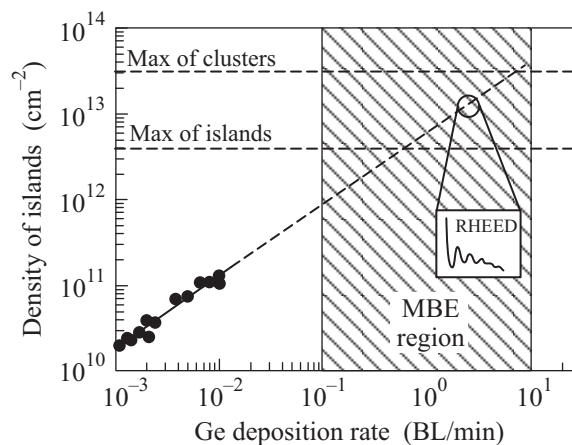


Рис. 3. Зависимость плотности двумерных островков Ge от скорости осаждения на этапе формирования СС при температуре роста 400 °С. Область скоростей роста для МЛЭ заштрихована. На вставке показана типичная осцилляция зеркально отраженного пучка электронов для скорости роста 2.5 БС/мин

ков! Наблюдение осцилляций при таких скоростях роста можно объяснить зарождением и слиянием нанокластеров в полуячейках 7×7 без образования двумерных островков.

Возвращаясь к формированию СС в квазиравновесных условиях роста на этапе окончания распада нанокластеров и перераспределения Ge в двумерные псевдоморфные островки, необходимо отметить вторую особенность образования СС. Поскольку островки не только увеличиваются в латеральных размерах, но и растут в высоту по многослойному механизму роста [7, 20], в квазиравновесных условиях роста на поверхности Si(111) (рис. 2b) фактически наблюдается островковый рост по механизму Вольмера–Вебера.

Третья особенность – это ограничение высоты островков Ge тремя бислоями [9]. Оно было экспериментально зарегистрировано [7, 9, 10] уже на небольших двумерных островках до образования сплошного напряженного слоя. Необходимо заметить, что точно такое же ограничение высоты происходит при гомоэпитаксиальном росте ненапряженных островков Si на Si(111) [9, 21]. Следовательно, этот процесс определяется не накоплением напряжений несоответствия. Образование ступеней высотой в три БС свойственно и чистой вицинальной поверхности Si(111), отклоненной на несколько градусов в направлении типа $\langle \bar{1}12 \rangle$ [22]. Нами было установлено [18], что зона обеднения у трехбислойных ступеней при росте Ge на Si(111) больше, чем у ступеней высотой в 1 БС. Увеличенная зона обеднения у трехбислойных ступеней свиде-

тельствует о еще более глубокой потенциальной яме E_{3c} для стока адсорбированных атомов по сравнению с бислошной ступенью. Повышенная “поглощающая способность” в местах формирования трехбислошных ступеней, вероятно, связана со специфическим атомным строением края ступени. Наличие продольных и поперечных димеров и высокая концентрация оборванных связей на краю трехбислошной ступени [23] вполне логично повышают вероятность захвата диффундирующих адатомов Ge. Становится понятной причина ограничения высоты островков тремя бислоями. Увеличенный сток адатомов Ge на края трехбислошных ступеней не только с поверхности подложки, но и с верхних плоскостей островков препятствует образованию новых верхних слоев островков и одновременно ускоряет их латеральное разрастание. Последовательное формирование все более глубоких потенциальных ям ($E_k < E_c < E_{3c}$) в процессе роста определяет направленность перераспределения адсорбата и текущую морфологию ростовой поверхности. Увеличивая скорость осаждения Ge, можно подавлять стадию трехбислошного роста и, вероятно, даже стадию формирования двумерных островков.

Четвертой особенностью роста Ge на Si(111) является перестроение поверхностной структуры двумерных островков Ge. Отметим, что для чистой ненапряженной поверхности Ge(111) характерна плотноупакованная поверхностная структура $c2 \times 8$ [24]. На ростовой поверхности Ge при комнатной температуре с помощью СТМ можно также обнаружить участки со структурами $c2 \times 8$, 2×2 и $2 \times \sqrt{3}$ [12]. Поскольку ячейки фаз 2×2 и $2 \times \sqrt{3}$ являются фрагментами фазы $c2 \times 8$, в дальнейшем эту группу родственных германиевых структур будем обозначать как $2 \times [8; 2; \sqrt{3}]$. Плотность структур $2 \times [8; 2; \sqrt{3}]$ толщиной в 1 БС и неполный адатомный слой составляет 4.10 ат./нм^2 . В процессе роста Ge на Si(111) поверхность подавляющего большинства островков Ge повторяет структуру чистой поверхности кремния, 7×7 [7–10]. Такая конфигурация атомов Ge вполне логична при частичном снятии напряжений в островках за счет выстраивания менее плотной (3.79 ат./нм^2) поверхностной структуры Ge(111)- 7×7 . Дальнейшее латеральное разрастание островков сопровождается постепенным переходом к структуре поверхности Ge(111)- 5×5 с еще меньшей плотностью, 3.65 ат./нм^2 . Согласно нашим экспериментальным данным после осаждения 0.4 БС Ge при температуре 400°C и скорости осаждения $2 \cdot 10^{-3}$ БС/мин около 70% поверхности островков Ge оказывается занято структурой 7×7 , а 30% – структурой 5×5 . Лишь на единичных небольших островках встреча-

лись плотноупакованные структуры 2×2 и $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$. К моменту коалесценции трехбислошных островков в сплошной СС структура 5×5 занимает 100% поверхности [7, 8, 10]. Подобная последовательность изменения поверхностных структур $c2 \times 8 \rightarrow 7 \times 7 \rightarrow 5 \times 5$ наблюдалась и в другой напряженной гетеросистеме, Sn–Ge(111), по мере увеличения концентрации Sn [25]. Переходы $2 \times [8; 2; \sqrt{3}] \rightarrow 7 \times 7$ и $7 \times 7 \rightarrow 2 \times [8; 2; \sqrt{3}]$ также обнаружены нами на плоских вершинах трехмерных (3D) островков Ge, сформированных поверх СС, при их латеральном разрастании [11, 12]. Первый переход $2 \times [8; 2; \sqrt{3}]$ в менее плотную структуру 7×7 обусловлен накоплением упругих деформаций 3D островка. Обратный переход к структуре ненапряженного германия $2 \times [8; 2; \sqrt{3}]$ происходил после пластической релаксации островков за счет введения дислокаций несоответствия в границу раздела Ge–Si. Таким образом, изменения поверхностных структур в процессе роста являются своеобразными индикаторами изменения напряженного состояния гетеросистем. Необходимо отметить, что при повышенных температурах роста ($500\text{--}600^\circ\text{C}$) с увеличением длины пробега адатомов вероятность встраивания Ge в 1 БС ступени возрастает, трехбислошный рост подавляется и переход к поверхностной структуре 5×5 наступает при толщине Ge меньше 3 БС.

Пятая особенность роста Ge на Si(111) – увеличение в несколько раз скорости поверхностной диффузии атомов Ge по СС, имеющему структуру 5×5 при неизменной температуре роста [15, 16, 26]. Следует заметить, что на поверхности Ge со структурой 5×5 не происходит зарождения островков на многочисленных междоменных границах и образования нанокластеров в элементарных ячейках структуры 5×5 , как это имеет место на исходной поверхности Si(111)- 7×7 при той же температуре роста [10, 15]. При неизменных условиях эпитаксии плотность зародышей 3D-островков на поверхности СС в десятки раз меньше, чем двумерных островков Ge на подложке Si(111)- 7×7 (см. рис. 2). На поверхности СС со структурой Ge(111)- 5×5 формируются потенциальные ямы, слишком мелкие для зарождения 3D-островков. Для стока атомов Ge появляются более глубокие потенциальные ямы в областях повышенной дефектности на местах пересечения нескольких междоменных границ или вблизи участков поверхности со структурами $2 \times [8; 2; \sqrt{3}]$ (рис. 4), характерных для ненапряженной поверхности Ge(111) [11]. Быстрый последующий рост 3D-островков, ограниченных фасетками $\{113\}$ [4, 7, 27], также означает формирование более глубоких потенциальных ям для стока

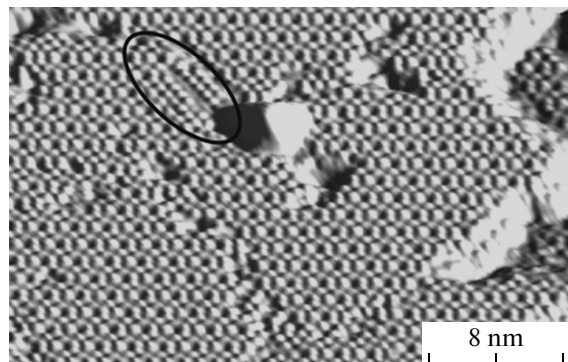


Рис. 4. Изображение СТМ островершинного зародыша 3D-островка рядом с участком поверхности смачивающего слоя со структурой 2×2 (обведен черным овалом). Структура 2×2 является элементом структуры $c2 \times 8$, характерной для ненапряженного Ge(111)

атомов на гранях $\{113\}$ по сравнению с потенциальным рельефом поверхности Ge(111) со структурой 5×5 . Область сбора атомов вокруг 3D островков увеличивается до сотен нанометров. Кроме того, рост 3D островков сопровождается частичным разрушением СС вблизи них (рис. 5) и исчезновением части

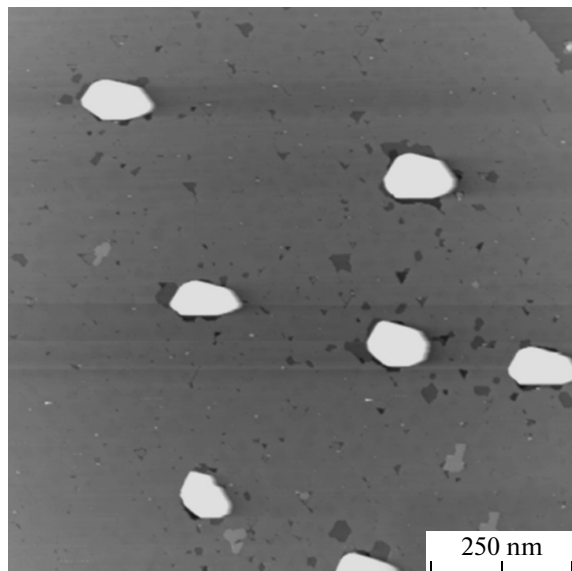


Рис. 5. Изображение СТМ поверхности СС с 3D-островками (светлые пятна). Темные пятна вокруг островков свидетельствуют о частичном разрушении СС. В правом верхнем углу рисунка виден край бислойной ступени

двумерных островков на СС [9]. Переход атомов Ge из СС на 3D-островки также свидетельствует о перераспределении атомов из мелких потенциальных ям

структуры 5×5 в более глубокие минимумы на гранях $\{113\}$ - 3×1 Ge 3D-островков.

Шестой особенностью, по нашим данным, является зарождение 3D-островков Ge в виде остроконечных пирамид (рис. 4) в предполагаемых местах наименьшей деформации кристаллической решетки Ge. Об этом свидетельствует несколько косвенных фактов. Во-первых, около зародышей 3D-островков наблюдаются участки поверхности с плотно упакованной структурой 2×2 (рис. 4), характерной для ненапряженной поверхности Ge(111). Во-вторых, 3D-островки Ge в виде трехгранных пирамид ограничиваются плоскостями типа $\{113\}$ с поверхностной структурой 1×3 [7]. Заметим, что поверхностная структура Ge(113)- 1×3 впервые была обнаружена на ненапряженном германии [28]. В-третьих, в момент формирования плоских вершин 3D-островков Ge при высотах 7 ± 2 нм структура поверхности верхних граней (111) содержит только плотноупакованные элементарные ячейки структур $2 \times [8; 2; \sqrt{3}]$, присущие ненапряженной поверхности Ge(111) [11, 12]. Дальнейшее увеличение размеров островков, а следовательно, и упругих деформаций вызывает перестройку семейства структур $2 \times [8; 2; \sqrt{3}]$ в 7×7 на вершинах 3D-островков [11].

Перечисленные особенности роста Ge на Si(111) не проявляются при эпитаксии Ge на Si(100). В отличие от грани (111), атомарно-чистые поверхности (100) Si и Ge имеют одинаковое атомное строение поверхностных фаз с периодичностью 2×1 при комнатной температуре [24]. В результате реконструкции поверхностные атомы объединяются в пары – димеры, которые выстраиваются в ровные ряды вдоль направлений $\langle 110 \rangle$ (рис. 6а). Такая поверхностная структура вдвое уменьшает число ненасыщенных оборванных связей по сравнению с перестроенной поверхностью. В отличие от грани (111), перестройка поверхности затрагивает только один верхний монослой атомов без участия дополнительных адатомов. Ряды димеров на соседних террасах располагаются взаимно перпендикулярно, как это показано на вставке к рис. 6а.

В процессе роста атомы Ge преимущественно встраиваются в края ступеней, а также формируют двумерные островки высотой в 1 МС на протяженных террасах, подобно росту на поверхности Si(111). Однако, в отличие от ориентации (111), образования нанокластеров здесь не происходит. В элементарных ячейках малого размера 2×1 образование нанокластеров невозможно. Встреча двух адатомов на поверхности Si(100)- 2×1 приводит к образованию устойчивого димера вышележащего слоя. По данным дифрак-

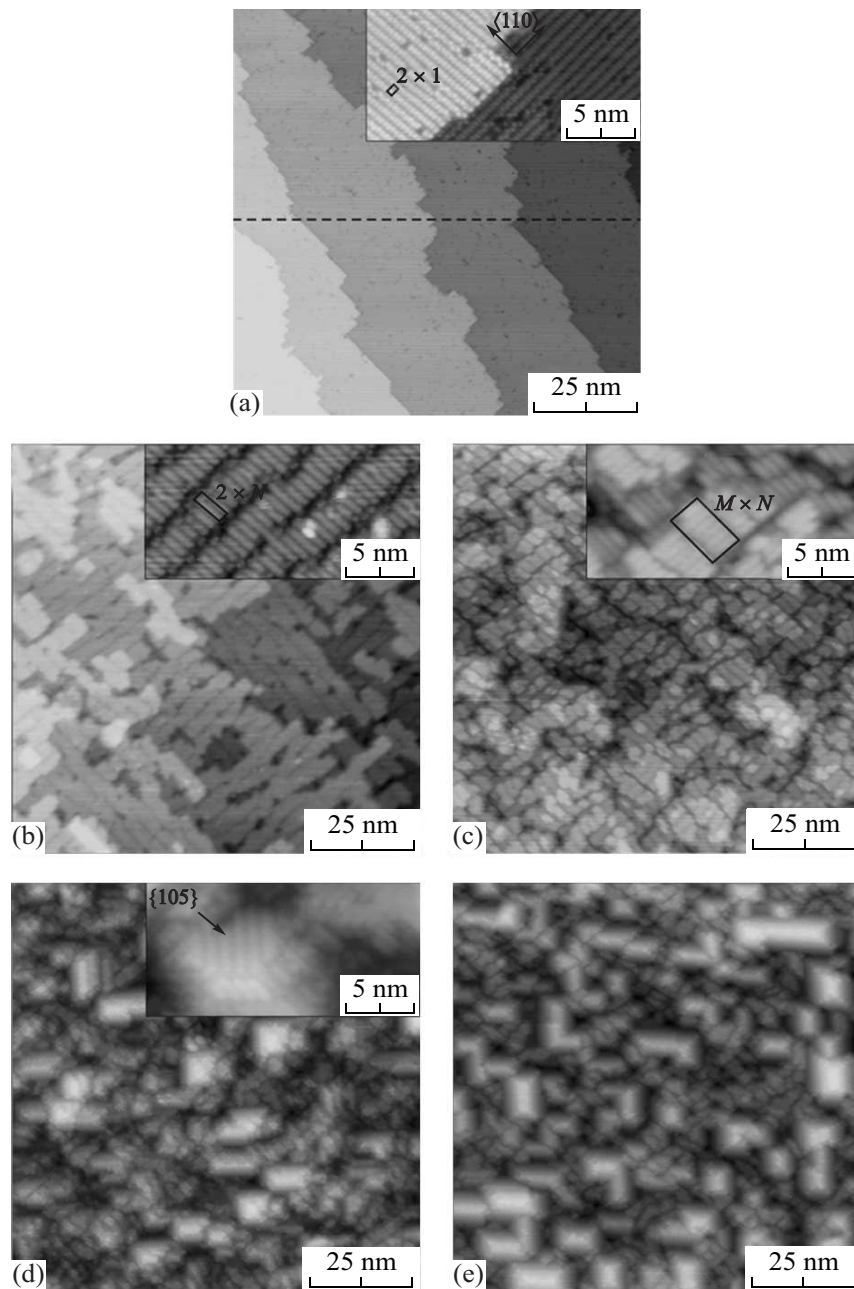


Рис. 6. Изображения СТМ последовательного изменения морфологии поверхности смачивающего слоя Ge на Si(001) при росте со скоростью $1.2 \cdot 10^{-2}$ МС/мин при температуре 400°C . (а) – Исходная чистая поверхность Si(001). На вставке показаны ряды димеров и элементарная ячейка поверхностной структуры 2×1 . (б) – Поверхностная структура Ge $2 \times N$ после нанесения 1 МС Ge. На вставке показана элементарная ячейка $2 \times N$. (с) – Поверхность после нанесения 2 МС Ge. На вставке – структура $M \times N$. (d) – Поверхность после нанесения 3 МС Ge. На вставке – изображение отдельной фasetки $\{105\}$. (е) – Поверхность с хат-кластерами после нанесения 4 МС Ge

ции электронов элементарные ячейки поверхностной структуры 2×1 на основе димеров остаются стабильными до температур $\sim 1200^\circ\text{C}$ [29].

Разнообразное чередование димерных рядов и вакансий в виде отсутствующих димеров является причиной наблюдения различных поверхностных струк-

тур на Si(100) [30–32], в том числе связанных с наличием примесных атомов. При росте Ge на Si(100) многие исследователи [9, 33–37] наблюдали формирование так называемой структуры $2 \times N$ (рис. 6b). При этом элементарная ячейка 2×1 фактически не изменяется. Однако за счет возникновения регулярных

вакансий и их выстраивания в линию, перпендикулярную рядам димеров, на дифракционных картинах появляется новая периодичность со значением N , уменьшающимся от 16 до 8 по мере увеличения покрытия Ge [9]. Таким способом гетеросистема Ge-Si(100) снимает часть напряжений несоответствия [9]. Необходимо отметить, что отсутствие каждого 8-го димера на поверхности свидетельствует о заполнении верхнего слоя атомами Ge только на 88%. Это означает, что при осаждении ровно 1.0 МС Ge после независимой калибровки потока Ge реальная толщина слоя Ge на поверхности достигает приблизительно 1.14 МС. Формально появление структуры $2 \times N$ указывает на процесс частичной релаксации напряжений через перестройку поверхности (как на Si(111)). Однако элементарные ячейки структуры 2×1 не меняются, а имеет место нарастающее накопление вакансий в растущем слое и, следовательно, понижение плотности верхних слоев.

Увеличение покрытия Ge свыше 1 МС приводит к формированию рядов вакансий, перпендикулярных к уже имеющимся (рис. 6с). На поверхности при этом наблюдается так называемая структура $M \times N$ [36–38], благодаря которой ячейки $M \times N$ ограничены канавками из вакансий (вставка к рис. 6с). Шероховатость поверхности нарастает настолько быстро (рис. 6b–с), что не представляется возможным различить на изображении СТМ исходную систему регулярных ступеней (рис. 6а).

Развитие шероховатости приводит к нескольким интересным эффектам. Во-первых, происходит замедление поверхностной диффузии адсорбата, поскольку выстроенные в линию вакансии фактически являются краями ступеней. Забегая вперед, заметим, что плотность будущих “хат-кластеров” [5] практически не изменяется при низкотемпературном росте. По нашим данным плотности хат-кластеров при потоке Ge $1.2 \cdot 10^{-2}$ МС/мин для температур роста 300 и 400 °С отличаются незначительно. Они равны, соответственно, $5.7 \cdot 10^{11}$ и $5.2 \cdot 10^{11}$ ат./см² для покрытия 4 МС. Во-вторых, увеличиваются эффективная толщина СС и шероховатость поверхности за счет накопления вакансий в растущем слое (рис. 7). На данном рисунке нижняя линия с мелкой гофрировкой соответствует профилю поверхности исходной чистой поверхности Si(100) с регулярными монокристаллическими ступенями и рядами димеров. При этом средняя амплитуда шероховатости поверхности не превышает 2 МС. В случае идеального равномерного распределения по поверхности 1 МС напыленного Ge (заштрихованная область на рис. 7) амплитуда шероховатости осталась бы неизменной. Однако

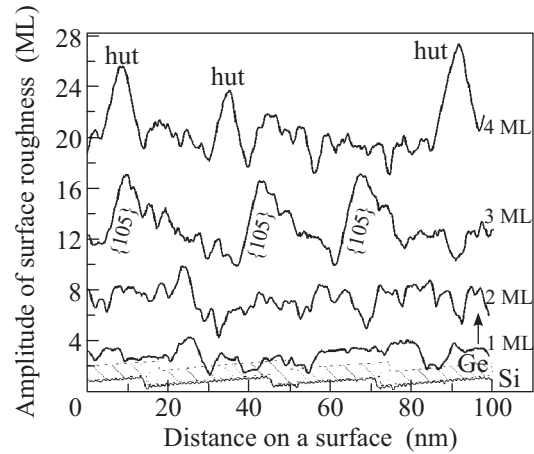


Рис. 7. Экспериментальные профили шероховатости пленки Ge на поверхности в зависимости от толщины напыленного при 400 °С со скоростью $1.2 \cdot 10^{-2}$ МС/мин слоя Ge. Нижняя линия с мелкой гофрировкой соответствует профилю исходной чистой поверхности Si(100), измеренному вдоль пунктирной линии рис. 6а. Равномерно распределенный 1 МС Ge схематично изображен в виде заштрихованной области

измеренные амплитуды шероховатости поверхности (рис. 7) монотонно увеличиваются с нанесением слоев Ge. В-третьих, окруженные вакансионными канавками небольшие участки пленки превращаются в изолированные островки, обладающие возможностью свободной релаксации напряженной решетки. Действительно, увеличение параметра решетки поверхности СС до значений объемного Ge на этой стадии роста было зафиксировано методом дифракции быстрых электронов [39]. Таким образом, при плавном нарастании средней шероховатости поверхности (рис. 8) сохраняется основной структурный элемент поверхности – димер. Как следствие сохраняется и элементарная ячейка 2×1 . Это первая отличительная особенность перестройки поверхностной структуры на Si(100) при эпитаксии Ge.

Для возникновения фасеток {105} и хат-кластеров (рис. 6d и e) необходимо появление 10-градусного отклонения от плоскости (100). Подобное отклонение от (100) в первую очередь реализуется в углублениях и канавках структуры $M \times N$ или вблизи ступеней. Впервые начальное формирование фасеток {105} в ямках было продемонстрировано с помощью СТМ в работах Гольдфарба при осаждении Ge методом газовой эпитаксии [36, 40]. Прямое экспериментальное доказательство формирования одиночных фасеток {105} стало возможным при наблюдении за одним и тем же участком поверхности в процессе роста с помощью СТМ. Если присутствие водорода при га-

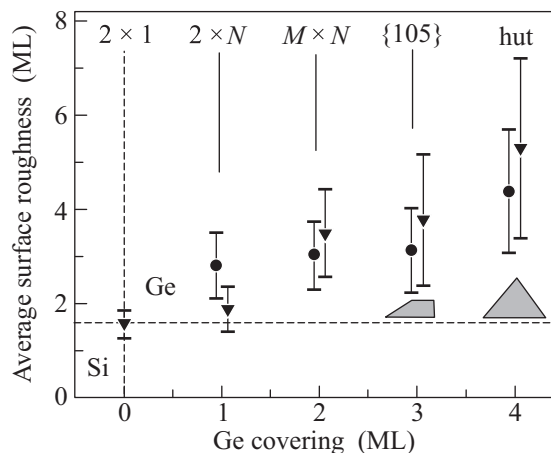


Рис. 8. Зависимость средней шероховатости поверхности Si(100) от покрытия Ge при скорости роста $1.2 \cdot 10^{-2}$ МС/мин. Кружками обозначен рост при 300°C , треугольниками – при 400°C . Стрелками показаны структуры поверхности, соответствующие покрытию Ge

зофазной эпитаксии [36, 40] ставило под сомнение общий механизм зарождения одиночных фasetок {105}, то наличие огранки в ямках [37] и формирование хат-кластеров Ge вблизи углублений подтвердили этот механизм и для режима МЛЭ. Огранка {105} в ямках также наблюдается на изображениях СТМ после МЛЭ и у других авторов [9, 41, 42].

Наши экспериментальные данные, полученные в режиме МЛЭ, тоже подтверждают возникновение одиночных фasetок {105} в углублениях на шероховатой поверхности (рис. 6d). На вставке к рис. 6d отчетливо видна одиночная грань {105} в окружении структуры $M \times N$. Изображение получено благодаря проведению экспериментов в квазиравновесных условиях роста при малых потоках Ge и высокой скорости охлаждения образцов. Это позволило зафиксировать промежуточную стадию формирования одиночной фasetки (зародыша будущей четырехгранной пирамидки – хат-кластера). Таким образом, второй отличительной особенностью роста Ge на Si(100) являются зарождение одиночных фasetок {105} в области вакансионных канавок и огранка СС фasetками {105} преимущественно на глубину СС, происходящая при низких температурах роста в условиях ограниченной поверхностной диффузии. Размеры отдельных фasetок {105} определяются разрастанием соседних хат-кластеров или их фasetок, а также количеством атомов Ge СС вблизи этих фasetок. Благодаря локальной огранке СС фasetками {105} многие исследователи имели возможность наблюдать плотный массив хат-кластеров. Наиболее выразительно хаотичная огранка СС продемонстрирована при низ-

котемпературной (300°C) эпитаксии Ge [38]. Массив неровных слившихся хат-кластеров свидетельствует о беспорядочном зарождении и разрастании фasetок {105}.

Зарождения отдельных фasetок {105} в ямках не было зафиксировано при прямом наблюдении за поверхностью в режиме МЛЭ при скорости осаждения Ge $6 \cdot 10^{-2}$ МС/мин [43, 44]. Как видно, формирование полноценных четырехгранных пирамидок (хат-кластеров) происходило достаточно быстро, за время записи одного кадра изображения СТМ (приблизительно за 1 мин). Следовательно, зафиксировать промежуточные стадии роста хат-кластеров при более высоких скоростях роста (4.2 МС/мин) и относительно медленном последующем охлаждении ($\sim 0.4^\circ\text{C}/\text{c}$) [45] еще проблематичнее. Кроме того, в эксперименте Гольфарба [36] продемонстрировано, что хат-кластер может образоваться прямо на месте углубления. Наиболее часто наблюдается формирование хат-кластеров около ступеней и углублений [36, 40, 46]. Следовательно, часть ямок может быть закрыта хат-кластерами. Необходимо также отметить, что на видеоизображении [44] прекрасно прослеживается превращение части хат-кластеров с квадратным основанием в клиновидные хат-кластеры [43, 44]. Подобный переход подтверждается симметричными графиками изменения концентрации хат-кластеров разного вида, хотя авторы и отрицают превращение пирамидок с квадратным основанием в клиновидные пирамиды с прямоугольным основанием [42, 45].

Отклонение поверхности от (100) также возможно за счет восходящей диффузии адсорбата и переноса массы к энергетически привлекательным центрам роста в верхних слоях, например к участкам поверхности с параметрами решетки, близкими к объемному Ge [39], или к примесным центрам [47]. Такие механизмы, как правило, преобладают при повышенных температурах роста. Увеличение температуры приводит к ускорению диффузионных процессов. Атомы Ge успешно преодолевают диффузионные барьеры на ступенях и на структуре $M \times N$ и конденсируются в более глубоких потенциальных ямах центров роста. Так, эпитаксия Ge при $500\text{--}650^\circ\text{C}$ демонстрирует образование “предпирамид” [48] и зарождение отдельно стоящих хат-кластеров [5, 38]. Концентрация хат-кластеров резко падает, поскольку отдельно возникающие пирамидки не соприкасаются гранями {105} и не мешают росту друг друга. По нашим экспериментальным данным при потоке Ge $1.2 \cdot 10^{-2}$ МС/мин концентрация хат-кластеров при температуре роста 500°C и покрытии 4 МС уменьшается до $1 \cdot 10^{11}$ ат./см².

Высокая скорость роста фасеток {105} объясняется низкими диффузионными барьерами на этой грани [49, 50]. Кроме того, формирование фасеток {105} сопровождается локальным переходом атомов Ge из исходных плоскостей {100} в {105}. Это свидетельствует о наличии более глубоких потенциальных ям для встраивания Ge на гранях {105}.

В заключение отметим, что наблюдение осцилляций при типичных для МЛЭ скоростях роста Ge на Si(111), вероятно, обеспечивается зарождением и слиянием нанокластеров в полуячейках 7×7 без образования двумерных островков.

Максимальная толщина СС Ge в ЗБС на поверхности Si(111), с одной стороны, определяется структурой ступеней краев островков, а с другой – моментом формирования поверхностной структуры Ge(111)- 5×5 под действием напряжений несоответствия. В режиме многослойного роста толщина СС определяется структурой ступеней и не превышает ЗБС. При высоких температурах роста (500–600 °С) поверхностная структура 5×5 образуется при меньшем покрытии Ge и толщина СС уменьшается.

Последовательное формирование более глубоких потенциальных ям ($E_k < E_c < E_{3c}$) в процессе роста определяет направленность перераспределения адсорбата и текущую морфологию ростовой поверхности (111). Увеличивая скорость роста, можно подавлять стадии трехбислойного роста и формирования двумерных островков.

С большой вероятностью зарождение 3D-островков Ge на смачивающем слое Ge(111) происходит в местах наименьшей деформации кристаллической решетки Ge.

Смена поверхностных структур $2 \times [8; 2; \sqrt{3}] \rightarrow 7 \times 7 \rightarrow 5 \times 5$ на подложках (111) и $2 \times 1 \rightarrow 2 \times N \rightarrow M \times N$ на (100) в процессе формирования СС сопровождается плавным понижением плотности растущей пленки и является своеобразным индикатором изменения напряженного состояния гетеросистемы Ge–Si. Переход от СС к трехмерному росту за счет образования новых фасеток обеспечивает следующий этап релаксации упругих деформаций на боковых гранях трехмерных островков.

В процессе эпитаксии Ge на Si(100) происходит плавное нарастание шероховатости поверхности. При этом основной структурный элемент поверхности – димер и элементарная ячейка 2×1 сохраняются до появления фасеток {105}. Зарождение одиночных фасеток {105} в вакансионных канавках шероховатой поверхности приводит к огранке смачивающего слоя преимущественно в глубину и к формированию плот-

ного массива хат-кластеров при низких температурах роста (300–400 °С).

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта # 12-02-01128-а и интеграционного проекта совместного конкурса НАН Украины – СО РАН.

1. T. Narusawa and W. M. Gibson, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1459 (1981).
2. T. Ichikawa and S. Ino, *Surf. Sci.* **136**, 267 (1984).
3. M. Asai, H. Ueba, and C. Tatsuyama, *J. Appl. Phys.* **58**, 2577 (1985).
4. S. M. Pintus, S. I. Stenin, A. I. Toropov, et al., *Thin Solid Films.* **151**, 275 (1987).
5. Y.-W. Mo, D. V. Savage, B. S. Swartzentruber, et al., *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1020 (1990).
6. G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber et al., *Phys. Rev. Lett.* **49**, 57 (1982).
7. U. Koehler, O. Jusko, G. Pietsch et al., *Surf. Sci.* **248**, 321 (1991).
8. N. Motta, A. Sgarlata, R. Calarco, et al., *Surf. Sci.* **406**, 254 (1998).
9. B. Voigtlaender, *Surf. Sci. Rep.* **43**, 127 (2001).
10. S. A. Teys and B. Z. Olshanetsky, *Phys. Low-Dimen. Struct.* **1/2**, 37 (2002).
11. С. А. Тийс, Е. М. Труханов, А. С. Ильин и др., *Письма в ЖЭТФ* **92**, 429 (2010).
12. С. А. Тийс, Е. М. Труханов, А. С. Ильин и др., *Изв. РАН, Сер. физическая* **75**, 1116 (2011).
13. WSXM free software at www.nanotec.es.
14. I. Horcas, R. Fernandez, J. M. Gomez-Rodriguez et al., *Rev. Scient. Instrum.* **78**, 013705 (2007).
15. S. A. Teys, A. B. Talochkin, and B. Z. Olshanetsky, *J. Cryst. Growth.* **311**, 3898 (2009).
16. С. А. Тийс, А. Б. Талочкин, К. Н. Романюк, Б. З. Ольшанецкий, *ФТТ* **46**, 83 (2004).
17. Ю. Б. Болховитянов, С. Ц. Кривошапов, А. И. Никифоров и др., *ФТТ* **46**, 67 (2004).
18. К. Н. Романюк, С. А. Тийс, Б. З. Ольшанецкий, *ФТТ* **48**, 1716 (2006).
19. O. P. Pchelyakov, V. A. Markov, A. I. Nikiforov et al., *Thin Solid Films.* **306**, 299 (1997).
20. B. Voigtlaender, A. Zinner, and T. Weber, *Rev. Sci. Instrum.* **67**, 2568 (1996).
21. B. Voigtlaender and T. Weber, *Phys. Rev. B* **54**, 7709 (1996).
22. B. Z. Olshanetsky and S. A. Teys, *Surf. Sci.* **230**, 184 (1990).
23. S. A. Teys, K. N. Romanyuk, R. A. Zhachuk, and B. Z. Olshanetsky, *Surf. Sci.* **600**, 4878 (2006).

24. К. Оура, В.Г. Лифшиц, А.А. Саранин и др., *Введение в физику поверхности*, М.: Наука, 2006, 490 с. [K. Oura, V.G. Lifshits, A.A. Sarann et al., *Surface Science An Introduction*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2003].
25. T. Ichikawa and S. Ino, *Surf. Sci.* **105**, 395 (1981).
26. V. Cherepanov and B. Voigtlaender, *Phys. Rev. B* **69**, 125331 (2004).
27. P. M. J. Maree, K. Nakagawa, F. M. Mulders et al., *Surf. Sci.* **191**, 305 (1987).
28. B. Z. Olshanetsky, V. I. Mashanov, and A. I. Nikiforov, *Surf. Sci.* **111**, 429 (1981).
29. Б.З. Ольшанецкий, А.В. Ржанов, Ф.Л. Эдельман, *ФТП* **7**, 2312 (1973).
30. A. E. Dolbak, B. Z. Olshanetsky, S. I. Stenin et al., *Surf. Sci.* **218**, 37 (1989).
31. P. W. Murray, R. Lindsay, F. M. Leibsle et al., *Phys. Rev. B* **54**, 13468 (1996).
32. W. Kim, H. Kim, G. Lee et al., *Phys. Rev. Lett.* **89**, 106102 (2002).
33. Y.-W. Mo and M. G. Lagally, *J. Cryst. Growth.* **111**, 876 (1991).
34. X. Chen, F. Wu, Z. Zhang et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 850 (1994).
35. F. Wu, X. Chen, Z. Zhang et al., *Phys. Rev. Lett.* **74**, 574 (1995).
36. I. Goldfarb, P. T. Hayden, J. H. G. Owen et al., *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3959 (1997).
37. A. Rastelli, H. von Kanel, G. Albini et al., *Phys. Rev. Lett.* **90**, 216104 (2003).
38. M. Tomitori, K. Watanabe, M. Kobayashi et al., *Appl. Surf. Sci.* **76/77**, 323 (1994).
39. А.И. Никифоров, В.А. Черепанов, О.П.Пчеляков, *Поверхность* **6**, 74 (2002).
40. I. Goldfarb, P. T. Hayden, J. H. G. Owen et al., *Phys. Rev. B* **56**, 10459 (1997).
41. D. E. Jesson, M. Kastner, and B. Voigtlander, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 330 (2000).
42. L. V. Arapkina and V. A. Yuryev, *Nanoscale Research Letters.* **6**, 345 (2011).
43. M. Kastner and B. Voigtlander, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2745 (1999).
44. <http://www.fz-juelich.de/video/voigtlaender>.
45. L. V. Arapkina and V. A. Yuryev, *Phys. Rev. B* **82**, 045315 (2010).
46. I. Goldfarb, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 025501 (2005).
47. R. Butz and H. Luth, *Thin Solid Films.* **336**, 69 (1998).
48. A. Vailionis, B. Cho, G. Glass et al., *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3672 (2000).
49. F. Montalenti, D. B. Migas, F. Gamba et al., *Phys. Rev. B* **70**, 245315 (2004).
50. L. Huang, G.-H. Lu, F. Liu et al., *Surf. Sci.* **601**, 3067 (2007).