

на правах рукописи



САФОНОВ Кирилл Леонидович

ИССЛЕДОВАНИЕ ЗАРОЖДЕНИЯ И РОСТА НАНОКЛАСТЕРОВ  
ПРИ МОЛЕКУЛЯРНО–ПУЧКОВОЙ ЭПИТАКСИИ  
В СИСТЕМАХ SiC/Si, Ge/Si, InAs/GaAs  
МЕТОДОМ КОМПЬЮТЕРНОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

специальность  
01.04.07 – физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2008

Работа выполнена в Государственном образовательном учреждении  
высшего профессионального образования «Санкт-Петербургский  
государственный политехнический университет»

Научный руководитель: заслуженный деятель науки РФ,  
доктор физико-математических наук,  
профессор  
Трушин Юрий Владимирович

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,  
профессор  
Лебедев Александр Александрович

доктор физико-математических наук,  
профессор  
Козловский Виталий Васильевич

Ведущая организация: Московский государственный  
институт электронной техники  
(Технический Университет),  
Зеленоград

Защита состоится «18» февраля 2009 г. в 16 часов на заседании  
диссертационного совета Д 212.229.29 при ГОУ ВПО «Санкт-Петербургский  
государственный политехнический университет» по адресу: 195251, Санкт-  
Петербург, Политехническая улица, д. 29.

С диссертацией можно ознакомиться в фундаментальной библиотеке ГОУ ВПО  
«Санкт-Петербургский государственный политехнический университет».

Автореферат разослан «\_\_» \_\_\_\_\_ 2009 г.

Ученый секретарь диссертационного совета  
кандидат физико-математических наук



Ермакова Н. Ю.

## Общая характеристика работы

Актуальность темы. Полупроводниковые нанокластеры имеют большое значение в современной физике твердого тела, микро- и оптоэлектронной технологии. Процессы зарождения и роста нанокластеров очень часто протекают эпитаксиальном росте слоя (пленки) на поверхности подложки для различных материалов. При этом итоговое состояние материала – структура и однородность кристаллической решетки, присутствие внутренних упругих напряжений и дефектов вблизи интерфейса подложка–пленка во многом определяется структурой и конфигурацией системы нанокластеров, развивающихся на начальных стадиях роста. Поскольку технологическая проблема выращивания высококачественных, бездефектных гетероструктур сейчас стоит достаточно остро, задача изучения ранних стадий эпитаксиального роста, и, в частности, процессов эволюции нанокластеров представляется весьма актуальной.

В последнее время замечен значительный рост интереса к гетероструктурам с квантовыми точками – полупроводниковыми областями с пространственным ограничением носителей заряда во всех трех направлениях, в роли которых при соответствующем выборе материалов и условий роста выступают нанокластеры. Квантовые точки имеют большое значение благодаря возможности их использования для улучшения многих существующих и создания принципиально новых типов микро- и оптоэлектронных приборов. Для эффективного использования таких возможностей необходимо, чтобы выращенные квантовые точки удовлетворяли достаточно жестким требованиям к их размеру, форме, плотности, однородности, допустимому уровню дефектов. Эта задача полностью не решена, что также подчеркивает актуальность исследований роста нанокластеров для физики полупроводников и электронной технологии.

В настоящее время компьютерное моделирование представляет собой мощный и гибкий инструмент теоретической физики. Во многих ситуациях оно оказывается единственным пригодным для применения подходом. Компьютерное моделирование позволяет получать точную и подробную информацию о протекающих физических процессах, что делает возможным не просто решение физических задач, но и детальное изучение их различных особенностей и эффектов. Эти возможности являются существенными для разработки, развития и оптимизации различных технологических процессов высокой сложности, например, таких, как процессы эпитаксиального роста полупроводников.

### Цели работы:

1. исследование зарождения и роста плоских нанокластеров SiC на поверхности Si при молекулярно-пучковой эпитаксии;
2. определение критерия перехода от двумерного к трехмерному росту и механизма трехмерного роста нанокластеров SiC на кремнии;

3. исследование роста трехмерных нанокластеров в системах Ge/Si и InAs/GaAs при молекулярно-пучковой эпитаксии;
4. определение максимального размера пирамидальных нанокластеров Ge на кремнии.

Научная новизна работы определяется следующим:

1. разработаны оригинальные физические и компьютерные модели зарождения и роста плоских и объемных нанокластеров SiC на Si;
2. впервые путем численного моделирования исследована эволюция нанокластеров в полупроводниковых системах SiC/Si, Ge/Si и InAs/GaAs;
3. предложен оригинальный критерий перехода от двумерного к трехмерному росту и механизм трехмерного роста нанокластеров SiC на кремнии;
4. предложен оригинальный критерий перехода от пирамидальной формы нанокластеров Ge на кремнии к куполообразной форме.

Практическая значимость работы обусловлена тем, что полученные с помощью численного моделирования новые данные о физических механизмах и кинетических процессах, протекающих в ходе эволюции системы нанокластеров при молекулярно-пучковой эпитаксии, а также предложенные физические критерии могут быть использованы для разработки новых и улучшения существующих методов создания полупроводниковых гетероструктур с нужными характеристиками.

Апробация результатов работы. Основные результаты работы обсуждались на семинарах в Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербургском Государственном Политехническом Университете и Техническом Университете Ильменау (Германия), а также на следующих конференциях: V and VI International Workshops on Nondestructive Testing and Computer Simulations in Science and Engineering, Saint-Petersburg, Russia (2001, 2002); IV Moscow International ITEP School of Physics “Modern Condensed Matter Physics Experimental Methods and Devices, Related Topics”, Zvenigorod, Russia (2001); European Conference on Silicon Carbide and Related Materials, Linkoping, Sweden (2002); 16<sup>th</sup> European Material Research Society Fall Meeting, Warsaw, Poland (2003); 48. Internationales Wissenschaftliches Kolloquium, Technische Universitat Ilmenau, Ilmenau, Germany (2003); IV и VI Российские конференции по физике полупроводников “Полупроводники-2003” и “Полупроводники-2005”, Санкт-Петербург, Россия (2003, 2005); VI International Seminar on Silicon Carbide and Related Materials, Velikiy Novgorod, Russia (2004); VII International Moscow ITEP School of Physics “Nuclear Physics, Physics and Chemistry of Condensed Matter”, Otradnoe, Russia (2004); European Material Research Society Spring Meeting, Strasbourg, France (2004); International Conference on Silicon Carbide and Related Materials, Pittsburgh, Pennsylvania, USA (2005).

По теме диссертации опубликовано 10 печатных работ (их них 4 в

русских и 2 в иностранных реферируемых научных журналах) и сделано 13 докладов на конференциях.

#### Положения, выносимые на защиту.

1. Процессы зарождения и роста плоских и трехмерных нанокластеров SiC на Si, Ge на Si, InAs на GaAs в ходе молекулярно-пучковой эпитаксии могут быть успешно описаны с помощью предложенной физической модели.
2. Момент перехода от плоского к трехмерному росту нанокластеров SiC на Si определяется критическим отношением среднего расстояния между кластерами к их среднему латеральному размеру.
3. Максимальный латеральный размер пирамидальных нанокластеров Ge на Si, образующихся при молекулярно-пучковой эпитаксии, составляет 50 нм.

Объем и структура диссертации. Диссертация состоит из введения, трех глав и заключения, включает 28 рисунков, 1 таблицу и список литературы из 275 наименований, полный объем диссертации 130 страниц.

#### Содержание работы

Во введении кратко обоснована актуальность темы исследования, сформулированы цели работы, отмечены её научная новизна и практическая ценность, изложены основные положения, выносимые на защиту.

Первая глава носит обзорный характер, в ней представлено современное состояние методов получения полупроводниковых нанокластеров. Дан обзор теоретических и экспериментальных исследований, проводимых в этой области. Представлено краткое описание методов компьютерного моделирования, применяемых в настоящее время для исследования твердотельных структур и ростовых процессов.

В параграфе 1.1 описано развитие исследований в области выращивания полупроводниковых наноструктур, и, в частности, нанокластеров в различных полупроводниковых системах.

В параграфе 1.2 перечислены возможности применения нанокластеров в современной микроэлектронике. Представлены наиболее перспективные направления исследований новых типов электронных приборов на основе нанокластеров. Сделан вывод о том, что нанокластеры играют важную роль в современной полупроводниковой технологии, и их значение будет возрастать с дальнейшим развитием методов получения полупроводниковых структур.

Параграф 1.3 посвящен обзору современных методов выращивания нанокластеров. Рассмотрены различные особенности эпитаксиального роста, важные в свете имеющихся требований к качеству нанокластеров и их структурным параметрам. Описано влияние упругих напряжений, возникающих

при гетерогенном росте вследствие несоответствия параметров решетки материалов. Отмечена возможность использования явлений самоорганизации для получения однородных массивов нанокластеров на поверхности.

В параграфе 1.4 описаны современные методы исследования процесса роста нанокластеров. Представлен краткий обзор различных экспериментальных методов, как электронных, так и оптических. Кроме того, изложены основные теоретические методы и подходы, используемые в настоящее время для анализа и интерпретации экспериментальных данных. Описаны современные методы компьютерного моделирования, которые эффективно применяются в данной области. Обоснован выбор метода кинетических уравнений для исследования процессов зарождения и роста нанокластеров при молекулярно-пучковой эпитаксии.

В параграфе 1.5 сформулированы задачи и цели диссертации.

Вторая глава посвящена исследованиям различных аспектов зарождения и роста нанокластеров SiC на Si(111) при молекулярно-пучковой эпитаксии.

В параграфе 2.1 представлена физическая модель эволюции плоских нанокластеров SiC на поверхности Si при осаждении атомов углерода. Модель основывается на следующих предположениях:

1. поверхность Si однородна и не содержит дефектов;
2. на поверхности могут присутствовать подвижные адатомы углерода и неподвижные комплексы  $(\text{SiC})_n$ , состоящие из  $n$  пар Si-C ( $n \geq 2$ ): нестабильные зародыши кластеров (при  $n < n_{CR}$ ) и стабильные кластеры ( $n \geq n_{CR}$ ) (здесь  $n_{CR}$  – критический размер образования кластера);
3. при осаждении на свободный участок подложки атомы углерода адсорбируются на поверхность и начинают диффундировать по ней с эффективным коэффициентом поверхностной диффузии  $D_C$ ;
4. при столкновении двух диффундирующих адатомов углерода происходит образование зародыша кластера  $(\text{SiC})_2$ , состоящего из двух пар Si-C. При этом соответствующие атомы Si находятся в окружающей области верхнего атомного слоя подложки;
5. при столкновении движущегося адатома углерода с комплексом  $(\text{SiC})_n$  адатом и соответствующий атом Si из верхнего слоя подложки присоединяются к комплексу, в результате чего образуется комплекс  $(\text{SiC})_{n+1}$ ;
6. зародыши кластеров  $(\text{SiC})_n$  ( $n < n_{CR}$ ) являются нестабильными и могут диссоциировать с частотой  $\chi_n$ . В результате диссоциации образуется комплекс  $(\text{SiC})_{n-1}$ , и на поверхности вновь появляется мобильный адатом углерода. При этом соответствующий атом Si присоединяется к верхнему атомному слою подложки;
7. стабильные кластеры SiC ( $n \geq n_{CR}$ ) принимают форму плоских цилиндров радиуса  $R$ .

Обозначая поверхностную плотность адатомов углерода как  $C_1(t)$ ,

плотность нестабильных комплексов (зародышей) как  $C_n(t)$  при  $2 \leq n < n_{CR}$ , функцию распределения стабильных кластеров ( $n \geq n_{CR}$ ) по радиусам как  $f(R, t)$ , можно построить систему кинетических уравнений, описывающих изменение во времени этих величин [1]:

$$\frac{dC_1(t)}{dt} = g_C(1 - \theta(t)) - \sum_{n=1}^{n_{CR}-1} \alpha_n D_C C_1 C_n - \int_{R_{CR}}^{\infty} \alpha(R) D_C C_1 f(R, t) dR + \sum_{n=2}^{n_{CR}-1} \chi_n C_n, \quad (1)$$

$$\frac{dC_n(t)}{dt} = [\alpha_{n-1} D_C C_1 C_{n-1} - \alpha_n D_C C_1 C_n] + [\chi_{n+1} C_{n+1} - \chi_n C_n], \quad 2 \leq n < n_{CR}, \quad (2)$$

$$\frac{\partial f(R, t)}{\partial t} = W(t) \cdot \delta(R - R_{CR}) - \frac{\partial}{\partial R} \left[ f(R, t) \frac{dR(t)}{dt} \right], \quad (3)$$

$$W(t) = \alpha_{n_{CR}-1} D_C C_1(t) C_{n_{CR}-1}(t), \quad (4)$$

$$\frac{dR(t)}{dt} = \frac{S_{eff}}{2\pi R} \alpha(R) D_C C_1, \quad (5)$$

где

$$D_C = D_0 \exp\left(-\frac{E_m}{k_B T}\right), \quad \chi_n = \nu_n \exp\left(-\frac{E_n^z}{k_B T}\right), \quad n < n_{CR}, \quad \chi_{n_{CR}} = 0,$$

$g_C$  – скорость осаждения углерода;  $\theta(t) = \int_{R_{CR}}^{\infty} f(R, t) R^2 dR$  – доля поверхности

подложки, занятая кластерами;  $R_{CR} = \sqrt{\frac{n_{CR}}{\pi} S_{eff}}$  – радиус кластера критического размера (состоящего из  $n_{CR}$  пар Si-C);  $S_{eff}$  – эффективный вклад одной пары Si-C в величину площади кластера;  $\alpha_1$  – параметр взаимодействия двух адатомов углерода;  $\alpha_n$ ,  $2 \leq n < n_{CR}$  – параметр взаимодействия адатома углерода с нестабильным комплексом (SiC) $_n$ ;  $\alpha(R)$  – параметр взаимодействия адатома углерода с кластером радиуса  $R$ ;  $W(t)$  – интенсивность зарождения кластеров критического размера;  $D_0$  и  $E_m$  – предэкспоненциальный множитель и энергия активации миграции адатомов углерода;  $\nu_n$  – эффективная частота колебаний частиц в составе зародыша кластера;  $E_n^z$  – энергетический барьер диссоциации зародыша (SiC) $_n$ ;  $k_B$  – постоянная Больцмана;  $T$  – температура подложки.

Основные структурные параметры системы нанокластеров:

– поверхностная плотность  $C(t) \equiv \int_{R_{CR}}^{\infty} f(R, t) dR$ ;

– средний радиус основания  $\langle R \rangle(t) \equiv \frac{1}{C(t)} \int_{R_{CR}}^{\infty} f(R, t) R dR$ .

Для решения системы кинетических уравнений (1) – (5) разработана численная модель и реализована компьютерная программа, использующая метод Гира [2]. Проведены расчеты, соответствующие экспериментальным условиям роста работы [3] (скорости осаждения  $g_c$ , температуре подложки  $T$ ). В результате получена зависимость от времени функции распределения нанокластеров по размерам  $f(R,t)$ . На рис. 1 показаны экспериментальная и расчетная функции распределения для момента времени  $t = 55$  с. Согласие результатов расчетов и экспериментальных данных, полученных методом просвечивающей электронной микроскопии, подтверждает, что предложенная физическая модель адекватно описывает процессы, происходящие на поверхности при молекулярно-пучковой эпитаксии.

Параграф 2.2 посвящен исследованию температурной зависимости поверхностной плотности стабильных нанокластеров SiC на кремнии. Такая зависимость, полученная в работе [4] в результате обработки данных атомно-силовой микроскопии, показана на рис. 2. Из рис. 2 видно, что зависимость  $C(T)$  претерпевает разрыв около точки  $T = 860$  °С. Известно, что вблизи этих температур происходит перестройка поверхности Si(111), при которой более «рыхлая» структура приповерхностных атомных слоев, описываемая элементарной ячейкой (7x7), при нагреве переходит в более плотную и однородную структуру с ячейкой (1x1) [5]. Такая перестройка поверхности может приводить к изменению ее энергетических и кинетических параметров.

Для исследования влияния перестройки поверхности на ход роста нанокластеров выполнена серия численных расчетов, использующих разработанную физическую модель. В ходе этих расчетов независимо для двух температурных диапазонов варьировались величины физических параметров, определяющих скорость диффузии адатомов углерода, частоту диссоциации зародышей SiC, а также взаимодействие адатомов углерода с зародышами и стабильными кластерами SiC. При этом критерием физической достоверности являлось согласие с экспериментальными данными. В результате установлено,

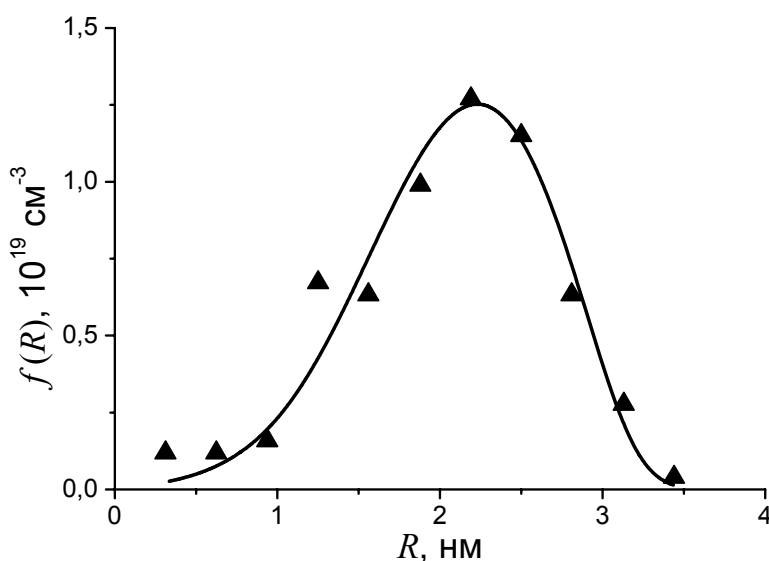


Рис. 1. Функция распределения плоских нанокластеров SiC на Si по размерам ( $g_c = 5.5 \cdot 10^{13} \text{ ат/см}^2 \text{ с}$ ,  $T = 660$  °С,  $t = 55$  с);  $\blacktriangle$  – эксперимент [3], линия – расчет.



что уменьшение значения эффективной частоты колебаний  $\nu_n$  с  $5 \cdot 10^{12} \text{ с}^{-1}$  до  $1 \cdot 10^{12} \text{ с}^{-1}$  наиболее адекватно описывает переход поверхностной структуры  $(7 \times 7) \rightarrow (1 \times 1)$  в рамках используемой физической модели. При этом хорошее согласие рассчитанной температурной зависимости поверхностной плотности кластеров (рис. 2) с экспериментальными данными подтверждает предположение, что нуклеация на поверхности  $(7 \times 7)$  менее интенсивна, что объясняется ее нерегулярной структурой, меньшим числом ненасыщенных связей Si, а также присутствием внутренних упругих напряжений, возникающих в верхних атомных слоях при их перестройке.

В параграфе 2.3 представлены результаты изучения трехмерного роста нанокластеров SiC на Si. Экспериментальные исследования показали, что в некотором диапазоне условий роста (потоке и длительности осаждения, температуре роста) на поверхности Si вырастают трехмерные нанокластеры SiC, имеющие близкую к конусообразной форму.

Предположим, что спустя некоторое время после начала роста на поверхности Si имеются плоские нанокластеры SiC со средним радиусом  $\langle R \rangle$  и средним расстоянием  $\langle L \rangle$  между ними:  $\langle L \rangle = C^{-1/2}$ . Будем считать, что трехмерный рост возможен в случае, когда упругая энергия частицы  $E_j$  в составе кластера (области  $j=1$ ) меньше, чем в окружающей области подложки (области  $j=2$ ). Определим  $E_j$  в виде [1]:

$$E_j = \Delta\Omega_j \text{Sp}\sigma_j, \quad (7)$$

где  $\Delta\Omega_j$  – релаксация объема области  $j$ ,  $\sigma_j$  – тензор упругих напряжений в области  $j$ . Учитывая зависимость величины  $\text{Sp}\sigma_j$  от доли поверхности, заполненной нанокластерами, и подставляя известные значения упругих констант материалов, получим условие начала трехмерного роста в виде [1]:

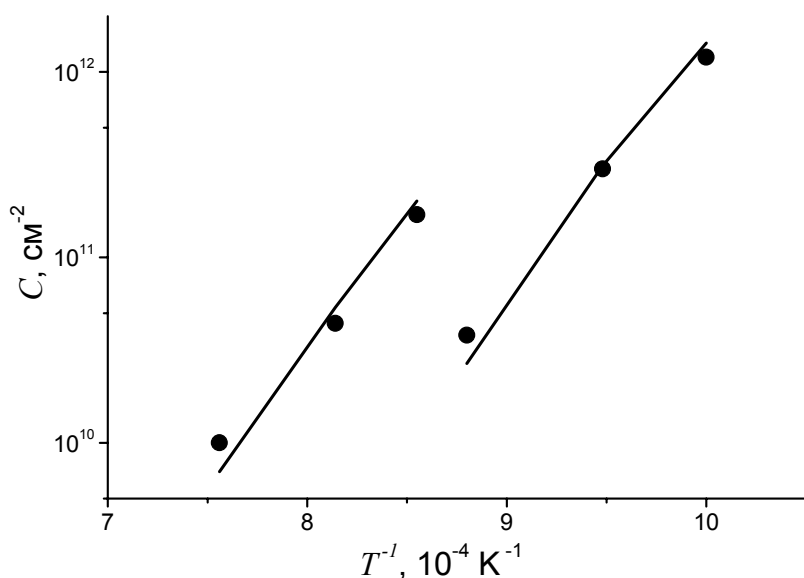


Рис.2. Температурная зависимость поверхностной плотности нанокластеров. ( $g_c = 1.83 \cdot 10^{14} \text{ ат/см}^2 \text{ с}$ ,  $t = 600 \text{ с}$ ); ● – эксперимент [4], линия – расчет.

$$\langle L \rangle / \langle R \rangle < 3. \quad (8)$$

В ходе объемного роста атомы заполняют второй и последующие атомные слои нанокластеров. Это происходит за счет перемещения атомов по поверхности кластера от основания (первого атомного слоя) к вершине. В настоящее время общепризнанно [6], что такое движение происходит под действием внутренних упругих напряжений, возникающих в системе из-за несоответствия параметров решеток подложки и растущего материала.

Опишем трехмерный рост нанокластера конической формы как серию элементарных скачков частиц вверх в следующие атомные слои. Рассмотрим частицу, находящуюся в  $i$ -том атомном слое кластера. Учитывая, что упругие напряжения снижают барьер активации миграции, запишем энергию активации миграции частицы в виде [7]:

$$E_m(i) = E_m^0 - E_s(i), \quad (9)$$

где  $E_m^0$  – энергия активации поверхностной миграции частицы в ненапряженном материале;  $E_s(i)$  – вклад упругой энергии в слое  $i$ . Величина  $E_s(i)$  уменьшается с ростом  $i$ , так как верхушка кластера более свободна и упругие напряжения, максимальные вблизи его основания, спадают к вершине [8]. Также, упругая энергия кластера в целом увеличивается по мере увеличения размера кластера [9]. Поэтому, запишем выражение для  $E_s$  в виде [8,9]:

$$E_s(i, r_1) = \Lambda \cdot \left( 1 - \exp\left(-\frac{r_1}{\beta}\right) \right) \cdot \exp\left(-\gamma \frac{i}{r_1}\right), \quad (10)$$

где  $r_1$  – радиус первого атомного слоя кластера,  $\Lambda$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  – параметры.

Запишем изменение со временем величины площади  $i$ -того слоя  $S_i$  за счет прихода частиц из предыдущего слоя  $i-1$  и их ухода в последующий слой  $i+1$ . При этом учитываем диффузию частиц по поверхности кластера, т.е. перемещение только тех частиц, которые расположены на краю атомных слоев. Тогда выражение для изменения  $S_i = \pi r_i^2$  примет вид:

$$\frac{dS_i}{dt} = N_{i-1} S_{eff} \nu \exp\left(-\frac{E_m(i-1)}{k_B T}\right) - N_i S_{eff} \nu \exp\left(-\frac{E_m(i)}{k_B T}\right), \quad i > 1, \quad (11)$$

где  $r_i$  – радиус слоя  $i$ ;  $N_i = 2\pi r_i / 2a_{SiC}$  – число частиц, находящихся на краю слоя  $i$  и способных диффундировать,  $\nu$  – частота их колебаний. Отметим, что выражение (11) не описывает изменение во времени радиуса первого слоя  $r_1(t)$ .

В результате обработки изображений атомно-силовой микроскопии поверхности Si с расположенными на ней кластерами SiC построены зависимости от времени среднего радиуса основания  $\langle R \rangle$  и средней высоты  $\langle H \rangle$  конических нанокластеров SiC на Si (рис. 3) [см. экспериментальную часть

работы А6]. На рис. 3 видна стадия зарождения кластеров (0 – 10 с) и стадия их последующего монотонного роста.

Для проверки механизма трехмерного роста кластеров проведены численные расчеты, в которых зависимость радиуса основания кластера  $r_1(t)$  задана согласно экспериментальным данным об эволюции  $\langle R \rangle$  (рис. 3). В результате получены зависимости радиусов атомных слоев  $r_i(t)$ . По этим данным построена зависимость от времени высоты кластера  $H = h_0 \cdot i_{\max}$  (рис. 4), где  $h_0$  – толщина атомного слоя материала;  $i_{\max}$  – номер самого верхнего непустого атомного слоя:  $i_{\max} = \max i |S_i > 0$ . На рис. 4 видно хорошее соответствие расчетной зависимости  $H(t)$  и экспериментальных данных об эволюции средней высоты нанокластеров  $\langle H \rangle$ , что подтверждает адекватность предложенного механизма трехмерного роста нанокластеров.

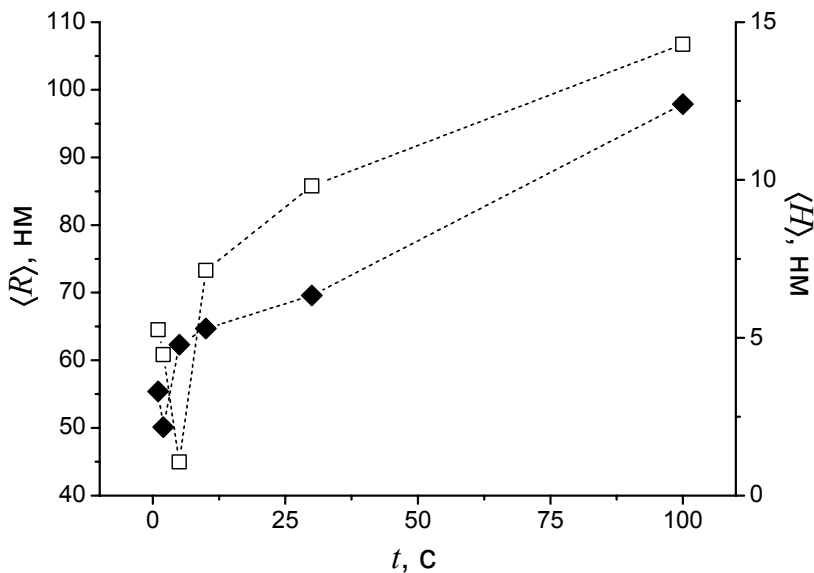


Рис. 3. Экспериментальные зависимости от времени среднего радиуса основания  $\langle R \rangle$  ( $\square$ ) и средней высоты  $\langle H \rangle$  ( $\blacklozenge$ ) конических нанокластеров SiC на Si(111) ( $g_C = 5 \cdot 10^{13}$  ат/см<sup>2</sup>с,  $T = 925$  °С).

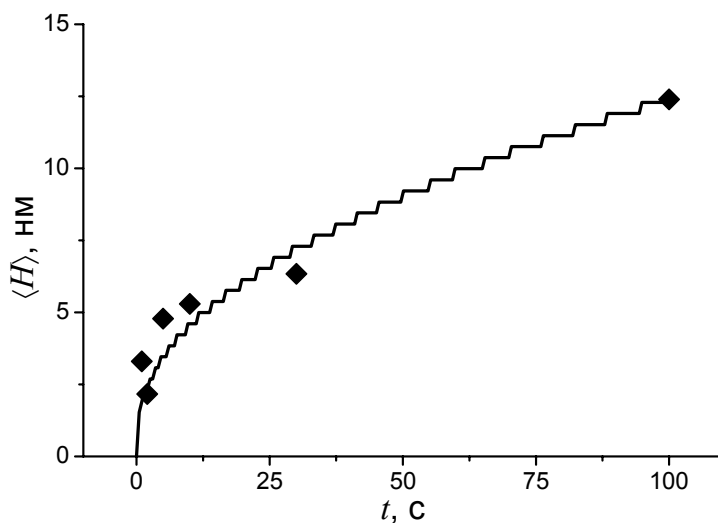


Рис. 4. Зависимость от времени средней высоты конических нанокластеров SiC на Si(111);  $\blacklozenge$  – эксперимент, линия – расчет.

Третья глава посвящена исследованию роста нанокластеров Ge на Si(100) и InAs на GaAs(100) в процессе молекулярно-пучковой эпитаксии.

В параграфе 3.1 представлена физическая модель эволюции нанокластеров в системах Ge/Si и InAs/GaAs. Многочисленные экспериментальные исследования [6] показали, что в этих системах рост нанокластеров происходит на поверхности смачивающего слоя – упруго-напряженной пленки осаждаемого материала, которая повторяет кристаллографическую структуру подложки и имеет толщину около 1.7 монослоя для InAs/GaAs(100) и около 3 монослоев для Ge/Si(100). Процесс роста является механизмом частичного снятия (релаксации) упругой энергии, вызванной несоответствием решеток осаждаемого материала и подложки, которое составляет около 4% для Ge/Si и 7% для InAs/GaAs.

В результате экспериментальных исследований [10] было установлено, что стабильные кластеры в обеих системах принимают форму пирамиды с основанием, близким к квадратному. На начальных этапах роста кластеры сохраняют свою форму, включая направления граней (типа {105} для Ge/Si и типа {137} для InAs/GaAs). При этом латеральный размер кластера можно считать равным длине ребра его основания.

Согласно современным теоретическим представлениям [11], существует барьер зарождения нанокластеров  $F_{CR}(t)$ , который определяется как максимум свободной энергии образования нанокластера  $F(n,t)$  в зависимости от числа частиц  $n$ , достигаемый при определенном критическом размере  $n_{CR}$  зародыша:  $F(n_{CR},t) \equiv F_{CR}(t)$ . (Для кластеров Ge и InAs под числом частиц подразумевается число атомов Ge и число молекул InAs, соответственно). Кластеры закритического размера, преодолевающие барьер за счет флуктуаций, растут стабильно за счет присоединения частиц с поверхности смачивающего слоя через периметр их основания.

Используемый метод кинетических уравнений в целом пригоден для описания роста нанокластеров на поверхности смачивающего слоя. Однако для учета особенностей рассматриваемого режима роста имеющаяся физическая модель и программа для моделирования должны быть модифицированы. В частности, зарождение кластеров с преодолением активационного барьера требует термодинамического описания, в то время как рост стабильных кластеров представляет собой чисто кинетический процесс. Кроме того, в данном случае осаждающееся вещество аккумулируется в смачивающем слое, который является источником материала для роста нанокластеров, аналогично «морю» подвижных адатомов углерода в системе SiC/Si. Также, рост кластеров обусловлен направленным потоком атомов из смачивающего слоя, в отличие от механизма случайных столкновений движущихся адатомов углерода с кластерами SiC в предыдущем случае.

С учетом указанных особенностей система кинетических уравнений для рассматриваемого режима роста нанокластеров в исследуемых системах материалов будет иметь вид:

$$\Omega^{-1} \frac{dh(t)}{dt} = g - W \cdot n_{CR} - \int_{n_{CR}}^{\infty} f(n,t) \frac{dn(t)}{dt} dn, \quad (12)$$

$$\frac{\partial f(n,t)}{\partial t} = W(t) \cdot \delta(n - n_{CR}) - \frac{\partial}{\partial n} \left[ f(n,t) \frac{dn(t)}{dt} \right], \quad (13)$$

$$W(t) = \frac{N^+(t)}{a^2} \sqrt{\frac{|F_{CR}''(t)|}{2\pi \cdot kT}} \exp\left(-\frac{F_{CR}(t)}{kT}\right), \quad (14)$$

$$\frac{dn(t)}{dt} = \Omega^{-1} \cdot 4L(n) \cdot h_0 \cdot \frac{\Delta E_1(t)}{l_s} \frac{D}{kT}, \quad (15)$$

где  $L(n) = \left(\frac{6\Omega}{tg\theta} n\right)^{1/3}$  – длина ребра квадратного основания пирамидального кластера;  $h(t)$  – толщина смачивающего слоя;  $g$  – эффективная скорость осаждения вещества;  $f(n,t)$  – функция распределения кластеров по числу частиц  $n$ ;  $W(t)$  – скорость зарождения кластеров;  $n_{CR}$  – критический размер зарождения стабильного кластера;  $N^+(t)$  – количество частиц смачивающего слоя, приходящих к границе зародыша островка в единицу времени [11];  $a$  – постоянная решетки подложки;  $h_0$  – толщина атомного слоя вещества;  $\Omega = a^2 h_0$  – атомный объем;  $\Delta E_1(t)$  – изменение энергии одной частицы при присоединении к стабильному кластеру;  $l_s$  – расстояние, на которое распространяется упругое поле кластера;  $D$  – коэффициент диффузии частиц (атомов Ge и молекул InAs) по поверхности смачивающего слоя;  $\theta$  – угол наклона боковой грани кластера.

В параграфе 3.2 представлены результаты применения предложенной физической модели. В работе [12] методом атомно-силовой микроскопии проводились исследования роста нанокластеров Ge на Si(100) и InAs на GaAs(100) при различных условиях (см. рис. 5,6). С использованием системы уравнений (12) – (15) произведена серия численных расчетов, соответствующих экспериментальным условиям работы [12]. В результате получены зависимости среднего латерального размера  $\langle L \rangle$  и поверхностной плотности  $C$  нанокластеров от температуры подложки  $T$  и скорости осаждения вещества  $g$  (см. рис. 5,6). Из рис. 5, 6 видно хорошее согласие теоретических результатов с экспериментом. Это подтверждает пригодность модели для описания роста нанокластеров, а также является свидетельством того, что рост в обеих системах протекает по одним и тем же законам и механизмам.

Параграф 3.3 посвящен исследованиям эволюции равновесной формы нанокластеров Ge на Si(100). Экспериментальные исследования [13] свидетельствуют о том, что при определенных условиях роста происходит переход от пирамидальной формы нанокластеров (pyramids, huts) к куполообразной (domes). Запишем выражения для энергии кластера той или иной формы  $j$  в виде:

$$E_j(n) = A_j \cdot n^{2/3} + B_j \cdot n, \quad (16)$$

где  $n$  – число частиц в кластере;  $j = I$  соответствует пирамидальной форме,  $j = II$  – куполообразной. Первое слагаемое определяет энергию свободной поверхности граней кластера, второе – внутреннюю упругую энергию материала кластера.

В случае куполообразной формы кластер менее напряжен, поэтому можно показать [14], что  $B_I > B_{II}$ . Учитывая более высокую сложность структуры поверхности куполообразных кластеров по сравнению с пирамидальными, предположим, что  $A_I < A_{II}$ . Тогда появляется критическое число частиц  $n_{HD}$ , такое, что энергии кластеров типа  $j = I$  и  $j = II$  оказываются равными:

$$E_I(n_{HD}) = E_{II}(n_{HD}). \quad (17)$$

В диапазоне  $n < n_{HD}$  справедливо  $E_I(n) < E_{II}(n)$ , то есть энергетически более выгодной является пирамидальная форма кластеров. В то же время при  $n > n_{HD}$  более выгодна куполообразная форма кластеров. По достижении растущим пирамидальным кластером числа частиц  $n_{HD}$  происходит изменение его формы. Подставляя в (17) выражение (16), получим:

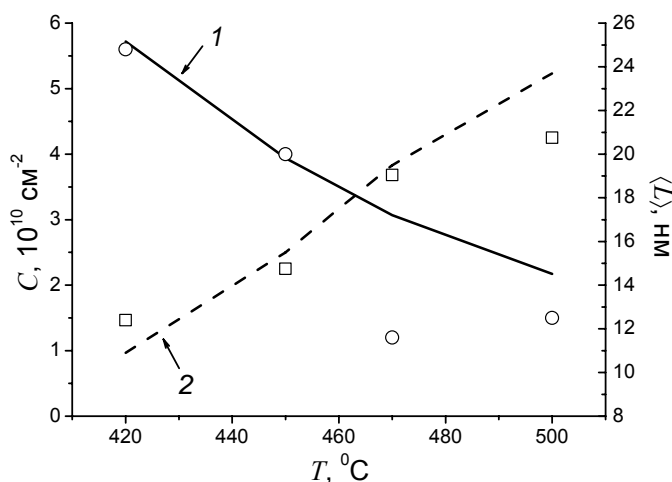


Рис. 5. Зависимости поверхностной плотности  $C$  ( $\circ$ , 1) и среднего латерального размера  $\langle L \rangle$  ( $\square$ , 2) нанокластеров Ge на Si (100) от температуры подложки  $T$  при скорости осаждения  $g = 2.24 \cdot 10^{13} \text{ ат/см}^2\text{с}$ ;  $\circ$ ,  $\square$  – эксперимент [10], 1,2 – расчет.

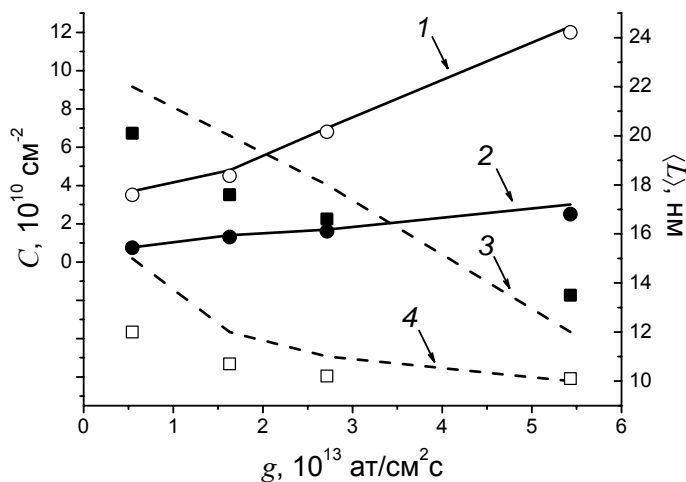


Рис. 6. Зависимости поверхностной плотности  $C$  ( $\circ$ ,  $\bullet$ , 1, 2) и среднего латерального размера  $\langle L \rangle$  ( $\square$ ,  $\blacksquare$ , 3, 4) нанокластеров InAs на GaAs(100) от скорости осаждения  $g$  при различных температурах подложки:  $T = 440^\circ\text{C}$  ( $\circ$ ,  $\square$ , 1, 4);  $T = 485^\circ\text{C}$  ( $\bullet$ ,  $\blacksquare$ , 2, 3);  $\circ$ ,  $\square$ ,  $\bullet$ ,  $\blacksquare$  – эксперимент [10], 1-4 – расчет.

$$n_{HD} = \left( \frac{A_{II} - A_I}{B_I - B_{II}} \right)^3. \quad (18)$$

Теоретическая оценка для максимального латерального размера пирамидальных кластеров дает  $L_{HD} \equiv L(n_{HD}) \approx 50$  нм, что хорошо согласуется с экспериментальными результатами [15]. Это подтверждает применимость предложенного критерия изменения равновесной формы кластеров и возможность его использования для более глубокого анализа экспериментальных данных и оптимизации методов выращивания нанокластеров.

В заключении приведены основные результаты работы, сделаны выводы, описаны перспективы применения полученных результатов и дальнейшего развития исследований.

Основные результаты, полученные в работе:

1. впервые разработана физическая модель зарождения и роста плоских и трехмерных нанокластеров SiC на Si при молекулярно-пучковой эпитаксии, учитывающая внутренние упругие напряжения, возникающие в структуре;
2. рассчитана эволюция функции распределения нанокластеров по размерам в полупроводниковых системах SiC/Si, Ge/Si, InAs/GaAs, на основе чего получены зависимости поверхностной плотности нанокластеров и их средних латеральных размеров от условий роста: температуры подложки, скорости и длительности осаждения;
3. установлен критерий перехода от плоского к трехмерному росту нанокластеров в виде критической величины отношения расстояния между плоскими кластерами SiC на Si к среднему радиусу;
4. найден максимальный размер пирамидальных нанокластеров Ge на Si, составляющий 50 нм.

Результаты работы позволяют сделать следующий вывод: разработанная оригинальная физическая модель зарождения и роста нанокластеров при молекулярно-пучковой эпитаксии позволила адекватно описать особенности протекающих кинетических процессов в различных полупроводниковых системах.

Основные результаты опубликованы в следующих работах:

- [A1] Kulikov D. V. Growth of SiC nanoclusters on Si surface in the molecular beam epitaxy process / D. V. Kulikov, K. L. Safonov, Yu. V. Trushin, J. Pezoldt // Proc. of the 4th Moscow Int. ITEP School of Physics. – 2001. – P. 299–303.
- [A2] Safonov K. L. Nucleation of SiC on Si and their relationship to nano-dot formation: II. Theoretical investigation / K. L. Safonov, D. V. Kulikov, Yu. V.

- Trushin, J. Pezoldt // Proc. of SPIE. – 2002. – V. 4627. – P. 165–169.
- [A3] Safonov K. L. Influence of the growth temperature on SiC nanoclusters nucleation on Si(111) surface during MBE process / K. L. Safonov, D. V. Kulikov, Yu. V. Trushin, J. Pezoldt // Proc. of SPIE. – 2003. – V. 5127. – P. 128–131.
- [A4] **Safonov K. L. Modelling the formation of nano-sized SiC on Si / K. L. Safonov, A. A. Schmidt, Yu. V. Trushin, D. V. Kulikov, J. Pezoldt // Mat. Sci. Forum. – 2003. – V. 433–436. – P. 591–594.**
- [A5] **Трушин Ю. В. Переход от двумерных к трехмерным нанокластерам карбида кремния на кремнии / Ю. В. Трушин, К. Л. Сафонов, О. Амбахер, Й. Пецольт // ПЖТФ. – 2003. – Т. 29. – С. 11–15.**
- [A6] Safonov K. L. Computer simulations of the early stages of SiC growth on Si / K. L. Safonov, Yu. V. Trushin, J. Pezoldt // Proc. of the 7th Moscow Int. ITER School of Physics. – 2004. – P. 129–134.
- [A7] **Safonov K. L. Computer simulation of the early stages of nano scale SiC growth on Si / K. L. Safonov, Yu. V. Trushin, O. Ambacher, J. Pezoldt // Mat. Sci. Forum. – 2005. – V. 483–485. – P. 169–172.**
- [A8] **Трушин Ю. В. Исследование начальных стадий роста нанокластеров карбида кремния на подложке кремния / Ю. В. Трушин, Е. Е. Журкин, К. Л. Сафонов, А. А. Шмидт, В. С. Харламов, С. А. Королев, М. Н. Лубов, Й. Пецольт // ПЖТФ. – 2004. – Т. 30. – С. 48–54.**
- [A9] **Сафонов К. Л. Компьютерное моделирование роста когерентных островков в полупроводниковых системах Ge/Si и InAs/GaAs / К. Л. Сафонов, В. Г. Дубровский, Н. В. Сибирев, Ю. В. Трушин // ПЖТФ. – 2007. – Т. 33. – С. 87–94.**
- [A10] **Сафонов К. Л. Критерий перехода когерентных нанокластеров Ge на Si от пирамидальной к куполообразной форме / К. Л. Сафонов, Ю. В. Трушин // ПЖТФ. – 2007. – Т. 33. – С. 7–12.**

Список цитированной литературы:

- [1] Трушин Ю. В. Физическое материаловедение / Ю. В. Трушин.– СПб. : Наука, 2000. – 287 С.
- [2] Hindmarsh A. C. GEAR: ordinary differential equation system solver / A. C. Hindmarsh // Lawrence Livermore Lab. Report UCID-3000. – 1974. – Rev. 3.
- [3] Scharmann F. Investigation of the nucleation and growth of SiC nanostructures on Si / F. Scharmann, P. Maslarski, W. Attenberger, J. K. N. Lindner, B. Stritzker, Th. Stauden, J. Pezoldt // Thin Solid Films. – 2000. – V. 380. – P. 92–96.
- [4] Pezoldt J. Chemical conversion of Si to SiC by solid source MBE and RTCVD / J.



- Pezoldt, V. Cimalla, Th. Stauden, G. Ecke, G. Eichhorn, S. Scharmman, D. Schipanski // *Diamond and Related Materials*. – 1997. – V. 6. – P. 1311–1315.
- [5] Latyshev A.V. Reflection electron microscopy study of clean Si(111) surface reconstruction during the (7x7) – (1x1) phase transition / A. V. Latyshev, A. B. Krasilnikov, A. L. Aseev, L. V. Sokolov, S. I. Stenin // *Surf. Sci.* – 1991. – V. 254. – P. 90–96.
- [6] Shchukin V. A. Spontaneous ordering of nanostructures / V. A. Shchukin, D. Bimberg // *Rev. Mod. Phys.* – 1999. – V. 71. – P. 1125–1171.
- [7] Теодосиу К. Упругие модели дефектов в кристаллах / К. Теодосиу. – М. : Мир, 1985. – 352 С.
- [8] Schroder M. Diffusion on strained surfaces / M. Schroder, D. E. Wolf // *Surf. Sci.* – 1997. – V. 375. – P. 129–140.
- [9] Khor K. E. Quantum dot self-assembly in growth of strained-layer thin films: A kinetic Monte Carlo study / K. E. Khor, S. Das Sarma // *Phys. Rev. B.* – 2000. – V. 62. – P. 16657–16664.
- [10] Costantini G. Universal shapes of self-organized semiconductor quantum dots: striking similarities between InAs/GaAs(001) and Ge/Si(001) / G. Costantini, A. Rastelli, C. Manzano, R. Songmuang, O. G. Schmidt, K. Kern, H. von Kanel // *Appl. Phys. Lett.* – 2004. – V. 85. – P. 5673–5675.
- [11] Osipov A. V. Stress-driven nucleation of coherent islands: theory and experiment / A. V. Osipov, F. Schmitt, S. A. Kukushkin, P. Hess // *Appl. Surf. Sci.* – 2002. – V. 188. – P. 156–162.
- [12] Dubrovskii V. G. Effect of growth kinetics on the structural and optical properties of quantum dot ensembles / V. G. Dubrovskii, G. E. Cirlin, Yu. G. Musikhin, Yu. B. Samsonenko, A. A. Tonkikh, N. K. Polyakov, V. A. Egorov, A. F. Tsatsul'nikov, N. A. Krizhanovskaya, V. M. Ustinov, P. Werner // *J. Cryst. Growth.* – 2004. – V. 267. – P. 47–59.
- [13] Medeiros-Ribeiro G. Shape transition of germanium nanocrystals on a silicon (001) surface from pyramids to domes / G. Medeiros-Ribeiro, A. M. Bratkovski, T. I. Kamins, D. A. A. Ohlberg, R. S. Williams // *Science.* – 1998. – V. 279. – P. 353–355.
- [14] Ratsch C. Equilibrium theory of the Stranski-Krastanov epitaxial morphology / C. Ratsch, A. Zangwill // *Surf. Sci.* – 1993. – V. 293. – P. 123–131.
- [15] Ross F. M. Coarsening of self-assembled Ge quantum dots on Si(001) / F. M. Ross, J. Tersoff, R. M. Tromp // *Phys. Rev. Lett.* – 1998. – V. 80. – P. 984–987.