

УДК 621.315.592

А.В. ВОЙЦЕХОВСКИЙ, А.П. КОХАНЕНКО, К.А. ЛОЗОВОЙ

РАСЧЕТ КРИТИЧЕСКОЙ ТОЛЩИНЫ ПЕРЕХОДА ОТ ДВУМЕРНОГО К ТРЕХМЕРНОМУ РОСТУ В МАТЕРИАЛЬНОЙ СИСТЕМЕ $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}(100)$ ¹

В данной работе рассматривается рост слоев $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ на Si. Для расчета критической толщины перехода от двумерного к трехмерному росту по Странскому–Крастанову в этой системе используется теоретическая модель, основанная на общей теории нуклеации островков, учитывающая зависимости модуля упругости, рассогласования решеток и удельной поверхностной энергии боковых граней от состава x . Построены зависимости критической толщины перехода по Странскому–Крастанову от состава x и от температуры. Показано, что полученные выражения позволяют объяснить экспериментально наблюдаемые температурные зависимости критической толщины при низком содержании германия.

Ключевые слова: квантовые точки, кремний, германий, наногетероструктуры, молекулярно-лучевая эпитаксия, критическая толщина, переход по Странскому–Крастанову.

Полупроводниковые материалы на основе кремния с наноразмерными включениями германия стали очень активно изучаться с начала 1990-х годов [1, 2]. С тех пор они зарекомендовали себя весьма перспективными для всевозможных применений в оптоэлектронике. Эти материалы могут использоваться для создания фотодетекторов, солнечных элементов и светоизлучающих устройств, успешно конкурируя с традиционными для оптоэлектроники материалами на основе соединений $\text{A}^{\text{III}}\text{-B}^{\text{V}}$ [3–7].

Одним из самых многообещающих методов для производства гетероструктур Si/Ge является метод молекулярно-лучевой эпитаксии. В процессе выращивания квантовых точек этим методом управлять морфологией германиевых островков можно за счет изменения температуры роста, скорости выращивания, количества осажденного на подложку германия [8, 9].

Важную роль в кинетике всего эпитаксиального роста полупроводниковых структур с рассогласованием по постоянной решетки между осаждаемым материалом и подложкой (примером такой рассогласованной системы является система Ge/Si(100), в которой разница между параметрами решетки составляет 4,2 %) играет момент перехода от двумерного (последовательного) к трехмерному (островковому) росту (так называемый переход по Странскому–Крастанову). Такой переход означает, что при определенной критической толщине осаждаемого материала, которая называется критической толщиной перехода от двумерного к трехмерному росту, вместо дальнейшего роста напряженных 2D-слоев происходит быстрая нуклеация объемных островков, когерентных с подложкой [11].

Простейшие теоретические модели пытаются объяснить указанное явление на основе эффекта сегрегации [11, 12] или с помощью уравнения роста слоя в условиях поверхностной диффузии атомов под действием градиента химического потенциала атомов (теория морфологической неустойчивости) [13, 14]. В частности, в первом случае на основе уравнений термоактивационного обмена атомов определяется распределение концентрации атомов германия и кремния по приповерхностным монослоям (МС), вызванное явлением сегрегации, затем рассчитывается энергия упругих напряжений с учетом всех осажденных слоев. В качестве условия достижения критической толщины перехода по Странскому–Крастанову выбирается равенство изменений энергии системы за счет релаксации упругих напряжений в островке и за счет увеличения поверхностной энергии при образовании дополнительных граней [11]. Однако эти модели неспособны объяснить наблюдаемую температурную зависимость критической толщины и дают хорошее согласие с экспериментом только в области высоких температур роста.

В данной работе для расчета критической толщины перехода от двумерного к трехмерному росту по Странскому–Крастанову в случае роста $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ на Si используется теоретическая модель, основанная на общей теории нуклеации островков [15]. Эта модель опирается на выражение для изменения свободной энергии атомов при переходе из смачивающего слоя в островок, учитывающее изменение свободной энергии за счет образования дополнительной поверхности граней, ре-

¹ Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта р_Сибирь_а № 13-02-98023.

лаксации упругих напряжений и уменьшения притяжения атомов к подложке [9, 15]. Изначально предложенная для системы Ge/Si (случай осаждения чистого германия), эта модель уточняется путем учета зависимости от состава x модуля упругости, рассогласования решеток и удельной поверхностной энергии боковых граней.

Для определения критической толщины перехода сначала определяется изменение свободной энергии при переходе атомов из смачивающего слоя в островок ΔF с учетом всех перечисленных выше вкладов:

$$\Delta F(i) = Ai^{2/3} - B\zeta i, \quad (1)$$

где i – число атомов в островке, $\zeta = (h / h_{eq} - 1)$ – перенапряжение смачивающего слоя, h – толщина смачивающего слоя германия, h_{eq} – равновесная толщина смачивающего слоя. Константа A отвечает за вклад поверхностной энергии, а постоянная B – за релаксацию упругих напряжений и ослабление притяжения атомов к подложке [9, 15, 16]. Затем рассчитываются критическое число атомов в островке i_c , при котором функция $\Delta F(i)$ достигает максимума, и активационный барьер нуклеации $\Delta F(i_c)$. Далее по формуле Зельдовича [17] определяется скорость зарождения когерентных островков.

Наконец, чтобы определить критическую толщину h_c перехода от двумерного к трехмерному росту, необходимо решить следующее трансцендентное уравнение для критического перенапряжения $\zeta_c = (h_c / h_{eq} - 1)$ [9, 15]:

$$\frac{4}{3\sqrt{\pi}} \frac{h_{eq}}{d_0} \frac{\zeta_c}{2a(\zeta_c + 1)F(\zeta_c)} \left[\frac{2F(\zeta_c)}{\zeta_c^2} \frac{\tau}{t_{eq}} \right]^{\frac{5}{2}} \exp[F(\zeta_c)] = 1, \quad (2)$$

где $t_{eq} = h_{eq} / V$ – время выращивания слоя равновесной толщины, V – скорость роста. Здесь также использованы следующие параметры [9]:

$$\tau = \frac{3l_0^2 v}{8\alpha BD}, \quad (3)$$

$$a = \frac{3B}{4(\pi A)^{\frac{1}{2}}}, \quad (4)$$

где l_0 – среднее расстояние между атомами на поверхности, v – параметр обрезания поля упругих напряжений [18], α – зависящий от формы островка геометрический фактор, D – коэффициент диффузии атомов из смачивающего слоя в островок.

Для описания случая осаждения слоев $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ на поверхность кремния необходимо учесть зависимость термодинамических параметров от состава x . Для этого мы использовали значения физических констант для чистых веществ (Si, Ge) и закон Вегарда:

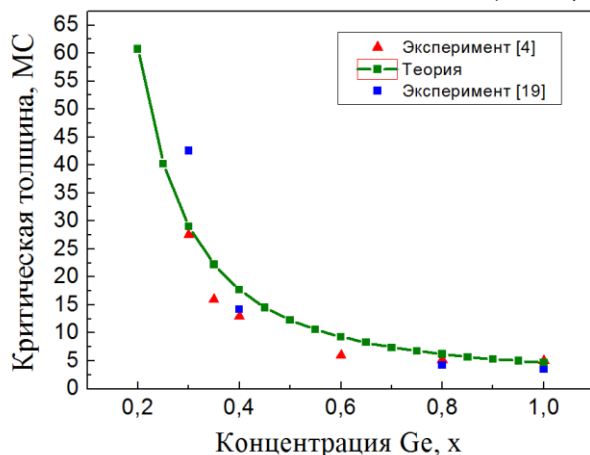


Рис. 1. Сравнение экспериментальных [4, 19] и рассчитанных зависимостей критической толщины от состава для температуры $T = 700^\circ\text{C}$

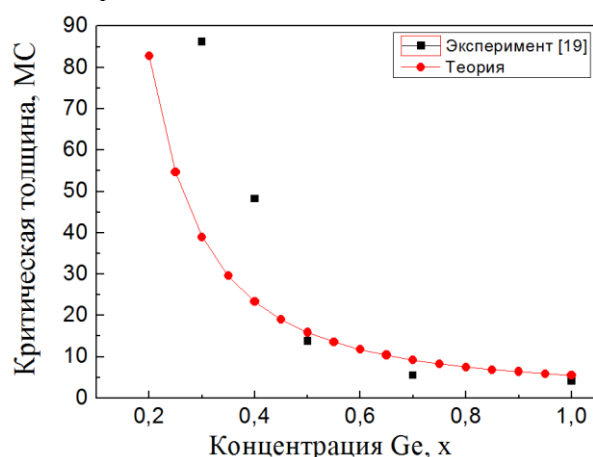


Рис. 2. Сравнение экспериментальных [19] и рассчитанных значений критической толщины перехода для температуры $T = 400^\circ\text{C}$ и различных составов

$$\varepsilon(x) = \varepsilon_0 x, \quad (5)$$

$$\lambda(x) = x\lambda(\text{Ge}) + (1-x)\lambda(\text{Si}), \quad (6)$$

$$\gamma(x) = x\gamma(\text{Ge}) + (1-x)\gamma(\text{Si}), \quad (7)$$

где ε_0 – рассогласование решеток, ε_0 – рассогласование решеток для случая осаждения чистого Ge, λ – модуль упругости материала, γ – удельная поверхностная энергия.

В работе были построены зависимости критической толщины перехода по Странскому–Крастанову от состава x (Рис. 1, 2) для различных температур. Результаты расчетов демонстрируют хорошее совпадение с экспериментом. Кроме того, полученные выражения позволяют объяснить экспериментально наблюдаемые температурные зависимости критической толщины при низком содержании германия.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Eaglesham D. J., Cerullo M. // Phys. Rev. Lett. – 1990. – V. 64. – № 16. – P. 1943-1946.
2. Mo Y.-W., Savage D. E., Swartzentruber B. S., Lagally M. G. // Phys. Rev. Lett. – 1990. – V. 65. – № 8. – P. 1020-1023.
3. Pchelyakov O.P., Bolkhovityanov Yu.B., Dvurechenskii A.V., Nikiforov A.I., Yakimov A.I., Voigtlander B. // Thin Solid Films. – 2000. – V. 367. – P. 75-84.
4. Brunner K. // Rep. Prog. Phys. – 2002. – V. 65. – № 27. – P. 27-72.
5. Wang K. L., Cha D., Liu J., Chen C. // Proc. of the IEEE. – 2007. – V. 95. – № 9. – P. 1866-1882.
6. Шкляев А. А., Ичикава М. // Успехи физических наук. – 2008. – Т. 178. – № 2. – С. 139-169.
7. Aqua J.-N., Berbezier I., Favre L. // Physics Reports. – 2013. – V. 522. – P. 59-189.
8. Lozovoy K. A., Voitsekhovskiy A. V., Kokhanenko A. P., Satdarov V. G., Pchelyakov O.P., Nikiforov A.I. // Opto-Electronics Review. – 2014. – V. 22. – № 3. – P. 171-177.
9. Дубровский В. Г. // ФТП. – 2006. – Т. 40. – № 10. – С. 1153-1160.
10. Войцеховский А.В., Кульчицкий Н.А., Мельников А.А., Несмелов С.Н., Коханенко А.П., Лозовой К.А. // Нано- и микросистемная техника. – 2014. – № 9. – С. 20-31.
11. Yurasov D.V., Drozdov Yu.N. // Semiconductors. – 2008. – V 42. – P. 563-570.
12. Tu Y., Tersoff J. // Phys. Rev. Lett. – 2004. – V 93. – P. 216101.
13. Johnson H.T., Nguyen V., Bower A.F. // J. Appl. Phys. – 2002. – V 92. – P. 4653-4663.
14. Stangl J., Holy V., Bauer G. // Rev. Mod. Phys. – 2004. – V 76. – P. 725-783.
15. Dubrovskii V. G., Cirlin G. E., Ustinov V. M. // Phys. Rev. B. – 2003. – V 68. – P. 075409.
16. Лозовой К. А., Войцеховский А. В., Коханенко А. П. // Изв. вузов. Физика. – 2013. – № 9/2. – С. 17-20.
17. Кукушкин С. А., Осипов А. В. // Успехи физических наук. – 1998. – Т. 168. – № 10. – С. 1083-1116.
18. Osipov A.V., Schmitt F., Kukushkin S.A., Hess P. // Applied Surface Science. – 2002. – V. 188. – P. 156-162.
19. Nikiforov A.I., Timofeev V.A., Teys S.A., Gutakovskiy A.K., Pchelyakov O.P. // Nanoscale Research Letters. – 2012. – V. 7. – P. 561.

Национальный исследовательский Томский государственный университет, г. Томск, Россия
E-mail: lka@sibmail.com

Войцеховский Александр Васильевич, д.ф.-м.н., зав. каф., профессор;
Коханенко Андрей Павлович, д.ф.-м.н., профессор;
Лозовой Кирилл Александрович, аспирант.

A.V. VOITSEKHOVSKII, A.P. KOKHANENKO, K.A. LOZOVY

CALCULATION OF A CRITICAL THICKNESS OF A TRANSITION FROM 2D TO 3D GROWTH IN GE/SI(100) MATERIALS SYSTEM

In the study the growth of $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ layers on Si is considered. A theoretical model based on the general nucleation theory is used for calculation of a critical thickness of the Stranski–Krastanov transition from 2D to 3D growth in this system. Originally proposed for the Ge/Si system this model is specified by taking into account the dependences of elastic modulus, lattices mismatch and surface energy of side faces on a composition x . Dependencies of a critical thickness of the Stranski–Krastanov transition on the composition x and temperature are determined. It is shown that the obtained expressions allow us to explain the experimentally observed temperature dependence of the critical thickness for low germanium content.

Keywords: quantum dots, silicon, germanium, nanoheterosructures, molecular beam epitaxy, critical thickness, Stranski–Krastanow transition.

REFERENCES

1. Eaglesham D. J., Cerullo M. Dislocation-free Stranski–Krastanov growth of Ge on Si(100), *Phys. Rev. Lett.*, 1990, vol. 64, no. 16, pp. 1943-1946.
2. Mo Y.-W., Savage D. E., Swartzentruber B. S., Lagally M. G. Kinetic pathway in Stranski–Krastanov Growth of Ge on Si(001), *Phys. Rev. Lett.*, 1990, vol. 65, no. 8, pp. 1020-1023.
3. Pchelyakov O.P., Bolkhovityanov Yu.B., Dvurechenskii A.V., Nikiforov A.I., Yakimov A.I., Voigtlander B. Molecular beam epitaxy of silicon–germanium nanostructures, *Thin Solid Films*, 2000, vol. 367, pp. 75-84.
4. Brunner K. Si/Ge nanostructures, *Rep. Prog. Phys.*, 2002, vol. 65, no. 27, pp. 27-72.
5. Wang K. L., Cha D., Liu J., Chen C. Ge/Si self-assembled quantum dots and their optoelectronic device applications, *Proc. of the IEEE*, 2007, vol. 95, no. 9, pp. 1866-1882.
6. Shklyayev A.A., Ichikawa M. Predelno plotnye massivny nanostructure germaniya i kremniya // *Uspekhi Fizicheskikh Nauk*, 2008, vol. 178, no. 2, pp. 139-169.
7. Aqua J.-N., Berbezier I., Favre L. Growth and self-organization of SiGe nanostructures, *Phys. Rep.*, 2013, vol. 522, pp. 59-189.
8. Lozovoy K. A., Voitsekhovskiy A. V., Kokhanenko A. P., Satdarov V. G., Pchelyakov O.P., Nikiforov A.I. Heterostructures with self-organized quantum dots of Ge on Si for optoelectronic devices, *Opto-Electron. Rev.*, 2014, vol. 22, no. 3, pp. 171-177.
9. Dubrovskii V.G. Raschet funktsii raspredeleniya kvantovykh tochek po razmeram na kineticheskoy stadii rosta, *Fizika i tekhnika poluprovodnikov*, 2006, vol. 40, no. 10, pp. 1153-1160.
10. Voitsekhovskiy A.V., Kulchitskii N.A., Melnikov A.A., Nesmelov S.N., Kokhanenko A.P., Lozovoy K.A. Tekhnologiya sozdaniya struktur s kvantovymi tochkami Ge/Si molekulyarnoluchevoy epitaksii, *Nano- i mikrosistemnaya tekhnika*, 2014, no. 9, pp. 20-31.
11. Yurasov D.V., Drozdov Yu.N. Critical thickness for the Stranski-Krastanov transition treated with the effect of segregation, *Semiconductors*, 2008, vol. 42, pp. 563-570.
12. Tu Y., Tersoff J. Origin of Apparent Critical Thickness for Island Formation in Heteroepitaxy, *Phys. Rev. Lett.*, 2004, vol. 93, pp. 216101.
13. Johnson H.T., Nguyen V., Bower A.F. Simulated self-assembly and optoelectronic properties of InAs/GaAs quantum dot arrays, *J. Appl. Phys.*, 2002, vol. 92, pp. 4653-4663.
14. Stangl J., Holy V., Bauer G. Structural properties of self-organized semiconductor nanostructures, *Rev. Mod. Phys.*, 2004, vol. 76, pp. 725-783.
15. Dubrovskii V. G., Cirlin G. E., Ustinov V. M. Kinetics of the initial stage of coherent island formation in heteroepitaxial systems, *Phys. Rev. B*, 2003, vol. 68, pp. 075409.
16. Lozovoy K.A., Voitsekhovskiy A.V., Kokhanenko A.P. Kinetika formirovaniya ravninykh tochek germaniya na kremnii razlichnoy formy s uchetom diffuzii, segregatsii i vliyaniya napryazhennykh podsloev, *Izvestiya vuzov. Fizika*, 2013, no. 9/2, pp. 17-20.
17. Kukushkin S.A., Osipov A.V. Processy kondensatsii tonkikh plenok, *Uspekhi Fizicheskikh Nauk*, 1998, vol. 168, no. 10, pp. 1083-1116.
18. Osipov A.V., Schmitt F., Kukushkin S.A., Hess P. Stress-driven nucleation of coherent islands: theory and experiment, *Appl. Surf. Sci.*, 2002, vol. 188, pp. 156-162.
19. Nikiforov A.I., Timofeev V.A., Teys S.A., Gutakovskiy A.K., Pchelyakov O.P. Initial stage growth of GeSi layers and Ge quantum dot formation on GeSi surface by MBE, *Nanoscale Research Letters*, 2012, vol. 7, pp. 561.

National Research Tomsk State University, Tomsk, Russia
E-mail: lka@sibmail.com

Voitsekhovskiy Alexander Vasilievich, Prof., Dr. Sc.;
Kokhanenko Andrey Pavlovich, Prof., Dr. Sc.;
Lozovoy Kirill Aleksandrovich, Post-graduate student.