

УДК 621.315.592

ЗАРОЖДЕНИЕ ДИСЛОКАЦИЙ В НАНОРАЗМЕРНЫХ SiGe-ОСТРОВКАХ, ФОРМИРУЕМЫХ В ПРОЦЕССЕ ГЕТЕРОЭПИТАКСИАЛЬНОГО РОСТА*

В. А. Зиновьев

*Институт физики полупроводников СО РАН им. А. В. Ржанова,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 13
E-mail: zinoviev@isp.nsc.ru*

Предлагается модель пластической релаксации наностроек, способная предсказать критические характеристики (форму, размер, элементный состав), при которых вводятся дислокации. Проводится теоретическое рассмотрение начальной стадии пластической релаксации трехмерных островков, формирующихся в процессе гетероэпитаксии в режиме Странского — Крастанова, на примере гетеросистемы Ge/Si(100). Исследование базируется на сочетании численного и аналитического подходов к расчету деформаций в трехмерном островке, содержащем дислокацию. Подтверждается, что зарождение дислокаций в трехмерных SiGe-островках не лимитируется кинетическим барьером.

Ключевые слова: наноструктуры, гетероэпитаксия, зарождение дислокаций, моделирование.

Введение. Прогресс, наблюдаемый в последнее время в создании наноструктур, связан с применением эффектов самоорганизации. Эффект спонтанного образования трехмерных наностроек при гетероэпитаксии материалов с большим рассогласованием постоянных решеток ($>2\%$) позволяет получать массивы квантовых точек с высокой плотностью и однородностью по размерам [1, 2]. Однако существует ряд ограничений на размер и плотность квантовых точек, связанных с введением в выращенные структуры протяженных дефектов (дислокаций). Разработаны методы, дающие возможность получать бездефектные наноструктуры, использующие прецизионно подобранные ростовые условия (температуру, скорость осаждения, отношение потоков атомов и т. д.) в сочетании с методами селективного травления, позволяющими удалять дефектные области на промежуточных стадиях создания наноструктуры. Но до сих пор остается невыясненным сам механизм зарождения дислокаций в наноразмерных структурах. В частности, не ясна причина наблюдающейся экспериментально задержки введения дислокации в зависимости от геометрии островка и подложки [3]. Можно предположить, что зарождение дислокаций в наноразмерных структурах существенно отличается от зарождения дислокаций в обычных объемных материалах. С уменьшением размеров объекта в процессах релаксации возрастает роль поверхности, критическим становится фактор неоднородности деформаций внутри нанобъекта [4]. Поскольку формирование нанокристаллов происходит в существенно неравновесных условиях, важным становится учет кинетических ограничений для перехода к этапу пластической релаксации [5, 6].

В работе [7] предложен интересный подход к исследованию дислокационной структуры наностроек, который основан на сочетании селективного метода травления Ge с последующим анализом поверхностного рельефа методом атомно-силовой микроскопии.

*Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 09-02-00882).

Оказывается, что после удаления германия поверхностный рельеф кремниевой подложки содержит информацию о последовательности введения дислокаций в островки. Суть в том, что каждое зарождение дислокации в островке сопровождается резким увеличением его латерального размера, а это находит свое отражение в форме границы раздела Ge/Si, которая изменяется в процессе роста островков за счет активируемого температурой перемешивания Ge и Si. Исследования показали, что рельеф поверхности подложки под островками, содержащими несколько дислокаций, представляет собой периодическую структуру, по виду напоминающую спил дерева с годовыми кольцами. Период кольца в такой структуре характеризует среднее расстояние, на которое успевает вырасти боковая граница островка между двумя последовательными актами зарождения дислокаций в островке, тогда как центральная часть — сердцевина — указанной структуры, может быть сопоставлена с размером основания когерентного островка непосредственно перед зарождением в нем первой дислокации [4]. Однако причина, по которой условия для зарождения каждой дислокации воспроизводятся с высокой точностью (ширина кольца почти постоянна), остается неясной.

Цель предлагаемой работы — определение критических условий для зарождения дислокаций несоответствия в трехмерных наноструктурах со сложной геометрией поверхности, формирующихся в процессе гетероэпитаксиального роста.

На примере гетеросистемы Ge/Si(100) проводится теоретическое рассмотрение начальной стадии пластической релаксации трехмерных наноструктур, имеющих форму многогранников, формирующихся в процессе гетероэпитаксиального роста в режиме Странского — Крастанова [2]. Исследование базируется на сочетании численного и аналитического расчетов деформаций в трехмерном островке, содержащем дислокацию. На основе используемого подхода была получена зависимость равновесного критического размера трехмерного островка, при котором вводится дислокация, от его формы и от содержания Ge. Сопоставление расчетных зависимостей с экспериментом позволило сделать вывод, что зарождение дислокаций в трехмерных SiGe-островках не лимитируется кинетическим барьером.

Модель зарождения дислокаций в островках. Для учета влияния упругой релаксации трехмерного островка на зарождение дислокаций проводится численный расчет деформации внутри островка и подложки на основе метода конечных элементов (МКЭ). Необходимость такого расчета обусловлена тем, что трехмерные островки, формируемые в процессе гетероэпитаксии Ge на подложку Si(100), имеют сложную геометрию поверхности с большим числом наклонных атомных плоскостей (фасеток), и деформация в такой системе не может быть найдена аналитическими методами.

На рис. 1 схематично показаны два типа аксиально-симметричных островков, рассматриваемых в модели: dome-островки (с отношением высоты к размеру основания $\rho = 0,2$) и barn-островки ($\rho = 0,33$). Островки указанных типов наблюдаются в эксперименте непосредственно перед началом пластической релаксации [8].

В модели предполагается, что зарождение дислокации не лимитируется кинетическим барьером, а определяется энергетической выгодностью указанного процесса. Рассматривается только один тип дислокации несоответствия, а именно полная 60-градусная дислокация, которая является типичным представителем линейных дефектов в кристаллах Si и Ge. Следует отметить, что модель основывается на усредненном описании зарождения дислокации в растущем островке и во многом аналогична стандартным моделям пластической релаксации тонких пленок [5, 6] с той лишь разницей, что ряд ключевых параметров модели учитывает трехмерную геометрию исследуемых нанобъектов.

Рассмотрим зарождение одиночной прямолинейной дислокации в основании трехмерного островка. В общем случае полная энергия, запасенная в островке, содержащем одну

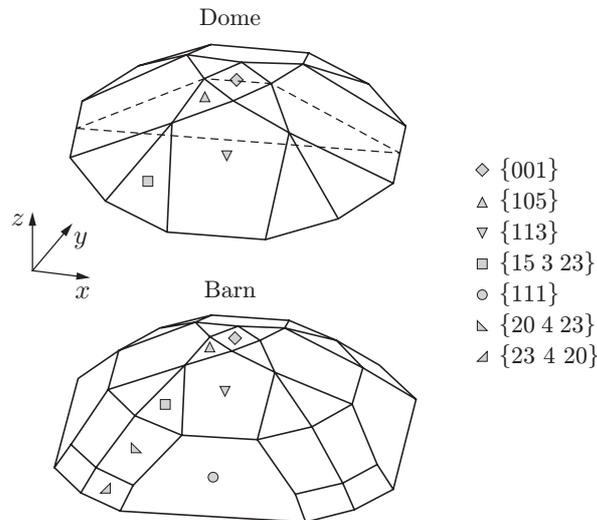


Рис. 1. Трехмерное изображение островков типа dome и типа barn. Кристаллографические грани (фасетки), присущие каждому типу островков, обозначены символами

дислокацию, может быть записана в виде

$$E_{\text{tot}} = E_{\text{coh}} + E_{\text{cost}} - E_{\text{gain}}, \quad (1)$$

где E_{coh} — упругая энергия когерентного островка; E_{cost} — собственная энергия дислокации; E_{gain} — уменьшение упругой энергии за счет пластической релаксации в островке. С энергетической точки зрения зарождение возможно, если выполняется условие

$$E_{\text{cost}} - E_{\text{gain}} \leq 0. \quad (2)$$

Полагаем, что 60-градусная дислокация с вектором Бюргерса $a/2 [011]$ (a — постоянная кристаллической решетки) вводится на границу раздела островок — подложка вдоль направления $[110]$. Пусть для определенности ось z направлена вдоль оси роста островка $[001]$, ось x — вдоль $[110]$, ось y — вдоль $[-110]$. Тогда деформация ε_{xx} не изменится, а деформация в перпендикулярном направлении ε_{yy} уменьшится на некоторую величину ε_a . В рамках усредненного описания, используемого, например, в работе [9], упругая энергия пластически деформированного SiGe-островка на Si(100), содержащего одну дислокацию, может быть представлена в следующем виде:

$$E_{\text{incoh}} = \frac{\mu}{1-\nu} K(\rho) (\varepsilon_{xx}^2 + 2\nu \varepsilon_{xx}(\varepsilon_{yy} - \varepsilon_a) + (\varepsilon_{yy} - \varepsilon_a)^2) V, \quad (3)$$

где μ — модуль сдвига; ν — коэффициент Пуассона; ε_{xx} , ε_{yy} — тетрагональные деформации в плоскости основания островка; V — объем островка; $K(\rho)$ — параметр упругой релаксации трехмерного островка. Данный параметр модели равен отношению упругой энергии, запасенной в трехмерном островке, к упругой энергии в двумерном напряженном слое того же объема и при одинаковом содержании Ge. Для островков в форме dome численный расчет с помощью МКЭ показал, что степень релаксации составляет 0,39, тогда как для островков в форме barn $K(\rho) = 0,22$. Уменьшение деформации за счет пластической релаксации в островке, обладающем аксиальной симметрией, может быть найдено из следующего соотношения [10]: $\varepsilon_a = b_{\text{eff}}\lambda/(\pi r^2)$, где r — радиус основания островка, λ — длина линии дислокации, b_{eff} — краевая компонента вектора Бюргерса, лежащая в плоскости границы раздела островок — подложка.

Поскольку форма основания трехмерных островков близка к окружности, то длина отрезка дислокации, пересекающего основание такого островка, дается выражением $\lambda = 2r\sqrt{\delta - \delta^2/4}$, где δ — относительная удаленность линии дислокации от края островка. Согласно данным работы [4] параметр δ принимает значение, близкое к 0,3, что соответствует равновесному положению дислокации в основании островков типа dome или barn.

Если предположить, что форма островка в момент зарождения дислокации не меняется, то тогда энергетический выигрыш за счет введения дислокации может быть вычислен как разница энергий дислоцированного и когерентного состояний островка:

$$E_{\text{gain}} = E_{\text{incoh}} - E_{\text{coh}}. \quad (4)$$

С другой стороны, увеличение полной энергии системы при введении дислокации в островок может быть рассчитано по следующей формуле [8]:

$$E_{\text{cost}} = \lambda \frac{\mu(1 - \nu \cos^2 \theta) b^2}{4\pi(1 - \nu)} \ln \frac{\alpha R_{\text{cut-off}}}{b}, \quad (5)$$

где b — длина вектора Бюргерса; θ — угол между линией дислокации и вектором Бюргерса; α — параметр ядра дислокации; $R_{\text{cut-off}}$ — радиус экранирования дислокационного поля деформации. В предлагаемой модели радиус экранирования учитывал геометрию трехмерного островка и определялся как среднее расстояние между гетерограницей и свободной поверхностью островка: $R_{\text{cut-off}} = V/\pi r^2$. Таким образом, условие (2) в сочетании с выражениями (3)–(5) позволяет определить критический размер островка, начиная с которого зарождение дислокации становится энергетически выгодным.

Для учета изменения элементного состава трехмерного островка вследствие процесса перемешивания Ge и Si, активируемого температурой [7], в модели было сделано упрощающее допущение, что деформация, обусловленная несовпадением постоянных решеток, прямо пропорциональна содержанию Ge в островке, т. е. полагалось $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = x_{\text{Ge}}\varepsilon_0$, где x_{Ge} — среднее содержание Ge, ε_0 — параметр несовпадения решеток Ge и Si. Расчеты проводились при следующем наборе параметров: $b = 0,4$ нм, $b_{\text{eff}} = b/2$, $\alpha = 2,7$, $\varepsilon_0 = 0,04$, $\nu = 0,27$, $\mu = 41$ ГПа.

Результаты расчета и их обсуждение. На рис. 2 представлены расчетные зависимости для критического размера основания островка, при котором вводится дислокация, от среднего содержания Ge для двух типов островков: barn (сплошная кривая) и dome (пунктирная кривая). Точками обозначены экспериментальные значения критического латерального размера SiGe-островков, полученные в работе [4]. Из рисунка видно, что с уменьшением среднего содержания Ge в островках их критический размер возрастает. Обе расчетные зависимости хорошо согласуются с экспериментом, однако расчетная зависимость для островков типа barn проходит в непосредственной близости к экспериментальным значениям. Это свидетельствует в пользу того, что при одном и том же размере основания островки, имеющие форму barn, гораздо менее устойчивы к введению дислокаций, чем островки, имеющие форму dome. Этот результат хорошо согласуется с исследованиями эволюции формы трехмерных островков в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100) [7]. Согласно данным последних исследований [8] дислокации вводятся на этапе перехода от островков в форме dome к островкам в форме barn. Таким образом, геометрия островка оказывается существенным фактором, влияющим на зарождение дислокаций.

Для зарождения дислокации необходимо выполнение двух условий:

1) введение дислокации должно приводить к уменьшению энергии системы, т. е. быть энергетически выгодным;

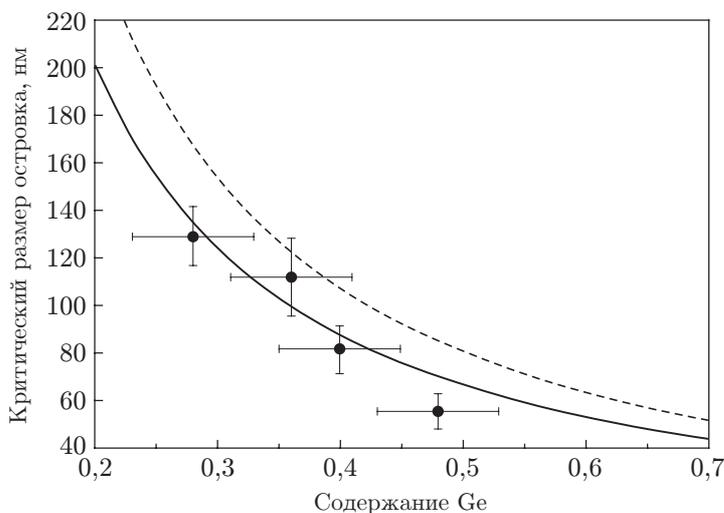


Рис. 2. Расчетные зависимости для критического размера основания SiGe-островка, при котором происходит зарождение 60-градусной дислокации в трехмерных островках типа dome и типа barn от среднего содержания Ge. Экспериментальные точки взяты из работы [4]

2) необходимо преодолеть кинетический барьер для введения дислокации, т. е. дислокация должна успеть зародиться за характерное экспериментальное время, например за время роста или формирования наноструктуры.

Существует два фактора, обуславливающих зарождение дислокации: термодинамический и кинетический. Роль кинетических ограничений можно выделить с помощью исследования температурной зависимости. С понижением температуры возрастание роли кинетических ограничений должно приводить к увеличению критического размера островка по сравнению с размером, полученным в условиях, близких к равновесным. Эффект кинетического ограничения хорошо известен для тонких пленок GeSi. При высоких температурах критическая толщина пленки, при которой вводятся дислокации, совпадает с равновесным значением, предсказываемым в рамках классической термодинамической теории из работы [11]. С понижением температуры критическая толщина возрастает, и дислокации вводятся на значительно более поздней стадии роста [5, 6]. Однако для трехмерных островков роль кинетических ограничений выделить гораздо сложнее. В первую очередь необходимо знать равновесный критический размер островков, при котором вводятся дислокации. До сих пор не существует теории, которая бы с приемлемой точностью предсказывала равновесный критический размер островков, поскольку в отличие от пленок они имеют сложную геометрию поверхности и сильно неоднородное распределение деформаций внутри островка.

В данной работе предложена модель, которая позволяет предсказать равновесный критический размер с учетом реальной геометрии трехмерных островков, наблюдаемых в эксперименте. Поэтому появляется уникальная возможность выявить роль кинетических ограничений на переход к этапу пластической релаксации островков.

Эту задачу можно решать, опираясь на экспериментальные результаты [4], где была получена зависимость критического размера островка от содержания Ge (точки на рис. 2). Однако эта зависимость фактически соответствует зависимости от температуры. Эксперименты демонстрируют, что чем выше температура роста, тем меньше содержание Ge в островках за счет активации процесса перемешивания Ge и Si. Если роль кинетических ограничений существенна, тогда можно ожидать, что с понижением температуры роста

отклонение критического размера островка от равновесного значения будет возрастать. Сопоставление результатов модельных расчетов, основанных на термодинамическом описании, с экспериментом не обнаруживает данного эффекта.

Из рис. 2 хорошо видно, что расчетные величины для островков типа bar_n и экспериментальные значения критического размера практически совпадают в широком интервале температур. Это позволяет сделать вывод, что процесс пластической релаксации трехмерных SiGe-островков не лимитируется кинетикой зарождения дислокации.

Заключение. В данной работе предложена модель начальной стадии пластической релаксации трехмерных SiGe-островков, образующихся в процессе гетероэпитаксии Ge/Si(100). Эта модель дала возможность рассчитать равновесный критический размер островка, при котором вводятся дислокации несоответствия с учетом элементного состава и формы трехмерных островков, наблюдаемых в эксперименте. Сопоставление расчетных зависимостей с экспериментом позволило сделать вывод, что зарождение дислокаций в SiGe-островках не лимитируется кинетическим барьером и термодинамическое описание процесса зарождения дислокаций в таких островках является оправданным.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Алферов Ж. И.** История и будущее полупроводниковых гетероструктур // ФТП. 1998. **32**, № 1. С. 3.
2. **Пчеляков О. П., Болховитянов Ю. Б., Двуреченский А. В. и др.** Кремний-германиевые наноструктуры с квантовыми точками: механизмы образования и электрические свойства // ФТП. 2000. **34**, № 11. С. 128.
3. **Zhong Z., Schwinger W., Scheffler F. et al.** Delayed plastic relaxation on patterned Si substrates: Coherent SiGe pyramids with dominant {111} facets // Phys. Rev. Lett. 2007. **98**, N 17. P. 176102.
4. **Marzegalli A., Zinovyev V. A., Montalenti F. et al.** Critical shape and size for dislocation nucleation in $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ Islands on Si(001) // Phys. Rev. Lett. 2007. **99**, N 23. P. 235505.
5. **Болховитянов Ю. Б., Пчеляков О. П., Чикичев С. И.** Кремний-германиевые эпитаксиальные пленки: физические основы получения напряженных и полностью релаксированных гетероструктур // УФН. 2001. **171**, № 7. С. 689.
6. **Fitzgerald E. A.** GeSi/Si nanostructures // Mater. Sci. Rep. 1991. **87**, N 25. P. 417.
7. **Merdzhanova T., Kiravittaya S., Rastelli A. et al.** Dendrochronology of strain-relaxed Islands // Phys. Rev. Lett. 2006. **96**, N 22. P. 226103.
8. **Stoffel M., Rastelli A., Tersoff J. et al.** Local equilibrium and global relaxation of strained SiGe/Si(001) layers // Phys. Rev. B. 2006. **74**, N 15. P. 155326.
9. **Tillmann K., Forster A.** Critical dimensions for the formation of interfacial misfit dislocations of $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}$ islands on GaAs(001) // Thin Solid Films. 2000. **368**, N 1. P. 93.
10. **Frank G.** Critical dimensions for the plastic relaxation of strained axial heterostructures in free-standing nanowires // Phys. Rev. B. 2006. **74**, N 12. P. 121302.
11. **Houghton D. C.** Strain relaxation kinetics in $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ heterostructures // Journ. Appl. Phys. 1991. **70**, N 4. P. 2136.

Поступила в редакцию 19 мая 2009 г.