Начальные стадии роста Ge на поверхности Si(7710)

© Р.А. Жачук, К.Н. Романюк, С.А. Тийс, Б.З. Ольшанецкий

Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия

E-mail: olshan@isp.nsc.ru

(Поступила в Редакцию 25 декабря 2007 г. В окончательной редакции 15 апреля 2008 г.)

Методом сканирующей туннельной микроскопии исследованы начальные стадии роста Ge на поверхности Si(7710), содержащей регулярные ступени высотой в три межплоскостных расстояния. В литературе эта поверхность ранее обозначалась как (557). Изучена зависимость морфологии и структуры поверхности Si(7710) от величины покрытия Ge и температуры его осаждения. Показано, что возможно формирование нанообъектов типа нанопроволок трех видов на этой поверхности.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 07-02-00274).

PACS: 61.30.Hn, 61.46.Hk, 68.37.Ef

1. Введение

Использование ступенчатых поверхностей в качестве подложек может способствовать формированию на них массивов нанообъектов с высокой плотностью и размерами порядка нескольких нанометров способом самоорганизации, что недостижимо при использовании современных методов литографии. Ранее было продемонстрировано, что таким образом можно получить упорядоченные и однородные по размерам нанобъекты с высокой плотностью [1–8]. В литературе имеется несколько работ, посвященных формированию наноструктур Ge как на поверхностях с малым отклонением от грани Si(111) [9,10], так и на высокоиндексных поверхностях Si [11].

Вицинальные поверхности Si(111) содержат атомные ступени [12]. Из-за того что плоскость Si(111) имеет ось симметрии третьего порядка, в зависимости от направления отклонения [112] или [112] возможны два типа ступеней. Вицинальная поверхность Si(111), отклоненная в направлении $[\bar{1}\bar{1}2]$, при температурах ниже 870°C содержит степени с ребром вдоль направления (110) высотой в одно и в три межплоскостных расстояния d_{111} (тройные ступени) [12-14]. Доля тройных ступеней увеличивается с увеличением угла наклона [15]. При величине угла отклонения в 10.0° поверхность состоит из террас (111), разделенных только тройными ступенями. Ширина террас (111) на такой поверхности равна ширине элементарной ячейки структуры Si(111)-7×7. Ранее ориентация этой поверхности была определена как Si(557) [16]. Последующие эксперименты позволили уточнить, что эта поверхность имеет ориентацию Si(7710), и на основе данных сканирующей туннельной мироскопии была построена атомная модель этой поверхности [17].

В [9] описаны результаты исследований адсорбции Ge на вицинальных поверхностях Si(111) с небольшими углами отклонения $(0.3-1^{\circ})$ от плоскости (111) в на-

правлениях [112] и [112]. При таких углах наклона вицинальные поверхности содержат ступени высотой только в одно межплоскостное расстояние d_{111} . Было показано, что на поверхностях, отклоненных в направлении [112], при низких потоках Ge в диапазоне $10^{-2}-10^{-3}$ ML/min возможно формирование упорядоченных нанопроволок Ge в режиме ступенчато-слоевого роста. Высота нанопроволок Ge задается высотой исходной ступени кремния. На поверхностях, отклоненных в направлении [112], вместо ступеней с фронтом по направлению [112] образуются степени с фронтом по направлению [112]. В результате этого края ступени принимает пилоообразную форму.

Целью настоящей работы было изучение методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) начальных стадий роста Ge на поверхности Si(7710) с регулярно расположенными тройными ступенями и формирования нанообъектов Ge в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ).

2. Методика эксперимента

Эксперименты проводились на подложках Si(7710) (отклонение 10.0° направлении $[\bar{1}\bar{1}2]$ от плоскости Si(111)) в сверхвысоковакуумной камере сканирующего туннельного микроскопа (OMICRON) с давлением остаточных газов $9 \cdot 10^{-11}$ Torr. Для калибровки источника Ge мы использовали образцы с ориентацией поверхности Si(111).

Для получения атомарно-чистой поверхности Si(7710) после стандартной химической обработки образцы прогревались в вакууме прямым пропусканием тока при 600°С не менее 4 h, затем в течение нескольких секунд нагревались до температуры 1250°С и охлаждались по методу, описанному в [16]. Калибровка температуры образца Si осуществлялась с помощью оптического пирометра.

Осаждение Ge проводили в камере CTM при давлении около $2 \cdot 10^{-10}$ Torr со скоростью 0.006 BL/min в режиме МЛЭ. Под МЛЭ мы понимаем рост Ge при осаждении на нагретый образец Si. За 1 BL (бислой), или двойной слой атомов Ge, в направлении [111] принималась величина $1.44 \cdot 10^{15}$ at/cm², что соответствует 2.0 ML (монослоям) Ge на поверхности Si(111) или 273 ML Ge на поверхности Si(100). Поток Ge определяли из суммарного объема треугольных островков Ge на больших террасах кремния после эпитаксии Ge на поверхность Si(111) [18]. Осаждение Ge проводили при комнатной температуре образца и при температурах от 300 до 600°C.

Изображения СТМ записывались в режиме постоянного туннельного тока после остывания образцов до комнатной температуры.

3. Результаты

На рис. 1 показано СТМ-изображение поверхности Si(7710) после осаждения 1.1 BL Ge при комнатной температуре. Видно, что на поверхности Si(7710) имеется некоторая степень упорядоченности скоплений Ge, связанная с присутствием ступеней. Этот результат указывает на принципиальную возможность использования систем атомных ступеней при определенных условиях роста для получения упорядоченных массивов наноостровков Ge. Но при этих условиях германий не образует нанообъектов типа монокристаллических нанопоправок.

Результаты наших исследований влияния адсорбции Ge на структуру и морфологию поверхности Si(7710) отражены на диаграмме (рис. 2).

При осаждении субмонослойных покрытий германия на образец в диапазоне температур 300-400°С атомы



Рис. 1. СТМ-изображение поверхности Si(7710) после осаждения 1.1 BL Ge при комнатной температуре. U = 2.0 V, I = 0.02 nA.



Рис. 2. Диаграмма состояний поверхности Si(7710) в зависимости от температуры образца, при которой проводили напыление, и количества осажденного Ge, отражающая результаты исследований влияния адсорбции Ge на структуру и морфологию поверхности. Темные точки на диаграмме указывают температуры и покрытия Ge, при которых исследовалась поверхность образца.

германия преимущественно встраиваются в края тройных ступеней на поверхности Si(7710). При этом на террасах (111) сохраняется структура 7×7 , характерная для чистой поверхности Si(111) и тонких слоев Ge на Si(111) [19,20]. Встраивание германия происходит неравномерно по длине ступеней, так что при увеличении покрытия до 1.0 BL края тройных ступеней становятся сильно изрезанными и часть ступеней объединяется, образуя ступени высотой в 6d₁₁₁. Увеличение покрытия Ge до 2.0 BL при $T = 400^{\circ}$ C приводит к тому, что на поверхности формируются большие островки Ge в форме усеченной пирамиды с треугольным основанием, пересекающие несколько тройных ступеней. Островки Ge такого вида можно наблюдать при эпитаксии Ge на Si(111) [18,21]. Характерный латеральный размер Geостровков на поверхности Si(7710) — 100 nm, а высота — 20 nm при плотности на поверхности $2 \cdot 10^8 \, \mathrm{cm}^{-2}$. Следует заметить, что при эпитаксии Ge на поверхности Si(111) при покрытии около 2.0 BL можно было видеть лишь зародыши с латеральными размерами 3-5 nm. Этот факт указывает на то, что толщина смачивающего слоя на поверхности Si(7710) существенно меньше, чем на поверхности Si(111). При температуре 300°С и покрытии германия около 2.0 BL большие островки германия на поверхности Si(7710) не образуются из-за низкой подвижности германия на этой поверхности при данной температуре.

Осаждение субмонослойных покрытий Ge на образец при температуре около 450°C приводит к формированию вытянутых островков Ge с поверхностной структурой 5×5, характерной для системы Ge/Si(111) [20,22]. Островки заполняют пространство между соседними тройными ступенями, как видно из изображений СТМ



Рис. 3. *а)* СТМ-изображение поверхности Si(7710) после осаждения 0.5 BL Ge при $T = 450^{\circ}$ C. U = 1.1 V, I = 0.022 nA. На поверхности видны отдельно расположенные 1D-наообъекты типа I. *b)* Схема расположения нанообъектов типа I на поверхности Si(7710). *c)* СТМ-изображение поверхности Si(7710) после осаждения 1.0 BL Ge при $T = 450^{\circ}$ C. U = 1.1 V, I = 0.025 nA. Большая часть поверхности образца покрыта нанообъектами типа I. В отдельных местах видно образование второго слоя нанообъектов типа I. *d)* Схема расположения второго слоя нанообъектов типа I.

на рис. 3, a и схеме на рис. 3, b. При покрытии Ge около 1.0 BL почти все пространство между тройными ступенями поверхности Si(7710) заполнено вытянутыми островками, а в некоторых местах можно заметить формирование второго слоя островков, как показано на рис. 3, c и схеме на рис. 3, d. Мы обозначили эти островки как 1D-нанообъекты типа I.

После осаждения германия на образец в диапазоне температур 500-600°С и покрытий Ge до 0.5 BL на поверхности наблюдается расщепление исходных тройных ступеней на ступени высотой в 2 и 1 межплоскостных расстояния d₁₁₁, чередующиеся между собой (рис. 4, a). При этом на вновь образовавшихся террасах формируется поверхностная структура 5×5. Ширина террасы (111) со структурой (7×7) уменьшается за счет ухода части атомов Si. В то же время суммарная ширина двух террас с поверхностной структурой (5×5), получающихся при распаде тройной ступени, превышает ширину исходной террасы (111) со структурой 7×7 (рис. 4, b). Расщепление тройных ступеней обычно начинается от изломов ступеней (кинков), которые всегда присутствуют на поверхности образца, и распространяется по всей их длине по мере увеличения покрытия Ge. После напыления около 0.3 BL германия на образец при $T = 600^{\circ}$ C все тройные ступени кремния расщеплены (рис. 5). Подобный распад тройной ступени наблюдался при адсорбции серебра на вицинальной поверхности Si(111) [23]. Можно предположить, что при расщеплении ступеней высвободившиеся атомы Si, вхо-



Рис. 4. *а*) СТМ-изображение поверхности Si(7710) после осаждения 0.3 BL Ge при $T = 500^{\circ}$ C. U = 1.35 V, I = 0.04 nA. На поверхности видно расщепление тройных ступеней на ступени высотой в 1 и 2 межплоскостных расстояния d_{111} , чередующиеся между собой (наообъекты типа II). *b*) Схема расщепления тройных ступеней на поверхности Si(7710) под воздействием адсорбции Ge. Стрелкой показано предполагаемое перераспределение атомов Si на поверхности.



Рис. 5. *а*) СТМ-изображение чистой поверхности Si(7710). U = 1.55 V, I = 0.03 nA. *b*) Линейный профиль поверхности, изображенной на части *a*, в направлении, перпендикулярном краям тройных ступеней. *c*) СТМ-изображение поверхности Si(7710) после адсорбции 0.3 BL Ge при $T = 600^{\circ}$ C. U = 1.55 V, I = 0.04 nA. *d*) Линейный профиль поверхности, изобораженной на части *c*, в направлении, перпендикулярном краям ступеней высотой в 1 и 2 межплоскостных расстояния d_{111} .

дившие в исходную террасу Si(111)-7×7, встраиваются в новую ступень высотой $2d_{111}$, как показано на рис. 4, *b*. Мы обозначили такие 1D-структуры как нанобъекты типа II.

Наряду с образованием чередующихся ступеней высотой в 1d₁₁₁ и 2d₁₁₁ при расщеплении тройных ступеней формировались также нанообъекты, у которых, как видно из рис. 6, одна грань состоит из регулярных ступеней высотой в 2d₁₁₁. Мы их обозначили как нанообъекты типа III. Структура этих ступеней такая же, как и у ступеней высотой 2d₁₁₁, показанных на рис. 4, 5. Наклон этой грани к плоскости (111) получается больше, чем у границ (7710). Средняя ориентация поверхности (7710) сохраняется благодаря присутствию второй грани с ориентацией (111) и с поверхностной структурой 5×5. Используя СТМ-изображения с атомным разрешением, мы определили, что грань, образованная равномерно расположенными ступенями высотой $2d_{111}$, имеет ориентацию (223). Угол между ориентациями (111) и (223) составляет 11.4°С.

При увеличении покрытия Ge до 0.7–1.0 BL на поверхности Si(7710) исчезают нанообъекты типов II и III, а вместо них образуются террасы (111)-5×5 шириной



Рис. 6. СТМ-изображение поверхности Si(7710) после адсорбции 0.5 BL Ge при $T = 600^{\circ}$ C. U = 2 V, I = 0.03 nA. Видны нанообъекты типов II и III.



Рис. 7. *a*) СТМ-изображение поверхности Si(7710) после адсорбции 1.0 BL Ge при $T = 600^{\circ}$ C. U = 2 V, I = 0.03 nA. Вертикальные линии на изображении — террасы Si(111)-5×5-Ge. На вставке показан линейный профиль вдоль светлой линии на СТМ-изображении. *b*) Псевдо-3D СТМ-изображение поверхности Si(7710) после адсорбции 2.0 BL Ge при $T = 600^{\circ}$ C. U = 2 V, I = 0.03 nA.

около 7 nm (4-5 ячеек структуры 5×5) и неупорядоченные эшелоны ступеней между ними (рис. 7, *a*). Подобный эффект имел место при адсорбции Аи на вицинальной поверхности Si(111), когда по достижении критической концентрации золота на поверхности система равномерно расположенных ступеней перестривались в систему террас (111) и неупорядоченных эшелонов ступеней [24]. При увеличении покрытия до 2.0 BL на поверхности дополнительно образуются трехмерные островки Ge (рис. 7, b), одна из граней которых имеет ориентацию (111) и является продолжением террас (111) на поверхности Si(7710). Островки Ge имеют характерные латеральные размеры 100 nm, высоту 10 nm и плотность на поверхности $4 \cdot 10^9$ cm⁻². При дальнейшем увеличении покрытия Ge форма островков становится пирамидальной подобно тому, как это имеет место при адсорбции при $T = 400^{\circ}$ С.

4. Заключение

Методом СТМ исследованы начальные стадии роста Ge на поверхности Si(7710), содержащей регулярные ступени высотой в три межплоскостных расстояния d_{111} при комнатной температуре и в диапазоне температур от 300 до 600°С. Обнаружено, что при осаждении Ge при комнатной температуре имеется некоторая степень упорядоченности в расположении скоплений Ge, связанная с присутствием ступеней на поверхности подложки. Построена зависимость морфологии и структуры поверхности Si(7710) от количества Ge на поверхности и температуры, при которой проводилось напыление. Найдены условия формирования вытянутых нанообъектов трех типов, которые могут рассматриваться как нанопроволоки. Нанообъекты типа I представляют собой вытянутые островки, расположенные в пространстве между соседними тройными ступенями поверхности Si(7710). Нанообъекты типа II представляют собой чередующиеся ступени высотой в два и одно межплоскостное расстояние d_{111} . Нанообъектами типа III являются вытянутые структуры, одна грань которых состоит из равномерно расположенных ступеней высотой в $2d_{111}$ с общей ориентацией (223), а вторая грань имеет ориентацию (111) с поверхностной структурой 5×5.

Список литературы

- R.A. Zhachuk, S.A. Teys, A.E. Dolbak, B.Z. Olshanetsky. Surf. Sci. 565, 37 (2004).
- [2] Р.А. Жачук, С.А. Тийс, Б.З. Ольшанецкий. Письма в ЖЭТФ 79, 467 (2004).
- [3] J. Viernow, D.Y. Petrovykh, F.-K. Men, A. Kirakosian, J.-L. Lin, F.J. Himpsel. Appl. Phys. Lett. 74, 2125 (1999).
- [4] Zheng Gai, R.G. Zhao, W.S. Yang, T. Sakurai. Phys. Rev. B 61, 9928 (2000).
- [5] F.J. Himpsel, A. Kirakosian, J.N. Crain, J.-L. Lin, D.Y. Petrovykh. Solid State Commun. 117, 149 (2001).
- [6] A. Kirakosian, J.-L. Lin, D.Y. Petrovykh, J.N. Crain, F.J. Himpsel. J. Appl. Phys. 90, 3286 (2001).
- [7] J.-L. Lin, D.Y. Petrovykh, A. Kirakosian, H. Rauscher, F.J. Himpsel. Appl. Phys. Lett. 78, 829 (2001).
- [8] J.N. Crain, J.L. McChesney, Fan Zheng, M.C. Gallagher, P.C. Snijders, M. Bissen, C. Gundelach, S.C. Erwin, F.J. Himpsel. Phys. Rev. B 69, 125 401 (2004).
- [9] К.Н. Романюк, С.А. Тийс, Б.З. Ольшанецкий. ФТТ 48, 1716 (2006).

- [10] G. Jin, Y. S. Tang, J.L. Liu, K.L. Wang. Appl. Phys. Lett. 74, 2471 (1999).
- [11] H. Omi, T. Ogino. Phys. Rev. B 59, 7521 (1999).
- [12] B.Z. Olshanetsky, S.A. Teys. Surf. Sci. 230, 184 (1990).
- [13] В.И. Машанов, Б.З. Ольшанецкий. Письма в ЖЭТФ 36, 290 (1982).
- [14] R.J. Phaneuf, E.D. Williams. Phys. Rev. B 41, 2991 (1990).
- [15] Jian Wei, X.-S. Wang, J.L. Goldberg, N.C. Bartelt, E.D. Williams. Phys. Rev. Lett. 68, 3885 (1992).
- [16] A. Kirakosian, R. Bennewitz, J.N. Crain, Th. Fauster, J.-L. Lin, D.Y. Petrovykh, F.J. Himpsel. Appl. Phys. Lett. 79, 1608 (2001).
- [17] S.A. Teys, K.N. Romanyuk, R.A. Zhachuk, B.Z. Olshanetsky. Surf. Sci. 600, 4878 (2006).
- [18] S.A. Teys, B.Z. Olshanetsky. Phys. Low-Dim. Struct. 1/2, 37 (2002).
- [19] GH. J. Gossmann, J.G. Bean, L.C. Feldman, E.G. McRae, I.K. Robinson. Phys. Rev. Lett. 55, 1106 (1985).
- [20] Л.В. Соколов, М.А. Ламин, О.П. Пчеляков, С.И. Стенин, А.И. Торопов. Поверхность 9, 75 (1985).
- [21] U. Kohler, O. Jusko, G. Pietsch, B. Muller, M. Henzler. Surf. Sci. 248, 321 (1991).
- [22] R.S. Becker, J.A. Golovchenko, B.S. Swartzentruber. Phys. Rev. B 32, 8455 (1985).
- [23] S.A. Teys, I.G. Kozhemyako, B.Z. Olshanetsky. Phys. Low-Dim. Struct. 7/8, 81 (1999).
- [24] R. Hild, C. Seifert, M. Kammler, F.-J. Meyer zu Heringdorf, M. Horn-von-Hoegen, R.A. Zhachuk, B.Z. Olshanetsky. Surf. Sci. 512, 117 (2002).