

МЕХАНИЗМ ЭПИТАКСИИ КРЕМНИЯ НА ПОРИСТЫХ СЛОЯХ КРЕМНИЯ

П.Л.Новиков, Л.Н.Александров, А.В.Двуреченский, В.А.Зиновьев

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН

630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 26 декабря 1997 г.

После переработки 12 марта 1998 г.

Методом Монте-Карло исследован механизм процесса эпитаксии кремния на пористых слоях Si(111). Используется модель Гилмера диффузии адатомов, обобщенная на случай произвольной морфологии поверхности. В обобщенной модели допускаются вакансии и нависания атомов; энергия активации диффузионного скачка зависит от состояния соседних позиций в первой и во второй координационных сферах, причем учитываются также соседи, расположенные вне растущего элементарного слоя. Показано, что в рамках этой модели реализуется механизм эпитаксии путем образования метастабильных зародышей на краю пор с их последующим разрастанием по периметру и формированием тонкого сплошного нависающего слоя. Получены трехмерные изображения приповерхностных слоев на различных стадиях эпитаксии. Установлена зависимость кинетики процесса эпитаксии от количества осажденного кремния для различных пористостей подложки.

PACS: 61.66.Bi, 68.35.Fx, 68.55.Bd

В последнее время заметное внимание уделяется эпитаксии на пористом кремнии. Сохранение дальнего порядка и низкая плотность дефектов на плоской границе пористых слоев позволяют использовать эти слои в качестве подложки для эпитаксиального роста кремния. В ряде экспериментальных работ [1–3] была показана возможность получения сплошных монокристаллических пленок, под которыми захоронен пористый слой кремния. Однако механизм зарастания пор вблизи исходной поверхности пористого слоя остается невыясненным. В основе большей части работ по моделированию роста на плоской поверхности твердого тела лежит модель Уикса и Гилмера диффузии внутри слоя [4]. В этой модели рассматриваются два вида кинетических процессов: поступление атомов на поверхность из молекулярного пучка и термически активированные диффузионные прыжки атомов. Энергия активации зависит от числа соседей в первой и второй координационных сферах. В модели существенны следующие ограничения. Во-первых, запрещены вакансии и нависания атомов. Во-вторых, среди соседей во второй координационной сфере не учитываются те, которые расположены вне растущего элементарного слоя. Эти ограничения в принципе не позволяют использовать указанную модель для описания роста на пористой подложке. Первое исключает движение атомов по вертикальным стенкам пор, второе лишает возможности учета специфики диффузии атомов между слоями. В настоящей работе модель [4] обобщена с учетом межслоевой диффузии и на основе развитой модели изучена начальная стадия эпитаксии Si на пористых слоях Si(111).

Обобщенная модель диффузии строится на исходных посылах модели Уикса и Гилмера и включает два новых предположения. Во-первых, допускаются вакансии и нависания атомов. Во-вторых, суммирование вторых соседей, определяющих энергию активации диффузии, производится по всем 12 позициям во второй координа-

ционной сфере. Испарение атомов не рассматривается. Все численные параметры обобщенной модели скорректированы таким образом, чтобы процесс роста на гладкой поверхности Si(111) протекал идентично тому, как это происходит в модели диффузии Гилмера.

Вычислительный алгоритм строится на трехмерной сетке $(N_X \times N_Y \times N_Z) = (160 \times 160 \times 20)$, узлы которой соответствуют регулярным позициям атомов в кристаллической структуре кремния. Состояние тех ячеек, которые заполнены атомами, характеризуется числами N_1 и N_2 соседей в первой и второй координационных сферах соответственно ($0 \leq N_1 \leq 4, 0 \leq N_2 \leq 12$). Каждый атом совершает диффузионный прыжок с вероятностью $p(N_1, N_2, T)$. Конечная позиция диффузионного прыжка выбирается случайным образом среди пустых ячеек в первой и второй координационных сферах. При этом запрещены переходы, в результате которых атом не имеет ни одного соседа в первой координационной сфере. Вероятность диффузионного прыжка (при условии, что конечная позиция свободна) равна:

$$p(N_1, N_2, T) = p_0 \cdot \exp(-E/kT), \quad E = E_1 N_1 + E_2 N_2,$$

k – постоянная Больцмана, T – температура, $p_0 = \exp((E_1 + 3E_2)/kT)$ – множитель, выбранный таким образом, чтобы вероятность диффузионного прыжка на свободной поверхности (111) была равна единице. Для сокращения счета введена пороговая вероятность p_s , ограничивающая число "кандидатов" на диффузионный прыжок (активный массив) теми атомами, для которых $p(N_1, N_2, T) > p_s$. В рамках итерационного цикла производится сканирование по элементам активного массива. Временной интервал, отвечающий одному итерационному циклу, оценивается как $\tau = \chi \cdot p_0 / \nu$, где $\nu = 2.5 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$ – частота атомных колебаний; $\chi = 6/16$ – коэффициент, учитывающий соотношение между числами возможных конечных позиций для Si(111) во внутрислоевой и обобщенной моделях диффузии.

Параметр E_2 характеризует кинетику встраивания/отрыва адатомов на торцах элементарных слоев. Эти процессы исследовались методом моделирования в работе [5], в которой для $E_2 = 0.2 \text{ эВ}$ было достигнуто хорошее соответствие с экспериментом. Поскольку в нашей модели адатом на гладкой поверхности имеет одного соседа в первой и трех – во второй координационных сферах, то энергия активации поверхностной диффузии выражается как $E_A = E_1 + 3E_2$. В то же время, в ряде работ экспериментально определена величина $E_A = 1.3 \pm 0.2 \text{ эВ}$. Мы использовали значение $E_A = 1.34 \text{ эВ}$ [5], которому соответствует $E_1 = 0.74 \text{ эВ}$.

Вероятность попадания атома на поверхность из молекулярного пучка за время τ равна:

$$p_F = 2F\tau N_X N_Y,$$

где F – плотность молекулярного потока (бислой/с).

На гладкой поверхности Si(111) процессы роста в модели Гилмера и в представленной обобщенной модели протекают идентично.

В качестве подложки был взят слой $(160 \times 160 \times 14)$, пронизанный насквозь цилиндрическими отверстиями. Цилиндры распределены случайно по поверхности и ориентированы по нормали к ней. Число и радиус цилиндров являются параметрами моделирования.

При эпитаксии на пористой подложке протекают два конкурирующих процесса: рост островков и зарастивание пор на свободной поверхности. Специфика первого процесса связана с наличием эффективных стоков в виде пор, второго – с диффузией между слоями.

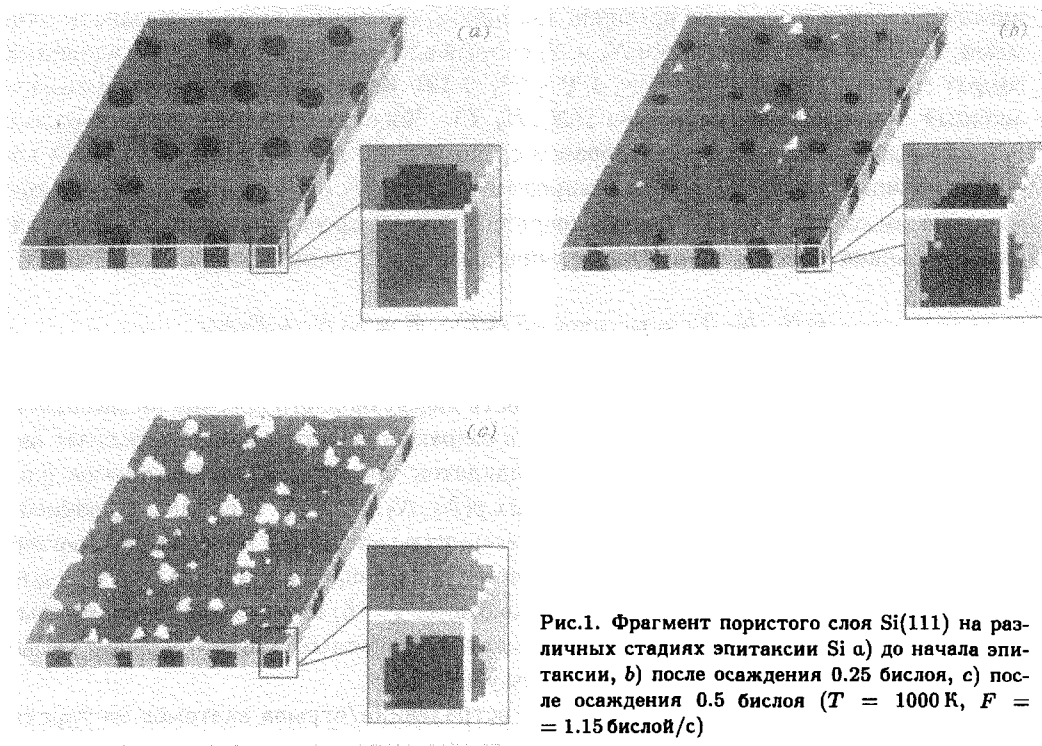


Рис.1. Фрагмент пористого слоя Si(111) на различных стадиях эпитаксии Si а) до начала эпитаксии, б) после осаждения 0.25 бислоя, в) после осаждения 0.5 бислоя ($T = 1000 \text{ K}$, $F = 1.15 \text{ бислоя/с}$)

На рис.1 изображен фрагмент слоя на различных стадиях эпитаксии. Для наглядности рельефа поверхности используется градуированная шкала тонов от темного к светлому по мере увеличения высоты относительно исходной поверхности. Светлым цветом изображены островки следующего слоя. Их рост происходит за счет встраивания адатомов на границах. Адаомы, попадающие из молекулярного пучка на поверхность небольших островков, быстро диффундируют на границу с последующим переходом в нижележащий слой и встраиванием. При этом в условиях вычислительного эксперимента ($T = 1000 \text{ K}$, $F = 1.15 \text{ бислоя/с}$) образование нависающих конфигураций и "вмороженных" вакансий на границах островков хотя и не запрещено, однако оказывается маловероятным. Поперечные сечения, показанные на торцах (поры – темным, кремний – светлым тоном), позволяют проследить эволюцию структуры пор по глубине. Видно, что основные изменения в порах происходят в верхних монослоях, что оправдывает выбор тонкого приповерхностного слоя подложки в качестве объекта для моделирования.

Процесс зарастивания пор носит случайный характер. Однако статистический анализ конфигураций связей, образуемых между структурой и атомами, диффундирующими вдоль стенок пор, обнаруживает некоторые общие закономерности. Сна-

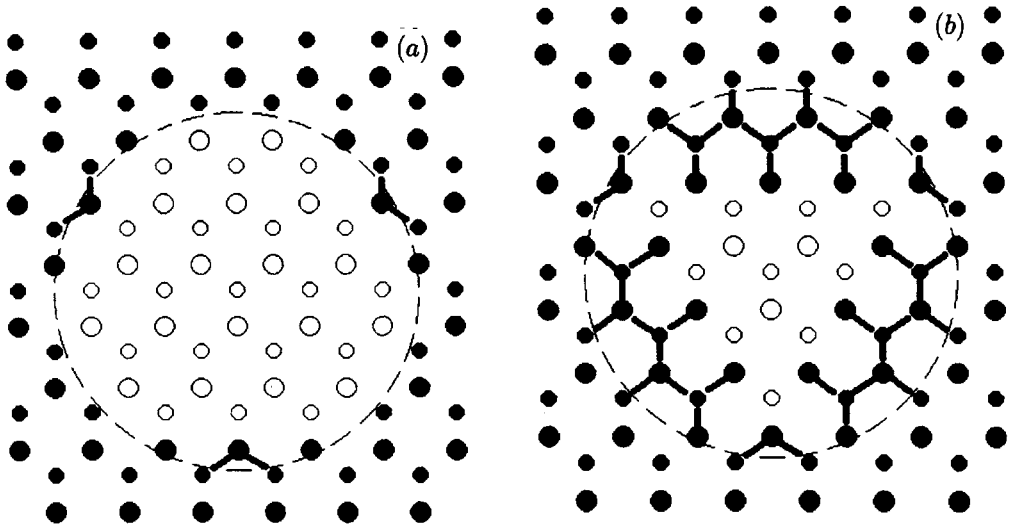


Рис.2. Образование нависающего слоя. Регулярные позиции в плоскостях двойного слоя Si(111) обозначены большими и малыми кружками. Черный цвет соответствует занятым позициям. Для атомов в нависающем слое показаны связи с ближайшими соседями: а) нестабильные зародыши, б) нависающий слой, образовавшийся путем присоединения новых атомов к стабильным зародышам

чала на краю поры образуется нестабильный зародыш – атом, удерживаемый двумя связями на боковой поверхности поры (рис.2а). Зародыш образует третью связь со структурой и становится стабильным после присоединения к нему нового атома. Таким образом, за счет добавления атомов по периметру поры формируется нависающий слой толщиной 1-2 биатомных слоя, который постепенно затягивает пору. Можно показать, что процессы десорбции не приводят к разрушению нестабильного зародыша до того, как к нему присоединится новый атом. Предполагая, что энергия активации десорбции зависит от числа первых и вторых соседей как $E_{DS} = E_{1DS}N_1 + E_{2DS}N_2$ и сравнивая ее значение для гладкой поверхности Si(111) 2.1 эВ [6] с энергией активации поверхностной диффузии 1.34 эВ ($2.1/1.34 = 1.57$), получим следующую оценку для параметров E_{1DS} и E_{2DS} :

$$E_{1DS} \approx E_1 \cdot 1.57 = 1.16 \text{ эВ}, \quad E_{2DS} \approx E_2 \cdot 1.57 = 0.31 \text{ эВ}.$$

Тогда можно оценить вероятность десорбции атома в нависающем слое по отношению к вероятности диффузионного скачка:

$$p_{DS}(N_1, N_2, T)/p(N_1, N_2, T) \approx \exp((E_1 - E_{1DS}) \cdot N_1 + (E_2 - E_{2DS}) \cdot N_2)/kT).$$

Для конфигурации $N_1 = 1$, $N_2 = 2$, соответствующей наименее связанному атому в нависающем слое, для $T = 1100 \text{ К}$ $p_{DS}/p \approx 1.2 \cdot 10^{-3}$. Поскольку это является оценкой сверху, то вкладом десорбции в процесс формирования нависающего слоя при $T \leq 1100 \text{ К}$ можно пренебречь.

Пока диаметр не затянувшейся поры достаточно велик (≥ 10 межатомных расстояний), фронт роста нависающего слоя разбивается по 6 выделенным направлениям, отражающим симметрию структуры Si(111). Этим объясняется тенденция преобразования формы края поры от круглой к шестиугольной. По мере уменьшения

размера поры усиливается неравнозначность выделенных направлений вследствие случайных флуктуаций, и форма края поры стремится от шестиугольной к треугольной (рис.2*b*).

Для характеристики морфологии поверхности пористого слоя Si(111) рассчитывалась плотность S [5], определяемая как доля атомов на вертикальных участках. На рис.3 представлены зависимости плотности ступеней от количества осажденного материала для различных пористостей P . На начальном этапе кривые имеют участок убывания для $P \geq 0.15$. Это соответствует уменьшению шероховатости растущей поверхности вследствие зарастивания пор. На этой стадии поры являются эффективными стоками для адатомов, зарождение островков подавлено, большая часть атомов из осаждающего пучка уходит в поры. Полученный результат согласуется с данными экспериментов по дифракции быстрых электронов на отражение в процессе эпитаксии Si на пористом Si(111) [3]. Уменьшение шероховатости продолжается до некоторого момента времени, после которого она увеличивается. Возрастание S связано с зарождением и последующим ростом островков на поверхности (рис.2*b*). Размер пор становится мал, и они уже не могут подавлять островковый рост. На рис.3 видно, что длина участка убывания S пропорциональна пористости. Это означает, что доля атомов, ушедших в поры, растет с увеличением пористости, то есть с возрастанием эффективности пор в качестве стоков. Уменьшение S при дальнейшем росте количества осажденного кремния, наблюдаемое для $P = 0.18$, связано с началом квазипериодических осцилляций S с периодом один биатомный слой, что соответствует квазипериодическим изменениям морфологии поверхности, происходящим при эпитаксии каждого последующего биатомного слоя. По сравнению со случаем эпитаксии на гладкой подложке ($P = 0$) осцилляции S проявляются при большей толщине осажденного слоя. Для $P = 0.32$ и $P = 0.5$ осцилляции начинаются после осаждения одного биатомного слоя и поэтому не видны на графике.

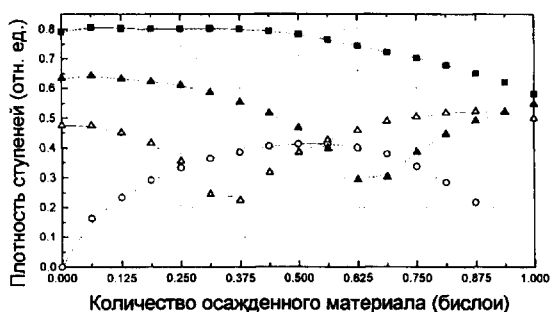


Рис.3. Зависимость плотности ступеней от количества осажденного кремния для различных пористостей подложки: о - $P = 0$, Δ - $P = 0.18$, ▲ - $P = 0.32$, ■ - $P = 0.5$ ($T = 1000$ К, $F = 1.15$ бислои/с)

При наличии окисла на стенках пор возможно изменение механизма эпитаксии. Учет этого фактора выходит за рамки нашей работы.

Работа выполнена на основе модели диффузии Гилмера, обобщенной на случай диффузии между слоями. Для Si(111) моделирование позволило выявить возможный детальный механизм роста на начальной стадии эпитаксии через образование нависающего слоя. Специфика кинетики эпитаксиального роста на пористых слоях определяется конкуренцией между процессами захвата атомов в поры и на островки. Подходы, выработанные при создании обобщенной модели, имеют универсальный

характер и могут быть применены к рассмотрению процессов с участием атомной диффузии на кристаллической поверхности с произвольной морфологией.

1. T.Yasumatsu, T.Ito, H.Nishizawa, and A.Hiraki, *Appl. Surf. Sci.* **48/49**, 414 (1991).
2. В.Г.Шенгуров, В.Н.Шабанов, Н.В.Гудкова, Б.Я.Ткач, *Микроэлектроника* **222**, 19 (1993).
3. E.Nossarzewska-Orlowska, D.Lipin'ski, M.Pawlowska et al., *Electron Technology* **29**, 196 (1996).
4. J.D.Weeks and G.H.Gilmer, *Adv. Chem. Phys.* **40**, 157 (1979).
5. D.D.Vvedensky and Sh.Clarke, *Surf. Sci.* **225**, 373 (1990).
6. A.V.Latyshhev, A.L.Aseev, A.B.Krasilnikov, and S.I.Stenin, *Surf. Sci.* **213**, 157 (1989).