

УДК 538.915

РАВНОВЕСНАЯ КОНЦЕНТРАЦИЯ ИЗЛОМОВ НА S_B СТУПЕНЯХ ПОВЕРХНОСТИ Si(100)

© 2022 г. М. Ю. Есин^{а, *}, С. А. Тийс^{а, **}, А. И. Никифоров^{а, б}

^аИнститут физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук, Новосибирск, 630090 Россия

^бНациональный исследовательский Томский государственный университет, Томск, 634050 Россия

*e-mail: yesinm@isp.nsc.ru

**e-mail: teys@isp.nsc.ru

Поступила в редакцию 25.05.2021 г.

После доработки 26.06.2021 г.

Принята к публикации 30.06.2021 г.

Представлены результаты исследований температурных и временных зависимостей концентрации изломов на ступенях S_A , S_B , перпендикулярных к димерным рядам верхней террасы поверхности Si(100) с отклонением 0.5° . Изображения ступенчатой поверхности Si(100) с атомным разрешением были получены методом сканирующей туннельной микроскопии. По изображениям определялось количество изломов на ступенях. Зависимость количества изломов от температуры имеет минимум при 650°C . Вероятно, что при низких температурах активнее происходит процесс “выглаживания” ступеней (исчезновение изломов ступеней), а при высоких температурах – “разрушение” ступеней (формирование большого количества изломов ступеней). Процесс “выглаживания” и “разрушения” ступеней, в свою очередь, состоит из последовательности элементарных актов атомов и димеров. Концентрация изломов уменьшается и выходит на стационарный уровень с увеличением длительности отжига. Равновесная концентрация изломов ступеней определяется температурой и длительностью отжига поверхности.

Ключевые слова: сканирующая туннельная микроскопия, поверхность Si(100), S_A ступень, S_B ступень, терраса, излом.

DOI: 10.31857/S1028096022020030

ВВЕДЕНИЕ

Известно, что на vicinalной поверхности Si(100) с углом отклонения более 2° в процессе отжига происходит формирование двояких ступеней [1]. Аналогичный эффект сдвигания ступеней можно наблюдать при эпитаксиальном росте на поверхности с меньшим отклонением от плоскости {100} [2, 3]. Для понимания физики процесса сближения и расхождения ступеней необходимо рассмотрение кинетики элементарных актов атомов на ступенях и террасах поверхности [4, 5]. Условия, влияющие на сближение однослойных ступеней, определяются поверхностной диффузией и анизотропией кинетики роста [3]. Когда происходит сближение ступеней в процессе роста молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) [2, 3, 6–8], на ступени одновременно действуют силы отталкивания, которые объясняются термодинамикой ступенчатой поверхности. Отталкивание между ступенями может возникать из упругого и эффективного энтропийного взаимодействия [1]. Если ступени отталкиваются вследствие действия

упругого или эффективного энтропийного взаимодействия, то ступени будут равноудалены друг от друга [9]. Морфология ступеней играет важную роль при движении ступеней в процессе МЛЭ [10–13]. Одним из важных вопросов остается определение равновесной концентрации S_B ступеней поверхности Si(100). В связи с этим поверхность Si(100) вызывает интерес к изучению равновесной структуры S_B ступеней.

Вследствие поверхностной перестройки атомов поверхность с моноатомными ступенями имеет двухдоменную структуру (2×1 и 1×2) с димерными рядами, расположенными перпендикулярно друг к другу [14, 15]. При отклонении поверхности Si(100) строго в направлении [110] край одной из ступеней будет расположен перпендикулярно к димерным рядам верхней террасы (S_B ступень), а край другой ступени – параллельно димерным рядам верхней террасы (S_A ступень). По причине этих структурных особенностей края S_A ступеней являются гладкими, а края S_B ступеней шероховатыми [16]. Таким образом, система,

состоящая из чередующихся моноатомных S_A и S_B ступеней на поверхности Si(100), является интересной для изучения кинетики элементарных процессов. Цель данной работы – поиск оптимальных условий формирования равновесной концентрации изломов S_B ступеней на поверхности Si(100).

Концентрация изломов S_B ступеней в процессе отжига уменьшается со временем и выходит на постоянный уровень. Концентрацию изломов, которая не изменяется со временем отжига, мы называем равновесной концентрацией изломов. Из выражения для концентрации изломов, предложенного Swartzentruber и др. в работе [16], следует, что концентрация изломов ступеней увеличивается при повышении температуры отжига. Наиболее вероятно, время, за которое происходит формирование равновесной концентрации изломов ступеней, должно уменьшаться при повышении температуры.

МЕТОДИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Отжиг и получение чистой поверхности кремния проводили в сверхвысоковакуумной установке к сканирующему туннельному микроскопу (СТМ) фирмы Omicron. Образцы кремния размером $12 \times 3 \times 0.4$ мм вырезали из подложки Si(100) *n*-типа с сопротивлением $5\text{--}10 \text{ Ом} \cdot \text{см}$, которая имела отклонение от плоскости $\{100\}$ к плоскости $\{111\}$ строго вокруг оси $\langle 110 \rangle$ на угол 0.5° . Перед установкой в камеру СТМ образцы обрабатывали в водном растворе смеси азотной кислоты и перекиси водорода для формирования тонкого защитного слоя оксида кремния. Последующее удаление защитного слоя оксида кремния прогревом в вакууме позволяло воспроизводимо получать атомарно-чистую поверхность. В вакуумной камере образцы предварительно обезгаживались (не менее 4 ч при температуре около 600°C), затем поверхность кремния очищалась прогревом при 1250°C несколько секунд при давлении не выше $(1\text{--}2) \times 10^{-10}$ Торр. Образец прогревался прямым пропусканием тока и охлаждался с помощью управляемого компьютером блока питания Agilent N5770A. Формирование исходной атомарно-чистой поверхности Si(100) происходило после охлаждения образца от 1250 до 350°C ступенчатым понижением тока накала по логарифмической зависимости под управлением компьютера. Суммарное время охлаждения составляло около 32 мин.

Отжиги исходной поверхности образца проводили в интервале температур $450\text{--}850^\circ\text{C}$ (с шагом 100°), время отжига варьировали от 5 до 160 мин. После отжигов и отключения тока накала образец остывал не менее одного часа с целью исключения термодрейфа во время записи изображений

СТМ. Калибровка температуры образца проводилась с помощью оптического пирометра.

В качестве СТМ-зонда использовались вольфрамовые иглы, полученные электролитическим травлением в растворе щелочи. СТМ-изображения поверхности записывались при комнатной температуре. Для всех изображений СТМ светлые участки на рисунках соответствуют выступающим частям рельефа поверхности, а темная расцветка соответствует углублениям. Для каждого отжига производился подсчет изломов по 8 изображениям СТМ размером 80×80 нм с суммарной длиной S_B ступени примерно 1500 нм.

РЕЗУЛЬТАТЫ

СТМ-изображение исходной поверхности после медленного охлаждения от 1250 до температуры 350°C показано на рис. 1а. Для сравнения на рис. 1б показано изображение поверхности после отжига 750°C в течение 40 мин. Как видно из полученных изображений, исходная поверхность после медленного охлаждения была более дефектная, чем после дополнительно отжига при 750°C . Аналогичный результат и для количества изломов на S_B ступенях. После медленного охлаждения изломов S_B ступеней больше, чем после дополнительного отжига при 750°C . Количество изломов на ступенях S_B при остывании от температуры 350°C мы приняли за исходную точку на зависимостях от температуры отжига (рис. 2), а также за начальную точку на зависимости количества изломов ступеней от длительности отжига (рис. 3).

На рис. 2 представлена зависимость количества изломов S_B ступеней поверхности Si(100) от температуры отжига. Количество изломов выбрано как сумма всех изломов с разной длиной на ступенях. Отжиг проводился в течение 40 мин при всех температурах. Как видно из рис. 2, кривая зависимости концентрации изломов S_B ступеней от температуры отжига имеет вид параболы с ветвями, направленными вверх, и минимумом при температуре 650°C . С увеличением температуры отжига концентрация изломов ступеней сначала уменьшается и затем (после температуры 650°C) начинает расти. Количество изломов S_B ступеней при 650°C по сравнению с 350°C меньше примерно на 25%.

На рис. 3 представлена зависимость количества изломов S_B ступеней поверхности Si(100) от длительности отжига при оптимальной температуре 650°C . Кривая зависимости количества изломов S_B ступеней от длительности отжига сначала падает и выходит на постоянный уровень. Концентрацию изломов ступеней, которая изменяется незначительно со временем отжига, будем считать равновесной концентрацией изломов

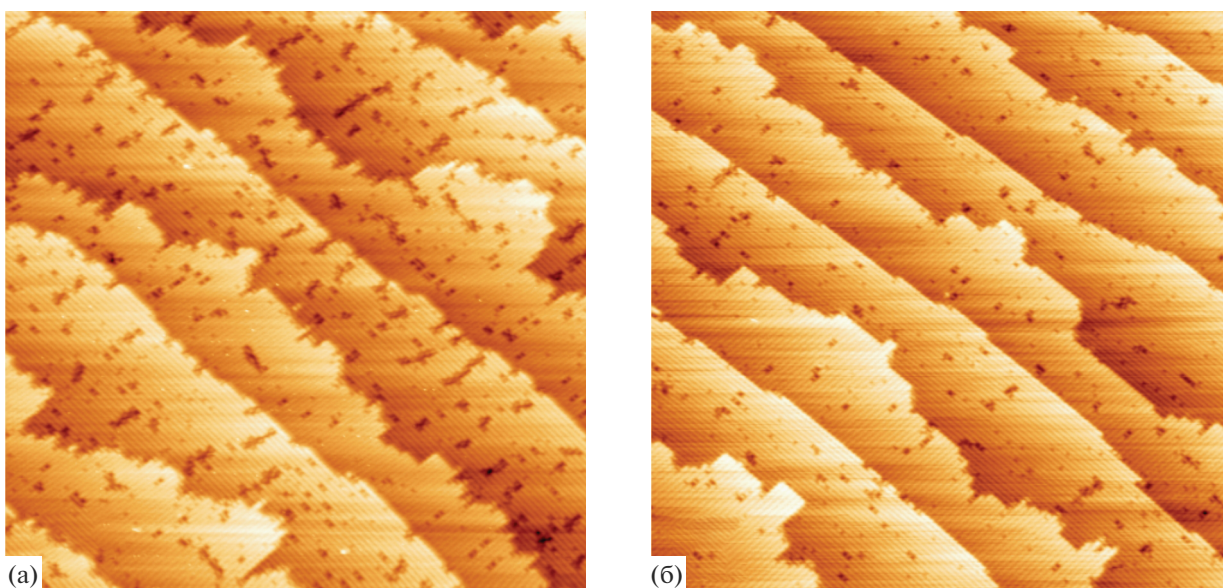


Рис. 1. Изображения СТМ поверхности Si(100) (80×80 нм): а – после медленного охлаждения до температуры 350°C , б – после отжига при температуре 750°C .

ступеней. Время формирования равновесной концентрации изломов для температуры отжига 650°C составляет примерно 20 мин.

На рис. 4 представлено изменение размеров изломов S_B ступеней после отжига при температуре 650°C в течение 40 мин. На врезке изображен фрагмент S_B ступени и измеряемая величина длины излома n . По оси Y отложено количество изломов ступеней в логарифмическом масштабе, по оси X отложена длина изломов в n атомах. Для двух температур распределения изломов S_B ступеней имеют логарифмическую зависимость. Можно видеть, что при температуре 650°C коротких

изломов (примерно $n \leq 8$) меньше, чем при 350°C , а длинных изломов (примерно $n > 20$), наоборот, больше.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Как известно из работ Chadi и др. [17], атомная структура S_B ступеней включает в себя перестроенные (rebonded) и неперестроенные (nonbonded) ступени. Атомы перестроенной ступени связаны с атомами нижележащей террасы, а атомы неперестроенной ступени не связаны. Неперестроенная структура атомов менее энергетически выгодна,

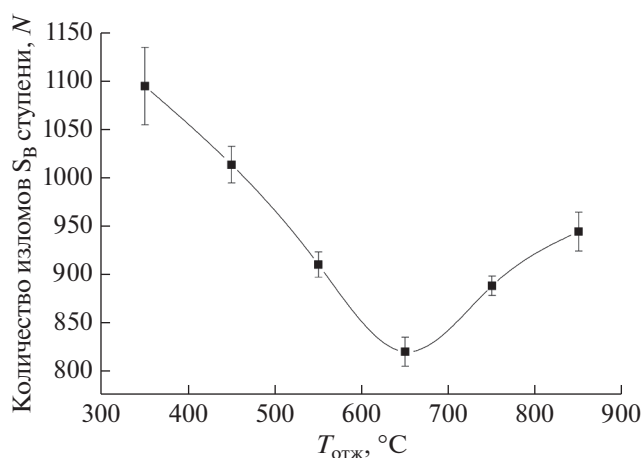


Рис. 2. Зависимость количества изломов S_B ступеней поверхности Si(100) от температуры отжига.

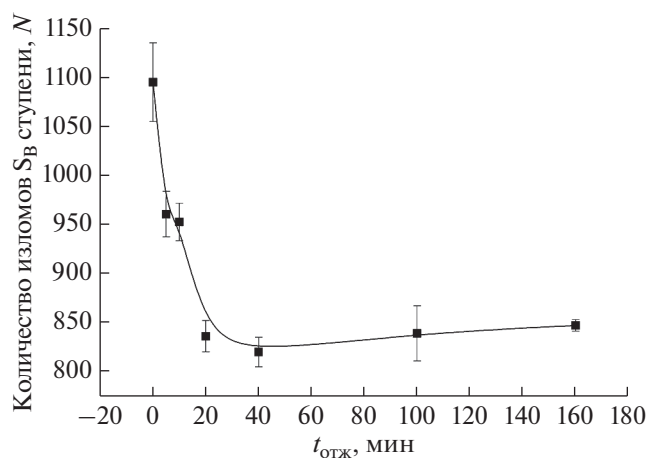


Рис. 3. Зависимость количества изломов S_B ступеней поверхности Si(100) от длительности отжига при температуре 650°C .

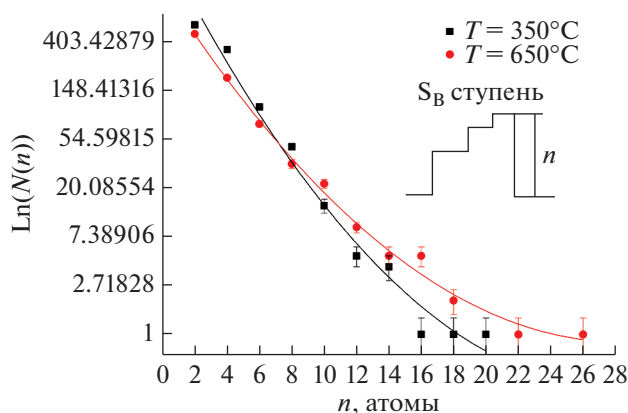


Рис. 4. Изменение размеров изломов S_B ступеней после отжига 650°C в течение 40 мин. На вставке показан схематично фрагмент S_B ступени и измеряемая величина длины излома n .

чем перестроенная структура атомов ступеней, несмотря на то что для последней деформация длины связи достигает 5% [17]. В реальных изображениях СТМ большинство ступеней имеют структуру перестроенных ступеней. Эти структурные особенности играют важную роль в определении энергетики ступеней поверхности [18].

Из работы [17] следует, что ступени ограничиваются в большинстве случаев перестроенной структурой атомов на ступени с атомами нижней террасы, при этом изломы чаще имеют длину, кратную $2a$ (a – постоянная решетки поверхностной ячейки). Формирование излома происходит путем отсоединения четырех атомов, составляющих два димера. Один из краев излома представляет собой часть сегмента S_A и другой край – часть сегмента S_B , причем независимо от того, излом это S_A или S_B ступени. Следует, что работа, затраченная на испарение комплекса двух димеров из одного излома, не зависит от типа ступени. А также эта работа (на атом), взятая с отрицательным знаком, равна химическому потенциалу кристалла Si в абсолютном нуле. Расстояние между изломами должно быть кратным $2a$ по той же причине [19].

Как ранее было показано Swartzentruber и др. в работе [16], что в предположении независимых изломов, т.е. $N(n) \sim \exp(-(E(n)/kT))$, где $N(n)$ – концентрация изломов длиной n атомов, $E(n)$ – энергия излома длиной n атомов, k – постоянная Больцмана и T – температура, энергия может быть выражена в форме $E(n) = n\epsilon_{SB} + C$. Величина ϵ_{SB} может быть интерпретирована как энергия на атом ступени, а C – константа, связанная с изломом. Энергия излома – сумма постоянной энергии угла и энергии формирования излома, которая пропорциональна длине излома. Такое рассмотрение справедливо для термически активированных изло-

мов. При строгой ориентации в азимутальном направлении [110] подложки Si(100) термически активированных изломов больше чем тех, которые появились в результате азимутальной разориентации. Согласно формуле концентрации изломов $N(n) \sim \exp(-(E(n)/kT)$, с увеличением температуры поверхности концентрация изломов S_B ступени увеличивается. Однако, полученный результат (рис. 2) имеет немонотонную зависимость концентрации изломов от температуры.

В данной работе показано, что концентрация изломов S_B ступеней при температуре отжига 650°C уменьшается со временем и выходит на постоянный уровень (рис. 3). Процесс “выглаживания”, по-видимому, будет состоять из последовательности элементарных актов: отсоединение димеров из излома или ступени, диффузия димера вдоль ступени или по террасе и присоединение димера к излому. В то время как формирование излома ступени будет состоять преимущественно только из процесса отсоединения димеров. Равновесная концентрация изломов достигается, когда количество термически активированных изломов скомпенсировано количеством исчезнувших изломов в процессе “выглаживания” ступени (согласно приведенному нами определению). Такое определение равновесной концентрации изломов несет скорее условный характер. Поскольку при достаточно высоких температурах отжига может возникнуть ситуация, когда максимально возможное количество изломов будет приблизительно равно количеству димерных рядов, и концентрация изломов перестанет изменяться.

Однако, как ранее уже упоминалось, существует процесс “выглаживания” и “разрушения” ступеней. Как следствие из полученной немонотонной зависимости количества изломов от температуры с минимумом при 650°C (рис. 2), вероятно, что при низких температурах активнее происходит процесс “выглаживания” ступеней (исчезновение изломов ступеней), а при высоких температурах – “разрушение” ступеней (формирование большого количества изломов ступеней). Вследствие этого получилось, что сначала (до температуры 650°C) концентрация изломов уменьшается с увеличением температуры отжига, а свыше 650°C – увеличивается.

Кроме того, было замечено, что с увеличением температуры отжига увеличивается количество длинных изломов ступеней (рис. 4). С увеличением длины изломов появляется несимметричный выступ ступени (в плоскости террасы): с одной стороны будет длинный излом, с другой – множество коротких изломов так, как это показано на рис. 5. В результате это приводит к увеличению концентрации изломов разной длины.

Для чисто однослойных ступеней поверхности Si(100), которые возникают при малых углах ра-

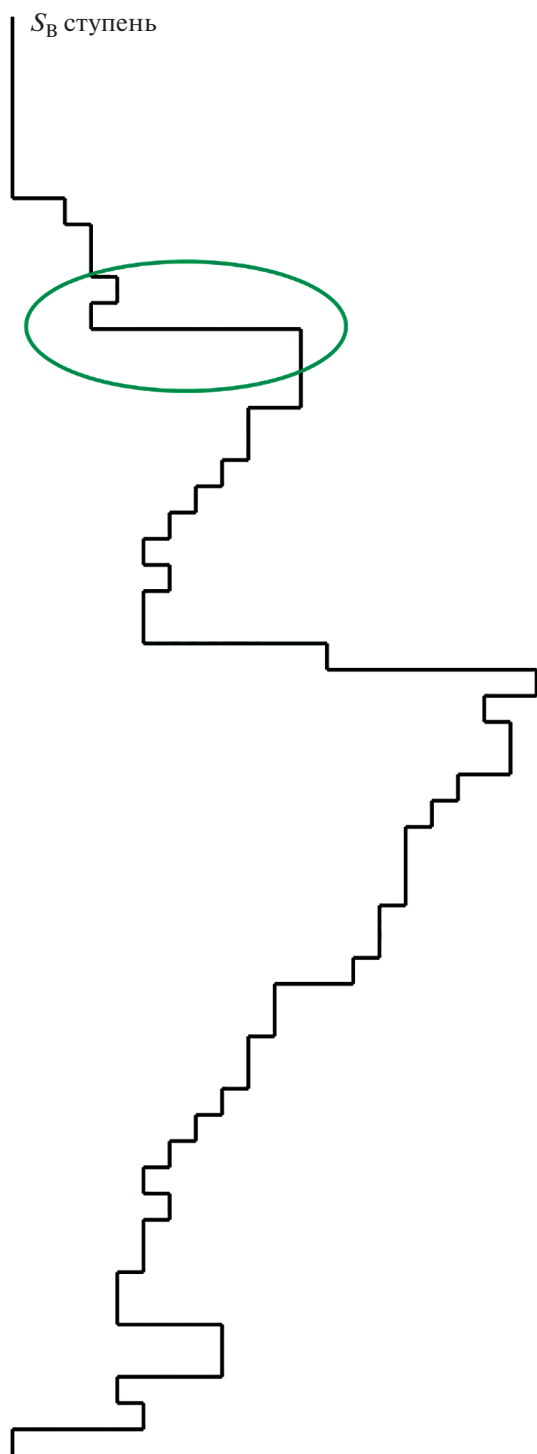


Рис. 5. Схематическое изображение вида сверху S_B ступени поверхности Si(100).

ориентации, конечные температуры приводят к термическому огрублению ступени [20]. Энтропийное отталкивание ступеней возникает из-за того, что ступени не пересекаются друг с другом. Сближение ступеней друг к другу уменьшает извилистость ступени и, таким образом, снижает

энтропию ступени. Столкновения ступеней приводят к эффективному энтропийному отталкиванию между ступенями [1]. Это ограничение имеет тенденцию подавлять количество длинных изломов вблизи соседней ступени. В большинстве случаев также присутствуют и другие взаимодействия [21, 22]. Упругое взаимодействие между ступенями оказывается намного сильнее, чем энтропийное отталкивание между ступенями [23].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Построены зависимости концентрации изломов S_B ступеней поверхности Si(100) от температуры и длительности отжига. Показано, что концентрация изломов S_B ступеней при температуре отжига 650°C уменьшается со временем и выходит на постоянный уровень. Зависимость концентрации изломов S_B ступеней от температуры отжига имеет немонотонный характер с минимумом при 650°C . В результате показано, что равновесная концентрация изломов S_B ступеней определяется температурой и длительностью отжига поверхности Si(100).

БЛАГОДАРНОСТИ

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ и Правительства Новосибирской области в рамках научного проекта № 19-42-543010.

Конфликт интересов: авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ:

1. Swartzentruber B.S., Kitamura N., Lagally M.G., Webb M.B. // Phys. Rev. B. 1993. V. 47. № 20. P. 13 432. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.47.13432>
2. Aizaki N., Tatsumi T. // Surf. Sci. 1986. V. 174. P. 658. [https://doi.org/10.1016/0039-6028\(86\)90488-7](https://doi.org/10.1016/0039-6028(86)90488-7)
3. Stoyanov S. // Europhys. Lett. 1990. V. 11. № 4. P. 361. <https://doi.org/10.1209/0295-5075/11/4/012>
4. Zhao R., Ackerman D.M., Evans J.W. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. № 23. P. 235441. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.235441>
5. Zhao R., Evans J.W., Oliveira T.J. // Phys. Rev. B. 2016. V. 93. № 16. P. 165411. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.165411>
6. Wierenga P.E., Kubby J.A., Griffith J.E. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 59. № 19. P. 2169. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.59.2169>
7. Hoeven A.J., Lenssinck J.M., Dijkkamp D., Van Loenen E.J., Dieleman J. // Phys. Rev. Lett. 1989. V. 63. № 17. P. 1830. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.63.1830>
8. Itoh H., Narui S., Zhang Z., Ichonokawa T. // Surf. Sci. Lett. 1992. V. 277. P. L70. [https://doi.org/10.1016/0167-2584\(92\)90136-S](https://doi.org/10.1016/0167-2584(92)90136-S)

9. *Swartzentruber B.S., Schacht M.* // Surf. Sci. 1995. V. 322. № 1–3. P. 83.
[https://doi.org/10.1016/0039-6028\(95\)90019-5](https://doi.org/10.1016/0039-6028(95)90019-5)
10. *Алейнер И.Л., Сурус Р.А.* // ФТТ. 1992. Т. 34. Вып. 5. С. 1522.
11. *Hervieu Yu.Yu., Markov I.* // Surf. Sci. 2014. V. 628. P. 76.
<https://doi.org/10.1016/j.susc.2014.05.016>
12. *Hervieu Yu. Yu.* // Russ. Phys. J. 2020. V. 63. № 6.
<https://doi.org/10.1007/s11182-020-02116-1>
13. *Rodyakina E.E., Sitnikov S.V., Rogilo D.I., Latysheva A.V.* // J. Cryst. Growth. 2019. V. 520. P. 85.
<https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2019.05.026>
14. *Tromp R.M., Hamers R.J., Demuth J.E.* // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. № 12. P. 1303.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.55.1303>
15. *Hamers R.J., Tromp R.M., Demuth J.E.* // Phys. Rev. B. 1986. V. 34. № 8. P. 5343.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.34.5343>
16. *Swartzentruber B.S., Mo Y.-W., Kariotis R., Lagally M.G., Webb M.B.* // Phys. Rev. Lett. 1990. V. 65. № 15. P. 1913.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.65.1913>
17. *Chadi D.J.* // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 59. № 15. P. 1691.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.59.1691>
18. *Poon T.W., Yip S., Ho P.S., Abraham F.F.* // Phys. Rev. Lett. 1990. V. 65. № 17. P. 2161.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.65.2161>
19. *Markov I.V.* Crystal Growth for Beginners: Fundamentals of Nucleation, Crystal Growth, and Epitaxy. New Jersey, London, Singapore, Hong Kong: World Scientific, 2003. P. 546.
20. *Pehlke E., Tersoff J.* // Phys. Rev. Lett. 1991. V. 67. № 4. P. 465.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.67.465>
21. *Марченко В.И., Паршин А.Я.* // ЖЭТФ. 1980. Т. 79. Вып. 1(7). С. 257.
22. *Alerhand O.L., Vanderbilt D., Meade R.D., Joannopoulos J.D.* // Phys. Rev. Lett. 1988. V. 61. № 17. P. 1973.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.61.1973>
23. *Van Dijken S., Zandvliet H.J.W., Poelsema B.* // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 55. № 12. P. 7864.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.55.7864>

Equilibrium Kink Concentration on S_B Steps of the Si(100) Surface

M. Yu. Yesin^{1, *}, S. A. Teys^{1, **}, and A. I. Nikiforov^{1, 2}

¹*Rzhanov Institute of Semiconductor Physics Siberian Branch of Russian Academy of Sciences, Novosibirsk, 630090 Russia*

²*National Research Tomsk State University, Tomsk, 634050 Russia*

**e-mail: yesinm@isp.nsc.ru*

***e-mail: teys@isp.nsc.ru*

The investigation results of the temperature and time dependences of the kink concentration on steps perpendicular to the upper terrace dimer rows of the Si(100) surface with an inclination of 0.5° is presented in the paper. Atomic-resolution images of the stepped Si(100) surface were obtained by scanning tunneling microscopy. The number of kinks on the steps was determined by the images. The dependence of the number of kinks on temperature has a minimum at 650°C . It is likely that at low temperatures, the step “smoothing” process (the step kink disappearance) occurs more actively, and at high temperatures – the step “destruction” (the formation of a large number of step kinks) occurs. The process of step “smoothing” and “destruction”, in turn, consists of a sequence of atom and dimer elementary acts. The kink concentration decreases and reaches a stationary level with an increase in the annealing duration. The equilibrium step kink concentration is determined by the surface annealing temperature and duration.

Keywords: scanning tunneling microscope, the Si(100) surface, S_A -step, S_B -step, the terrace, the kink.