

Отчет за период 2015-2017

- Тема работы: Моделирование методом Монте-Карло гетероэпитаксиального роста на структурированных подложках с ямками различного профиля.
- Состав коллектива: ФИО без сокращений, места работы/учёбы, должности, учёные степени и звания. Опционально контактный адрес электронной почты:
Новиков Павел Леонидович, с.н.с. ИФП СО РАН, к.ф.-м.н., novikov@isp.nsc.ru
Смагина Жанна Викторовна, н.с. ИФП СОРАН, к.ф.-м.н., smagina@isp.nsc.ru
Рудин Сергей Алексеевич, аспирант ИФП СО РАН, rudin@isp.nsc.ru
-
- Если работа выполняется по гранту - информация о гранте (название, номер, руководитель, срок действия, ...)
- РФФИ (грант 13-02-01181 А), «Зарождение и рост nanoостровков Ge на кремниевых подложках с модулированным вдоль поверхности распределением радиационных дефектов», Смагина Жанна Викторовна, 2013-2015.
-
- Научное содержание работы:
 1. Постановка задачи.

Островки GeSi, получаемые гетероэпитаксией, привлекают внимание исследователей благодаря возможностям их применения электронных и оптоэлектронных устройствах и приборах нового поколения. Рассогласование по постоянной решетки между пленкой и подложкой могут приводить к росту напряженных пленок. Пленка часто растет в послойном режиме, пока при достижении критической толщины не начинают формироваться 3D островки по известному механизму Странского-Крастанова. В напряженной пленке переход к росту островков энергетически выгоден, поскольку он снижает упругие деформации в системе. На плоской поверхности Si(001) наблюдается ряд морфологических изменений nanoостровков с увеличением количества осажденного Ge при сравнительно высоких температурах роста: пре-пирамиды — пирамиды — хат-кластеры — дома - барны. Положение островков беспорядочно и на плоской поверхности не поддается точному контролю. Для решения проблемы был предложен препаттернинг в виде периодически расположенных ямок. Ямки служат ловушками для атомов Ge при осаждении, что приводит к формированию nanoостровков в заданных позициях. Кроме этого, такие nanoостровки отличаются повышенной однородностью по форме и размерам. Вопреки, изложенному схематическому описанию, рост пленок SiGe включает более сложные механизмы. Сюда входит комбинация масштабных упругих деформаций с беззародышевой морфологической нестабильностью, анизотропия поверхности, а также разнообразные поверхностные перестройки на стенках ямок и канавок. Ранее нам удалось выяснить механизм зарождения nanoостровков на структурированных подложках кремния методом молекулярной динамики и Монте-Карло. Были получены ответы на вопросы о связи местоположения nanoостровков с распределением поверхностных деформаций.

В данной работе исследуется эффект формы дна ямок на зарождение островков Ge. Зависимость местоположения островков от формы доньшек сначала предсказана на основании анализа моделирования методом МК, затем воспроизведена в условиях вычислительного эксперимента (также методом МК), и, наконец, подтверждена в реальном эксперименте. Выявлен новый механизм зарождения, связанный с перемещением релаксированной (по отношению к германию) области упругих деформаций в процессе осаждения смачивающего слоя германия.

2. Современное состояние проблемы (на момент начала работы).

Из теоретических работ, посвященных росту на структурированных подложках, можно отметить следующие. Эффект самоупорядочения при осаждении материала на рельефную поверхность изучался в работе Капона с коллегами (G. Biasiol, A. Gustafsson, K. Leifer, and E. Karon, Mechanisms of self-ordering in nonplanar epitaxy of semiconductor nanostructures, *Phys. Rev. B* 65 (2002) 205306). На примере поверхности, содержащей систему параллельных канавок трапецевидного профиля, в рамках феноменологической модели была решена кинетическая задача об эволюции морфологии поверхности в условиях гомоэпитаксиального роста. Было показано, что при диффузии адатомов, возникающей вследствие градиента химпотенциала поверхности, возможны два режима роста, определяющие характер эволюции профиля канавки. В зависимости от соотношения химпотенциалов на горизонтальных и наклонных участках поверхности, в процессе роста возникает стабилизация ширины канавки либо на доньшке, либо в верхней ее части. В обоих случаях глубина канавки монотонно уменьшается со временем, что в итоге должно приводить к полному выглаживанию поверхности. Результаты решения кинетической задачи можно качественно перенести на случай ямок пирамидальной формы.

Руководителем предлагаемого проекта с коллегами (P. Novikov, Zh. Smagina, D. Vlasov, A. Deryabin, A. Kozhukhov, A. Dvurechensky, "Space arrangement of Ge nanoislands formed by growth of Ge on pit-patterned Si substrates", *Journal of Crystal Growth*, Vol. 323, Issue 1 (2011) pp 198-200) с помощью моделирования методом молекулярной динамики был рассчитан потенциальный рельеф поверхности, содержащей ямку в форме перевернутой пирамиды, для двух ориентаций подложки - (001) и (111). Было показано, что на краю ямки возникает энергетический барьер (~ 1 эВ), блокирующий миграцию адатомов по диффузионным каналам. Основной маршрут миграции адатомов в глубь ямки проходит по линиям пересечения боковых граней ямки к доньшке, где лежит наиболее глубокий минимум (-2.84 эВ для Si(001) и -3.06 эВ для Si(111)).

В теоретической работе Вастолы с коллегами (G. Vastola, F. Montalenti and Leo Miglio, "Understanding the elastic relaxation mechanisms of strain in Ge islands on pit-patterned Si(001) substrates", *J. Phys: Condens. Matter* 20 (2008) 454217) в приближении сплошной среды решалась упругая задача в системе Si/Ge(001) на структурированной подложке. Были рассмотрены две альтернативные морфологии пленки Ge, заполняющей в кремнии ямку в форме перевернутой пирамиды с тангенсом угла наклона 0.2 ("обратный hut-кластер"). В одном случае германий заполнял ямку равномерно от доньшка, в другом - принимал форму hut-кластера (прямого, т.е. вершиной вверх). Для обеих морфологий была рассчитана энергия гетероэпитаксиальной системы как функция объема германия. Было показано, что при объеме Ge, превышающем 200 нм^3 , hut-кластер оказывается энергетически выгодным. В случае 50%-ого перемешивания Si и Ge критический объем увеличивается до 8000 нм^3 . Удельная энергия поверхности, заложенная в расчеты, была взята из результатов другой работы, без учета ориентации граней и сверхструктурных перестроек. Поэтому полученные значения критического объема могут содержать большую погрешность.

В работе Райтери (P. Raiteri, D.B. Migas, and Leo Miglio, "Critical Role of the Surface Reconstruction in the Thermodynamic Stability of {105} Ge Pyramids on Si(001)", *Phys. Rev. B* 88 (2002) 256103) была исследована проблема термодинамической стабильности hut-кластеров Ge на Si(001) с учетом сверхструктурных перестроек. Авторы работы изучали энергетику гетеросистемы с помощью моделирования методами *ab initio* и молекулярной динамики. Расчеты показали, что сверхструктурные перестройки на плоских участках поверхности и расположение атомов на наклонных гранях островков играют ключевую роль в вопросе о стабильности германиевого наноструктура и о размере критического hut-кластера.

3. Подробное описание работы, включая используемые алгоритмы. Полученные результаты. Иллюстрации, визуализация результатов.

В основе модели лежит трехмерная кристаллическая решетка типа алмаза с периодическими граничными условиями по координатам X и Y (вдоль поверхности подложки). Каждый узел может быть занят атомом кремния, германия или быть пустым. Для учета упругой деформации каждый атом характеризуется вектором смещения относительно радиус-вектора узла идеальной решетки кремния.

Моделирование роста производится методом Монте-Карло, заключающемся в выполнении последовательности элементарных событий, выбираемых случайным образом в соответствии с их вероятностями. Возможны события двух типов: добавление нового атома (осаждение) и диффузионный прыжок атома по поверхности (переход атома из одного узла кристаллической решетки в другой). Вероятность осаждения атома вычисляется исходя из требуемой скорости роста (т.е. числа осаждаемых монослоев (МС) в единицу времени). Вероятности диффузионных прыжков будут рассмотрены нами ниже.

Важнейшей величиной при моделировании роста является полная энергия кристалла, состоящая из энергии связи упругой энергии. Энергия связи была взята по аналогии с моделью, разработанной Введенским и Кларке. Эта энергия является линейной комбинацией числа ближайших и вторых соседей с коэффициентами в виде соответствующих энергий на одну связь. Соответственно, суммированием по всем связям получается полная энергия системы. В развитой нами модели к этой энергии добавляется энергия упругой деформации, выражаемая в виде потенциала Китинга.

Вероятность диффузионного прыжка выбрана нами так, чтобы удовлетворить двум условиям: 1) вероятность прыжка зависит только от состояния ближайшего окружения узла, из которого прыгает атом (в пределах второй координационной сферы); 2) вероятности прямого ($i \rightarrow j$) и обратного ($j \rightarrow i$) прыжков удовлетворяют принципу детального равновесия. Разрешены любые прыжки из заполненного узла в пустой в пределах 2-й координационной сферы, за исключением прыжков, приводящих к «отрыву» атома от кристалла. Критерием отсутствия «отрыва» является наличие, по крайней мере, двух вторых соседей у каждого атома. После прыжка $i \rightarrow j$ (или осаждения нового атома в узел j) положение атома r_j выбирается случайно в соответствии с распределением Больцмана.

Этого, однако, еще не достаточно для моделирования роста. Дело в том, что изменения, происходящие на поверхности кристалла, влияют на упругую деформацию внутри кристалла. Таким образом, модель гетероэпитаксиального роста должна обеспечивать «отклик» положений атомов в глубине кристалла на элементарные события – диффузионные прыжки и добавление новых атомов. Стандартный способ обеспечения такого «отклика» заключается в решении задачи теории упругости на каждом шаге Монте-Карло, т.е.

в вычислении новых положений всех атомов после каждого элементарного события. Мы предложили альтернативный подход, основанный на локальных манипуляциях, удовлетворяющих принципу детального равновесия. А именно, после каждого элементарного события выбираются случайным образом N атомов кристалла (где N – настраиваемый параметр модели) и каждый из них смещается в новое положение, выбранное случайно в соответствии с больцмановским распределением.

Данный алгоритм является эффективным (по сравнению со стандартным методом учета упругой деформации в процессе роста), хорошо масштабируемым и подходящим для распараллеливания. Первое свойство вытекает из того, что в нашем алгоритме не требуется полного решения задачи теории упругости на каждом шаге Монте-Карло. Второе и третье свойства следуют из локальности всех входящих в алгоритм операций. Действительно, вычисление вероятности события требует обработки информации о состоянии лишь небольшого фрагмента кристалла, состоящего из 16 атомов или меньше (положение атома до прыжка + его 1-е и 2-е соседи). То же относится и к выбору положения атома согласно

большинству распределению. Таким образом, затраты машинного времени на обработку одного элементарного события практически не зависят от размера моделируемой структуры.

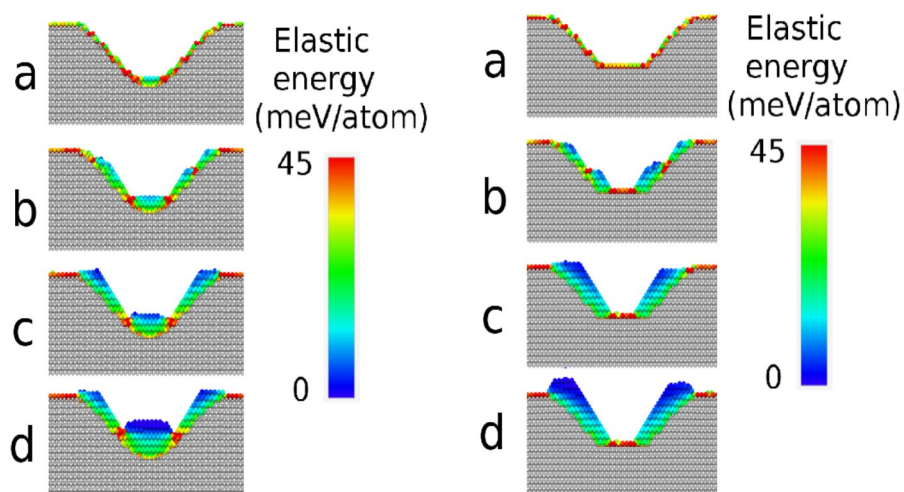


Рис. 1. (Слева): Эволюция распределения упругой энергии в ямке с изначально заостренным доньшком в процессе роста Ge на Si, имитируемом моделированием МК. Количество осажденного Ge: (a) 2 МС, (b) 2.5 МС, (c) 3 МС и (d) 3.5 МС. Величина упругой удельной энергии отображена с помощью цветовой шкалы. Скорость осаждения 0.1 МС/с. Температура роста 450 °С. (Справа): то же для ямки с плоским дном.

На рис. 1 представлены рассчитанные распределения упругой энергии в ямках треугольного (слева) и трапециевидного (справа) профиля на разных стадиях осаждения германия. Величина энергии индицируется цветом: синий цвет соответствует наименьшим, красный — наибольшим энергиям. Видно, что в ямках треугольного профиля наиболее релаксированная (по отношению к германию) область локализована на доньшке ямки на всех стадиях осаждения. Иная ситуация наблюдается в ямках с плоским дном. В них на начальной стадии осаждения релаксированная область располагается на дне, а после осаждения 3 монослоев (МС) смещается вверх к краям. В итоге при количестве осажденного германия 3.5 МС релаксированная область переходит вверх на край ямки.

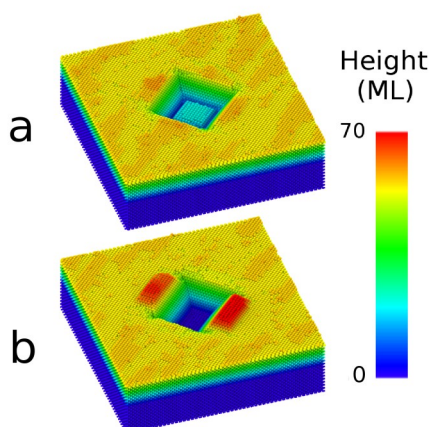


Рис. 2. Общий вид структуры Si/Ge, полученной моделированием МК, имитирующим рост Ge на структурированной подложке Si(001) при $T=450$ °С. Цветовая шкала показывает высоту атомных слоев по отношению к границе с подложкой Si. До начала осаждения ямка имела (a) треугольный или (b) трапециевидный профиль в поперечном сечении соответственно. Количество осажденного Ge 4 ML.

Данный результат позволяет предсказать места зарождения трехмерных наноструктур германия при увеличении степени осаждения с переходом от послойного режима роста к образованию трехмерных островков (переход Странского-Крастанова). Поскольку энергетически выгодным является образование наноструктуры на участках, релаксированных по отношению к германию, то в ямках треугольного профиля островки должны расти в центре (на доньшках) ямок, а в ямках с широким дном — на краях. Для проверки этого предположения была проведена серия вычислительных экспериментов методом Монте-Карло. Результаты представлены на Рис. 2. Цветом отображена высота по отношению к границе с кремниевой подложкой. Видно, что после осаждения 4 МС германия наноструктура зарождается на доньшке ямки с первоначально треугольным профилем (Рис. 2а), в то время как два островка образуются на краях ямки с первоначально плоским дном (Рис. 2 б).

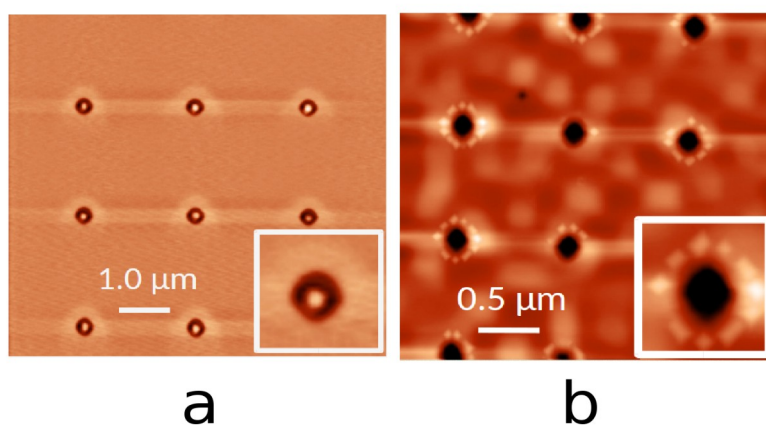


Рис. 3. АСМ-изображения поверхности после осаждения 4 МС Ge на структурированную подложку при 700 °С. Осаждение проводилось на образцах с ямками (а) с заостренным дном и (б) с плоским дном соответственно.

- Эффект от использования кластера в достижении целей работы.
Несмотря на оптимизацию алгоритма, реализация моделирования на основе модели МК, учитывающей упругие деформации в системе, требуют значительных затрат машинного времени. По сравнению с ПК, процессоры, используемые на ИВЦ НГУ, обладают большей производительностью. Кроме того, в перспективе предполагается в рамках модели МК разработать алгоритм параллельных вычислений. Ожидается, что эффективность использования ИВЦ за счет этого повысится в несколько раз.
- Перечень публикаций, содержащих результаты работы (если есть). Если имеется, указать импакт-фактор журнала (Thomson Reuters, РИНЦ,...).
1. [Smagina, Z.V.](#) et al., «Nucleation sites of Ge nanoislands grown on pit-patterned Si substrate prepared by electron-beam lithography», *Journal of Applied Physics*, 2018, 123(16), 165302 (impact factor 2.4)
- Опционально: ваши впечатления от работы вычислительной системы и деятельности ИВЦ НГУ, а также предложения по их совершенствованию.

В настоящее время для решения задач, связанных с моделированием гетероэпитаксиального роста на структурированных подложках, ИВЦ НГУ является наиболее предпочтительной альтернативой по сравнению с вычислительными кластерами, имеющимися в ИФП СО РАН.