

УДК 621.382-184.48.774.002.5

© В. Н. Петров, Н. К. Поляков, В. Н. Демидов, Н. П. Корнеева, Г. Э. Цырлин

## РАЗВИТИЕ МЕТОДИКИ МОЛЕКУЛЯРНО-ПУЧКОВОЙ ЭПИТАКСИИ В ИНСТИТУТЕ АНАЛИТИЧЕСКОГО ПРИБОРОСТРОЕНИЯ РАН

В работе приведен исторический обзор создания установок молекулярно-пучковой эпитаксии серии ЭП в НТО АН СССР. Представлены полученные в Лаборатории эпитаксиальных технологий ИАнП РАН за 1993–1999 годы научные результаты по теоретическим и экспериментальным исследованиям процессов эпитаксиального роста. Представлены проведенные разработки по усовершенствованию ростовой аппаратуры: комплекс для визуализации и компьютерной обработки картин ДБЭО, система автоматизации процессов роста. Дан прогноз перспективам дальнейшего развития аппаратуры и использования методики МПЭ.

### ВВЕДЕНИЕ

Термин «эпитаксия» происходит от греческих слов *επι* (на) и *ταξις* (расположение в порядке). Он был предложен в 1928 году Руайе для описания процесса ориентированного нарастания кристаллов друг на друге. При определенных благоприятных условиях кристаллизации одного вещества на монокристалле другого (в частном случае на собственном кристалле) образуются эпитаксиальные пленки с монокристаллической структурой.

В последующие годы эпитаксиальные методы исследовались не только теоретически, были созданы технологии эпитаксиального роста из жидкой и газовой фаз. В конце 50-х годов был налажен массовый выпуск полупроводниковых приборов (диодов, транзисторов) по планарно-эпитаксиальной технологии. Однако методика молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) разрабатывалась только теоретически в связи с отсутствием в те годы аппаратуры, удовлетворяющей необходимым требованиям, главным образом по не содержащему углеводородов сверхвысокому вакууму (менее  $5 \cdot 10^{-8}$  Па). К концу 60-х годов были созданы установки для изучения поверхностей различными методами, требующими сверхвысокого вакуума (РФС, Оже-спектроскопия и др.), была создана приборная база с безмасляными средствами откачки, и у ученых возникла настоятельная потребность в возможности не просто исследования ранее полученных структур, но и возможности модификации поверхностей непосредственно в процессе исследований в условиях сверхвысокого вакуума. Серийно выпускавшиеся установки начали оснащаться различными источниками напыления. С другой стороны, возникла необходимость экспериментального подтверждения в первом приближении теоретически разработанной методики МПЭ, и в середине 70-х годов были выпущены

первые установки, состоящие из модулей МПЭ и диагностических. В СССР первый опытный образец установки МПЭ был выпущен в НИТИ (г. Рязань) в 1979 году.

### КРАТКИЙ ИСТОРИЧЕСКИЙ ОБЗОР СОЗДАНИЯ УСТАНОВОК МОЛЕКУЛЯРНО- ПУЧКОВОЙ ЭПИТАКСИИ В НТО АН СССР

Разработка первой в НТО АН СССР многометодовой установки была начата в начале 1984 года, для чего был сформирован состоящий из сотрудников СКБ АП и ИАнП коллектив. Работы по созданию установки были проведены в рекордно короткие сроки, и изготовление установки опытным производством СКБ АП было завершено в конце 1985 года. В состав установки вошли оснащенный методикой дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО) модуль МПЭ и два диагностических модуля, реализующие методики Оже-спектроскопии, вторично-ионной масс-спектрометрии, рентгеновской фотоэмиссионной спектроскопии (РФС) с возможностью использования синхротронного излучения. Однако в процессе изготовления, пусконаладочных работ и лабораторных испытаний выявилось большое количество проблем, например получение сверхвысокого (менее  $2 \cdot 10^{-8}$  Па) вакуума заданного масс-спектрального состава при наличии сильно разогретых (до 1200 °С) физических узлов, достижение безотказности работы механических узлов передачи перемещений, расшифровка масс-, РФ- и Оже-спектров, снятых в сверхвысоком вакууме, не содержащем углеводородов. Большие проблемы возникли с изготовлением деталей из пиролитического нитрида бора, используемого в качестве материала для изготовления тиглей молекулярных источников, для решения которых впоследствии была разработана специальная технология



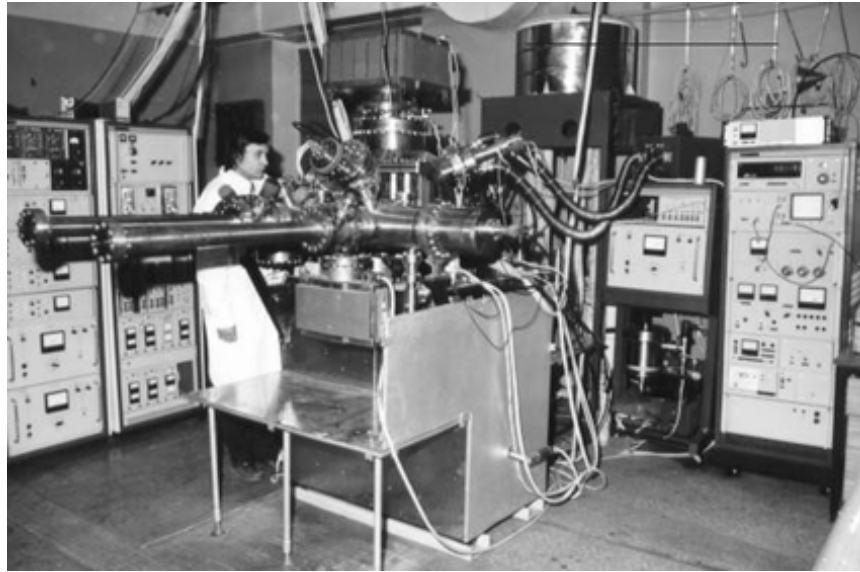
**Рис. 1.** Коллектив сотрудников НТО АН СССР при сдаче первого серийного образца установки ЭП1201 на ЭЗНП (пос. Черноголовка)

с участием специалистов ЭЗНП и ИПТМ АН СССР. Получить качественные эпитаксиальные структуры на первой установке не удалось, однако выявленные при ее опытной эксплуатации проблемы были успешно устранены при создании последующих моделей установок МПЭ. В конце 80-х годов была создана серия из шести типов установок МПЭ, которые начали серийно производиться на ЭЗНП НТО АН СССР (пос. Черноголовка Московской области). На рис. 1 представлен коллектив сотрудников НТО АН СССР при сдаче первого серийного образца установки ЭП1201. В процессе создания установок МПЭ параллельно проводилась работа по усовершенствованию диагностической аппаратуры, в результате чего был создан универсальный встраиваемый электронный спектрометр ЭТ5101, за разработку которого группа сотрудников НТО (Н.К. Поляков, С.Ю. Никитин и Р.Ш. Сафиуллин) в 1987 году была награждена золотыми медалями АН СССР. Завершающей серию была установка ЭП1203 (рис. 2), по своим характеристикам соответствующая мировому уровню. Всего в начале 90-х годов было выпущено несколько десятков установок ЭП1203, одна из них была поставлена в Лабораторию эпитаксиальных технологий ИАнП РАН и находится в эксплуатации с начала 1992 года.

### ПОСЛЕДУЮЩЕЕ РАЗВИТИЕ МЕТОДИКИ МОЛЕКУЛЯРНО-ПУЧКОВОЙ ЭПИТАКСИИ В ИАнП РАН

Лаборатория эпитаксиальных технологий в ИАнП РАН была создана в марте 1986 года, и ее основной задачей было проведение расчетов геометрических размеров, связанных с взаимным расположением подложки, молекулярных источников, электронной пушки ДБЭО в камерах роста [1], а также тепловых параметров молекулярных источников, нагревателей подложкодержателей, криопанелей. Кроме того, в лабораторию были переведены ранее проводимые в СКБ АП перспективные теоретические исследования процессов эпитаксиального роста.

Первая опубликованная статья с экспериментальными результатами, полученными в Лаборатории эпитаксиальных технологий ИАнП РАН на установке ЭП1203 была посвящена свойствам слоев GaAs, выращенных методом МПЭ с сохранением реконструкции поверхности (2×4) и (3×1), где было показано улучшение оптических свойств слоев автоэпитаксиального GaAs в случае роста в поверхностной реконструкции (3×1) [2]. Следующим основным направлением работ стало исследование AlGaAs гетероструктур, выращенных

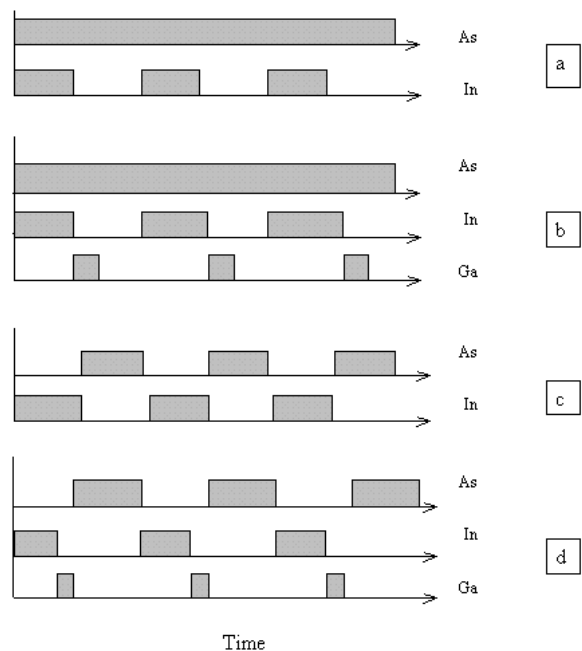


**Рис. 2.** Внешний вид установки ЭП1203. Снимок сделан в Лаборатории эпитаксиальных технологий ИАНП РАН

на вицинальных поверхностях GaAs (100) [3]. Помимо исследований полученных структур методом спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ) в ФТИ им. А.Ф. Иоффе были проведены первые исследования в ИАНП методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) [4]. Далее стали проводиться работы по исследованию InAs квантовых точек (КТ) на сингулярных и вицинальных поверхностях GaAs(100) [5]. Было выявлено преимущество методики субмонослойной МПЭ (СМПЭ), в результате чего нами был предложен новый метод, обладающий еще более заметным преимуществом: субмонослойная миграционно-стимулированная эпитаксия (СМСЭ) [6]. На рис. 3 представлены временные зависимости положения заслонок при СМПЭ (InAs (a) и InGaAs (b)), СМСЭ (InAs (c) и InGaAs (d)). Оптические свойства выращенных образцов исследовались, в частности, в НИИ Физики СПбГУ (см., напр., [7]). В результате проведенных в лаборатории работ также была опубликована статья, в которой подробно рассмотрены основные методические вопросы экспериментальной работы на установке ЭП1203 [8]. Следующим шагом было создание методом СМСЭ и исследование процессов самоорганизации КТ в многослойных InAs/GaAs и InGaAs/GaAs структурах с вертикально связанными КТ [9].

В конце 1997 года в ИАНП РАН на установке ЭП1203 впервые в мировой практике были получены InAs КТ на поверхности кремния непосредственно методом МПЭ [10], также впервые были получены спектры ФЛ InAs КТ, помещенных в кремниевую матрицу [11], и с этого времени основным направлением работы лаборатории стало

создание и исследование процессов роста в системе (InGaAs)/Si. В 1998–1999 годах были получены уникальные результаты по исследованию методом ДБЭО кинетики роста InAs на поверхности Si в случае реализации механизма роста Фольмера—Вебера [12], а также первые полученные методом трансмиссионной электронной микроскопии изо-



**Рис. 3.** Временные зависимости положения заслонок при СМПЭ (InAs (a) и InGaAs (b)) и СМСЭ (InAs (c) и InGaAs (d))

бражения поперечного сечения встроенной в кремниевую матрицу одиночной InAs КТ [13]. В 1999 году между ИАиП РАН и ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН было заключено соглашение о совместной эксплуатации уникального оборудования: установки ЭП1203 и «Riber-Supra» на территории ФТИ им. А.Ф. Иоффе, что позволило решить ряд эксплуатационных вопросов и значительно расширило возможности послеростовой диагностики выращиваемых структур.

Несмотря на проведение значительного числа экспериментальных работ, не прекращались теоретические исследования по вопросам эпитаксиального роста. К примеру, были исследованы некоторые характерные случаи роста однокомпонентных пленок на отличной от напыляемого материала подложке и показано, что для типичных для МПЭ температур наблюдается как линейный рост средней высоты пленки, так и корневая зависимость шероховатости во времени, однако на начальном этапе на корневую зависимость шероховатости накладываются осцилляции, свидетельствующие о близком к послойному механизму роста, и что кинетика формирования слоев существенно влияет на морфологию поверхности [14]. С помощью компьютерного моделирования роста в методе миграционно-стимулированной эпитаксии получены временные зависимости средней высоты и шероховатости пленки GaAs при различных условиях роста и показано, что функция средней высоты от времени является линейно-ступенчатой, а временные зависимости шероховатости обладают осциллирующим характером. Получено, что при оптимальных условиях роста возможно снижение величины шероховатости в 1,5–2 раза по отношению к методу молекулярно-пучковой эпитаксии [15]. Была исследована самосогласованная кинетическая газо-решетчатая модель поверхностных трансформаций субмонослойных покрытий при МПЭ для изучения начальных стадий образования и зародивания наноразмерных структур и показано, что при определенных условиях роста нанометровые островки обладают высокой степенью упорядоченности по размерам и пространственному распределению [16].

#### **ПРОВЕДЕННЫЕ РАЗРАБОТКИ ПО УСОВЕРШЕНСТВОВАНИЮ АППАРАТУРЫ И ПЕРСПЕКТИВЫ ДАЛЬНЕЙШЕГО ИСПОЛЬЗОВАНИЯ МЕТОДИКИ МПЭ**

В начале работ по созданию субмонослойных структур возникла необходимость как более точного определения скоростей роста (с точностью до 0,01 монослоя в секунду), так и всестороннего исследования динамики картин ДБЭО — единствен-

ного метода, отражающего *in situ* состояние поверхности в процессе роста. Для этой цели была создана система регистрации и анализа картин ДБЭО. Система включала в себя чувствительную видеокамеру, соединенную через интерфейс с компьютером. Программное обеспечение системы позволяет анализировать в реальном масштабе времени с дискретностью 40 ns любое место на дифракционном изображении, а также изменение интенсивности на картине дифракции вдоль выбранного направления [17]. Использование системы позволило, в частности, обнаружить временной сдвиг (объясняемый различными размерами трехмерных островков на начальной стадии распада псевдоморфного слоя) на динамических зависимостях интенсивности дифракции на картинах, снятых при различных дифракционных углах [18]. Система постоянно совершенствовалась и к настоящему времени представляет собой комплекс, дополнительно оснащенный видеомагнитофоном для записи картин ДБЭО в процессе экспериментов с целью последующей многократной компьютерной обработки картин ДБЭО.

Кроме того, при проведении ростовых экспериментов с использованием методов СМПЭ, и особенно СМСЭ, возникла настоятельная необходимость автоматизации процессов роста, связанная с программным управлением заслонками молекулярных источников от ЭВМ по предварительно заданной программе. Системам автоматизации с самого начала разработок установок серии ЭП уделялось достаточно большое внимание, были созданы системы на базе ЭВМ типа ДВК и СМ-4. Однако в связи со всеобщим переходом на IBM-совместимые компьютеры к началу серийного выпуска установки ЭП1203 разработка принципиально новой системы завершена не была, и установки выпускались без систем автоматизации, а работы по завершению новой были остановлены. Разработанная в лаборатории система управления ростовым процессом позволяет в автоматическом режиме осуществлять заданную последовательность действий (записанную в виде текстового файла на специально разработанном языке, а потому многократно воспроизводимую), а также выдать на устройство синхронизации записи/воспроизведения команд записи сигналов-маркеров, отмечающих начало ростовой программы. Было разработано оригинальное устройство синхронизации записи/воспроизведения, предназначенное для создания меток на звуковом канале видеоленты при записи картин ДБЭО на видеомагнитофон, а также в случае обработки ранее записанной на видеомагнитофон информации, позволяющее синхронно запустить эмуляцию программы роста, использовавшуюся при записи с целью однозначного приведения в соответствие обрабатываемых картин ДБЭО с параметрами рос-

та (положение заслонок и время с момента их открытия/закрытия). Возможны взаимные запуски программ роста и обработки картины ДБЭО. Подробное описание комплекса компьютерной обработки картин ДБЭО и системы автоматизации процессов роста нами приведено в отдельной статье [19].

Основные направления дальнейшего совершенствования установок МПЭ, на наш взгляд, следующие:

1. Автоматизация процессов роста с управлением заслонками молекулярных источников (МИ), температурами МИ и подложки по заданной программе от ЭВМ, введение на процесс роста обратной связи по картинам ДБЭО и показаниям встроенного в камеру роста масс-анализатора.

2. Оснащение камер роста аппаратурой для диагностики *in situ* выращиваемых структур оптическими методами и приборами для прецизионного локального измерения температуры растущей поверхности.

3. Введение возможностей проведения эпитаксиального роста при дополнительном воздействии (оптическое возбуждение, сильные электромагнитные поля, рост в присутствии в камере специально созданного газового состава и т.д.).

4. Создание многомодульных установок, объединяющих камеры роста (отдельные для роста различных материалов, например  $A^{III}As$ ,  $A^{III}N$ ,  $A^{II}B^{VI}$  и Si) и диагностические модули, основным из которых должен быть сверхвысоковакуумный СТМ.

5. Снижение расходов по эксплуатации установок МПЭ с целью рентабельности мелкосерийного производства заказных уникальных полупроводниковых структур.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты работ, проведенных в лаборатории, наглядно демонстрируют перспективность методики МПЭ и находятся на мировом уровне, что подтверждается неоднократно публикациями в ведущих отечественных и зарубежных журналах и докладами на международных конференциях (более 80 публикаций). В том числе заведующий лабораторией с июня 1996 года к. ф.-м. н. Г.Э. Цырлин в 1998–1999 годах сделал четыре приглашенных доклада (6<sup>th</sup> Int. Symp. «Nanostructures: physics and technology 98», St. Petersburg, Russia; Int. Adv. School «Semiconductors Science and Technology», La Jolla, USA; Int. Conf. «Physics at the Turn of the of the 21st century», St. Petersburg, Russia; Int. Workshop on Appl. Aspects of Interface Science, St. Petersburg, Russia) на тему InAs нанобъектов на поверхностях кремния, сформированных непосредственно методом МПЭ.

По результатам проведенных работ в лаборатории были защищены одна докторская и две кандидатские диссертации. Заведующий лабораторией Г.Э. Цырлин был отмечен персональным грантом ИНТАС (1998), признан победителем Конкурса молодых ученых и специалистов правительства Санкт-Петербурга (1998) и имеет Почетную грамоту Президиума РАН (1999).

В настоящее время сотрудники лаборатории принимают участие в работах, имеющих финансовую поддержку ИНТАС и Российского фонда фундаментальных исследований, в Федеральных научных программах «Физика твердотельных наноструктур» и «Перспективные технологии и устройства микро- и наноэлектроники».

В течение длительного времени лаборатория осуществляет взаимовыгодное сотрудничество с НИИ Физики СПбГУ, ФТИ им. А.Ф.Иоффе РАН, Берлинским Техническим Университетом, Институтом Физики Микроструктур им. Макса Планка (Галле, Германия) и другими организациями.

Авторы благодарят Ю.Б. Самсоненко и В.А. Егорова за помощь при проведении ростовых экспериментов.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Филаретов А.Г., Цырлин Г.Э. // Научное приборостроение. Физика аналитических приборов. 1989. С. 98–103.
2. Гурьянов Г.М., Леденцов Н.Н., Петров В.Н., Самсоненко Ю.Б., Цырлин Г.Э., Филаретов А.Г. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19, № 18. С. 64–67.
3. Губанов В.Б., Гурьянов Г.М., Леденцов Н.Н., Петров В.Н., Самсоненко Ю.Б., Цырлин Г.Э. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19, № 21. С. 73–78.
4. Голубок А.О., Гурьянов Г.М., Леденцов Н.Н., Петров В.Н., Самсоненко Ю.Б., Тупицев С.Я., Цырлин Г.Э. // ФТП. 1994. Т. 28, № 3. С. 515–518.
5. Cirlin G.E., Guryanov G.M., Golubok A.O., Tapissev S.Ya., Ledentsov N.N., Kop'ev P.S., Grundmann M., Bimberg D. // Appl. Phys. Lett. 1995. V. 67. P. 97–99.
6. Цырлин Г.Э., Голубок А.О., Тупицев С.Я., Леденцов Н.Н., Гурьянов Г.М. // ФТП. 1995. Т. 29, № 9. С. 1697–1701.
7. Juferev R.B., Novikov A.B., Novikov B.V., Verbin S.Yu., Dinh Son Thach, Gobsch G., Goldhahn R., Stein N., Golombek A., Cirlin G.E., Dubrovskii V.G., Petrov V.N. // Proc. of the 6th Int. Symp. «Nanostructures: physics and technology 98», St. Petersburg, P. 204–207.
8. Губанов В.Б., Гурьянов Г.М., Демидов В.Н., Дубровский В.Г., Корнеева Н.П., Петров В.Н., Поляков Н.К., Самсоненко Ю.Б., Цырлин Г.Э. //

- Научное приборостроение. 1996. Т. 6, № 1/2. С. 3–17.
9. Цырлин Г.Э., Петров В.Н., Масалов С.А., Голубок А.О., Леденцов Н.Н. // Письма в ЖТФ. 1997. Т. 23, № 22. С. 80–84.
  10. Цырлин Г.Э., Петров В.Н., Дубровский В.Г., Масалов С.А., Голубок А.О., Комяк Н.И., Леденцов Н.Н., Алферов Ж.И., Бимберг Д. // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 24, № 8. С. 10–15.
  11. Цырлин Г.Э., Петров В.Н., Дубровский В.Г., Самсоненко Ю.Б., Поляков Н.К., Голубок А.О., Масалов С.А., Комяк Н.И., Устинов В.М., Егоров А.Ю., Ковш А.Р., М.В.Максимов, А.Ф.Цацульников, Б.В.Воловик, Жуков А.Е., Копьев П.С., Леденцов Н.Н., Алферов Ж.И., Бимберг Д. // ФТП. 1999. Т. 33, № 9. С. 1066–1069.
  12. Cirlin G.E., Polyakov N.K., Samsonenko Yu.B., Dubrovskii V.G., Petrov V.N., Egorov V.A., Denisov D.V., Busov V.M., Ustinov V.M. // Proc. of the 7th Int. Symp. «Nanostructures: physics and technology 99», St.Petersburg, 1999. P. 501–503.
  13. Cirlin G.E., Polyakov N.K., Petrov V.N., Egorov V.A., Samsonenko Yu.B., Denisov D.V., Busov V.M., Volovik B.V., Ustinov V.M., Alferov Zh.I., Ledentsov N.N., Bimberg D., Zakharov N.D., Werner P. // Czechoslovak Journal of Physics. 1999. V. 49, № 11. P. 1547–1552.
  14. Дубровский В.Г., Цырлин Г.Э. // ЖТФ. 1997. Т. 67, № 11. С. 136–138.
  15. Цырлин Г.Э. // Письма в ЖТФ. 1997. Т. 23, № 4. С. 61–70.
  16. Dubrovskii V.G., Cirlin G.E., Bauman D.A., Kozachek V.V., Mareev V.V. // Vacuum. 1998. V. 50, № 1–2. P. 187–190.
  17. Гурьянов Г.М., Демидов В.Н., Корнеева Н.П., Петров В.Н., Самсоненко Ю.Б., Цырлин Г.Э. // ЖТФ. 1997. Т. 67, № 8. С. 111–116.
  18. Cirlin G.E., Korneeva N.P., Demidov V.N., Petrov V.N., Polyakov N.K., Dubrovskii V.G., Guryanov G.M., Ledentsov N.N., Bimberg D. // In: «Compound Semiconductors 1996», Inst. Phys. Conf., Ser. № 155, IOP Published Ltd., 1997. P. 821–824.
  19. Петров В.Н., Демидов В.Н., Корнеева Н.П., Поляков Н.К., Цырлин Г.Э. // Научное приборостроение. 1999. Т. 9, № 1. С. 65–70.

*Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург*

Материал поступил в редакцию 22.11.99.

## DEVELOPMENT OF THE MOLECULAR-BEAM EPITAXY TECHNIQUE AT THE INSTITUTE FOR ANALYTICAL INSTRUMENTATION RAS

**V. N. Petrov, N. K. Polyakov, V. N. Demidov, N. P. Korneeva, G. E. Cirlin**

*Institute for Analytical Instrumentation RAS, Saint-Petersburg*

In this paper the history of designing molecular-beam epitaxy systems of the EP class in Russia is reviewed. The scientific results on the theoretical and experimental studies of the epitaxial growth in the laboratory for epitaxial technologies at the Institute for Analytical Instrumentation RAS during 1993–1999 are presented. An efficient and fast system for visualisation, input into the computer and analysis of reflection high-energy electron diffraction patterns and the system for automation of the epitaxial growth processes are described. The trends and perspectives of further exploring the equipment and technological approaches in molecular-beam epitaxy are given.