

Кинетика роста наноразмерной пленки германия, осаждаемой на поверхности Si (001) методом магнетронного распыления

И. С. Монахов, Г. Г. Бондаренко

Исследована кинетика роста наноразмерной пленки германия, осажденной магнетронным распылением на поверхности Si(001), с помощью разработанной экспериментальной рентгенорефлектометрической методики, отличающейся совместной регистрацией зеркально-отраженного и диффузно-рассеянного излучения. С помощью данной методики можно осуществлять *in situ* как анализ морфологии растущей пленки, так и контроль ее толщины с точностью до 1 нм. Получены зависимости интенсивности зеркального отражения, диффузного рассеяния, скорости роста, среднеквадратичной шероховатости пленки и ее плотности от времени осаждения. Согласно результатам измерения зеркально-отраженного излучения, шероховатость пленки увеличивалась со временем по степенному закону. Однако при толщине пленки, равной 4 нм, наблюдался четко выраженный максимум диффузного рассеяния, угловое положение которого соответствовало критическому углу полного внешнего отражения германия — $0,31^\circ$. Такая картина распределения рассеянного излучения объясняется проявлением эффекта Ионеды, заключающегося в аномальном рассеянии рентгеновского излучения, максимум которого соответствует критическому углу θ_c полного внешнего отражения от пленки. Экспериментально установлено, что на начальной стадии роста пленка формируется по механизму Фольмера – Вебера. Методом *in situ* рентгеновской рефлектометрии обнаружено, что образование сплошного слоя германиевой пленки происходит при ее толщине, равной 7 нм; последующий рост пленки осуществляется по степенному закону $\sigma_r \sim t^\beta$, где $\beta = 0,23$.

Ключевые слова: германий, квантовые точки, магнетронное распыление, рентгеновская рефлектометрия, эффект Ионеды.

DOI: 10.30791/1028-978X-2019-2-14-22

Введение

Эпитаксиальный рост Ge на Si заслуживает внимания благодаря хорошей совместимости этих материалов и дефициту германия по сравнению с кремнием. Перспективными приложениями, стимулирующими усилия для интегрирования германия и кремния, являются МОП-транзисторы (металл – оксид – полупроводник) с высокой подвижностью электронов, инфракрасные фотоприемники для оптоэлектронных устройств на основе Si, в частности, высокоэффективные солнечные элементы. Интерес к системе Si – Ge обусловлен также возможностью создания на поверхности Si (001) наноразмерных бездислокационных островков германия, формирующихся по механизму

Крастанова – Странского [1, 2]. Обычно размеры островков германия на кремнии лежат в диапазоне от 10 до 100 нм. Такие нанокристаллические островки обладают свойствами квантовых точек (КТ). Приборы на основе гетероструктур с германиевыми КТ, предназначенные для работы в инфракрасном и видимом диапазонах длин волн электромагнитного излучения, широко используются в оптоэлектронике.

Рост пленки германия на кремнии при температурах эпитаксии 500 – 750 °С является ярким примером реализации механизма Крастанова – Странского [3, 4]. Сплошной псевдоморфный слой германия, образующийся на начальной стадии роста, имеет свойства квантовой ямы для дырок. Дальнейший рост пленки приводит к формированию КТ [5].

Формирование пленки Ge на Si при температурах эпитаксии ниже 350 °С происходит, предположительно, по механизму Фольмера – Вебера [3]. В этом случае смачивающий слой не образуется, и рост островков идет непосредственно на поверхности кремниевой подложки [6].

При высоких температурах, в отличие от преимущественного роста по механизму Крастанова – Странского на кремнии, рост пленки германия на SiO₂ проходит по механизму Фольмера – Вебера вследствие отсутствия смачивающего слоя. Выращивание островков на окисленной поверхности кремния позволяет добиться существенного уменьшения размеров островков и увеличения их плотности. В [7] отмечается, что на окисленной поверхности Si (111) удалось вырастить массив островков с латеральными размерами менее 10 нм и плотностью выше 10¹² см⁻². Предварительное окисление поверхности кремния проводили на установке молекулярно-лучевой эпитаксии.

В последние годы активно проводили исследование германиевых пленок на кремнии или его оксиде, полученных методом магнетронного распыления. В большинстве этих работ осаждение германия осуществляли при температурах подложки, лежащих в интервале от 250 до 750 °С. Было установлено, что при температуре ниже 250 °С формируется аморфная пленка Ge [4].

Актуальность исследований кинетики роста, морфологии, структуры и физических свойств пленок германия, формируемых различными способами, делает наиболее перспективными методы исследования, позволяющие получать информацию о растущей пленке непосредственно в процессе ее формирования — *in situ* методы, такие как *in situ* лазерная эллипсометрия и дифракция быстрых электронов. При создании покрытий с помощью ионно-плазменных технологических процессов, к которым относится и магнетронное распыление, альтернативой перечисленным методам является метод *in situ* рентгеновской рефлектометрии. Рассматриваемый метод позволяет изучать аморфные, поли- и монокристаллические пленки в диапазоне толщин от 2 до 200 нм как в вакууме, так и в газовой среде, является неразрушающим. Информации о кинетике роста пленок германия при низких температурах, полученных с использованием метода *in situ* рентгеновской рефлектометрии, в научной литературе крайне мало.

Цель работы — исследование кинетики роста наноразмерной пленки, образующейся при магнетронном осаждении германия на поверхность Si(001) при комнатной температуре методом *in situ* рентгеновской рефлектометрии.

Методика эксперимента

Для исследования кинетики роста германиевой пленки нами был использован метод *in situ* рентгеновской рефлектометрии, который в определенной степени можно рассматривать как рентгеновский аналог хорошо известного метода дифракции быстрых электронов, широко применяемого для контроля технологических процессов молекулярно-лучевой эпитаксии. При изучении кинетики быстротекающих процессов, таких как рост пленок, их травление и модификация этот метод может стать альтернативой классической рефлектометрии. За рубежом *in situ* рентгеновскую рефлектометрию начали применять в конце XX века. Так, в работе [8] с помощью данного метода была измерена толщина и шероховатость поверхности пленки алюминия в процессе роста. В настоящее время метод *in situ* рефлектометрии остается востребованным при изучении физико-химических процессов, происходящих на границах раздела фаз, а также модификации тонких пленок.

Метод *in situ* рентгеновской рефлектометрии основан на явлениях отражения, преломления и интерференции рентгеновского излучения.

В процессе роста пленки на образец направляется жесткое монохроматическое рентгеновское излучение с длиной волны λ под постоянным скользким углом θ_0 и проводится регистрация временной зависимости интенсивности зеркально-отраженного излучения от системы пленка – подложка [9]. Временная зависимость коэффициента отражения рентгеновских лучей от подобной структуры представляет собой осциллирующую кривую. Наличие осцилляций обусловлено изменением разности фаз лучей, отраженных от границ раздела вакуум – пленка и пленка – подложка. Если угол скольжения рентгеновского пучка θ_0 превышает критический угол полного внешнего отражения θ_C , характерный для материала пленки, то с ростом толщины пленки d интерференционные пики будут чередоваться с периодом L , который можно найти из формулы Вульфа – Брэгга с поправкой на преломление:

$$2L \left(1 - \frac{\delta}{\sin^2 \theta_0} \right) \sin \theta_0 = n\lambda, \quad (1)$$

где n — порядок отражения (в данном случае $n = 1$), θ_0 — угол падения рентгеновского излучения, λ — длина волны, δ — декремент преломления материала пленки для заданной длины волны излучения. Например, для пленки германия с плотностью, равной плотности объемного материала,

при использовании трубки с медным анодом период осцилляций L равен $46,4 \text{ \AA}$.

Используемый нами метод позволяет определять толщину d , среднеквадратичную шероховатость поверхности пленки σ , а также ее плотность ρ на основе анализа осцилляций интенсивности — их периода, контрастности и среднего значения [9]. Под среднеквадратичной шероховатостью поверхности σ подразумевается среднее квадратическое значение отклонений профиля $y(x)$ в пределах базовой длины l , описываемое выражением [10]:

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{l} \int_0^l y^2(x) dx}. \quad (2)$$

Более подробную информацию о рельефе границ раздела по сравнению с зеркально-отраженным излучением, несет диффузно-рассеянное излучение. Оно возникает при взаимодействии рентгеновских лучей с неровностями поверхностного рельефа.

Подробный анализ картины диффузного рассеяния лежит в основе метода GISAXS (Grazing-incidence small-angle X-ray scattering — малоугловое рассеяние рентгеновских лучей, падающих на поверхность образца под скользким углом) [11]. В рассматриваемом методе в качестве источника используется синхротронное излучение, а регистрация картины рассеяния осуществляется 2D-детектором. Возможности GISAXS в области *in situ* исследований морфологии и кинетики роста наноразмерных пленок весьма широки: могут быть определены форма островков, их распределение по размерам и среднее расстояние между ними. Регистрация рассеянного излучения может быть дополнена методами рентгеновской рефлектометрии (XRR) и дифракции (XRD), дающими дополнительную информацию о толщине и структуре исследуемой пленки.

В нашем эксперименте для совместной регистрации зеркальной и диффузной компонент *in situ* использовали линейный позиционно-чувствительный газовый детектор, с помощью которого регистрировали угловое распределение интенсивности рентгеновского излучения в широком угловом диапазоне. Особенность предложенной нами методики — запись всего углового распределения интенсивности, зарегистрированной в течение определенного временного интервала. В нашем случае время экспозиции составляло 1 с. Перед проведением эксперимента задавалось общее время съемки. Так, в ходе съемки продолжительностью 350 с осуществляется последовательная запись в файл 350 угловых распределений, каждому из которых со-

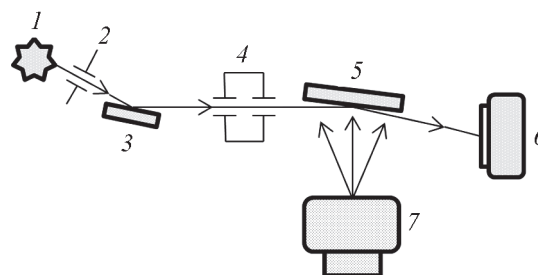


Рис. 1. Схема эксперимента: 1 — рентгеновская трубка, 2 — щель перед зеркалом Гебеля, 3 — зеркало Гебеля, 4 — коллиматор, 5 — образец, 6 — позиционно-чувствительный детектор, 7 — магнетрон.

Fig. 1. Experiment scheme: 1 — X-ray tube, 2 — slit in front of the Goebel mirror, 3 — Goebel mirror, 4 — collimator, 5 — sample, 6 — position-sensitive detector, 7 — magnetron.

ответствует массив, включающий в себя 4096 значений количества рентгеновских квантов по числу каналов детектора. На рис. 1. представлена схема эксперимента.

Источником рентгеновского излучения служила рентгеновская трубка с медным анодом (длина волны CuK_α -излучения равна $1,54 \text{ \AA}$). Излучение трубки 1 через щель 2 направляли на зеркало Гебеля 3, формирующее параллельный пучок и осуществляющее монохроматизацию излучения. Вслед за зеркалом был установлен коллиматор 4, образованный двумя щелями шириной $0,05 \text{ мм}$, расстояние между которыми составляло 20 мм . В вакуумной камере образец 5 устанавливали на угол θ_0 по отношению к рентгеновскому пучку. Ввод излучения в вакуумный объем и его вывод осуществляли через окна из бериллиевой фольги, расположенные на фланцах камеры. На выходном фланце установлен линейный позиционно-чувствительный детектор рентгеновского излучения 6. Применение данной рентгенооптической схемы дает следующие преимущества: введение в схему фокусирующего зеркала Гебеля позволило увеличить на порядок величины, по сравнению с использованием кристалла-монохроматора, интенсивность рентгеновского пучка, падающего на образец. Использование в схеме линейного позиционно-чувствительного детектора сделало возможным одновременную регистрацию как зеркально-отраженного, так и диффузно-рассеянного рентгеновского излучения в широком диапазоне углов.

В качестве образцов для напыления использовали подложки из монокристаллического кремния (производитель ЗАО “ЭЛМА”,

г. Зеленоград) прямоугольной формы размером 30×60 мм. Ориентировка пластин — (001). Среднеквадратическая шероховатость поверхности подложки была измерена методом рентгеновской рефлектометрии и составила 5 \AA .

При проведении эксперимента были выбраны как наиболее оптимальные следующие режимы работы установки: напряжение газового разряда в магнетроне — 300 В; постоянный ток разряда — 100 мА; давление аргона — $6 \cdot 10^{-2}$ мм рт. ст., расстояние от мишени до подложки — 70 мм; напряжение рентгеновской трубки — 30 кВ; ток трубки — 30 мА; угол скольжения рентгеновского излучения θ_0 — $1,0^\circ$.

Результаты и их обсуждение

На рис. 2 представлены угловые распределения интенсивности отраженного и рассеянного рентге-

новского излучения, зафиксированные в различные моменты процесса роста германиевой пленки, а на рис. 3 — временные зависимости интенсивности зеркально-отраженного (*a*) и диффузно-рассеянного (*b*) рентгеновского излучения, полученные нами при осаждении пленки германия на кремниевую подложку. При построении графиков, представленных на рис. 3, угловые распределения зеркально-отраженного излучения интегрировали по углу θ в пределах $0,9 - 1,1^\circ$, а диффузно-рассеянного — $0 - 0,7^\circ$.

Диффузно-рассеянное излучение невозможно полностью отделить от зеркально-отраженного, однако в области малых θ можно наблюдать эффект Ионеды — аномальное рассеяние, максимум которого соответствует критическому углу θ_C полного внешнего отражения от пленки [12]. Например, для германия при использовании излучения с длиной волны, равной $1,54 \text{ \AA}$, θ_C равен $0,31^\circ$. Учитывая,

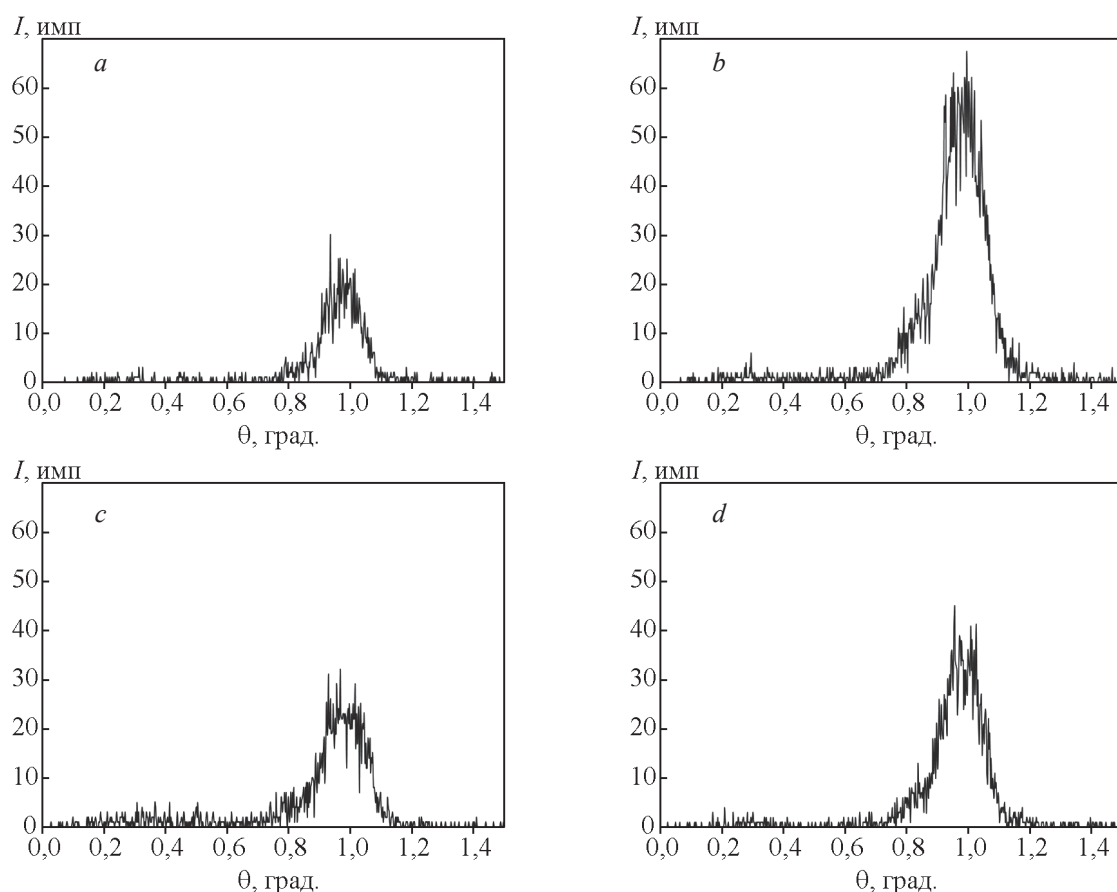


Рис. 2. Угловые зависимости интенсивности отраженного и рассеянного рентгеновского излучения, соответствующие: *a* — кремниевой подложке (100 с), *b* — первому максимуму зеркального отражения (128 с), *c* — максимуму диффузного рассеяния (132 с), *d* — минимуму диффузного рассеяния (144 с).

Fig. 2. The angular dependences of the intensity of the reflected and scattered X-rays corresponding to: *a* — silicon substrate (100 s), *b* — the first maximum specular reflection (128 s), *c* — the maximum diffuse scattering (132 s), *d* — the minimum diffuse scattering (144 s).

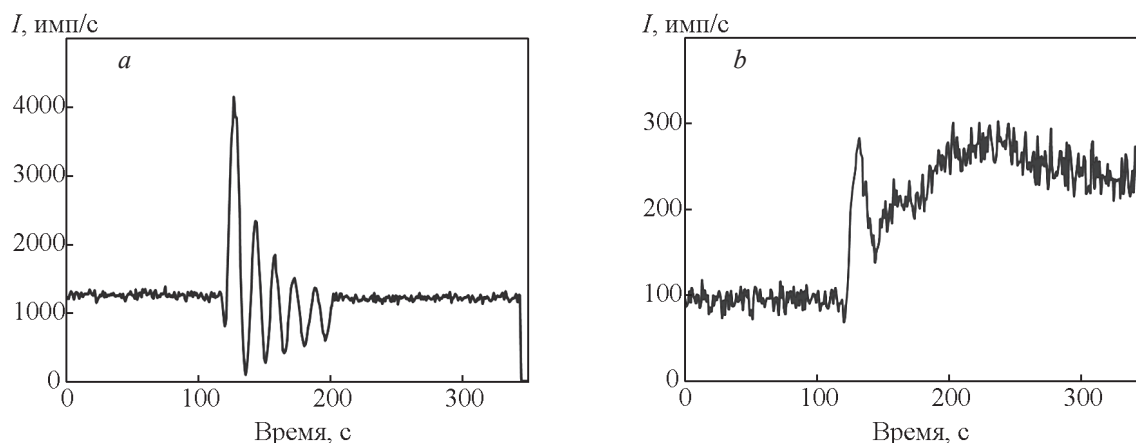


Рис. 3. Временные зависимости интенсивности: *a* — зеркально-отраженного, *b* — диффузно-рассеянного, рентгеновского излучения от пленки германия, осаждаемой на подложку из кремния.

Fig. 3. The time dependences of the intensity of: *a* — the specularly reflected, *b* — diffusely scattered X-rays from the germanium film deposited on a silicon substrate.

что в нашем случае $\theta_0/\theta_c > 3$, и вклад зеркально-отраженного излучения в общую интенсивность в окрестности θ_c относительно невелик, можно выбрать угловые интервалы преимущественного доминирования зеркальной и диффузной компонент.

Угловая зависимость интенсивности для чистой кремниевой подложки, снятая в течение 100-й секунды работы регистрирующей программы, представлена на рис. 2*a*. На рис. 2*a* видны пик зеркального отражения, которому соответствует угол $\theta_0 \sim 1^\circ$, а также участки индикатрисы рассеяния по обе стороны от него. На рис. 2*b* можно наблюдать существенное увеличение зеркального отражения, поскольку это распределение соответ-

ствует первому интерференционному максимуму рис. 3*a*.

Заметен также рост диффузной компоненты в области меньших углов от зеркального пика. На рис. 2*c* показан угловой спектр, снятый в максимуме временной зависимости диффузно-рассеянного излучения (рис. 2*b*). По сравнению с рис. 2*a* и 2*b* на этом рис. 2*c* наблюдается дальнейший рост интенсивности в диапазоне углов $0 - 0,7^\circ$. На рис. 2*d* представлено распределение, соответствующее минимуму диффузного рассеяния на рис. 3*b*. Асимметрия углового распределения зеркального отражения на рис. 2*a* – 2*d*, связана с ненулевой расходимостью рентгеновского пучка, падающего на образец. Коэффициент отражения рентгеновских лучей обратно пропорционален $\sin^4\theta_0$, поэтому он выше у лучей, падающих на образец под меньшими углами.

Участок постоянной интенсивности на рис. 3*a* до 117-й секунды регистрации соответствует отражению от кремниевой подложки. Сразу после начала осаждения пленки произошел короткий спад интенсивности зеркально-отраженного излучения. Это означает, что в течение первых секунд напыления плотность пленки была ниже, чем плотность подложки. Средняя скорость напыления составляла около 3 Å/c — рис. 4. По окончании осаждения германия пленка достигла толщины 255 Å.

Временная зависимость, представленная на рис. 3*b*, также должна быть осциллирующей, причем фазы осцилляций диффузной и зеркальной компонент должны различаться. В нашем случае на рис. 3*b* замечен отчетливый максимум на 132-й

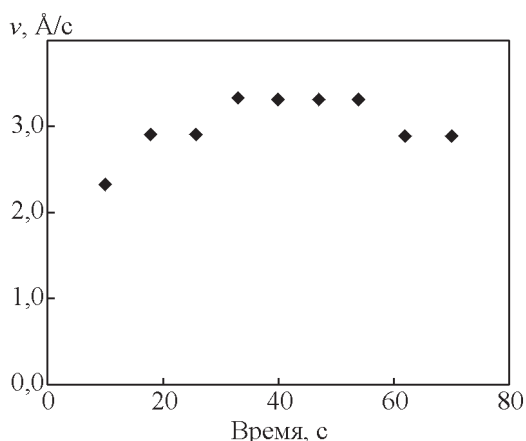


Рис. 4. Зависимость скорости роста германиевой пленки от времени напыления.

Fig. 4. Dependence of the growth rate of the germanium film on the deposition time.

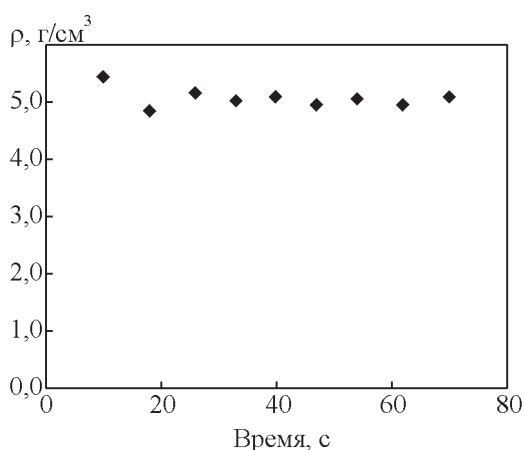


Рис. 5. Зависимость плотности растущей пленки от времени осаждения, рассчитанная по данным зеркального отражения.

Fig. 5. Dependence of the density of the growing film from the deposition time, calculated according to the data of specular reflection.

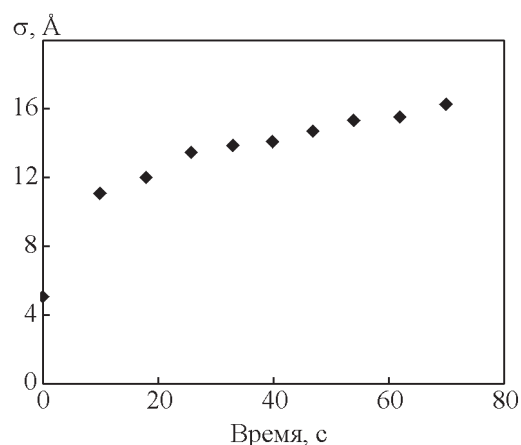


Рис. 6. Зависимость среднеквадратичной шероховатости поверхности растущей пленки от времени осаждения, полученная в результате анализа зеркально-отраженного излучения.

Fig. 6. Dependence of the mean square surface roughness of the growing film on the deposition time, obtained as a result of the analysis of the specularly reflected radiation.

секунде регистрации, сменяющийся минимумом на 144-й секунде. Максимуму соответствует толщина пленки, равная 4 нм, а минимуму — 7 нм. В соответствии с работой [13] можно заключить, что пленка становится сплошной при минимальной толщине, равной 7 нм. Далее следует восходящий участок вплоть до 202-й секунды, когда напыление германия было прекращено. С этого момента интенсивность диффузного рассеяния оставалась неизменной на протяжении 30 с (рис. 3b), затем последовало ее уменьшение. Отметим, что интенсивность зеркального отражения после прекращения напыления не изменялась. Представленные результаты свидетельствуют о трансформации сформированного покрытия, оказывающей большее влияние на диффузное рассеяние, чем на зеркальное отражение. Резкий спад интенсивности на 343-й секунде регистрации соответствует выключению рентгеновского пучка.

Зависимости плотности и шероховатости германиевой пленки от времени осаждения пленки, рассчитанные по временной зависимости интенсивности зеркального отражения (рис. 3a), приведены на рис. 5 и 6, соответственно. Из рис. 5 следует, что плотность пленки слабо менялась на протяжении всего процесса напыления, а ее значения близки к величине, характерной для объемного материала (5,32 г/см³). Среднеквадратичная шероховатость на начальном этапе формирования пленки выросла с 5 Å (подложка) до 11 Å к первому

максимуму интенсивности — рис. 6. Дальнейший рост шероховатости пленки проходил по степенному закону $\sigma_f(t) \sim t^\beta$, где динамическая экспонента β равна 0,23. Значения $\sigma_f(t)$ были вычислены с помощью выражения [14]:

$$\sigma^2(t) = \sigma_s^2 + \sigma_f^2(t), \quad (3)$$

где $\sigma(t)$ — экспериментально определяемая шероховатость границы раздела пленка – вакуум, σ_s — шероховатость подложки, $\sigma_f(t)$ — собственная шероховатость растущей пленки.

При сопоставлении динамики изменений интенсивности диффузного рассеяния на рис. 3b и среднеквадратичной шероховатости на рис. 6 нетрудно выявить различия: так, если на рис. 6 шероховатость увеличивалась монотонно, то рис. 3b демонстрирует более сложное изменение поверхностного рельефа. Это обстоятельство можно объяснить двумя основными причинами.

Во-первых, расчет шероховатости проводили по значениям интенсивностей зеркального отражения, зафиксированным в соседних интерференционных экстремумах, между которыми шероховатость считалась неизменной.

Во-вторых, интенсивность диффузно-рассеянного пленкой излучения определяется тремя PSD-функциями, соответствующими границам раздела пленка – подложка, пленка – вакуум, а также PSD-функцией, учитывающей взаимную корреляцию

шероховатостей пленки и подложки [15]. Поэтому для качественного, а тем более количественного, описания процессов, происходящих в системе пленка – подложка во время осаждения пленки, необходимо моделирование временной зависимости интенсивности диффузно-рассеянного излучения, исходя из начальных представлений о кинетике роста. Эта задача является довольно трудоемкой, и ее решение потребует теоретической проработки и создания соответствующих моделей.

Полученные результаты свидетельствуют об островковом механизме роста пленки вплоть до момента, когда ее толщина достигла 7 нм; они находятся в хорошем согласии с данными работы [3], из чего можно заключить, что рост пленки на начальной стадии в нашем эксперименте осуществляется по механизму Фольмера – Вебера. Последующий рост пленки проходил по степенному закону. Шероховатость пленок, конденсирующихся по механизму Фольмера – Вебера, с ростом толщины изменяется немонотонно [13]. Заметное увеличение шероховатости при малых толщинах обусловлено тем, что пленка не покрывает полностью поверхность подложки, а имеет островковую структуру. При больших толщинах пленка становится сплошной и ее шероховатость уменьшается.

Погрешность определения толщины пленки с помощью метода *in situ* рентгеновской рефлектометрии не превышает 1 %. Поэтому в перспективе возможно проведение экспериментов по алгоритму, согласно которому напыление слоев заданной толщины чередуется со съемкой картины диффузного рассеяния. В данном случае время экспозиции не ограничено, и источником излучения может являться рентгеновская трубка.

Преимущество нашего подхода по сравнению с методикой, реализованной, например, в [14], заключается в совместном измерении зеркально-отраженной и диффузно-рассеянной компонент рентгеновского излучения в реальном времени, что позволяет осуществить привязку морфологии пленки к толщине пленочного слоя, измеряемой с погрешностью не более 1 %.

Выводы

Предложена экспериментальная рентгено-рефлектометрическая методика, позволяющая проводить *in situ* исследования кинетики роста пленок и отличающаяся совместной регистрацией зеркально-отраженного и диффузно-рассеянного излучения. С помощью данной методики можно осуществлять одновременно и непрерывно как

анализ морфологии растущей пленки, так и контроль ее толщины с точностью до 1 нм.

Получены зависимости интенсивности зеркального отражения, диффузного рассеяния, скорости роста, среднеквадратичной шероховатости пленки и ее плотности от времени осаждения.

Показано, что рост наноразмерной германиевой пленки на начальной стадии протекает по островковому механизму Фольмера – Вебера. На основании временной зависимости диффузно-рассеянного рентгеновского излучения установлено, что образование сплошного слоя германия происходит при толщине, равной 7 нм, а последующий рост пленки осуществляется по степенному закону $\sigma_f \sim t^\beta$, где $\beta = 0,23$.

Литература

1. Samavati A., Mustafa M.K., Othaman Z., Ghoshal S.K. Ge nanoislands grown by radio frequency magnetron sputtering: comprehensive investigation of surface morphology and optical properties. *Journal of nanomaterials*, 2015, Article ID 681242, p. 1 – 20.
2. Steglich M., Patzig C., Berthold L., Schrepel F., Fücksel K., Höche T., Kley E.B., Tünnermann A. Heteroepitaxial Ge-on-Si by DC magnetron sputtering. *Sci. Technol. Adv. Mater*, 2014, no. 15, p. 1 – 9.
3. Бурбаев Т.М., Курбатов В.А., Погосов А.О., Рзаев М.М., Сибельдин Н.Н. Фотолюминесценция квантовых точек и квантовых ям германия в кремнии, полученных при низких температурах молекулярно-пучковой эпитаксии. *Физика и техника полупроводников*, 2003, т. 37, № 2, с. 216 – 218.
4. Soriano V., Colace L., Armani N., Rossi F., Ferrari C., Lazzarini L., Assanto G. Low-temperature germanium thin films on silicon. *Optical materials express*, 2011, v. 1, no. 5, p. 856-865.
5. Востоков Н.В., Красильник З.Ф., Лобанов Д.Н., Новиков А.В., Постников В.В., Филатов Д.О. Исследования методом атомно-силовой микроскопии роста самоорганизующихся наноструктур Ge на Si (001). *Поверхность*, 2000, № 7, с. 12 – 16.
6. Леденцов Н.Н., Устинов В.М., Шукин В.А., Копьев П.С., Алферов Ж.И., Бимберг Д. Гетероструктуры с квантовыми точками: получение, свойства, лазеры (обзор). *Физика и техника полупроводников*, 1998, т. 32, № 4, с. 385 – 410.
7. Никифоров А.И., Ульянов В.В., Пчеляков О.П., Тийс С.А., Гутаковский А.К. Получение наноструктур Ge ультрамалых размеров с высокой плотностью на атомарно-чистой поверхности окиси Si. *Физика твердого тела*, 2005, т. 47, № 1, с. 67 – 69.
8. Lee C.H., Seng S.Y. In situ fix-angle X-ray reflectivity measurement of thin film roughness and thickness during deposition, *J. Appl. Cryst.*, 1998, v. 31, p. 181 – 184.

9. Smirnov I.S., Novoselova E.G., Monakhov I.S., Egorov A.A. Applying the in situ X-ray reflectometry method to define the nanodimensional silicon film parameters. *Russian microelectronics*, 2014, v. 43, no. 8, p. 587 – 589.
10. ГОСТ 25142-82. Шероховатость поверхности.
11. Renauda G., Lazzari R., Leroy F. Probing surface and interface morphology with grazing incidence small angle X-ray scattering. *Surface science reports*, 2009, v. 64, p. 255 – 380.
12. Yoneda Y. Anomalous surface reflection of X-rays. *Physical Review*, 1963, v. 131, p. 2010 – 2013.
13. Иевлев В.М., Бугаков А.В., Трофимов В.И. Рост и субструктура конденсированных пленок. Воронеж: Изд. ВГТУ, 2000, 386 с.
14. Thompson C., Palazantzas G., Feng Y.P., Sinha S.K., Krim J. X-ray-reflectivity study of the growth kinetics of vapor-deposited silver films. *Physical Review B*, 1994, v. 49, no. 7, p. 4902 – 4907.
15. Peverini L., Ziegler E., Bigault T., Kozhevnikov I. Dynamic scaling of roughness at the early stage of tungsten film growth. *Physical Review B*, 2007, v. 76, p. 045411-5.
5. Vostokov N.V., Krasilnik Z.F., Lobanov D.N., Novikov A.V., Postnikov V.V., Filatov D.O. Issledovaniya metodom atomno-silovoj mikroskopii rosta samoorganizuyushchihsy nanoostrovkov Ge na Si (001) [Atomic-force microscopy studies of the growth of self-assembled Ge nanoislands on Si (001)]. *Poverhnost' — Surface*, 2000, no. 7, pp. 12 – 16.
6. Ledencov N.N., Ustinov V.M., Shchukin V.A., Kopyev P.S., Alferov Z.I., Bimberg D. Geterostruktury s kvantovymi tochkami: poluchenie, svoystva, lazery (obzor) [Heterostructures with quantum dots: production, properties, lasers (review)]. *Fizika i tekhnika poluprovodnikov — Physics and technology of semiconductors*, 1998, vol. 32, no. 4, pp. 385 – 410.
7. Nikiforov A.I., Ulyanov V.V., Pchelyakov O.P., Tijs S.A., Gutakovskij A.K. Poluchenie nanoostrovkov Ge ul'tramalyh razmerov s vysokoj plotnost'yu na atomarno-chistoj poverhnosti okisi Si [Obtaining ultra-small-sized Ge nanoislands with high density on atomically clean Si oxide surface]. *Fizika tvedogo tela — Physics of the solid state*, 2005, vol. 47, no. 1, pp. 67 – 69.
8. Lee C.H., Seng S.Y. In situ fix-angle X-ray reflectivity measurement of thin film roughness and thickness during deposition. *J. Appl. Cryst*, 1998, vol. 31, pp. 181 – 184.
9. Smirnov I.S., Novoselova E.G., Monakhov I.S., Egorov A.A. Applying the in situ X-ray reflectometry method to define the nanodimensional silicon film parameters. *Russian microelectronics*, 2014, vol. 43, no. 8, pp. 587 – 589.
10. Sherohovatost' poverhnosti [Surface roughness]. ГОСТ 25142-82.
11. Renauda G., Lazzari R., Leroy F. Probing surface and interface morphology with grazing incidence small angle X-ray scattering. *Surface science reports*, 2009, vol. 64, pp. 255 – 380.
12. Yoneda Y. Anomalous surface reflection of X-rays. *Physical Review*, 1963, vol. 131, pp. 2010 – 2013.
13. Ievlev V.M., Bugakov A.V., Trofimov V.I. Rost i substruktura kondensirovannyh plenok [Growth and substructure of condensed films]. Воронеж, VGTU Publ., 2000, 386 p.
14. Thompson C., Palazantzas G., Feng Y.P., Sinha S.K., Krim J. X-ray-reflectivity study of the growth kinetics of vapor-deposited silver films. *Physical Review B*, 1994, vol. 49, no. 7, pp. 4902 – 4907.
15. Peverini L., Ziegler E., Bigault T., Kozhevnikov I. Dynamic scaling of roughness at the early stage of tungsten film growth. *Physical Review B*, 2007, vol. 76, p. 045411-5.

References

1. Samavati A., Mustafa M.K., Othaman Z., Ghoshal S.K. Ge nanoislands grown by radio frequency magnetron sputtering: comprehensive investigation of surface morphology and optical properties. *Journal of nanomaterials*, 2015, Article ID 681242, pp. 1 – 20.
2. Steglich M., Patzig C., Berthold L., Schrepel F., Fuchs K., Höche T., Kley E.B., Tünnermann A. Heteroepitaxial Ge-on-Si by DC magnetron sputtering. *Sci. Technol. Adv. Mater*, 2014, no. 15, pp. 1 – 9.
3. Burbaev T.M., Kurbatov V.A., Pogosov A.O., Rzaev M.M., Sibeldin N.N. Fotolyuminescenciya kvantovyh toчек i kvantovyh yam germaniya v kremnii, poluchennyh pri nizkikh temperaturah molekulyarno-puchkovoj ehpitaksii [Photoluminescence of quantum dots and quantum wells of germanium in silicon, obtained at low temperatures of molecular beam epitaxy]. *Fizika i tekhnika poluprovodnikov — Physics and technology of semiconductors*, 2003, vol. 37, no. 2, pp. 216 – 218.
4. Sorianello V., Colace L., Armani N., Rossi F., Ferrari C., Lazzarini L., Assanto G. Low-temperature germanium thin films on silicon. *Optical materials express*, 2011, vol. 1, no. 5, pp. 856-865.

*Статья поступила в редакцию — 7.08.2018 г.,
после доработки — 17.10.2018 г.,
принята к публикации — 18.10.2018 г.*

Монахов Иван Сергеевич — Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики” (101000, Москва, Мясницкая ул., 20), ведущий инженер, специалист в области физики конденсированного состояния, рентгеновских методов исследования структуры материалов. E-mail: ivmontt@rambler.ru, imonakhov@hse.ru.

Бондаренко Геннадий Германович — Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики” (101000, Москва, Мясницкая ул., 20), заведующий лабораторией, доктор физико-математических наук, профессор, специалист в области физики конденсированного состояния, радиационной физики твердого тела. E-mail: bondarenko_gg@rambler.ru, gbondarenko@hse.ru.

Growth kinetics of a nano-sized germanium film deposited on the surface Si (001) by magnetron sputtering

I. S. Monakhov, G. G. Bondarenko

Devices based on silicon structures with quantum dots are successfully used in optoelectronics. These devices are based on Ge island films on Si or SiO₂. In this work, we investigated the methods for studying a nanoscale germanium film deposited by magnetron sputtering on a Si (001) surface. This investigation carried out using the developed experimental X-ray reflectometry technique, distinguished by joint recording of specularly reflected and diffusely scattered radiation. Using this technique, it is possible to carry out in situ both the analysis of the morphology of the growing film, and the control of its thickness with an accuracy of 1 nm. The dependences of the intensity of specular reflection, diffuse scattering, growth rate, mean-square roughness of the film and its density on the deposition time are obtained. According to the results of measurements of specularly reflected radiation, the film roughness increased with time according to a power law. However, with a film thickness of 4 nm, a clearly defined diffuse scattering maximum was observed, the angular position of which corresponded to the critical angle of total external reflection of germanium, 0.31°. This picture of the distribution of scattered radiation is explained by the manifestation of the Yoneda effect, which consists in the anomalous X-ray scattering, the maximum of which corresponds to the critical angle θ_c of total external reflection from the film. It was established experimentally that, at the initial stage of growth, a film is formed by the Volmer-Weber mechanism. Using the in-situ X-ray reflectometry method, it was found that the formation of a continuous layer of germanium film occurs at its thickness equal to 7 nm; the subsequent growth of the film is carried out according to the power law $\sigma_f \sim t^\beta$, where $\beta = 0.23$.

Keywords: germanium, quantum dots, magnetron sputtering, X-ray reflectometry, Yoneda effect.

Monakhov Ivan — National Research University “Higher School of Economics” (Moscow 101000 Myasnitskaya Str., 20), leading engineer, specialist in the field of condensed matter physics, X-ray methods for studying the structure of materials. E-mail: ivmontt@rambler.ru.

Bondarenko Gennady — National Research University “Higher School of Economics” (Moscow 101000 Myasnitskaya Str., 20), DrSci (Phys-Math), professor, head of laboratory, specialist in condensed matter physics and radiation solid-state physics. E-mail: bondarenko_gg@rambler.ru.