

Деформация сверхтонких слоев SiGeSn в матрице кремния

А. К. Гутаковский, А. Б. Талочкин¹⁾

Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 11 октября 2017 г.

Исследована деформация слоев твердого раствора SiGeSn толщиной $d = 1.5, 2.0$ нм, полученных в Si с помощью молекулярно лучевой эпитаксии. Использован метод геометрической фазы при анализе изображений электронной микроскопии (ЭМ) сверхвысокого разрешения. Толщина слоев раствора сравнима с пространственным разрешением ($\Delta \sim 1$ нм) ЭМ, что приводит к значительному искажению профиля распределения деформации и погрешности в определяемой величине деформации. Из сравнения формы наблюдаемого и реального распределения деформации в исследованных слоях получены поправки к измеряемой величине, приближающие ее к реальному значению. Поправка определяется отношением Δ/d . Найденные значения деформации хорошо согласуются с величинами, рассчитанными для псевдоморфного состояния слоев в модели абсолютно жесткой подложки.

DOI: 10.7868/S0370274X17240043

1. Введение. Современные тенденции в микроэлектронике связаны с широким использованием сверхтонких полупроводниковых слоев, встроенных в матрицу основного материала [1, 2]. Как правило, параметры этих слоев могут значительно отличаться от свойств матрицы. Так, деформация, возникающая из-за разности их постоянной решетки, играет важную роль, определяющую энергию электрон-дырочных состояний, подвижность носителей и другие параметры структуры [3, 4]. Поэтому, измерение деформации и возможность управлять ее значением является важной задачей.

Электронная микроскопия (ЭМ) – эффективный метод прямого определения деформации слоев в структурах нанометрового размера [5]. Для этой цели используются следующие основные разновидности метода ЭМ: дифракция сходящихся электронных пучков [6], дифракция электронных пучков наноразмерной апертуры [7], электронная голография темного поля [8] и высокоразрешающая электронная микроскопия (ВРЭМ) [9, 10]. Сравнительный анализ возможностей перечисленных методов ЭМ [11] показал, что они обнаруживают близкие предельные параметры по чувствительности (измеряемая деформация составляет $10^{-4}–10^{-3}$) и пространственному разрешению $\Delta \approx 2–5$ нм. Эти методы различаются геометрией наблюдения, оптимальным размером исследуемого поля, а также способом калибровки (т.е. сравнением с невозмущенной областью кристалла).

Использование каждого из них связано с удобством и эффективностью в разных случаях [11].

Метод ВРЭМ основан на получении ЭМ-изображений с атомным разрешением, из которых извлекается распределение деформации с помощью метода геометрической фазы (ГФ), который наиболее прост и удобен, поскольку не требует использования дополнительных технических инструментов в вакуумной камере микроскопа, а также не возникает трудностей с калибровкой, как в других методах [11]. Со времени создания Takeda [12] и Nythch [13] метода ГФ он с успехом применялся для измерения деформаций в различных структурах [9–11].

Детальный теоретический анализ метода ГФ [14] показал, что поскольку для определения фазы пространственной гармоникой, определяющей деформацию решетки, необходимо использовать несколько периодов, на этом расстоянии происходит усреднение фазы. Данная длина, составляющая идеальном случае $\Delta_0 \approx 1$ нм [14], является величиной пространственного разрешения. В результате, ГФ-анализ дает достоверный результат в случае плавного изменения фазы (деформации). Когда деформация меняется резко, к примеру вблизи гетерограниц, наблюдается искажение (размытие) реального профиля деформации. Для слоев, толщина которых $d > \Delta_0$, это размытие несущественно, и деформация измеряется достоверно точно. Этот случай рассматривался в ряде работ ранее (см. например [9–11, 15, 16]). Для сверхтонких слоев ($d \sim \Delta_0$) конечное пространствен-

¹⁾e-mail: tal@isp.nsc.ru

ное разрешение может существенно искажать реальное распределение деформаций в структуре и, как следствие, измеряемая деформация может отличаться от реальной. В результате ее значение нуждается в корректировке, учитывающей влияние конечного пространственного разрешения.

Целью данной работы было определение деформации сверхтонких слоев SiGeSn раствора толщиной $d = 1.5, 2.0$ нм, полученных в Si с помощью молекулярно лучевой эпитаксии (МЛЭ), методом ГФ. Исследованные растворы, как показано недавно [17, 18], представляют собой перспективный материал для создания прямозонного соединения на основе полупроводников IV группы, а возникающие деформации при этом играют ключевую роль. В наших экспериментах установлено, что наблюдаемые профили деформации слоев значительно отличаются от реального распределения, что приводит к погрешности в величине деформации. Показано, что простейшая корректировка, определяемая соотношением Δ/d , позволяет приблизить наблюдаемое значение деформации к реальному.

2. Условия экспериментов. Исследованные образцы были выращены на МЛЭ установке “Катунь-С”, оснащенной электронно-лучевыми испарителями для Si и Ge, а Sn наносился из эффузионной ячейки. Буферный слой Si толщиной 150 нм выращивался на Si (100) подложке при температуре $T_S = 700$ °С. Далее выращивалась периодическая структура, состоящая из слоя раствора $\text{Si}_{1-x-y}\text{Ge}_x\text{Sn}_y$ толщиной 1.5–2.0 нм и разделительного слоя Si толщиной 15 нм. Этот период повторялся 5 раз. Слой раствора выращивался при $T_S = 100\text{--}150$ °С со скоростью 0.8 нм/мин, а Si при $T_S = 500$ °С со скоростью 2.0 нм/мин. Для разных образцов концентрация Ge составляла $x \approx 0.3\text{--}0.6$, а состав Sn варьировался в диапазоне 2–8 ат. %. Указанные параметры роста слоев SiGeSn раствора выбирались таким образом, чтобы подавить диффузионное перемешивание компонентов на границах, а также предотвратить сегрегацию олова и неупругую релаксацию напряжений [18]. В результате, слой раствора был выращен псевдоморфно к Si. Более подробно о получении данных структур изложено в работах [18, 19].

Кристаллическая структура полученных образцов исследовалась с помощью электронной микроскопии высокого разрешения (ЭМВР). Использовался электронный микроскоп JEOL-4000EX с энергией электронов 400 кэВ и разрешением 0.16 нм. Профиль распределения деформации извлекался из полученных ЭМ изображений методом геометрической фазы

(ГФ) с использованием коммерческого пакета программ Digital Micrograph.

3. Результаты и обсуждение. На рис. 1а показано ЭМ-изображение поперечного среза пятислойной SiGeSn/Si структуры, полученное с большим увеличением, которое содержит отдельный SiGeSn слой, – на рис. 1б. Здесь приблизительное положение границ между слоем раствора и Si отмечены стрелками. Видно, что достигается совершенное эпитаксиальное сопряжение на этих границах, поскольку дислокации несоответствия и другие протяженные дефекты, ответственные за неупругую релаксацию напряжений в слое раствора, не наблюдаются. Отсюда, слой SiGeSn раствора получен псевдоморфно на Si.

На рис. 1с, d показаны распределения величины ε_{zz} компоненты деформации вдоль оси роста z (100) относительно постоянной решетки Si, полученные с помощью ГФ-анализа для двух образцов S57 и S21. Область анализа выделена на рис. 1а штриховым контуром. Слои раствора первого образца имеют толщину $d_1 = 1.5$ нм, содержание Ge $x_1 \approx 0.6$, а состав Sn $y_1 \approx 8$ ат. %. Для второго образца $d_2 = 2.0$ нм, $x_2 \approx 0.25$ и $y_2 \approx 2$ ат. %. Из рис. 1с, d следует, что слои раствора растянуты вдоль оси роста ($\varepsilon_{zz} > 0$). Из-за того, что постоянная решетки раствора больше, чем этот параметр для Si, в плоскости роста возникает сжимающее напряжение в пленках раствора, которое вызывает растяжение решетки в перпендикулярном направлении (ось z). Наблюдаемая амплитуда деформации зависит от состава раствора и будет рассмотрена далее.

На рис. 1с, d можно увидеть, что полученные с помощью ГФ-анализа распределения деформации в слоях имеют почти треугольную форму, в то время как для псевдоморфного состояния слоев деформация резко меняется на границах [20–22]. Этот скачок оказывается размыт из-за влияния конечного пространственного разрешения и величина размытия сравнима с толщиной слоя раствора. Следовательно, происходит значительное искажение реального распределения деформаций. В результате, наблюдаемая амплитуда деформации (рис. 1с, d) может отличаться от реального значения. Определение возникающих отклонений будет предметом дальнейшего рассмотрения.

Подробные профили распределения ε_{zz} компоненты деформации, измеренные на образцах S57 и S21 представлены на рис. 2а, b соответственно. Экспериментальные данные обозначены на рисунке символами. В области слоя раствора ($\varepsilon_{zz} > 0$) через них проведены прямые до пересечения в максимуме распределения. Форма профиля растяжения

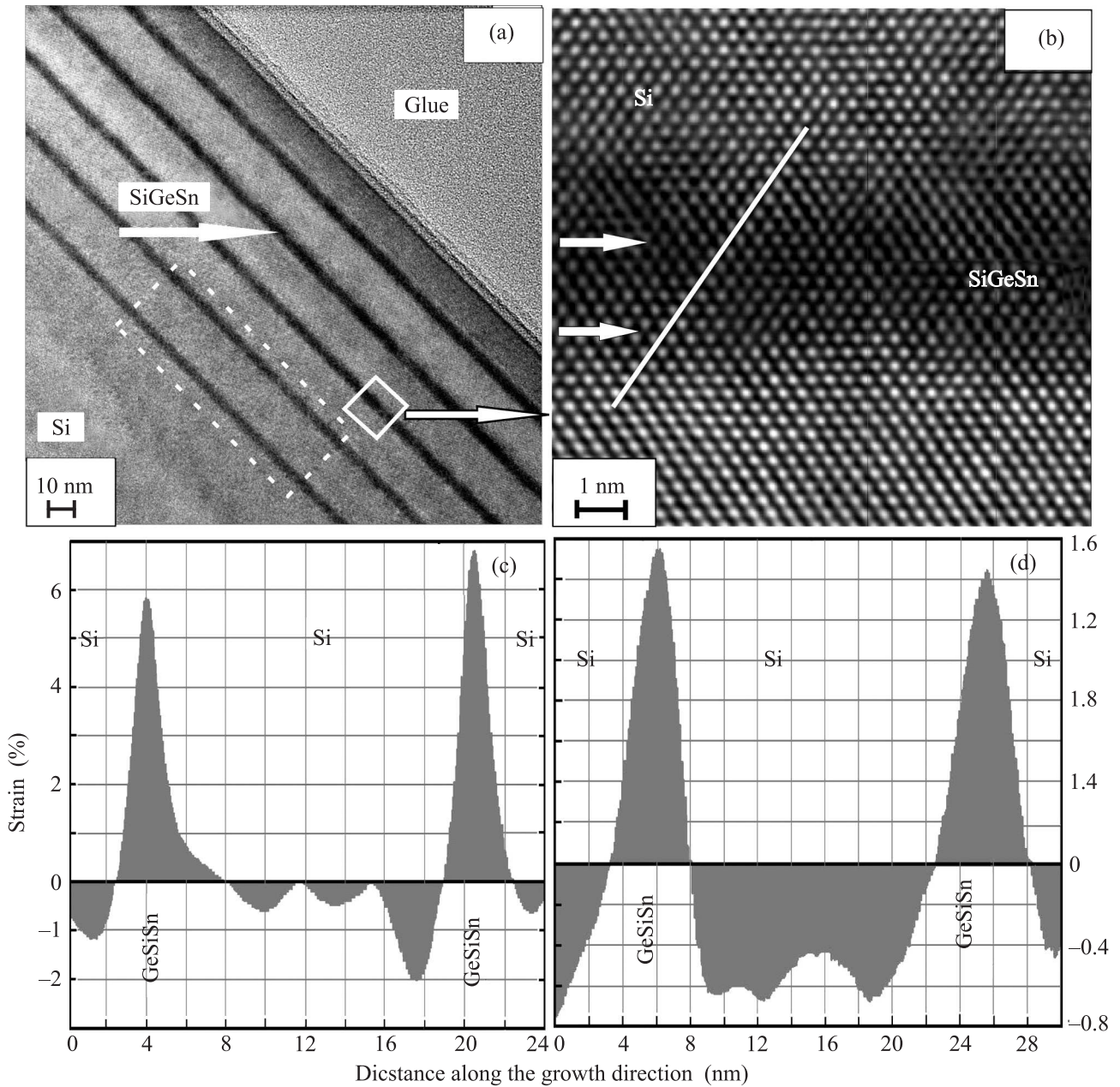


Рис. 1. (a), (b) – ВРЭМ-изображения многослойной SiGeSn/Si структуры, полученные с разным увеличением. (c), (d) – Профили распределения напряжения вдоль оси роста, полученные с помощью ГФ-анализа для двух образцов S57 и S21 соответственно

($\epsilon_{zz} > 0$) близка к треугольной с размерам основания $D_1 = 3.0$ нм и $D_2 = 5.3$ нм для образцов S57 и S21, соответственно, в то время как ответная сжимающая деформация ($\epsilon_{zz} < 0$) возникает в разделительных слоях Si. Качественный вид полученных зависимостей существенно отличается от распределения напряжений, рассчитанных для сверхтонких псевдоморфных слоев [20–22], которые показаны на рис. 2с, d. В реальности деформация ме-

няется резко на границах раздела, причем деформации ϵ_r встроенного псевдоморфного слоя, как показали теоретические расчеты [20–22] и эксперименты [23, 24], хорошо соответствует условию равенства постоянных решетки пленки и подложки в плоскости роста. В результате, метод ГФ обнаруживает значительное искажение распределения деформации сверхтонких слоев по сравнению с реальным. Поэтому, измеряемая деформация может отличаться

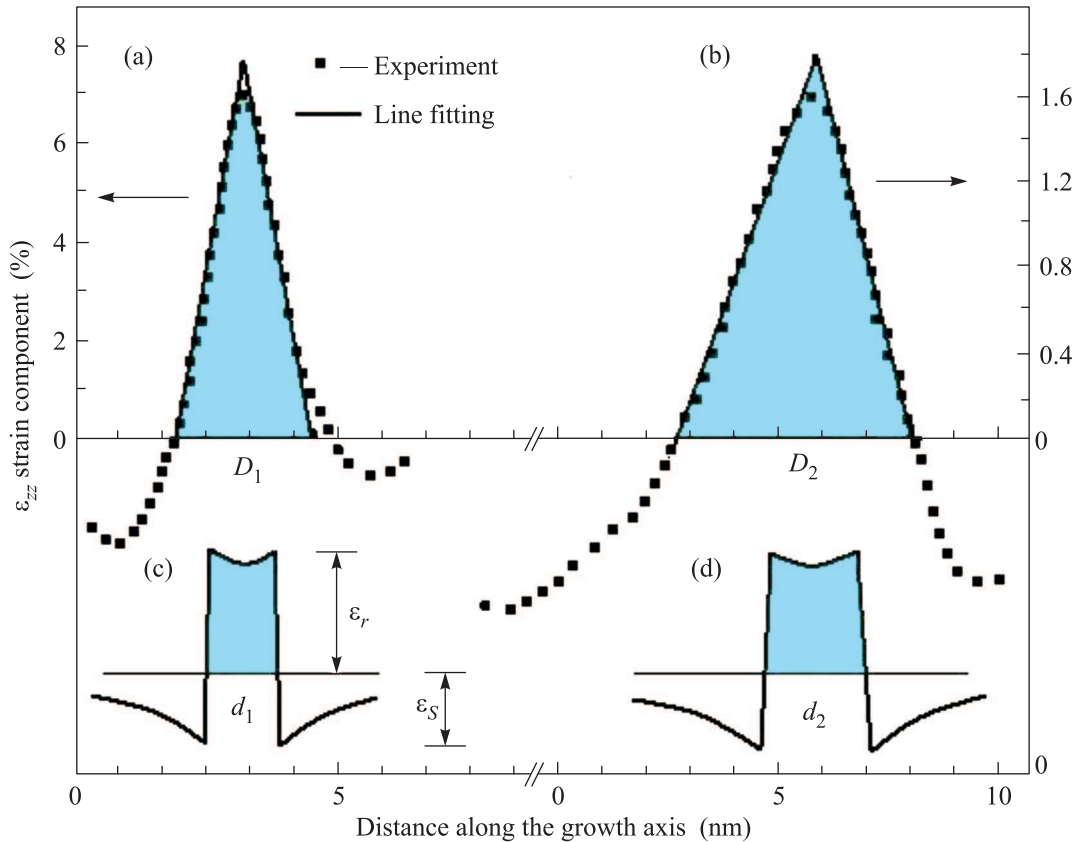


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a), (b) – Распределение ε_{zz} компоненты деформации вдоль оси роста, измеренное для образцов S57 и S21. (c), (d) – Качественный вид реального распределения деформации для Образцов S57 и S21

ся от истинного значения и нуждается в коррекции.

Как отмечено выше, ГФ-анализ имеет конечное пространственное разрешение Δ , которое приводит к усреднению фазы (деформации) на этой длине. Детальная процедура усреднения достаточно сложна и скрыта в стандартной математической обработке ГФ-метода. В тоже время, из сравнения наблюдаемого распределения деформации с реальным контуром (см. рис. 2a–d) можно видеть результат этого усреднения. Так, резкое изменение деформации на границах (см. рис. 2c, d) трансформируется в наклонные прямые, которые соединяются в вершине треугольника (см. рис. 2a, b). Легко понять, что в нашем случае Δ равно примерно половине основания этого треугольника (D_1, D_2), которое превышает реальную толщину слоя. Отсюда, данное усреднение перераспределяет деформацию вдоль оси z и можно предположить, что наблюдаемое изменение формы распределения связано с сохранением площади (заштрихованные области на рис. 2). Используя данное условие, можно найти реальную деформацию $\varepsilon_r = \varepsilon_{zz}(\Delta/d)$. Для образца S57 $\varepsilon_r \approx \varepsilon_{zz}(\Delta_1/d_1) = 0.07$, а для вто-

рого образца $\varepsilon_r \approx \varepsilon_{zz}(\Delta_2/d_2) = 0.021$. Таким образом, деформация, измеренная в первом образце с помощью метода ГФ, совпадает с реальным значением поскольку $(\Delta_1/d_1) \approx 1$, а для второго образца $(\Delta_2/d_2) \approx 1.3$ реальное значение оказывается на 30 % больше наблюдаемого.

Рассмотрим деформацию слоев SiGeSn раствора, индуцированную их псевдоморфным состоянием, в приближении абсолютно жесткой подложки. Согласно закону Вегарда, равновесная постоянная решетки раствора $\text{Si}_{(1-x-y)}\text{Ge}_x\text{Sn}_y$ определяется выражением:

$$a^{\text{al}} = a_0 + (a_1 - a_0)x + (a_2 - a_0)y, \quad (1)$$

где $a_0 = 0.543$ нм, $a_1 = 0.565$ нм и $a_2 = 0.649$ нм – постоянные решетки Si, Ge и Sn, соответственно.

Пленка раствора, выращенная псевдоморфно на Si, имеет постоянную решетки в плоскости роста (x, y) , равную равновесной постоянной решетки Si (суть использованного приближения). Отсюда, компоненты деформации в плоскости роста составляют $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = (a_0 - a^{\text{al}})/a^{\text{al}}$. Из соотношения Пуассона следует, что деформация сжатия в плоскости ро-

ста ($\varepsilon_{xx} < 0$) вызывает удлинение решетки вдоль оси роста (z). Используя условие равенства нулю компоненты напряжения вдоль оси z , можно найти компоненту деформации ε_{zz} относительно решетки Si. Имеем:

$$\varepsilon_{zz} = \frac{a^{\text{al}} - a_0}{a_0} \left(1 + 2 \frac{c_{12}^{\text{al}}}{c_{11}^{\text{al}}} \right), \quad (2)$$

где c_{11}^{al} и c_{12}^{al} – компоненты тензора упругих постоянных твердого раствора, значения которых определялись по закону Вегарда из соответствующих постоянных для Si, Ge, и Sn [25]. Используя соотношения (1) и (2) и параметры слоев раствора, заданные в процессе роста, мы нашли, что для образца S57 – $\varepsilon_{zz} = 0.069$, а для образца S21 – $\varepsilon_{zz} = 0.024$. Эти значения хорошо согласуются с величинами, полученными с помощью корректировки данных ГФ-анализа. В результате, сделанное выше предположение о сохранении площади под профилем распределения деформации в процессе ГФ-анализа оказывается справедливым и позволяет определить реальное значение деформации, когда существенно влиянием конечного пространственного разрешения.

Использованная модель абсолютно жесткой подложки является нулевым приближением при определении деформации пленки. В следующем приближении учитывается податливость Si как изотропной среды [11]. Этот подход дает, что ε_{zz} уменьшается на величину деформации ε_S (см. рис. 2), возникающей в слое Si, значение которой не превышает $0.1 \cdot \varepsilon_r$, что наблюдалось экспериментально для толстых пленок ($d > 5$ нм) в ряде работ [9–11, 15]. В нашем случае, как следует из рис. 2, амплитуда этой деформации значительно больше $\varepsilon_S = (0.3–0.5) \cdot \varepsilon_{zz}$, что не соответствует этому приближению.

Для тонких слоев анизотропия, связанная с ориентацией атомных связей, существенно влияет на возникающее поле деформаций, которое находится с помощью численных расчетов из условия минимума энергии атомной конфигурации [20]. Расчеты, выполненные для различных потенциалов межатомного взаимодействия [20–22], показали, что в этом случае значение деформации Si может быть значительно больше и достигать ε_{zz} , при этом деформация пленки может соответствовать случаю абсолютно жесткой подложки. Отсюда, значения деформации, определенные в наших слоях, согласуются с результатами теоретических расчетов [20–22].

Отметим, что совпадение определенной деформации с ее значением, вычисленным в модели абсолютно жесткой подложки, является удивительным фактом, поскольку данная модель явно не применима в нашем случае. Однако, это относится только к одной

(ε_{zz}) компоненте тензора деформации, значения других компонент (ε_{xx} , ε_{xy} и др.) не соответствуют этой простейшей модели и должны вычисляться численно [20–22]. Обнаруженное совпадение вряд ли является случайным, поскольку наблюдается в слоях с разной толщиной и значением деформации. Следовательно, данным результатом можно пользоваться для определения компоненты деформации пленки вдоль оси роста, не прибегая к численным расчетам.

4. Выводы. Изучена возможность определения деформации сверхтонких слоев раствора SiGeSn с помощью ГФ-анализа ЭМВР-изображений в условиях конечного пространственного разрешения. Установлено, что наблюдается значительное искажение профиля распределения деформации по сравнению с реальным, что влияет на значение измеряемой деформации исследуемого слоя. Показано, что простейшая корректировка, основанная на сохранении площади профиля распределения деформации в процессе ГФ-анализа, позволяет устранить возникающую неточность. Значение деформации, полученное для псевдоморфной пленки в модели абсолютно жесткой подложки, хорошо согласуется с экспериментом.

Авторы выражают благодарность А.И. Никифорову и В.А. Тимофееву за предоставление исследованных образцов. Исследования выполнены на оборудовании ЦКП “Наноструктуры” при поддержке Российского научного фонда (грант # 14-22-00143).

1. D. J. Paul, *Semicond. Sci. Technol.* **19**, R75 (2004).
2. C. Auth, M. Buehler, A. Cappellani, C.H. Choi, G. Ding, W. Han, S. Joshi, B. McIntyre, M. Prince, P. Ranade, J. Sandford, and C. Thomas, *Intel Technol. J.* **12**, 77 (2008).
3. M. Jeong, V. Narayanan, D. Singh, A. Topol, V. Chan, and Z. Ren, *Mater. Today* **9**, 2631 (2006).
4. J. Nicolai, C. Gatel, B. Warot-Fonrose, R. Teissier, A.N. Baranov, C. Magen, and A. Ponchet, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 031907 (2014).
5. S. Kret, P. Ruterana, A. Rosenauer, and D. Gerthsen, *Phys. Stat. Solidi (b)* **227**, 247 (2001).
6. F. Houdellier, C. Roucau, L. Clement, J. Rouviere, and M. Casanove, *Ultramicroscopy* **106**, 951 (2006).
7. A. Beche, J.L. Rouviere, L. Clement, and J.M. Hartmann, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 123114 (2009).
8. M. Hytch, F. Houdellier, F. Hue, and E. Snoeck, *Nature* **453**, 1086-US (2008).
9. E. Sarigiannidou, E. Monroy, B. Daudin, J.L. Rouviere, and A.D. Andreev, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 203112 (2005).
10. F. Hue, M. Hytch, H. Bender, F. Houdellier, and A. Claverie, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 156602 (2008).

11. A. Beche, J. L. Rouviere, J. P. Barnes, and D. Cooper, *Ultramicroscopy* **131**, 10 (2013).
12. M. Takeda and J. Suzuki, *J. Opt. Soc. Am. A* **13**, 1495 (1996).
13. M. J. Hytch, E. Snoeck, and R. Kilaas, *Ultramicroscopy* **74**, 131 (1998).
14. J. L. Rouviere and E. Sarigiannidou, *Ultramicroscopy* **106**, 1 (2005).
15. А. К. Гутаковский, А. Л. Чувилин, S. A. Song, *Известия РАН, сер. Физическая* **71**, 1464 (2007).
16. S. H. Vajargah, M. Couillard, K. Cui, S. G. Tavakoli, B. Robinson, R. N. Kleiman, J. S. Preston, and G. A. Botton, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 082113 (2011).
17. A. Attiaoui and O. Moutanabbir, *J. Appl. Phys.* **116**, 063712 (2014).
18. A. I. Nikiforov, V. A. Timofeev, A. R. Tuktamyshev, A. I. Yakimov, V. I. Mashanov, and A. K. Gutakovskii, *J. Cryst. Growth* **457**, 215 (2017).
19. A. B. Talochkin, V. A. Timofeev, A. K. Gutakovskii, and V. I. Mashanov, *J. Cryst. Growth* **478**, 205 (2017).
20. А. В. Ненешев, А. И. Двуреченский, *ЖЭТФ* **118**, 570 (2000).
21. Y. Kikuchi, H. Sugii, and K. Shintani, *J. Appl. Phys.* **89**, 1191 (2001).
22. C. E. Pryor, M. E. Flatte, and J. Levy, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 232103 (2009).
23. A. B. Talochkin and V. A. Markov, *Nanotechnology* **19**, 275402 (2008).
24. A. B. Talochkin, V. A. Markov, and V. I. Mashanov, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 093127 (2007).
25. В. П. Михальченко, *ФТТ* **45**, 429 (2003).