

САМООРГАНИЗУЮЩИЕСЯ НАНООСТРОВКИ ГЕРМАНИЯ В КРЕМНИИ, ПОЛУЧЕННЫЕ МЕТОДОМ МОЛЕКУЛЯРНО-ЛУЧЕВОЙ ЭПИТАКСИИ

В.Я.Алешкин, Н.А.Бекин, Н.Г.Калугин, З.Ф.Красильник¹⁾, А.В.Новиков, В.В.Постников, Х.Сейрингер^{2)*}

Институт физики микроструктур РАН
603600 Нижний Новгород, Россия

**Institute for Semiconductor Physics, Johannes Kepler University of Linz,
Linz, Austria*

Поступила в редакцию 2 декабря 1997 г.

Методом молекулярно-лучевой эпитаксии получены нанометровые островки германия в эпитаксиальных слоях кремния. На атомно-силовом микроскопе выявлены размеры и формы островков. В спектрах фотолюминесценции обнаружены линии, которые интерпретируются как квазипрямые оптические периоды в островках. На основании оптических, микроскопических измерений и теоретических расчетов энергии электронных состояний делается вывод о растворении кремния в германиевых островках, и приводятся значения содержания германия и кремния в твердом растворе.

PACS: 68.55.-a, 81.15.-z

В данной работе изучаются физические свойства нанометровых островков германия в кремнии, полученных в процессе молекулярно-лучевой эпитаксии. Формирование островков при определенных условиях эпитаксиального роста упругонапряженных атомных слоев германия на кремнии связано с процессом самоорганизации островков в соответствии с механизмом Странского – Крастанова [1]. Процессам самоорганизации островков Ge в эпитаксиальных слоях Si в последние годы посвящено значительное число работ [1–5]. Столь заметный интерес к подобным объектам, по-видимому, в некоторой степени инициирован динамично развивающимися исследованиями квантовых точек в напряженных гетероструктурах на основе материалов A_3B_5 , в результате которых оказались существенно развитыми представления о росте самоорганизующихся структур, физических свойствах объектов с нуль-мерной плотностью состояний, прикладных аспектах использования структур с массивами квантовых точек.

К настоящему времени выявлены основные условия формирования самоорганизующихся островков германия в кремнии в процессе эпитаксиального роста в высоком вакууме [2, 3] либо в газовой среде при атмосферном или пониженном давлении [4, 5]. В отличие от квантовых точек A_3B_5 островки германия имеют большие размеры в плоскости роста, электронный спектр носителей заряда в них носит двумерный характер. Размеры островков и плотность их упаковки в плоскости роста существенно зависят от температуры подложки, скорости осаждения Ge и Si [2]. Остаются открытыми вопросы, связанные с деформацией и дислокациями в островках, их формой,

¹⁾ e-mail: zfk@ipm.sci-nnov.ru

²⁾ H.Seyringer.

растворимостью кремния и образованием твердого раствора SiGe в них, спектрами электронных состояний и оптическими переходами и др. Выяснению части из этих вопросов посвящена данная работа.

Исследуемые структуры выращивались на установке фирмы "Balzers", модернизированной для молекулярно-лучевой эпитаксии Si/Ge гетероструктур. Давление остаточных газов в камере роста не превышало $5 \cdot 10^{-10}$ мбар, рабочее давление – $2 \cdot 10^{-8}$ мбар. Кремний и германий испарялись из источников электронными пушками. В качестве подложки использовались пластины Si(100) *p*-типа. Структуры выращивались при двух температурах подложки $T_g = 550^\circ\text{C}$ и 700°C . Предварительная очистка поверхности подложек достигалась термическим травлением при $T = 1150^\circ\text{C}$. Выращивались два типа структур. Структуры, предназначенные для анализа с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ), содержали буферный слой кремния толщиной 225 нм, на который последовательно осаждались слой германия от 2 до 10 монослоев (1 монослой = 1.4 \AA) и слой кремния $40 \div 50 \text{ \AA}$. Для фотолюминесцентных измерений на буфере толщиной 500 нм растилась десятипериодная решетка чередующихся слоев германия $2 \div 7.8$ монослоя и кремния 500 \AA . Скорости роста Si- и Ge-слоев составляли $2 \text{ \AA}/\text{с}$ и $0.05 \text{ \AA}/\text{с}$, соответственно. Перед началом роста Ge скорость роста Si снижалась до $0.5 \text{ \AA}/\text{с}$ для уменьшения шероховатости гетерограницы. Как будет показано ниже, в результате внутренних упругих напряжений, возникающих из-за несоответствия периодов решеток Si и Ge, слой германия при превышении толщины порядка $3 \div 4$ монослоя трансформировался в островки. В этой связи приводимые здесь и ниже значения толщины слоя германия $> 3 - 4$ монослоев носят условный характер – слой такой толщины мог бы быть высажен на подложке в соответствии со скоростью и временем испарения источника, если бы не образовывались островки.

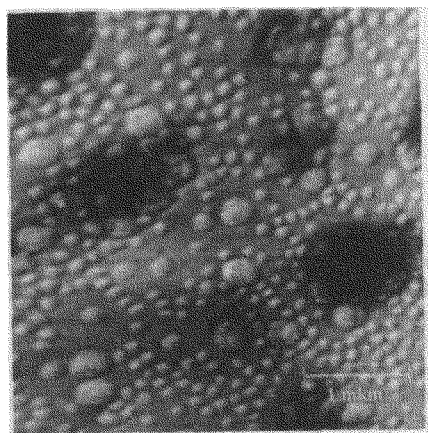


Рис.1. АСМ-снимок образца, выращенного при $T_g = 700^\circ\text{C}$ с $d_{\text{Ge}} = 10$ монослоев

Структуры кремния с германием исследовались на АСМ фирмы "Park Scientific Instrument" в комнатных условиях. На рис.1 представлен АСМ-снимок образца со слоем Ge толщиной $d_{\text{Ge}} = 10$ монослоев, выращенного при $T_g = 700^\circ\text{C}$. По данным микронзондовых исследований критическая толщина Ge-слоя (d_c), при превышении которой происходит самоорганизация островков, для наших условий роста составляла $d_c = 4.5 \text{ \AA}$ (3.2 монослоя). С увеличением количества высаженного Ge увеличиваются размеры островков и их концентрация. По поперечным размерам D островки

можно разбить на три группы: $D \leq 190$ нм, $200 \leq D \leq 300$ нм и $D \geq 350$ нм. Судя по размерам и форме островков первой и второй групп, это, по-видимому, упругонапряженные бездислокационные островки, в которых частичная релаксация упругих напряжений произошла за счет локальной деформации приповерхностного слоя кремния [1] и релаксации напряжений на свободной поверхности островков. Третья группа – это островки, претерпевшие пластическую релаксацию упругих напряжений за счет образования в них дислокаций несоответствия. Размер островков в плоскости роста, при котором происходит образование дислокаций, близок к критическому размеру упругонапряженных островков $D > 300$ нм, измеренному в работе [5].

Поверхностная плотность островков N_s зависит от толщины слоя Ge и при разных количествах высаженного германия колеблется в пределах от $8 \cdot 10^7$ см⁻² до $2 \cdot 10^9$ см⁻². Снижение температуры роста до 550 °С приводит к более однородному распределению островков по размерам, уменьшению их среднего размера ($D \approx 190$ нм) и увеличению поверхностной плотности. Данные по размерам и концентрации самоорганизующихся островков согласуются с выводами работы [2].

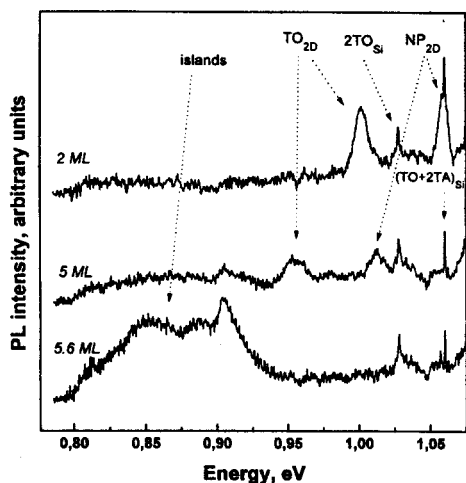


Рис.2. Спектры фотолюминесценции структур, выращенных при $T_g = 700$ °С, с различными толщинами Ge-слоя

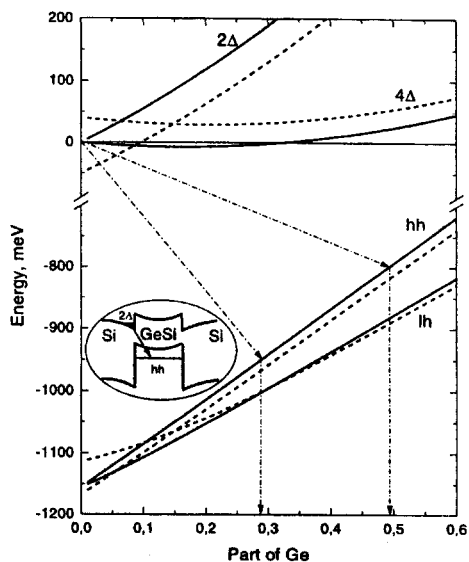


Рис.3. Расчет зоны проводимости и валентной зоны твердого раствора $Si_{1-x}Ge_x$, гомоморфно выращенного на подложке Si (100) (постоянная решетки – 5.43 Å, сплошные линии). Штриховая линия соответствует упругонапряженному кремнию (постоянная решетки 5.46 Å). На вставке показана зонная диаграмма для случая, когда $x > 0.32$

Спектры фотолюминесценции структур Si/Ge, полученные при возбуждении Kr^+ лазером ($\lambda = 647$ нм), измерены при 4 К с разрешением 0.5 мэВ на фурье-спектрометре "Воем" DA3-36 с охлаждаемым фотоприемником InGaAs, см. рис.2. Помимо линий люминесценции кремниевой подложки (фононных реплик с участием оптического ТО и акустических ТА фононов (см. рис.2)), в спектрах образцов с эффективным слоем германия ≤ 5 монослоев наблюдается люминесценция, связан-

ная со смачивающим слоем Ge (2D) (с участием ТО-фононов – ТО_{2D} и бесфононная линия NP_{2D}). Для образца $d_{Ge} = 2$ монослоя линия NP_{2D} попадает в диапазон фоновых линий (ТО+2ТА)_{Si} люминесценции подложки. С увеличением количества высаженного германия линии фотолюминесценции, связанные с германиевым слоем, смещаются в область меньших энергий вследствие эффекта размерного квантования. Положение линий от смачивающего слоя хорошо согласуется с расчетными значениями.

При толщине слоя Ge больше некоторой критической наблюдается широкий пик в районе $0.8 \div 0.925$ эВ. Эта полоса излучения связывается с образованием наноструктур Ge.

Характерные размеры островков в плоскости роста превышают 10^3 Å. Их высота примерно на порядок меньше. При таких размерах энергия, связанная с эффектом размерного квантования дырок в островках Ge, не превышала бы 20 мэВ, и, следовательно, сильное смещение в область энергий 800 – 925 мэВ широкой полосы фотолюминесценции относительно излучения кремния нельзя однозначно связать с чисто германиевыми островками в кремнии. Можно допустить, что островки представляют собой твердый раствор германия с кремнием [2], и тогда оценить молярную долю кремния в них.

На рис.3 приведены положения краев зон тонкого гомоморфного твердого раствора Si_{1-x}Ge_x на Si, вычисленные с использованием модели [6]. Символами hh и lh обозначены зоны тяжелых и легких дырок, 2Δ – две дельта-долины зоны проводимости, наибольшее значение массы электронов в которых – вдоль направления роста, 4Δ – остальные четыре дельта-долины зоны проводимости, L – L -долина. Расчеты показывают, что фотолюминесценция в интервале энергий 800 – 925 мэВ в гомоморфно выращенном растворе на кремниевой подложке возможна, если доля германия в островках составляет от 30 до 50%. Образование раствора в островках, по-видимому, связано с сегрегацией германия.

Поскольку структуры обладают p -типом проводимости и островки являются потенциальными ямами для дырок, последние аккумулируются в островках, заряжая их положительно. Значение поверхностной концентрации дырок в островках при объемной концентрации дырок в Si $\sim 10^{15}$ см⁻³ можно оценить, как для квантовой ямы с таким же уровнем энергии основного состояния тяжелых дырок $\sim 4 \cdot 10^{10}$ см⁻² (см., например, [7]). В результате кулоновского отталкивания дырки внутри островков должны сосредоточиться вдоль гетерограниц. Положительный заряд островков создает квантовую яму для фотоэлектронов в кремнии вблизи гетероперехода (см. вставку на рис.3). В случае, когда дно зоны проводимости в кремнии ниже, чем в островках (на рис.3 видно, что это имеет место при $x > 0.32$, энергия фотолюминесценции $E_{pl} < 960$ мэВ), за счет эффекта размерного квантования в этой яме основными состояниями оказываются состояния 2Δ -долин из-за больших по сравнению с 4Δ -долинами значений масс вдоль направления (001). Здесь в первую очередь рассматриваются электроны, находящиеся около основания и верхней границы островков, поскольку именно они должны давать основной вклад в фотолюминесценцию из-за большой разницы в площадях боковых сторон и оснований. За счет размерного квантования квазиимпульс электронов, перпендикулярный гетерограницам, перестает сохраняться (зона Бриллюэна двумерна) и состояния электронов 2Δ -долин перемещаются в центр двумерной зоны Бриллюэна. В этом случае

межзонные оптические переходы оказываются прямыми в импульсном пространстве ($\mathbf{p}_{final} - \mathbf{p}_{initial} = 0$) [6], однако в координатном пространстве переходы являются непрямыми, так как электроны и дырки локализованы по разные стороны гетерограницы. Вероятно, поэтому интенсивность фотолюминесценции слабая.

Островки имеют размеры, при этом значительная ширина линии люминесценции, связанной с наличием островков, определяется, по-видимому, не столько разбросом их размеров, как это имеет место для самоорганизующихся квантовых точек InAs/GaAs [8], сколько неоднородным распределением долей германия и кремния в островках и разной степенью релаксации упругих напряжений. Вероятно, поэтому положение сильно уширенной линии фотолюминесценции, связанной с островками, слабо чувствительно к размеру островков.

Если допустить, что произошла частичная релаксация упругих напряжений в твердом растворе за счет деформации окружающего кремния, то, как показывают расчеты, доля германия в островках, фотолюминесценция которых приходится на область энергий 0.8 – 0.925 эВ, должна уменьшиться по сравнению с островками, где такая релаксация не произошла. Этот вывод можно сделать, проанализировав рис.3, где штриховыми линиями изображены положения краев зон в твердом растворе в случае, когда окружающие его слои кремния деформированы.

Авторы благодарны А.Ю.Андрееву за организацию измерений на АСМ. Работа выполнена при поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований 96-02-16991 и проекта МНТП "Физика твердотельных наноструктур" 96-2011.

-
1. G.Abstreiter, P.Schittenhelm, C.Engel et al., *Semicon. Sci. Technol.* **11**, 1525 (1996).
 2. D.J.Eaglesham and M.Cerullo, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1944 (1990).
 3. D.J.Eaglesham, F.C.Unterwald, and D.C.Jacobson, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 966 (1993).
 4. Y.Shiraki, H.Sunamura, N.Usami et al., *Appl. Surface Science* **102**, 269 (1996).
 5. G.Capellini, L.Di Gaspare et al., *Appl. Phys. Lett.* **70**, 494 (1997).
 6. V.Aleshkin and N.A.Bekin, *J. Phys.: Condens. Matter.* **9**, 4841 (1997).
 7. В.Я.Алешкин, А.А.Костин, Ю.А.Романов, *ФТП* **26**, 318 (1992).
 8. M.Grundman, J.Christen, N.N.Ledentsov et al., *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4043 (1995).