

ОСОБЛИВОСТІ ЗАРОДЖЕННЯ ТА УПОРЯДКУВАННЯ GeSi НАНООСТРІВЦІВ У БАГАТОШАРОВИХ СТРУКТУРАХ, СФОРМОВАНИХ НА Si ТА Si_{1-x}Ge_x БУФЕРНИХ ШАРАХ

В.О. ЮХИМЧУК,¹ М.Я. ВАЛАХ,¹ В.П. КЛАДЬКО,¹ М.В. СЛОБОДЯН,¹ О.Й. ГУДИМЕНКО,¹ З.Ф. КРАСИЛЬНИК,² О.В. НОВІКОВ²

¹Інститут фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова НАН України
(Просп. Науки, 41, Київ 03028; e-mail: kladko@isp.kiev.ua)

²Інститут мікроструктур, Російська Академія Наук
(603600 Нижній Новгород, ГСП-105, Росія)

УДК 621.315.592,
535.37, 53.096
©2011

Методами високороздільної Х-променевої дифракції (ВРХД), комбінаційного розсіяння світла (КРС) і фотолюмінесценції (ФЛ) досліджено вплив параметрів буферного шару Si_{1-x}Ge_x на просторове впорядкування самоіндукованих нанострівців Ge у багатошарових структурах SiGe/Si, вирощених на (001)Si підкладках. Показано, що товщина та компонентний склад Si_{1-x}Ge_x буферного шару впливають на латеральне впорядкування нанострівців завдяки різній чутливості до впорядкованої модуляції деформацій на поверхні шару. Встановлено, що просторове впорядкування задається виключно латеральним впорядкуванням уже в першому періоді надгратки (НГ). Показано, що у випадку товстих Si_{1-x}Ge_x буферних шарів із значним вмістом Ge починається пластична релаксація з виникненням дислокацій невідповідності на межі поділу, а шари НГ є когерентними до буферного шару. Комплексні дослідження структурних та оптичних характеристик дозволили отримати методичні підходи до дослідження впорядкування нанострівців у НГ.

1. Вступ

Використання структур із самоіндукованими Ge/Si нанострівцями відкриває нові перспективи для розвитку опто- та наноелектроніки [1]. Масиви Ge (GeSi) квантових точок (КТ) з успіхом можуть бути застосовані для виготовлення фотодетекторів для ближнього інфрачервоного діапазону та світловипромінюючих діодів для цієї ж спектральної області, оскільки вони мають певні переваги над традиційними Ge/Si структурами з квантовими ямами [2]. Існують передумови для застосування багатошарових структур з КТ Ge у термоелектричних пристроях нового покоління [3]. Германієві КТ є серед потенційних кандидатів на реалізацію квантового комп'ютера [4]. Отримання багатошарових масивів КТ Ge в Si матриці є

перспективним з точки зору їх використання в сонячних елементах та ін. [5].

Можливість широкого застосування Si/Ge нанострівців в опто- та наноелектроніці реальна лише при точному кількісному передбаченні і реалізації параметрів вирощуваних структур. Такі параметри нанострівців, як форма, розміри, компонентний склад, механічні напруження та їх поверхнева щільність складним чином залежать від умов вирощування. Ge/Si острівці можуть мати форму "hut"-кластерів, пірамід, куполів та надкуполів, які при зарощуванні їх кремнієм можуть змінювати свою форму. Для створення діючих електронних пристроїв у більшості випадків вирощують багатошарові структури — надгратки із сформованими в кожному шарі нанострівцями. Це дозволяє збільшити загальну кількість активних елементів, які можуть відігравати роль випромінювачів, датчиків поглинання тощо. З іншого боку, процес вирощування багатошарових структур з нанострівцями дозволяє в певних межах керувати параметрами останніх за рахунок впливу вже сформованих острівців на ті, що формуються. У результаті цього можна суттєво збільшити вертикальну та латеральну впорядкованість нанострівців.

Традиційно НГ з Ge(GeSi) нанострівцями вирощують на Si буфері. Для нанострівців в НГ характерний прояв впорядкування вздовж напрямку росту, так звана вертикальна кореляція [6]. Водночас, відомо, що формування нанострівців на Si_{1-x}Ge_x буферних шарах (з малим значенням x) приводить до їх часткового латерального впорядкування [7]. Тому використання Si_{1-x}Ge_x буферних шарів, на яких формуються впорядковані нанострівці, повинно сприяти покращенню їх об'ємного впорядкування в НГ. Можливі два основних варіанти використання Si_{1-x}Ge_x

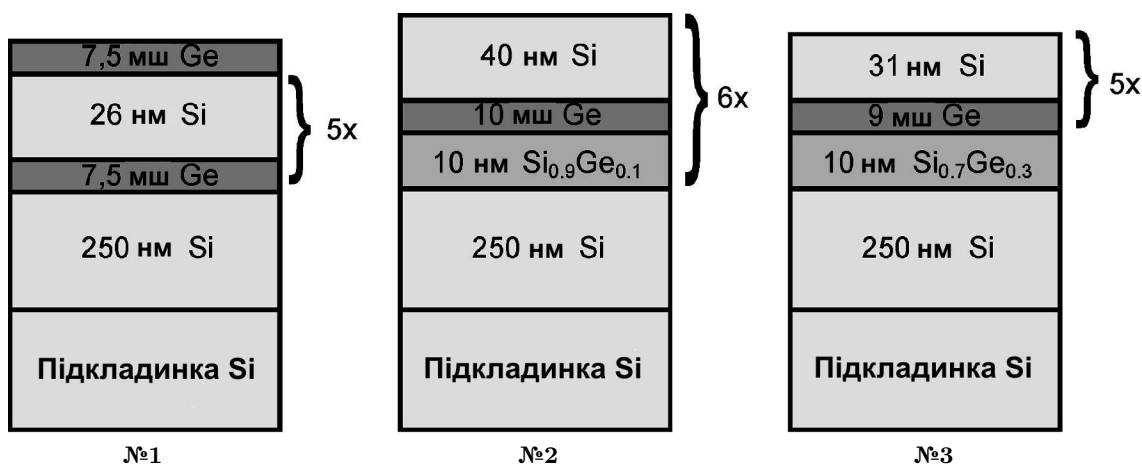


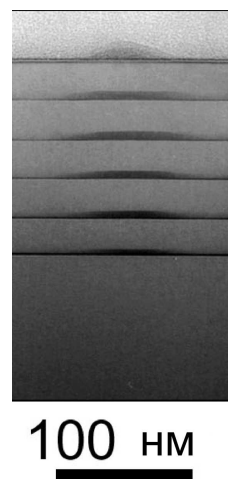
Рис. 1. Схематичне зображення структури досліджуваних зразків №1-3

буферних шарів. Перший передбачає використання одного $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ буферного шару, який задає впорядкування нанострівців у всій НГ. Інший – формування $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ буфера для кожного періоду НГ.

Метою даної роботи було встановлення параметрів та особливостей впорядкування GeSi нанострівців, сформованих у НГ з використанням різних типів $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ та Si буферних шарів та при варіації товщин шарів НГ структур.

2. Методика експерименту

Багатошарові структури було отримано методом молекулярно-променевої епітаксії (МПЕ) германію та кремнію на Si (001) підкладку з попередньо вирощеним на ній буферним кремнієвим шаром товщиною 250 нм. Досліджено три типи багатошарових структур, отриманих при температурі $T = 600$ °C. Структуру №1 формували осадженням 7,5 МШ Ge на кремнієвий шар, після чого сформовані острівці покривали шаром кремнію товщиною 26 нм. Таку процедуру повторювали п'ять разів. Верхній шар острівців кремнієм не покривали. Структуру даної НГ схематично наведено на рис. 1,а, а знімок отриманої структури, зроблений за допомогою прозвічуючої електронної мікроскопії (ПЕМ), наведено на рис. 2. Структуру №2 було отримано осадженням 6 періодів наступної послідовності шарів: 10 нм $\text{Si}_{0,9}\text{Ge}_{0,1}$ /10 МШ Ge/40 нм Si (рис.1,б). Структуру №3 формували осадженням 9 МШ Ge на попередньо вирощений 10 нм $\text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3}$ шар, після чого сформовані острівці покривалися шаром кремнію товщиною 31 нм. Таку процедуру повторювали п'ять разів (рис. 1,в).

Рис. 2. ПЕМ багатошарової структури з $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ нанострівцями, сформованої при 600 °C та номінальних товщинах Ge та Si 7,5 МШ та 26 нм, відповідно

Спектри КРС реєстрували при кімнатній температурі на подвійному дифракційному спектрометрі ДФС-24. Для збудження спектрів використовували випромінювання Ar^+ -лазера з довжиною хвилі 487,9 нм. Сигнал реєстрували охолодженням фотоелектронним помножувачем Hamamatsu – R2949 у режимі лічби фотонів. Геометрія експерименту – “на відбивання”. Для більш точного визначення положення смуг КРС у ролі реперів використовувалися плазмові лінії Ar^+ -лазера з відомою частотою. Спектри ФЛ реєстрували на фур'є-спектрометрі WOMEM DA3,36 при температурі 77 К. Для збудження спектрів використовувалося випромінювання Ar^+ -лазера з довжиною хвилі 514,5 нм.

Для всіх НГ було проведено вимірювання кривих дифракційного відбиття (КДВ) для симетричних 004 та асиметричних 224 рефлексів на високороздільному дифрактометрі “PANalytical X’Pert Pro MRD XL” з чотирикратним Ge(220) монохроматором та трикратним аналізатором того ж типу. Зразок сканували в околі точного положення Бреґга в режимах ω - та $\omega - 2\theta$ -сканування. Знімали двовимірні карти розподілу розсіяної інтенсивності навколо вузлів оберненої ґратки 004, 113 та 224. Товщину шарів НГ визначали за осциляціями КДВ у геометрії Бреґга. Уточнення структурних параметрів НГ проводили шляхом симуляції дифракційних спектрів [8, 9] з подальшою процедурою автофітування [10, 11].

3. Результати та обговорення

Для наноострівців у багатошарових структурах характерний прояв так званої вертикальної кореляції. Як видно з рис. 2, для структури № 1 кожен острівець у верхньому сформованому шарі знаходиться над острівцем у шарі, що лежить нижче. Таке формування острівців зумовлене впливом полів деформацій, створених острівцями, які знаходяться в нижніх шарах. Якщо товщина кремнієвого спейсера не перевищує ~ 100 нм, а висота острівців становить ~ 5 нм і більше, то поля напружень когерентно передаються до наступного шару Ge [6]. Це приводить до того, що на верхньому шарі Ge острівці формуються саме в тих місцях, де наявні максимальні напруження розтягу в Si спейсері. Як було показано в роботі [12], формування острівців на Si шарі, в якому наявні напруження розтягу, відрізняється від стандартної ситуації. У процесі епітаксії Ge на такий кремнієвий шар, наявні в ньому напруження приводять до переходу від пошарового росту до острівцевого при меншій товщині змочувального шару Ge. У цьому випадку більше атомів Ge, що осаджуються у процесі МПЕ, йдуть на формування острівців і, відповідно, вони мають більші розміри. Щоб отримати острівці з однаковими розмірами у всій НГ, починаючи з другого шару осаджують на 1 МШ Ge менше.

3.1. КРС дослідження

Особливість багатошарових структур з наноострівцями полягає в тому, що для них реалізується нова періодичність, відмінна від сталої ґратки вихідних матеріалів. Ця періодичність приводить до “згортки” дисперсійної гілки акустичних фононів і проявлення їх у спектрі в діапазоні, характерному для оптичних. Що

стосується оптичних фононів, то за рахунок того, що дисперсійні гілки оптичних фононів для Si та Ge мають незначний нахил на ділянці від точки $k = 0$ до $k = \pi/a$ зони Бріллюена, де a – стала кристалічної ґратки, в спектрах КРС при кімнатній температурі спостерігаються асиметричні смуги з низькочастотним плечем. Необхідно зазначити, що при реєстрації спектрів КРС багатошарових структур одержується усереднене значення параметрів по всіх острівцях досліджуваної структури з глибини $d \approx 1/2\alpha$, де α – ефективний коефіцієнт поглинання. За рахунок розкиду величини компонентного складу в острівцях, а значить і величини пружної деформації для смуг КРС проявляється значне їх розширення.

У НГ з наноострівцями ефективний об’єм острівців, які дають внесок у розсіювання, є малим у порівнянні з об’ємом кремнієвої матриці та частини підкладки. У випадку короткоперіодних НГ та незначної товщини її шарів великий внесок у сигнал КРС дає Si-підкладка, а у випадку НГ з великим періодом – кремнієві спейсери. В експериментальному спектрі такий внесок проявляється у вигляді інтенсивної смуги від кремнію з частотою ~ 520 см^{-1} , яка може перекриватися зі смугою від Si-Si моди в острівцях. Крім того, 2TA мода від кремнієвих спейсерів та підкладки з частотою ~ 300 см^{-1} може перекриватися з Ge-Ge модою від SiGe наноострівців. Для точного визначення положення смуг КРС, що відповідають коливанням атомів в острівцях проводили віднімання спектра КРС кремнієвої підкладки від спектра острівцевої структури, які реєструвалися при однакових умовах. У роботі [13] було показано, що при МПЕ при температурі 600 $^{\circ}\text{C}$ відбувається гігантська дифузія Si з підкладки та спейсерів в острівці, зумовлена неоднорідними напруженнями навколо них. У результаті цього острівці є SiGe-твердим розчином, для якого характерне проявлення трьох основних мод у спектрі КРС.

Зазначимо, що для коректного визначення величин компонентного складу острівців x і пружної деформації ϵ оцінювався вплив усіх можливих факторів на положення смуг КРС. За даними АСМ [13] та ПЕМ острівці, сформовані при $T_p \geq 600$ $^{\circ}\text{C}$ мають середню висоту 4–5 нм, а латеральні розміри ~ 70 нм. Тому впливом просторового обмеження фононів на зміну їх частот у нашому випадку можна знехтувати. Таким чином, положення смуг КРС від SiGe наноострівців визначається їх компонентним складом та величиною пружної деформації. Що стосується інтенсивності смуг Ge-Ge та Ge-Si, то вона залежить від номінальної кількості осадженого Ge та близькості енергії

збуджуючого лазерного випромінювання до величини енергії оптичних переходів нанострівців.

На рис. 3 наведено спектри КРС трьох досліджених структур. Видно, що інтенсивність смуг від структури №3 суттєво менша в порівнянні з двома іншими. Оскільки для досліджених трьох структур номінальна товщина осажденного шару германію відрізнялася несуттєво (від 7,5 до 10 МШ), то це означає, що для зразка №3 умови підсилення інтенсивності КРС за рахунок резонансу не виконувалися. Такі суттєві відмінності у спектрах КРС можуть бути зумовлені тим, що в структурі №3 острівці не сформувалися або мають розміри, які суттєво відрізняються від структур №1 та №2. Цей результат є дещо неочікуваний. Нами було показано, що на $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ буферних шарах ($0,1 \leq x \leq 0,25$) формуються нанострівці з середніми розмірами, більшими, ніж на Si буфері [7], оскільки збільшується число атомів Ge, які йдуть на формування острівців за рахунок зменшення товщини змочувального шару на $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ буфері при 2D–3D переході. На $\text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3}$ буферному шарі острівці могли не сформуватися за рахунок виникнення дислокацій невідповідності (ДН) і проростання їх у всі верхні шари НГ. У цьому випадку, поперше, зменшується пружна енергія буферного шару, а по-друге, зростає середня величина сталої ґратки $\text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3}$ буферного шару. Перша і друга причини приводять до збільшення номінальної товщини Ge, при якій відбувається 2D–3D перехід. Тому осаджених 9 МШ германію могло бути недостатньо для початку зародження острівців. Додаткову інформацію про формування острівців можна отримати зі спектрів ФЛ та ВРРД, про що буде йти мова нижче. Для двох інших структур з аналізу частотного положення смуг КРС можна оцінити компонентний склад та пружну деформацію. Зазначимо, що для зразка №2 в спектрі КРС проявилися дві Ge–Si смуги, одна з яких відповідає Ge–Si коливанням в острівцях, а інша $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ буферним шарам.

Відомо, що частота кожної моди $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ твердого розчину залежить від компонентного складу x та

Компонентний склад та пружна деформація острівців у багатшарових структурах

| № зразка | Вміст Ge в острівцях, x | Пружна деформація (ϵ), % за результатами КРС | Пружна деформація (ϵ), % за результатами ВРРД |
|----------|---------------------------|---|--|
| 1 | $0,65 \pm 0,04$ | $-1,6 \pm 0,3$ | $-1,3 \pm 0,2$ |
| 2 | $0,75 \pm 0,02$ | $-1,0 \pm 0,2$ | $-1,1 \pm 0,1$ |
| 3 | Острівці не сформувались | | |

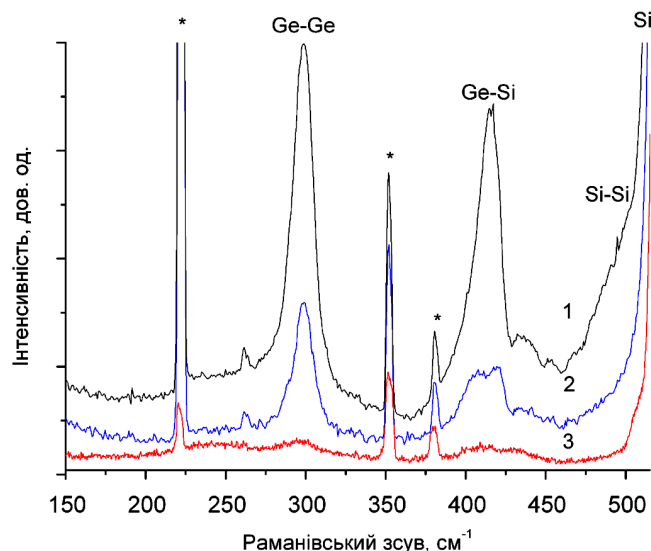


Рис. 3. Експериментальні спектри КРС структур, вирощених при 600 °С. Зірочками позначено смуги, що відповідають розрядам плазми в Ar^+ -лазері

величини пружної деформації ϵ згідно зі співвідношеннями [14, 15]:

$$\omega_{\text{SiSi}} = 520,5 - 62x - 815\epsilon, \quad (1)$$

$$\omega_{\text{GeSi}} = 387 + 81(1-x) - 78(1-x)^2 - 575\epsilon, \quad (2)$$

$$\omega_{\text{GeGe}} = 282,5 + 16x - 385\epsilon. \quad (3)$$

Підставляючи в них отримані з експериментальних спектрів значення частот Ge–Ge, Ge–Si і Si–Si коливань і розв'язуючи графічно системи рівнянь (1)–(3), як показано в роботі [1], отримуємо значення x , ϵ , які наведено в таблиці. Отримані дані свідчать, що доля кремнію в острівцях, сформованих на $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ буферних шарах (зразок №2) дещо менша в порівнянні з острівцями, сформованими на Si шарах (зразок №1).

3.2. Фотолюмінесценція

Як відомо, Si та Ge є непрямозонними напівпровідниками і ефективність випромінювання об'ємних структур, виготовлених на основі цих матеріалів, дуже низька. Щоб отримати структури на основі Si–Ge, які випромінюють у ближній ІЧ-області, необхідно на їх основі сформувати квантову яму (квантові точки), в якій будуть локалізуватися носії заряду. Для цього сформовані у процесі епітаксії SiGe острівці

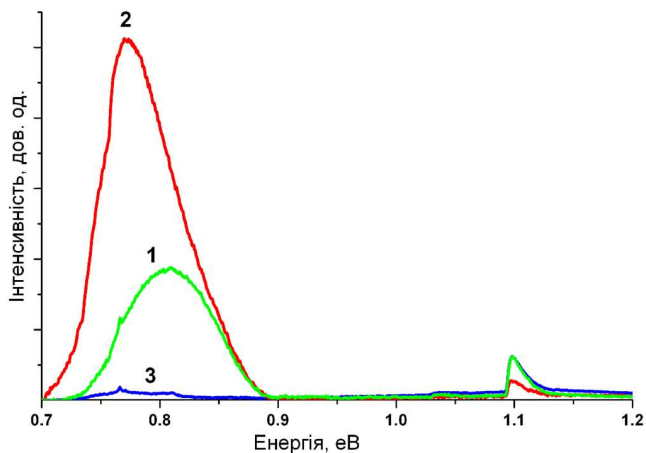


Рис. 4. Спектри ФЛ, зареєстровані при температурі 77 К, для структур №1–3

зарощують шаром кремнію. Сформовані таким чином GeSi/Si гетероструктури відносяться до II-го типу, для якого на гетерограниці характерні розриви зон провідності та валентних зон [16]. Вони направлені так, що потенційна яма для дірок розташована в Si_{1-x}Ge_x острівцях, а для електронів – у кремнієвій матриці. Наявна пружна деформація стиску в Si_{1-x}Ge_x острівцях приводить до зняття виродження шести еквівалентних Δ-долин в зоні провідності.

Дно зони провідності сформоване двократно виродженими 2Δ-долинами, які витягнуті в напрямку росту Si_{1-x}Ge_x. У цьому ж напрямку, але вже у просторі імпульсів, зміщено зону провідності кремнію відносно вершини валентної зони Si_{1-x}Ge_x острівців. Для електронів у Si матриці, локалізованих поблизу гетерограниці зі співвідношення невизначеності, впливає, що їх квазіімпульс у напрямку зміщення вказаних зон може набувати довільних значень, також і $k = 0$. Тобто, стає відмінною від нуля ймовірність прямого у просторі імпульсів міжзонного переходу електронів із зони провідності кремнію у валентну зону Si_{1-x}Ge_x острівців з тунелюванням в реальному просторі через гетерограницю. Дірки з оточуючої кремнієвої матриці акумулюються в потенційних ямах, якими є нанострівці, заряджаючи їх при цьому позитивно. У результаті кулонівського відштовхування в нанострівцях дірки зосереджуються вздовж гетерограниці з кремнієвою матрицею. Позитивний заряд острівців приводить до вигину дна зони провідності кремнію і створює квантову яму для електронів у кремнії поблизу гетеропереходу. Тим самим створюється мо-

жлива квазіпрямозонна випромінювальна рекомбінація електронів з кремнію з дірками в нанострівцях. Щоб збільшити інтенсивність випромінювання, структури з нанострівцями вирощують багатопаровими.

Спектри ФЛ для наших структур, отримані при температурі 77 К, наведено на рис. 4. Видно, що для зразків №1 та №2 проявляється характерна для Si-Ge нанострівців смуга ФЛ в інтервалі 0,7 – 0,9 eV [16], водночас для зразка №3 подібна смуга ФЛ відсутня. Даний факт може свідчити, що в даній структурі нанострівці не сформувалися. Малоінтенсивна смуга ФЛ для цієї структури з максимумом 0,81 eV може відповідати дислокаційній смузі D1 [17]. Наявність навіть незначної концентрації дислокацій може приводити до іншого варіанта релаксації напруг у системі Si_{0,7}Ge_{0,3}/Ge/Si.

3.3. X-променеві дослідження

Макроскопічну релаксацію напруг і компонентний склад досліджуваних структур було оцінено за допомогою високороздільної X-променевої дифракції при використанні ω - і $\omega - 2\theta$ -сканування та карт оберненого простору (КОП) навколо вузлів 004 та 113. Для визначення компонентного складу і величини напруг SiGe методом дифракції X-променів нами було використано формалізм, описаний нижче. У припущенні тетрагонального спотворення шару SiGe, осадженого на кремній (001), недеформований параметр ґратки шару SiGe пов'язаний з параметром ґратки ($a_{\text{SiGe}}^{\parallel}$) у площині росту і перпендикулярним параметром ґратки (a_{SiGe}^{\perp}) співвідношенням:

$$a_{\text{SiGe}} = [(1 - \nu)/(1 + \nu)]a_{\text{SiGe}}^{\perp} + [2\nu/(1 + \nu)]a_{\text{SiGe}}^{\parallel}, \quad (4)$$

де γ – коефіцієнт Пуассона. Залежність недеформованого параметра ґратки SiGe від вмісту Ge(x) брали для розрахунку з роботи [6]:

$$a(x) = 5,4309 + 0,20032x - 0,026274x^2 \text{ (Å)}. \quad (5)$$

Ступінь релаксації напруг R можна подати як

$$R = (a_{\text{SiGe}}^{\parallel} - a_{\text{Si}})/(a_{\text{SiGe}} - a_{\text{Si}}). \quad (6)$$

Точне визначення складу Ge(x) і рівня релаксації напруг R , таким чином, вимагає вимірювань параметра ґратки SiGe як вздовж напрямку росту, так і перпендикулярно до напрямку росту. Параметр ґратки a_{SiGe}^{\perp} отримується із закону Бреґа:

$$a_{\text{SiGe}}^{\perp} = \frac{2\lambda}{\sin \theta_{004}^{\text{Si}} + \Delta\omega_{004}}, \quad (7)$$

де $\Delta\omega_{004}$ – кутова відстань між піком підкладки і максимумом огинаючої лінії піків-сателітів, яка визначається вмістом Ge в SiGe шарах при $\omega - 2\theta$ -скануванні навколо 004 вузла дифракції, θ_{004}^{Si} – кут Брегга для відбиття 004 кремнію. Відповідно латеральний параметр ґратки $a_{\text{SiGe}}^{\parallel}$ розраховується за формулою

$$a_{\text{SiGe}}^{\parallel} = \frac{\sqrt{2}\lambda}{\sqrt{(a_{\text{SiGe}}^{\perp})^2 \sin^2(\theta_{224}^{\text{Si}} + \Delta\omega_{224}) - 4\lambda^2}} a_{\text{SiGe}}^{\perp}, \quad (8)$$

де λ – довжина хвилі X-променів. Для компенсації розорієнтації підкладки нами використовувалось середнє значення параметрів ґратки із сканів в [110], [1-10], [-1-10] і [-110] напрямках площини дифракції [18].

На рис. 5 наведено $\omega - 2\theta$ скани для трьох структур разом із фітованими спектрами. Як бачимо, фітовані КДВ досить добре узгоджуються з експериментальними. Поряд з піком від підкладки (Si) спостерігається головний пік від $\text{H}\Gamma$, так званий сателіт нульового порядку, зумовлений середнім параметром ґратки в періоді, а також сателіти більш високих порядків. На всіх КДВ спостерігаються сателітні піки до десятого порядку, що свідчить про якісний інтерфейс між шарами та незначну дисперсію періодів $\text{H}\Gamma$. Період $\text{H}\Gamma$ (T) визначається з відстані між сусідніми сателітами [10, 11]:

$$T = \frac{|\gamma_h|\lambda}{\sin(2\theta_B)\delta\theta}, \quad (9)$$

де $\delta\theta$ – кутова відстань між сателітами, λ – довжина хвилі, θ_B – бреггівський кут, γ_h – направляючий косинус.

Усреднений параметр ґратки визначається з кутової відстані між піком підкладки і нульового сателіта $\Delta\theta$:

$$\varepsilon_{\text{aver}} = \frac{\langle d \rangle - d_0}{d_0} = -\frac{\Delta\theta}{\tan(\theta_B) \frac{2|\gamma_h|}{\gamma_0 + \gamma_h}}, \quad (10)$$

де d_0 – міжплощинна відстань (004)Si, γ_0 і γ_h – направляючі косинуси первинної і дифрагованої хвилі бреггівського максимуму відносно внутрішньої нормалі до поверхні. Зміщення огинаючої інтерференційних піків для зразка №3 в область менших кутів відповідає положенню та формі дифракційного максимуму від буферного $\text{Si}_{0,7}\text{Ge}_{0,3}$ шару, що передує вироєній $\text{H}\Gamma$. Розсіяння від нього промодульоване дифракційною картиною розсіяння від періодичної $\text{H}\Gamma$ структури. Як видно з рис. 5, для зразка №2 проявляється розщеплення когерентних сателітів $\text{H}\Gamma$. Воно

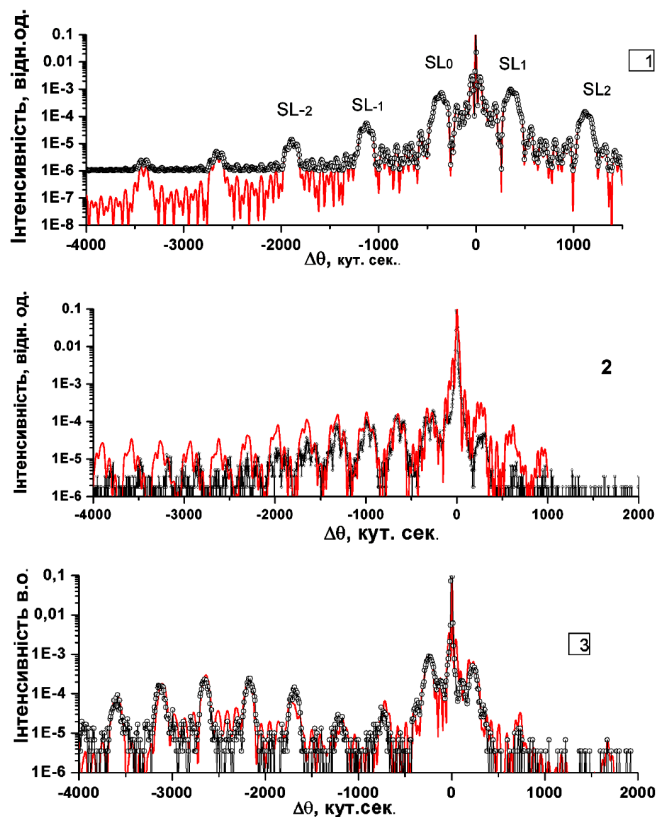


Рис. 5. Тривісні $\omega - 2\theta$ криві дифракційного відбиття для рефлексу 004 досліджуваних структур: суцільна крива – експеримент, \circ – фітована крива

може бути зумовлене наявністю двох різних періодів $\text{H}\Gamma$ вздовж осі росту, тобто в напрямку [001], або/і наявністю в $\text{H}\Gamma$ вздовж осі росту областей з різним характерним значенням германію в шарах. Друга причина є більш імовірною, оскільки значення величин розщеплених періодів практично збігається. Дві системи піків-сателітів зміщено на кутову відстань близько 80–120 кутових секунд. Це відповідає зміні концентрації германію приблизно на $\Delta x = 0,7 \pm 0,1$. Форму піків може бути використано для визначення змін концентрації вздовж вертикального напрямку багат шарової структури. Розширення $\text{H}\Gamma$ піків у $\omega - 2\theta$ скані у напрямку, нормальному до відбивних площин, становить $\delta\theta_0 = 55$ кут. сек. Однорідне розширення $\text{H}\Gamma$ піків не залежить від порядку і може бути інтерпретоване варіацією x середнього вмісту Ge в острівцях шарів вздовж напрямку росту $\text{H}\Gamma$. Ця варіація вмісту Ge може бути оцінена із різниці кутових положень ($\Delta\theta_0 = -355$ кут. сек) піка нульового порядку $\text{H}\Gamma$, що відповідає бреггівському піку від SiGe шару з таким же середнім вмістом Ge і Si(004) пі-

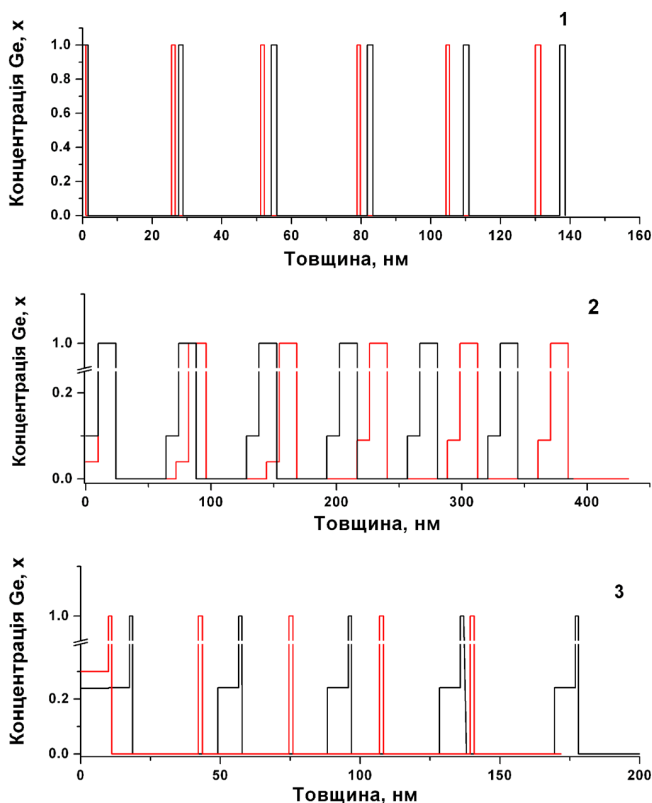


Рис. 6. Зміна концентрації германію по глибині НГ: чорна крива – фітування, червона – технологічно задані параметри

ка:

$$\delta\langle x \rangle = \frac{\delta\theta_0}{\Delta\theta_0} = \frac{55}{355} = 15,5\% \quad (11)$$

Значення розподілу концентрації германію та його варіації по глибині НГ структур, отримані в результаті процедури фітування, наведено на рис. 6. Аналіз графіків, поданих на цьому рисунку, показує, що для зразка №1 є якісний збіг експериментального і технологічно заданого розподілів концентрації германію по товщині структури. Деякі відмінності в товщинах викликані тим, що частина Ge пішла на утворення наноострівців. Відносно концентраційної залежності від товщини для зразка №2 можна відзначити, що він підтверджує зазначене вище, про існування двох областей з різним вмістом германію. Це і зумовлює наявність двох різних періодів НГ вздовж напрямку [001]. І нарешті, найбільші розходження технологічних і експериментальних розподілів Ge в шарах НГ спостерігаються у зразку №3. Це може бути викликано найбільшим ступенем релаксації даної структури, в результаті якої відбувся перерозподіл германію в шарах.

Для визначення рівня релаксації систем було використано метод вимірювання і аналізу карт розподілу інтенсивності навколо вузлів оберненої ґратки. Ці карти наведено на рис. 7 як для симетричних рефлексів 004, так і асиметричних 113. Як випливає з КОП, всі структури є когерентними відносно підкладки і буферних шарів (система піків-сателітів розташована вздовж осі росту).

Аналіз КОП показав, що у зразку №3 острівці не сформувалися. Це випливає з відсутності характерного дифузного фону навколо системи когерентних сателітів від НГ. Цей результат є дещо несподіваним, адже номінальна товщина осадженого германію перевищує критичну. Відомо, що критична товщина осадженого Ge при $T_p=600^\circ\text{C}$ на кремнієвий буфер, при якій відбувається 2D-3D перехід, становить 4 МП, а на $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ буферних шарах вона зменшується при збільшенні x [19]. Однак механізм релаксації напруг може бути відмінним від класичного Странскі-Крастанова, а саме відбуватися внаслідок утворення дислокацій невідповідності (ДН). Щільність ДН може бути недостатньою для того, щоб виявити їх експериментальними методами, проте вони будуть приводити до релаксації буферного шару та структури в цілому, і наноострівці не будуть формуватися, або будуть утворюватися при інших товщинах осадженого германію. У зразках №2 та №1 спостерігаємо розсіяння від системи наноострівців, проте тільки в останньому вона добре впорядкована у площині росту, оскільки на асиметричній карті для 113 рефлексу для нього чітко спостерігаються латеральні сателіти в околі когерентного сателіта 0-го порядку. Латеральні сателіти є дифракційними максимумами резонансного дифузного розсіяння. Відстань між ними в оберненому просторі, по аналогії із відстанню між когерентними сателітами, відповідає оберненому значенню латерального періоду НГ. Для зразка №1 він становить 240 нм.

У зразку №2 наноострівці знаходяться тільки на початковому етапі латерального впорядкування. Для них латеральний період становить 229 ± 3 нм. У даній структурі латеральне впорядкування острівців гірше, у порівнянні зі зразком №1, оскільки в даній НГ більш товстий розділяючий шар кремнію. Як наслідок, наноострівці в кожному наступному змочувальному шарі слабше відчувають вплив полів деформацій наноострівців з попередніх шарів. Тобто відсутня так звана вертикальна кореляція. Крім того, в кожному періоді присутній шар $\text{Si}_{0,9}\text{Ge}_{0,1}$, який також зменшує вплив проникаючих знизу полів деформацій. Необхідно зазначити, що на ω -сканах зліва від положення

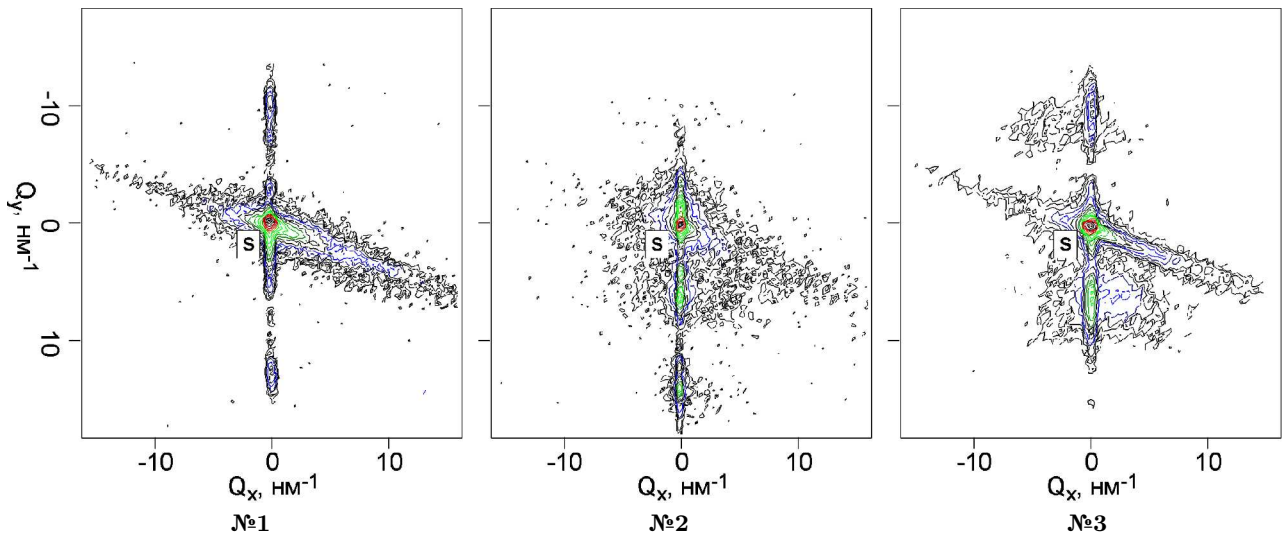


Рис. 7. 113 карти оберненого простору для зразків №1, №2 та №3

основного піка та на КОП перпендикулярно вектору дифракції проявляється дифузний фон для всіх зразків. Цей дифузний фон викликаний дислокаційною структурою (переважно ДН) на межі кремній – буферний шар.

4. Висновки

Таким чином, на основі отриманих методами високо-роздільної рентгенівської дифракції, комбінаційного розсіяння світла і фотолюмінесценції результатів дослідження особливостей просторового впорядкування самоіндукованих нанострівців GeSi в багатошарових структурах SiGe/Si можна зробити наступні висновки: а) товщина розділяючого шару кремнію в періоді $\Gamma\Gamma$ впливає на просторове формування впорядкованої системи нанострівців SiGe; б) товщина та компонентний склад буферного шару впливають на латеральне впорядкування нанострівців завдяки різній чутливості до впорядкованої модуляції деформацій на поверхні шару; в) просторове впорядкування нанострівців у $\Gamma\Gamma$ задається виключно латеральним впорядкуванням вже в першому періоді; г) у випадку товстих буферних шарів пластична релаксація з виникненням дислокацій невідповідності починається на межі поділу буферний шар–підкладка, а шари $\Gamma\Gamma$ є когерентними до буферного шару; д) представлено новий методичний підхід для дослідження впорядкування нанострівців у багатошарових структурах та визначення їх основних параметрів.

Роботу виконано при фінансовій підтримці в рамках проектів: НАН України (Проект № 3.5.1.12/19 Державної цільової науково-технічної програми “Нанотехнології та наноматеріали”) і МОН України (Проект № M90/2010) та Програми колективних досліджень НАН України і Російського фонду фундаментальних досліджень (проект № 32-08-10-Ukr).

1. K. Brunner, Rep. Prog. Phys. **65**, 27 (2002).
2. S. Tong, J. Liu, L.J. Wan, and K.L. Wang, Appl. Phys. Lett. **80**, 1189 (2002).
3. L.D. Hicks and M.S. Dresselhaus, Phys. Rev. B **47**, 12727 (1993).
4. R. Vrijen, E. Yablonovitch, K. Wang, H.W. Jiang, A. Balandin, V. Roychowdhury, T. Mor, and D. Di Vincenzo, Phys. Rev. A **62**, 012306 (2000).
5. J. Konle, H. Presting, H. Kibbel, and F. Banhart, Mater. Sci. Eng. B **89**, 160 (2002).
6. J. Stangl, T. Roch, and G. Bauer, Appl. Phys. Lett. **77**, 3953 (2000).
7. М.Я. Валах, В.Н. Джаган, З.Ф. Красильник, О.С. Литвин, Д.Н. Лобанов, А.В. Новиков, В.А. Юхимчук, Нано- и микросистемная техника **6**, 8 (2005).
8. V.O. Yukhymchuk, A.M. Yaremko, M.Ya. Valakh, A.V. Novikov, E.V. Mozdor, P.M. Lytvyn, Z.F. Krasilnik, V.P. Klad'ko, V.M. Dzhagan, N. Mestres, and J. Pascual, Mater. Sci. Eng. C **23**, 1027 (2003).
9. V.P. Klad'ko, L.I. Datsenko, J. Bąk-Misiuk, S.I. Olikhovskii, V.F. Machulin, I.V. Prokopenko, V.B. Molodkin, and Z.V. Maksimenko, J. Phys. D **34**, A87 (2001).

10. O. Yefanov, V. Kladko, O. Gudymenko, V. Strelchuk, Yu. Mazur, Zh. Wang, and G. Salamo, *Phys. Status Solidi A* **203**, 154 (2006).
11. Yu.I. Mazur, Zh.M. Wang, G.J. Salamo, V.V. Strelchuk, V.P. Kladko, V.F. Machulin, M.Ya. Valakh, and M.O. Manasreh, *J. Appl. Phys.* **99**, 023517 (2006).
12. М.Я. Валах, В.М. Джаган, З.Ф. Красильник, О.С. Литвин, Д.Н. Лобанов, О.В. Новиков, В.О. Юхимчук, *УФЖ* **51**, 204 (2006).
13. Z.F. Krasilnik, P.M. Lytvyn, D.N. Lobanov, N. Mestres, A.V. Novikov, J. Pascual, M.Ya. Valakh, and V.A. Yukhymchuk, *Nanotechnology* **13**, 81 (2002).
14. J. Groenen, R. Carles, S. Christiansen, M. Albrecht, W. Dorsch, H.P. Strunk, H. Wawra, and G. Wagner, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 3856 (1997).
15. A.M. Yaremko, V.O. Yuhymchuk, M.Ya. Valakh, A.V. Novikov, V.P. Melnik, O.S. Lytvyn, D.N. Lobanov, Z.F. Krasil'nik, V.P. Klad'ko, and V.M. Dzhagan, *Mater. Sci. Eng. C* **25**, 565 (2005).
16. N. Usami, K. Leo, and Y. Shiraki, *J. Appl. Phys.* **85**, 2363 (1999).
17. R. Sauer, J. Weber, J. Stolz, E.R. Weber, K.-H. Kusters, and H. Alexander, *Appl. Phys. A* **36**, 1 (1985).
18. T. Roch, V. Holy, A. Hesse, J. Stangl, T. Fromherz, G. Bauer, T.H. Metzger and S. Ferrer, *Phys. Rev. B* **65**, 245324 (2002).
19. D.N. Lobanov, A.V. Novikov, N.V. Vostokov, Y.N. Drozdov, and A.N. Yablonskiy, *Opt. Mater.* **27**, 818 (2005).

Одержано 15.09.10

ОСОБЕННОСТИ ЗАРОЖДЕНИЯ И УПОРЯДОЧЕНИЯ
GeSi НАНООСТРОВКОВ В МНОГОСЛОЙНЫХ
СТРУКТУРАХ, СФОРМИРОВАННЫХ НА Si
И Si_{1-x}Ge_x БУФЕРНЫХ СЛОЯХ

*В.А. Юхимчук, М.Я. Валах, В.П. Кладько, М.В. Слободян,
О.Й. Гудименко, З.Ф. Красильник, А.В. Новиков*

Резюме

Методами высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии (ВРХД), комбинационного рассеяния света (КРС) и фотолюминесценции (ФЛ) исследовано влияние параметров буферного слоя Si_{1-x}Ge_x на пространственное упорядочение самоорганизованных наностроек Ge в слоистых структурах SiGe/Si, выращенных на (001) Si подложках. Показано, что то-

лщина и компонентный состав Si_{1-x}Ge_x буферного слоя влияют на латеральное упорядочение наностроек благодаря разной чувствительности к модуляции деформаций на поверхности слоя. Определено, что пространственное упорядочение обусловлено исключительно латеральным упорядочением уже в первом периоде сверхрешетки (СР). Показано, что в случае толстых Si_{1-x}Ge_x буферных слоев со значительным содержанием Ge начинается пластическая релаксация с возникновением дислокаций несоответствия на границе раздела, а слои СР когерентны буферному слою. Комплексные исследования структурных и оптических характеристик позволили получить методические подходы к исследованию упорядочения наностроек в СР.

PECULIARITIES OF NUCLEATION AND ORDERING
OF GeSi NANOISLANDS IN MULTILAYER
STRUCTURES FORMED ON Si AND Si_{1-x}Ge_x
BUFFER LAYERS

*V.O. Yuhymchuk¹, M.Ya. Valakh¹, V.P. Kladko¹,
M.V. Slobodian¹, O.Yo. Gudymenko¹,
Z.F. Krasilnik², A.V. Novikov²*

¹V. Lashkaryov Institute of Semiconductor Physics,
Nat. Acad. of Sci. of Ukraine
(41, Prosp. Nauky, Kyiv 03028, Ukraine
e-mail: kladko@isp.kiev.ua)

²Institute for Physics of Microstructures,
Russian Academy of Sciences
(GSP-105, Nizhny Novgorod 603600, Russia)

Summary

High resolution X-ray diffraction (HRXRD), Raman scattering (RS), and photoluminescence (PL) methods have been used to study the influence of Si_{1-x}Ge_x buffer layer parameters on the spatial ordering of self-assembled Ge nanoislands in multilayer SiGe/Si structures grown on Si (001) substrates. The thickness and the composition of a Si_{1-x}Ge_x buffer layer are shown to affect the lateral ordering of nanoislands owing to the different sensitivities to the ordered strain modulation in the layer surface. The spatial ordering is found to be governed exclusively by the lateral ordering in the first period of the superlattice (SL). It is demonstrated that, in the case of thick Si_{1-x}Ge_x buffer layers with a considerable Ge content, a plastic relaxation is accompanied by the emergence of mismatch dislocations at the interface, when the SL layers are coherent to the buffer one. The complex researches of the corresponding structural and optical characteristics allow us to develop methodological approaches to the study of the nanoisland ordering in the SL.