

Исследование процесса роста пленки Ge на поверхности Si (100) методом регистрирующей дифрактометрии

© А.И. Никифоров[¶], В.А. Черепанов, О.П. Пчеляков

Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия

(Получена 14 февраля 2001 г. Принята к печати 15 февраля 2001 г.)

Методом регистрации картины дифракции быстрых электронов *in situ* построена диаграмма структурного и морфологического состояния пленки Ge на поверхности Si (100), включающая в себя следующие области: сплошная пленка, *hut*- и *dome*-кластеры, *dome*-кластеры с дислокациями несоответствия на границе раздела. Впервые определено изменение параметров решетки пленки Ge в процессе ее роста на поверхности Si (100) при молекулярно-лучевой эпитаксии и обнаружены осцилляции изменения параметра поверхностной атомной ячейки в плоскости (100) на стадии двумерного слоевого роста.

Введение

Интерес к нанокластерам Ge связан с успехами в разработке технологии получения достаточно однородного по размеру массива островков. Размеры нанокластеров удалось уменьшить до значений, обеспечивающих проявление эффектов размерного квантования вплоть до комнатной температуры [1]. Гетеросистема германий-на-кремнии представляет собой идеальный объект для изучения перехода от послойного роста пленки к образованию трехмерных (3D) островков (механизм Странского–Крастанова). При относительно низких температурах синтеза такие островки не содержат дислокаций несоответствия (MD) даже после существенного превышения ими критических толщин [2].

В системе Ge–Si экспериментально наблюдают несколько стадий эволюции островков в процессе увеличения эффективной толщины пленки. Появление островков наблюдается после образования сплошной пленки Ge. Начало образования 3D кластеров сопровождается возникновением на картинах дифракции быстрых электронов (ДБЭ) тяжелой, сформированных рассеянием электронов на гранях {105}. Благодаря своей форме такие островки получили название *hut*-кластеры [3]. С ростом средней толщины пленки, в дополнение к граням {105}, картины ДБЭ показывают появление граней {113} и {102}. Эта стадия характеризуется как формирование *dome*-кластеров. Последней стадией развития морфологии и структуры островков Ge_xSi_{1-x} на Si (001) является образование трехмерных пластически деформированных островков с дислокациями несоответствия в границе раздела с подложкой, сопровождающееся быстрым увеличением их размеров (см., например, [4–6]).

Зависимость параметров островков от условий проведения технологического процесса делает необходимым непрерывный мониторинг ситуации на ростовой поверхности. Традиционным методом, пригодным для этого, является ДБЭ. В работе [7] проводится сравнительный анализ картин ДБЭ и изображений поверхности, полученных сканирующей туннельной микроскопией, для

корректной интерпретации дифракционных картин во время роста пленки. Это может использоваться, например, для определения критической толщины псевдоморфной пленки и определения ориентации граней островков [6]. В работе [8] с помощью дифракции электронов на отражение были построены фазовые диаграммы структур, существующих на поверхности во время эпитаксии Ge на Si. Особый интерес представляют данные о напряжениях в растущем слое, которые и являются основной движущей силой наблюдаемых морфологических перестроек. Оценить эти напряжения можно было бы по изменению параметра решетки растущей пленки Ge в процессе перехода от послойного роста к островковому, а также при изменении их формы. Изменение параметра решетки в процессе гетероэпитаксии может быть установлено из положения рефлексов картины ДБЭ [9,10].

Цель данной работы — уточнение структурной фазовой диаграммы и определение строения кристаллической решетки растущей пленки Ge на поверхности Si (100) для различных стадий морфологических перестроек.

Результаты и их обсуждение

Синтез проводился в установке молекулярно-лучевой эпитаксии "Катунь-С", оснащенной двумя электронно-лучевыми испарителями для Si и Ge; легирующая смесь (Sb и B_2O_3) испарялась из эффузионных ячеек. Аналитическая часть камеры состоит из квадрупольного масс-спектрометра, кварцевого измерителя толщины и дифрактометра быстрых электронов с энергией 20 кэВ. В процессе роста дифракционная картина регистрируется CCD-камерой и изображение вводится в персональный компьютер. Программное обеспечение позволяет следить со скоростью 10 кадров в секунду как за всем изображением, так и за выбранными участками дифракционной картины. Скорость роста Ge составляла 10 монослоев (ML) в минуту, температура (T) варьировалась от 200 до 700°C. В качестве подложек использовались пластины кремния (100) с разориентацией менее 0.5°.

[¶] E-mail: nikif@isp.nsc.ru

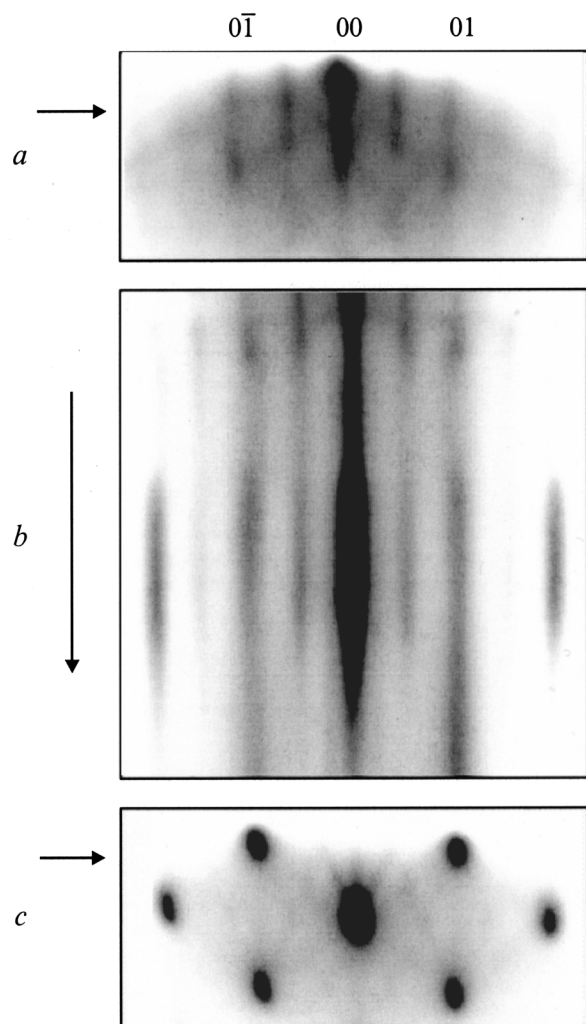


Рис. 1. Изменение интенсивности в процессе роста пленки Ge на Si (100): *a, c* — начальная и конечная картины ДБЭ, *b* — изменение интенсивности вдоль линии, указанной стрелкой, в процессе роста.

Перед ростом пленки Ge проводился высокотемпературный отжиг пластины с ростом буферного слоя Si для восстановления исходной поверхности.

Изменения дифракционной картины качественно отражают изменение морфологии растущей пленки. Количественную информацию можно получить путем регистрации интенсивности дифракционной картины. Анализ изменения интенсивности в азимуте [110] вдоль нулевого тяжа позволил разграничить области двумерного роста, роста *hut*- и *dome*-кластеров [8]. Для определения момента пластической релаксации *dome*-кластеров регистрировалось также и изменение интенсивности дифракционной картины вдоль линии, пересекающей тяжи и объемные рефлексы (рис. 1). Расстояние между ними соответствует размеру двумерной атомной ячейки $a_{||}$ в плоскости подложки. На рис. 1, *a* и *c* представлены начальная и конечная картины дифракции. Линия, вдоль которой регистрировалась интенсивность, показана стрелкой.

Изменение интенсивности вдоль указанной линии при изменении толщины напыляемой пленки Ge приведено на рис. 1, *b*. По изменению расстояния между объемными рефлексами, соответствующими *dome*-кластерам, определен момент пластической релаксации пленки германия, содержащей на границе раздела сетку дислокаций несоответствия. Изменение величины $a_{||}$ составляет 4% и совпадает с рассогласованием постоянных решеток Ge и Si. На основе этих экспериментальных данных была построена уточненная структурно-фазовая диаграмма (рис. 2), показывающая области существования напряженных и пластически деформированных сплошных и островковых пленок в зависимости от толщины слоя германия d_{Ge} и температуры осаждения T .

Как было показано выше, регистрация изменения интенсивности дифракционной картины позволяет получать ценную количественную информацию об изменении морфологии растущей пленки.

На рис. 1 можно заметить, что расстояние между рефлексами, соответствующими отражениям $0\bar{1}$ и 01 , изменяется в процессе роста. Это может означать, что межатомное расстояние $a_{||}$ пленки Ge в плоскости (100) изменяет свою величину. Рефлексы от сверхструктуры (2×1) претерпевают аналогичное изменение углового положения. На рис. 3 показано изменение постоянной решетки $a_{||}$ относительно постоянной решетки кремния a_{Si} при изменении эффективной толщины осаждаемого слоя германия d_{Ge} . Как видно из представленной зависимости, параметр атомной поверхностной ячейки претерпевает существенные изменения. Сопоставляя полученную зависимость с фазовой диаграммой и видом дифракционной картины, можно выделить области, соответствующие различным фазам роста пленки Ge на поверхности Si (100). В процессе двумерно-слоевого роста и начальной фазы появления *hut*-кластеров изменение

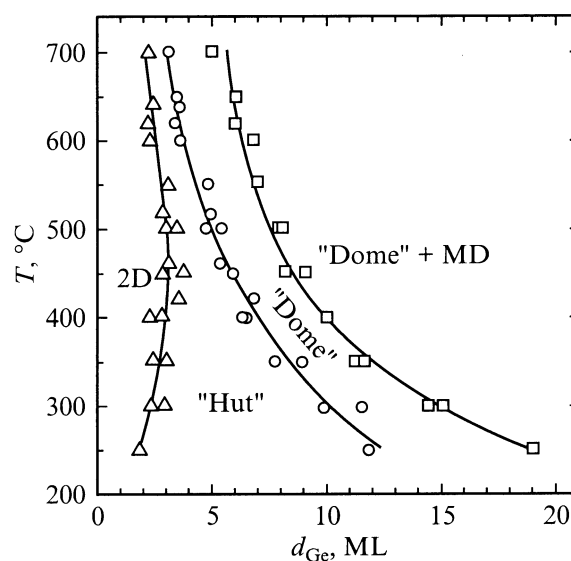


Рис. 2. Фазовая диаграмма структурного состояния пленки Ge на поверхности Si (100).

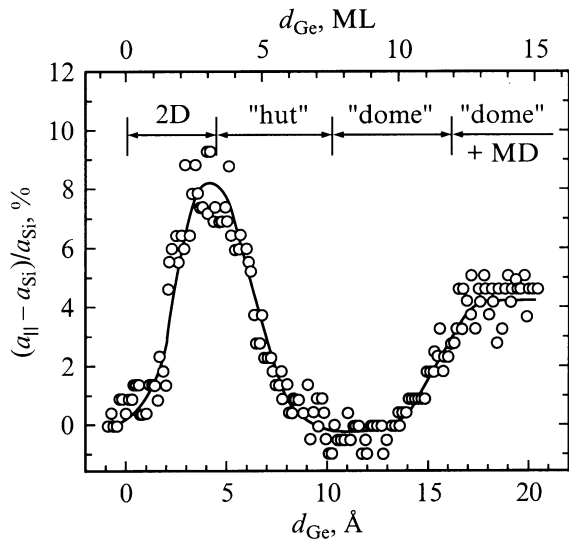


Рис. 3. Изменение параметра поверхностной двумерной ячейки в процессе роста пленки Ge на Si (100).

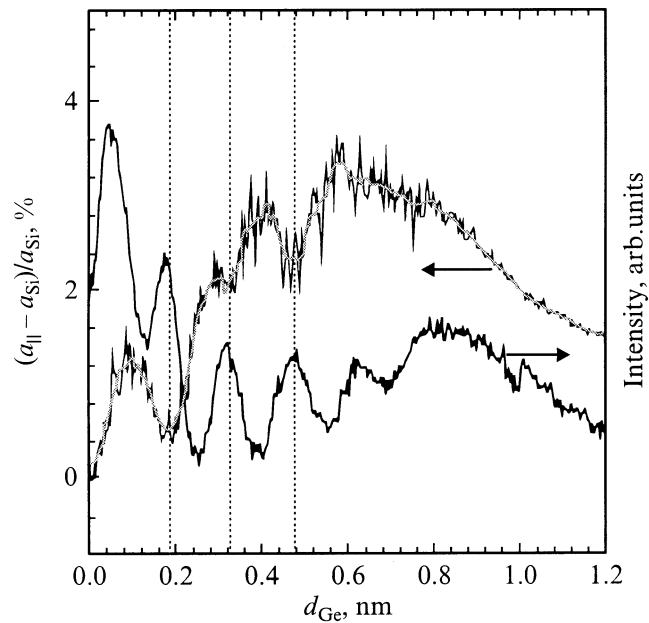


Рис. 4. Осцилляции параметра поверхностной двумерной ячейки и интенсивности зеркального рефлекса в зависимости от толщины пленки Ge (пунктирные линии указывают положения максимумов и минимумов).

параметра $a_{||}$ достигает 8%. Следующая область соответствует образованию и росту упруго релаксированных островков Ge в форме *hut*-кластеров. При этом величина $a_{||}$ на поверхности островков уменьшается до значения, характерного для объемного кристалла Si. Затем происходит трансформация *hut*-кластеров в *dome*-кластеры и их последующий рост. Как известно, на стадии роста *dome*-кластеров на границе раздела Ge и Si формируется сетка дислокаций несоответствия, снимающая напряже-

ния, вызванные рассогласованием параметров решетки Si и Ge. Из рис. 3 видно, что, действительно, постоянная решетки пленки Ge постепенно приближается к значению для объемного материала.

Изменение параметра поверхностной атомной ячейки в плоскости, параллельной границе раздела, фиксируется методом регистрирующей дифрактометрии непрерывно *in situ* (вклад отражения от поверхности в картину дифракции — определяющий). В этом случае можно предположить: увеличение $a_{||}$ в процессе роста смачивающего слоя говорит о том, что упругая релаксация начинает играть заметную роль уже на двумерных островках, образующихся в процессе двумерно-слоевого роста. Аналогичные процессы на ростовой поверхности наблюдались в работе [9]. Именно двумерный островок германия будет скорее подвержен упругим искажениям в плоскости роста, а не сплошной слой пленки Ge на поверхности кремния. По мере увеличения толщины сплошной псевдоморфной пленки германия растет энергия упругих деформаций, что обуславливает все большее увеличение $a_{||}$ по сравнению с постоянной решетки кремния. На начальной стадии формирования *hut*-кластера его размеры сравнимы с размерами двумерных островков, поэтому нет резкого изменения в

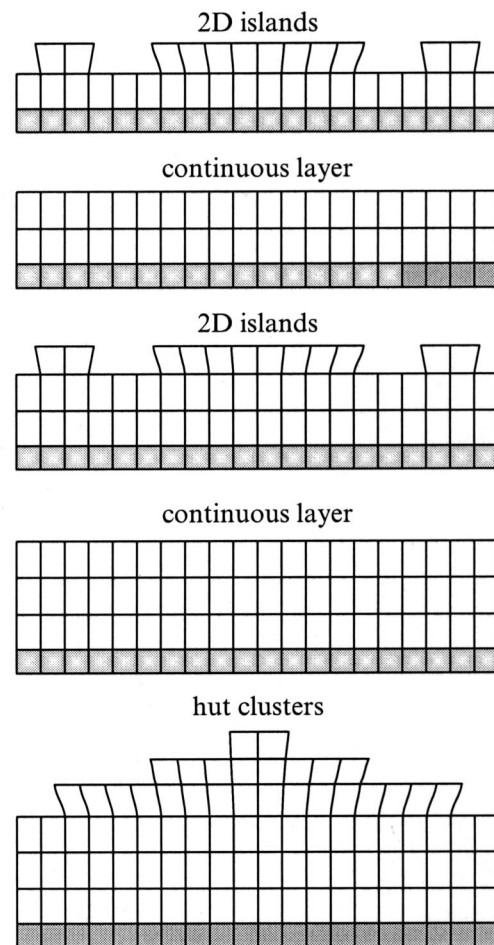


Рис. 5. Модель роста пленки.

зависимости параметра решетки от толщины. По мере роста кластера вклад в интенсивность дифрагированного пучка электронов от поверхности будет уменьшаться, а проходящего через объем — увеличиваться. Таким образом, уменьшение a_{\parallel} вплоть до исходного значения свидетельствует, по-видимому, о том, что параметр решетки в объеме германиевого островка стремится к значению, равному кремниевому. Упруго деформированные участки будут присутствовать только на плоскости (100), составляющей часть плоскости огранки *hut*-кластера {105}. Последнюю можно представить как ступень с высотой $a_0/4$ и шириной террасы $5a_0/4$, причем терраса имеет плоскость (100). Подтверждением изменения параметра двумерной поверхностной ячейки в плоскости роста является наличие периодического изменения значения a_{\parallel} при двумерном (2D) росте, аналогично осцилляциям интенсивности зеркального рефлекса. На рис. 4 приведено изменение параметра a_{\parallel} и интенсивности зеркального рефлекса в зависимости от толщины растущей пленки Ge. Периодическое изменение параметра двумерной ячейки в плоскости (100) имеет тот же характер, что и осцилляции интенсивности, но сдвинуты на полпериода. Максимальное увеличение параметра решетки совпадает с минимумом осцилляций интенсивности. Такое поведение обусловлено тем, что при максимальной шероховатости поверхности имеет место наибольшее увеличение a_{\parallel} . Подобную зависимость наблюдали ранее авторы [11] в случае роста металлов. Схематически изменение параметров решетки растущего слоя Ge показано на рис. 5. На нем представлена область роста 2D слоя германия (островковая и сплошная пленка) и начальная стадия формирования *hut*-кластера.

Заключение

Таким образом, в работе показано, что с помощью регистрации картины дифракции быстрых электронов можно *in situ* получать количественную информацию об атомном строении растущего эпитаксиального слоя. Построена уточненная диаграмма структурного и морфологического состояния пленки Ge на поверхности Si (100), включающая в себя все известные переходы. Впервые определено изменение параметров решетки пленки Ge в процессе ее роста на поверхности Si (100) при молекулярно-лучевой эпитаксии и обнаружены осцилляции изменения параметра поверхностной атомной ячейки при двумерном росте. Увеличение параметра двумерной решетки в плоскости (100) на стадии двумерного роста и формирования *hut*-кластеров обусловлено упругой деформацией, а для *dome*-кластеров — пластической релаксацией из-за формирования сетки дислокаций несоответствия в границе раздела.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты № 00-02-18012, № 00-02-17638, № 00-15-96806).

Список литературы

- [1] A.I. Yakimov, A.V. Dvurechenskii, Yu.Yu. Proskuryakov, A.I. Nikiforov, O.P. Pchelyakov. *Thin Sol. Films*, **336**, 332 (1998).
- [2] D.J. Eaglesham, M. Cerullo. *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 1943 (1990).
- [3] Y.-W. Mo, D.E. Savage, B.S. Swartzentruber, M.G. Lagally. *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 1020 (1990).
- [4] F.K. LeGoues, M.C. Reuter, J. Tersoff, M. Hammar, R.M. Tromp. *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 300 (1994).
- [5] H.T. Johnson, L.B. Freund. *J. Appl. Phys.*, **81**, 6081 (1997).
- [6] V.A. Markov, A.I. Nikiforov, O.P. Pchelyakov. *J. Cryst. Growth*, **175/176**, 736 (1997).
- [7] I. Goldfarb, G.A.D. Briggs. *Surf. Sci.*, **433–435**, 449 (1999).
- [8] O.P. Pchelyakov, V.A. Markov, A.I. Nikiforov, L.V. Sokolov. *Thin Sol. Films*, **306**, 299 (1997).
- [9] L. Kubler, D. Dentel, J.L. Bischoff, C. Ghica, C. Ulhag-Bouillet, J. Werckmann. *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 1053 (1998).
- [10] A. Ohtake, M. Ozeki, J. Nakamura. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 4665 (2000).
- [11] P. Turban, L. Hennet, S. Andrieu. *Surf. Sci.*, **446**, 241 (2000).

Редактор Л.В. Шаронова

Investigation of Ge film growth on Si (100) surface by registering diffractometry

A.I. Nikiforov, V.A. Cherepanov, O.P. Pchelyakov

Institute of Semiconductor Physics,
Russian Academy of Sciences,
Siberian Branch,
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract *In situ* registration of high energy electron diffraction patterns was used for constructing the diagram of structural and morphological states of Ge film on Si (100) surface. The following regions were identified in the diagram: 2D growth, "hut"- and "dome"-clusters, "dome"-clusters with misfit dislocations at the interface. The lattice constant variations were observed in Ge film during the molecular-beam epitaxy growth on Si (100) surface alongside with oscillations of the lattice parameter of the surface atomic cell peculiar to (100) plane at the stage of 2D growth and the above mentioned particularities were determined for the first time.