

Компонентный состав и упругие напряжения в многослойных структурах с наноостровками $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$

© М.Я. Валах, В.Н.Джаган, П.М. Литвин, В.А. Юхимчук, З.Ф. Красильник*, А.В. Новиков*, Д.Н. Лобанов*

Институт физики полупроводников Национальной академии наук Украины,
03028 Киев, Украина

* Институт физики микроструктур Российской академии наук,
603600 Нижний Новгород, Россия

E-mail: valakh@isp.kiev.ua

С помощью спектроскопии КРС определены компонентный состав и механические напряжения в $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -наноостровках, содержащихся в многослойной и однослойной структурах, выращенных в одинаковых условиях. Показано, что возрастание содержания кремния в островках в многослойной структуре не приводит к большей (по сравнению с одиночным слоем островков) их релаксации из-за отсутствия свободной поверхности. Экспериментально получен спектр рассеяния на свертках акустических фононов с довольно малыми полуширинами полос, что свидетельствует о высоком качестве выращенных сверхрешеток с наноостровками.

Работа выполнена при поддержке Украинско-российской программы „Нанофизика“ и INTAS-проекта N 01-444.

Большинство гетероструктур, для которых обнаружены новые электронные и оптоэлектронные свойства, основано на полупроводниках A_3B_5 . В то же время современная электроника базируется на хорошо развитой и относительно недорогой кремниевой технологии. Для повышения рабочей частоты микросхем, интеграции их элементов, а также эффективности излучения света необходимо внедрение новых функциональных принципов в кремниевую электронику, например использование квантовых точек (КТ), с возможной реализацией дискретного энергетического спектра [1–3]. Одним из способов получения массивов КТ является самоорганизованный рост Ge-наноостровков на кремниевой подложке по механизму Странского–Крастанова, физическая суть которого состоит в переходе от двумерного к трехмерному наноостровковому росту за счет уменьшения упругой энергии системы.

В данной работе с помощью методов комбинационного рассеяния света (КРС) и атомной силовой микроскопии (АСМ) исследованы многослойные структуры с $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -наноостровками и проведено сопоставление с аналогичными однослойными структурами.

1. Методика

Исследованные структуры были получены методом молекулярно-лучевой эпитаксии германия на подложку Si(001) с предварительно выращенным на ней буферным кремниевым слоем толщиной 250 nm. На буфер осаждалось 7.5 монослоя германия при температуре 600°C, после чего сформированные островки покрывались слоем кремния толщиной 26 nm. Такая процедура повторялась 6 раз. Для сравнения были выращены аналогичные однослойные структуры. В образцах, использованных для АСМ-измерений, верхний слой островков кремнием не покрывался. Спектры КРС в области частот оптических колебаний твердого раствора $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ изме-

рялись на спектрометре T64000 Jobin Yvon, оснащенный CCD-камерой, а фононные полосы в низкочастотной области — на спектрометре ДФС-24 с фотоумножителем и системой счета фотонов. В последнем случае образец находился в вакууме. Для возбуждения использовалось излучение Ar^+ -лазера с длиной волны 488 nm. АСМ-исследования проводились на микроскопе Nanoscope III-a в режиме периодического контакта (tapping mode).

2. Результаты и обсуждение

Как известно, в многослойных структурах с КТ при достаточно тонком промежуточном слое наблюдается строгая вертикальная корреляция роста островков, обусловленная распределением механических напряжений в промежуточном слое [3–5]. Значения компонентного состава x и величины упругой деформации ϵ в наноостровках можно определять, используя данные КРС, как было показано при исследовании однослойных структур с самоорганизованными Ge/Si-наноостровками [6–8]. Взаимосвязь частотного положения полос в спектре КРС и величин x и ϵ описывается соотношениями [6]

$$\omega_{\text{GeGe}} = 282.5 + 16x - 385\epsilon, \quad (1)$$

$$\omega_{\text{GeSi}} = 400.4 + 14.2x - 575\epsilon, \quad (2)$$

$$\omega_{\text{SiSi}} = 520.5 - 62x - 815\epsilon. \quad (3)$$

Для корректного определения величин x и ϵ необходимо оценить влияние других факторов на положение полос КРС. Влиянием эффекта пространственного ограничения фононов на изменение их частот в нашем случае можно пренебречь из-за достаточно больших размеров островков. По данным ПЭМ их высота составляет 5–6 nm, а латеральные размеры — 50–70 nm. Вклад кремниевой подложки в спектр КРС однослойной

структуры можно вычесть. В многослойных структурах эта задача усложняется, поскольку в спектр КРС вносят вклад как подложка, так и все промежуточные кремниевые слои. Наличие упругих деформаций в этих слоях приводит к низкочастотному сдвигу полосы ω_{SiSi} относительно ее положения для ненапряженной кремниевой подложки. Однако величины этих смещений малы по сравнению со сдвигом, обусловленным реальным компонентным составом $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ твердого раствора островков.

Известно, что зависимость частотного положения Ge–Si-моды от x линейна только в диапазоне $0 \leq x \leq 0.4$ [9]. В связи с этим для $0.4 < x \leq 1$ мы аппроксимировали эту зависимость для ненапряженного твердого раствора SiGe полиномом второй степени. Если учесть еще линейную зависимость частоты этой полосы от ε , то получим следующую формулу:

$$\omega_{\text{GeSi}} = 387 + 81x - 78x^2 - 575\varepsilon. \quad (4)$$

Подставляя полученные экспериментально (кривая 1 на рис. 1) значения частот Ge–Ge-, Ge–Si- и Si–Si-колебаний (298.8 , 416 и 496.5 cm^{-1} соответственно) и решая графически систему уравнений (1)–(4), как показано в работе [6], получаем $x = 0.6$, $\varepsilon = -0.015$. Близкое к этому значение дает отношение интегральных интенсивностей полос, соответствующих Ge–Ge- и Ge–Si-колебаниям: $I_{\text{Ge-Ge}}/I_{\text{Ge-Si}} = x/2(1-x)$.

Вклад в спектр КРС кроме $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -островков могут вносить Ge–Ge-колебания в тонком смачивающем слое Ge и Si–Ge-колебания на интерфейсе между этим слоем и промежуточным слоем Si [10]. Однако рассеяние от двумерного смачивающего слоя в использованной нами геометрии рассеяния $001(100, 100)00\bar{1}$ является запрещенным согласно правилам отбора [11], а тонкий переходный SiGe-слой, формирующийся при температуре роста 600°C , существенно уменьшает вероятность проявления интерфейсных Si–Ge-мод.

Для выявления влияния промежуточного слоя Si на параметры островков мы исследовали однослойную структуру с $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -островками, выращенную без слоя „Si-cap“. Из спектров КРС этой структуры (кривая 2 на рис. 1) мы получили $x = 0.75$, $\varepsilon = -0.013$. Большое значение концентрации атомов кремния в островках многослойных структур связано с дополнительной их диффузией из промежуточных слоев. В результате этого должна была бы происходить более значительная релаксация упругих напряжений, однако в многослойных структурах островки со всех сторон окружены кремнием, поэтому релаксация затруднена.

В низкочастотной области спектра исследуемой многослойной структуры наблюдается ряд четких, равноотстоящих друг от друга полос (рис. 2). В случае двумерных плоских сверхрешеток (СР) эти полосы обусловлены рассеянием на свертках акустических фононов, возникающих вследствие искусственной периодичности в направлении роста [1,12,13]. Теоретическая модель Рытова [14], описывающая фоновый спектр двумерных СР, была успешно использована и в случае СР

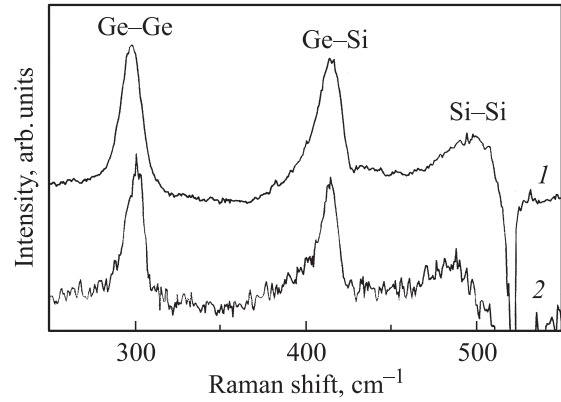


Рис. 1. Спектры КРС многослойной (1) и однослойной (2) структур с $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -островками. Вклад Si-подложки вычтен.

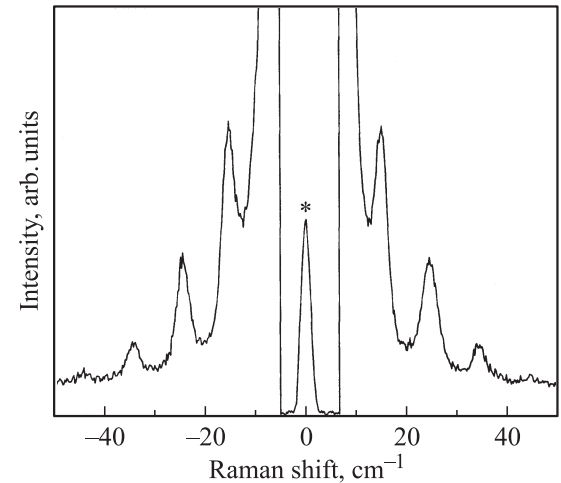


Рис. 2. Стоксова и антистоксова части спектра КРС на свертках акустических фононов многослойной структуры с $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -островками.

с КТ [15]. В работах [16,17] предложен механизм комбинационного рассеяния в СР с КТ независимо от числа составляющих их слоев. Согласно этой модели, низкочастотные полосы появляются в результате интерференции акустических фононов с набором локализованных электронных состояний, в которой принимают участие фононы всей зоны Бриллюэна, вследствие нарушения трансляционной симметрии в слоях с наноструктурами. Данная модель позволяет определить не только частотные положения пиков, но и тонкую структуру линий и их интенсивность. Поскольку было показано [17], что для структур, содержащих не менее пяти-шести слоев КТ, частотные положения полос, рассчитанные по интерференционной модели и по теории Рытова, совпадают, мы использовали последнюю.

Известно, что результирующая дисперсионная кривая СР получается свертыванием исходной ветви объемного материала в мини-зону с $q_{\text{max}} = \pi/d$, где d — период решетки. При рассеянии такой периодической структуры лазерного излучения с волновым вектором q_s в спектре КРС наблюдаются дублеты, положение

которых отвечает точкам на дисперсионной кривой, отмеченным на рис. 3. Согласно правилам отбора, в данной СР наблюдаются лишь продольные акустические фононы. В таблице приведены экспериментальные и теоретически рассчитанные частоты этих фононов при значении волнового вектора лазерного излучения $q_s = 4\pi n_\lambda / \lambda = 1.14 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1}$, где λ — длина волны возбуждающего лазерного излучения, n_λ — среднее значение показателя преломления данной структуры ($n_\lambda = 4.33$ для $\lambda = 488 \text{ nm}$). Для нашей структуры, где акустические импедансы слоев отличаются мало, расчет частот дублетов можно проводить по упрощенной формуле [13]

$$\omega = V_{\text{SL}} \left(\frac{2\pi}{d} \right) m \pm V_{\text{SL}} q_s,$$

$$V_{\text{SL}} = d \left(\frac{d_1^2}{V_1^2} + \frac{d_2^2}{V_2^2} + \left(R + \frac{1}{R} \right) \frac{d_1 d_2}{V_1 V_2} \right)^{-1/2},$$

$$R = \frac{V_1 \rho_1}{V_2 \rho_2},$$

ρ_1, ρ_2 — плотности, d_1, d_2 — толщины слоев, V_1, V_2 — скорости звука в слоях, ω — частота фонона.

Спектры КРС были рассчитаны как суперпозиция двух групп фононов, распространяющихся в направлении роста сквозь островковые и только смачивающие слои соответственно. Как видно из таблицы, теоретически рассчитанные значения частот полос хорошо совпадают с экспериментальными результатами.

Таким образом, в настоящей работе выполнены исследования влияния промежуточных кремниевых слоев на компонентный состав и упругие напряжения в $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -наноструктурах при выращивании многослойных островковых структур. С помощью спектроскопии КРС показано, что в многослойной структуре с наноструктурами содержание кремния возрастает по сравнению с одиночным слоем островков, а величина остаточной упругой деформации почти не изменяется. Увеличение содержания кремния в островках способствует релаксации механических напряжений, но отсутствие

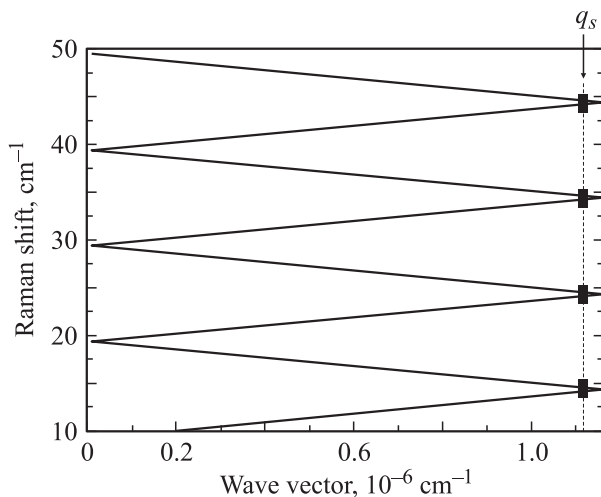


Рис. 3. Теоретическая дисперсионная зависимость для многослойной структуры с $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ -островками.

Экспериментальные и теоретически рассчитанные значения частот сверток акустических фононов (в cm^{-1}) в спектре КРС

	m							
	+1	-2	+2	-3	+3	-4	+4	-5
Теория	14.7	15.1	24.7	24.9	34.6	35	44.6	45
Эксперимент	15		24.8		34.6		44.5	

свободной поверхности в островках не дает им полностью релаксировать. Экспериментально получен спектр рассеяния на свертках акустических фононов с довольно малыми полуширинами полос, что свидетельствует о высоком качестве выращенных СР с наноструктурами. Теоретически рассчитанные значения частот этих полос хорошо совпадают с экспериментально полученными результатами.

Список литературы

- [1] V.V. Mitin, V.A. Kochelap, M.A. Strocio. Quantum Heterostructures. Microelectronics and Optoelectronics. Cambridge University Press, Cambridge (1999).
- [2] О.П. Пчеляков, Ю.Б. Болховитняков, А.В. Двуреченский, Л.В. Соколов, А.И. Никифоров, А.И. Якимов, Б. Фойхтландер. ФТП **34**, 11, 1281 (2000).
- [3] C. Teichert. Phys. Rep. **365**, 335 (2002).
- [4] D.A. Tenne, V.A. Haisler, A.I. Toropov, A.K. Bakarov, A.K. Gutakovsky, D.T.A. Zahn, A.P. Shebanin. Phys. Rev. B **61**, 20, 13 785 (2000).
- [5] O.G. Schmidt, K. Eberl. Phys. Rev. B **61**, 20, 13 721 (2000).
- [6] J. Groenen, R. Carles, S. Christiansen, M. Albrecht, W. Dorsch, H.P. Strunk, H. Wawra, G. Wagner. Appl. Phys. Lett. **71**, 26, 3856 (1997).
- [7] Z.F. Krasil'nik, P.M. Lytvyn, D.N. Lobanov, N. Mestres, A.V. Novikov, J. Pascual, M.Ya. Valakh, V.A. Yukhymchuk. Nanotechnology **13**, 81 (2002).
- [8] A.V. Novikov, B.A. Andreev, N.V. Vostokov, S.A. Gusev, Yu.N. Drozdov, Z.F. Krasilnik, D.N. Lobanov, L.D. Moldavskaya, A.N. Yablonskiy, M. Miura, N. Usami, Y. Shiraki, M.Ya. Valakh, N. Mestres, J. Pascual. Mat. Sci. Eng. B **89**, 62 (2002).
- [9] J.C. Tsang, P.M. Mooney, F. Dacol, J.O. Chu. J. Appl. Phys. **75**, 12, 8096 (1994).
- [10] S. De Gironcoli, E. Molinari, R. Schorer, R. Abstreiter. Phys. Rev. B **48**, 12, 8959 (1993).
- [11] R. Schorer, G. Abstreiter, S. De Gironcoli, E. Molinary, H. Kibbel, H. Presting. Phys. Rev. B **49**, 8, 5406 (1994).
- [12] C. Colvard, T.A. Gant, M.V. Klein, R. Merlin, R. Fisher, H. Morkoc, A.C. Gossard. Phys. Rev. B **31**, 4, 2080 (1985).
- [13] A.B. Talochkin, V.A. Markov, Yu.A. Pusep, O.P. Pchelyakov, M.P. Sinyukov. Supelatt. Microstruct. **10**, 2, 179 (1991).
- [14] С.М. Рыгов. Акуст. журн. **2**, 1, 71 (1956).
- [15] A. Milekhin, N.P. Stepina, A.I. Yakimov, A.I. Nikiforov, S. Schulze, D.R.T. Zhan. Eur. Phys. J. B **16**, 355 (2000).
- [16] M. Cazayous, J. Groenen, J.R. Huntzinger, A. Mlayah, O.G. Schmidt. Phys. Rev. B **64**, 033 306 (2001).
- [17] M. Cazayous, J. Groenen, A. Zwick, A. Mlayah, R. Carles, J.L. Bischoff, D. Dentel. Phys. Rev. B **62**, 195 320 (2002).