

03,13

Структурные и оптические свойства метастабильных пленок SiGe/Si с низким содержанием германия

© В.С. Багаев¹, В.С. Кривобок^{1,2}, Д.Н. Лобанов¹, А.Н. Миннуллин^{1,2},
С.Н. Николаев¹, А.Н. Шалеев¹, С.В. Шевцов^{1,2}

¹ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН,
Москва, Россия

² Московский физико-технический институт (Государственный университет),
Долгопрудный, Россия

E-mail: krivobok@sci.lebedev.ru

(Поступила в Редакцию 22 апреля 2014 г.)

С помощью атомно-силовой микроскопии, рентгеноструктурного анализа и спектроскопии низкотемпературной люминесценции исследованы свойства метастабильных слоев $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ ($10\% < x < 16\%$), выращенных с помощью молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках Si(100). Показано, что на поверхности таких слоев, полученных при температуре 500–700°C, присутствуют кольцевые образования. Размер и форма данных образований указывают на их связь с диффузионной неустойчивостью, возникающей за счет взаимосвязи поверхностной диффузии, напряжений и потенциала смачивания при росте эпитаксиальной пленки. Наличие отклонений от однородного распределения германия в плоскости слоя подтверждается детальным анализом рентгеновских кривых качания и двумерных картин дифракции. Для структур с выраженными нарушениями поверхности регистрируется аномальное изменение времен затухания линий излучения объемного кремния, которые указывают на присутствие локальных электрических и/или деформационных полей в приповерхностных областях. Нарушения плоского фронта кристаллизации подавляются при уменьшении температуры роста слоев до 350°C. Несмотря на отсутствие покровного слоя кремния, спектры фотолюминесценции самих слоев слабо зависят от их толщины и температуры роста, оставаясь чувствительными лишь к технологической концентрации германия. В одном из образцов, выращенном при температуре 700°C и содержащем плотный массив кольцевых образований, обнаружена медленно затухающая люминесценция, связанная, предположительно, с локализацией экситонов вблизи интерфейса SiGe–Si.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №12-02-01140, 12-02-01033, 13-02-12164, 12-02-33091).

1. Введение

Полупроводниковые напряженные гетероструктуры на основе тонких эпитаксиальных слоев являются перспективными материалами для совершенствования современной базы СВЧ — электроники и оптоэлектроники. Различные типы деформаций (растяжение и сжатие, двусное и одноосное), вызванные разницей постоянных решеток f между пленкой и подложкой, позволяют изменять целый ряд свойств материала, связанных, например, с зонной структурой [1], подвижностью носителей заряда [2,3], коэффициентом диффузии примесей [4], примесной растворимостью [5,6] и др. Отдельный интерес представляют структуры на кремниевой подложке с напряженными слоями SiGe по причине их совместимости с существующими кремниевыми технологиями. Данные материалы являются многообещающими, в частности, для улучшения характеристик технологии КМОП [7].

Разница постоянных решетки f в гетероструктуре $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ зависит от концентрации германия x и может быть аппроксимирована следующим выражением [8]:

$$f = 0.036678x + 0.005032x^2.$$

Как известно, несовпадение решеток позволяет получать эпитаксиальные пленки SiGe в напряженном состоянии до определенной критической толщины роста t_c . При превышении t_c пленка релаксирует за счет возникновения дислокаций на границе раздела двух сред и/или потери плоского фронта кристаллизации. При этом момент начала релаксации зависит не только от критической толщины пленки, но и от температурного режима роста гетероструктуры [9]. Например, отличие между постоянными решетки $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ и Si около 0.8% (при $x = 20\%$) соответствует критической толщине порядка 10 nm, что при высокотемпературном росте (900°C) уже приводит к пластической релаксации [10]. Тем не менее, при уменьшении температуры до 750°C (или ниже) напряженная пленка оказывается в метастабильном состоянии и дислокации не образуются [11].

Очевидно, что контролируемый рост метастабильных слоев позволяет расширить диапазон толщин, в которых пленка с заданным составом остается упруго напряженной. Данная особенность важна с точки зрения расширения технологических возможностей. С другой стороны, метастабильные состояния пленки интересны с точки зрения реализации новых подходов к управлению ее структурой, так как режим роста и морфология

поверхности оказываются чувствительны к малому возмущению. Последнее представляет как прикладной, так и фундаментальный интерес, связанный, к примеру, с исследованием многочастичных состояний в низкоразмерных системах [12,13].

К настоящему времени разработаны теоретические модели [14–17], описывающие физическую природу релаксации гетероструктур, а также сделаны соответствующие оценки величины критической толщины. В частности, моделирование роста метастабильных эпитаксиальных пленок с помощью нестационарного уравнения диффузии предсказывает пороговое изменение морфологии при наличии малого возмущения ростовой поверхности. Механизм нарушения морфологии может быть связан с накоплением упругих напряжений в поверхностном слое [18], диффузионным перемешиванием с материалом подложки [19] и, кроме того, с зависимостью энергии связи адатомов с подложкой от расстояния до подложки [20,21]. В последнем случае для трехмерного роста расчеты предсказывают формирование кольцевых структур, характерный размер которых определяется параметрами материалов пленки и подложки, а не размером исходного возмущения. В случае тонких пленок формирование подобных кольцевых структур подавляется за счет эффектов смачивания.

В настоящей работе обсуждается возможность экспериментального наблюдения описанного механизма неустойчивости для толстых (нерелаксированных) эпитаксиальных слоев SiGe/Si с низким содержанием германия. Особое внимание уделяется анализу влияния неоднородностей слоя SiGe на различные свойства подложки.

2. Описание эксперимента

Исследуемые гетероструктуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии при температурах 350–700°C. Вначале на кремниевой подложке Si(001) выращивался буферный слой кремния толщиной 100 nm, на который затем наносился слой SiGe. Для того чтобы лучше отследить возможные изменения морфологии поверхности, слой SiGe кремнием не покрывался. Была выращена серия образцов, толщины и состав слоя SiGe в которых подбирались так, чтобы последний находился в метастабильном состоянии. В каждом случае толщина слоев SiGe превышала расчетную критическую толщину, при которой происходит пластическая релаксация напряжений, но дислокации не формировались. Данные об условиях роста и параметрах различных образцов систематизированы в табл. 1. Отметим, что в табл. 1 приведена средняя концентрация германия в эпитаксиальных пленках. Из-за отсутствия системы обратной связи в цепи управления электронно-лучевыми испарителями профиль распределения германия перпендикулярно плоскости роста мог значительно (~ 30%)

Таблица 1. Номинальные ростовые характеристики исследуемых образцов

Номер образца	$x, \%$	Температура роста, °C	Толщина слоя SiGe, nm
1376	10.3	700	50
1377	10.2	500	50
1378	15.3	350	60
1379	15.9	500	30
1380	16.5	700	30
1381	15.6	350	30

отклоняться от средней величины. Для каждого из образцов возможные отклонения фиксировались в протоколах роста.

Морфология поверхности выращенных слоев исследовалась в атомно-силовом микроскопе (АСМ) „NTEGRA Prima“ (NT-MDT) с использованием бесконтактной моды.

Измерения спектров низкотемпературной фотолюминесценции (ФЛ) проводилось в парах гелия при температуре 5 К. Источником возбуждения служила третья гармоника Nd:YAG лазера ($\lambda = 355$ nm) с длительностью импульса 5 ns и энергией 2–20 μ J. Из-за большого коэффициента поглощения в кремнии используемое ультрафиолетовое излучение позволяет возбуждать приповерхностную область и выделять излучение слоя SiGe на фоне подложки. Чтобы избежать эффектов, связанных с диффузией экситонов из области возбуждения, при измерении спектров и кинетики ФЛ, излучение не фокусировалось (размер области возбуждения составлял примерно 5 mm). Для регистрации спектров ФЛ с временным разрешением однофотонные импульсы с ФЭУ после усиления и дискриминации суммировались цифровым осциллографом LeCroy WR62xi (аналогичная схема регистрации подробно описана в работе [22]) с помощью метода времяразрешенного счета фотонов. Данная схема позволяет записывать сигнал ФЛ с временным разрешением около 2 ns без потери фотоотчетов.

Рентгеновские исследования проводились на дифрактометре Panalytical X'Pert Pro MRD Extended с использованием либо первичного четырехкристалльного монохроматора Ge (220) в сочетании с рентгеновским зеркалом, либо первичного гибридного монохроматора, состоящего из рентгеновского зеркала и двухкристалльного монохроматора Ge (220). Расходимость пучка после четырехкристалльного монохроматора составляет 12'', тогда как после гибридного монохроматора она равна 25''. Так как интенсивность пучка после гибридного монохроматора в 12 раз выше, он позволяет более эффективно выявлять эффекты, связанные с диффузным рассеянием рентгеновского излучения. Гибридный монохроматор использовался также для получения рефлектометрических кривых при малых углах дифракции ($2\theta < 25^\circ$).

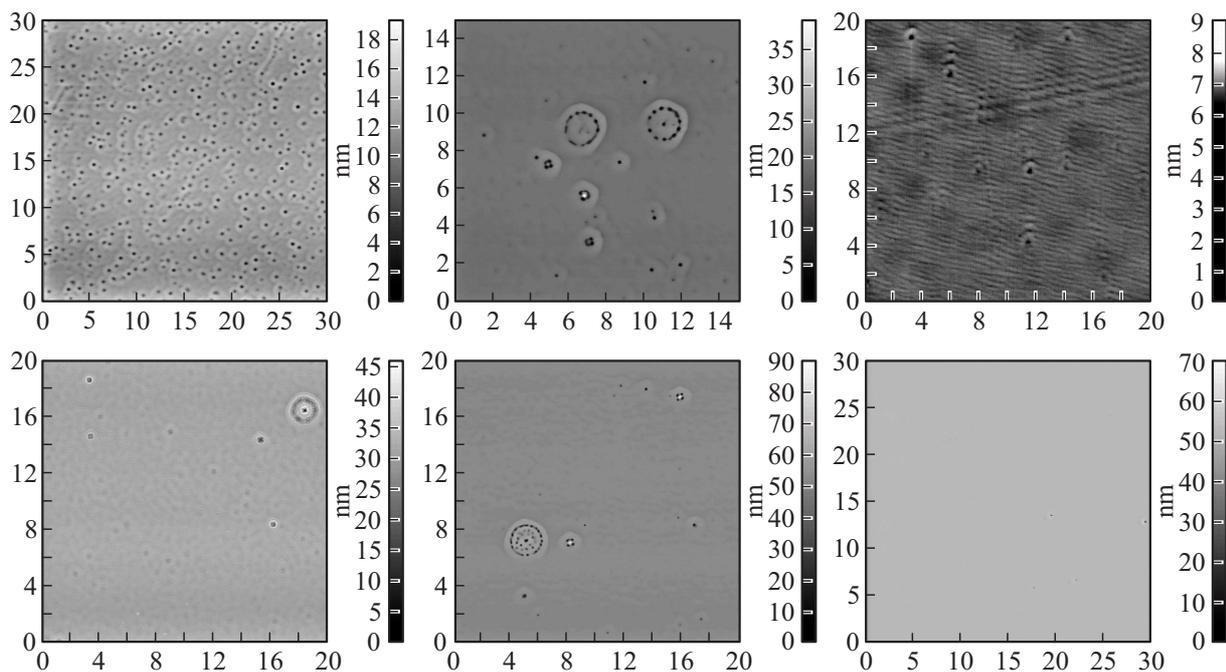


Рис. 1. Примеры морфологии поверхности для структур $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$, полученные с помощью АСМ. Верхние снимки соответствуют образцам (слева направо): 1376, 1377, 1378. Нижние снимки (слева направо): 1380, 1379, 1381. Размеры в плоскости слоев приведены в микрометрах.

Двумерные фрагменты обратного пространства вблизи рефлекса (004) записывались с использованием кристалла-анализатора, установленного на третьей оси дифрактометра. Они получают с помощью программы „Panalytical Epitaxy“, которая объединяет от нескольких десятков до сотни и более кривых ($\omega-2\theta$)-сканирования (ω — угол сканирования, θ — угол дифракции), каждая следующая из которых сдвинута на фиксированный угол ($\Delta\omega = 0.0005^\circ$) от предыдущей. Заметная интенсивность дифракции в трехкристалльной геометрии наблюдается только в том случае, когда одновременно и отражающие плоскости находятся под брэгговским углом, и кристалл-анализатор находится в положении удвоенного значения угла дифракции. Если кристаллические плоскости (001) слоя SiGe не параллельны плоскости (001) подложки из-за присутствия дислокаций несоответствия на границе раздела, то изображение получается сдвинутым по вертикальной оси на величину угла разориентации. Запись двумерных фрагментов обратного пространства позволяет разделить вклады в уширение дифракционных пиков, вызванные разориентацией кристаллических плоскостей и колебаниями параметра решетки.

3. Морфология поверхности

Рис. 1 иллюстрирует изменение морфологии поверхности при уменьшении температуры роста для эпитаксиальных слоев толщиной 50 nm. Характерной особенностью всех слоев, выращенных при температурах

700°C , является формирование на поверхности кольцевых образований, состоящих из ямки, глубина которой сопоставима с толщиной слоя SiGe, и окружающего ямку кольцевого возвышения. Качественно похожая морфология наблюдалась и для структур с толщиной слоя SiGe 30 nm. В одном из образцов, выращенном при температуре 700°C , кольцевые образования малого размера формировали однородный массив на поверхности, см. рис. 1 (образец 1376). Отметим, что для структуры 1380, также выращенной при температуре 700°C , но имеющей меньшую толщину слоя SiGe, видна стадия зарождения кольцевых образований. Уменьшение температуры до 500°C приводило к частичному сращиванию кольцевых образований и формированию более сложных структур (образцы 1377, 1379). Последующее уменьшение температуры до 350°C (образцы 1381, 1378) либо полностью подавляет кольцевые образования, либо значительно уменьшает их поверхностную плотность. Дислокации несоответствия не образуются во всех слоях, что подтверждается как рентгеновскими данными (см. далее), так и отсутствием характерной системы полос, параллельных направлению (110), на снимках АСМ.

Эквивалентность кольцевых структур на поверхности различных образцов, выращенных при близких температурах, указывает на то, что механизм формирования неоднородности определяется не исходным возмущением, а условиями роста и/или параметрами гетероструктуры. Теоретический подход, описывающий аналогичные явления при росте метастабильных слоев на основе нестационарного уравнения диффузии, развит в

работах [23,24]. В работе [24] химический потенциал пленки рассматривается как функция поверхностной энергии, энергии упругой деформации кристаллической решетки и потенциала смачивания. Учет нелинейных поправок при подстановке данной функции в уравнение диффузии может приводить к неустойчивости решения по отношению к малому изменению граничных условий. Последующее развитие неустойчивостей формирует неоднородный рельеф на плоской поверхности образца. К частному случаю такой неустойчивости относятся эффекты, вызванные взаимным влиянием деформационных полей и диффузионных процессов, стимулирующие появление микротрещин при росте напряженных пленок [25,26]. В исследуемых образцах роль точечных возмущений, стимулирующих развитие диффузионной неустойчивости, могут играть локальные скопления неконтролируемых примесей, которые возникают за счет сегрегационных эффектов.

Согласно результатам [24], характерный размер неоднородности, развивающейся на поверхности слоя за счет описанной неустойчивости, можно оценить как $\sim 10L$, где величина L выражается через поверхностную энергию γ_f , главные компоненты тензора напряжений σ_0 пленки, модуль Юнга E_s и коэффициент Пуассона ν_s материала подложки как

$$L = \frac{\gamma_f E_s}{2\sigma_0^2(1 - \nu_s^2)}. \quad (1)$$

Коэффициенты в выражении (1) проявляют слабую зависимость от концентрации германия в эпитаксиальной пленке, поэтому характерный размер наблюдаемых образований для различных образцов не должен существенно отличаться друг от друга, что и наблюдается в приведенных выше снимках АСМ. После подстановки всех констант, которые можно найти, например, в работах [27,28], нетрудно получить значение $10L \approx 540$ nm ($x = 16\%$), которое качественно согласуется с экспериментальными данными (диаметр ямки, ширина кольцевого возвышения). Кроме того, форма кольцевых образований, регистрируемых при температуре 700°C , напоминает расчетную, если учитывать роль нелинейных поправок, связанных с потенциалом смачивания [24].

Описанный выше диффузионный механизм формирования кольцевых образований подразумевает изменение локальной концентрации германия и деформационного поля вблизи нарушений плоского фронта кристаллизации. Поэтому в образцах, содержащих кольцевые образования, следует ожидать неоднородное распределение германия по ростовой поверхности. Данная особенность должна сказываться на структурных и оптических свойствах эпитаксиальных слоев.

4. Кристаллическая структура

Для получения информации о кристаллической структуре слоев моделировались рентгеновские кривые ка-

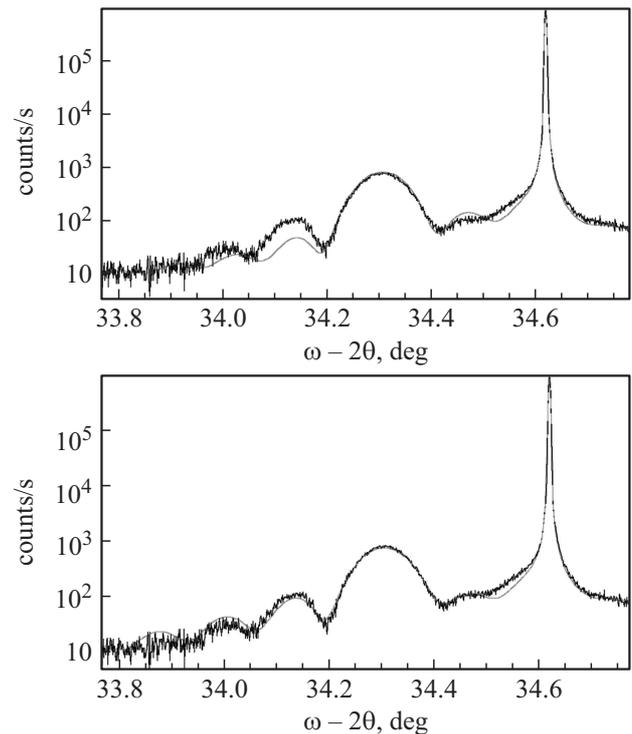


Рис. 2. Экспериментальная (темная зашумленная) и расчетные (светлые) кривые качания (004) для образца № 1376. Расчетная кривая сверху — одиночный слой $\text{Si}_{0.877}\text{Ge}_{0.123}$ толщиной 47 nm; внизу — два слоя: $\text{Si}_{0.883}\text{Ge}_{0.117}$ толщиной 35.7 nm и $\text{Si}_{0.818}\text{Ge}_{0.182}$ толщиной 9 nm. В случае нижней расчетной кривой сделано допущение о частичной потере когерентности рентгеновского излучения, отраженного разными слоями.

чания, записанные вблизи рефлекса (004). Рис. 2 иллюстрирует типичный вид такой кривой (зашумленная темная кривая) на примере образца 1376, в котором наблюдается однородный массив кольцевых образований с высокой плотностью. Острый пик, регистрируемый на экспериментальной кривой в районе $\omega = 34.58^\circ$, соответствует отражению от кремниевой подложки. Ввиду малой толщины отражение от слоя SiGe содержит осцилляции, отчетливо проявляющиеся в диапазоне $\omega = 33.8^\circ - 34.5^\circ$.

Расчетная кривая на рис. 2 иллюстрирует попытку аппроксимации экспериментальных данных в рамках модели, подразумевающей однородный состав слоя SiGe. В этом случае наилучшая аппроксимация достигается при толщине слоя 47 nm и содержании германия в нем 12.3%. Тем не менее, как видно из рис. 2, расчетная кривая лишь качественно повторяет осциллирующую структуру, но не воспроизводит период и амплитуду сателлитных пиков. Аналогичные результаты получаются при усложнении модели, допускающем разбиение эпитаксиального слоя на несколько латерально однородных подслоев с разной концентрацией германия.

Количественного согласия экспериментальных и расчетных кривых удастся достичь, если, помимо разбиения

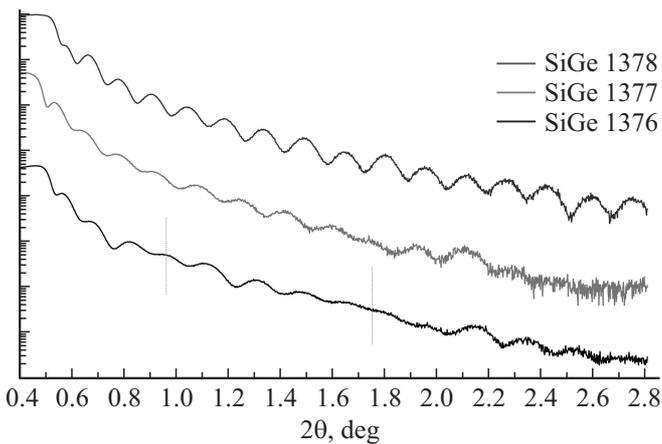


Рис. 3. Рефлектометрические кривые для образцов (снизу вверх) 1376, 1377 и 1378. Для образца 1376 подавление интерференционных осцилляций помечено вертикальными линиями.

гетероструктуры на подслои с разной концентрацией германия, допустить частичную потерю когерентности дифракции между ними. В этом случае угловые расстояния между сателлитами определяются преимущественно более толстым подслоем, а не суммарной толщиной двух слоев. Пример подобной аппроксимации для образца 1376 представлен на рис. 2. Расчетная кривая соответствует двум подслоям — $\text{Si}_{0.883}\text{Ge}_{0.117}$ толщиной 35.7 nm и $\text{Si}_{0.818}\text{Ge}_{0.182}$ толщиной 9 nm. Из рисунка видно, что данная модель слоя позволяет воспроизвести период осцилляций и их относительные интенсивности. Аналогичным образом удастся воспроизвести экспериментальные кривые для других гетероструктур, выращенных при температурах 700–500°C и содержащих кольцевые образования на поверхности.

Для большинства образцов наличие подслоев с разной концентрацией германия подтверждается характером интерференционных осцилляций на рефлектометрических кривых, см. рис. 3. Расстояние между максимумами на таких кривых определяется интерференцией рентгеновских лучей, отраженных от границ раздела между областями с разной электронной плотностью. Поэтому наличие подслоев неизбежно сказывается на характере осцилляций. В частности, для образца 1376 наличие тонкого слоя с повышенной концентрацией германия приводит к деструктивной интерференции и подавлению осцилляций. Соответствующие области помечены вертикальными линиями на рис. 3. В образце № 1377 толщина второго слоя меньше, чем в № 1376, поэтому подавление осцилляций наблюдается при больших значениях угла дифракции. Образец № 1378, выращенный при температуре 350°C, хорошо описывается единственным слоем SiGe. Отметим, что рефлектометрические кривые и кривые качания не удастся описать, учитывая лишь технологические флуктуации потока германия, известные из протоколов роста. В частности, наличие дополнительных подслоев регистрируется в

структурах, которые, согласно протоколам роста, должны быть однородными.

Для получения дополнительной информации о разориентации между кристаллическими плоскостями подложки и эпитаксиальных слоев были записаны двумерные картины сечения обратного пространства вблизи различных рефлексов. Рис. 4 иллюстрирует примеры таких картин вблизи рефлекса (004), полученных до и после поворота образца 1377 на 180° вокруг нормали к ростовой поверхности. Из рисунка видно, что дифракционные пики от слоя SiGe практически не смещаются относительно центра пика подложки, т. е. разориентация кристаллических плоскостей (001) отсутствует. Тем не менее, независимо от ориентации образца присутствует взаимный поворот между двумя дифракционными пиками от слоя SiGe. Данную особенность можно объяснить, если предположить, что фрагменты слоев с различной концентрацией германия частично перекрываются (без образования дислокаций), а не лежат слой над слоем. Различная концентрация германия в двух слоях (и значение параметра решетки вдоль нормали к ростовой поверхности) при отсутствии дислокаций неизбежно должна приводить к небольшим изгибам кристаллических плоскостей (001). Такое предположение, согласующееся с отмеченной выше частичной потерей когерентности при описании кривых качания, аналогично модели пирамид роста [29].

Таким образом, результаты рентгеноструктурных исследований качественно подтверждают сделанное выше предположение о неоднородном распределении германия в плоскости эпитаксиальных слоев, имеющих нарушенную морфологию поверхности в виде наблюдаемых с помощью АСМ „колец“. За счет изменения упругих свойств вблизи областей с повышенной/пониженной концентрацией германия возникают локальные деформационные поля, проникающие в подложку.

Для оценки глубины проникновения напряжений в подложку удобно использовать следующую модель. Пусть на поверхность упругой среды, характеризующейся коэффициентом Пуассона σ , модулем Юнга E и заполняющей бесконечное полупространство, по квадратному контуру с длиной стороны $2a$ действуют тангенциальные силы, сжимающие или растягивающие поверхностный слой. Деформация среды под влиянием этих сил описывается уравнением равновесия

$$\text{grad div } \mathbf{u} + (1 - 2\sigma)\Delta \mathbf{u} = 0 \quad (2)$$

с граничными условиями

$$\sigma_{iz} = \frac{E}{1 + \sigma} \left(u_{iz} + \frac{\sigma}{1 - 2\sigma} u_{||} \delta_{iz} \right) = -F_i,$$

где \mathbf{u} — вектор деформации, а F_i — компоненты внешних сил, приложенных к поверхности. Хотя подобная модель не учитывает анизотропию упругих свойств кристалла, она позволяет сделать оценки глубины проник-

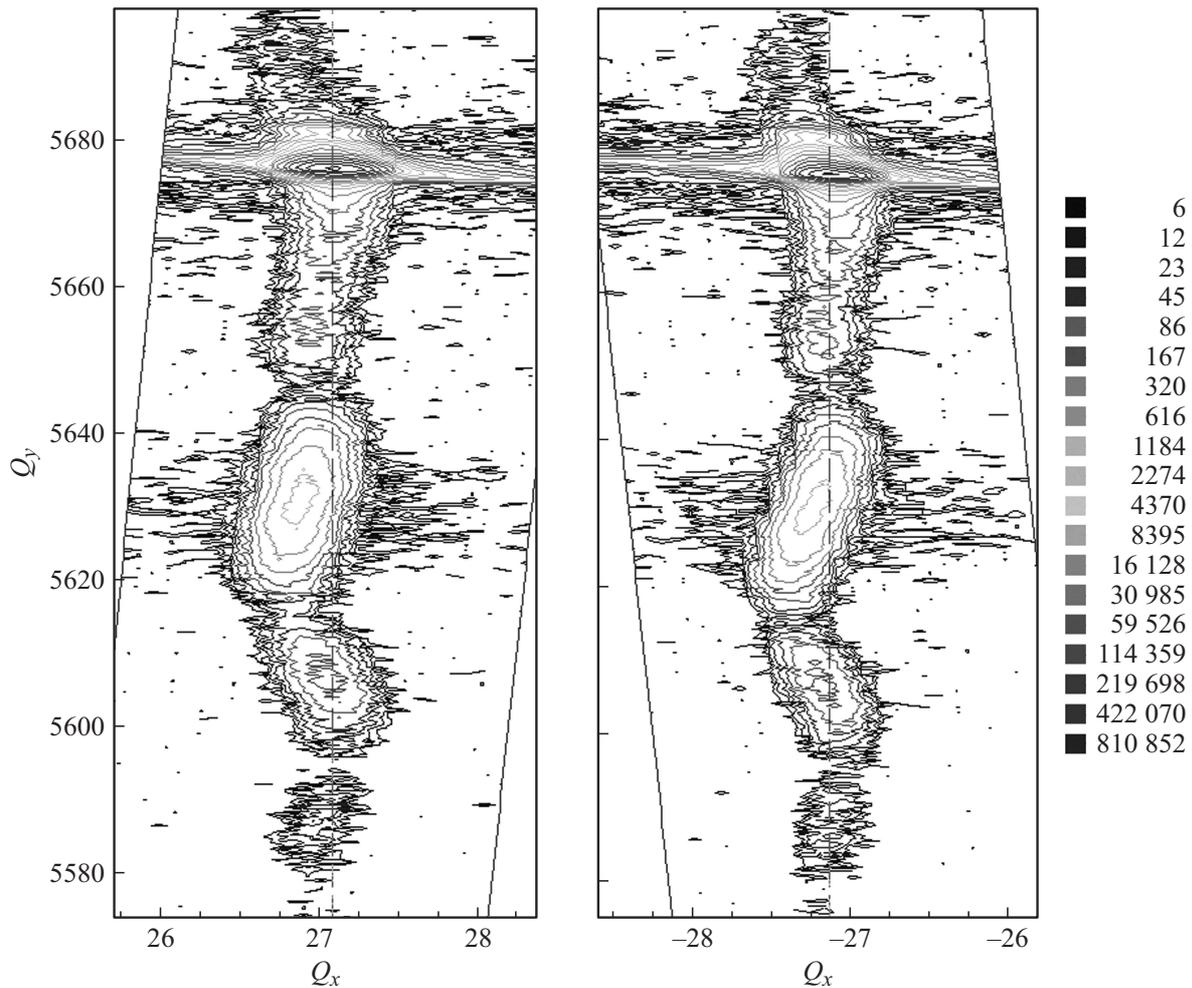


Рис. 4. Двумерные картины сечения обратного пространства вблизи рефлекса (004) для образца 1377 до (слева) и после (справа) поворота образца на 180° вокруг нормали к ростовой поверхности.

новения деформации в образец. Используя формализм, описанный, например, в [30], можно получить выражения для различных компонент вектора деформации. В частности, вдоль оси, проходящей через центр островка перпендикулярно плоскости роста, латеральные компоненты вектора деформации описываются следующим выражением:

$$u_x = u_y = \frac{1 + \sigma}{2\pi} \frac{F_x}{a^2} \left(\frac{1}{\sqrt{1 + \xi^2}} + \frac{(2\sigma - 1)}{(1 + \xi^2)(\xi + \sqrt{1 + \xi^2})} \right), \quad (3)$$

где $\xi = z/\sqrt{2}a$ — нормированная на размер островка глубина проникновения напряжений в образец. Путем простой подстановки нетрудно убедиться, что при $\sigma \approx 0.278$ (данная величина σ соответствует кремнию и твердым растворам SiGe с низким содержанием германия [28]) значения компонент деформации имеют один порядок величины для глубин $z = 0$ и $z = \sqrt{2}a$. При значительном удалении от слоя SiGe в глубь подложки

($\xi \rightarrow \infty$) вторым слагаемым в выражении (3) можно пренебречь, и напряжения начинают спадать как $1/z$. Из представленных оценок следует, что напряжения проникают в подложку на величину порядка латеральных размеров „островка“ с повышенной (или пониженной) концентрацией германия. Глубина проникновения напряжений возрастает с увеличением размера островка, но их максимальное значение при этом убывает. Отметим, что применительно к формуле (2) однородный в плоскости роста слой SiGe можно рассматривать как „островок“, размер которого сопоставим с размером образца. В этом случае деформация присутствует во всем объеме подложки, но ее величина пренебрежимо мала.

Для исследуемых образцов наличие неоднородного поля напряжений в подложке подтвердилось слабыми изменениями профиля дифракционного пика от кремния на кривых качения при пространственном сканировании образцов. Тем не менее количественную связь между данными изменениями и плотностью кольцевых образований на поверхности образца установить не удалось.

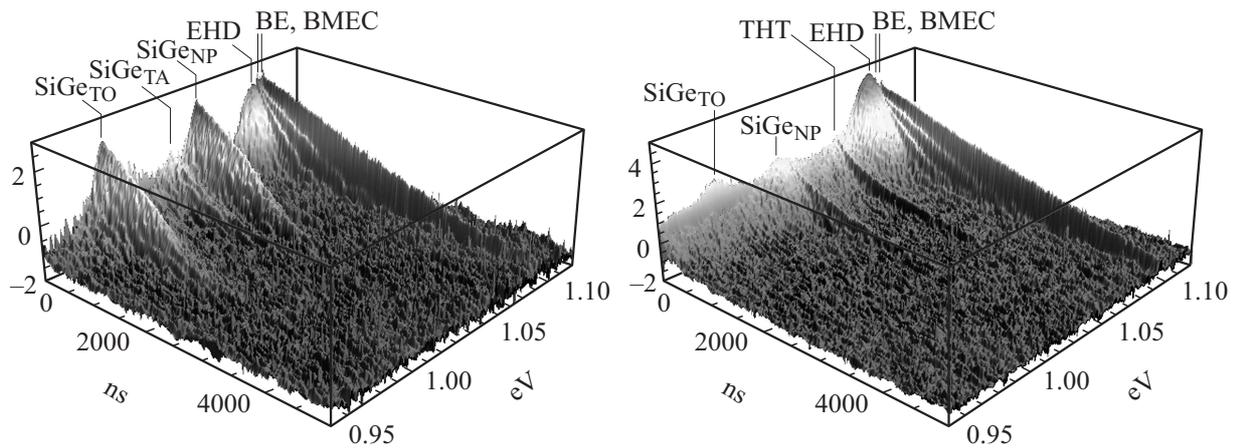


Рис. 5. Разрешенные по времени спектры фотолюминесценции для образцов 1376 (слева) и 1378 (справа). Температура 5 К, возбуждение УФ импульсами длительностью 5 ns.

5. Люминесцентные свойства

Типичный вид разрешенных по времени спектров низкотемпературной фотолюминесценции, на примере двух различных структур, показан на рис. 5. ФЛ объемного кремния при температуре 5 К определяется рекомбинацией электронно-дырочной жидкости (EHD) и излучением связанных на боре экситонов [31,32]. Последнее помимо основной линии (BE) и двухдырочного перехода (ТНТ) содержит вклад связанных на примеси многоэкситонных комплексов (ВМЕС). Так как глубина поглощения используемого ультрафиолетового излучения составляет несколько десятков нанометров, люминесценция кремния на рис. 5 соответствует верхней части подложки и буферного слоя. Их возбуждение осуществляется, в основном, за счет диффузии экситонов и неравновесных носителей из слоя SiGe. Отметим, что в спектрах ФЛ образцов 1379 и 1380 регистрировалась медленно затухающая полоса (характерное время $\sim 3 \mu\text{s}$) с максимумом в районе 1.1 eV. Данная полоса связана, предположительно, с излучением глубоких центров в кремнии и не имеет прямой связи со свойствами слоев SiGe.

В длинноволновой части спектров ФЛ, приведенных на рис. 5, регистрируется излучение слоя SiGe, представленное тремя линиями — бесфононный переход (SiGe_{NP}) и его фонные повторения SiGe_{TO} , SiGe_{TA} с участием, соответственно, поперечных оптических и акустических фононов. В момент прихода возбуждающего импульса излучение слоя SiGe определяется рекомбинацией носителей в электронно-дырочной плазме (ЭДП). Далее по мере охлаждения носителей и уменьшения их концентрации излучение ЭДП должно сменяться экситонной люминесценцией.

Для всех образцов вклад слоя SiGe удается выделить на коротких временах отстройки от возбуждающего импульса, см. рис. 6. Для большинства структур излучение слоя SiGe быстро затухает на временах ~ 10 ns. Данная

особенность непокрытых слоев связана с эффективной поверхностной рекомбинацией и, для структур, выращенных при низких температурах, с наличием дефектов.

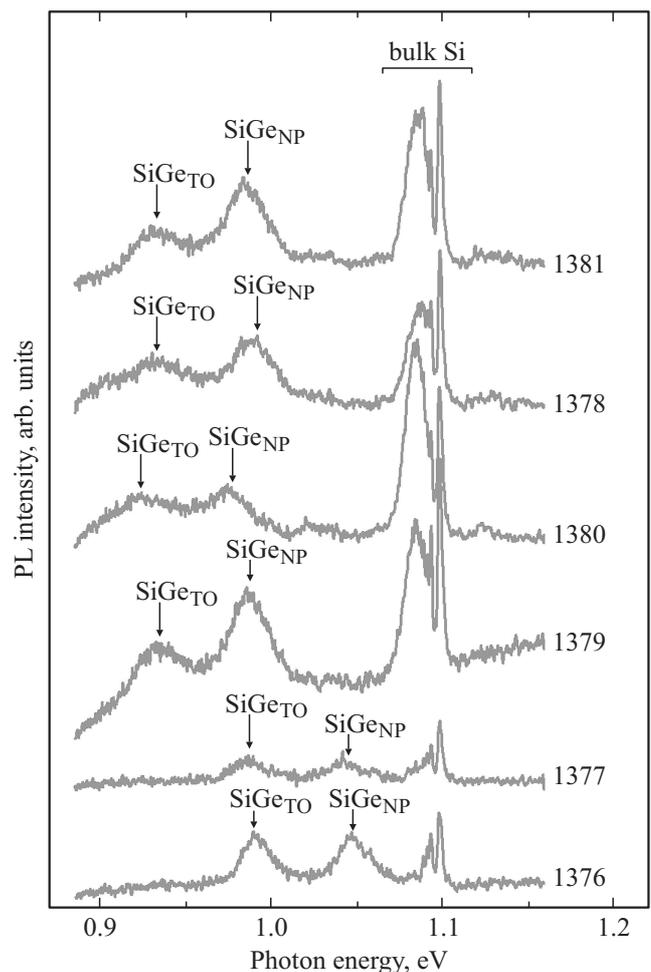


Рис. 6. Спектры ФЛ исследуемых структур через ~ 5 ns после прихода возбуждающего УФ-импульса. Температура 5 К.

Таблица 2. Времена затухания и интенсивности линий низкотемпературной фотолюминесценции, связанной с электронно-дырочной жидкостью и экситонно-примесными комплексами в кремнии для различных образцов

№ образца	Время затухания EHD, ns	Интенсивность EHD, rel.units	Время затухания BE, ns	Интенсивность BE, rel.units
1376	126.7 ± 1.1	9.6 ± 0.2	1057 ± 11	11.8 ± 0.2
1377	134.72 ± 1.0	9.8 ± 0.1	989 ± 13	9.4 ± 0.2
1378	147.05 ± 0.2	80.3 ± 0.2	1007 ± 3	45.5 ± 0.2
1379	139.23 ± 0.4	32.9 ± 0.2	1003 ± 6	20 ± 0.2
1380	139.23 ± 0.4	32.9 ± 0.2	997 ± 6	17.8 ± 0.2
1381	140.94 ± 0.3	52.5 ± 0.2	1029 ± 7	19.3 ± 0.2

Из рис. 6 видно, что линии SiGe_{NP} и SiGe_{TO} смещаются незначительно (в пределах 4 meV) в образцах, выращенных при различных температурах роста и имеющих разную толщину слоя SiGe. Спектральное положение линий остается чувствительным лишь к технологической концентрации германия. По-видимому, это связано с тем, что, независимо от толщины пленки, основной вклад в ФЛ дает область слоя SiGe, расположенная вблизи интерфейса с кремнием. Данная область слабо подвержена влиянию неоднородностей и эффективному потенциалу, связанному с поверхностью.

Для структуры 1376, на поверхности которой наблюдается плотный массив кольцевых образований, регистрируется длинновременная экситонная люминесценция, см. рис. 5. Такая люминесценция не может быть связана с верхней частью слоя SiGe, в которой времена жизни экситонов малы за счет поверхностной рекомбинации. По-видимому, появление медленно затухающей люминесценции вызвано связыванием экситонов на интерфейсе SiGe/Si и последующей локализацией в латеральном направлении за счет деформационных/электрических полей от кольцевых структур. Отметим, что полученные времена затухания (~ 500 ns) указывают на очень низкую концентрацию „объемных“ центров безызлучательной рекомбинации в областях, из которых происходит излучение. Таким образом, метастабильный слой SiGe, выращенный при температуре 700°C, содержит локальные области, свободные от дефектов.

Другой нестандартной особенностью исследованных образцов оказалось изменение времени затухания различных линий излучения в кремнии. Данную особенность иллюстрируют времена спада сигнала ФЛ для линий BE и EHD, систематизированные в табл. 2. В той же таблице приведены относительные интенсивности данных линий, измеренные при одинаковых условиях возбуждения. Характерное время спада сигнала люминесценции заметно отличается для разных образцов и зачастую плохо согласуется с литературными данными для объемного кремния. Согласно литературным данным [33], время жизни электронно-дырочной жидкости (EHD) — 140–150 ns, а время жизни экситона, связанного на боре (BE), — 1000 ns.

Сопоставление экспериментальных данных, полученных различными методами, позволяет утверждать, что основная причина изменений люминесцентных свойств подложки связана с латеральной неоднородностью слоев SiGe, выращенных при температурах 500–700°C. Как отмечалось выше, эта неоднородность должна сопровождаться появлением локальных деформационных полей, проникающих в подложку на глубину, сопоставимую с размером кольцевых образований. Кроме того, нарушение морфологии поверхности может влиять на изгиб зон вблизи верхней части структуры, модифицируя приповерхностное электрическое поле. Описанные изменения электрического и/или деформационного полей неизбежно скажутся на свойствах экситонных состояний и электронно-дырочной жидкости. Наиболее ярко данный эффект проявляется для образца 1376, в котором кольцевые образования формируют плотный массив на поверхности слоя SiGe. Также можно предположить, что дополнительную роль играет большая толщина слоя SiGe в этом образце, создающая условия для усиления напряжений в подложке.

Качественно иная ситуация наблюдается для образцов, выращенных при низких температурах, на поверхности которых кольцевые образования либо отсутствуют, либо их плотность мала. Так, например, для более напряженной структуры 1378 времена затухания линий BE и EHD близки к литературным, а квантовый выход люминесценции, связанной с объемным кремнием, заметно возрастает. „Нормализация“ времен спада указывает на отсутствие напряжений в подложке и буферных слоях кремния, что коррелирует с очень низкой плотностью кольцевых образований на поверхности данной структуры, см. рис. 1. В рамках предложенной модели радикальное уменьшение плотности кольцевых образований при уменьшении температуры роста до 350°C связано, прежде всего, с подавлением диффузионных процессов. В результате такого подавления для развития неустойчивости необходимо существенно большее возмущение поверхности. В свою очередь увеличение квантового выхода люминесценции из кремния указывает на уменьшение в нем числа центров безызлучательной рекомбинации. Это можно объяснить

ослаблением диффузии собственных точечных дефектов в подложку при понижении температуры роста.

6. Заключение

Таким образом, исследованы морфология поверхности, кристаллическая структура и электронный спектр метастабильных слоев SiGe/Si(001), выращенных с помощью молекулярно-пучковой эпитаксии. Показано, что для таких слоев наблюдается частичная потеря плоского фронта кристаллизации, вызванная развитием диффузионной неустойчивости. Механизм возникновения неустойчивости связан с взаимным влиянием диффузии адатомов по поверхности, потенциала смачивания и распределения упругих напряжений в растущем эпитаксиальном слое. В результате малое (точечное) возмущение ростовой поверхности приводит к развитию на ней кольцевых образований, размер и форма которых определяются свойствами материалов.

Диффузионный механизм формирования кольцевых образований подразумевает частичную потерю плоского фронта кристаллизации и неоднородное распределение германия в плоскости слоя, что качественно согласуется с результатами рентгеноструктурных исследований. Искажение плоского фронта кристаллизации оказывается несущественным или отсутствует вовсе при уменьшении температуры до 350°C. Данное поведение системы объясняется подавлением диффузионных и, возможно, сегрегационных эффектов.

Обнаруженная неоднородность метастабильных SiGe слоев должна приводить к появлению локальных деформационных и/или электрических полей, проникающих в подложку на величину, сопоставимую с характерным размером кольцевых образований. Подобные локальные возмущения, ввиду их малости, сложно выявить прямыми измерениями. Тем не менее, их наличие в приповерхностных слоях кремния подтверждается изменениями времен затухания линий излучения электронно-дырочной жидкости и экситонно-примесных комплексов при возбуждении гетероструктуры УФ импульсами. Данную особенность кинетики фотолюминесценции кремния можно, по-видимому, рассматривать как метод выявления неоднородностей SiGe слоя. Излучение самого слоя SiGe характеризуется сравнительно низкой интенсивностью и его спектр существенно зависит лишь от технологической концентрации германия. Последнее связано, по-видимому, с тем, что основной вклад в ФЛ дают области слоев SiGe, расположенные не у поверхности, а вблизи интерфейса с кремнием. На свойствах данных областей неоднородное распределение германия и поверхностные эффекты сказываются слабо.

В одном из образцов, выращенном при температуре 700°C и содержащим плотный массив кольцевых образований, обнаружена медленно затухающая люминесценция, вызванная, предположительно, экситонами,

локализованными на интерфейсе SiGe-Si. Данное наблюдение указывает на то, что в таких слоях присутствуют области, свободные от дефектов.

Неустойчивость, описанная в данной работе, важна для расширения арсенала методов управления фронтом кристаллизации и создания новых низкоразмерных систем на основе слоев SiGe/Si. Последние представляют интерес, в частности, для исследования двухкомпонентной Ферми-жидкости [34] и, возможно, реализации двухкомпонентной жидкости Латтинджера.

Список литературы

- [1] L. Yang, J.R. Watling, R.C.W. Wilkins, M. Borici, J.R. Barker, A. Asenov, S. Roy. *Semicond. Sci. Technol.* **19**, 1174 (2004).
- [2] G. Sun, Y. Sun, T. Nishida, S.E. Thompson. *J. Appl. Phys.* **102**, 084 501 (2007).
- [3] S.F. Feste, T. Schäpers, D. Buca, Q.T. Zhao, J. Knoch, M. Bouhassoune, A. Schindlmayr, S. Mantl. *Appl. Phys. Lett.* **95**, 182 101 (2009).
- [4] F. Lanzerath, D. Buca, H. Trinkaus, M. Goryll, S. Mantl, J. Knoch, U. Breuer, W. Skorupa, B. Ghyselen. *J. Appl. Phys.* **104**, 044 908 (2008).
- [5] C. Ahn, N. Bennett, S.T. Dunham, N.E.B. Cowern. *Phys. Rev. B* **79**, 073 201 (2009).
- [6] W. Heiermann, D. Buca, H. Trinkaus, B. Hollaender, U. Breuer, N. Kernevez, B. Ghyselen, S. Mantl. *ECS Transactions* **19**, 95 (2009).
- [7] M.L. Lee, E.A. Fitzgerald, M.T. Bulsara, M.T. Currie, A. Lochtefeld. *J. Appl. Phys.* **97**, 011 101 (2005).
- [8] E. Kasper, A. Schuh, G. Bauer, B. Hollander, H. Kibbel. *J. Cryst. Growth* **157**, 68 (1995).
- [9] R. Hull. *EMIS Data Reviews Series* **24**, 21 (2000).
- [10] M.L. Green, B.E. Weir, D. Brasen, Y.F. Hsieh, G. Higashi, A. Feyngenson, L.C. Feldman, R.L. Headrick. *J. Appl. Phys.* **69**, 745 (1991).
- [11] R. People, J.C. Bean. *Appl. Phys. Lett.* **47**, 322 (1985); **48**, 229 (1986).
- [12] В.С. Багаев, В.С. Кривобок, С.Н. Николаев, Е.Е. Онищенко, М.Л. Скориков, А.В. Новиков, Д.Н. Лобанов. *Письма в ЖЭТФ* **94**, 63 (2011).
- [13] В.С. Багаев, В.С. Кривобок, С.Н. Николаев, Е.Е. Онищенко, А.А. Пручкина, Д.Ф. Аминев, М.Л. Скориков, Д.Н. Лобанов, А.В. Новиков. *ЖЭТФ* **144**, 1045 (2013).
- [14] T. Walther, A.G. Cullis, D.J. Norris, M. Hopkinson. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2381 (2001).
- [15] Y. Tu, J. Tersoff. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 216 101 (2004).
- [16] A.V. Osipov, S.A. Kukushkin, F. Scmitt, P. Hess. *Phys. Rev. B* **64**, 205 421 (2001).
- [17] V.B. Dubrovskii, G.E. Cirlin, V.M. Ustinov. *Phys. Rev. B* **68**, 075 409 (2003).
- [18] T. Walther, A.G. Cullis, D.J. Norris, M. Hopkinson. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2381 (2001).
- [19] Y. Tu, J. Tersoff. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 216 101 (2004).
- [20] A.V. Osipov, S.A. Kukushkin, F. Scmitt, P. Hess. *Phys. Rev. B* **64**, 205 421 (2001).
- [21] V.B. Dubrovskii, G.E. Cirlin, V.M. Ustinov. *Phys. Rev. B* **68**, 075 409 (2003).
- [22] G.D. Mahan. *Phys. Rev. B* **153**, 882 (1967).
- [23] Yaoyu Pang, Rui Huang. *Phys. Rev. B* **74**, 075 413 (2006).

- [24] W. Tekalign, B. Spencer. *J. Appl. Phys.* **96**, 5505 (2004).
- [25] B. Spencer, D. Meiron. *Acta Metall. Mater.* **42**, 3629 (1994).
- [26] В.П. Марговицкий, В.С. Кривобок. *ЖЭТФ* **140**, 330 (2011).
- [27] F. Schäffler. *Properties of Advanced Semiconductor Materials: GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe* / Eds M.E. Levinshtein, S.L. Rumyantsev, M.S. Shur. John Wiley & Sons (2001). 216 p.
- [28] J. Wortman, A. Evans. *J. Appl. Phys.* **36**, 153 (1965).
- [29] A. Rastelli, H. von Känel, B.J. Spencer, J. Tersoff. *Phys. Rev. B* **68**, 115 301 (2003).
- [30] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Теория упругости*. (Наука, М., 1987). С. 39.
- [31] В.С. Багаев, В.С. Кривобок, В.П. Марговицкий, А.В. Новиков. *ЖЭТФ* **136**, 1154 (2009).
- [32] В.С. Багаев, В.В. Зайцев, В.С. Кривобок, Д.Н. Лобанов, С.Н. Николаев, А.В. Новиков, Е.Е. Онищенко. *ЖЭТФ* **134**, 988 (2008).
- [33] С.В. Guillaume, J.M. Debever, F. Salvan. *Phys. Rev.* **177**, 567 (1969).
- [34] V.S. Bagaev, V.S. Krivobok, S.N. Nikolaev, A.V. Novikov, E.E. Onishchenko, M.L. Skorikov. *Phys. Rev. B* **82**, 115 313 (2010).