

Свойства самоорганизованных SiGe-наноструктур, полученных методом ионной имплантации

© Ю.Н. Пархоменко*, А.И. Белогорохов[†], Н.Н. Герасименко⁺, А.В. Иржак*, М.Г. Лисаченко[≠]

* Московский институт стали и сплавов (Технологический университет),

119936 Москва, Россия

[†] ФГУП „Гиредмет“,

119017 Москва, Россия

⁺ Московский государственный институт электронной техники (Технический университет),

103498 Москва, Россия

[≠] Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова (физический факультет),

119892 Москва, Россия

(Получена 29 октября 2003 г. Принята к печати 4 ноября 2003 г.)

С использованием методов оже-электронной спектроскопии, атомно-силовой и растровой электронной микроскопии исследованы свойства самоорганизованных квантовых точек SiGe, впервые сформированных с использованием метода ионно-лучевого синтеза. Обнаружено, что в имплантированных ионами германия слоях Si после их отжига проявляется пространственное коррелированное распределение атомов германия, в результате чего образуются области нанометровых размеров, обогащенные германием, в которых его концентрация на 10–12% выше, чем в окружающей матрице твердого раствора SiGe. Оптические свойства слоев с квантовыми точками SiGe исследовались с помощью методов комбинационного рассеяния света и фотолюминесценции. Обнаружен интенсивный пик фотолюминесценции в диапазоне длин волн 1.54–1.58 мкм при комнатной температуре.

1. Введение

В последнее время пристальное внимание уделяется проблеме поиска новых возможностей для генерации, модуляции и детектирования электромагнитного излучения инфракрасного и микроволнового диапазонов длин волн. Наноразмерные полупроводниковые структуры могут применяться для конструирования оптоэлектронных приборов нового поколения, работающих в этих спектральных областях и обладающих свойствами, которые принципиально невозможно получить при использовании традиционных материалов. В связи с этим требуется разработать новые типы полупроводниковых наноструктур и провести исследования, направленные на выявление закономерностей протекания межчастичных взаимодействий и коллективных явлений в системах пониженной размерности. Среди них наноструктуры SiGe занимают особое место вследствие их потенциального приборного применения и интеграции на базе кремниевой технологии.

Прогресс в создании структур с квантовыми точками (КТ) достигнут благодаря самоорганизованному росту последних в режиме Странского–Крастанова при использовании метода молекулярно-лучевой эпитаксии. Вместе с тем существует ряд других методов синтеза упорядоченных наноструктур, обладающих своими достоинствами. Одним из них является метод ионного синтеза.

В работе представлены результаты исследований свойств самоорганизованных квантовых точек $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$

($x = 0.3$), впервые сформированных с помощью метода ионного синтеза.

2. Образцы и методика эксперимента

В пластины кристаллического кремния p -Si ориентации (111) имплантировали ионы германия $^{74}\text{Ge}^+$ на сильноточном ускорителе SCI-218 „BALZERS“. Дозы имплантации составили $D = 5 \cdot 10^{16}$, $1 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$, энергия ионов $E = 50 \text{ кэВ}$. Для предотвращения эффектов каналирования падающий на кремниевую подложку ионный поток направляли с отклонением 7° от нормального падения. После имплантации образцы подвергались фотонному импульсному отжигу при температуре 900°C в атмосфере азота в течение 3 с. В результате подобного воздействия в тонком слое твердого раствора SiGe удалось сформировать области с повышенной концентрацией атомов Ge, протяженность которых составляла несколько десятков нм и высота — до 10 нм (наноразмерные структуры).

На электронном оже-спектрометре (ЭОС) PHI-680 фирмы Physical Electronics (США) проводили исследования локального элементного состава структур, а также оценивали геометрические размеры и пространственное расположение квантовых точек в приповерхностной области. Ускоряющее напряжение первичных электронов составляло 10 кэВ, ток 10 нА, диаметр первичного пучка $\sim 15 \text{ нм}$, а глубина анализа не более 50 Å. Топографию поверхности изучали на атомно-силовом микроскопе (АСМ) Solver P47 фирмы NT-MDT. Для исследования формы наноразмерных структур и элементного состава поверхность образцов обрабатывали раствором КОН

[†] E-mail: belog@mig.phys.msu.ru

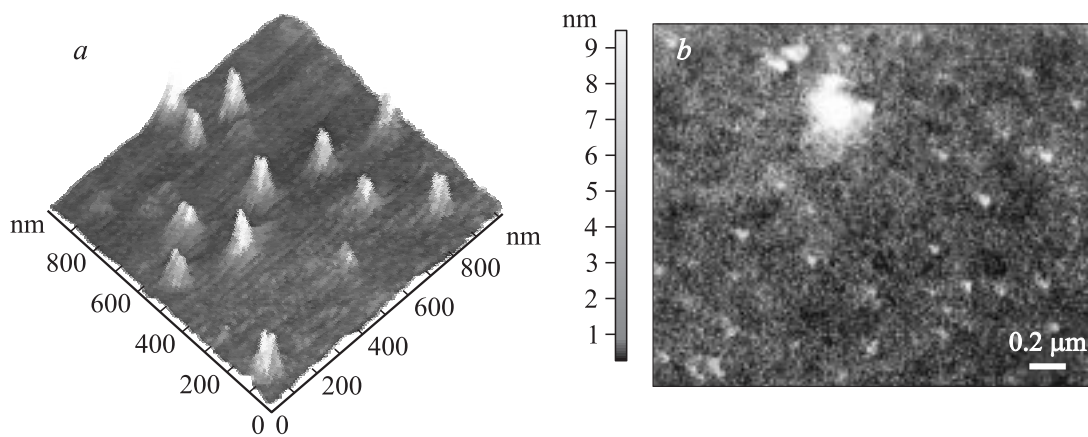


Рис. 1. Изображения областей, обогащенных германием, в образце SiGe, полученные методами атомно-силовой микроскопии (a) и растровой электронной микроскопии (b). Доза имплантации $D = 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$.

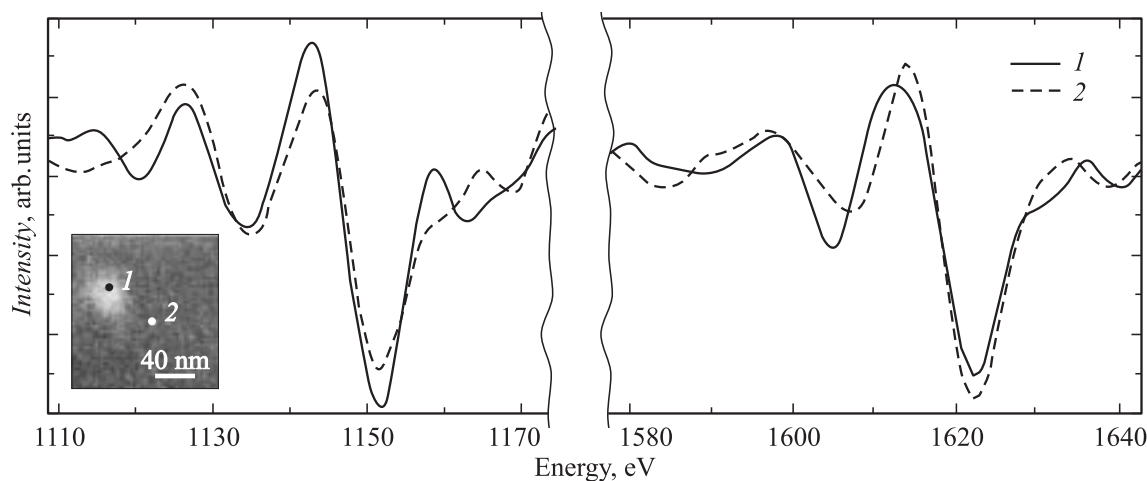


Рис. 2. Оже-спектры образца SiGe в области, обогащенной Ge (1), и в окружающей ее матрице SiGe (2). Доза имплантации $D = 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$.

(33%) в течение 25 с при 100°C , что позволило выявить области с максимальным содержанием германия.

Спектры комбинационного рассеяния света (КРС) были получены в геометрии обратного рассеяния (когда плоскости поляризации падающего и рассеянного света перпендикулярны) с использованием линии возбуждения Ag^+ -лазера на длине волны 457.9 нм. Во избежание необратимых тепловых воздействий на образец или его деградации мощность накачки Ag^+ -лазера составляла 30 мВт. В состав установки входил двойной монохроматор Jobin-Yvon T64000 и охлаждаемый до 78 К GaAs-фотоумножитель.

Возбуждение фотолуминесценции (ФЛ) осуществлялось излучением He-Ne-лазера (длина волны 632.8 нм, мощность 20 мВт). Интенсивность возбуждения варьировалась от 10 до 20 мВт/см². Спектры ФЛ регистрировались с использованием InGaAs-фотодиода (рабочий диапазон длин волн 700–1800 нм) и схемы синхронного детектирования. Для этого лазерное излучение моду-

лировалось прерывателем с частотой 400 Гц. Образцы помещались в оптический криостат под углом 45° к падающему световому пучку, диаметр которого составлял 0.3 мм. Регистрация спектров ФЛ проводилась в диапазоне температур $T = 11\text{--}300 \text{ K}$.

3. Результаты измерений и их обсуждение

Химическое травление поверхности исследуемых образцов позволило выявить упорядоченную по размерам структуру, рельеф которой обусловлен различной скоростью травления кремния и германия (германий в указанных выше условиях травится медленнее). Обнаруженная с привлечением методов АСМ структура состоит из областей, латеральные размеры которых составляют $(50 \pm 10) \text{ nm}$, а высота — от 5 до 10 нм (рис. 1, a). Проведенный анализ изображения поверхности структур

во вторичных электронах подтвердил наличие областей различного контраста, связанного с неоднородностью распределения германия (рис. 1, *b*), имеющих размеры 30–50 нм.

С помощью метода ЭОС с высоким пространственным разрешением был определен элементный состав подобных областей (рис. 2). Оказалось, что концентрация атомов Ge в них на 10–12% выше, чем в окружающем твердом растворе $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ (вне такой области) и составляет $x \approx 0.3$.

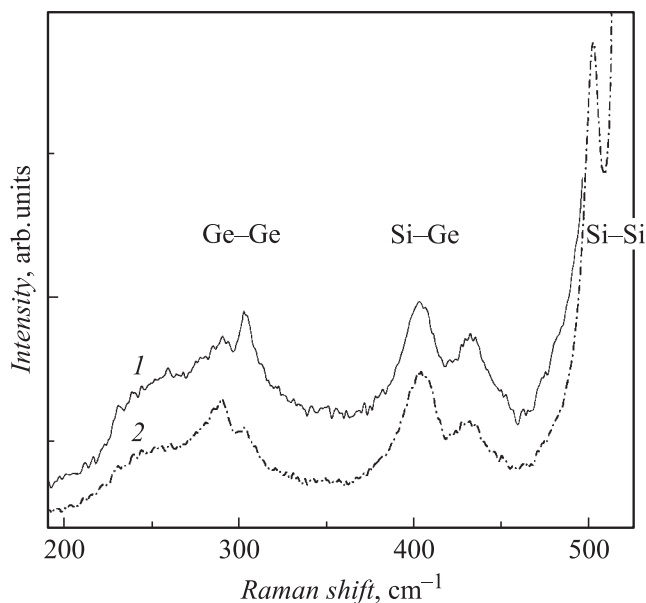


Рис. 3. Спектры комбинационного рассеяния света образца SiGe. Доза имплантации $D, \text{см}^{-2}$: 1 — $5 \cdot 10^{16}$, 2 — $1 \cdot 10^{17}$.

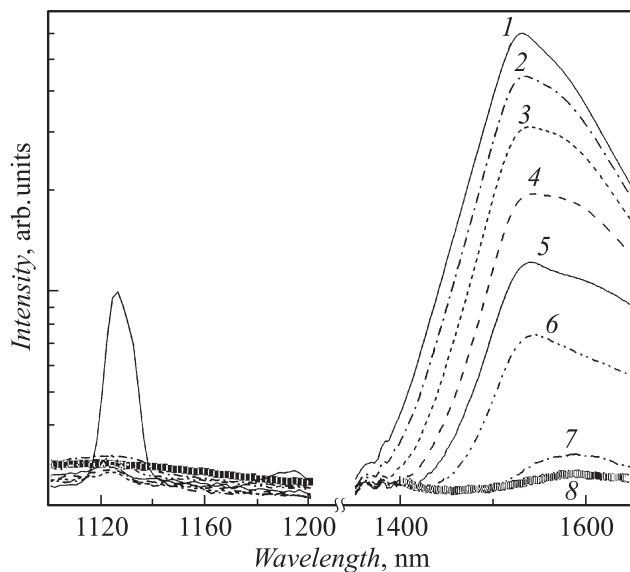


Рис. 4. Спектры фотолуминесценции образца SiGe. Доза имплантации $D = 5 \cdot 10^{16} \text{см}^{-2}$. Температура измерения $T, \text{К}$: 1 — 11, 2 — 30, 3 — 45, 4 — 60, 5 — 75, 6 — 100, 7 — 150, 8 — 300.

Спектры КРС образцов представлены на рис. 3. После отжига исследуемых структур в их спектрах исчезли пики, располагающиеся на частотах 270см^{-1} (Ge–Ge, TO), 370см^{-1} (Si–Ge, TO) и 480см^{-1} (Si–Si, LO) и соответствующие рассеянию квантов света на поперечных (TO) и продольных (LO) оптических фононах в аморфном материале SiGe [1], что свидетельствует об отсутствии аморфной фазы, которая имела место в неотожженных образцах. В спектрах образцов не наблюдаются также пики на частотах 316см^{-1} (оптический фонон в напряженном германии [2]) и $500\text{--}515 \text{см}^{-1}$ (оптический фонон в напряженном кремнии [3]). Это позволяет заключить, что слой твердого раствора SiGe не напряжен и, следовательно, появление областей, обогащенных германием, обусловлено релаксацией упругих напряжений.

Присутствие в спектрах КРС дополнительных пиков 502.7 и 250см^{-1} (колебания связей Si–Si и Ge–Ge в SiGe соответственно) наряду с пиками, присущими твердым растворам $\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.2}$ ($518.6, 403.3 \text{см}^{-1}$ (колебания Si–Ge) и 285.7см^{-1} [4]), свидетельствует о наличии областей $\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$. В последнем случае ($\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$) значения указанных частот должны быть равными $517.9, 404.8$ и 287.3см^{-1} [4]. Смещение пиков в низкочастотную область спектра для $x \approx 0.3$ вызвано пространственным ограничением основных мод оптических фононов, что характерно для колебаний в квантовых точках SiGe [3,5].

В спектрах ФЛ, полученных при различных температурах (рис. 4), присутствуют два основных пика — на длинах волн $\lambda = 1124 \text{нм}$ (1.1эВ , $T = 11\text{--}30 \text{К}$) и $\lambda = 1530\text{--}1540 \text{нм}$ ($0.794\text{--}0.805 \text{эВ}$, $T = 11\text{--}300 \text{К}$), соответствующих в первом случае бесфононной линии излучения кремния (в спектре также наблюдается линия фононного повторения на 1.04эВ при $T = 11 \text{К}$, отстоящая от основной линии на $\sim 60 \text{мэВ}$, что соответствует энергии поперечного оптического фонона в Si) и во втором — излучению квантовых точек $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$. Свидетельством того, что пик ФЛ в области $\sim 1540 \text{нм}$ обусловлен излучением упорядоченных квантовых точек $\text{Si}_{0.7}\text{Ge}_{0.3}$, служит тот факт, что для твердого раствора $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ с $x = 0.2\text{--}0.3$ он должен был бы располагаться на длинах волн $\lambda = 1252\text{--}1310 \text{нм}$. Кроме того, интенсивность излучения в области 0.8эВ значительно выше, чем в области 1.1эВ , и регистрируется в образце с дозой имплантации $D = 5 \cdot 10^{16} \text{см}^{-2}$ даже при температурах выше комнатной, а полуширина данного пика ФЛ составляет $\sim 61 \text{мэВ}$. Релаксация упругих напряжений в слое SiGe в процессе его отжига привела, по всей вероятности, к упорядочению областей с повышенной концентрацией атомов германия — к формированию квантовых точек, что и обусловило подобную интенсивность сигнала ФЛ. Еще одной причиной появления излучения с энергией $\sim 800 \text{мэВ}$ может быть излучение дислокаций кремния. В этом случае в спектре ФЛ должна иметь место пара характерных линий 810 и 870мэВ , ширина которых составляет $\sim 10 \text{мэВ}$, а интенсивность

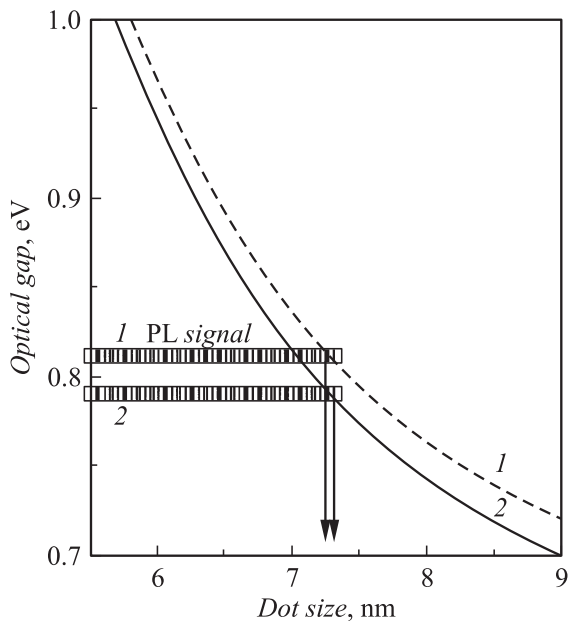


Рис. 5. Рассчитанные значения энергии межзонных переходов в КТ SiGe в зависимости от размера КТ для температур $T = 11$ (1) и 77.3 К (2). Горизонтальные линии показывают энергии переходов, определенные по спектрам ФЛ (PL).

уменьшается в несколько раз при повышении температуры образца от 11 до 77 К [2]. Анализ изменения с температурой спектров ФЛ (рис. 4) показывает, что в нашем случае вклад от излучения дислокаций Si незначителен.

В рамках модели, основанной на приближении эффективной массы [6], можно оценить средний размер квантовых точек. На рис. 5 представлены рассчитанные зависимости энергии межзонных переходов в КТ SiGe от их высоты для $T = 11$ и 77.3 К. Горизонтальными линиями отмечены энергии переходов, определенные по спектрам ФЛ (с учетом погрешности эксперимента), для указанных температур. Сопоставление экспериментальных и расчетных данных позволило оценить средний размер КТ, который оказался равным $\sim (7.2-7.3)$ нм, что с хорошей степенью точности совпадает с результатами АСМ.

Возникновение упорядоченных областей с повышенным содержанием германия можно объяснить следующим образом. Несоответствие периодов кристаллических решеток кремния и германия, составляющее $\sim 4\%$, является причиной возникновения в структуре SiGe значительных упругих напряжений, релаксация которых при определенных условиях (изменение толщины слоя твердого слоя Si-Ge, условия получения и др.) происходит за счет генерации дислокаций. Поля упругих напряжений, возникающие вокруг дислокаций несоответствия, и их взаимодействие приводят к перераспределению и пространственному упорядочению дислокаций. Пространственно упорядоченные дислокации являются центрами геттерирования германия, что в свою очередь

приводит к периодическому распределению областей с его повышенным содержанием — квантовых точек. По данным [2], концентрация дислокаций в полностью релаксированной эпитаксиальной пленке Si_{0.7}Ge_{0.3} толщиной 100 \AA равна $10^{10}-10^{11} \text{ см}^{-2}$. Концентрация КТ в полученной нами структуре ($D = 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$) составляет $\sim 10^{10} \text{ см}^{-2}$, т.е. подтверждается предположение о том, что дислокации являются центрами захвата германия.

4. Заключение

В заключение отметим, что методом ионно-лучевого синтеза впервые сформирован массив самоорганизованных упорядоченных квантовых точек SiGe. Приведенные результаты экспериментов по обнаружению кластеризации внедренных атомов германия в кремний с помощью метода ионного синтеза открывают новые возможности формирования наноразмерных структур в системе германий-кремний.

Появление сигнала интенсивной ФЛ в сформированных КТ SiGe при комнатной температуре в диапазоне длин волн $1.54-1.58 \text{ мкм}$ позволяет надеяться на практическое использование подобных структур в оптоэлектронных приборах и волоконно-оптических системах для передачи информации.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 03-02-16938) и в рамках программы „Интеграция“ (И-0964).

Список литературы

- [1] Sunil Kumar, H.J. Trodahi. *J. Appl. Phys.*, **70**, 3088 (1991).
- [2] Т.М. Бурбаев, Т.Н. Заварицкая, В.А. Курбатов, Н.Н. Мельник, В.А. Цветков, К.С. Журавлев, В.А. Марков, А.И. Никифоров. *ФТП*, **35**, 979 (2001).
- [3] K. Sawano, Y. Hirose, S. Koh, K. Nakagawa, T. Hattori, Y. Shiraki. *J. Cryst. Growth*, **251**, 685 (2003).
- [4] J.C. Tsang, P.M. Mooney, F. Dacol, J.O. Chu. *J. Appl. Phys.*, **75**, 8098 (1994).
- [5] Н.Н. Герасименко, В.Ю. Троицкий, М.Н. Павлюченко, А.А. Валяев, К.К. Джаманбалин. *Перспективные материалы*, № 5, 26 (2002).
- [6] L.E. Brus. *J. Chem. Phys.*, **80**, 4403 (1984).

Редактор Л.В. Шаронова

Properties of self-organized SiGe nanostructures formed by ion implantation

Yu.N. Parkhomenko^{*}, *A.I. Belogorokhov*[°],
N.N. Gerasimenko⁺, *A.V. Irzhak*^{*}, *M.G. Lisachenko*[≠]

^{*} Moscow Institute of Steel and Alloys,

119936 Moscow, Russia

[°] Institute for Rare Metals,

119017 Moscow, Russia

⁺ Moscow Institute of Electronic Engineering,

103498 Moscow, Russia

[≠] Moscow State University, Physics Department,

119899 Moscow, Russia

Abstract Properties of self-organized SiGe quantum dots that have been for the first time formed by the method of ion implantation, and studied using methods of Auger-electronic spectroscopy, atomic-force and electron microscopy. The spatial correlated distribution of germanium atoms has been found in the implanted layers after their annealing, outcome of that becoming the formation of nanometer areas enriched with germanium, in which Ge concentrations by 10–12 percent higher than in an ambient matrix of SiGe solid solution. The optical properties of SiGe layers with SiGe quantum dots have been investigated using methods of the Raman spectroscopy and photoluminescence (PL). The intensive PL signal in the wavelength region of 1.54–1.58 microns is detected at room temperature.