Эффекты упорядочения наноструктур в системе Si/Ge_{0.3}Si_{0.7}/Ge при молекулярно-пучковой эпитаксии

© Г.Э. Цырлин^{*,+,≠¶}, В.А. Егоров^{*,+,≠}, Л.В. Соколов^{≠,-}, Р. Werner[≠]

* Институт аналитического приборостроения Российской академии наук, 198063 Санкт-Петербург, Россия
⁺ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия
≠ Max-Planck Institut für Mikrostrukturphysik, D-06120 Halle / Saale, Germany
⁻ Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия
(Получена 24 апреля 2002 г. Принята к печати 24 апреля 2002 г.)

Исследованы структурные свойства нанообъектов в гетероэпитаксиальной системе Si/Ge_{0.3}Si_{0.7}/Ge методом атомно-силовой микроскопии. Установлено, что образование нанометровых островков происходит при меньших толщинах осажденного Ge, чем в случае Si/Ge гетероэпитаксии. Обнаружены эффекты пространственного упорядочения наноструктур: образование *hut*-кластерами групп вокруг кратеров на начальной стадии образования трехмерных объектов и выстраивание *dome*-кластеров в ряды при повышении количества осажденного Ge.

1. Введение

Исследование эффектов самоорганизации на поверхности полупроводников различного состава привлекает в настоящее время значительный интерес. К одному из основных направлений в этой области следует отнести процессы спонтанного образования наноразмерных кластеров в напряженных гетероэпитаксиальных системах, которые при последующем заращивании материалом подложки могут образовывать так называемые квантовые точки (КТ), в которых возможно наблюдение эффектов трехмерного квантования и, как следствие, атомно-образного энергетического спектра [1,2]. При определенных ростовых параметрах возможно наблюдение пространственного упорядочения подобных наноструктур. Такие упорядоченные структуры необходимы для создания таких приборов, как лазеры с распределенной обратной связью, а также устройств памяти. Так, для системы InGaAs/GaAs наблюдались спонтанное упорядочение КТ в ряды при использовании вицинальных поверхностей GaAs(100) [3], пространственное упорядочение и уменьшение дисперсии размеров КТ в трехмерных многослойных структурах [4] и т.д. Подобный же эффект был обнаружен для многослойных структур с германиевыми КТ в кремниевой матрице [5].

Для того чтобы получить упорядоченные структуры, необходимо, в частности, создать пространственнонеоднородное поле напряжений в слое, предваряющем собственно слой, содержащий наноструктуры. Впоследствии квантово-размерным кластерам энергетически выгодно зарождаться в локальных максимумах или минимумах (в зависимости от расстояния до напряженных слоев и выбора конкретного материала). Для создания подобных полей используются профилированные (или литографически подготовленные) подложки [6], создаются сетки дислокаций в нижележащих слоях [7] и т.д. Однако такие методы не всегда позволяют создавать приборы на их базе из-за значительной плотности структурных дефектов в подобных структурах.

В данной работе нами предлагается использовать в качестве подслоя напряженную квантовую яму, состав и толщина которой заведомо меньше критической толщины образования как дислокаций, так и трехмерных островков (например, по механизму Странски-Крастанова). Такая квантовая яма должна, с одной стороны, создавать поля напряжений, а с другой — содержать низкую плотность структурных дефектов. В качестве модельной была выбрана гетероэпитаксиальная система Si/Ge, рассогласование параметров решетки в которой составляет ≈ 4%.

2. Эксперимент

Ростовые эксперименты проводились на установке молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) Riber SIVA 45 (France) на подложках Si(100) р-типа (проводимость 5-20 Ом · см, легирование бором). Использовались подложки диаметром 5 дюймов производства фирмы "OKMETIC" (Sweden). Подложки подготавливались химически по методике, описанной в [8]. Подготовленные подложки высушивались в потоке аргона чистоты 6.0 и немедленно загружались в камеру перезарялки установки МПЭ. Полобная метолика позволяла удалять окисный слой с поверхности Si в ростовой камере при температуре 840°С путем радиационного нагрева. При росте использовалось вращение нагревателя образца, неравномерность температурного поля по поверхности подложки составляла ≈ 5%. Постоянство скоростей напыления обеспечивалось с помощью двух масс-спектрометров с обратной связью, настроенных на 28 (Si) и 74 (Ge) массы. Давление остаточных паров атмосферы во время роста было не хуже $5 \cdot 10^{-10}$ Торр. Состояние поверхности контролировалось in situ с по-

[¶] E-mail: cirlin@beam.ioffe.rssi.ru



Рис. 1. Картины ДБЭО при осаждении на поверхность: a - 4 Å Ge с подслоем GeSi, b - 6 Å Ge с подслоем GeSi, c - 6 Å Ge без подслоя.

мощью дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО).

Структуры состояли из буферного слоя Si толщиной 500 Å, подслоя Ge_{0.3}Si_{0.7} толщиной 50 Å, прикрываемого тонким слоем чистого Si (5 Å), на котором осаждалось 6–12 Å Ge. В процессе осаждения слоя квантовых точек делались двухминутные прерывания после каждого выращенного монослоя (MC) (начиная с четвертого) с остановкой вращения для фиксации ДБЭО картин. Температура подложки составляла для буферной области $T_{sub} = 450^{\circ}$ С и $T_{sub} = 500^{\circ}$ С для остальной части структуры. Скорости роста для кремния составляли 0.5 Å/c для буфера и 0.11 Å/c для активной области, скорость роста для германия была 0.05 Å/c. Характеризация поверхности производилась *ex situ* с помощью атомно-силового микроскопа (ACM) производства Digital Instruments Inc (USA).

3. Результаты и обсуждение

Наблюдения за картинами ДБЭО во время роста подтверждают планарность подслоя и прикрывающего тонкого слоя кремния. Затем, при осаждении приблизи-



Рис. 2. АСМ изображение поверхности структуры с подслоем GeSi после осаждения 6 Å германия.



Рис. 3. АСМ изображение поверхности структуры с подслоем GeSi после осаждения: a - 7 Å Ge и b - 9 Å Ge.

тельно 4 Å германия, картины ДБЭО указывают на образование корругированной поверхности (рис. 1, a), а при достижении толщины Ge 6 Å происходит образование трехмерных островков (рис. 1, b). Следует отметить, что при осаждении даже 6 Å Ge на поверхность Si без подслоя каких-либо существенных отличий от изначальной поверхностной реконструкции (2 × 2) не наблюдалось (рис. 1, c). Полученные результаты позволяют предположить, что использование подслоя Ge0.3Si0.7 создает напряжения в верхней части структуры, вследствие чего переход от двумерного роста к трехмерному происходит раньше. На рис. 2 приведено АСМ изображение поверхности образца, содержащего 6 Å германия на верхнем слое. Из рисунка следует, что, несмотря на докритическую толщину слоя германия, после которой происходит переход от планарного роста к трехмерному росту, на поверхности появляются наноостровки (так называемые hut-кластеры). Следует заметить, что при осаждении на Si без напряженного подслоя толщина *d*_{crit}, измеренная с помощью регистрации динамики трансформации картин ДБЭО на поверхности, составляла 7 Å. Латеральные размеры островков составляют 20-50 нм в длину и ≈ 8 нм в ширину. Отметим малый разброс по ширине. Высота островков также достаточно равномерна и составляет ≈ 2 нм. Интересной особенностью является образование кратеров глубиной до 3 нм, в районе которых (в основном) образуются группы островков, ориентированных во взаимно перпендикулярных направлениях {011}.

Увеличение толщины осажденного германия до 7 Å приводит к увеличению плотности островков (рис. 3, a) с одновременным уменьшением плотности кратеров при дальнейшем увеличении до 9 Å (рис. 3, *b*). Почти вся поверхность заполнена hut-кластерами, плотность их максимальна, кратеры практически исчезают. Для этих случаев размеры и форма островков существенно не меняются по сравнению со случаем, когда осаждалось 6 Å Ge. При этом картины ДБЭО показывают образование более выраженной фасстированной структуры с увеличением количества осажденного Ge, по-видимому, связанное с увеличением плотности наноостровков. При увеличении количества осажденного германия до 12 Å происходит существенное изменение структуры поверхности. Для данного случая характерно образование больших кластеров германия типа dome и super-dome [9] (рис. 4, *a*) с ярко выраженной фасеточной структурой, наблюдаемой на картинах ДБЭО (рис. 4, b). Латеральные размеры кластеров типа super-dome составляют 50-150 нм, их высота ≈ 20 нм. Плотность таких кластеров существенно падает. Из представленных изображений, полученных методом АСМ, видно, что во всех случаях наноостровки германия упорядоченно выстраиваются вдоль определенных направлений на поверхности. В последнем случае кластеры *super-dome* образуют цепочки вдоль направлений [11*n*], где *n* — целое число в пределах 2-4, с сохранением ближнего порядка.

Из рис. 2 видно, что, хотя и встречаются одиночно стоящие островки, подавляющее большинство





Рис. 4. *а* — АСМ изображение поверхности структуры с подслоем GeSi после осаждения 12 Å Ge, *b* — картина ДБЭО при осаждении на поверхность 12 Å Ge с подслоем GeSi.

островков располагается вокруг кратеров, выстраиваясь вдоль определенных кристаллографических направлений с высокой степенью упорядоченности. Возможным механизмом образования таких кратеров является следующее: упругие напряжения, индуцируемые подслоем GeSi, и (или) случайные флуктуации химического состава квантовой ямы могут приводить к локальным нарушениям целостности тонкого прикрывающего слоя Si. Подобные разрывы являются центрами повышенной концентрации адатомов Ge вследствие дальнодействующего потенциала типа "дефект-адатом" [10]. Однако на начальном этапе — до 4 МС — количество осажденного Ge недостаточно для образования трехмерных островков, происходит диффузия атомов Ge из GeSi-квантовой ямы. Тем самым эффективно повышается количество Ge на поверхности. Такой транспорт материала наиболее эффективен для центров упругих напряжений (кратеров),

и Ge-наноостровкам энергетически выгоднее образовываться группами в районе локальных разрывов Si-слоя. Прерывание роста в начальные моменты образования островков дополнительно стимулирует миграцию адатомов германия к локальным центрам упругих напряжений. При увеличении толщины осаждаемого Ge происходит постепенное заполнение наноостровками поверхности, а затем и кратеров. Наблюдаемое ярко выраженное упорядочивание наноостровков в ряды при дальнейшем увеличении количества осажленного Ge не может быть объяснено эффектом "складирования ступеней", характерным, например, для вицинальных поверхностей [11]. Возможным объяснением данного эффекта является образование поверхности с квазипериодическим макрорельефом при упругом взаимодействии напряженной квантовой ямы с ансамблем наноостровков.

Таким образом, нами исследованы некоторые эффекты упорядочения, возникающие в системе Si/Ge_{0.3}Si_{0.7}/Ge при МПЭ росте. Установлено, что образование наноразмерных островков в этой системе происходит раньше, чем при обычной гетероэпитаксии Si/Ge. Для нашего случая характерно упорядочение островков по размерам, а также по групповому пространственному расположению на начальном этапе и наличие дальнего порядка при образовании рядов наноостровков при дальнейшем осаждении Ge.

Данная работа выполнена при частичной поддержке научных программ СПбНЦ и Министерства промышленности и науки РФ "Низкоразмерные квантовые структуры". Г.Э. Цырлин выражает благодарность фонду Гумбольдта.

Список литературы

- H.H. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Щукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП, 32, 385 (1998).
- [2] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. Quantum dot heterostructures (Willey, Chichester, 1998).
- [3] G.E. Cirlin, G.M. Guryanov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipissev, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, M. Grundmann, D. Bimberg. Appl. Phys. Lett., 67, 97 (1995).
- [4] Г.Э. Цырлин, В.Н. Петров, С.А. Масалов, А.О. Голубок. ФТП, 33, 733 (1999).
- [5] J. Tersoff, C. Teichert, M.G. Lagally. Phys. Rev. Lett., 76, 1675 (1996).
- [6] O.G. Schmidt, N.Y. Jin-Phillipp, C. Lange, U. Denker, K. Eberl, R. Schreiner, H. Gräbeldiner, H. Schweizer. Appl. Phys. Lett., 77, 4139 (2000).
- [7] D.D. Chambliss, R.J. Wilson, S. Chiang. Phys. Rev. Lett., 66, 1721 (1991).
- [8] Г.Э. Цырлин, П. Вернер, У. Гёзеле, Б.В. Воловик, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов. Письма ЖТФ, 27 (1) 31 (2001).
- [9] О.П. Пчеляков, Ю.Б. Болховитянов, А.В. Двуреченский, Л.В. Соколов, А.И. Никифоров, А.И. Якимов, Б. Фойхтлендер. ФТП, 34, 1281 (2000).
- [10] A. Madhukar. Surf. Sci., **132** 344 (1983).
- [11] P. Smilauer. Vacuum, **50**, 115 (1998).

Редактор Л.В. Беляков

Ordering effects of nanostructures in a Si/Ge_{0.3}Si_{0.7}/Ge system during molecular beam epitaxy

G.E. Cirlin^{*,+, \neq}, V.A. Egorov^{*,+, \neq}, L.V. Sokolov^{\neq ,-}, P. Werner^{\neq}

* Institute for Analytical Instrumentation, Russian Academy of Sciences, 198063 St. Petersburg, Russia
+ loffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences, 194021 St. Petersburg, Russia
≠ Max-Planck Institut für Mikrostrukturphysik, D-06120 Halle / Saale, Germany
- Institute of Semiconductor Physics of the Siberian Branch, Russian Academy of Sciences, 630090 Novosibirsk, Russia

Abstract Structural properties of the nanoobjects in a $Si/Ge_{0.3}Si_{0.7}/Ge$ heteroepitaxial system have been studied using the atomic-force microscopy method. Formation of nanometer islands occurs at lower Ge thickness in comparison with Si/Ge heteroepitaxy. Effects of nanostructure space ordering are found: (i) formation of groups of hut-clusters around craters at the initial stage of three-dimensional objects appearance and (ii) domeclusters alignment in rows upon increasing Ge content.