

## ПРОЯВ ПРОСТОРОВОГО УПОРЯДКУВАННЯ КВАНТОВИХ ОСТРІВЦІВ У БАГАТОШАРОВИХ НАНОСТРУКТУРАХ SiGe У РЕНТГЕНІВСЬКІЙ ДИФРАКЦІЇ

В.П. КЛАДЬКО, В.Ф. МАЧУЛІН, О.М. ЄФАНОВ, В.О. ЮХИМЧУК,  
О.Й. ГУДИМЕНКО, П.П. КОГУТЮК<sup>1</sup>, А.В. ШАЛІМОВ<sup>2</sup>

УДК 548.731+548.7

© 2005 р.

Інститут фізики напівпровідників ім. В.Лашкарьова НАН України  
(Просп. Науки, 41, Київ 03028; e-mail: kladko@isp.kiev.ua),

<sup>1</sup>Київський національний університет ім. Тараса Шевченка  
(Просп. Академіка Глушкова, 6, Київ 03127),

<sup>2</sup>Інститут фізики ПАН  
(Ал. Льотнікув, 32/46, Варшава 02-609, Польща)

---

З аналізу розподілу інтенсивності дифузно розсіяних рентгенівських променів в оберненому просторі отримано інформацію про перехід від 2D- до 3D-структур у багатошарових зразках SiGe. Показано, що слабоскорельовані квантovі точки, що дають внесок у формування латеральних сателітів, мало впливають на формування когерентної сателітної структури. При цьому істотним залишається їх вплив на розподіл полів деформацій у шарах надгратки. Це проілюстровано застосуванням методу двовимірних карт розподілу інтенсивності навколо вузла оберненої гратки до періодичних Si/SiGe-надграток з різною товщиною шару германію (4 або 7 монолітів (МШ)), а також до періодичних SiGe-точок, вбудованих у кремній.

### 1. Вступ

В разі росту по Странські–Крастанову [1] у напруженій епітаксійній надгратці на поверхні росту шару може утворитися самоорганізована структура, яка складається з двовимірної безлічі маленьких острівців (квантових точок). Зі збільшенням кількості шарів у надгратці розподіл точок за розмірами стає більш гомогенним і поліпшується їхнє впорядкування [2, 3]. Точки створюють двовимірну майже періодичну множину, осі якої збігаються з напрямками мінімального значення модуля пружності кристала, напри-

клад у структурі типу алмазу — з напрямками {100}.

Самоорганізований епітаксійний ріст напруженіх напівпровідникових наноструктур був предметом інтенсивних досліджень в останньому десятиріччі. Серед подібних систем самоорганізовані насычені Ge острівці, вбудовані в кремній, особливо цікаві, оскільки вони спричиняють дуже ефективну фотолюмінесценцію. Відзначимо, що поля напружень у мультишарах сприяють вертикальному упорядкуванню острівців, в той час як їхнє горизонтальне впорядкування виражене набагато слабше. У вертикальному напрямку положення точок на сусідніх інтерфейсах скорельоване і їх вертикальний період дорівнює періоду надгратки [4].

Для дослідження явища кореляції дифракційні методи слід вибирати так, щоб кореляції в положеннях самоорганізованих квантових точок викликали максимуми спектральної щільності в оберненому просторі. Латеральним кореляціям у положенні точок відповідає ряд максимумів інтенсивності в оберненому просторі, паралельний напрямку  $q_x$ <sup>1</sup>. З функції форми латеральних максимумів навколо сателітів першого  $SL_1$  і нульового  $SL_0$  порядків основної надгратки можна зробити деякий попередній висновок про стан напружень системи. Горизонтальний

<sup>1</sup>  $q_{x,z}$  — координати оберненого простору

розділ інтенсивності навколо  $SL_0$  з максимумом, зміщеним у бік великих  $q_x$ , виявляє розтягнуті і стиснуті області, головним чином, від матриці кремнію, у той час як  $SL_1$ -сателіти з максимумом, зміщеним у бік менших  $q_x$ , відбивають пружну релаксацію усередині насичених Ge областей (точок).

За відстанню  $\Delta q_x$  між цими максимумами можна визначити середню відстань між точками

$$\langle L \rangle = \frac{2\pi}{\Delta q_x}. \quad (1)$$

Для оцінки параметрів структури можна використовувати дві моделі розташування точок. У моделі близького порядку (SRO) відстань між суміжними точками випадкова і не скорельована. Тоді ширина  $\delta q_x$  сателітів залежить від  $q_x$ :

$$\delta q_x = \frac{(\sigma_{\parallel} q_x)^2}{\langle L \rangle}. \quad (2)$$

З цієї залежності може бути визначене середньо-квадратичне відхилення  $\sigma_{\parallel}$  відстані між точками. У моделі далекодійних кореляцій (LRO) ширина сателітів не залежить від  $q_x$  і обернено пропорційна розміру  $D_{\parallel}$  латеральних когерентних областей:

$$\delta q_x = \frac{2\pi}{D_{\parallel}}. \quad (3)$$

Положення і ширина латеральних сателітів можуть бути виміряні у будь-якій точці оберненої гратки.

Метою даної роботи було вивчення процесів формування квантових точок у надграткових структурах і визначення їхніх основних параметрів, а також впливу цих параметрів на дифракційні спектри розсіяння рентгенівських променів (РП) (на зміну періоду когерентних сателітів).

## 2. Експериментальна методика

Досліджували надграткові структури Si/Ge з товщиною шару германію 4 і 7 МШ, вирощені на підкладці з кремнію (100) на установці MBE. Технологічні параметри зразків наведено в таблиці. Вимірювання крихих дифракційного відбиття (КДВ) для симетричних 400 і асиметричних 224 рефлексів проводилися на дифрактометрі "Philips MRD X-Pert". Зразок сканували поблизу точного положення Брегга в діапазоні близько  $3^{\circ}$  у так званому  $\omega - 2\vartheta$ -режимі. Рееструвалися як  $\omega$ -скани (без аналізатора), так і  $\omega - 2\vartheta$ -скани. У цьому ж режимі знімали двовимірні карти розподілу інтенсивності навколо вузлів оберненої гратки 004 і 224.

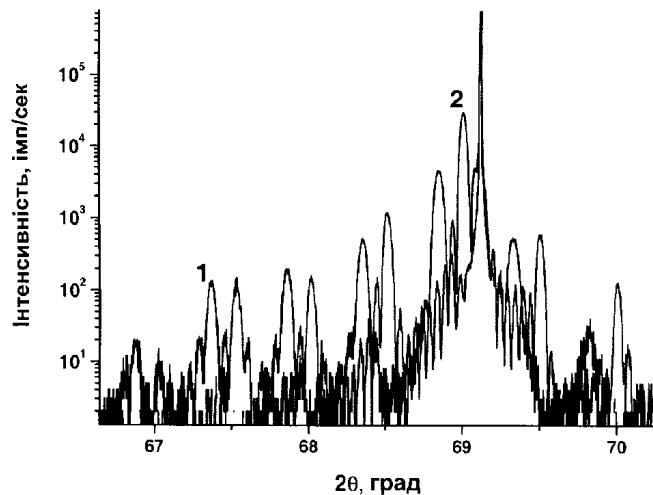


Рис. 1. Криві відбиття 004 ( $\omega - 2\vartheta$ -скани) від надграток: 1 — із шаром германію 7 МШ (з квантовими точками); 2 — із шаром германію 4 МШ

Товщину шарів багатошарової структури визначали за осциляціями КДВ при дифракції в геометрії Брегга [5].

## 3. Результати експериментів та їх обговорення

Криві дифракційного відбиття, зняті в режимі  $\omega - 2\vartheta$ , (рис. 1) демонструють чітку картину як позитивних, так і негативних надграткових сателітних піків. Однаковий період коливань інтенсивності сателітів для обох структур з різною товщиною шару германію може свідчити про те, що вони модулюються змочувальним і буферним шарами однакової товщини. Як відомо [1], при товщині шару Ge, що перевищує 4 МШ, починається формування острівців (квантових точок) в режимі Странські—Крастанова. Отже, надлишковий Ge (понад 4 МШ) іде на їхне формування. Результати, приведені на рис. 1, свідчать про те, що острівці не беруть участі в моделюванні надграткової структури. Однак, як видно з рис. 1, вони впливають на картину деформаційних полів у надгратковій структурі.

За відстанню між піком підкладки і нульовим сателітом надгратки було визначено середню деформацію в періоді (таблиця). Вона відрізняється для досліджуваних структур. Тому дуже важливо було одержати відповідь на питання, яка роль острівців у формуванні надграток, а також інформацію про їхні параметри і ступінь упорядкування.

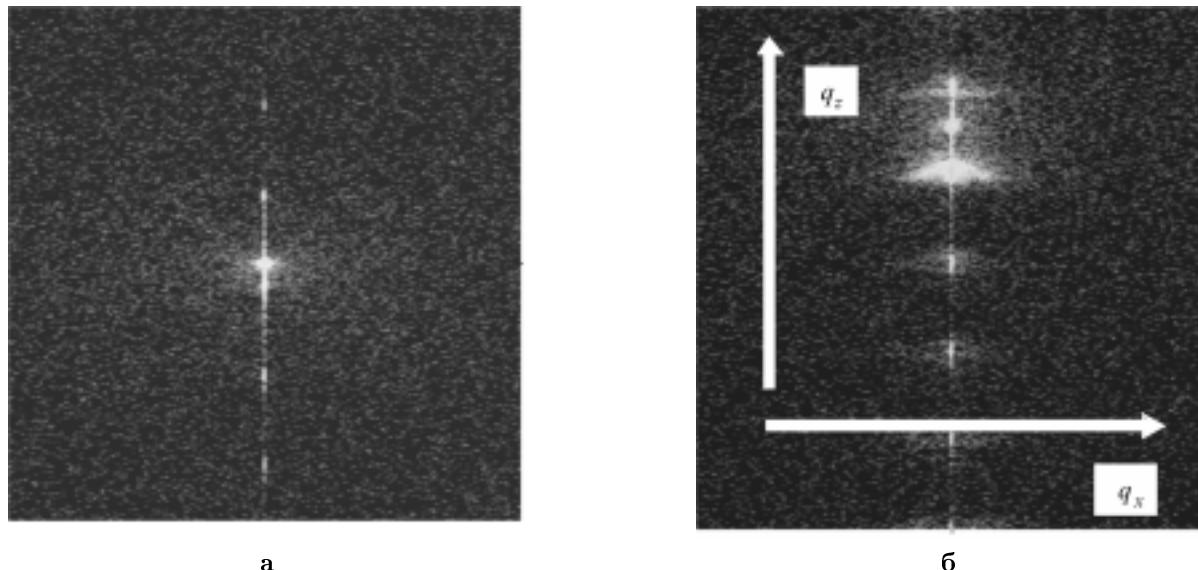


Рис. 2. Карти розподілу дифрагованої інтенсивності в оберненому просторі поблизу симетричного вузла 004 для структур SiGe/Si з 4 МШ Ge (а) та 7 МШ Ge (б). Випромінювання CuK $\alpha$

Найбільш інформативним методом дослідження таких структур є одержання двовимірних карт розподілу інтенсивності РП навколо вузлів оберненої гратки [6, 7]. На рис. 2 наведено карти розподілу інтенсивності для симетричного відбиття 004. На цих картах чітко видно розсіяння від підкладки, сателітну структуру від надгратки, а також піки дифузного розсіяння, зумовлені упорядкованою структурою квантових точок. Інформація про островці Ge міститься у дифузних максимумах, що супроводжують когерентний сателіт. У зображеннях, отриманих у симетричних дифракційних 004-відображеннях, дифузійні максимуми симетричні відносно осі  $q_x$ , тоді як в асиметричних зображеннях вони виявляють явну асиметрію (рис. 3). У випадку симетричної дифракції латеральні дифузійні максимуми практично не проявляються, цілком ймовірно, через меншу площину кристала, яка дає внесок у дифракцію в порівнянні з асиметричною геометрією [8, 9].

Тому детальнішу інформацію про розподіл деформаційних полів у структурах із квантовими точками можна одержати з аналізу асиметричних двовимір-

них карт розсіяння РП в оберненому просторі. Проаналізуємо окремі перетини цих двовимірних карт розподілу інтенсивності, паралельні площині росту структур. На рис. 4 наведено перетини поблизу сателітів надгратки нульового і першого порядків. Поблизу сателіта нульового порядку  $SL_0$  (для малих значень  $q$ ) дифузійне розсіяння зумовлене головним чином областю деформації і розсіянням гратки Si далеко від островців (квантових точок). Максимум дифузійної інтенсивності навколо  $SL_0$ , як випливає з рис. 4, зміщений у додатному напрямку  $q_x$ , тобто в напрямку більших  $h_x$ , що відповідає деформації стиску кристалічної гратки Si в проміжках між точками. Значення деформації стиску становить  $5,062 \cdot 10^{-4}$ .

Поблизу сателіта першого порядку  $SL_1$  дифузійне розсіяння зумовлене областю деформації і розсіянням кристалічними гратками островців. Максимум дифузійної інтенсивності навколо  $SL_1$  зміщений у бік менших значень  $q_x$ , тобто відповідає деформації розтягу кристалічної гратки, що збільшує відстань між точками. Середнє значення цієї деформації становить  $1,119 \cdot 10^{-3}$ .

#### Параметри досліджуваних структур

Номер зразка	Технологічні товщини шарів Si(нм)/Ge(МШ)	Експ. значення періоду надгратки, нм	Усереднена за періодом деформація вздовж $q_z$	Деформація в шарі Si вздовж $q_x$	Деформація в квантовій точці вздовж $q_z$
1	20/7	21,7	$2,32 \cdot 10^{-3}$	$5,10 \cdot 10^{-4}$	$1,12 \cdot 10^{-3}$
2	20/4	21,63	$9,44 \cdot 10^{-4}$	—	—

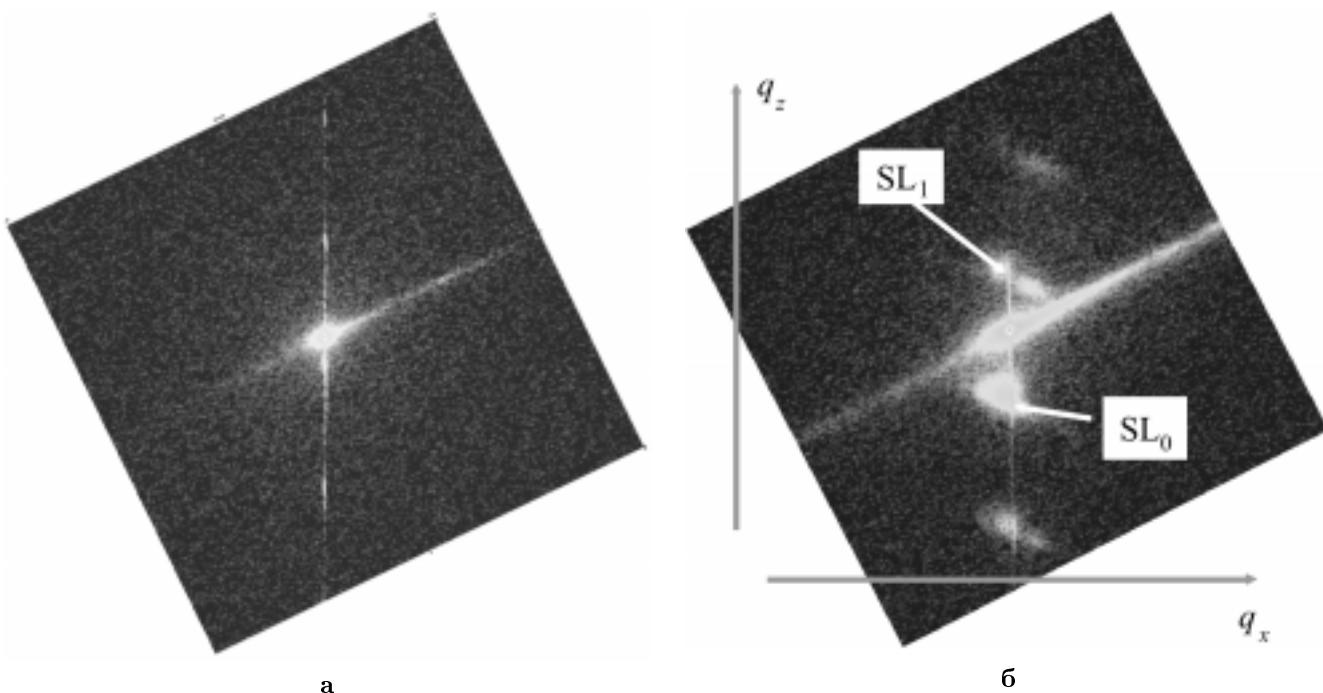


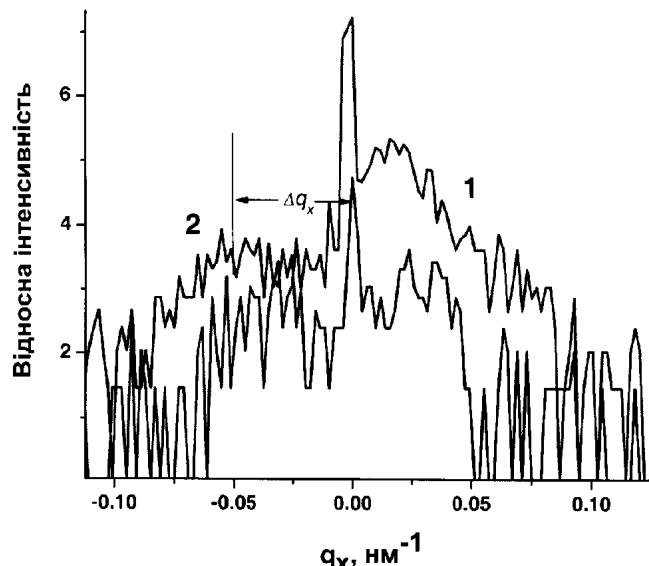
Рис. 3. Те ж саме, що і на рис. 2, для вузла 224

За величиною відстані  $\Delta q_x$  між латеральними максимумами було визначено згідно з (1) середню відстань  $\langle L \rangle$  між квантовими точками, яка в нашому випадку дорівнює 83,8 нм. Розміри точкових областей, оцінені за формулою (3), становлять 67,5 нм.

Кореляції в латеральному розподілі точок у даних зразках дуже слабкі. Тому на картах розсіяння РП спостерігаються тільки латеральні сателіти перших порядків, причому локалізовані в основному лише біля когерентних надграткових сателітів нульового і першого порядків.Період надгратки формується тільки змочувальним шаром  $t_1$  і шаром кремнію  $t_2$ . Слабкоскорельовані точки дають невеликий внесок у формування надграткової структури когерентних граток. Це виявляється тільки в перерозподілі полів пружних напруженостей при збереженні значення періоду надгратки  $T = t_1 + t_2$ . З цього випливає, що ні самі острівці у надгратці, ні наявність розкиду значень їхньої висоти не гасять модуляцію.

#### 4. Висновки

Показано, що при скануванні кристала вздовж вектора дифракції поряд із надгратковими максимумами утворюється система сателітів, що відповідають квантовим точкам у структурах з товщиною шару германію, що перевищує 7 МШ. Прояв кореляцій у

Рис. 4. Проекції перерізів піків дифузного розсіяння біля сателітів  $SL_0$  (1) і (2) на вісь  $q_x$  (0mega-скані), отримані з навколо вузла 224 для 10-періодної структури SiGe/Si

розташуванні цих максимумів на двовимірних картах в оберненому просторі (у латеральному і нормальному напрямках) свідчить про тривимірне упорядкування квантових точок. Це підтверджується також і

формою ( $\omega$ -кривих поблизу надструктурних максимумів. Однак варто зазначити, що фазові кореляції у напрямку вектора дифракції сильніші, ніж у площині росту.

Встановлено, що за рахунок слабкіших кореляцій у латеральному напрямку квантові точки не беруть участі у формуванні когерентних надструктурних максимумів (сателітів). Про це свідчать однакові періоди надгратки для структур з товщиною шарів германію 4 і 7 МШ.

1. Jesson D.E., Chen K.M., Pennycook S.J. et al. // Phys. Rev. Lett. **77** (1996) 1330.
2. Валах М.Я., Гудыменко А.И., Кладько В.П. и др. // Металлофізика і новіші технології, **26**, №6 (2004) 635.
3. Darchuber A.A., Schittenhelm P., Holý V. et al. // Phys. Rev. B. **55**, N23 (1997) 15652.
4. Zhuang Y., Stand J., Darchuber A.A. et al. // J. Mater. Science: Mater. in Electr. **10** (1999) 215.
5. Holý V., Darchuber A.A., Stand J. et al. // Phys. Rev. B. **58**, N12 (1998) 7934.
6. Holý V., Pietch U., Baumbach T. High-Resolution X-Ray Scattering from Thin Films and Multilayers.— Berlin: Springer, 1998.
7. Holý V., Stangl J., Springholz G. et al. // Physica B. **283** (2000) 65.
8. Jiang X., Metzger T.H., Sctucki M. et al. // Nucl. Instrum. and Meth. Phys. Res. Sec. B. **200** (2003) 40.
9. Baribeau J.-M. // J. Cryst. Growth. **157** (1995) 52.

Одержано 23.11.04

#### ОТОВРАЖЕНИЕ ПРОСТРАНСТВЕННОГО УПОРЯДОЧЕНИЯ КВАНТОВЫХ ОСТРОВКОВ В МНОГОСЛОЙНЫХ НАНОСТРУКТУРАХ SiGe В РЕНТГЕНОВСКОЙ ДИФРАКЦИИ

В.П. Кладько, В.Ф. Мачулін, А.Н. Ефанов, В.А. Юхимчук, А.И. Гудыменко, П.П. Когутюк, А.В. Шалимов

#### Резюме

Из анализа распределения диффузной интенсивности рассеянных рентгеновских лучей в обратном пространстве получена

информация относительно перехода от 2D- к 3D-структурам в многогородных образцах SiGe. Показано, что слабоскоррелированные квантовые точки, дающие вклад в формирование латеральных сателлитов, незначительно влияют на формирование когерентной сателлитной структуры. При этом очень существенным остается их влияние на распределение полей деформаций в слоях сверхрешетки. Это иллюстрируется применением метода двухмерных карт распределения интенсивности вокруг узла обратной решетки к периодическим сверхрешеткам Si/SiGe с разной толщиной слоя германия (4 и 7 мономольев), а также к периодическим SiGe-точкам, встроенным в кремний.

#### MANIFESTATION OF SPATIAL ORDERING OF QUANTUM DOTS IN MULTILAYERED SiGe NANOSTRUCTURES IN X-RAY DIFFRACTION PATTERNS

V.P. Kladko, V.F. Machulin, A.N. Efanov, V.A. Yukhymchuk, O.I. Gudymenko, P.P. Kogutyuk<sup>1</sup>, A.V. Shalimov<sup>2</sup>

V. Lashkarev Institute of Semiconductor Physics,  
Nat. Acad. Sci. of Ukraine  
(41, Nauky Ave., Kyiv 03028, Ukraine;  
e-mail: kladko@isp.kiev.ua),

<sup>1</sup>Taras Shevchenko Kyiv National University

(6, Academician Glushkov Ave., Kyiv 03127, Ukraine),

<sup>2</sup>Institute of Physics, Polish Acad. Sci.  
(32/36, Lotników Al., Warsaw 02-609, Poland)

#### Summary

By analyzing the intensity distribution of diffusely scattered x-rays in the reciprocal space, information concerning a transformation of two-dimensional structures in multilayered SiGe specimens into three-dimensional ones has been obtained. Weakly correlated quantum dots which contribute to the formation of lateral satellites have been shown to affect insignificantly the formation of a coherent satellite structure. Nevertheless, their influence on the distribution of deformation fields in superlattice layers remains substantial. It has been illustrated by applying the method of two-dimensional reciprocal space mapping of the x-ray intensity distribution to periodic Si/SiGe superlattices with different thicknesses of Ge layers (4 and 7 monolayers (ML)) and to periodically distributed SiGe dots buried in silicon.