

## МОРФОЛОГІЯ ТА ОПТИЧНІ КОНСТАНТИ НАНОКРИСТАЛІЧНИХ ПЛІВОК Ge НА ПОВЕРХНІ Si(001)

Ю.М. Козирєв<sup>1</sup>, В.С. Лисенко<sup>2</sup>, Ю. В. Гоменюк<sup>2</sup>, О.С. Кондратенко<sup>2</sup>,  
С.А. Іляш<sup>3</sup>, С.В. Кондратенко<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Інститут хімії поверхні ім. О.О. Чуйка Національної академії наук України,  
вул. Генерала Наумова, 17, Київ, 03164, Україна

<sup>2</sup>Інститут фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова НАН України, Київ, Україна

<sup>3</sup>Київський національний університет імені Тараса Шевченка, Фізичний факультет,  
Київ, Україна, \* kondr@univ.kiev.ua

*Нанокристалічні плівки Ge та SiGe вирошені на поверхні Si(001) методом молекулярно-променевої епітаксії. Оптичні константи тонких плівок визначено методом багатокутової монохроматичної еліпсометрії. Оптичні властивості систем описано в моделі ефективного середовища Бруггемана. Показано, що зміна ефективних оптичних констант при нанесенні Si на поверхню нанокластерів Ge зумовлена поруватістю нанокристалічних плівок.*

### Вступ

Напівпровідникові нанокластери викликають інтерес завдяки новим можливостям застосування в електронних пристроях, в тому числі польових транзисторах, ІЧ-фотоприймачах і сонячних елементах. Поліпшення характеристик приладів досягається за рахунок зменшення відстані між нанокластерами, зменшення дисперсії розмірів, а також вибору оточуючого матеріалу гетеропари [1–5].

Окремий інтерес становлять нанокристалічні плівки SiGe та Ge, вирошені на кремнієвій підкладці у зв'язку з їх сумісністю з кремнієвими технологіями. Поля механічних напружень внаслідок неспівпадіння сталих ґраток Si та Ge та їх просторові варіації на відстанях порядку розміру нанокластерів суттєво впливають на транспорт носіїв заряду, електронний спектр та оптичні властивості гетеросистем Si-Ge [6–12].

Гетероструктури з нанокластерами SiGe на поверхні Si(001) отримують методом молекулярно-променевої епітаксії в режимі Странські–Крастанова, який вирізняється різким переходом від двовимірного (2D) росту до росту 3D нанокластерів, коли ключовим фактором є енергетичний вигреш внаслідок зменшення величини механічних напружень за рахунок зміни топології плівки. На початковій стадії нанесення напівпровідникового матеріалу на поверхню кристалу з меншою сталою решітки ріст наноострівців може відбуватися пошарово. Перші кілька шарів ростуть псевдоморфно за механізмом ван-дер-Мерве, коли формується так званий змочувальний шар. Різниця сталих ґраток призводить до того, що плівка Ge росте стисненою в площині підкладки. Пружна енергія плівки зростає зі збільшенням її товщини і при перевищенні деякої критичної величини, яку називають товщиною змочувального шару, відбувається релаксація пружних напружень шляхом виникнення тривимірних острівців.

### Експеримент

Багатошарові гетероструктури Ge/Si було вирошено методом молекулярно-променевої епітаксії на підкладці *p*-Si(100) із  $\rho = 7.5 \text{ } \Omega \cdot \text{см}$ . Поверхня підкладки вкривалась буферним шаром кремнію, товщиною 100 нм. Після цього наносився шар Ge при температурі 350 °С (структура А). На частину поверхні з нанокластерами Ge

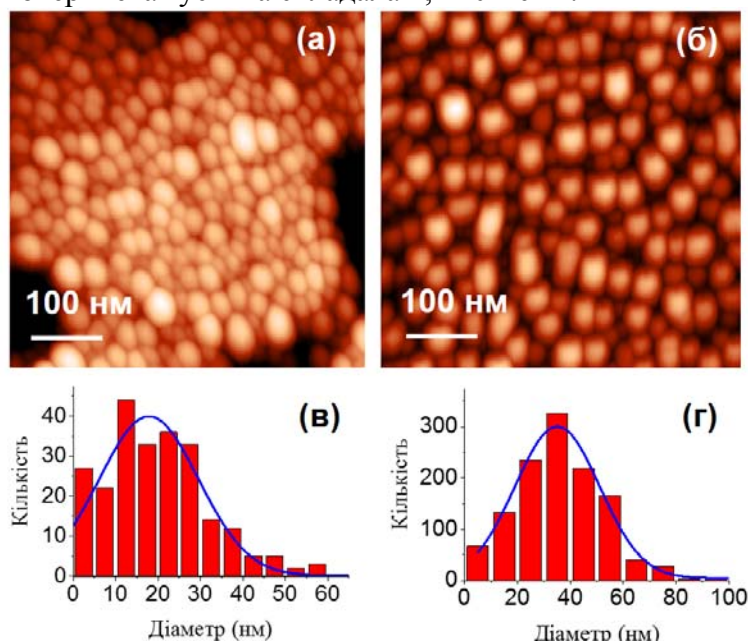
спрямовувався потік іонів Si ( $2-3 \times 10^{14}$  см<sup>2</sup>/с). В результаті на відкритій частині поверхні формувались SiGe нанокластери внаслідок нанесенню шару кремнію з номінальною товщиною 5 моношарів (МШ) (структура В). До того ж частина підкладки з вирощеними SiGe нанокластерами вкривалась шаром кремнію, товщиною 55 нм (структура С). Швидкості нанесення становили 1,0 нм/хв для Si та 0,6 нм/хв для Ge.

Різні експериментальні методи були використані для характеристики розміру нанокластерів. Розподіл за розмірами і поверхнева густина нанокластерів контролювалися за допомогою атомно-силової мікроскопії (AFM). Вимірювання AFM проводилися з використанням мікроскопа НТ-МДТ Ntegra в напівконтактному режимі з використанням зонда радіусом  $\sim 10$  нм.

Оптичні властивості багатошарових гетероструктур досліджувались методом монохроматичної багатокутової еліпсометрії з використанням еліпсометра ЛЭФ-3М ( $\lambda = 632.8$  нм). Вимірювання поляризаційних кутів  $\Psi(\phi)$ ,  $\Delta(\phi)$  проводили за двозонною методикою поблизу головного кута падіння структури [13]. На основі еліпсометричних вимірювань оптичні константи, а саме комплексний показник заломлення  $N=n+ik$  структур, визначали шляхом розв'язування оберненої еліпсометричної задачі методом мінімізації квадратичної цільової функції спеціального вигляду [14]. Також на основі вимірюваних кутових залежностей  $\Psi$ ,  $\Delta$  багатошарових гетероструктур проведено їх опис в рамках теорії ефективного середовища в симетричному модифікованому наближенні Бругемана [15].

### Результати та їх обговорення

На рис. 1 а наведено АСМ зображення поверхні структури А – нанокристалічної плівки Ge на поверхні Si(001). Середній діаметр нанокластерів становив 28 нм, а їх поверхнева густина складала  $1,1 \cdot 10^{11}$  см<sup>-2</sup>.

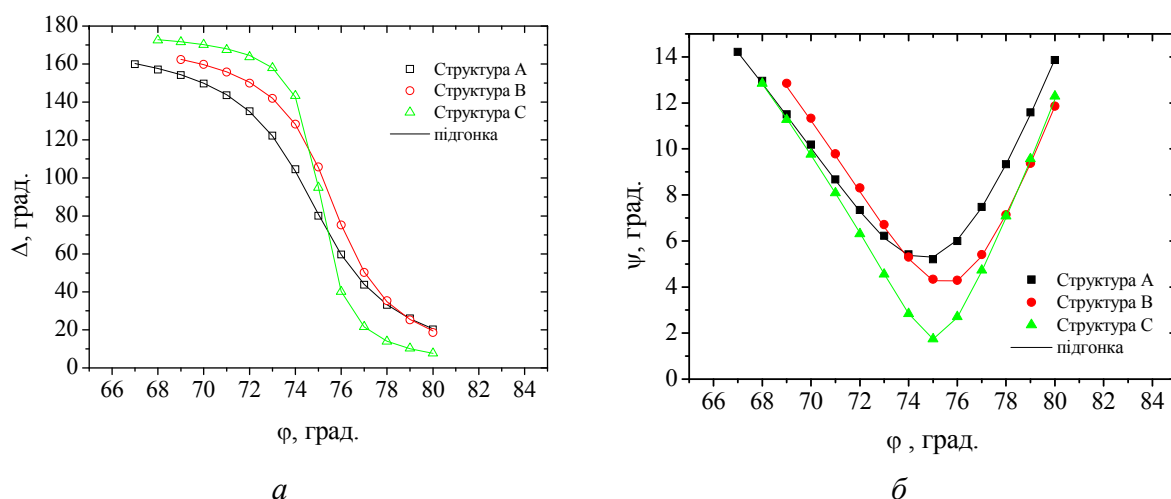


**Рис. 1.** АСМ зображення поверхні нанокристалічної плівки Ge на поверхні Si(001) (а) та після нанесення на їх поверхню 5 МШ Si (б). Розподіли за діаметрами нанокластерів плівки Ge на поверхні Si(001) (в) та після нанесення на їх поверхню 5 МШ Si (г).

Аналіз топології поверхні поблизу ділянок, де були відсутні нанокластери, дозволив визначити товщину шару з нанокристалом порядку 85 нм. Після нанесення 5 МШ Si на поверхню структури А відбулась реконструкція поверхні з нанокристалом, яка супроводжувалась коалесценцією сусідніх нанокластерів, що призвело до

збільшення середнього розміру нанокристалів до 35 нм та зменшення поверхневої густини нанокластерів до  $0,7 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ . АСМ зображення такої поверхні структури В наведено на рис. 1 б. Отримані гістограми розподілів нанокластерів за діаметрами було апроксимовано розподілом Гауса з шириною FWHM, рівною 28 та 38 нм для структур А та В відповідно (див. рис. 1 в, з).

На рис. 2 наведено дані багатокутової еліпсометрії для нанокристалічної плівки Ge на поверхні Si та після нанесення на їх поверхню 5 МШ Si. Використовуючи експериментальні залежності поляризаційних кутів  $\Psi(\varphi)$ ,  $\Delta(\varphi)$  таких багат шарових структур в межах обраної для кожної структури моделі, визначали ефективні оптичні параметри поверхневого шару з Ge нанокластерами і його ефективну товщину. Для структури А розраховувались оптичні параметри поверхневого шару з Ge нанокластерами в рамках оптичної моделі системи „ефективна суцільна плівка на підкладці” в залежності від її масової товщини; отримано наступні параметри:  $n = 3,80$ ,  $k = 0,58$ ,  $d_{eff} = 54,0 \text{ нм}$ . Константи для монокристалічного Ge становили:  $n = 5,29$ ,  $k = 0,64$  (для  $\lambda = 632,8 \text{ нм}$ ).



**Рис. 2.** Кутіві залежності  $\Psi(\varphi)$  (а) та  $\Delta(\varphi)$  (б) для багат шарових гетероструктур; символи – експеримент, суцільні лінії – теоретичні, підігнані до експериментальних шляхом мінімізації цільової функції.

Зв'язок оптичних властивостей металевих плівок з їх морфологією в довгохвильовому наближенні було проаналізовано в рамках статистичної моделі ефективного середовища. Використовуючи отримані з еліпсометрії значення оптичних констант, додатково для визначення оптичних параметрів, таких як об'ємний вміст  $f$  компонентів гетероструктури з нанорозмірними включеннями і товщину  $d$  шарів, застосовували наближення ефективного середовища Бруггемана:

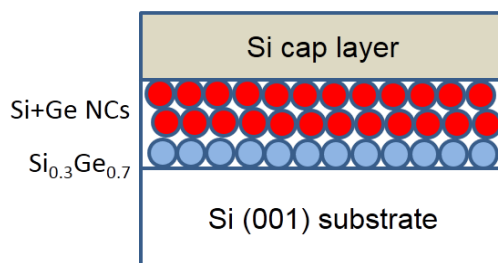
$$\sum_{i=1}^N f_i \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_{eff}}{\varepsilon_i + (D-1)\varepsilon_{eff}} = 0, \quad (1)$$

де  $i$  – номер фази-складової з комплексною діелектричною функцією  $\varepsilon_i(\omega)$ ,  $f_i$  – її вміст,  $\varepsilon_{eff}$  – діелектрична проникність ефективного суцільного середовища,  $D$  – параметр, залежний від розмірності плівки ( $D = 3$  для нашого випадку). Кожний шар в оптичній моделі задавали сумішшю компонентів, з яких складається структура.

Для нанокристалічних плівок Ge на поверхні Si визначили вміст кожної компоненти структури в рамках 2-компонентної моделі Бруггемана і отримали фактори заповнення  $f_{Ge} = 65,0 \%$  для структури А і  $f_{SiGe} = 71,4 \%$  для структури В. Як і

очікувалось, нанесення Si на поверхню нанокластерів Ge призводить до збільшення фактору заповнення плівки. Збільшення товщини покривного шару Si призводить до більш суттєвої зміни оптичних констант внаслідок реконструкції поверхні з nc-Ge при нанесенні кремнію та Si-Ge інтердифузії.

Для структури С (схематичне зображення моделі наведено на рис. 3) моделювання ефективним середовищем в рамках 3-компонентної моделі: (i) перехідний шар  $\text{Si}_{0.3}\text{Ge}_{0.7}$ , (ii) напружений нанокристалічний шар з Ge нанокластерами в Si оточенні, (iii) покривний шар Si – дозволило нам отримати оптичні параметри кожного з шарів. Товщина перехідного шару виявилась рівною 8,0 нм і збіглась з середнім значенням діаметра nc-Ge. Визначені оптичні константи  $n = 4,6$  і  $k = 0,26$  узгоджуються із табличними значеннями для твердого розчину  $\text{Si}_{0.3}\text{Ge}_{0.7}$ . Було визначено такі параметри для напруженого нанокристалічного шару з nc-Ge в Si оточенні:  $n = 3,80$ ,  $k = 0,58$ ,  $d_{\text{eff}} = 54,0$  нм. Отриманий показник заломлення для даного шару виявився меншим за табличне значення як для об'ємного Ge, так і для об'ємного Si. Це означає, що він виявився поруватим, незважаючи на сформований над ним суцільний покривний шар Si, товщиною 65 нм.



**Рис. 3.** Модель для розрахунку оптичних параметрів структури С.

### Висновки

Молекулярно-променева епітаксія Ge на поверхню Si(001) при температурах 300–350 °С призвела до формування нанокристалічних плівок з розміром кристалітів порядку 30 нм та поверхневою густиною  $1,1 \cdot 10^{11}$  см<sup>-2</sup>. Нанесення Si на поверхню сформованих плівок Ge призводить до підвищення ступеня їх кристалічності та утворення шару твердого розчину Si-Ge.

Виявлено зміну оптичних констант тонких шарів багатшарових гетеросистем, зумовлених зміною рельєфу поверхні нанокластерів Ge та SiGe та, відповідно, зміною морфології тонких плівок. Показано, що виміряні кутові залежності еліпсометричних параметрів  $\Psi$ ,  $\Delta$  можна описати в моделі ефективного середовища Бруггемана. Встановлено, що зміна ефективних оптичних параметрів при нанесенні Si на поверхню нанокластерів Ge зумовлена створеною поруватістю нанокристалічних плівок.

### Література

1. K. Brunner, Reports on Progress in Physics 65, 27 (2002).
2. D.Bimberg, M.Grundmann, N.Ledentsov Quantum dot heterostructures. John Wiley & Sons, Ltd., Chichester (1999).
3. C. Miesner, O. Röthig, K. Brunner, G. Abstreiter, Appl. Phys. Lett.76, 1027 (2000).
4. C. Teichert, Phys.Rep. 365 335 (2002).
1. Berbezier, A. Ronda, Surface Science Reports 64, 47 (2009).
5. H. Lafontaine, N.L. Rowell, S. Janz, D.-X. Xu, J. Appl. Phys. 86, 1287 (1999).
6. K. Barnham, G. Duggan, J. Appl. Phys. 67, 3490 (1990).
7. M. Floyd, Y. Zhang, K.P. Driver, J. Drucker, P. A. Crozier and D. J. Smith, Appl. Phys. Lett. 82, 1473 (2003).
8. O. G. Schmidt, U. Denker, S. Christiansen and F. Ernst Appl. Phys. Lett. 81, 2614 (2002).

9. M. Kratzer, M. Rubezhanska, C. Prehal, I. Beinik, S.V. Kondratenko, Yu.N.Kozyrev, C. Teichert, PhysRev B. 86, 245320 (2012).
10. M. Nonnenmacher, M.P. O'Boyle, H.K. Wickramasinghe, Appl. Phys. Lett. 58, 2921 (1991).
11. Z. Lin, P. Brunkov, F. Bassani, G. Bremond, Applied Physics Letters 97, 263112 (2010).
12. Р. Аззам, Н. Башара, Эллипсометрия и поляризованный свет (Мир, Москва, 1981).
13. В.Н. Антонюк, Н.Л. Дмитрук, М.Ф. Медведева, Эллипсометрия в науке и технике (Новосибирск, Наука, 1987).
14. D.A.G. Bruggeman, Ann. Phys. (Ger.) A24 (1935) 636.

## **МОРФОЛОГИЯ И ОПТИЧЕСКИЕ КОНСТАНТЫ НАНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК Ge НА ПОВЕРХНОСТИ Si(001)**

**Ю.Н. Козырев<sup>1</sup>, В.С. Лысенко<sup>2</sup>, Ю.В. Гоменюк<sup>2</sup>, О.С. Кондратенко<sup>2</sup>,  
С.А. Иляш<sup>3</sup>, С.В. Кондратенко<sup>3</sup>**

<sup>1</sup>*Институт химии поверхности им. А.А. Чуйко Национальной академии наук Украины  
ул. Генерала Наумова, 17, Киев, 03164, Украина*

<sup>2</sup>*Институт физики полупроводников им. В.Е. Лашкарьова НАН Украины,*

<sup>3</sup>*Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко, Физический  
факультет, Киев Украина, \* kondr@univ.kiev.ua*

*Нанокристаллические пленки Ge и SiGe выращены на поверхности Si(001) методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Оптические константы тонких пленок определены методом многоугольной монохроматической эллипсометрии. Оптические свойства систем описаны в модели эффективной среды Бруггемана. Показано, что изменение эффективных оптических констант при нанесении Si на поверхность нанокластеров Ge обусловлено пористостью нанокристаллических пленок.*

## **MORPHOLOGY AND OPTICAL CONSTANTS OF Ge NANOCRYSTALLINE FILMS DEPOSITED ON Si(001)**

**Y.N. Kozyrev<sup>1</sup>, V.S. Lysenko<sup>2</sup>, Y.V. Gomeniuk<sup>2</sup>, O.S.Kondratenko<sup>3</sup>,  
S.A. Iliash<sup>3</sup>, S.V. Kondratenko<sup>3</sup>**

<sup>1</sup>**Chuiko Institute of Surface Chemistry, National Academy of Sciences of Ukraine**

*17 General Naumov Str., Kyiv, 03164, Ukraine,*

<sup>2</sup>*Lashkaryov Institute of Semiconductor Physics, National Academy of Sciences of  
Ukraine,*

<sup>3</sup>*National Taras Shevchenko University, Physics Department, Kyiv, Ukraine,*

*\* kondr@univ.kiev.ua*

*The Ge and SiGe nanocrystalline films were grown on Si(001) surface by molecular-beam epitaxy. The optical constants of thin films were determined by multy-angle monochromatic ellipsometry. Optical properties of such systems were described using the Bruggeman's theory of effective medium approximation. Deposition of Si on the surface with Ge nanoclusters changes the effective optical constants due to porosity of the nanocrystalline films.*