

Si 缓冲层的生长温度对 SiGe 组分、结构的影响*

吴小山^{1,1)} 蔡宏灵¹ 谭伟石² 翟章印¹ 吴忠华³ 贾全杰³ 郑鸿祥⁴ 蒋树声¹

1 (南京大学固体微结构物理国家重点实验室微结构物理高等科学技术中心 南京大学物理系 南京 210093)

2 (南京理工大学理学院应用物理系 南京 210094)

3 (中国科学院高能物理研究所国家同步辐射实验室 北京 100049)

4 (台湾大学凝聚态中心 台北)

摘要 利用同步辐射 X 射线高分辨衍射、掠入射表面衍射、原子力显微镜、电子显微镜等手段研究了 SiGe 外延层的生长质量、组分与作为缓冲层 Si 的生长温度之间的关系. 研究表明, 在外延薄膜中 Ge 的含量为 $32 \pm 2\%$; 当 Si 缓冲层生长温度在 $400\text{—}500^\circ\text{C}$ 范围内, SiGe 外延层质量高, 没有生长位错出现. X 射线反射及原子力显微镜则显示对应最光滑的 SiGe 外延层表面的 Si 缓冲层的生长温度为 450°C , 相应的表面粗糙度仅为大约 15\AA .

关键词 同步辐射高分辨衍射 低温缓冲层 生长温度

1 引言

纳米结构的 Ge/Si 超晶格或 SiGe 合金由于其优异的光电特性近年来受到人们的青睐^[1-5]. 在 Si 基上生长 SiGe 外延薄膜通常要克服 Ge 与 Si 之间大的晶格失配 (4.2%), 因此高质量 SiGe 外延薄膜通常有两种方法生长: 1) 在 Si 衬底上生长不同 Ge 含量的梯度层, 逐渐过渡到所需要的 Ge 含量薄膜. 对一个 Ge 含量为 30% 的外延薄膜通常需要微米量级的梯度层^[6, 7]; 2) 在 Si 基片上先生长 Si 缓冲层, 通过缓冲层的不完整性来做为低能缺陷中心释放 SiGe 与 Si 之间的失配应力, 达到生长高质量、无位错 SiGe 外延层的目的^[8, 9]. 本文研究了在 $350\text{—}600^\circ\text{C}$ 生长温度下, 薄 Si 缓冲层生长对 SiGe 外延层质量的影响.

2 实验

实验所使用的样品是国立台湾大学凝聚态中心用分子束外延技术生长. 样品结构如下: p 型 (001) Si 衬底 (按标准清洗, 之后在低 Si 流量下, 表面经 800°C 高温去氧化处理, 直到反射高能电子衍射观测到 2×1 的表面结构为止), 先在 700°C 下生长一薄层 Si; 然后

降低温度生长 Si 缓冲层, 厚度约 1000\AA , 生长温度从 350°C 变化到 600°C . 最后在不同生长温度的 Si 缓冲层上生长 SiGe 外延层.

高分辨 X 射线衍射和掠入射衍射 (面内衍射) 实验是在北京同步辐射国家实验室漫散射实验站完成. 测量参数为: X 射线波长为 1.53684\AA , 入射狭缝 $AS = 0.1 \times 1\text{mm}^2$; 接受狭缝为 $50\mu\text{m}$. 高分辨衍射为 Si (SiGe) (004) 对称衍射和 (115) 反对称衍射. 选择 Si 或 SiGe (400) 和 (220) 来测量面内晶格参数.

3 结果及讨论分析

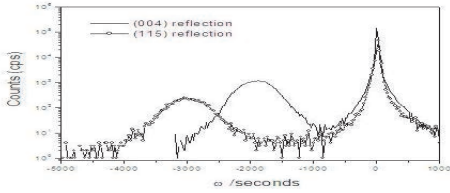
为了确定外延层中的晶格应变/弛豫情况及 Ge 在外延层中的含量, 假定由于晶格失配引起的晶格应变导致外延层的四方畸变. 对称和反对称 X 射线摇摆曲线测量可以得到外延薄膜平行于和垂直于表面方向的晶格参数 a_l 和 a_v . 图 1 是典型的 (004) 和 (115) 摇摆曲线. 可以看出, 每支 X 射线摇摆曲线包含 2 个反射峰, 分别对应外延 SiGe 薄膜和衬底 Si (或低温 Si 缓冲层) 的相应晶格平面的衍射. 利用 X 射线动力学理论我们可以从对称和反对称摇摆曲线的拟合得到外延薄膜面内和面法向的晶格参数, 见表 1.

* 国家自然科学基金项目 (90201039, 10474031) 和教育博士点基金 (20020284029) 资助

1) E-mail: xswu@nju.edu.cn

表 1 从高分辨X射线衍射拟合获得的Si_{1-x}Ge_x

样品编号	N1	N2	N3	N4	N5	N6
Si缓冲层生长温度	350°C	400°C	450°C	500°C	550°C	600°C
$a_v/\text{Å}$	5.50665	5.50626	5.50468	5.50456	5.50653	5.50488
$a_l/\text{Å}$	5.50628	5.50654	5.50453	5.50668	5.50489	5.50587
弛豫度(%)	97.6	96.2	95.8	96.7	98.0	99.4
粗糙度/Å	-	18.4	17.7	15.36	22.7	26.6

图 1 典型的SiGe外延薄膜的高分辨衍射图
实线对应(004)衍射, 圆圈对应(115)衍射.

更为直接简单的方法是利用公式估计. 块体材料SiGe的晶格参数大于Si的晶格参数, 因此SiGe(004)衍射应该在Si(004)衍射的左边, 以Si的晶格参数为标准, 即 $a_{\text{Si}} = 5.43102\text{Å}$, 这时薄膜的衍射 Bragg 公式可写为^[7]: $a_v = 2\lambda / \sin(\theta_{\text{Si}} + \omega)$, $\lambda = 1.53684\text{Å}$ 是入射X射线波长, θ_{Si} 是Si(004)或(115)的Bragg角. 通过分析计算, 得到外延薄膜面内和法向的晶格参数, 再根据Verg定律可以得到外延薄膜中Ge组分大小.

取Si的(004)衍射角为 34.4682° 来计算 a_l . 从对 180° 两个方向对(004)和(115)衍射峰的摇摆曲线测量表明, Si_{1-x}Ge_x薄膜在Si薄膜上是严格平行取向(共格生长). 从上面的晶格参数的推导, 利用上述测量的晶格参数和下面的公式可以得具有四方畸变、没有应变(体块材料)的SiGe薄膜的晶格参数:

$$a_{\text{SiGe}} = [(1-\nu)/(1+\nu)]a_v + [2\nu/(1+\nu)]a_l,$$

式中 ν 是Poisson比, 其值是利用体块Si与Ge进行线性内插得到^[7]. 利用计算得到的SiGe晶格参数并利用经验公式 $a_{\text{SiGe}} = 5.4309 + 0.200326x + 0.026274x^2$, 我们可以得到外延薄膜中Ge的含量, 在所研究的样品, 其Ge含量均为 $x = (32 \pm 2)\%$, 从而说明我们生长的外延层的组分是一致的.

分析薄膜材料的晶格弛豫情况, 外延薄膜的晶格弛豫度可以通过下式计算获得:

$$R = \frac{a_l - a_0}{a_{\text{SiGe}} - a_0},$$

a_0 是Si的晶格参数. 所有样品中外延层的晶格弛豫度均为近完全晶格弛豫的. 各样品晶格弛豫度与Si缓冲层生长温度的关系见表1. 外延薄膜中含有最大晶格应变所对应的Si缓冲层的生长温度为 450°C , 其应变

大小约为4%. 从上面高分辨衍射的结果分析可知, 同样的组分中晶格失配导致的应变能通过外延层中失配位错的产生而释放, 这个假定也可以通过下面的实验进一步证实.

外延薄膜面内晶格参数随深度的变化测量是通过掠入射面内衍射探测的^[10]. 改变掠入射角就可以得到一定深度上薄膜的面内晶格参数, 测量了SiGe(220)和(400)衍射峰的位置、强度随掠入射角的变化. SiGe外延薄膜的临界角是 0.27° , 与理论估计一致. 从两个衍射面的测量得到, 外延薄膜面内晶格参数 $a = b$, 是典型的四方畸变; 从实验可以得到外延薄膜的应变可以分为3个区域: 表面区域, 在薄膜表面以下约 30Å 的深度, 外延薄膜的应变急剧减小到 ≈ 0 , 这是由于外延薄膜与空气接触的界面引起的悬挂键、表面吸附等原因造成的; 界面区域, 从Si缓冲层之上, 应变也是急剧减小到 ≈ 0 , 应变层深度约 $30-150\text{Å}$, 这是由于外延薄膜与缓冲层的晶格失配导致的. 不同生长温度对表面应变层的厚度没有变化, 但影响界面层的厚度. 实验表面当生长温度在 $400-500^\circ\text{C}$ 范围内, 中间层最薄, 在 $30-50\text{Å}$ 范围内. 在薄膜的主体区域, 外延薄膜显示完全弛豫状态, 这个结果与上面的高分辨衍射的测量结果一致.

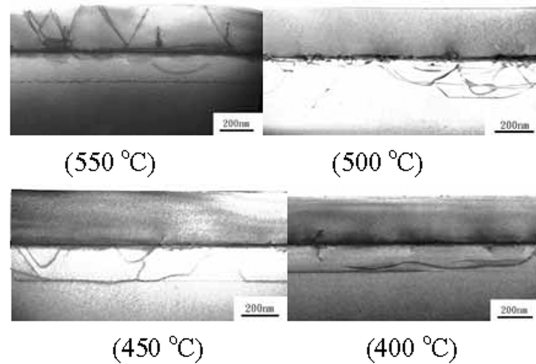


图 2 Si缓冲层不同生长温度下样品的TEM图象

断面透射电镜衍射(TEM)研究获得了外延薄膜和低温Si缓冲层中缺陷的分布. 图2是这些样品的断面TEM图象. 根据对应的TEM图象和低温Si层生长温度的关系, 可以将生长温度对缺陷影响分为4个范围: (1)当生长温度 $GT > 550^\circ\text{C}$ (如样品N5和N6),

由于 $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x/\text{Si}$ 异质结的晶格失配,可以清楚观察到SiGe层中的失配位错,见图中的标记(箭头).这些箭头与界面平面的夹角大约是 60° ,这是由于厚薄膜导致了应变弛豫(根据上面的分析,外延薄膜与衬底之间的晶格失配度约为1.45%,因而临界不产生失配位错的外延层厚度为 220\AA).外延层中缺陷的密度随低温缓冲层生长温度减低而减小;(2)当生长温度 $GT = 500^\circ\text{C}$,只观测到少数几个局限在低温缓冲Si层中的位错线,这表明Si缓冲层是作为低能应变的弛豫中心;(3)对样品N3,只在Si缓冲层与Si衬底之间观测到一些位错线,在SiGe外延层和Si缓冲层之间没有观测到明显的位错线的形成;(4)当Si缓冲层的生长温度 $GT < 400^\circ\text{C}$ (即样品N1和N2),由于2维生长的崩溃,生长界面呈现波浪型分布.低温下沉积原子沿表面的长程扩散受到抑制,2维生长将中断,导致原子/分子波荡型的界面分布.

掠入射X射线反射测量是在衍射/漫散射实验站完成的^[11].由于实验样品厚度大,我们没有观测到Kessig条纹,因而对样品的厚度和界面的微结构没有确定的结论,但可以通过分析得到样品表面的微结构

分布,所获得的平均表面粗糙度与用AFM局部区域观测的结果基本一致.AFM观测到样品表面为十字交叉的图案,这些图案的形成是由于SiGe/Si界面上失配位错的迁移所致.平均表面粗糙度与Si缓冲层生长温度之间的关系见表1.可以看出,表面粗糙度随生长温度增加而减低,在生长温度为 450°C 时达到最低值,约 15\AA ,随着生长温度进一步增加,粗糙度又开始上升.即具有最平滑的样品表面对应的Si缓冲层的生长温度为 450°C ,这个结论与上面的分析完全吻合.

4 结论

利用同步辐射X射线高分辨衍射、掠入射衍射和反射、原子力显微术和电子显微术等手段研究了SiGe外延层的生长质量、组分缓冲层Si生长温度之间的依赖关系.所研究样品中Ge的含量均为 $32\pm 2\%$,而且SiGe几乎是完全晶格弛豫的($98\pm 2\%$);当Si缓冲层生长温度在 $400\text{—}500^\circ\text{C}$ 范围内, SiGe外延层质量高,没有生长位错,表面也最平滑,相应表面的表面粗糙度为大约 15\AA .

参考文献(References)

- 1 Thanh V L, Yam V, Boucaud P et al. Phys. Rev., 1999, **B60**: 5851
- 2 Schmidt O G, Kienzle O, Hao Y et al. Appl. Phys. Lett., 1999, **74**: 1272
- 3 Mateeva E, Sutter P, Lagally M G. Appl. Phys. Lett., 1999, **74**: 567
- 4 Schittenhelm P, Gail M, Brunner J et al. J. Cryst. Growth, 1995, **157**: 260
- 5 Sunamura H, Fukatsu S, Usami N et al. J. Cryst. Growth, 1995, **157**: 265
- 6 CHEN H, GUO L W, CUI Q et al. J. Appl. Phys., 1996, **75**: 1167
- 7 LIU J L, Moore C D, U'Ren G D et al. Appl. Phys. Lett., 1999, **75**: 1586
- 8 Linder K K et al. Appl. Phys. Lett., 1997, **70**: 3224
- 9 LI J H, PENG C S, WU Y et al. Appl. Phys. Lett., 1997, **71**: 3132
- 10 TAN Wei-Shi, XU Jin, CAI Hong-Ling et al. Nuclear Techniques, 2004, **27**(6): 413—416 (in Chinese)
(谭伟石, 徐金, 蔡宏灵等. 核技术, 2004, **27**(6): 413—416)
- 11 WU X S, BIE Q S, LIN Z S et al. Mod. Phys. Lett., 1999, **B13**: 325

Effects of Growth Temperature of Si Buffer Layer on Structure and Composition in GeSi Epitaxy Layers on Si Wafer*

WU Xiao-Shan^{1;1)} CAI Hong-Ling¹ TAN Wei-Shi² ZHAI Zhang-Yin¹ WU Zhong-Hua³
JIA Quan-Jie³ CHENG Hung-Hsiang⁴ JIANG Shu-Sheng¹

1 (Lab of Solid State Microstructures, Center for Advanced Studies in Science and Technology of Microstructures,
Department of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093)

2 (Department of Applied Physics, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094)

3 (BSRF, Institute of High Energy Physics, CAS, Beijing 100049)

4 (Center for Condensed Matter Science, Taiwan University, Taipei)

Abstract This study systematically addresses the effect of temperature on the growth of SiGe compliant substrates. The characteristics of the films were experimentally determined by various techniques, including high resolution X-ray diffraction (HRXRD), surface diffraction, X-ray reflectivity with synchrotron radiation, transmission electron microscopy (TEM) and atomic force microscopy (AFM). In the growth temperature range from 350—600°C, X-ray diffraction shows that the film was strain relaxed with a Ge content of $32\pm 2\%$, and TEM indicates that the film is free from dislocations in the temperature range, 400—500°C. AFM reveals that the optimal temperature for the growth is 450°C, with a root mean squared surface roughness of 15Å.

Key words high resolution X-ray diffraction with synchrotron radiation, buffer layer grown at low temperature, grown temperature

*Supported by NSFC (90201039, 10474031) and Special Doctoral Funding from Education Ministry Department of China (20020284029)

1) E-mail: xswu@nju.edu.cn