

ЭПИТАКСИАЛЬНЫЕ СЛОИ И МНОГОСЛОЙНЫЕ КОМПОЗИЦИИ

EPITAXIAL LAYERS AND MULTILAYERED COMPOSITIONS

Известия высших учебных заведений. Материалы электронной техники. 2017. Т. 20, № 1. С. 38–44.
DOI: 10.17073/1609-3577-2017-1-38-44

УДК 621.315.592:539.216.2

Упругонапряженные слои и nanoостровки GeSiSn в многослойных периодических структурах

В. А. Тимофеев^{1,§}, А. И. Никифоров¹, А. Р. Туктамышев¹, А. А. Блошкин¹,
В. И. Машанов¹, С. А. Тий¹, И. Д. Лошкарев¹, Н. А. Байдакова²

¹Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова
Сибирского отделения Российской академии наук,
пр. акад. Лаврентьева, д. 13, Новосибирск, 630090, Россия

²Институт физики микроструктур Российской академии наук,
ул. Академическая, д. 7, д. Афонино, Нижегородская обл., Кстовский район, 603087, Россия

Аннотация. Установлена кинетическая диаграмма морфологического состояния пленок GeSiSn при несоответствии параметров решетки между GeSiSn и Si от 3 до 5 %. На основе подбора толщины пленки GeSiSn выращены многослойные периодические структуры с псевдоморфными слоями и слоями, содержащими массив островков GeSiSn с плотностью до $1,8 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ и средним размером 4 нм. Проведен анализ кривых дифракционного отражения для многослойных периодических структур. Показано наличие гладких гетерограниц, псевдоморфное состояние пленок GeSiSn и отсутствие изменений состава, а также толщины от периода к периоду. Получены спектры фотолюминесценции для структуры с псевдоморфными слоями $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$ с максимумом интенсивности фотолюминесценции вблизи 0,78 эВ, что соответствует длине волны 1,59 мкм. Проведен расчет зонной диаграммы с использованием подхода *model solid theory*. Исходя из результатов расчета зонной диаграммы, установлено, что обнаруженный пик люминесценции соответствует межзонным переходам между X–долиной в Si или между Δ_4 –долиной в $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$ и подзоной тяжелых дырок в слое $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$. Результаты исследований демонстрируют бездислокационные структуры с упругонапряженными псевдоморфными слоями и слоями, включающими массив островков высокой плотности. Дальнейшее изучение многослойных периодических структур будет направлено на увеличение содержания Sn и сравнение оптических свойств структур с островками и без островков.

Ключевые слова: GeSiSn, nanoостровки, эпитаксия, дифракция, сканирующая туннельная микроскопия, рентгеновская дифрактометрия, фотолюминесценция, зонная диаграмма

Введение

Последнее время особое внимание уделяется исследованиям оптических и электронных свойств соединений GeSiSn. Как было показано ранее [1, 2], GeSn может стать прямозонным материалом

с увеличением содержания Sn в решетке Ge. Для кубической решетки GeSn прямозонность возникает при содержании Sn ~9 % [3, 4]. При наличии деформации растяжения содержание Sn может быть ниже 6 %. Для пленок с деформацией сжатия получение прямозонного материала можно ожидать

Тимофеев Вячеслав Алексеевич¹ — канд. физ.–мат. наук, научный сотрудник, e-mail: Vyacheslav.t@isp.nsc.ru, **Никифоров Александр Иванович**¹ — канд. физ.–мат. наук, старший научный сотрудник, заведующий лабораторией № 16, e-mail: nikif@isp.nsc.ru, **Туктамышев Артур Раисович**¹ — аспирант, e-mail: artur.tuktamyshev@gmail.com, **Блошкин Алексей Александрович**¹ — канд. физ.–мат. наук, научный сотрудник, e-mail: bloshkin@isp.nsc.ru, **Машанов Владимир Иванович**¹ — канд. физ.–мат. наук, старший научный сотрудник, e-mail: mash@isp.nsc.ru, **Тий Сергей Александрович**¹ — канд. физ.–мат. наук, старший научный сотрудник, e-mail: teys@isp.nsc.ru, **Лошкарев Иван Дмитриевич**¹ — канд. физ.–мат. наук, научный сотрудник, e-mail: idl@isp.nsc.ru, **Байдакова Наталья Алексеевна**² — канд. физ.–мат. наук, младший научный сотрудник, e-mail: banatale@ipmras.ru

§ Автор для переписки

при содержании Sn больше 11 % [5]. Недавно был продемонстрирован лазер, включающий слои GeSn, и сделана попытка доказать прямозонность материала GeSn [6]. Помимо прямозонности материала, открывается возможность регулировки ширины запрещенной зоны путем создания деформации в слоях Ge и, следовательно, изменения его электрофизических свойств. Изменение знака деформации позволяет регулировать шероховатость поверхности [7]. Кроме того, появляется перспектива реализовать гетероструктуры I типа, которые важны с точки зрения ограничения носителей заряда и могут найти применение в транзисторах с высокой подвижностью носителей, светодиодах, лазерах на квантовых ямах и в солнечных элементах. В работе [8] наблюдали фотолюминесценцию в видимом диапазоне 600—720 нм от квантовых точек GeSn размером 1—3 нм с содержанием Sn вплоть до 23,6 %. Подобные структуры представляют интерес в области нанобиотехнологий.

Большие усилия направлены на получение эпитаксиальных пленок GeSn приборного качества [9, 10]. Одной из серьезных проблем является образование включений (преципитатов) олова при росте слоев GeSn [11]. Снизить эффект преципитации Sn можно за счет уменьшения температуры роста, введения деформаций или добавления третьего элемента, например Si. Это позволяет снизить локальное напряжение вокруг атомов Sn. Помимо преципитации, наблюдается сегрегация Sn при росте слоев GeSiSn и окислении пленок GeSn [11, 12]. Надежными способами подавления преципитации и сегрегации служат неравновесные методики роста, такие как молекулярно-лучевая и газофазная эпитаксия.

Цель работы — изучение роста упругонапряженных псевдоморфных пленок GeSiSn и формирования трехмерных островков. Для этого необходимо выполнить следующее:

- установить кинетическую диаграмму роста GeSiSn при различных несоответствиях параметров решетки между GeSiSn и Si;
- получить многослойные периодические структуры с псевдоморфными слоями и массивом островков GeSiSn;
- исследовать качество гетерограниц, однородность толщины и состава слоев от периода к периоду. Провести расчет зонной диаграммы гетероструктур GeSiSn/Si.

Образцы и методы исследования

Все образцы с упругонапряженными псевдоморфными слоями GeSiSn и островками GeSiSn были выращены в условиях сверхвысокого вакуума 10^{-7} — 10^{-8} Па на установке молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) «Катунь С». В камере эпитаксиального роста установлены электронно-лучевой

испаритель для Si и эффузионные ячейки Кнудсена для получения молекулярных пучков Ge и Sn. Скорость роста слоев GeSiSn варьировали от 0,01 до 0,05 нм/с. Эпитаксиальный рост проводили на подложках Si(100) в диапазоне температур 150—450 °С, содержание Sn составляло от 1,5 до 20 %. Получали не только одиночные слои GeSiSn, но и многослойные периодические структуры, содержащие гетеропереход GeSiSn/Si. Вначале осаждали слой GeSiSn, который затем закрывали слоем Si толщиной 10 нм при температуре роста 450—500 °С.

Основной методикой контроля изменения морфологии и структуры поверхности, а также исследования механизмов роста служила дифракция быстрых электронов (ДБЭ). Картины ДБЭ регистрировали на видеокамеру в процессе роста, после чего выбирали профиль вдоль одного из кристаллографических направлений и строили изменение интенсивности этого профиля в пространственно-временных координатах. Анализ картин пространственно-временных распределений интенсивности ДБЭ позволил изучить механизмы двумерного роста и формирование трехмерных островков. Момент перехода от двумерного к трехмерному росту (2D—3D) определяли по временной зависимости интенсивности картины ДБЭ вдоль одного из тяжей, в направлении которого появлялся объемный рефлекс. На основе методики определения 2D—3D-перехода строили кинетическую диаграмму морфологического состояния пленок GeSiSn на Si(100) в диапазоне температур 150—450 °С. Исходя из кинетической диаграммы, задавали толщину псевдоморфного слоя GeSiSn в многослойной структуре.

Морфологию и структуру поверхности анализировали методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) в сверхвысоковакуумной установке Omicron-Riber. Исследование структуры, напряжений, постоянной решетки и качества гетерограниц проводили методом рентгеновской дифрактометрии. Запись кривых дифракционного отражения выполняли на двухкристальном рентгеновском дифрактометре модульной конструкции X'Pert PRO MRD с кристаллом-монохроматором Ge(220). Излучение — $\text{Cu}_{K\alpha 1}$ ($\lambda = 0,154056$ нм).

Оптические свойства структур исследовали методом спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ), используя монохроматор ACTON 2300i и охлаждаемый детектор OMA-V на основе линейки InGaAs-фотодиодов с полосой чувствительности от 1,1 до 2,2 мкм. Для возбуждения фотолюминесценции использовали излучение лазера Nd:YAG (длина волны 532 нм).

Результаты и их обсуждение

Результаты исследования эпитаксиального роста пленок GeSiSn в диапазоне температур 150—

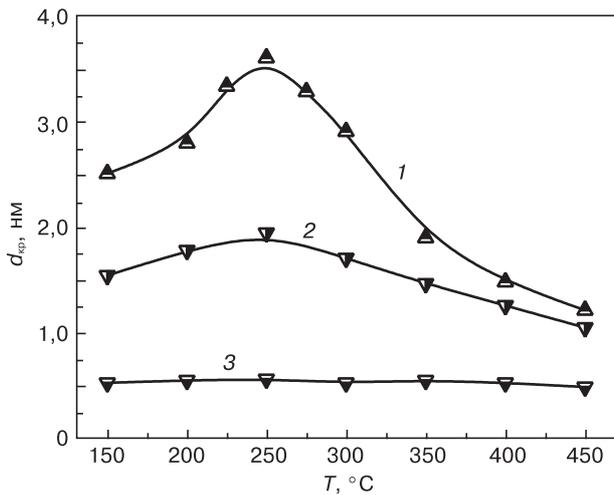


Рис. 1. Зависимости критической толщины 2D–3D–перехода для пленок GeSiSn:

1 — $\text{Ge}_{0,32}\text{Si}_{0,6}\text{Sn}_{0,08}$, имеющие несоответствие параметра решетки 3 %; 2 — $\text{Ge}_{0,6}\text{Si}_{0,32}\text{Sn}_{0,08}$, 4 %; 3 — $\text{Ge}_{0,83}\text{Si}_{0,1}\text{Sn}_{0,07}$, 5 %

Fig. 1. Critical thickness dependences of 2D–3D transition for GeSiSn films having mismatch of lattice parameter equal 3, 4 and 5 %

450 °C представлены на рис. 1. На рис. 1 показана кинетическая диаграмма морфологического состояния слоев GeSiSn на Si(100) для несоответствия параметров решетки между GeSiSn и Si 3, 4 и 5 %. В работе [19] были описаны кинетические диаграммы роста GeSiSn для несоответствия 1 и 2 %. Значение толщины пленки GeSiSn под кривой, соответствующей критической толщине 2D–3D–перехода от температуры и состава, определяет область существования упругонапряженных псевдоморфных пленок. На кривых 1 и 2 наблюдается экстремум вблизи 250 °C, появление которого обсуждалось в работе [20]. Подобное поведение связывали с изменением механизма роста с двумерно–островкового к механизму роста за счет движения ступеней. Пленки GeSiSn растут в режиме Странского–Крастанова. Чем меньше несоответствие, тем более выражен эффект изменения двумерного механизма роста. С увеличением несоответствия параметров решетки между GeSiSn и Si от 3 до 5 % критическая толщина 2D–3D–перехода в точке экстремума уменьшается от 3,6 до 0,5 нм. При этом критическая толщина 2D–3D–перехода принимает постоянное значение во всем диапазоне температур 150–450 °C. Формирование трехмерных островков при несоответствии 5 % происходит в режиме Фольмера–Вебера, когда островки возникают, минуя стадию образования смачивающего слоя. Содержание Sn в пленках GeSiSn удерживалось примерно одинаковым (7–8 %). Зная критическую толщину, можно по-

лучать псевдоморфные пленки GeSiSn толщиной ниже критического значения и использовать эти слои в многослойных периодических структурах с гетеропереходом GeSiSn/Si.

Используя кинетическую диаграмму морфологического состояния пленок GeSiSn, массив островков GeSiSn исследовали в многослойной периодической структуре. На рис. 2 представлены СТМ–изображения поверхности слоя $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ в первом (см. рис. 2, а) и пятом (см. рис. 2, б) периоде. Массив островков получен при температуре роста 250 °C. Построены гистограммы распределения числа островков по размерам (рис. 3). В первом периоде наблюдаются островки плотностью $5,18 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ со средним размером 8,95 нм (см. рис. 3, а). Толщина осажденной пленки $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ составила 1,78 нм. Из гистограммы на рис. 3, б следует, что средний размер островков в пятом периоде составляет 4 нм, а плотность островков достигает значения $1,8 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ при эффективной толщине пленки $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ 1,89 нм. Увеличение плотности в 3,5 раза и уменьшение размера островков в 2 раза может быть связано с увеличением доли Sn с ростом числа периодов. Это подтверждается изменением сверхструктур, наблюдаемых по картине ДБЭ при росте пленки Si поверх слоя GeSiSn, от (2×1) и $(2 \times N)$ к сверхструктуре $c(8 \times 4)$. Формирование сверхструктуры $c(8 \times 4)$ возникает в процессе роста Sn на Si, начиная с толщины покрытия 0,4 монослоя (MC) и при температуре роста 400 °C. Уменьшая температуру роста, вплоть до 100 °C, можно увеличить плотность островков. Однако температура роста в диапазоне 150–250 °C более предпочтительна с точки зрения качества поверхности. Увеличение температуры >250 °C, усиливает сегрегацию Sn, а при уменьшении температуры осаждения до 150–200 °C поверхность становится более шероховатой. Поэтому оптимальная температура роста пленок GeSiSn с массивом островков лежит в диа-

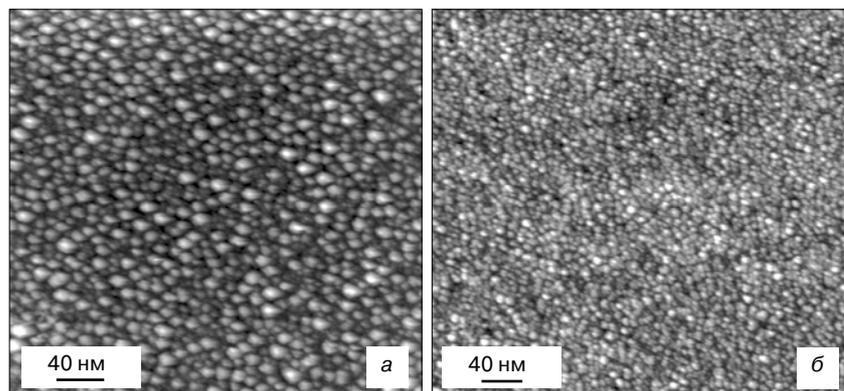


Рис. 2. СТМ–изображения поверхности $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$: а — поверхность $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ в первом периоде; б — поверхность $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ в пятом периоде. Размер скана — $400 \times 400 \text{ нм}^2$

Fig. 2. STM images of $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ surface with the size of the $(400 \text{ nm} \times 400 \text{ nm})$ scan: (а) $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ surface in the first period; (б) $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ surface in the fifth period

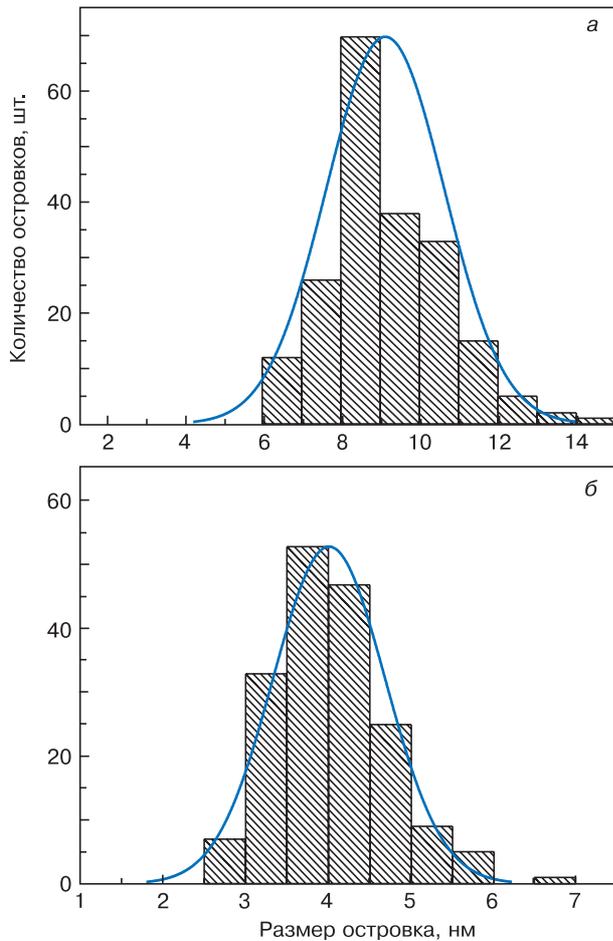


Рис. 3. Гистограммы распределения числа островков от размера основания для пленки $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$: а — в первом периоде (толщина пленки $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ 1,78 нм); б — в пятом периоде (толщина пленки $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ 1,89 нм)

Fig. 3. The histogram of the island distribution versus the size of the base for $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ film: (a) in the first period (the thickness of $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ film equals 1.78 nm); (a) in the fifth period (the thickness of $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}$ film equals 1.89 nm)

пазоне 150—250 °С, где наблюдаются осцилляции зеркального рефлекса при росте смачивающего слоя GeSiSn , соответствующие двумерно-островковому механизму роста пленки.

Кристаллическое совершенство, период, состав, качество гетерограниц изучали методом рентгеновской дифрактометрии. На рис. 4 представлена кривая дифракционного отражения (004) от многослойной структуры с десятью периодами, включающими гетеропереход $\text{Ge}_{0,5}\text{Si}_{0,45}\text{Sn}_{0,05}/\text{Si}$. Период содержит нижний слой $\text{Ge}_{0,5}\text{Si}_{0,45}\text{Sn}_{0,05}$ толщиной 2 нм, выращенный при температуре 100 °С, и слой Si толщиной 10 нм, выращенный при температуре 500 °С. На кривой качания (кривой дифракционного отражения) наблюдаются дифракционные максимумы от подложки и от многослойной периодической структуры, порядок которых обозначен целыми числами от -6 до +3. Максимальный пик соответствует подложке Si. Сателлиты, обозначенные целыми числами, характеризуют периодичность в

многослойной структуре, а толщинные осцилляции относятся к слоям в периодах. Поскольку структура демонстрирует серию сателлитов и толщинные осцилляции, то можно говорить о качественных гетерограницах и сохранении состава и толщины от периода к периоду.

Оптические свойства полученных многослойных структур со слоями GeSiSn исследовали с помощью фотолюминесценции. На рис. 5 представлены спектры фотолюминесценции для многослойной периодической структуры с псевдоморфными слоями $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$, содержащей 10 периодов. Спектры фотолюминесценции, измеренные при темпера-

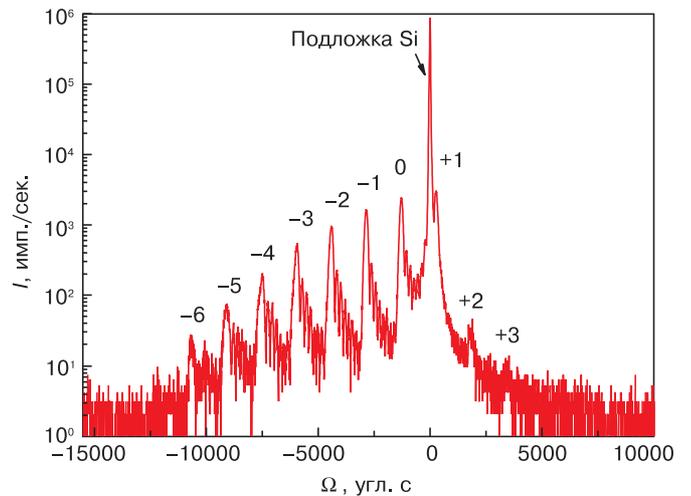


Рис. 4. Кривая дифракционного отражения (004) от многослойной структуры с десятью периодами, содержащими гетеропереход $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}/\text{Si}$

Fig. 4. The (004) rocking curve from the multilayer structures with 10th periods containing $\text{Ge}_{0,75}\text{Si}_{0,2}\text{Sn}_{0,05}/\text{Si}$ heterojunction

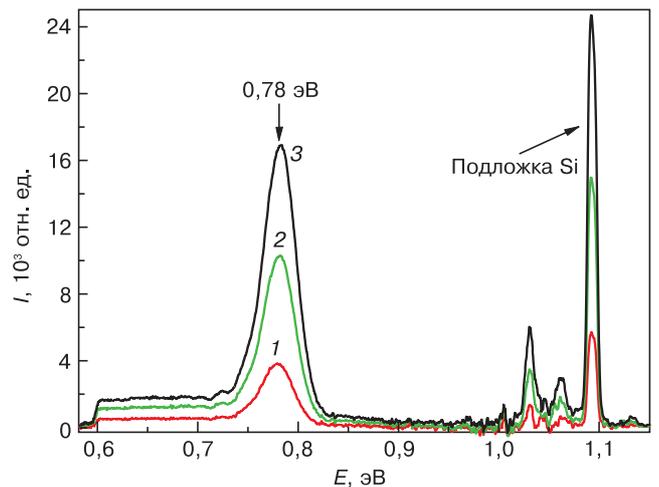


Рис. 5. Спектры фотолюминесценции от многослойной периодической структуры с псевдоморфными слоями $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$: 1 — мощность возбуждения 25 мВт; 2 — 75 мВт; 3 — 120 мВт. Фотолюминесценция измерена при температуре 4,2 К

Fig. 5. The spectra of the photoluminescence from the multilayer periodical structures with the pseudomorphic c $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$ layers: 1 — excitation power equals 25 mW, 2 — excitation power equals 75 mW, 3 — excitation power equals 120 mW. The photoluminescence was measured at the temperature of 4.2 K

туре 4,2 К, получены при мощности возбуждения 25, 75 и 120 мВт. Фотолюминесценция, представленная для образца с псевдоморфными слоями $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$, наблюдается в узком диапазоне 0,71–0,82 эВ с максимумом интенсивности вблизи 0,78 эВ, что соответствует длине волны 1,59 мкм.

Зонную диаграмму гетероструктур GeSiSn/Si рассчитывали, используя подход *model solid theory* [13]. В рамках этой модели для определения положения зон в гетеропереходе необходимо привести оба полупроводника, образующих гетеропереход, к единой «энергетической» шкале. Для гетероструктур Ge/Si хорошо известна величина разрыва валентных зон в гетеропереходе 0,54 эВ [14]. Причем валентная зона Ge лежит выше по энергии, чем валентная зона Si. Разрыв зон между Ge и Sn, известный из модели, представленной в работе [15], составляет 0,69 эВ [16]. Таким образом, для гетероструктуры $\text{Si/Si}_{1-x-y}\text{Ge}_x\text{Sn}_y$ разрыв зон на гетероинтерфейсе может быть определен как

$$\Delta E_{v,av} = 0,54x + 1,23y.$$

Поскольку валентная зона полупроводников образована подзонами тяжелых и легких дырок, а также подзоной, отщепленной спин–орбитальным взаимодействием, то для определения разрыва зон и построения зонной диаграммы гетероструктур используют усредненное по трем подзонам положение валентной зоны $E_{v,av}$. Для определения положения подзон тяжелых и легких дырок, а также подзоны, отщепленной спин–орбитальным взаимодействием, используют следующие выражения:

$$E_{HH(LH)} = E_{v,av} + \Delta_0/3;$$

$$E_{SO} = E_{v,av} - 2/3\Delta_0.$$

здесь индексы «HH», «LH», «SO» указывают на подзоны тяжелых и легких дырок, а также спин–отщепленную подзону, соответственно; Δ_0 — энергия спин–орбитального расщепления в полупроводнике. После определения положения подзон валентной зоны в гетеропереходе определяют положения соответствующих долин зоны проводимости с использованием выражения

$$E^n = E_{\text{Ge}}^n(1-x-y) + E_{\text{Si}}^n x + E_{\text{Sn}}^n y - b_{\text{SiGe}}^n x(1-x-y) - b_{\text{SnGe}}^n y(1-x-y) - b_{\text{SiSn}}^n xy,$$

где индекс $n = \Gamma, L$ и X указывает соответствующую долину; b_{SiGe}^n , b_{SnGe}^n , b_{SiSn}^n — «bowing» параметры, учитывающие отклонение от линейного закона для ширины запрещенной зоны; E_{Ge}^n , E_{Si}^n , E_{Sn}^n — ширина запрещенной зоны Ge, Si и Sn в соответствующей долине. Практически все параметры взяты из работы [16]. Для L– и Γ –долин «bowing» параметры взяты

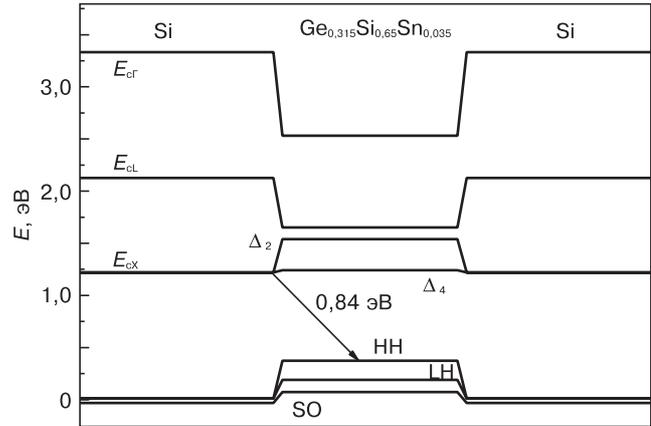


Рис. 6. Зонная диаграмма гетерокомпозиции $\text{Si/Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}/\text{Si}$

Fig. 6. Band diagram of $\text{Si/Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}/\text{Si}$ heterocomposition

из работы [17]. После определения положения всех интересующих нас зон в гетеропереходе учитывали их смещение под влиянием деформаций. Влияние деформаций на ширину запрещенной зоны было учтено с помощью констант деформационного потенциала. Поскольку двумерные слои в рассмотренном случае были псевдоморфными, то для определения деформаций использовали стандартный подход, описанный, например, в работе [18]. Согласно этому подходу, деформации в плоскости квантовой ямы могут быть определены как

$$\epsilon_{xx(yy)} = \epsilon_{||} = \frac{a_{\text{GeSiSn}} - a_{\text{Si}}}{a_{\text{Si}}},$$

где a — постоянная решетки соответствующего материала. В направлении, перпендикулярном к плоскости квантовой ямы, значение деформаций $\epsilon_{zz} = -2(C_{12}/C_{11})\epsilon_{xx}$ можно определить через модули упругости кристаллического соединения C_{12} и C_{11} . Постоянную решетки твердого раствора определяли из квадратичного соотношения

$$a_{\text{GeSiSn}} = a_{\text{Ge}}(1-x-y) + a_{\text{Si}}x + a_{\text{Sn}}y + b'_{\text{SiGe}}x(1-x) + b'_{\text{SnGe}}y(1-y),$$

где a_{Ge} , a_{Si} , a_{Sn} — параметры решетки Ge, Si и Sn [16]; $b'_{\text{SiGe}} = -0,0026$ нм, $b'_{\text{SnGe}} = 0,0166$ нм — «bowing» параметры, учитывающие отклонение от закона Vegarda.

Исходя из расчета зонной диаграммы для гетерокомпозиции $\text{Si/Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}/\text{Si}$, можно сказать, что люминесценция с энергией фотонов 0,78 эВ соответствует межзонным переходам между X–долиной в Si или между Δ_4 –долиной в $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$ и подзоной тяжелых дырок в слое $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$ (рис. 6). Дальнейшие исследования будут направлены на изучение оптических переходов в многослойных структурах с псевдоморфными слоями GeSiSn с высоким содержанием Ge и Sn, а также с массивом квантовых точек.

Заключение

Исследован рост упругонапряженных пленок и островков GeSiSn. Установлена кинетическая диаграмма морфологического состояния пленок GeSiSn при различных несоответствиях параметров решетки GeSiSn и Si. Получены многослойные периодические структуры с псевдоморфными слоями и массивом островков GeSiSn. Плотность островков в слое GeSiSn достигает $1,8 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ при среднем размере островков 4 нм. Установлено, что структуры содержат гладкие гетерограницы, и не обнаружено сильных изменений состава и толщины от периода к периоду. Продемонстрирована фотолюминесценция и проведен расчет зонной диаграммы с использованием подхода *model solid theory*. Люминесценция, продемонстрированная для образца с псевдоморфными слоями $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$, наблюдается в узком диапазоне 0,71—0,82 эВ с максимумом интенсивности вблизи 0,78 эВ, что соответствует длине волны 1,59 мкм. Исходя из расчета зонной диаграммы для гетерокомпозиции $\text{Si}/\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}/\text{Si}$, можно сказать, что люминесценция с энергией фотонов 0,78 эВ соответствует межзонным переходам между X-долиной в Si или между Δ_4 -долиной в $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$ и подзоной тяжелых дырок в слое $\text{Ge}_{0,315}\text{Si}_{0,65}\text{Sn}_{0,035}$.

Библиографический список

- Soref R. A., Perry C. H. Predirect bandgap of the new semiconductor SiGeSn // *J. Appl. Phys.* – 1991. – V. 69, N 1. – P. 539—541. DOI: 10.1063/1.347704
- Moontragoon P., Ikonić Z., Harrison P. Band structure calculation of Si—Ge—Sn alloys: achieving direct bandgap materials // *Semicond. Sci. Technol.* – 2007. – V. 22, N 7. – P. 742—748. DOI: 10.1088/0268-1242/22/7/012
- Du W., Ghetmiri S. A., Conley B. R., Mosleh A., Nazzal A., Soref R. A., Sun G., Tolle J., Margetis J., Naseem H. A., Yu S.-Q. Competition of optical transitions between direct and indirect bandgaps in $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ // *Appl. Phys. Lett.* – 2014. – V. 105, N 5. – P. 051104-1—4. DOI: 10.1063/1.4892302
- Senaratne C. L., Gallagher J. D., Aoki T., Kouvetakis J., Menéndez J. Advances in light emission from group-IV alloys via lattice engineering and *n*-type doping based on custom-designed chemistries // *Chem. Mater.* – 2014. – V. 26, N 20. – P. 6033—6041. DOI: 10.1021/cm502988y
- Wirhths S., Buca D., Mantl S. Si—Ge—Sn alloys: From growth to applications // *Progress in crystal growth and characterization of materials.* – 2016. – V. 62, N 1. – P. 1—39. DOI: 10.1016/j.pcrysgrow.2015.11.001
- Wirhths S., Geiger R., von den Driesch N., Mussler G., Stoica T., Mantl S., Ikonić Z., Luysberg M., Chiussi S., Hartman J. M., Sigg H., Faist J., Buca D., Grützmacher D. Lasing in direct-bandgap GeSn

alloy grown on Si // *Nature Photonics.* – 2015. – V. 9. – P. 88—92. DOI: 10.1038/nphoton.2014.321

7. Asano T., Terashima T., Yamaha T., Kurosawa M., Takeuchi W., Taoka N., Nakatsuka O., Zaima S. Epitaxial growth and crystalline properties of $\text{Ge}_{1-x-y}\text{Si}_x\text{Sn}_y$ on Ge(001) substrates // *Solid-State Electronics.* – 2015. – V. 110. – P. 49—53. DOI: 10.1016/j.sse.2015.01.006

8. Esteves R. J. A., Hafiz S., Demchenko D. O., Özgür Ü., Arachchige I. U. Ultra-small $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ quantum dots with visible photoluminescence // *Chem. Commun.* – 2016. – V. 52, N 78. – P. 11665—11668. DOI: 10.1039/c6cc04242b

9. Wirhths S., Tiedemann A. T., Ikonić Z., Harrison P., Holländer B., Stoica T., Mussler G., Myronov M., Hartmann J. M., Grützmacher D., Buca D., Mantl S. Band engineering and growth of tensile strained Ge/(Si)GeSn heterostructures for tunnel field effect transistors // *Appl. Phys. Lett.* – 2013. – V. 102, N 19. – P. 192103-1—4. DOI: 10.1063/1.4805034

10. von den Driesch N., Stange D., Wirhths S., Mussler G., Holländer B., Ikonić Z., Hartmann J. M., Stoica T., Mantl S., Grützmacher D., Buca D. Direct bandgap group IV epitaxy on Si for laser applications // *Chem. Mater.* – 2015. – V. 27, N 13. – P. 4693—4702. DOI: 10.1021/acs.chemmater.5b01327

11. Kato K., Asano T., Taoka N., Sakashita M., Takeuchi W., Nakatsuka O., Zaima S. Robustness of Sn precipitation during thermal oxidation of $\text{Ge}_{1-x}\text{Sn}_x$ on Ge(001) // *Jpn. J. Appl. Phys.* – 2014. – V. 53, N 8S1. – P. 08LD04-1—8. DOI: 10.7567/JJAP.53.08LD04

12. Taoka N., Asano T., Yamaha T., Terashima T., Nakatsuka O., Costina I., Zaumseil P., Capellini G., Zaima S., Schroeder T. Non-uniform depth distributions of Sn concentration induced by Sn migration and desorption during GeSnSi layer formation // *Appl. Phys. Lett.* – 2015. – V. 106, N 6. – P. 061107-1—5. DOI: 10.1063/1.4908121

13. van de Walle C. G. Band lineups and deformation potentials in the model—solid theory // *Phys. Rev. B.* – 1989. – V. 39, N 3. – P. 1871—1883. DOI: 10.1103/PhysRevB.39.1871

14. El Kurdi M., Sauvage S., Fishman G., Boucaud P. Band-edge alignment of SiGe/Si quantum wells and SiGe/Si self-assembled islands // *Phys. Rev. B.* – 2006. – V. 73, N 19. – P. 195327-1—9. DOI: 10.1103/PhysRevB.73.195327

15. Jaros M. Simple analytic model for heterojunction band offsets // *Phys. Rev. B.* – 1988. – V. 37, N 12. – P. 7112—7114. DOI: 10.1103/PhysRevB.37.7112

16. Moontragoon P., Soref R., Ikonić Z. The direct and indirect bandgaps of unstrained $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x-y}\text{Sn}_y$ and their photonic device applications // *J. Appl. Phys.* – 2012. – V. 112, N 7. – P. 073106-1—8. DOI: 10.1063/1.4757414

17. Fischer I. A., Wendav T., Augel L., Jitpakdeebodin S., Oliveira F., Benedetti A., Stefanov S., Chiussi S., Capellini G., Busch K., Schulze J. Growth and characterization of SiGeSn quantum well photodiodes // *Optics Express.* – 2015. – V. 23, N 19. – P. 25048—25057. DOI: 10.1364/OE.23.025048

18. Attiaoui A., Moutanabbir O. Indirect-to-direct band gap transition in relaxed and strained $\text{Ge}_{1-x-y}\text{Si}_x\text{Sn}_y$ ternary alloys // *J. Appl. Phys.* – 2014. – V. 116, N 6. – P. 063712-1—15. DOI: 10.1063/1.4889926

19. Тимофеев В. А., Никифоров А. И., Туктамышев А. Р., Есин М. Ю., Машанов В. И., Гутаковский А. К., Байдакова Н. А. Напряженные многослойные структуры с псевдоморфными слоями GeSiSn // *Физика и техника полупроводников.* – 2016. – Т. 50, № 12. – С. 1610—1614.

20. Nikiforov A. I., Mashanov V. I., Timofeev V. A., Pchelyakov O. P., Cheng H.-H. Reflection high energy electron diffraction studies on $\text{Si}_x\text{Sn}_y\text{Ge}_{1-x-y}$ on Si(100) molecular beam epitaxial growth // *Thin Solid Films.* – 2014. – V. 557. – P. 188—191. DOI: 10.1016/j.tsf.2013.11.128

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 16-32-60005 мол_а_дк, 16-32-00039 мол_а, 16-29-03292 офи_м).

Статья поступила в редакцию 24 ноября 2016 г.

Izvestiya vuzov. Materialy elektronnoi tekhniki = Materials of Electronic Technics. 2017, vol. 20, no. 1, pp. 38–44.
DOI: 10.17073/1609-3577-2017-1-38-44

Multilayered periodical structures with elastically strained GeSiSn layers and GeSiSn nanoislands

V. A. Timofeev^{1,§}, A. I. Nikiforov¹, A. R. Tuktamyshev¹, A. A. Bloshkin¹, V. I. Mashanov¹,
S. A. Teys¹, I. D. Loshkarev¹, N. A. Baidakova²

¹*Rzhanov Institute of Semiconductor Physics, Siberian Branch of Russian Academy of Sciences,
13 Ac. Lavrentiev Ave., Novosibirsk 630090, Russia*

²*Institute for Physics of Microstructures, Russian Academy of Sciences,
7 Academicheskaya Str., Afonino, Nizhny Novgorod region, Kstovsky district 603087, Russia*

Abstract. This work deals with elastically strained GeSiSn films and GeSiSn islands. Kinetic diagram of GeSiSn growth at different lattice mismatches between GeSiSn and Si has been established. Multilayer periodic structures with pseudomorphic GeSiSn layers and GeSiSn island array have been obtained. The density of the islands in the GeSiSn layer reaches $1.8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ at an average island size of 4 nm. Analysis of the rocking curves showed that the structures contain smooth heterointerfaces, and strong changes of composition and thickness from period to period have not been found. Photoluminescence has been demonstrated and calculation of band diagram in the model solid theory approach has been carried out. Luminescence for the sample with pseudomorphic $\text{Ge}_{0.315}\text{Si}_{0.65}\text{Sn}_{0.035}$ layers in narrow range of 0.71–0.82 eV is observed with the maximum intensity near 0.78 eV corresponding to a 1.59 μm wavelength. Based on a band diagram calculation for Si/Ge_{0.315}Si_{0.65}Sn_{0.035}/Si heterocomposition, one can conclude that luminescence with a photon energy of 0.78 eV corresponds to interband transitions between the X-valley in the Si and the heavy hole subband in the Ge_{0.315}Si_{0.65}Sn_{0.035} layer.

Keywords: GeSiSn, nanoislands, epitaxy, diffraction, scanning tunnel microscopy, X-ray diffractometry, photoluminescence, band diagram

References

- Soref R. A., Perry C. H. Predirect bandgap of the new semiconductor SiGeSn. *J. Appl. Phys.* 1991, vol. 69, no. 1, pp. 539–541. DOI: 10.1063/1.347704
- Moontragoon P., Ikonik Z., Harrison P. Band structure calculation of Si–Ge–Sn alloys: achieving direct bandgap materials. *Semicond. Sci. Technol.* 2007, vol. 22, no. 7, pp. 742–748. DOI: 10.1088/0268-1242/22/7/012
- Du W., Ghetmiri S. A., Conley B. R., Mosleh A., Nazzal A., Soref R. A., Sun G., Tolle J., Margetis J., Naseem H. A., Yu S.-Q. Competition of optical transitions between direct and indirect bandgaps in Ge_{1-x}Sn_x. *Appl. Phys. Lett.* 2014, vol. 105, no. 5, pp. 051104-1–4. DOI: 10.1063/1.4892302
- Senaratne C. L., Gallagher J. D., Aoki T., Kouvetakis J., Menéndez J. Advances in light emission from group-IV alloys via lattice engineering and *n*-type doping based on custom-designed chemistries. *Chem. Mater.* 2014, vol. 26, no. 20, pp. 6033–6041. DOI: 10.1021/cm502988y
- Wirths S., Buca D., Mantl S. Si–Ge–Sn alloys: From growth to applications. *Progress in crystal growth and characterization of materials.* 2016, vol. 62, no. 1, pp. 1–39. DOI: 10.1016/j.pcrysgrow.2015.11.001
- Wirths S., Geiger R., von den Driesch N., Mussler G., Stoica T., Mantl S., Ikonik Z., Luysberg M., Chiussi S., Hartman J. M., Sigg H., Faist J., Buca D., Grützmacher D. Lasing in direct-bandgap GeSn alloy grown on Si. *Nature Photonics.* 2015, vol. 9, pp. 88–92. DOI: 10.1038/nphoton.2014.321
- Asano T., Terashima T., Yamaha T., Kurosawa M., Takeuchi W., Taoka N., Nakatsuka O., Zaima S. Epitaxial growth and crystalline properties of Ge_{1-x-y}Si_xSn_y on Ge(001) substrates. *Solid-State Electronics.* 2015, vol. 110, pp. 49–53. DOI: 10.1016/j.sse.2015.01.006
- Esteves R. J. A., Hafiz S., Demchenko D. O., Özgür Ü., Arachchige I. U. Ultra-small Ge_{1-x}Sn_x quantum dots with visible photoluminescence. *Chem. Commun.* 2016, vol. 52, no. 78, pp. 11665–11668. DOI: 10.1039/c6cc04242b

Vyacheslav A. Timofeev¹: Cand. Sci. (Phys.–Math.), Researcher (vyacheslav.t@isp.nsc.ru); **Alexandr I. Nikiforov¹:** Cand. Sci. (Phys.–Math.), Senior Researcher, Head of Laboratory No. 16 (nikif@isp.nsc.ru); **Artur R. Tuktamyshev¹:** Postgraduate Student (artur.tuktamyshev@gmail.com); **Aleksey A. Bloshkin¹:** Cand. Sci. (Phys.–Math.), Researcher (bloshkin@isp.nsc.ru); **Vladimir I. Mashanov¹:** Cand. Sci. (Phys.–Math.), Senior Researcher (mash@isp.nsc.ru); **Sergey A. Teys¹:** Cand. Sci. (Phys.–Math.), Senior Researcher (teys@isp.nsc.ru); **Ivan D. Loshkarev¹:** Cand. Sci. (Phys.–Math.), Researcher (idl@isp.nsc.ru); **Natalia A. Baidakova²:** Cand. Sci. (Phys.–Math.), Junior Researcher (banatale@ipmras.ru)

§ Corresponding author

- Wirths S., Tiedemann A. T., Ikonik Z., Harrison P., Holländer B., Stoica T., Mussler G., Myronov M., Hartmann J. M., Grützmacher D., Buca D., Mantl S. Band engineering and growth of tensile strained Ge/(Si)GeSn heterostructures for tunnel field effect transistors. *Appl. Phys. Lett.* 2013, vol. 102, no. 19, pp. 192103-1–4. DOI: 10.1063/1.4805034
- von den Driesch N., Stange D., Wirths S., Mussler G., Holländer B., Ikonik Z., Hartmann J. M., Stoica T., Mantl S., Grützmacher D., Buca D. Direct bandgap group IV epitaxy on Si for laser applications. *Chem. Mater.* 2015, vol. 27, no. 13, pp. 4693–4702. DOI: 10.1021/acs.cchemmater.5b01327
- Kato K., Asano T., Taoka N., Sakashita M., Takeuchi W., Nakatsuka O., Zaima S. Robustness of Sn precipitation during thermal oxidation of Ge_{1-x}Sn_x on Ge(001). *Jpn. J. Appl. Phys.* 2014, vol. 53, no. 8S1, pp. 08LD04-1–8. DOI: 10.7567/JJAP.53.08LD04
- Taoka N., Asano T., Yamaha T., Terashima T., Nakatsuka O., Costina I., Zaumseil P., Capellini G., Zaima S., Schroeder T. Non-uniform depth distributions of Sn concentration induced by Sn migration and desorption during GeSnSi layer formation. *Appl. Phys. Lett.* 2015, vol. 106, no. 6, pp. 061107-1–5. DOI: 10.1063/1.4908121
- van de Walle C.G. Band lineups and deformation potentials in the model–solid theory. *Phys. Rev. B.* 1989, vol. 39, no. 3, pp. 1871–1883. DOI: 10.1103/PhysRevB.39.1871
- El Kurdi M., Sauvage S., Fishman G., Boucaud P. Band–edge alignment of SiGe/Si quantum wells and SiGe/Si self-assembled islands. *Phys. Rev. B.* 2006, vol. 73, no. 19, pp. 195327-1–9. DOI: 10.1103/PhysRevB.73.195327
- Jaros M. Simple analytic model for heterojunction band offsets. *Phys. Rev. B.* 1988, vol. 37, no. 12, pp. 7112–7114. DOI: 10.1103/PhysRevB.37.7112
- Moontragoon P., Soref R., Ikonik Z. The direct and indirect bandgaps of unstrained Si_xGe_{1-x-y}Sn_y and their photonic device applications. *J. Appl. Phys.*, 2012, vol. 112, no. 7, pp. 073106-1–8. DOI: 10.1063/1.4757414
- Fischer I. A., Wendav T., Augel L., Jitpakdeebodin S., Oliveira F., Benedetti A., Stefanov S., Chiussi S., Capellini G., Busch K., Schulze J. Growth and characterization of SiGeSn quantum well photodiodes. *Optics Express*, 2015, vol. 23, no. 19, pp. 25048–25057. DOI: 10.1364/OE.23.025048
- Attiaoui A., Moutanabbir O. Indirect-to-direct band gap transition in relaxed and strained Ge_{1-x-y}Si_xSn_y ternary alloys. *J. Appl. Phys.*, 2014, vol. 116, no. 6, pp. 063712-1–15. DOI: 10.1063/1.4889926
- Timofeev V. A., Nikiforov A. I., Tuktamyshev A. R., Yesin M. Yu., Mashanov V. I., Gutakovskii A. K., Baidakova N. A. Strained multilayer structures with pseudomorphic GeSiSn layers. *Semiconductors*, 2016, vol. 50, no. 12, pp. 1585–1589. DOI: 10.1134/S106378261612023X
- Nikiforov A. I., Mashanov V. I., Timofeev V. A., Pchelyakov O. P., Cheng H.-H. Reflection high energy electron diffraction studies on Si_xSn_yGe_{1-x-y} on Si(100) molecular beam epitaxial growth. *Thin Solid Films*, 2014, vol. 557, pp. 188–191. DOI: 10.1016/j.tsf.2013.11.128