

П.И. ГАЙДУК, К. ТРАУТМАН (ФРГ), М. ТОЛЕМОИД (Франция), А.П. ЛАРСЕН (Дания)

ТРЕКОВАЯ ПРЕЦИПИТАЦИЯ В ПЕРЕСЫЩЕННЫХ СЛОЯХ $\text{Si}_{0,5}\text{Ge}_{0,5}$ -СПЛАВОВ

We report the first observation of latent tracks in a single-crystalline $\text{Si}_{0,5}\text{Ge}_{0,5}$ alloy layers irradiated with 1,3 GeV U ions in the electronic stopping power regime. Transmission electron microscopy in both conventional and high-resolution mode reveals more or less discontinuous tracks depending on the composition of the $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ alloy and on the arsenic doping level. The morphology and the atomic structure of the tracks are analyzed. The results are discussed in the frame of the thermal-spike approach which assumes both track melting and imperfect crystallization.

Скрытые треки – длинные узкие цилиндрические области с модифицированным структурно-фазовым составом – формируются при прохождении тяжелых ионов сверхвысоких энергий через диэлектрики или интерметаллиды в условиях, когда электронные потери энергии ионов S_e превышают пороговый уровень [1]. В случае полупроводников критерий трекообразования не столь однозначен и может сильно зависеть от структурных и электронных свойств материала [1–4]. К настоящему времени известны факты формирования треков в сложных полупроводниках [2–4]. Напротив, неоднократно показана структурная нечувствительность Si и Ge к прохождению тяжелых ионов МэВ – ГэВ-диапазона энергий [1, 5]. В настоящей работе сообщается о формировании прерывистых треков и трековой преципитации в SiGe- и SiGe+As-сплавах при облучении ионами U^+ с энергией 1,3 ГэВ ($S_e = 33,8$ кэВ/нм).

Материал и методика

Методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) на пластинах (001)-Si *p*-типа проводимости выращивали слои эпитаксиального сплава $\text{Si}_{0,5}\text{Ge}_{0,5}$ толщиной $2 \cdot 10^3$ нм. Для релаксации напряжений использовали буферы переменного состава [6]. Эпитаксиальные слои имели высокое структурное качество и содержали низкую плотность ростовых дислокаций (10^5 – 10^6 см $^{-2}$). На глубине 50 и 250 нм формировали две полосы высоколегированного сплава толщиной 60 нм каждая путем *in-situ* имплантации ионов As^+ с энергией 1 кэВ при 450 °С. Концентрация As в полосах составляла $1,1 \cdot 10^{21}$ см $^{-3}$, что в 10 раз выше предела равновесной растворимости и благоприятно для преципитации GeAs [7]. Образцы облучали ионами U^+ с энергией 1,3 ГэВ до дозы 10^{10} см $^{-2}$ с плотностью тока $2 \cdot 10^8$ ион/см $^{-2}$ ·с $^{-1}$ при комнатной температуре. В соответствии с расчетами TRIM95 электронные и ядерные потери энергии ионов составляли соответственно $S_e = 33,8$ кэВ/нм и $S_n = 0,024$ кэВ/нм и практически не изменялись в приповерхностном слое. Имплантированные слои исследовались с помощью методов просвечивающей электронной микроскопии в plan-view (PV-ПЭМ) или cross-section (X-ПЭМ) геометриях с использованием прибора Philips CM-20. Образцы препарировались с применением обычной техники последовательного механического полирования в сочетании с ионно-лучевым травлением.

Результаты и их обсуждение

На рис. 1 а представлено типичное светлопольное PV-ПЭМ-изображение структуры SiGe, полученное при наклоне образца под углом 5° в колонне микроскопа по отношению к пучку электронов. Хорошо видны точечные и удлиненные темные пятна размером около 3–10 нм, большая часть которых упорядочена вдоль траекторий ионов U^+ . Такая прерывистая

морфология треков сопровождается вариацией диаметра отдельных дефектов вдоль ионных траекторий. В приповерхностной области, равной $\sim 0,5 - 1$ мкм (толщина образца, приготовленного для РВ-ПЭМ-исследований), треки состоят из 1–5 отдельных точечных (удлиненных) фрагментов. Плотность прерывистых треков составляет около $(8-9) \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$, что хорошо коррелирует с дозой имплантированных ионов U^+ .

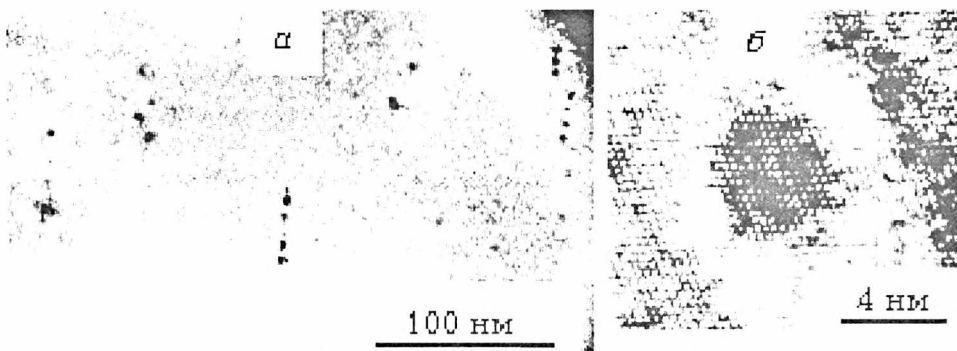


Рис. 1. Светлопольное РВ-ПЭМ-изображение структуры слоев $\text{Si}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ сплава, облученного ионами U^+ с энергией 1,3 ГэВ при комнатной температуре (а); изображение атомной структуры трекового дефекта, полученное в режиме высокого разрешения (б)

Дефекты имеют очень слабый ПЭМ-контраст или практически невидимы для большинства условий формирования изображения. Максимальный контраст достигается в двухлучевых условиях при большом отклонении пучка электронов от точных дифракционных условий ($s \gg 0$), что свидетельствует о преимущественно кристаллической структуре треков. Этот вывод подтверждается также изображением атомной структуры поперечного сечения одного из них (см. рис. 1 б). Внутренняя область трека (темная зона) имеет диаметр 4–5 нм. Сильный контраст атомных цепочек свидетельствует о структурном совершенстве внутренней части ядра трека. Периферийное кольцо диаметром около 10 нм содержит светлую область с более размытым контрастом, что, по-видимому, связано с большим содержанием точечных дефектов и кластеров. Граница раздела между центральной и периферийной областями достаточно четкая и имеет заметную огранку вдоль (111)-плоскостей.

На рис. 2 приведены микрофотографии структуры, полученные в поперечном сечении образца (Х-ПЭМ). Формирования трековых дефектов в подложке Si или в буферном слое SiGe не обнаружено. Напротив, в верхнем слое $\text{Si}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ выявлены прерывистые треки, содержащие кластеры дефектов различной плотности и формы. Установлено, что вероятность трекообразования существенно возрастает, когда траектория ионов U^+ с энергией 1,3 ГэВ пересекает слой SiGe с уровнем легирования As выше предела равновесной растворимости. Четко прослеживается явная тенденция трансформации изолированных точек в протяженные трековые сегменты (указаны стрелками) в областях высокого легирования. Согласно [8] это означает улучшение условий для формирования треков в слоях SiGe, легированных мышьяком. Другая важная особенность прохождения ионов через пересыщенный слой SiGe+As – формирование выделений другой фазы (см. рис. 2). Некоторое количество сферических дефектов (Р) с диаметром около 10 нм было зарегистрировано в пересыщенных слоях SiGe+As на пересечении с траекториями ионов U^+ . Эти дефекты имели черно-белый контраст в двух-

лучевых условиях формирования изображения. Вдали от брэгговских условий дифракции дефекты имеют слегка ограненную форму и однородный темный контраст. Все это указывает на то, что дефекты являются включениями другой фазы, имеющими в своем составе атомы большей, чем Si, массы. В соответствии с нашими недавними исследованиями [7] эти дефекты могут быть идентифицированы как преципитаты GeAs. Дополнительным свидетельством является наличие контраста Муара на некоторых дефектах с характерными расстояниями между полосами [7].

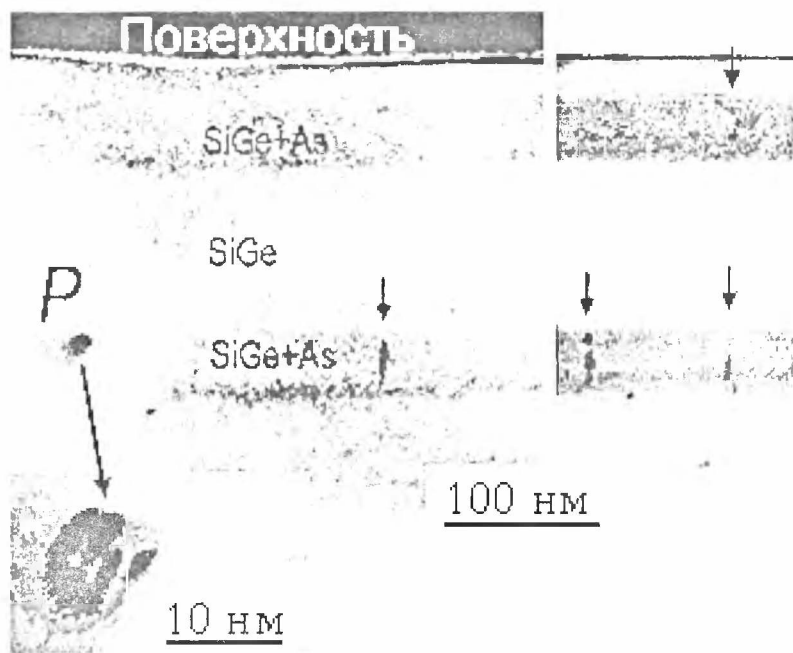


Рис. 2. Светлопольные X-ПЭМ-изображения структуры SiGe-сплава с высоколегированными слоями SiGe+As после облучения ионами U^+ с энергией 1,3 ГэВ.

P и увеличенная вставка — пример трековой преципитации — формирование выделения GeAs из пересыщенного сплава SiGe+As

Таким образом, суммируя результаты ПЭМ-исследований, можно сделать вывод о формировании прерывистых треков в слоях $Si_{0,5}Ge_{0,5}$ -сплавов при их облучении ионами U^+ высоких энергий. На первый взгляд, этот результат противоречит неоднократным сообщениям об отсутствии признаков трекообразования в кристаллах Si и Ge даже в условиях более высоких потерь энергии ионов [5]. Так, один из ключевых параметров модели термических пиков — температура плавления — монотонно возрастает от 938 (Ge) до 1412 °C (Si). Поэтому, если треки образуются в сплаве $Si_{0,5}Ge_{0,5}$ ($T_{пл}=1180$ °C), то, как минимум, они должны формироваться в Ge и $Si_{1-x}Ge_x$ -сплавах с $0,5 < x < 1$. В то же время термическое сопротивление сплавов $Si_{1-x}Ge_x$ изменяется немонотонно с ростом x , достигая максимума в композиционном интервале $x=0,2-0,4$ [9]. Однако ПЭМ-исследования выявили резкое уменьшение плотности трековых дефектов в таких сплавах по сравнению с $Si_{0,5}Ge_{0,5}$.

Наконец, важным аргументом в пользу модели термических пиков является (111)-ограничение ядра трека (см. рис. 2 б), которое, очевидно, обусловлено сильной зависимостью скорости жидкофазного роста от кристаллографической ориентации. В частности, из исследований сверхбыстрой жид-

кофазной кристаллизации (скорость роста v выше 10 м/с) установлено, что отношение скоростей v_{100}/v_{111} составляет величину, равную 1,65 [10, 11]. Разница между v_{100} и v_{111} связана с различной морфологией границ раздела жидкость – кристалл, которая является атомно-гладкой для поверхности (111). В результате продвижение фронта кристаллизации в направлении [111] лимитируется наиболее медленной стадией формирования двумерных зародышей и их поперечным распространением [10]. Таким образом, затвердевание жидкости внутри расплавленного трека начинается с почти круговой границы раздела, которая постепенно трансформируется в (111)-ограниченную. На начальной стадии роста граница раздела шероховатая с высокой плотностью атомных ступенек, что приводит к экстремально высокой скорости кристаллизации и захвату большого количества точечных дефектов и кластеров в периферийной области трека. Трансформация шероховатой круговой границы раздела в гладкую и ограниченную характеризуется резким замедлением кристаллического роста и меньшей концентрацией захваченных дефектов.

Поэтому можно определить два основных критерия трекообразования: сверхпороговость (достаточную для плавления) электронных потерь энергии ионов U^+ и несовершенство кристаллизации расплава в трековой области [2, 3]. В условиях монокристаллической Si- или Ge-матрицы расплав трековой области окружен совершенным кристаллом. Неискаженные ковалентные связи, фиксированные в тетраэдрических направлениях, обуславливают правильное присоединение атомов расплава к кристаллической матрице и тем самым обеспечивают хорошее качество эпитаксиальной рекристаллизации треков. В случае же, когда исходная матрица содержит большое количество дефектов, рекристаллизация несовершенна и расплав может переходить в аморфную фазу, как это имеет место в случае InP [2, 3]. Структурно-совершенные кристаллы, состоящие из атомов, различающихся по массе, размеру, типу и длине связи, могут также считаться высокодефектными, поскольку имеют большие искажения решетки на атомном уровне. Типичным примером служат кристаллы $Si_{1-x}Ge_x$ -сплавов, в которых наличие атомов различного сорта приводит к сильным *локальным* искажениям как длины, так и направлений (углов) атомных связей [12]. Поэтому можно утверждать, что при переходе атомов из жидкой фазы в кристаллически связанное состояние происходит скачкообразное изменение параметров атомных связей, что увеличивает вероятность формирования дефектов. Это утверждение хорошо согласуется с экспериментальными результатами исследований твердофазного эпитаксиального роста сплавов $Si_{1-x}Ge_x$. В частности, немонотонная зависимость энергии активации кристаллического роста [13, 14] объяснялась микродеформациями, вызванными изменением параметров атомных связей. Эффекты сегрегации и преципитации существенно затрудняют кристаллизацию трекового расплава. Было показано [15], что сплавы $Si_{1-x}Ge_x$, кристаллизованные в неравновесных условиях, содержат упорядоченные области, где димеры Ge-Ge и Si-Si расположены в разных плоскостях. Аналогичным образом при эпитаксиальном росте происходит поверхностная сегрегация As. Так, его присутствие существенно замедляет процесс кристаллизации [16] и способствует преципитации [7].

Эффект трековой преципитации в пересыщенных слоях может быть использован как *новый метод синтеза упорядоченных массивов квантовых*

точек, расположенных *эквидистантно* и имеющих одинаковый размер. В его основе лежат два ключевых процесса.

1. Многослойные эпитаксиальные структуры, состоящие из тонких (~1–10 нм) пересыщенных слоев, пространственно разделенных более толстыми слоями равновесного материала, можно приготовить методами прецизионного роста (MBE, CVD).

2. При облучении указанных структур тяжелыми ионами высоких энергий происходит образование зародышей (нанокристаллов) новой фазы в пересыщенных слоях. При этом обеспечивается эквидистантность расположения квантовых точек, их пространственное упорядочение и гомогенность по размерам. Получаемые структуры будут представлять собой пространственные решетки, в узлах которых располагаются квантовые точки (преципитаты).

Таким образом, прерывистые треки сформированы в монокристаллических слоях сплава $\text{Si}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ при прохождении ионов U^+ с энергией 1,3 ГэВ в режиме электронного торможения. Исследованы морфология и атомная структура треков в зависимости от состава сплава и легирования мышьяком.

Работа выполнялась при финансовом содействии БРФФИ (проект Ф99-147), а также в рамках NATO LG № 976564. Авторы выражают благодарность Дж. Хансену за помощь в приготовлении образцов.

1. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. B. 1998. Vol. 146.
2. Herre O., Wesch W., Wendler E. et al. // Phys. Rev. B. 1998. Vol. 58. P. 4832.
3. Gaiduk P.I., Komarov F.F., Wesch W. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., Sect. B. 2000. Vol. 164-165. P. 377.
4. Szenes G., Horvath Z.E., Pecz B. et al. // Phys. Rev. B. 2000. Vol. 65. P. 045206.
5. Marie P., Levallois M., Paumier E. et al. // J. Appl. Phys. 1996. Vol. 79. P. 7555.
6. Gaiduk P.I., Larsen A.N., Hansen J.L. // Thin Solid Films. 2000. Vol. 367. P. 120.
7. Gaiduk P.I., Larsen A.N. // J. Appl. Phys. 1998. Vol. 84. P. 4185.
8. Meftah A., Brisard F., Constantini J.M. et al. // Phys. Rev. B. 1993. Vol. 48. P. 920.
9. Dismukes J.P., Ekstrom R., Steigmeier E.F. et al. // J. Appl. Phys. 1964. Vol. 35. P. 2899.
10. Yater J.A., Thompson M.O. // Phys. Rev. Lett. 1989. Vol. 63. P. 2088.
11. Ivlev G.D., Gatskevich E.I. // Appl. Surf. Sci. 1999. Vol. 143. P. 265.
12. Aubry J.C., Tylliszczak T., Hitchcock A.P. et al. // Phys. Rev. B. 1999. Vol. 59. P. 12872.
13. Shiryayev S.Yu., Fyhn M., Larsen A.N. // Appl. Phys. Lett. 1993. Vol. 63. P. 3476.
14. Kringhøj P., Elliman R.G. // Phys. Rev. Lett. 1994. Vol. 73. P. 858.
15. Ikarashi N., Oshiyama A., Sakai A., Tatsumi T. // Phys. Rev. 1995. Vol. B51. P. 14786.
16. Ahmed W., Meakin D.B. // J. Cryst. Growth. 1986. Vol. 79. P. 394.

Поступила в редакцию 13.03.2003.

Петр Иванович Гайдук – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физической электроники.

Кристина Траутман – доктор, Центр исследований тяжелых ионов (Дармштадт, ФРГ).

Мархель Толемонд – доктор, Национальный центр исследований тяжелых ионов (Козн, Франция).

Арне Н. Ларсен – доктор, Институт физики и астрономии Орхусского университета (Дания).