

基板による全反射X線を利用したGe/Si(001)ナノドット自己形成過程の 実時間測定

Real time observation of Ge/Si(001) nanodots formation using total-reflection X-ray from substrate

花田 貴^a、田尻 寛男^b、坂田 修身^b、嶺岸 耕^a、八百 隆文^a
Takashi Hanada^a, Hiroo Tajiri^b, Osami Sakata^b, Tsutomu Minegishi^a, Takafumi Yao^a

^a東北大学、^b高輝度光科学研究センター
^aTohoku Univ., ^bJASRI

6 軸 X 線回折計上の分子線エピタキシ成長チャンバーを利用して、Si(001)基板上的自己形成 Ge ドット成長過程のその場 X 線回折実験を行った。ドット内の歪分布とドットの高さを、全反射条件でのドットからの散乱強度の視射角依存性測定によって見積もった。

In situ X-ray diffraction measurements during growth of the self-assembled Ge dots on Si(001) were carried out using a molecular-beam epitaxy chamber mounted on a six-circles diffractometer. Strain distribution in the dots and height of the dots are estimated by measuring glancing-angle dependence of the scattering intensity from the dots under total-reflection condition.

キーワード： 自己形成ナノドット、全反射 X 線定在波、その場 X 線回折、歪分布測定

背景と研究目的： 格子不整合系ヘテロ成長において歪を緩和するために自己形成されるドットの電子状態は構造の基本的な要素である形状、サイズ、組成、歪によって決まる。従って、成長温度、成長速度、成長時間などのドット作製条件とこれらの構造パラメータの関係を明らかにすることが、ドットの物性を制御するために重要である。本研究は、Si(001)基板上的 Ge ドットの形成過程を X 線回折で実時間測定し、これらの構造パラメータの変化に関する定量的データを得ることを目的とした。特に、濡れ層(WL)/基板からの全反射波と入射波の干渉による基板面垂直方向ナノスケール周期の定在波を利用することで、ドットの高さやドット内の等歪面の高さに関する情報を得ることを試みた。

実験： BL13XU ハッチ 3 に設置されている 6 軸 X 線回折計上の超高真空分子線エピタキシ成長チャンバーを利用して、その場測定を行った。Si(001)基板を通电加熱により 1200°C で清浄化し、500°C~700°C の基板に Ge を 1 原子層(ML)/min の速度で蒸着した。X 線回折測

定は全反射臨界角(α_c)以下の視射角(α)で行った。Ge の WL は 4 ML と報告されており、測定に用いた 11 KeV の X 線の α_c はほぼ基板 Si の場合と等しい 0.16° である。

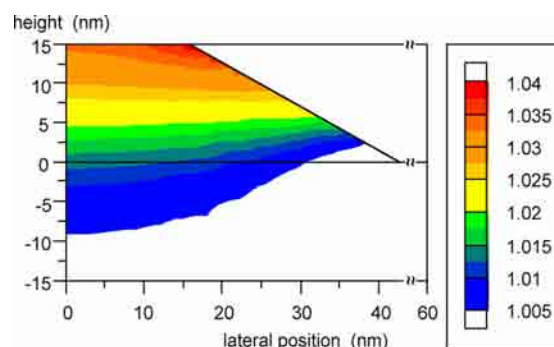


Fig. 1, Distribution of in-plane lattice parameter in a Ge/Si dot.

結果、および、考察： Fig.1 は Si(001)基板に 4ML の Ge WL と高さ 15nm の軸対称 Ge ドットが成長した場合について、有限要素法で計算した(001)面内方向の格子間隔を Si の格子間隔を 1 として表示したものである。Ge の格子定数は Si のそれより 4% 大きいので、この場合はドットの頂上付近ではほぼ Ge 本

来の格子定数まで歪が緩和している。等歪面は基板面にほぼ平行になっており、ほぼ一定の高さ付近に分布している。Fig.1ではドットの高さを15 nmとした場合の計算結果を示しているが、WLとドット表面層の厚さの効果を無視すれば、ドットのスケールを変えてもドットの形状と組成分布が同じならドット内の歪分布は相似変化する。

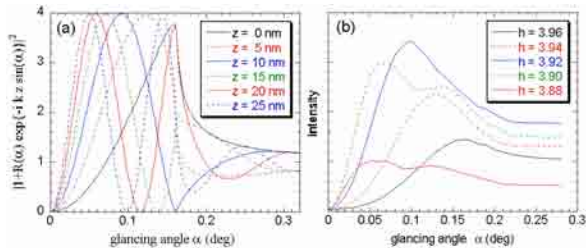


Fig. 2, Specular standing wave intensity at several heights from the Ge WL surface (a) and X-ray scattering intensity of $hh0$ reflection (b) as functions of glancing angle α .

ドットが基板表面に疎に分布しているとき、 α_c 以下の入射では、ドット内のX線強度分布は入射波とWLに覆われた基板による全反射波（振幅 $R(\alpha)$ ）とのつくる定在波の強度分布で近似できる¹⁾。Fig.2(a)に示したように定在波強度の α 依存性がWL表面からの高さ z によって変化することを利用して、ドット内の等歪面の高さをその場測定できる可能性がある。Fig.2(a)で、 k はX線の波数である。 $R(\alpha)$ の大きさは α_c 以下でほぼ1であるが、 $R(\alpha)$ の位相は $\alpha = 0$ で入射波と逆であり、WLがない場合は α_c 以上で入射波と等しくなる。4 MLのGeWLがあると α_c 以上でも若干の位相のずれが生じるが、 α_c 付近ではWL表面付近($z = 0$)で定在波の強度が強くなる。逆に $\alpha = 0$ に近づくと $z = 0$ での定在波の強度は弱くなり、Fig.2(a)の計算のようにドット内の高い領域で順に定在波が強くなる。620°Cで成長したGeドットについて hhl 反射強度の α 依存性をFig.2(b)に示す。ここで、反射の指数はSiの格子定数について与えられており、 $l = 0.05$ で測定した。面内格子定数がバルクGeの格子定数に等しい場合、 $h = 3.84$ に反射が現れることになる。Fig.2(b)に示した $h = 3.96, 3.94, 3.92, 3.90, 3.88$ の曲線はそれぞれSiと1%, 1.5%, 2%, 2.5%, 3%の面内格子間隔のずれがある等歪（正しくは等格子間隔）領域からの反射を表す。Fig.2(a)と比較するとそれぞれの等歪領域は基板表面からおおよそ z

$= 0$ nm, 5 nm, 10 nm, 15 nm, 20~25 nmの高さにあり、ドットの高さは25 nm程度であると考えられる。測定した曲線の強度はそれぞれの等歪領域に含まれる原子数に依存している。測定した曲線がFig.2(a)と比べブロードであるのはFig.1のように等歪領域の高さ z が一定ではないためであると考えられる。

Fig.3に基板温度560°CでGeを成長させ、 hhl 反射強度をその場測定した結果を示す。 α は左から0.10°, 0.05°, 0.02°であり、約1 MLのGe成長ごとの散乱強度分布を実時間測定している。Si(001)基板の上の初めの4 MLまでのGe成長中は散乱強度曲線（赤）に変化が見られず、Geの2次元WLがコヒーレント成長していることを示している。4 ML以上のGeの成長（黒）に伴ってドットへと形状が変化し、アスペクト比（高さ/底面径）の増加に伴って歪みの緩和のおこり、散乱強度がピークになる h の値が減少していき、その後ほぼ一定のアスペクト比と歪でドットが成長する過程が観測された。 α を小さくすると、WL表面付近での定在波強度が弱くなり、逆にドット内の頂上付近の領域では、定在波強度が底付近に比べて相対的に強くなる。このため α を小さくすると、歪の緩和が起こっているドットの頂上付近からの散乱が相対的に強くなり、 h の小さい側にピークが移動する。

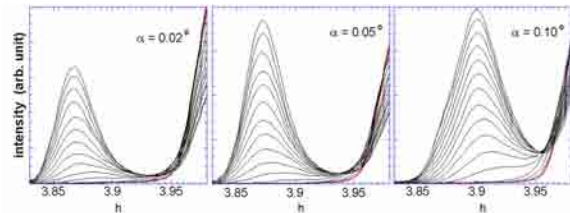


Fig. 3, Development of in-plane scattering intensity of $hh0$ reflection during growth of the Ge dots on Si(001).

今後の課題： 今後はドットのアスペクト比など形状を表す因子とドット内の組成分布によって決まる歪分布、および、サイズをパラメーターとして全反射条件でのX線散乱強度を計算し、このような α 依存性の測定結果と比較することで、成長中のドットの構造変化を定量的に解析できるようにする必要がある。

参考文献

- 1) I. Kegel, et al., Phys. Rev. B **63**, 035318 (2001).