

Im Inneren von Halbleiter-Nanostrukturen

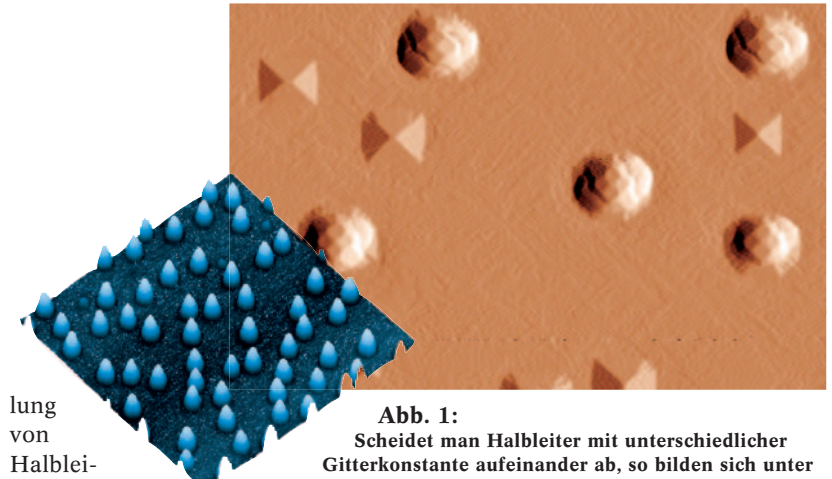
Wie sich Interdiffusion und Gitterdehnung auf der Nanometer-Skala messen lassen

Julian Stangl, Tobias Schüllli, Hartmut Metzger und Günther Bauer

Nanostrukturen locken nicht nur mit grundlegenden Erkenntnissen, sondern auch mit revolutionären Anwendungen. Mit Hilfe hochintensiver Synchrotronstrahlungsquellen ist es möglich, das Innenleben von Halbleiter-Nanostrukturen, die beim epitaktischen Wachstum verschiedener Halbleiter selbstorganisiert entstehen, aufzuklären. Diese Untersuchungen ermöglichen es, die elektronischen und optischen Eigenschaften solcher Strukturen zu verstehen und vorherzusagen.

Halbleiter-Nanostrukturen sind wichtige Modellsysteme, um die Eigenschaften von Ladungsträgern zu untersuchen, die sich nicht in allen drei Raumdimensionen frei bewegen können. Außerdem sind derartige Strukturen Bausteine für die Nano- und Optoelektronik [1, 2]. Schon in konventionellen Metall-Oxid-Halbleiterbauelementen ist die Ladungsträgerbewegung im Wesentlichen auf eine Ebene an der Grenzfläche zwischen Oxid und Halbleiter beschränkt. Die Elektronen befinden sich in einem etwa dreiecksförmigen eindimensionalen Potentialtopf senkrecht zur Oberfläche, der die quantenmechanisch möglichen Energieniveaus festlegt. In Halbleiter-Heterostrukturen gelingt es durch eine Schichtfolge ABA von zwei Halbleitern A und B mit unterschiedlicher Energielücke (z. B. Si und Ge, GaAs und AlGaAs), rechtecksförmige Potentialtöpfe entlang der Wachstumsrichtung zu verwirklichen, sobald die Schichtdicke des Materials B kleiner als die de Broglie-Wellenlänge der Elektronen wird.¹⁾ Beschränkt man die freie Bewegung der Ladungsträger in einer weiteren Raumrichtung, d. h. erzeugt man einen zweidimensionalen Potentialtopf, so erhält man so genannte „Quantendrähte“, in denen z. B. der Leitwert nur mehr diskrete Werte annehmen kann. Durch einen dreidimensionalen Potentialtopf entstehen schließlich „Quantenpunkte“ mit quantenmechanischen Eigenschaften, die denen von Atomen ähneln.

Derartige Quantenpunkte lassen sich aus Halbleiter-Heterostrukturen etwa durch optische oder Elektronenstrahl-Lithographie und nachfolgende Ätzschritte erzielen. Allerdings erweist es sich bei Nanostrukturen mit charakteristischen Abmessungen von etwa 10 bis 100 nm oft als schwierig, defektfreie und ausreichend glatte Grenzflächen zu erzeugen. Aus diesem Grund beschäftigt sich seit etwa 1990 eine große Zahl von Arbeitsgruppen mit einer anderen Methode zur Herstel-



lung von Halbleiter-Nanostrukturen, dem selbstorganisierten Wachstum (Abb. 1) [3].

Scheidet man mittels Molekularstrahlepitaxie oder CVD (*chemical vapor deposition*) Halbleiter mit unterschiedlicher Gitterkonstante aufeinander ab, so tritt unter bestimmten Bedingungen eine spontane Wachstumsinstabilität auf. Während für die ersten abgeschiedenen Atomlagen die Gitterkonstante in der Wachstumsebene durch diejenige des Substrats bestimmt wird, die wachsende Schicht somit biaxial verspannt ist, wachsen jenseits einer kritischen Schichtdicke nicht nach und nach einzelne Atomlagen, sondern dreidimensionale Inseln. Dies geht mit einer Vergrößerung der Oberflächenenergie einher, gleichzeitig können die dreidimensionalen Inseln jedoch elastisch relaxieren, wodurch sich die elastische Verspannungsenergie vermindert (Abb. 2). Dieser Vorgang der Inselbildung auf einer benetzenden, biaxial verspannten Schicht (*wetting layer*) wird als Stranski-Krastanow-Wachstumsinstabilität bezeichnet. Im Gegensatz zur plastischen Relaxation, bei der die Fehlanpassung der Gitterkonstanten zu Versetzungen führt, entstehen bei der elastischen Relaxation keine solchen Defekte. Dies ist für elektronische und optische Eigenschaften von großer Bedeutung. Besonders wichtige Halbleitersysteme sind InAs auf GaAs und Ge auf Si. InAs/GaAs ist ein gut untersuchtes Modellsystem, da sich die Gitterkonstanten der beiden Materialien um etwa 7 % unterscheiden, und daher die elastische Verspannung, welche die Inselbildung verursacht, besonders groß ist. Für Ge-Inseln auf Si, die im Folgenden beschrieben sind, beträgt dieser Unterschied etwa 4 %.

Abb. 1: Scheidet man Halbleiter mit unterschiedlicher Gitterkonstante aufeinander ab, so bilden sich unter bestimmten Umständen kleine Inseln. Links sind so hergestellte SiGe-Inseln auf Silizium zu sehen, aufgenommen mit einem Rasterkraftmikroskop. Zwei typische Wachstumsformen zeigt das Rastertunnelmikroskopbild (rechts, nach [4]): Bei geringen Mengen abgeschiedenen Germaniums bilden sich pyramidenförmige Inseln, scheidet man mehr Ge ab, bilden sich eher kleine Kuppeln („domes“).

1) Dies ist typischerweise für Schichtdicken unterhalb 30 nm der Fall, was etwa 150 Atomlagen entspricht.

Dr. Julian Stangl, Prof. Dr. Günther Bauer, Institut für Halbleiter- und Festkörperphysik, Johannes-Kepler-Universität, Altenbergerstr. 69, 4040 Linz, Österreich; Dr. Tobias Schüllli, Dr. Hartmut Metzger, European Synchrotron Radiation Facility, 6 Rue Jules Horowitz, BP 220, 38043 Grenoble Cedex 9, Frankreich

Dieses System ist besonders wichtig, weil es kompatibel zur Si-Technologie ist.²⁾

Durch die quasi-diskreten Zustände der Ladungsträger in den Inseln – analog zu den Elektronen im Atom – stellen diese ein Modellsystem für quantenoptische Phänomene dar [1]. Technologisch eignen sie sich aus diesem Grund für die Herstellung von Halbleiterlasern [2] mit sehr geringen Schwellenstromdichten. Zudem weisen die Inseln Eigenschaften auf, die in epitaktischen 2D-Schichten nicht möglich sind. So kann z. B. der Germaniumgehalt in SiGe-Inseln größer sein als in kohärent verspannten zweidimensionalen SiGe-Schichten auf Si. Da die typischen Abmessungen der Inseln etwa der Gattellänge in der jüngsten Generation von MOS-Transistoren entsprechen, könnten sich diese Inseln in Zukunft auch einsetzen lassen, um die Leistungsfähigkeit dieser Bauteile weiter zu erhöhen [5].

Für die elektronischen und optischen Eigenschaften derartiger Inseln sind Form und Tiefe des Einschlusspotentials entscheidend, die ihrerseits vor allem von

2) Daneben sind auch Inseln aus anderen III-V-Verbindungshalbleitern wie Nitride und Phosphide Gegenstand von Untersuchungen, aber auch Inseln aus II-VI- oder IV-VI-Halbleitern.

der äußeren Form, der chemischen Zusammensetzung und der Gitterdehnung der Inseln bestimmt werden. Bei typischen Wachstumstemperaturen von etwa 300 bis 800 °C kommt es durch Diffusions- und Segregationsvorgänge dazu, dass innerhalb der Inseln Gradienten der chemischen Zusammensetzung entstehen, die wiederum die Dehnungen des Kristallgitters beeinflussen. Sowohl die Gradienten der chemischen Zusammensetzung als auch diejenigen der Dehnungen führen meist dazu, dass innerhalb einer Insel die elektronische Bandstruktur inhomogen, d. h. ortsabhängig ist. So wurde für das Wachstum von InAs-Inseln auf GaAs beobachtet, dass im Allgemeinen der In-Gehalt zwischen der Grenzfläche zum GaAs-Substrat und der Inselspitze zunimmt. Daher sind Elektronen eher nahe dem Substrat, Löcher aber nahe der Inselspitze lokalisiert, was zu einem „eingebauten Dipolmoment“ der Inseln führt.

Aus diesen Gründen ist es von besonderer Bedeutung, die chemische Zusammensetzung von Stranski-Krastanow-Inseln und die Gitterdehnungen zu bestimmen. Dafür eignen sich Methoden wie die Transmissionselektronenmikroskopie, die Rastertunnelmikroskopie und Röntgenbeugungsuntersuchungen. Im Folgenden möchten wir besonders auf Röntgenbeugungsmethoden eingehen [6], für die keine spezielle Probenpräparation erforderlich ist. Ein weiterer Vorteil besteht darin, dass das bestrahlte Volumen üblicherweise einige Millionen Inseln enthält, also über statistische Schwankungen von Insel zu Insel gemittelt wird. Ein Nachteil der Röntgenstreuungsmethoden ist, dass wegen der kleinen Streuvolumina (die Inseln bestehen typischerweise aus 10^4 bis 10^5 Atomen) sehr intensive Röntgenquellen notwendig sind, d. h. Synchrotronstrahlungsquellen.

In Röntgenbeugungsexperimenten werden meist Gitterkonstanten bestimmt. Diese variieren mit der chemischen Zusammensetzung x in Systemen wie $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{As}$ oder $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$, aber auch mit den Dehnungen, sodass

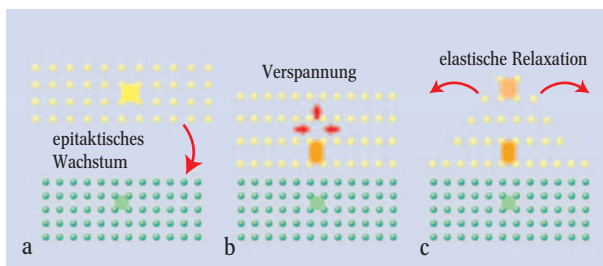


Abb. 2: Zwei Halbleitermaterialien A (grün) und B (gelb) mit unterschiedlicher Gitterkonstante werden aufeinander abgeschieden. Die unverzerrte Einheitszelle von B (gelbes Quadrat) wird dabei zunächst pseudomorph verzerrt (b; oranges Rechteck), d. h. lateral ist die Gitterkonstante gleich der des Substrats A. Ab einer bestimmten Schichtdicke bilden sich Inseln auf der Schicht (c). Dadurch kann das Kristallgitter seitlich elastisch relaxieren und so die Verspannung teilweise abbauen (helloranges Rechteck).

Röntgenbeugung

In einem Röntgenbeugungsexperiment wird die gestreute Intensität in Abhängigkeit des Impulsübertrages $\mathbf{Q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$ gemessen, wobei \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_f die Wellenvektoren des einfallenden Photons und des gestreuten Photons sind. In den hier beschriebenen Verfahren ist der Streuprozess elastisch,

und damit $|\mathbf{k}_i| = |\mathbf{k}_f| = 2\pi/\lambda$. Üblicherweise stellt man das Streuexperiment wie in Abb. ii in den Koordinaten des reziproken Raumes der Probe dar, d. h. den Komponenten von \mathbf{Q} in der Probenebene ($Q_{\parallel} = 2\pi/a_{\parallel}$) bzw. senkrecht dazu ($Q_{\perp} = 2\pi/a_{\perp}$). In der Praxis wird ein bestimmter Impulsübertrag über den

Streuwinkel 2θ und den Einfallswinkel zur Oberfläche α_i eingestellt. In der in Abb. i und ii gezeigten koplanaren Geometrie, in der \mathbf{k}_i , \mathbf{k}_f und die Probennormale in einer Ebene liegen, ist das Streuexperiment durch diese beiden Winkel und die Photonenwellenlänge λ vollständig bestimmt. Anstatt mit

α_i wird in dieser Geometrie der Einfallswinkel meist mit ω bezeichnet. Der für Streuexperimente zugängliche Bereich ist durch den maximalen Streuwinkel $2\theta < 180^\circ$ und die Geometrie ($\omega > 0$, $2\theta > \omega$) bestimmt, er liegt zwischen den Halbkreisen in Abb. ii.

Aus der Streutheorie für Röntgenstrahlen folgt, dass die gestreute Intensität im Wesentlichen dem Quadrat der Fourier-Transformierten der Elektronenverteilung in der Probe entspricht. Wenn der Impulsübertrag gleich einem reziproken Gittervektor \mathbf{G}_{hkl} ist, tritt ein scharfer Reflex auf, da die Photonen, die an den Elektronen der Probe gestreut werden, alle in Phase sind (Laue-Bedingung $\mathbf{Q} = \mathbf{G}_{hkl}$). Dies ist äquivalent zur Bragg-Formel $2d_{hkl} \sin\theta = n\lambda$, mit dem Abstand der Netzebenen in $[hkl]$ -Richtung d_{hkl} .

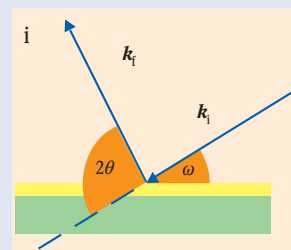
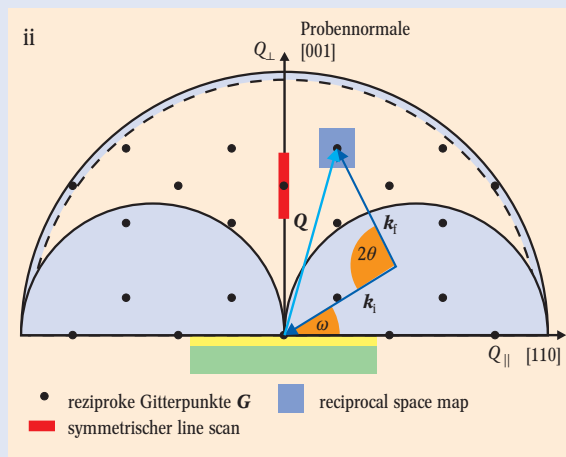


Abb. i und ii: Die koplanare Streugeometrie im Realraum (i) und im reziproken Raum der Probe (ii), der gleichzeitig den Impulsübertrag \mathbf{Q} bei der Streuung als Koordinaten hat.



der Einfluss dieser beiden Größen durch geeignete Verfahren getrennt bestimmt werden muss und zwar mit einer Ortsauflösung im Nanometer-Bereich. Dafür haben sich zwei Arten von Verfahren etabliert: Die erste basiert auf so genannten „reciprocal space maps“ (RSMs), in denen die Intensitätsverteilung in der Umgebung von Bragg-Reflexen der Probe in Abhängigkeit des Impulsübertrags senkrecht zur Probenoberfläche und parallel zur Oberfläche gemessen wird [7–9]. Das zweite Verfahren, „iso-strain scattering“ (ISS) [10] benutzt nur Impulsüberträge parallel zur Probenoberfläche und kombiniert diese Information mit anomaler Streuung bei verschiedenen Energien der Röntgenphotonen [11].

Reciprocal space mapping

Oft wird Röntgenbeugung (s. Infokasten) verwendet, um die Zusammensetzung und die Dicke D_{Schicht} von epitaktischen Schichten zu bestimmen. Dabei nimmt man im einfachsten Fall ein Beugungsspektrum entlang der Probennormalenrichtung auf (Abb. 3). Neben dem scharfen Substratpeak ist ein weiteres Maximum bei etwas kleineren Werten des Impulsübertrags in Wachstumsrichtung Q_{\perp} zu sehen, das von der epitaktisch auf dem Substrat aufgewachsenen Schicht mit etwas größerer Gitterkonstante herrührt. Aus der Lage dieses Maximums lässt sich leicht der entsprechende Netzebenenabstand in Wachstumsrichtung berechnen und daraus die Schichtzusammensetzung. Zusätzlich weist das Beugungsspektrum Oszillationen rund um das Schichtmaximum auf, die von der endlichen Schichtdicke herrühren: da das gemessene Signal dem Betrag der Fourier-Transformierten der Elektronendichte entspricht, bekommt man Oszillationen mit einer Periode von $\Delta Q_{\perp} = 2\pi/D_{\text{Schicht}}$. Dabei wird nur die Gitterkonstante in Wachstumsrichtung gemessen, entsprechend bekommt man nur Information über die Probenstruktur entlang dieser Richtung. Wie man in Abb. ii im Infokasten sieht, entspricht ein Scan entlang der Oberflächennormale einem Scan mit $\omega = \theta$. Um auch Informationen über die lateralen Eigenschaften der Probe (laterale Gitterkonstante, laterale Abmessung von Nanostrukturen) zu erhalten, muss in der Nähe so genannter asymmetrischer Reflexe mit $\omega \neq \theta$ gemessen werden. In diesem Fall hat der Impulsübertrag Q zwei Komponenten, Q_{\parallel} parallel zur Probenoberfläche und Q_{\perp} in Wachstumsrichtung. Durch die Variation der Probenorientierung ω und des Streuwinkels 2θ kann punktweise eine bestimmte Fläche im reziproken Raum abgefahren werden, wie in Abb. ii im Infokasten und Abb. 4 durch die blaue Fläche skizziert ist; diese so gemessenen zweidimensionalen „Intensitätskarten“ bezeichnet man als „reciprocal space maps“ (RSMs).

Wie in Abb. 4 dargestellt, ergibt sich aus den RSMs sowohl die Gitterkonstante in Wachstumsrichtung als auch die parallel zur Oberfläche. Damit erhält man die chemische Zusammensetzung und den Dehnungszustand einer Schicht oder Nanostruktur. Die Intensitätsverteilung entspricht der 2D-Fourier-Transformierten, der Form z. B. einer Nanostruktur, zentriert um den Punkt im reziproken Raum, der sich aus den Gitterkonstanten ergibt. Je kleiner die Struktur im Realraum, umso breiter ist die zugehörige Intensitätsverteilung im reziproken Raum, und umgekehrt. So lassen sich neben der Zusammensetzung und der Gitterdehnung auch Form und Größe von Nanostrukturen messen. Sind Nanostrukturen periodisch auf einer Oberfläche

angeordnet, so gibt diese Periodizität Anlass zu periodischen Maxima auch im reziproken Raum, so genannten Satellitenmaxima. Aus dem Abstand dieser Maxima lässt sich die Periodizität bestimmen. Ist die Anordnung nur „ungefähr“ periodisch, z. B. durch statistische Schwankungen oder Fehler in der Anordnung, so sind diese Satellitenmaxima mit zunehmender Satellitenordnung gedämpft und/oder verbreitert. Aus RSMs lässt sich so auch Information über die Korrelation der Position von Nanostrukturen ermitteln.

Kompliziert wird die Analyse jedoch durch die Tatsache, dass die chemische Zusammensetzung und die Gitterdehnungen innerhalb der Insel nicht konstant sind. Beide variieren innerhalb jeder Insel auf Längenskalen im nm-Bereich, vor allem entlang der Wachstumsrichtung. Allerdings kann man die Inseln fiktiv in sehr kleine Volumenelemente mit konstanten Dehnungen und Gehalten aufteilen. Dementsprechend ist die von diesen Teilen gestreute Intensität im reziproken Raum sehr breit verteilt. Die Streubeiträge der einzelnen Bereiche der Inseln überlappen im reziproken Raum sehr stark, und eine einfache Umrechnung der gemessenen diffusen Intensitätsverteilung in die Gitterabstände innerhalb einer Insel ist daher nicht möglich. Abbildung 5b zeigt eine typische Messung am (224)-Reflex: Neben dem intensiven Streusignal aus dem Si-Substrat und dem „truncation rod“ entlang der Wachstumsrichtung durch den Substratreflex ist die diffuse Streuung durch die SiGe-Inseln klar sichtbar. Da Ge bzw. eine SiGe-Legierung eine größere Gitterkonstante aufweisen als Silizium, findet man das Streusignal der Insel bei kleineren Q -Werten als das des Substrats.

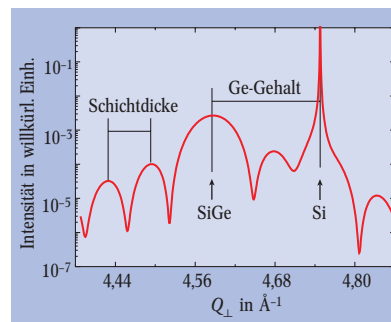


Abb. 3: Ein typisches Beugungsspektrum eines symmetrischen „single scans“ einer SiGe-Schicht auf Si.

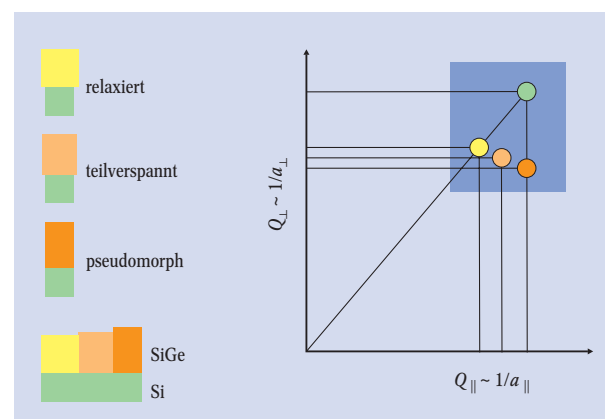


Abb. 4: Bestimmung der Gitterkonstanten aus einer *reciprocal space map*: Ist die SiGe-Schicht pseudomorph, d. h. ihre Gitterkonstante in der Ebene gleich der von Si, so liegen die beiden Reflexe (grün und orange) im reziproken Raum untereinander. Ist die Schicht ganz relaxiert (gelb), so ist die Kristallsymmetrie gleich der von Si, nicht jedoch die Gitterkonstante. Dann findet man Substrat- und Schichtreflex entlang der gleichen Richtung im reziproken Raum. Für teilverspannte Schichten (hellorange) wird eine Zwischenposition des Schichtreflexes gemessen.

Die gemessene Intensitätsverteilung lässt sich mit Hilfe eines Modells und Simulationsrechnungen analysieren: Ausgangspunkt ist die äußere Form der Insel. Wie sich in der Auswertung der Messdaten vieler Proben gezeigt hat, sind Details der Form dabei von geringer Bedeutung, entscheidend ist vor allem das Verhältnis von Inselhöhe zur Breite an der Basis. Dieses „Aspektverhältnis“ wirkt sich entscheidend auf die elastische Relaxation aus: Je höher die Insel, desto leichter kann das Material seitlich „ausweichen“, um so die elastische Verspannung zu reduzieren. In den meisten unserer eigenen Analysen von so genannten Ge-„domes“ verwenden wir daher einen Rotationsparaboloid als Inselform, mit der Höhe und dem Basisdurchmesser als Parametern (Abb. 5a).

Innerhalb dieser Insel wird die Variation des Germaniumgehalts zunächst „irgendwie“ angenommen, wir verwenden meist ein Profil, das zwischen einem Ge-Gehalt x_1 an der Inselbasis und einem Wert x_2 an der Spitze variiert, wobei die Variation linear mit der Höhe h , oder wie h^2 bzw. $h^{0,5}$ angenommen wird. So hat das Modell einer Insel im Endeffekt nur wenige Parameter. Mit Hilfe eines Finite-Elemente-Programms wird für das Inselmodell die Verteilung der Gitterdehnungen, d. h. die elastische Relaxation, berechnet. Dazu wird die Variation der Gitterkonstante mit dem Ge-Gehalt sowie die Variation der elastischen Eigenschaften der Legierung und die elastische Anisotropie berücksichtigt. Aus den so gewonnenen Daten lässt sich schließlich die Intensitätsverteilung im reziproken Raum berechnen. Nun werden die Inselparameter variiert, bis die Simulation der Messung möglichst genau entspricht [8].

Man findet, dass die Position des Intensitätsmaximums recht empfindlich von den Parametern abhängt, und so lassen sich das Ge-Profil entlang der Inselhöhe und die elastische Relaxation mit einer Genauigkeit von etwa 5 bis 10 % bestimmen. Die Ungenauigkeit

rührt in erster Linie daher, dass das Simulationsergebnis nicht eindeutig ist: Verwendet man z. B. ein lineares Profil statt eines $h^{0,5}$ -Profils, so lässt sich eine nahezu gleich gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung finden, jedoch für leicht unterschiedliche Werte x_1 und x_2 .

Neben dem recht einfachen Versuchsaufbau bietet diese Untersuchungsmethode den besonderen Vorteil, dass sie nicht nur für Inseln auf der Substratoberfläche geeignet ist, sondern genauso auch für vergrabene Inseln, die für Anwendungen wichtig sind. Außerdem bekommt man die Dehnungsverteilung nicht nur in der Insel, sondern auch im Substrat bzw. der Matrix, in die die Insel eingebettet ist, „automatisch“ als Ergebnis dazu. Diese Dehnungen im Substrat sind ebenfalls für Anwendungen sehr wichtig [5]. Ein Nachteil ist der relativ hohe Aufwand in der Analyse, für die manchmal viele Modellrechnungen und Simulationen nötig sind. Ein vergleichsweise direktes Analyseverfahren stellt die im Folgenden beschriebene Methode zur Verfügung.

Iso-strain scattering

In der „iso-strain“-Analysetechnik [10] wird zunächst wieder die Intensitätsverteilung im reziproken Raum gemessen, jetzt allerdings in einer anderen Geometrie mit streifendem Ein- und Ausfallswinkel (siehe Infokasten „Grazing incidence diffraction“). Wie in Abb. 6a dargestellt, denkt man sich die Insel in Schichten mit konstanter Relaxation (iso-strain-Bereiche) aufgeteilt. Da die Inseln recht flach sind und die größten Variationen entlang der Höhe auftreten, kann man diese Bereiche als gestapelte Scheibchen annehmen. Jedes solche Scheibchen erzeugt dann ein Streusignal im reziproken Raum zentriert um den entsprechenden reziproken Gitterpunkt, mit einer Ausdehnung invers proportional zum Durchmesser des Scheibchens (Abb. 6b): Weniger relaxierte, größere Scheibchen am Fuß der Insel erzeugen ein Streusignal nahe dem Substratreflex ($hk0$), mit geringer Ausdehnung im reziproken Raum; kleine Scheibchen nahe der Inselspitze erzeugen ein Streusignal weiter vom Substratreflex entfernt und mit größerer Ausdehnung. In Wirklichkeit ändert sich die Gitterkonstante in der Insel kontinuierlich, und dementsprechend ist auch die Intensitätsverteilung kontinuierlich (Abb. 6c). Jedoch kann

Grazing incidence diffraction (GID)

In der GID-Geometrie (Abb. iii) findet die Beugung an Netzebenen senkrecht zur Probenoberfläche statt, indem der einfallende Strahl unter einem sehr flachen Winkel α_i (typischerweise einige zehntel Grad) auf die Oberfläche

trifft. Letztere tritt auf, da der Brechungsindex für Röntgenstrahlung für alle Materialien etwas kleiner als 1 ist (typischerweise ist $|1-n| \approx 10^{-5}$), und daher Totalreflexion auftritt. Durch diese Reflexion an der Probenoberfläche bleibt

eine sehr kleine, aber nicht verschwindende Komponente Q_z in Wachstumsrichtung, die ausgenutzt werden kann, um Höheninformation zu erhalten. Der Impulsübertrag $Q_{||}$ enthält die radiale Komponente Q_r senkrecht zu den beugenden Netzebenen und

die *angulare* Komponente Q_a parallel zu den Netzebenen. In Q_r ist die Information über den Netzebenenabstand, d. h. über die Gitterdehnungen enthalten, während Q_a nur Informationen über die Form (Fourier-Transformierte der Form) enthält, aber nicht auf Gitterdehnungen empfindlich ist.

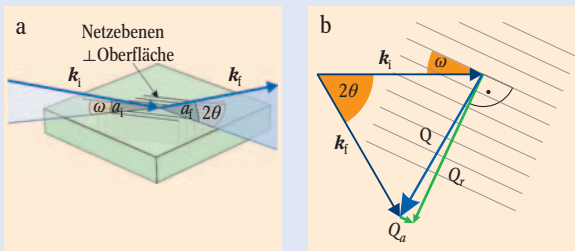


Abb. iii: Geometrie der „grazing incidence diffraction“ (a). In der Aufsicht (b) ist zu erkennen, dass nur die Komponente Q_z des Impulsübertrags Q senkrecht zu den Netzebenen auf die Gitterdehnung empfindlich ist, während die Komponente Q_a auf die Form der Nanostrukturen empfindlich ist.

trifft. Ebenso wird der gebeugte Strahl bei einem sehr kleinen Ausfallswinkel α_f zur Oberfläche detektiert. Der gesamte Impulsübertrag Q ist nahezu parallel zur Oberfläche. GID „kombiniert“ daher einen Beugungsprozess an Netzebenen *senkrecht* zur Oberfläche mit einer Reflexion an der Oberfläche.

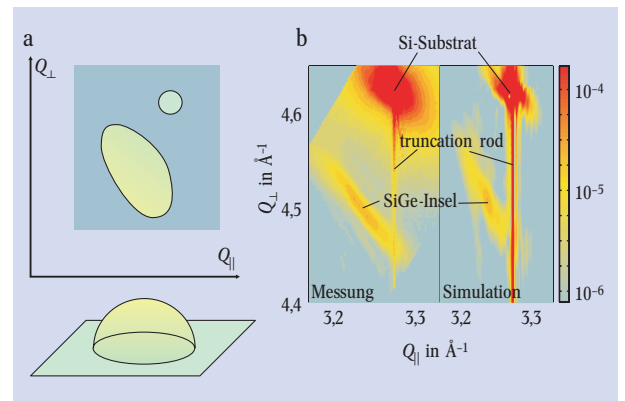


Abb. 5: In selbstorganisierten Inseln (a, schematisch) variiert der Ge-Gehalt und daran gekoppelt auch die elastische Relaxation. Entsprechend erhält man in einer RSM-Analyse eine breite Intensitätsverteilung. (b) zeigt ein typisches Beispiel einer Messung: Neben der starken diffusen Streuung rund um den Substratreflex und dem „truncation rod“ (ein dynamisches Beugungsphänomen, das daher rührt, dass die Probe von einer Oberfläche begrenzt ist) ist die diffuse Streuung von den SiGe-Inseln gut erkennbar.

man durch Auswählen eines bestimmten Impulsübertrags Q_r^0 eine bestimmte Gitterkonstante „einstellen“ und sieht hauptsächlich die Streuung des entsprechenden Teils der Insel. Misst man nun die Breite der Intensitätsverteilung entlang Q_a (senkrecht zu Q_r), so erhält man die entsprechende Breite des Scheibchens mit dem zugehörigen Gitterparameter. Wenn man zusätzlich die Höhe des Scheibchens h^0 über der Substratoberfläche bestimmen kann und den Ge-Gehalt des Scheibchens, so erhält man das Ge-Konzentrationsprofil und die Verteilung der Relaxation.

Die Höhe jedes Scheibchens lässt sich direkt aus der gestreuten Intensität bestimmen: Da die Inseln auf einer relativ glatten Oberfläche aufgewachsen werden, werden nicht nur Photonen, die unter dem Einfallswinkel α_i auf die Probe treffen, gestreut, sondern auch solche, die zuerst an der Probenoberfläche spiegelnd reflektiert wurden. Genauso kann auch das gestreute Photon an der Oberfläche reflektiert werden. Die Interferenz dieser Streuteile gibt ein charakteristisches Maximum bei einem bestimmten Wert von Q_z , aus dem sich die Höhe des Scheibchens errechnen lässt.

Um den Ge-Gehalt zu bestimmen, wurde beim RSM die Gitterkonstante in Wachstumsrichtung verwendet. Diese Information fehlt aber in GID, da hier nur der Impulsübertrag parallel zur Oberfläche gemessen wird. Es ist daher nicht möglich, eine Variation der Gitterkonstanten aufgrund von Si-Ge-Durchmischung von einer Variation aufgrund elastischer Relaxation zu unterscheiden. Um dennoch den Ge-Gehalt bestimmen zu können, verwendet man anomale Röntgenstreuung bei zwei Energien (siehe Infokasten „Anomale Streuung“) [11, 12]. Man misst dabei das Verhältnis der Streuintensitäten bei zwei Energien unterhalb und an der Ge-K-Kante als Funktion des Impulsübertrags Q_r in

der Umgebung eines Bragg-Reflexes. Damit kann der Ge-Gehalt als Funktion der Gitterkonstante parallel zur Oberfläche bestimmt werden. Kombiniert man nun die Variation der Höhe jedes Scheibchens in der Insel mit seiner Gitterkonstante und seinem Ge-Gehalt, so lässt sich dieser in Abhängigkeit der Höhe in der Insel bestimmen [11, 12].

Bei der iso-strain-Methode werden die Inselparameter direkt aus der gestreuten Intensitätsverteilung abgeleitet. Dabei sind nur wenige Annahmen über die Insel erforderlich: Z. B. ist die Zuordnung der Messwerte für Gehalt, Höhe und Dehnung nur eindeutig, solange diese Größen monoton mit der Höhe variieren. Die Höhenbestimmung aus der Interferenz direkt gestreuter

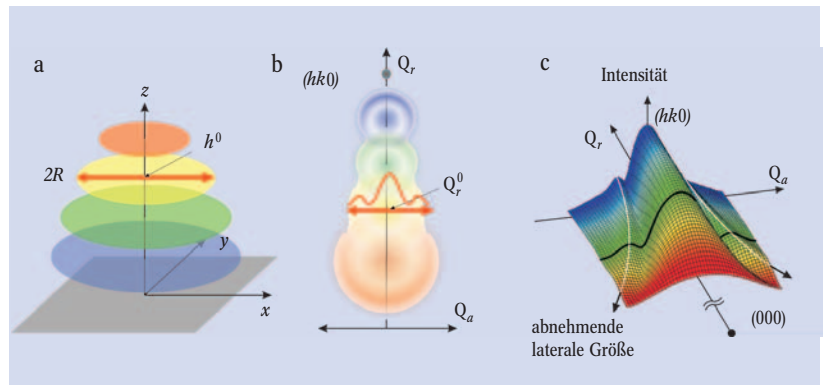


Abb. 6: In der „iso-strain scattering“-Methode wird eine Insel virtuell in Scheibchen mit konstanter Gitterdehnung zerlegt (a). Jedes Scheibchen verursacht gestreute Intensität im reziproken Raum, die einem dem Radius des Scheibchens umgekehrt proportionale Ausdehnung aufweist und

um den der Gitterkonstante entsprechenden Wert von Q_r zentriert ist (b). Durch Messen eines Scans entlang Q_a bei diesem Wert von Q_r lässt sich der Radius messen, auch wenn in Wahrheit die Dehnungsverteilung und damit auch die Intensitätsverteilung kontinuierlich ist (c).

Anomale Streuung

Das Streuvermögen f eines Atoms für Röntgenstrahlen hängt einerseits vom gemessenen Impulsübertrag Q ab, ist aber auch von der Atomsorte abhängig (im Wesentlichen geht hier die Anzahl der Elektronen ein), und z. B. für Si und Ge verschieden. Da die Gesamtmenge des streuenden Materials nicht genau bekannt ist und man die gestreute Intensität deshalb nicht quantitativ berechnen kann, lässt sich dieser Unterschied nicht direkt nutzen. Man kann aber ausnutzen, dass das Streuvermögen für jedes Element auch noch von der Energie der Photonen abhängt: $f = f_0(Q) + f'(E) + if''(E)$. Insbesondere wenn die Photonenenergie resonant mit atomaren Anregungsniveaus ist, also an den Absorptionskanten, kommt es zu einer deutlichen Änderung von f' und f'' (Abb. iv a) und damit des gesamten Streuvermögens. Wird das Beugungsexperiment bei zwei verschiedenen

Energien, einmal an der Absorptionskante und einmal bei einer Energie unter der Kante durchgeführt (Abb. iv b; bei höheren Energien würde durch Anregung Fluoreszenzstrahlung emittiert, die als Untergrund die Mes-

bei einer Referenzprobe aus dem reinen Element (hier Ge) kann so der Anteil dieses Elements in der Probe bestimmt werden. Für SiGe und Photonenenergien zwischen einigen keV und ca. 20 keV, die an Synchro-

von f_0 bei $Q=0$. Wird die Messung bei großen Impulsüberträgen durchgeführt, so sinkt $f_0(Q)$ deutlich, und die Änderung in $f'(E)$ wirkt sich stärker aus. Deshalb werden diese Messungen an möglichst hochindizierten

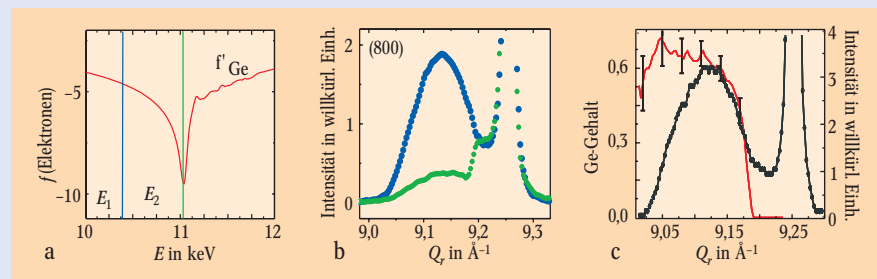


Abb. iv: Das Streuvermögen eines Atoms für Röntgenstrahlung hängt von der Photonenenergie ab. In der Nähe atomarer Absorptionskanten, hier der Ge-K-Kante, gibt es deutliche Minima (a). Misst man die Streuintensität als Funktion der Impuls-

übertrags Q_r bei zwei verschiedenen Energien E_1 und E_2 (b), so kann, da das Streuvermögen von Si für beide Energien gleich ist, aus dem Verhältnis der Intensitäten der Ge-Gehalt bestimmt werden (c).

sung stört), so ändert sich der Streubeitrag eines Elements, während die der anderen Elemente in der Probe konstant sind. Aus dem Verhältnis der Streuintensitäten im Vergleich zur Änderung

tronquellen meist verwendet werden, kommt dafür nur die K-Kante von Ge bei 11104 eV in Frage. Für Germanium ist jedoch die Änderung in $f'(E)$ nicht sehr groß, sie beträgt nur etwa 20 %

Bragg-Reflexen mit großem Q durchgeführt. Am (800)-Reflex z. B. variiert für die beiden Energien und reines Germanium die Streuintensität etwa um einen Faktor 4,5.

Photonen mit zusätzlich reflektierten Photonen funktioniert nur für Inseln auf einer Oberfläche, nicht jedoch für überwachsene Inseln. Da auch die Monotonie nur für Inseln auf einer Oberfläche sicher angenommen werden kann, lässt sich die Methode für überwachsene Inseln derzeit nicht anwenden.

Resultate

Als ein Beispiel der oben erläuterten Strukturanalyse zeigt Abb. 7 die Variation des Ge-Gehaltes von SiGe-Inseln. Es ist deutlich erkennbar, dass trotz der Abscheidung von reinem Ge mit zunehmender Substrattemperatur immer mehr Si in den Inseln enthalten ist. Dies ist auch der Grund, warum bei höheren Tempera-

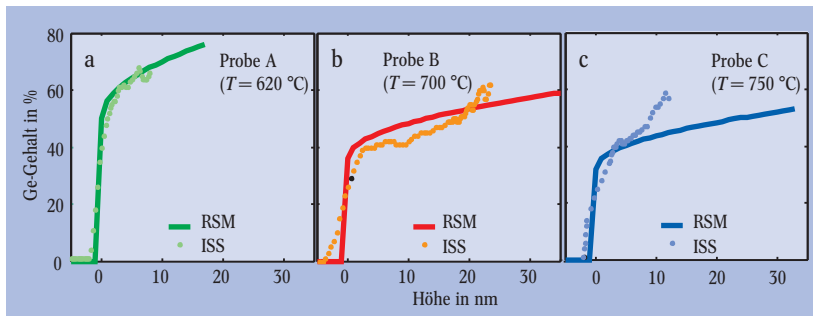


Abb. 7: Das Ge-Profil entlang der Inselhöhe für drei Proben (A, B und C), bei denen Ge bei verschiedenen Temperaturen des Si-Substrats abgeschieden wurde. Die durchgezogenen Linien sind die Resultate aus der RSM-Analyse, die Punkte stammen aus der ISS-Analyse.

turen mehr Ge abgeschieden werden muss, um Inseln zu erhalten: Bereits die Benetzungsschicht ist stärker vermischt, sodass sich die kritische Schichtdicke für Stranski-Krastanow-Wachstum erhöht.

Abbildung 7 zeigt auch die unterschiedlichen Grenzen der beiden Methoden auf: In der Auswertung der RSM-Daten wird ein Sprung des Ge-Gehaltes von null auf x_1 an der Grenze angenommen, ein verschliffenes Profil wird daher nicht genau erfasst. Dies wird in den iso-strain-Daten sichtbar, wo eine zunehmende Vermischung an der Substrat-Insel-Grenzfläche deutlich ist. Andererseits liefert die zweite Methode keine genauen Daten für die obersten Bereiche der Insel, da dort die laterale Abmessung sehr klein wird und damit die Ausdehnung und der Überlapp der Streubeiträge einzelner „Scheibchen“ im reziproken Raum sehr groß, sodass die Fehlerbalken schließlich zu groß werden. Eine Kombination beider Methoden ergibt jedoch ein sehr komplettes und konsistentes Bild der Ge-Verteilung entlang der Inselhöhe.

Die gezeigten Messungen wurden für Inseln an der Substratoberfläche durchgeführt. Für Anwendungen müssen Inseln aber mit dem Substratmaterial überwachsen werden, da ansonsten elektronische Zustände an der freien Oberfläche die optischen und elektronischen Eigenschaften zerstören würden. Es zeigt sich, dass selbst bei Substrattemperaturen von 600 °C beim Überwachsen deutliche Änderungen der Struktur der Inseln auftreten: Die Inselhöhe nimmt ab, während gleichzeitig die Breite zunimmt und eine noch stärkere Vermischung von Si und Ge auftritt. Insgesamt sind Ge-Gehalt und Gitterdehnung überwachsener Inseln dann kaum von denen eines zweidimensionalen Quantentopfes verschieden. Um die strukturellen Eigenschaften der Inseln beim Überwachsen zu erhalten, muss die Wachstumstemperatur weiter gesenkt werden:

Abbildung 8a zeigt ein RSM von SiGe-Inseln, die bei 630 °C Substrattemperatur mit Si überwachsen wurden (Probe D). Das diffuse Streumaximum von den Inseln ist schmal entlang $Q_{||}$, aber ausgedehnt entlang Q_{\perp} , entsprechend einer sehr flachen Inselform. Zudem ist das Maximum sehr nahe dem Wert von $Q_{||}$ des Substrats, gleichbedeutend mit einem nur geringen Unterschied in der Gitterkonstante in der Probenoberfläche.

Das Streubild der Probe in Abb. 8b unterscheidet sich deutlich: Man erkennt aus der Form des Streumaximums sofort ein höheres Aspektverhältnis der Inseln und aus dem Abstand zum $Q_{||}$ von Si die elastische Relaxation. Während bei Probe D die Si-Deckschicht bei 630 °C abgeschieden wurde, wurde sie bei Probe E auf

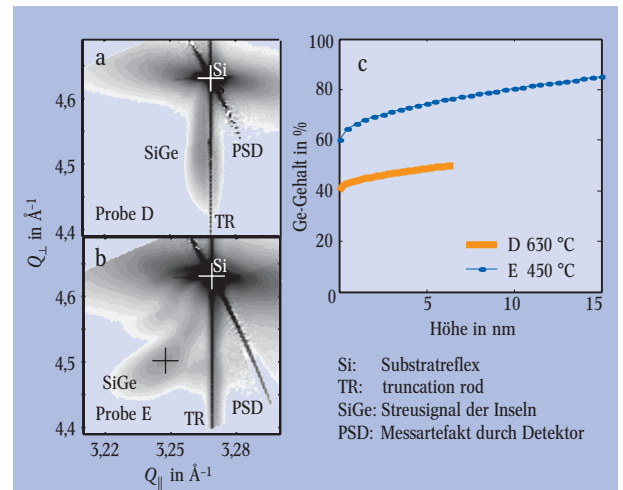


Abb. 8: Gemessene Intensitätsverteilung (a) um den (224)-Bragg-Reflex einer Probe, bei der SiGe-Inseln mit Si überwachsen wurden. (b) zeigt die gleiche Messung für eine zweite Probe, bei der während des Überwachsens die Substrattemperatur abgesenkt wurde. In (c) sind die resultierenden Ge-Profile gezeigt. Bei der höheren Substrattemperatur reduziert sich die Inselhöhe beim Überwachsen deutlich.

450 °C abgesenkt. Die resultierenden Ge-Profile sind in Abb. 8c gezeigt. Für die niedrigere Temperatur beim Überwachsen ist das Resultat sehr ähnlich zu den nicht vergrabenen Inseln auf Probe A (Abb. 7a).

Rechnungen werden immer nur für eine Insel durchgeführt, in der Messung werden aber etwa 10^6 bis 10^7 Inseln „beleuchtet“. Ein Vergleich zwischen Rechnung und Simulation ist trotzdem möglich, da – solange die Inseln statistisch verteilt sind – sich die Streubeiträge der einzelnen Inseln inkohärent addieren. Die gemessene Intensitätsverteilung ist also die einer „gemittelten“ Insel. Aussagekräftige Resultate erhält man daher nur, wenn die statistischen Schwankungen der Inselparameter, wie Größe und Zusammensetzung, klein sind. Daher sind Voruntersuchungen z. B. mit dem Rasterkraftmikroskop (manchmal an Vergleichsproben, bei denen die SiGe-Inseln nicht mit Si überwachsen werden) hilfreich, die Auskunft über Größenschwankungen geben.

Ausblick

Mit den bisher beschriebenen Methoden gelingt es, die chemische Zusammensetzung der Inseln als Funktion der Höhe zu bestimmen. Um verschiedene Wachstumsmodelle zu testen bzw. das Wachstum weiter zu optimieren, ist es jedoch erforderlich, die chemische Zusammensetzung der Nanostrukturen in allen drei Raumrichtungen zu bestimmen. Ein erster Schritt in

diese Richtung gelang Malachias et al. [13], die erkannten, dass in Scans entlang Q_a nicht nur Information über die Gestalt der Inseln enthalten ist, sondern auch über die laterale Variation der chemischen Zusammensetzung [14]. Um diese zu extrahieren, ist allerdings auch in der iso-strain-Analyse eine Anpassung von auf einem Inselmodell basierenden Simulationen an die gemessene Intensitätsverteilung nötig.

Auch mit anderen Methoden gelang es, die Variation von chemischer Zusammensetzung und Gitterdehnung innerhalb selbstorganisierter Inseln zu messen, z. B. mit Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) oder Rastertunnelmikroskopie (STM). Um zu quantitativen Daten zu gelangen, müssen auch hier sehr ähnliche Methoden (Modellrechnungen und finite-Elemente-Simulationen der Gitterdehnungen) verwendet werden. Der Aufwand bei der Analyse ist ähnlich groß. So erhält man in der Querschnitts-STM-Methode die lokale chemische Zusammensetzung aus der elastischen Relaxation einer Spaltfläche durch die Insel, die mit FEM-Simulationen verglichen wird. Erst die Kombination mehrerer Methoden liefert meist ein vollständiges Bild der strukturellen Eigenschaften von selbstorganisierten Inseln.

Für nichtvergrabene Inseln ist immer damit zu rechnen, dass an der Oberfläche der Inseln durch den Sauerstoff in der Luft nicht das ursprünglich deponierte Material, z. B. InAs oder Ge, vorliegt, sondern Oxide, die je nach Dicke und Zusammensetzung auch den Dehnungszustand beeinflussen. Um Oxidation zu verhindern, wird daran gedacht, Proben aus der Wachstumskammer in einer UHV-Transportkammer zu den entsprechenden Messplätzen an Synchrotronquellen zu transportieren und Beugungsmessungen in einer UHV-Apparatur durchzuführen.

An verschiedenen Synchrotronstrahlungsquellen laufen derzeit außerdem intensive Bemühungen, durch in-situ-Röntgenstreu- bzw. Beugungsexperimente während des Wachstums Informationen über die Änderung der Inselgröße, der Inselgestalt und der Gitterrelaxation zu gewinnen. Dazu ist es erforderlich, eine UHV-Wachstumskammer mit heizbarem Probenhalter und Effusionszellen um ein Strahlrohr aufzubauen, ohne die Bewegungsfreiheit zur Probenjustierung und Messung einzuschränken [15, 16].

Daneben deutet sich mit den jüngsten Fortschritten in der Erzeugung von extrem kleinen Röntgenstrahl-durchmessern (einige μm , für harte Röntgenstrahlung sogar $< 100\text{ nm}$) durch Verwendung von Fresnelschen Zonenplatten und Totalreflexionsspiegeln in nicht allzu ferner Zukunft die Möglichkeit an, Nanostrukturen abzuscannen, d. h. aus ortsaufgelösten Beugungsbildern ohne Zuhilfenahme aufwändiger numerischer Methoden die Verteilung der chemischen Zusammensetzung und der Dehnungen in allen drei Dimensionen zu erhalten.

Bei sehr kleinen Strahldurchmessern eröffnet sich außerdem die Möglichkeit, Nanostrukturen kohärent zu beleuchten. Dies ermöglicht die Berechnung der Probenstruktur im Realraum durch direkte Invertierung (Fourier-Transformation) der Messdaten [17, 18].

Danksagung

Die vorgestellten Untersuchungen wurden von der Europäischen Union (HPRN-CT-1999-00123) und vom Fonds zur Förderung der Wissenschaftlichen Forschung gefördert. Die Proben wurden von O. G. Schmidt (MPI für Festkörperforschung, Stuttgart) und von D. Grütz-macher (Paul Scherrer-Institut in Villingen, Schweiz)

und ihren Arbeitsgruppen zur Verfügung gestellt. Für Hilfe bei den Messungen und den Simulationsrechnungen danken wir A. Hesse, V. Holý, I. Kegel, R. T. Lechner sowie den Mitarbeitern der Strahlrohre ID01 und ID10B am ESRF Grenoble (Frankreich), sowie BW2 und D4 am Hasylab Hamburg.

Literatur

- [1] P. M. Petroff, A. Lorke und A. Imamoglu, *Physics Today*, Mai 2001, S. 46
- [2] M. Grundmann, *Nano-Optoelectronics*, Springer, Berlin (2002)
- [3] V. Shchukin, N. N. Ledentsov und D. Bimberg, *Epitaxy of Nanostructures*, Springer, Berlin (2003)
- [4] A. Hesse et al., *Mat. Sci. Eng. B* **101**, 71 (2003)
- [5] O. G. Schmidt und K. Eberl, *IEEE Trans. Electron Devices* **48**, 1175 (2001)
- [6] V. Holy, U. Pietsch und T. Baumbach, *High Resolution X-Ray Scattering from Thin Films and Multilayers*, Springer, Berlin (1999)
- [7] M. Schmidbauer et al., *Phys. Rev. B* **64**, 195316 (2001)
- [8] A. Hesse et al., *Phys. Rev. B* **66**, 085321 (2002)
- [9] M. Schmidbauer, *X-Ray Diffuse Scattering from Self-Organized Mesoscopic Semiconductor Structures*, Springer Tracts in Modern Physics **199**, Springer, Berlin (2004)
- [10] I. Kegel et al., *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1694 (2000); I. Kegel et al., *Phys. Rev. B* **63**, 035318 (2001)
- [11] T. U. Schüllli et al., *Phys. Rev. Lett.* **90**, 066105 (2003)
- [12] R. Magalhaes-Paniago et al., *Phys. Rev. B* **66**, 245312 (2002)
- [13] A. Malachias et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 176101 (2003)
- [14] U. Denker, M. Stoffel und O. G. Schmidt, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 196102 (2003)
- [15] G. Renaud et al., *Science* **300**, 1416 (2003)
- [16] V. M. Kaganer et al., *Phys. Rev. Lett.* **90**, 016101 (2003)
- [17] I. K. Robinson und J. Miao, *MRS Bulletin* **29**, 177 (2004)
- [18] G. J. Williams et al., *Phys. Rev. Lett.* **90**, 175501 (2003)

Die Autoren



Julian Stangl studierte Physik in Linz, wo er auch am Institut für Halbleiter- und Festkörperphysik promovierte und seit 2001 als Univ.-Assistent forscht. **Tobias Schüllli** studierte Physik und Mathematik in Stuttgart und promovierte an der Universität Linz in enger Zusammenarbeit mit der ESRF



in Grenoble, wo er derzeit arbeitet. **Till Hartmut Metzger** studierte Physik an der TU München, wo er 1975 promovierte.

Bis 2000 war er wissenschaftlicher Mitarbeiter an der LMU München und verbrachte insgesamt fast vier Jahre in den USA. Im Mai 2000 ging er zur ESRF in Grenoble, wo er den Forschungsbetrieb am Strahlrohr ID01 leitet. **Günther Bauer** studierte Physik an der Universität Wien, wo er 1966 promovierte. Nach der Habilitation an der RWTH Aachen, Professuren an der Universität Ulm und der Montanuniversität Leoben, Aufhalten am Clarendon Laboratory, Oxford, und der Brown University in Providence (R. I.) ist er seit 1990 Professor für Halbleiterphysik an der Universität Linz.

