Термоотжиг дефектов в гетероструктурах InGaAs/GaAs с трехмерными островками

© М.М. Соболев, И.В. Кочнев, В.М. Лантратов, Н.А. Берт, Н.А. Черкашин, Н.Н. Леденцов, Д.А. Бедарев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 14 июля 1999 г. Принята к печати 15 июля 1999 г.)

Сообщается о результатах исследования влияния отжига *in situ* слоя InGaAs в p-n-структурах InGaAs/GaAs, выращенных методом газофазной эпитаксии из металлорганических соединений, на процесс формирования трехмерных когерентно напряженных островков. Исследования структур проводились методами вольт-фарадной спектроскопии и нестационарной емкостной спектроскопии глубоких уровней, просвечивающей электронной микроскопии и фотолюминесценции. Установлено, что в неотожженной структуре *A* происходит образование трехмерных островков с дислокациями несоответствия, а в отожженной структуре *B* — квантовых точек. Проведены исследования дефектов с глубокими уровнями. В структуре *A* обнаружено, что область аккумуляции электронов характеризуется наличием ряда дефектов: *EL2*, *EL3*(*I3*), *I2*, *HL3*, *HS2*, *H5*. Концентрации ловушек сравнимы с концентрацией мелких доноров, причем концентрация дырочных ловушек больше, чем электронных. После отжига *in situ* исчезли дефекты *EL2* и *EL3*, связанные с образованием дислокаций; концентрации остальных дефектов упали на порядок и более. Установлено, что в структуре *A* заселенность квантовых состояний точек контролируется дефектами с глубокими уровнями. В структуре в структуре *A* заселенность квантовых состояний точек контролириется дефектами с глубокими уровнями. В структуре *B* обнаружено проявление эффекта кулоновского взаимодействия носителей, локализованных в квантовой точке, с ионизованными дефектами.

1. Введение

В последние годы во многих лабораториях интенсивно проводятся исследования оптических, структурных и электрических свойств нуль-мерных полупроводниковых гетероструктур [1]. Столь большой интерес к такого рода структурам обусловлен возможностями их применения в качестве лазеров, одноэлектронных транзисторов и элементов памяти. Наибольшие успехи в формировании квантовых точек (КТ) были достигнуты при применении метода самоорганизованного роста наноструктур, впервые описанного Странским и Крастановым в работе [2]. Как известно, [1,2] режим роста Странского-Крастанова возникает в гетероэпитаксиальной системе при наличии рассогласования по постоянной решетки между толстым осаждаемым слоем, имеющим большую упругую энергию, и подложкой. Уменьшение упругой энергии реализуется путем образования изолированных островков. При этом возможно образование как когерентно напряженных трехмерных островков (квантовых точек), так и островков с дислокациями несоответствия, а также их совместное сосуществование в структуре. Электронный спектр таких изолированных островков оказывается подобным спектру одиночного атома [1]. В большинстве случаев формирование КТ происходит без необходимости привлекать дополнительные технологические процессы, как это имеет место, например, при прямом трехмерном росте гетероструктур InAs/GaAs в методе молекулярно-пучковой эпитаксии. При стандартных условиях роста трехмерных гетероструктур InGaAs/GaAs методом газофазной эпитаксии из металлорганических соединений (ГФЭ МОС) возможно образование трехмерных дислокационных кластеров, обогащенных In, сосуществующих с КТ [3]. В работе [4] было отмечено, что формирования дислокаций можно избежать, отключая поток арсина во время прерывания роста. На другую возможность получения свободных от дислокаций КТ было указано в работе [5] — это послеростовый отжиг приповерхностной области, приводящий к образованию квазиупорядоченных трехмерных островков. Применение такого отжига для гетероструктур InSb/InP показало [6], что в отожженном образце, в отличие от неотожженного, КТ имеют лучшее качество кристалла и отсутствуют трехмерные дефекты. Влияние послеростового отжига на качество и свойства структур с КТ обычно проводится с применением структурных и оптических методов исследования [6,7]. Практически отсутствуют работы по исследованию дефектов и примесей с глубокими уровнями, имеющихся как в неотожженных, так и в отожженных структурах, и их влиянию на заселенность квантовых состояний точек. В то же время метод нестационарной спектроскопии глубоких уровней (DLTS) является наиболее эффективным для спектроскопии дефектов и примесей с глубокими состояниями [8]. В последнее время этот метод с успехом применяется для спектроскопии квантовых состояний точек InAs/GaAs [9-12]. Другим методом, который успешно применяется для определения эффективного профиля распределения носителей в структурах, содержащих КТ, является вольт-фарадная (С-V) спектроскопия [9-12]. При исследовании с помощью метода DLTS структур, в которых помимо глубоких уровней дефектов имеются и квантовые состояния точек, возникают большие проблемы по идентификации пиков в DLTS-спектрах. В наших предыдущих работах [11,12] было обращено внимание на различие в зависимостях амплитуды DLTS-сигнала от положения уровня Ферми для пространственно локализованных состояний и распределенных по толщине

эпитаксиального слоя. Положением уровня Ферми и заселенностью квантовых состояний точек при определенных соотношениях мелких и глубоких центров в матрице GaAs было предложено управлять с помощью предварительного изохронного термического отжига при включенном (выключенном) напряжении обратного смещения и освещении белым светом.

В данной работе представлены результаты наших исследований по влиянию отжига после заращивания слоя InGaAs слоем GaAs на процесс формирования трехмерных когерентно напряженных бездислокационных островков, а также точечных дефектов на гетерограницах с КТ и вблизи нее. Исследован эффект управляемой дефектами с глубокими уровнями заселенности квантовых состояний точек в неотожженных образцах и кулоновского взаимодействия локализованных в квантовой точке носителей с ионизованными дефектами, характеризующимися глубокими уровнями. Исследуемые структуры были получены с помощью метода ГФЭ МОС. Структурные и оптические исследования трехмерных островков InGaAs/GaAs осуществляли методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). Оптические и электрические свойства гетероструктур с InGaAs-островками, встроенными в GaAs-матрицу, проводили с помощью фотолюминесценции (ФЛ), C-V- и DLTS-методов.

2. Образцы и методы исследования

Исследуемые в работе гетероструктуры InGaAs/GaAs были получены методом ГФЭ МОС с использованием горизонтального реактора низкого давления (76 Торр). Триметилгаллий, триметилалюминий, этилдиметилиндий и арсин использовались в качестве источников основных компонент и Cp₂Mg — для *р*-типа легирования GaAs. Было выращено две структуры (А и В) при различных условиях роста и последующей обработки. Температура роста была 480°С. В обоих случаях на подложке *n*⁺-GaAs выращивался нелегированный слой GaAs с концентрацией электронов $n = 3 \cdot 10^{15}$ см⁻³ толщиной 0.5 мкм. После этого осаждался слой InGaAs. В структуре А весь процесс осуществлялся без прерывания роста, в структуре В — с прерыванием после осаждения слоя квантовых точек InGaAs. В структуре В производилось осаждение поверх КТ тонкого слоя GaAs толщиной 50 Å с последующим увеличением температуры до 600°С и отжигом in situ в течение 10 мин. Затем при температуре 480°С производилось осаждение слоя n-GaAs $(n = 3 \cdot 10^{15} \,\mathrm{cm}^{-3})$ толщиной 1.0 мкм для структуры A и 0.5 мкм для структуры В. Для создания *p*-*n*-перехода слой *n*-GaAs был покрыт при той же температуре слоем легированного *p*⁺-GaAs толщиной 0.3 и 0.1 мкм соответственно. Исследования пространственно локализованных состояний островков, глубоких уровней дефектов и примесей, а также профиля распределения носителей в гетероструктурах производились DLTS- и C-V-методами с помощью спектрометра DL4600 фирмы BIO-RAD, работающего в режиме двухстробного интегрирования. Для измерения емкости использовался мост Boonton-72В, работающий на частоте 1 МГц. Чувствительность этой установки — $\Delta C/C_0 \approx 10^{-4}$. Для проведения DLTS- и C-V-измерений на подложку n⁺-GaAs и слой p^+ -GaAs были термически осаждены омические контакты. Перед каждым DLTS- и C-V-измерением образец отжигался в течение 1 мин при фиксированной температуре при одном из трех условий: приложено напряжение обратного смещения ($U_{ra} < 0$), нулевое напряжение $(U_{ra} = 0)$, приложено напряжение прямого смещения $(U_{fa} > 0)$. Предварительно образец нагревался до 450 К и выдерживался в течение 1 мин при $U_{ra} = 0$, если отжиг проводился при U_{ra} < 0, а затем охлаждался до температуры отжига. При отжиге с $U_{ra} = 0$ или U_{fa} > 0 образец выдерживался предварительно при $U_{ra} < 0$. Температура отжига варьировалась в пределах T_a = 80 ÷ 450 К. После этого образец охлаждался до температуры T = 80 К при одном из трех условий: $U_{ra} < 0, U_{ra} = 0$ или $U_{fa} > 0$. Далее начинался процесс DLTS- и C-V-измерений в темноте или при воздействии белым светом. Энергию термической активации Е_а и сечения захвата на них носителей $\sigma_{n,p}$ определяли из зависимости Аррениуса.

Фотолюминесцентные исследования проводились с помощью лазера на ионах Ar с использованием зеленой линии (514.5 нм). Исследуемые образцы размещались в азотном криостате. Спектр люминесценции детектировался с помощью монохроматора и охлаждаемого азотом германиевого диода.

Структурные исследования трехмерных островков InGaAs/GaAs проводили с помощью просвечивающего электронного микроскопа Phillips EM420, работающего при ускоряющем напряжении 100 кВт, в планарной геометрии и в геометрии поперечного сечения. Образцы в геометрии поперечного сечения подготавливались по стандартной процедуре с использованием финишного распыления ионами аргона с энергией 4 кВт при скользящем угле падения на установке Gatan Duo-Mill 600. Для исследований в планарной геометрии образцы были подготовлены химическим травлением в растворе H₂SO₄:H₂O₂:H₂O (5:1:1) с предварительным удалением верхнего слоя материала.

3. Результаты

На рис. 1 представлены изображения островков InGaAs в матрице GaAs неотожженного образца A(a, b)и отожженного *in situ* образца B(c, d), наблюдаемые в планарной геометрии и в геометрии поперечного сечения. Изображения образцов в планарной геометрии были получены в режиме светлого поля при соблюдении двухлучевых условий. Направление падающего электронного пучка было [001], а отраженного [220]. Изображения образцов в геометрии поперечного сечения



Рис. 1. Электронно-микроскопические изображения островков InGaAs в матрице GaAs неотожженного образца A(a, b) и отожженного *in situ* образца B(c, d): a, c — планарная геометрия и режим светлого поля (220); b, d — геометрия поперечного сечения слоя островков в режиме темного поля (200).



Рис. 2. Спектры фотолюминесценции образцов InGaAs/GaAs с трехмерными островками. a — неотожженный образец A; b — отожженный *in situ* образец B при температурах измерения T = 300 (1) и 77 K (2).

были получены при соблюдении двухлучевых условий в режиме темного поля с использованием отражения [200] при направлении падающего электронного пучка [011]. Выбор типа рефлекса и поля обусловлен наибольшей информативностью по распределению напряжений в слое InGaAs при оценке как латеральных размеров, так и высоты наблюдавшихся трехмерных напряженных островков. Как видно из рис. 1, a, для образца A на месте слоя InGaAs образовались островки с отрелаксировавшей через образование дислокаций несоответствия решеткой, что подтверждается наличием муарового узора на изображениях островков. Исследования изображения муарового узора показали, что средний размер параметра решетки островков составляет ~ 5.98 Å. С



Рис. 3. C-V-характеристики p-n-гетероструктуры InGaAs/GaAs с трехмерными островками: a — неотожженный образец A; b — отожженный *in situ* образец B. Измерения после изохронного отжига с $T_a = 450$ К и при охлаждении до T = 80 К с $U_{ra} < 0$ без света (1), $U_{ra} = 0$ без света (2), $U_{ra} < 0$ при освещении белым светом (3) и при охлаждении до 240 К с $U_{ra} < 0$ (4).

учетом погрешности на наличие напряжений это соответствует праметру решетки InAs. Наличие в образце А дислокаций несоответствия на границе (смачивающий слой)-островки подтверждается несимметричным и неоднородным контрастом в области трехмерных островков (рис. 1, b). Проведенная оценка плотности таких островков показала, что ее величина порядка 8·10¹⁰ см⁻², а латеральный размер равен в среднем 20÷30 нм. Высота этих островков, оцененная с помощью изображения, показанного на рис. 1, b, составляет $\sim 5 \div 6$ нм. Для отожженного in situ образца В приведенные на рис. 1, c, d изображения свидетельствуют о наличии сложного рельефа на месте слоя InGaAs и характерного для квантовых точек контраста. Оценка плотности этих точек дает значение порядка 5 · 10¹⁰ см⁻², их средний латеральный размер приблизительно ~ 14 нм, а высота ~ 7 нм.

На рис. 2, а и 2, b показаны спектры ФЛ при высокой энергии возбуждения для образцов A и B соответственно. При азотной температуре в спектрах фотолюминесценции первой структуры наблюдается линия при энергии фотонов $h\nu = 1.05$ эВ [1], которая связывается с основным состоянием электронов и дырок плоскости точек. Кроме того, со стороны высоких энергий в спектре ФЛ присутствует плечо. Подгонка с помощью гауссиана позволяет оценить энергию второго пика, она равна 1.23 эВ. Для второго образца в спектре ФЛ (рис. 2, b) наблюдается группа пиков с энергиями 1.017, 1.107 и 1.22 эВ. Измерения спектров ФЛ показали, что соотношение высоты этих пиков не зависит от уровня возбуждения в отличие от второго пика первого образца, который исчезает при низких уровнях возбуждения.

На рис. 3, а и 3, в приведены С-V-характеристики образцов А и В для различных условий изохронного отжига и температур измерения. На С-V-профилях этих образцов при низких температурах измерения имеются достаточно протяженные плато, что характерно для структур с квантовыми точками. Ширина плато С-V-профиля зависит от заселенности носителями уровней квантовых точек. При повышении температуры измерения до 240÷300 К происходит рост емкости. Вместо протяженного резко обозначенного плато, с увеличением напряжения обратного смещения (U_r) наблюдается падение емкости. Для образца А (рис. 3, а) градиент изменения емкости существенно больше, чем для В (рис. 3, b). В профилях распределения концентрации свободных электронов $n^*(x)$, которые рассчитываются из *C*-*V*-характеристик, при низких температурах для обоих образцов наблюдаются достаточно острые пики, положения которых совпадают с расчетными для слоя InGaAs. Для образца А при увеличении температуры измерения наблюдалось расширение области аккумуляции электронов в сторону *p*-*n*-перехода. Концентрация свободных электронов $n^*(x)$ в этой области увеличивалась от значений $2 \cdot 10^{15}$ см⁻³ при 77 K до $3.4 \cdot 10^{16}$ см⁻³ при 300 K. Для образца В таких изменений не наблюдалось, при 300 К происходило просто уменьшение и размытие пика аккумуляции электронов, что характерно для квантовых точек, и небольшое изменение концентрации свободных носителей в слое *n*-GaAs от $5 \cdot 10^{15}$ до $8.5 \cdot 10^{15}$ см⁻³.



Рис. 4. DLTS-спектры p-n-гетероструктуры InGaAs/GaAs с трехмерными островками при различных напряжениях импульса обратного смещения U_r и импульса заполнения U_p , но при фиксированном значении $\Delta U = U_r - U_p = 0.5$ В. a — неотожженный образец A; U_r , В: I = 0.5, 2 = 1.0, 3 = 1.5, 4 = 2.0, 5 = 3.5, 6 = 4.0, 7 = 4.5, 8 = 8.0. b — отожженный *in situ* образец B; U_r , В: I = 0.5, 2 = 1.0, 3 = 1.5, 4 = 2.0, 5 = 3.5, 6 = 4.0, 7 = 4.5, 8 = 8.0. b — отожженный *in situ* образец B; U_r , В: I = 0.5, 2 = 1.0, 3 = 1.5, 4 = 2.0, 5 = 2.5, 6 = 3.0. Все спектры получены для окна темпов эмиссии 200 с⁻¹ и длительности импульса заполнения 5 мс.



Рис. 5. DLTS-спектры p-n-гетероструктуры InGaAs/GaAs с трехмерными островками. a — неотожженный образец A после изохронного отжига при $T_a = 450$ K при условии охлаждения: $I - U_{ra} = 0$, $2 - U_{ra} < 0$, $3 - U_{fa} = 1.9$ B, $(4-6) - U_{ra} < 0$; (4-6) — освещение белым светом в процессе измерения спектра DLTS соответственно интенсивностью $I_4 < I_5 < I_6$; $U_p = 1$ B (обратное смещение), $U_r = 1.5$ B. b — отожженный *in situ* образец B после изохронного отжига при $T_a = 450$ K и при условии охлаждения: $I, 2 - U_{ra} < 0$, $3 - U_{ra} = 0$, $4 - U_{fa} = 1.9$ B; I — освещение белым светом в процессе измерения DLTS; $U_p = 0$ B, $U_r = 0.25$ B.



Рис. 6. DLTS-спектры p-n-гетероструктуры InGaAs/GaAs с трехмерными островками. a — неотожженный образец A; U_r , B: 1 - 2.5, (2-4) - 2.0; U_p (прямое смещение), B: (I, 3) - 1.84, 2 - 1.4, 4 - 4.65. b — отожженный *in situ* образец B; $U_r = 0.2$ B; U_p (прямое смещение), B: 1 - 4.7, 2 - 0. Все спектры были получены для окна темпов эмиссии 200 с⁻¹ и длительности импульса заполнения 5 мс.

Заметные и обратимые изменения C-V-характеристик наблюдались в зависимости от условий изохронного отжига ($U_{ra} = 0$ и $U_{ra} < 0$) и при освещении белым светом для образца A (рис. 3, a). Изохронный отжиг с $U_{ra} < 0$ приводил к росту емкости в области плато C-V-характеристики по сравнению с отжигом с $U_{ra} = 0$. Еще больший рост емкости наблюдался при освещении белым светом. Для образца B изохронные отжиги с $U_{ra} = 0$ и $U_{ra} < 0$ не приводили к изменениям C-V-характеристик (рис. 3, b). При оптической подсветке емкость незначительно увеличивалась при варьировании напряжения от 0.5 В прямого смещения до $U_r = 2.0$ В.

С-V-измерения позволили определить область пространственной локализации трехмерных островков и условия, при которых в спектрах DLTS должны наблюдаться сигналы, связанные с эмиссией носителей из квантовых состояний островков и дефектов, локализованных в их окрестностях. Для определения пространственной локализации DLTS-сигналов обоих образцов измерения были проведены при одновременном изменении значения импульсов заполнения Up и обратного смещения U_r, но с фиксированным интервалом между ними $\Delta U = U_r - U_p = 0.5 \,\mathrm{B}$ (рис. 4, *a*, *b*). Из рис. 4, *a* видно, что в спектрах DLTS для образца А, который не подвергался термоотжигу в процессе роста, наблюдается пять хорошо различимых пиков, связанных с эмиссией электронов из ловушек. Амплитуды этих пиков, проходя через максимум, уменьшались с ростом величин Ur и U_p . Для пиков ED1, ED2 и ED4 максимум проявлялся при $U_r = 0.5$ В. Положение максимума пика *ED*3 при варьировании U_r в диапазоне $0.5 \div 2.0 \,\mathrm{B}$ смещалось в область высоких температур, амплитуда пика ED3 при этом изменялась незначительно. Энергия термической активации Е_а этого уровня изменялась от 347 до 530 мэВ, сечение захвата σ_n от $1.9 \cdot 10^{-16}$ до $3.4 \cdot 10^{-14}$ см². При дальнейшем увеличении Ur амплитуда пика быстро уменьшалась. Для этого образца были проведены исследования зависимости спектров DLTS от температуры и условий предварительного изохронного отжига ($U_{fa} > 0$, $U_{ra} < 0$ и $U_r = 0$), а также при оптической подсветке (рис. 5, a). Если в поведении пиков *ED*4 и *ED*5 ничего необычного не наблюдалось и они явно соответствуют хорошо известным дефектам GaAs (см. таблицу), то пики ED1, ED2 и ED3 оказались весьма чувствительны к условиям изохронного отжига и оптической подсветке. Пики *ED*1 и *ED*2 практически исчезали при отжиге с $U_{ra} = 0$. Пик *ED*2 обозначался при отжиге с $U_{ra} < 0$. При отжиге с прямым смещением $U_{fa} > 0$ амплитуда пика ED2 увеличивалась и появлялся пик ED1. Еще значительнее они становились, если измерения DLTS-спектров проводились при освещении белым светом. Амплитуды обоих пиков росли с увеличением интенсивности света. Происходило также небольшое смещение положения пика ED2 в область низких температур. Энергия термической активации уровня, соответствующая пику ED2, изменялась от 287 до 252 мэВ, а сечение захвата от 1.1 · 10⁻¹⁶ до $2.4 \cdot 10^{-17} \, \text{см}^2$. Положение пика *ED*3 при этих услови-

Уровни	<i>Е</i> _{<i>a</i>} , мэВ	Сечение захвата $\sigma_{n,p}$, см ²	Концентрации дефектов N_t , см ⁻³		Идентификация
			образец А	образец В	уровней
ED1	165	$6.5\cdot10^{-14}$			
ED2	252	$2.4 \cdot 10^{-17}$			
$ED2^*$	293	$1.9\cdot 10^{-17}$			
ED3	530	$3.4\cdot10^{-14}$	$1.2\cdot 10^{15}$	-	EL3 [15], I3 [13]
ED4	667	$7.4\cdot 10^{-14}$	$3.6 \cdot 10^{15}$	$2.0\cdot 10^{14}$	E4 [14], I2 [13]
ED5	825	$1.1 \cdot 10^{-13}$	$2.2 \cdot 10^{15}$	-	EL2 [15]
HD1	199	$4.7 \cdot 10^{-16}$			
HD2	525	$2.5\cdot 10^{-16}$	$1.3\cdot 10^{16}$	$7.0 \cdot 10^{13}$	HL3 [16,17]
HD3	553	$3.0\cdot10^{-17}$	$2.5\cdot 10^{16}$	-	HS2 [16]
HD4	821	$1.0\cdot10^{-16}$	$2.4\cdot10^{16}$	$1.1\cdot 10^{14}$	H5 [18]

Параметры дефектов

ях измерения также смещалось в низкотемпературную область DLTS-спектра при одновременном небольшом росте амплитуды. Максимальные концентрации центров ED4, ED5 и ED3, определенные из высоты максимумов соответствующих DLTS-пиков, приведены в таблице. Были проведены измерения DLTS-спектра (рис. 6, a) при различных амплитудах импульсов напряжения заполнения U_p, приложенного в прямом направлении, при которых происходит инжекция дырок и заполнение дырочных ловушек. Мы наблюдали четыре дырочных ловушки, три из которых HD2, HD3 и HD4 идентифицируются с хорошо известными дефектами (таблица). Концентрации акцепторных центров были приблизительно в 3 раза выше, чем донорных (см. таблицу). DLTS-пик HD1 имел форму колокола со смещенным от центра максимумом, положение которого зависело от напряжений обратного смещения и импульса заполнения (рис. 6, a). Этот уровень не идентифицировался ни с одним из известных. Энергия термической активации Е_а уровня HD1 изменялась от 126 до 199 мэВ, сечение захвата дырок σ_p от $1.6 \cdot 10^{-17}$ до $4.7 \cdot 10^{-16}$ см².

В DLTS-спектрах образца В, который подвергался термоотжигу в процессе роста, по сравнению с образцом А произошли существенные изменения (рис. 4, b, 5, b, 6, b). Наблюдалось исчезновение ряда дефектов, которым в DLTS-спектрах соответствовали пики ED3, ED5 и HD3 (рис. 4, b, 6, b). Уменьшились более, чем на порядок, концентрации остальных дефектов (см. таблицу). В спектрах DLTS после проведения предварительных изохронных отжигов и оптической подсветки произошли значительные изменения в поведении пика ED2, который для образца *В* мы обозначили как *ED*2* (рис. 5, *b*). Пик *ED*2* при отжиге с $U_{ra} = 0$ не исчезает, он лишь смещается в область низких температур. Еще больше и в ту же сторону пик $ED2^*$ смещается при отжиге с $U_{fa} > 0$. Оптическая подсветка приводила к незначительному росту его амплитуды и появлению низкотемпературного (при $\sim 80\,{\rm K}$) DLTS-сигнала большой амплитуды.

Обсуждение результатов

Результаты, полученные с помощью метода просвечивающей электронной микроскопии (рис. 1, a, b), свидетельствуют о том, что в исследуемых нами p-n-гетероструктурах InGaAs/GaAs, выращенных методом ГФЭ МОС, происходит следующее: в неотожженном образце А — формирование трехмерных островков с дислокациями несоответствия, а в отожженном in situ образце В — формирование когерентно напряженных трехмерных островков, т.е. квантовых точек. Наблюдаемое поведение C-V-характеристик (рис. 3, a, b), измеренных при различных температурах и в зависимости от условий изохронного отжига, показывает, что в исследуемых гетероструктурах имеются пространственно локализованные состояния, на которых происходит аккумуляция электронов. В образце А при низких температурах электроны аккумулируются как на квантовых состояниях островков InGaAs, так и на глубоких состояниях доноров и акцепторов, присутствующих в GaAs. При этом концентрация глубоких доноров (N_{td}) в этом образце сравнима с концентрацией мелких доноров (N_d) , концентрация компенсирующих глубоких акцепторов (N_{ta}) превышает концентрацию глубоких доноров. При понижении температуры измерения темп эмиссии электронов с глубоких уровней, расположенных вблизи середины запрещенной зоны, предельно понижается, и наблюдаемое плато С-V-характеристик определяется квантовыми состояниями островков. Ширина плато зависит от заселенности уровней при данных температурах. Поверхностная плотность электронов (n_d) на квантовых состояниях островков может быть оценена, если известно напряжение смещения в начале U_{r1} и конце плато U_{r2} , а также емкость плато C^* и площадь диода *S*, с помощью соотношения $n_d = C^* (U_{r1} - U_{r2}) / S$. Это значение для неотожженной структуры А оказалось равным $4.9 \cdot 10^{11} \,\mathrm{cm}^{-2}$, а для отожженной *in situ* структуры $B 5.7 \cdot 10^{11} \,\mathrm{cm}^{-2}$. С повышением температуры темп эмиссии электронов с глубоких донорных

уровней растет, и он становится сравнимым по величине с темпом, определяемым квантовыми состояниями островков. При условии, что концентрация глубоких донорных уровней сравнима с концентрацией мелких доноров и плотностью квантовых состояний, это приводит к значительному увеличению емкости и отклонению плато *C*-*V*-характеристики от горизонтального (рис. 3, *a*). Для образца В концентрация глубоких донорных и акцепторных уровней меньше, чем концентрация мелких донорных примесей, и их перезарядка при изохронных отжигах не влияет на *C*-*V*-характеристику. В плато С-V-характеристики этого образца начиная с $U_r > 4 \,\mathrm{B}$ наблюдается небольшой рост емкости, который возникает в результате усиления туннельного полевого эффекта перехода электронов с квантовых состояний точек через барьер в слой GaAs. При оптической подсветке с малыми значениями U_r увеличение емкости, по-видимому, связано с захватом квантовыми точками электронов, возбуждаемых светом в нейтральном *n*-слое GaAs. Этот результат в отличие от выводов, сделанных в работе [19], говорит о том, что электроны лучше захватываются квантовыми точками, чем дырки, которые также возбуждаются светом. DLTS-измерения неотожженого образца A (рис. 4, a, 5, a, 6, a) также показали наличие большого числа донорных и акцепторных дефектов с глубокими уровнями с концентрацией глубоких акцепторов, превышающей концентрацию глубоких доноров (см. таблицу). Определенные из зависимости Аррениуса параметры глубоких уровней и наблюдаемые закономерности в изменении DLTS-спектров (рис. 4, *a*, 5, а, 6, а) позволили нам провести идентификацию донорных (ED3, ED4, ED5) и акцепторных (HD2, HD3, HD4) уровней с хорошо известными из более ранних работ. Уровень ЕD4 оказался весьма близок по параметрам к дефекту I2 [13] (E4 [14]), который образуется в GaAs при радиационном облучении и связывается с кластером, в состав которого входят вакансия мышьяка VAs и дефект перестановки (antisite defect) AsGa. Этот кластер был обнаружен в обоих исследуемых образцах. В профиле распределения концентрации этого дефекта присутствовало два максимума: один (бо́льший) при $U_r = 0.5$ В, другой (меньший) при $U_r = 2.0$ В (рис. 4, *a*). Следующий донорный уровень, ЕD5, по параметрам совпадал с дефектом EL2 [15]. Он был обнаружен только в неотожженной структуре А, в которой содержались трехмерные островки InGaAs с дислокациями несоответствия. Дефект EL2 обычно обнаруживается в слоях, содержащих дислокации, и образует вокруг них атмосферу Коттрелла (Cottrell) [20]. Ловушкой, которую связывают с ядром дислокации несоответствия, является уровень с энергией 0.58 эВ [20]. Возможно, он присутствует в наших DLTS-спектрах в виде низкотемпературного плеча пика ED5. Максимум в распределении концентрации дефектов *EL*2 наблюдался при $U_r = 1.5 \,\mathrm{B}$ и он приходился на провал при распределении кластеров $V_{\rm As}$ – As_{Ga}. Уровень HD2 (рис. 6, *a*) близок по параметрам к уровню HL3, который был впервые обнаружен в GaAs, выращенном методом жидкофазной эпитаксии [16]. Этот уровень связан с комплексом собственных дефектов, в состав которого входит вакансия мышьяка V_{As} , [17] и образуется он при избытке Ga в растворе-расплаве. В нашем случае появление дефекта, в состав которого входит V_{As} , может быть обусловлено, в частности, локальной вариацией стехиометрии в результате диффузии In в процессе роста эпитаксиального слоя GaAs и образования квантовых точек [21]. Максимальная концентрация центров HD2 в образце A составляла величину $N_t = 1.3 \cdot 10^{16} \, {\rm cm}^{-3}$ при $U_r = 0.5 \,\mathrm{B}$, а в *B* она уменьшилась на 2 порядка и составляла $N_t = 1.4 \cdot 10^{14} \,\mathrm{cm}^{-3}$. Другой пик DLTS, который обнаруживался в образце А (рис. 6, а) и исчезал в образце B (рис. 6, b), — HD3. Он идентифицировался с дефектом HS2 [16] GaAs, и так же, как HL3, образуется при избытке Ga в растворе-расплаве. Уровень HD4 был близок по параметрам как к уровню Cr(3+) [16], так и к дефекту H5, образующемуся при радиационном облучении [18]. Теперь для выяснения природы пиков *ED*1, *ED*2 и *ED*3 в образце *A* (рис. 5, *a*) и *ED*2* (рис. 5, *b*) в образце В остановимся подробнее на характере их поведения в зависимости от условий предварительного изохронного отжига и оптической подсветки. Отжиги и подсветка в образце А приводят к изменению амплитуд пиков ED1 и ED2 при небольшом смещении максимума пика ED2 в низкотемпературную область DLTS-спектра (рис. 5, *a*). Они сопровождались соответствующими изменениями C-V-характеристик (рис. 3, a). Ранее нами было установлено [11,12], что для пространственно локализованных состояний амплитуда DLTS-сигнала ΔC зависит от изменения положения уровня Ферми и степени заполнения квантовых или поверхностных состояний и определяется с помощью соотношения

$$\Delta C/C = n_d L/2N_d W^2, \tag{1}$$

где С — емкость слоя объемного заряда для напряжения обратного смещения, при котором производится регистрация DLTS-сигнала; n_d — поверхностная плотность электронов, захваченных на локализованное состояние; L — глубина расположения слоя квантовых точек; W ширина области объемного заряда; N_d — концентрация доноров в слое GaAs. Эта зависимость является характеристикой для пространственно локализованных состояний, позволяющей отличить их от глубоких уровней дефектов, распределенных по толщине полупроводника. При изменении условий изохронного отжига с U_{ra} = 0 на $U_{ra} < 0$ емкость в образце *A* увеличивается (рис. 3, *a*). Связано это с тем, что в результате отжига при 450 К с *U_{ra}* = 0 и последующего охлаждения до 80 К глубокие донорные уровни ED4 и ED5, захватывая электроны, становятся нейтральными. Концентрация нескомпенсированных доноров уменьшается, уровень Ферми опускается вниз, заполнение пространственно локализованных состояний уменьшается и амплитуды DLTS-пиков ED1 и *ED*2 также уменьшаются (рис. 5, a). При отжиге и охлаждении с U_{ra} < 0 донорные уровни при низких

температурах остаются незаполненными, концентрация нескомпенсированных доноров, заполнение локальных состояний и амплитуды низкотемпературных пиков ED1 и ED2 пиков не изменяются. Соответственно при отжиге и последующем охлаждении с $U_{fa} > 0$ происходит инжекция дырок через *p*-*n*-переход, при этом определенная часть дырок захватывается на акцепторные глубокие уровни в нейтральной области GaAs. С учетом того, что $N_{ta} > N_{td}$, концентрация нескомпенсированных доноров увеличивается, емкость возрастает, уровень Ферми смещается ближе к зоне проводимости и заполнение квантовых состояний увеличивается. Это приводит к увеличению DLTS-пиков ED1 и ED2 по сравнению со случаем отжига с $U_{ra} < 0$. Как отмечалось ранее, оптическая подсветка при измерении С-V-характеристик в области низких температур приводила к значительному росту емкости образца A (рис. 3, a) и амплитуд DLTSпиков ED1 и ED2 (рис. 5, a). Рост амплитуд этих пиков зависел от интенсивности света и связан с захватом на глубокие донорные и акцепторные ловушки электронов и дырок, возбуждаемых светом. При условии $N_{ta} > N_{td}$, так же как и при отжиге с $U_{fa} > 0$, концентрация нескомпенсированных доноров увеличивается тем больше, чем больше интенсивность света; соответственно изменяются и все остальные величины. Из этих исследований следует однозначный вывод о том, что уровни ED1 и ED2 являются пространственно локализованными состояниями. Их локализация совпадает с областью аккумуляции электронов, т.е. пиков $n^{*}(U_{r})$, (рис. 3, *a*) и положением трехмерных островков, определенных из ПЭМ исследований. Кроме того, при увеличении заселенности уровня ED2 наблюдается смещение положения DLTS-максимума в низкотемпературную область спектра (рис. 4, a), как это характерно для квантовых точек. Объяснение смещению DLTS-пика дано в работах [9,10] и связывается с эффектом кулоновского отталкивания между электронами на квантовых состояниях точек, приводящим к тем большему уменьшению энергии эмиссии, чем больше электронов окажется на основных и возбужденных состояниях. Для уровней ED1 и ED2 наблюдалось уменьшение амплитуд DLTS-сигнала при больших U_r (рис. 4, *a*), которое также характерно для КТ и объясняется проявлением полевого эффекта [22]. Проведенные нами исследования $\Phi \Pi$ образца A (рис. 2, a) показали наличие в спектрах излучения полосы основного состояния экситона КТ с энергией $h\nu = 1.05$ эВ и шириной 116 мэВ, а также плеча с энергией $h\nu = 1.25$ эВ. Уровни HD1 и ED3 также проявляли характерные признаки пространственно локализованных состояний: смещение положения максимума DLTS-сигнала при изменении напряжения обратного смещения U_r и импульса заполнения U_p (рис. 6, *a*). Ранее в работах [11,12] мы уже наблюдали подобные зависимости для квантовых и поверхностных состояний от напряжения обратного смещения и импульса заполнения. Что касается уровня ED3, то он, по-видимому, связан с поверхностными состояниями гетерограницы InGaAs/GaAs

и близок по параметрам к дефектам EL3 [15] и I3 [13], последний из которых образуется при радиационном облучении GaAs и связан с VAs и межузельным As. Изменения энергии термической ионизации электронов с поверхностных состояний могут быть обусловлены электростатическим диполем, возникающим вследствие кулоновского взаимодействия электронов смачивающего слоя, расположенного ближе к n^+ -подложке, и ионизированных состояний гетерограницы. Встроенное поле этого диполя будет направлено в противоположную по отношению к полю *p*-*n*-перехода сторону, уменьшая эффективное электростатическое поле. При увеличении напряжения обратного смещения Ur число локализованных электронов в смачивающем слое за счет туннельной эмиссии, стимулированной полем, будет уменьшаться, а следовательно, и эффективное поле также будет уменьшаться. Активационная энергия электронной эмиссии будет увеличиваться, что соответствует смещению максимума ED3 пика DLTS в высокотемпературную область спектра (рис. 4, a). При увеличении амплитуды импульса заполнения Up заселенность квантовой ямы смачивающего слоя электронами растет, эффективное поле увеличивается и энергия активации электронов уменьшается за счет проявления полевого эффекта. Для дырочного уровня HD1, который, по-видимому, связан с основным дырочным состоянием квантовой точки, электростатический диполь образуется дырками, локализованными на состоянии HD1 и захватившими электрон глубокими акцепторными уровнями. Электрическое поле диполя на этот раз будет направлено в ту же сторону, что и поле p-n-перехода. Все изменения активационной энергии для дырочной эмиссии с состояния HD1 будут противоположны тому, что мы наблюдали для уровня *ED3*. Суммируя величины энергий электронного (*ED2*) и дырочного (HD1) состояний с энергией основного состояния экситона КТ, получаем в итоге величину, приблизительно совпадающую с шириной запрещенной зоны. Эта же величина получается при суммировании энергий состояний *ED*1 и *HD*1 с энергией $h\nu = 1.25$ эВ, и, таким образом, подтверждается наше предположение о том, что уровни ED2 и HD1 являются основными электронным и дырочным состояниями, а уровень ED1 — возбужденным состоянием КТ. DLTS-измерения отожженного образца К1383 (рис. 4, b, 5, b, 6, b) показали исчезновение целого ряда дефектов донорного и акцепторного типов: EL2, связанного с дислокацией несоответствия, EL3(I3) и HS2, имеющего отношение к V_{As} . Примерно, на 2 порядка уменьшились концентрации акцепторных дефектов HL3 и H5. Это привело к тому, что уровень Ферми и соответственно заполнение квантовых состояний точек в слоях GaAs более не определяются перезарядкой донорных и акцепторных дефектов с глубокими уровнями. Наблюдаемые изменения пика ED2* в DLTS-спектрах (рис. 5, b) после изохронных отжигов определяются уже электростатическим диполем за счет кулоновского взаимодействия локализованных в точке электронов и ионизованных глубоких донорных уровней.

209

При изохронном отжиге и последующем охлаждении с $U_{ra} < 0$ до 80 К глубокие донорные уровни остаются ионизованными. После подачи импульса заполнения при низких температурах измерения DLTS-спектра электроны захватываются на квантовые состояния точек. В то же время глубокие донорные уровни остаются ионизованными, так как энергии электронов еще недостаточно для преодоления потенциального барьера и захвата на уровень. Происходит образование диполя, электрическое поле которого направлено в ту же сторону, что и поля *p*-*n*-перехода. Энергия термической активации электронов с квантового состояния уменьшается из-за полевого эффекта. При отжиге и охлаждении с U_{ra} = 0 происходит частичное заполнение донорных уровней и электростатическое поле диполя уменьшается. Происходит смещение DLTS-пика ED2* в область высоких температур. Отжиг и охлаждение при $U_{fa} > 0$ приводят к еще большему смещению пика ED2* в ту же сторону, что и при отжиге с $U_{ra} = 0$. Это определяется тем, что в исследуемой нами структуре В реализуется режим двойной инжекции электронов и дырок при прямом смещении. Степень заполнения электронных ловушек увеличивается в большей степени, чем при отжиге с $U_{ra} = 0$. В качестве доказательства этого служит рост пика ED2* при измерении DLTS-спектра с импульсами заполнения $U_{fa} > 0$ (рис. 5, *b*).

Заключение

Мы провели детальные *C*-*V*- и DLTS-исследования p-n-структур InGaAs/GaAs, выращенных методом ГФЭ МОС, по установлению влияния послеростового отжига слоя InGaAs на процесс формирования трехмерных когерентно напряженных бездислокационных островков с привлечением таких методов, как просвечивающая электронная микроскопия и фотолюминесценция. Кроме того, на неотожженных и отожженных in situ структурах были проведены исследования дефектов с глубокими уровнями и их влияния на заполнение квантовых состояний трехмерных островков (квантовых точек). Исследовался также эффект кулоновского взаимодействия локализованных в квантовой точке носителей с ионизованными глубокими донорами и акцепторами. Установлено, что в неотожженной структуре происходит образование трехмерных островков с дислокациями несоответствия, а в отожженном — бездислокационных квантовых точек. Из С-V-измерений в неотожженной структуре обнаружено существование области аккумуляции электронов, связанной как с квантовыми состояниями точек, так и с дефектами с глубокими уровнями. DLTS-измерения позволили определить, что вблизи КТ присутствуют такие известные дефекты, как EL2, EL3(I2), I3, HL3, HS2, H5. Концентрации ловушек были сравнимы с концентрацией мелких доноров, а дырочных ловушек больше, чем электронных. После отжига in situ исчезли дефекты EL2 и EL3, связанные с образованием дислокаций, концентрации остальных дефектов упали на порядок и более. Обнаружено, что заполнение электронных квантовых состояний *ED*1, *ED*2 и дефекта *EL*3, расположенного на гетерогранице InGaAs/GaAs, в неотожженных структурах управляется перезарядкой донорных и акцепторных дефектов с помощью изохронных отжигов ($U_{ra} = 0$, $U_{ra} < 0$ и $U_{fa} > 0$) и белого света. Поведение акцепторного квантового состояния в неотожженной структуре, точно так же и электронного квантового состояния *ED*2* в отожженной *in situ* структуре, при изохронных отжигах определяется образованием электростатического диполя и эффектом кулоновского взаимодействия между носителями, локализованными в квантовой точке, и ионизованными дефектами с глубокими уровнями, расположенными вблизи КТ.

Работа была поддержана Министерством науки России по программе "Физика твердотельных наноструктур" (грант 99-1115).

Список литературы

- D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (Wiley Chichester, 1998).
- [2] I.N. Stranski, L. Krastanow. Sitzungsberichte d. Akad. d. Wissenscaften in Wien, Abt. Iib, Band 146, p. 797 (1937).
- [3] F. Heinrichsdorff, A. Krost, D. Bimberg, M. Grundmann, A.O. Kosogov, P. Werner. Appl. Phys. Lett., 68, 3284 (1996).
- [4] F. Heinrichsdorff, M.-H. Mao, N. Kirstaedter, A. Krost, D. Bimberg, A.O. Kosogov, P. Werner. Appl. Phys. Lett., 71, 3284 (1997).
- [5] D. Bimberg, V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, A. Krost, F. Heinrichsdorff. Appl. Surf. Sci., 130–132, 713 (1998).
- [6] J.C. Ferrer, F. Peiro, A. Cornet, J.R. Morante, T. Utzmeier, G. Armelles, F. Briones. *Proc. 19th Int. Conf. on Defects in Semiconductors* (Aveiro, Portugal, 1997) [Mater. Sci., Forum, 258–263, 1689 (1997)].
- [7] A.O. Kosogov, P. Werner, U. Gosele, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Appl. Phys. Lett., 69, 3072 (1996).
- [8] D.V. Lang. J. Appl. Phys., 45, 3023 (1974).
- [9] M.M. Sobolev, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, M.V. Maximov, N.N. Ledentsov. *Proc. 19th Int. Conf. on Defects in Semiconductors* (Aveiro, Portugal, 1997) [Mater. Sci. Forum, **258–263**, pt. 3, 1619 (1997)].
- [10] М.М. Соболев, Ф.Р. Ковш, В.М. Устинов, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, М.В. Максимов, Н.Н. Леденцов. ФТП, **31**, 1249 (1997).
- [11] М.М. Соболев, Ф.Р. Ковш, В.М. Устинов, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, М.В. Максимов, Н.Н. Леденцов. ФТП, 33, 184 (1999).
- [12] M.M. Sobolev, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov. J. Electron. Mater., 28(5), 491 (1999).
- [13] D. Stievenard, J.C. Bourgoin. J. Appl. Phys., 59, 743 (1986).
- [14] D. Pons, P.M. Monney, J.C. Bourgoin. J. Appl. Phys., 51, 2038 (1980).
- [15] G.M. Martin, A. Mitonneau, A. Mircea. Electron. Lett., 13, 191 (1977).
- [16] A. Mitonneau, G.M. Martin, A. Mircea. Electron. Lett., 13, 666 (1977).

- [17] П.Н. Брунков, С. Гайбуллаев, С.Г. Конников, В.Г. Никитин, М.И. Папенцев, М.М. Соболев. ФТП, 25, 338 (1991).
- [18] D. Stievenard, X. Boddaert, J.C. Bourgoin, H.J. von Bardeleben. Phys. Rev. B, 41, 5271 (1990).
- [19] G. Yusa, H. Sakaki. Appl. Phys. Lett., 70, 345 (1997).
- [20] G.P. Watson, D.G. Ast, T.J. Anderson, B. Pathangey, Y. Hayakawa. J. Appl. Phys., 71, 3399 (1992).
- [21] P.D. Siverns, S. Malik, G. McPherson, D. Childs, C. Roberts, R. Murray, B.A. Joyce. Phys. Rev. B, 58, R10 127 (1998).
- [22] S. Anand, N. Carlsson, M.-E. Pistol, L. Samuelson, W. Seifert. Appl. Phys. Lett., 67, 3016 (1995).

Редактор Л.В. Шаронова

Thermal annealing of defects in InGaAs/GaAs heterostructures with three-dimensional islands

M.M. Sobolev, I.V. Kochnev, V.M. Lantratov, N.A. Bert, N.A. Cherkashin, N.N. Ledentsov, D.A. Bedarev

loffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences, 194021 St.Petersburg, Russia

Abstract We report on the investigation of *in situ* annealing the InGaAs layer at a p-n heterostructure with InGaAs/GaAs (that has been grown by a metal-organic chemical vapor deposition) and its effect on the formation of three-dimensional coherently strained dislocation-free islands. The samples were investigated by the capacitance-voltage and deep level transient spectroscopy, the transmission electron microscopy, and photoluminescece. It has been established that three-dimensional islands with misfit dislocations are formed in an as-grown structure A, whereas the in situ annealed structure B contains quantum dots. The pursued investigation of defects with deep levels has shown that in structure A regions of high electron density is characterized by the presence of hole and electron traps, among which there are EL2, EL3(I3), 12, HL3, HS2, H5 ones. The trap density in GaAs layer was of the order of the electron density, with the hole trap density exceeding the electron trap one. Throughout in situ aneealing EL2- and EL3-type defects, which are associated with formation of dislocations, have vanished. The other defect density decreased by more than an order of magnitude. In A structure there are defects with deep levels that control the population of the energy states of quantum dots. In B structure we observed a manifestation of the effect of the Coulomb interaction of carriers localized at quantum dots with ionized defects.