

## Влияние рассогласования параметров решеток на структурные, оптические и транспортные свойства слоев InGaAs, выращиваемых методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках InP (100)

© А.Е. Жуков, А.Ю. Егоров, В.М. Устинов, А.Ф. Цацульников, М.В. Максимов, Н.Н. Фалеев, П.С. Копьев  
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 31 января 1996 г. Принята к печати 5 февраля 1996 г.)

Исследовано влияние напряжения рассогласования на структурные, транспортные и оптические свойства толстых слоев InGaAs, выращенных на подложках InP (100) методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Обнаружено, что слои с напряжением растяжения могут быть выращены с большим рассогласованием до начала пластической релаксации напряжения по сравнению со слоями с напряжением сжатия. Критическое рассогласование для толстых слоев InGaAs не описывается с достаточной точностью ни моделью механического равновесия, ни моделью баланса энергии. Диапазон рассогласования, необходимый для получения высоких значений подвижности носителей и эффективности излучательной рекомбинации в слоях InGaAs, выращенных на подложках InP, существенно уже диапазона псевдоморфного роста. Наибольшие подвижности и наименьшие ширины пика фотолюминесценции достигаются в слоях, согласованных по параметру решетки с подложкой, а также в слоях, слабо обогащенных галлием. Исследована зависимость ширины запрещенной зоны от состава с учетом влияния напряжения.

Твердые растворы  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , эпитаксиально выращиваемые на подложках InP, благодаря своим электронным свойствам широко используются в многочисленных приборных структурах опто- и микроэлектроники, например таких, как лазерные диоды на длину волны около 1.5 мкм, транзисторы с высокой подвижностью электронов и гетероструктурные биполярные транзисторы (ГБТ).

В случае рассогласования решеток эпитаксиального слоя и подложки возникающее напряжение может быть аккомодировано упруго, если толщина слоя не превышает некоторое критическое значение  $h_c$ . Толщина слоев InGaAs, предназначенных для приборных применений, не должна превышать  $h_c$ , так как в противном случае происходит образование дислокаций несоответствия, сопровождаемое резким ухудшением как оптических, так и электрических характеристик.

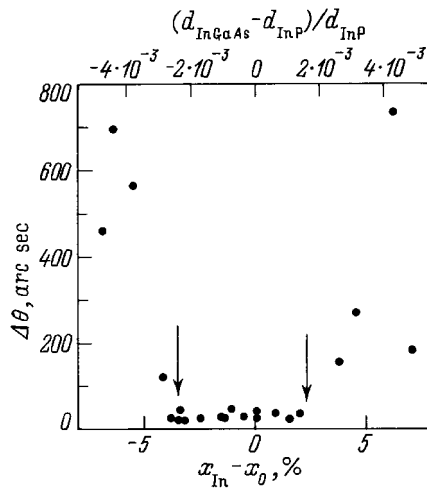
В некоторых применениях, как например коллекторы в ГБТ, используются относительно толстые слои (несколько десятых мкм), что накладывает жесткие ограничения на диапазон допустимого отклонения от решеточно-согласованного состава. В настоящей работе нами исследуется влияние рассогласования на структурные, транспортные и оптические свойства толстых слоев InGaAs, выращенных на InP (100) методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ).

Слои InGaAs выращивались методом МПЭ в установке Riber 32P с твердотельным источником  $\text{As}_4$  на полуизолирующих подложках InP:Fe, ориентированных в плоскости (100), без какого-либо буферного слоя. Температура подложки во время роста измерялась инфракрасным пирометром IRCON V-серии и была установлена равной  $500 \div 510^\circ \text{C}$ ; отношение

потоков элементов V и III групп было  $\sim 20$ . Толщина слоев InGaAs составляла 0.8 мкм, скорость роста 0.4 мкм/ч. Потоки In и Ga предварительно калибровались с помощью осцилляций интенсивности отраженного пучка быстрых электронов во время роста GaAs и  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x < 0.3$ ) на GaAs(100) и контролировались по показаниям ионного датчика. Образцы, предназначенные для оптических и транспортных исследований, слабо легировались Si в концентрации  $n \simeq 1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ , что представляет собой типичный уровень легирования для коллекторов ГБТ.

Состав определялся из отношения потоков  $[\text{In}]/[\text{Ga}]$  и затем уточнялся с помощью двухкристалльной рентгеновской дифракции. Рассогласование  $\Delta x = x_{\text{In}} - x_0$  (где  $x_{\text{In}}$  — реальная мольная доля InAs в твердом растворе,  $x_0$  — мольная доля InAs, отвечающая согласованию параметров решеток эпитаксиального слоя и подложки) варьировалось в пределах  $(-7) \div (+7)\%$ . Использовался рентгеновский дифрактометр TRS-1, монохроматор Ge (001), линия излучения  $\text{CuK}\alpha_1$  (1.5405 Å). Фотолюминесценция (ФЛ) исследовалась при 77 К, возбуждение осуществлялось He-Ne-лазером (1.96 эВ) с плотностью мощности накачки 20 Вт/см<sup>2</sup>, детектирование — охлаждаемым Ge-фотодиодом. Подвижность электронов определялась с помощью холловских измерений методом Вандер-Пау при 77 и 300 К, Холл-фактор полагали равным единице.

Обычно за меру кристаллического совершенства слоев принимается ширина дифракционного пика слоя [1]. На рис. 1 приведена зависимость  $\Delta\theta$ , ширины дифракционного пика эпитаксиального слоя (отражение 004), от рассогласования  $\Delta x$ . Как видно, в диапазоне  $\Delta x$  от  $-3.7$  до  $+2.2\%$  (что соответствует рассогласованию постоянных решетки InGaAs и InP



**Рис. 1.** Зависимость ширины дифракционного пика эпитаксиального слоя на рентгеновских кривых качания вблизи отражения (004) для слоев InGaAs толщиной  $\sim 0.8$  мкм на InP(100) от рассогласования постоянных решеток. Стрелками показаны границы псевдоморфного роста (критическое рассогласование).

$\Delta d/d = (d_{\text{InGaAs}} - d_{\text{InP}})/d_{\text{InP}} \simeq (-2.5 \div 1.5) \cdot 10^{-3}$   
 $\Delta\theta$  находится в пределах  $20 \div 50''$ . Значения  $\Delta\theta \simeq 20''$  являются типичными для слоев InGaAs, полученных методом МПЭ на InP с учетом относительно небольшой толщины исследуемых слоев ( $< 1$  мкм).

При возрастании абсолютной величины рассогласования сверх 3.7% для растяжения и 2.2% для сжатия наблюдается резкое увеличение  $\Delta\theta$  до нескольких сот угловых секунд. Это сопровождается исчезновением интерференционных полос в рентгеновских кривых качания. Интерференционные полосы (Pendellösung fringes) в геометрии брэгговского отражения предсказываются динамической теорией дифракции для совершенных кристаллов как следствие интерференции волновых полей, создаваемых у входной и задней поверхностей кристалла [2]. Их исчезновение означает нарушение параллельности поверхности эпитаксиального слоя и интерфейса (эпитаксиальный слой/подложка) как результат возникновения дислокаций несоответствия. Дислокации несоответствия частично снимают упругое напряжение, что приводит к наблюдаемому расхождению величины  $x_{\text{In}}$ , определяемой с помощью теории упругости в предположении псевдоморфного роста, с соответствующей величиной, найденной из отношения потоков [In]/[Ga].

Для предсказания критической толщины псевдоморфного роста к настоящему времени предложено две модели: механического равновесия [3], согласно которой

$$h_c/b \simeq \frac{1 - 1/4\nu}{4\pi(1 + \nu)} \left( \frac{1}{\Delta d/d} \right) [\ln(h_c/b) + 1], \quad (1)$$

и баланса энергии [4]

$$h_c/b \simeq \frac{1 - \nu}{1 + \nu} \frac{1}{16\pi\sqrt{2}} \left( \frac{b}{d_{\text{InGaAs}}} \right) \left[ \left( \frac{1}{\Delta d/d} \right)^2 \ln(h_c/b) \right], \quad (2)$$

где  $b$  — абсолютная величина вектора Бюргерса,  $\nu$  — отношение Пуассона,

$$\frac{\Delta d}{d} \equiv \frac{d_{\text{InGaAs}} - d_{\text{InP}}}{d_{\text{InP}}} = \frac{d_{\text{InAs}} - d_{\text{GaAs}}}{d_{\text{InP}}} \Delta x. \quad (3)$$

Модель баланса энергии хорошо описывает критическую толщину для InGaAs/InP в диапазоне  $h_c \simeq 100 \div 1000 \text{ \AA}$  [5].

Для толстых слоев удобно ввести величину критического рассогласования ( $\Delta x_c$ ), определяемую как начало пластической релаксации для слоя толщиной  $h$ . Таким образом, мы можем интерпретировать значения  $\Delta x = -3.7$  и  $+2.2\%$  как соответствующие критическому рассогласованию для слоев InGaAs толщиной 0.8 мкм, испытывающих напряжение растяжения или сжатия соответственно. Сходные результаты были получены в [1], где было обнаружено, что для слоев InGaAsP ( $h \simeq 1$  мкм) на InP когерентный рост поддерживается вплоть до  $\Delta x_c \simeq 3\%$ .

Полагая для рассматриваемого случая  $h = 0.8$  мкм, получаем абсолютную величину  $\Delta x_c \simeq 0.5$  и 7% согласно моделям механического равновесия и баланса энергии соответственно. Таким образом, модель механического равновесия дает заниженное, а модель баланса энергии завышенное значения критического рассогласования для случая толстых ( $> 1000 \text{ \AA}$ ) слоев. Отличие обусловлено, вероятно, тем, что модель механического равновесия определяет  $h_c$  как толщину напряженной пленки, при которой уже существующие прорастающие (threading) дислокации могут начать движение, формируя линии интерфейсных дислокаций несоответствия. В то же время модель баланса энергии основывается на предположении, что растущая пленка первоначально свободна от дислокаций. Очевидно, что реально имеет место промежуточная ситуация.

Отметим, что согласно данным, приведенным на рис. 1, абсолютное значение критического рассогласования для напряжения растяжения ( $\Delta x_{\text{In}} < 0$ ) превышает соответствующее значение для напряжения сжатия ( $\Delta x_{\text{In}} > 0$ ). Различие составляет  $\sim 1.5\%$ , что соответствует  $\Delta d/d \simeq 1 \cdot 10^{-3}$  и значительно превышает экспериментальную погрешность. Мы полагаем, что данный эффект может быть объяснен различием в коэффициентах термического расширения (КТР) эпитаксиального слоя и подложки. Для системы InGaAsP/InP КТР были экспериментально определены в [6]. Было обнаружено, что в диапазоне  $20 \div 600^\circ \text{C}$  изменение рассогласования решеток с изменением температуры от  $T_1$  до  $T_2$  хорошо описывается формулой

$$\frac{\Delta d}{d}(T_2) = \frac{\Delta d}{d}(T_1) + \Delta\alpha(T_2 - T_1). \quad (4)$$

Для случая InGaAs/InP  $\Delta\alpha$  составляет приблизительно  $1 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Полагая  $T_1 = 20^\circ\text{C}$  и  $T_2 = 505^\circ\text{C}$  ( $T_2$  — температура роста), получаем изменение рассогласования решеток  $\sim 5 \cdot 10^{-4}$ . Это эквивалентно сдвигу согласованного состава на  $\sim 0.7\%$  в сторону обогащения Ga.

Таким образом, слои, имеющие избыточное (сверх  $x_0$ ) содержание In при комнатной температуре, при температуре роста оказываются напряженными более сильно. Исходя из этой модели мы получаем, что различие критических рассогласований для случаев растяжения и сжатия составляет  $\sim 0.7\%$ , что близко к экспериментально полученному значению.

Обычно считается, что пока сохраняется псевдоморфный рост, электрические и оптические свойства не претерпевают существенной деградации. На рис. 2 приведена экспериментальная зависимость холловской подвижности от рассогласования для слоев  $n$ -типа проводимости, номинально легированных на уровне  $1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ . Как видно, подвижность при 77 К является сильной функцией рассогласования и имеет максимум при  $|\Delta d/d| < 1 \cdot 10^{-3}$  ( $|\Delta x| < 1.7\%$ ). Значение в максимуме составляет  $\sim 1.9 \cdot 10^4 \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$ . Заметное уменьшение подвижности (до  $1.2 \cdot 10^4 \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$ ) наблюдается в слоях, рассогласование которых близко, но не превышает критического значения, определенного с помощью рентгеновской дифракции. Сходный эффект проявляется и при комнатной температуре. В обоих случаях наблюдается слабый сдвиг максимума в сторону составов, обогащенных галлием.

Интегральная интенсивность фотолюминесценции (кривая 1) и ширина линии на половине высоты (кривая 2) при 77 К в зависимости от рассогласования показаны на рис. 3. Интенсивность ФЛ имеет значительный разброс, но в целом хорошо коррелирует с подвижностью. Наименьшая ширина линии (15 мэВ) также достигается при малых рассогласованиях ( $|\Delta x| < 1.7\%$ ), отвечающих максимуму

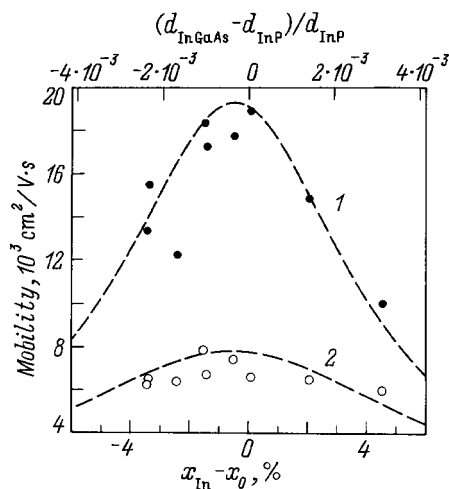


Рис. 2. Зависимость холловской подвижности при 77 (1) и 300 (2) К от рассогласования для слоев InGaAs, легированных Si в концентрации  $\sim 10^{16} \text{ см}^{-3}$ .

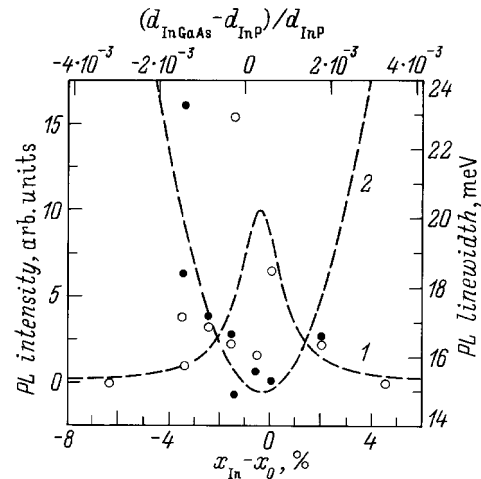


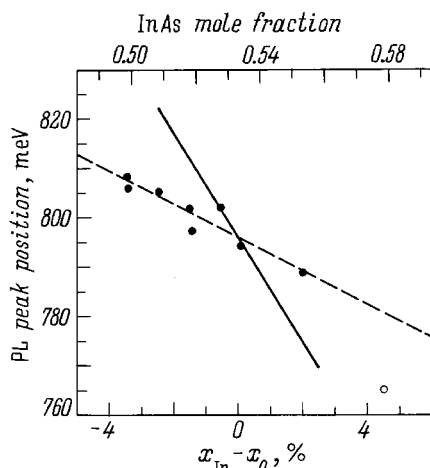
Рис. 3. Зависимость интегральной интенсивности (1) и ширины линии (2) фотолюминесценции (PL) при 77 К от рассогласования для слоев InGaAs, легированных Si в концентрации  $\sim 10^{16} \text{ см}^{-3}$ .

подвижности. Этот эффект достаточно сильно выражен, так как наблюдается несмотря на уширение линии вследствие легирования (для нелегированных согласованных слоев ширина линии равна 10 мэВ).

Значительный спад подвижности и интенсивности ФЛ в слоях с рассогласованием, меньшим критического, накладывает более жесткие ограничения на возможные вариации состава толстых слоев InGaAs. В [7] отмечалось, что напряжение растяжения увеличивает потенциальный барьер для поверхностной диффузии, уменьшая тем самым темпы миграции атомов III группы. Это приводит к увеличению шероховатости растущей поверхности, наблюдаемой с помощью дифракции быстрых электронов на отражение, и к увеличению числа кристаллических дефектов. Для напряжения сжатия не ожидается повышения потенциального барьера для поверхностной диффузии. В то же время в [8] было обнаружено (для случая осаждения InGaAs на GaAs), что образование обогащенных In кластеров в слоях с напряжением сжатия приводит к падению интенсивности ФЛ, указывая на связанное с ними дефектообразование. Увеличение ширины линии ФЛ с увеличением рассогласования (рис. 3) также может быть объяснено усилением кластерообразования.

Опубликованные значения ширины запрещенной зоны InGaAs, согласованного по параметру решетки с подложками InP, обнаруживают значительный разброс. Особенно мало надежных данных имеется для 77 К. На рис. 4 приведена экспериментальная зависимость положения пика ФЛ ( $E_{PL}$ ) при 77 К от химического состава твердого раствора. Во всем диапазоне псевдоморфного роста ( $\Delta x = -3.7 \div 2.2\%$ ) хорошо выполняется линейная зависимость

$$E_{PL}[\text{мэВ}] = 796 - 3.36\Delta x, \quad (5)$$



**Рис. 4.** Зависимость положения пика фотолюминесценции (PL) при 77 K от рассогласования (мольной доли InAs) (точки). Сплошная линия — зависимость ширины запрещенной зоны InGaAs от состава для ненапряженного слоя.

если  $\Delta x$  выражено в мольных %. Более слабая зависимость ширины запрещенной зоны от состава по сравнению с ожидаемой для ненапряженных слоев InGaAs ( $-10.5$  мэВ/% [9]) является следствием сдвига краев зон под влиянием напряжения. Вычисления [10] показывают, что этот сдвиг частично компенсирует изменение запрещенной зоны с составом и составляет приблизительно  $11.7\Delta d/d$  для растяжения и  $4.38\Delta d/d$  для сжатия. С учетом обоих факторов ход запрещенной зоны с составом определяется коэффициентом соответственно  $-2.5$  и  $-7.4$  мэВ/%. Полученная нами зависимость хорошо согласуется с вычислениями для напряжения растяжения вплоть до критического рассогласования. Этот эффект, насколько нам известно, впервые продемонстрирован на толстых слоях InGaAs не при гелиевых температурах.

Таким образом, исследовано влияние рассогласования параметров решеток эпитаксиального слоя и подложки на структурные, транспортные и оптические свойства слоев InGaAs на InP. Обнаружено, что абсолютная величина критического рассогласования для слоев с напряжением растяжения превышает соответствующую величину для случая сжатия, что объясняется различием в коэффициентах термического расширения эпитаксиального слоя и подложки. Критическое рассогласование для толстых слоев InGaAs не описывается с достаточной точностью ни моделью механического равновесия, ни моделью баланса энергии. Диапазон рассогласования, необходимый для получения высоких значений подвижности носителей и эффективности излучательной рекомбинации в слоях InGaAs, выращенных на подложках InP, существенно уже диапазона псевдоморфного роста. Напряжение в эпитаксиальном слое модифицирует зонную структуру и приводит к более слабой

зависимости ширины запрещенной зоны от состава по сравнению с ожидаемой для ненапряженных слоев.

Работа выполнялась при поддержке Hughes Research Laboratories, Malibu, CA USA и Министерства науки Российской Федерации ("Физика твердотельных наноструктур", проект 1-001).

## Список литературы

- [1] J. Lee, W.F. Mayo, T. Tsakalakos. J. Electron. Matter., **21**, 867 (1992).
- [2] W.J. Bartels, W. Nijman. J. Cryst. Growth, **44**, 518 (1978); F. Genova, G. Morello, C. Rigo. J. Vac. Sci. Technol. B, **5**, 811 (1987).
- [3] J.W. Matthews. J. Vac. Sci. Technol., **12**, 126 (1975).
- [4] R. People, J.C. Bean. Appl. Phys. Lett., **47**, 322 (1985).
- [5] M. Tacano, Y. Sugiyama, Y. Takeuchi, Y. Ueno. J. Electron. Matter., **20**, 1081 (1991).
- [6] Н.А. Берг, А.Т. Гореленок, С.Г. Конников, В.Е. Уманский, А.С. Усиков. ЖТФ, **LI**, 1018 (1981)
- [7] A. Salokatve, M. Hovinen. J. Appl. Phys., **67**, 3378 (1990).
- [8] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов. ФТП, **28**, 604 (1994).
- [9] D.J. Arent, K.Deneffe, C. VanHoof, J. DeBoeck, G. Borghs. J. Appl. Phys., **66**, 1739 (1989).
- [10] G. Ji, D. Huang, U.K. Reddy, T.S. Henderson, R. Houdre, H. Morkoc. J. Appl. Phys., **62**, 3366 (1987).

Редактор Л.В. Шаронова

## The effect of lattice mismatch on structural, optical, and transport properties of molecular-beam-epitaxial InGaAs layers on InP (100) substrates

A.E. Zhukov, A.Yu. Egorov, V.M. Ustinov,  
A.F. Tstatsul'nikov, M.V. Maksimov, N.N. Faleev,  
P.S. Kop'ev

A.F. Ioffe Physicotechnical Institute,  
Russian Academy of Sciences,  
194021 St. Petersburg, Russia

**Abstract** The effect of strain induced by lattice misfit on structural, optical, and transport properties of thick InGaAs epilayers grown by molecular-beam epitaxy on InP(100) substrates has been studied. It was found that the layers under tensile strain can be grown thicker until the onset of plastic relaxation compared with the layers under compressive strain. The critical mismatch for thick InGaAs epilayers can be predicted exactly by neither mechanical equilibrium model nor energy balance model. The highest mobility and the narrowest photoluminescence linewidth were achieved in lattice-matched and slightly Ga rich epilayers. The compositional dependence of band gap was studied taking into account the strain effect.