

## Влияние условий выращивания на формирование и люминесцентные свойства квантовых точек InGaAs в матрице Si

© А.Е. Жуков, А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов,  
А.Ф. Цацульников, Б.В. Воловик, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров

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

(Получена 15 сентября 1998 г. Принята к печати 16 сентября 1998 г.)

Исследовано влияние условий осаждения при молекулярно-пучковой эпитаксии и величины рассогласования постоянных решеток эпитаксиального слоя и подложки на процесс формирования островков InGaAs на поверхности Si(100). Увеличение рассогласования (молярной доли InAs) приводит к возрастанию критической толщины, отвечающий началу островкового роста, в отличие от случая формирования островков InGaAs на GaAs(100). Увеличение температуры осаждения также увеличивает критическую толщину, тогда как повышение давления мышьяка имеет противоположное влияние. Образцы, содержащие массив островков InGaAs в матрице Si, проявляют в спектрах люминесценции линию с длиной волны в диапазоне  $1.2 \div 1.3$  мкм, в зависимости от молярной доли InAs.

Кремний до настоящего времени остается основным материалом полупроводниковой микроэлектроники. Уступая транзисторам на основе материалов  $A^{III}B^V$  по электрофизическим характеристикам, кремниевые транзисторы металл–окисел–полупроводник (МОП) характеризуются существенно более низкой стоимостью и простотой изготовления. Однако применение кремния в светоизлучающих приборах затруднено не прямой структурой энергетических зон. Интеграция логических схем на основе кремния с оптоэлектронными устройствами  $A^{III}B^V$  весьма перспективна для приборных применений.

Одним из способов создания подобных структур является использование гетероструктур на основе прямозонных полупроводниковых соединений  $A^{III}B^V$ , выращенных на достаточно толстом буферном слое GaAs или InGaAs, осажденном на подложку Si [1,2]. Основные проблемы при этом связаны с формированием доменной структуры при выращивании слоев  $A^{III}B^V$  на Si, а также с образованием дислокаций несоответствия в буферном слое, прорастающих затем в активные слои, обусловленных большим различием постоянных решеток буферного слоя и подложки.

Альтернативным подходом является формирование оптически активных прямозонных островков непосредственно в матрице кремния [3]. Если латеральные размеры этих островков достаточно малы (менее 100 нм), то они будут обладать однодоменной структурой, а дислокации несоответствия отсутствовать. Кроме того, использование непрямозонного материала в качестве волноводного слоя лазерной структуры позволит существенно снизить вклад в пороговую плотность тока, обусловленный излучательной рекомбинацией неравновесных носителей заряда в области волновода [4].

Рассогласование постоянных решеток может быть использовано в качестве движущей силы для формирования этих островков. Ранее было показано [5–7], что при осаждении сильно напряженного слоя InGaAs на поверхности GaAs(100) по достижении некоторой кри-

тической толщины происходит переход от двумерного (послойного) к трехмерному (островковому) режиму роста, приводящей к спонтанному формированию упруго напряженных островков InGaAs в матрице арсенида галлия.

О возможности создания в матрице кремния напряженных островков InGaAs сообщалось в [8]. С помощью туннельной микроскопии их размеры были оценены около 20 нм в основании и 4 нм в высоту при поверхностной плотности порядка  $5 \cdot 10^{11}$  см<sup>-2</sup>. Образование островков приводит к появлению в спектрах фотолюминесценции интенсивной полосы в диапазоне  $1.2 \div 1.3$  мкм (77 К). В настоящей работе мы исследуем влияние режимов осаждения на процесс их формирования.

Исследуемые структуры выращивали в установке молекулярно-пучковой ЭП-1203 (Россия) на подложках Si, ориентированных в направлении [100]. Подложки подготавливали с помощью стандартной процедуры химического травления [9]. Удаление поверхностного слоя окисла в установке МПЭ при температуре 850°С приводило к появлению полосатой  $2 \times 1$  картины дифракции быстрых электронов (ДБЭ). Переход от двумерного к островковому режиму роста при осаждении  $In_xGa_{1-x}As$  ( $x = 0 \div 1$ ) на поверхность кремния контролировали непосредственно в процессе выращивания по переходу от полосатой к точечной картине ДБЭ. Скорость роста составляла  $0.3 \div 0.5$  монослоев/с. Температуру осаждения варьировали в диапазоне  $250 \div 500$ °С. Сформированный массив островков InGaAs затем покрывался слоем кремния толщиной 50 нм, выращиваемым из твердотельного источника Si, работающего при температуре, близкой к точке плавления Si, что обеспечивало скорость роста около 1 нм/мин.

Фотолюминесценцию образцов исследовали при 77 К, возбуждали  $Ag^+$ -лазером (514.5 нм) с мощностью 500 Вт/см<sup>2</sup> и детектировали Ge-фотодиодом.

Исследования с помощью ДБЭ показали, что количество осажденного  $In_xGa_{1-x}As$ , соответствующее началу островкового роста, сильно зависит как от условий осаж-

дения (температура подложки и давление мышьяка), так и от мольной доли InAs в осажденном материале.

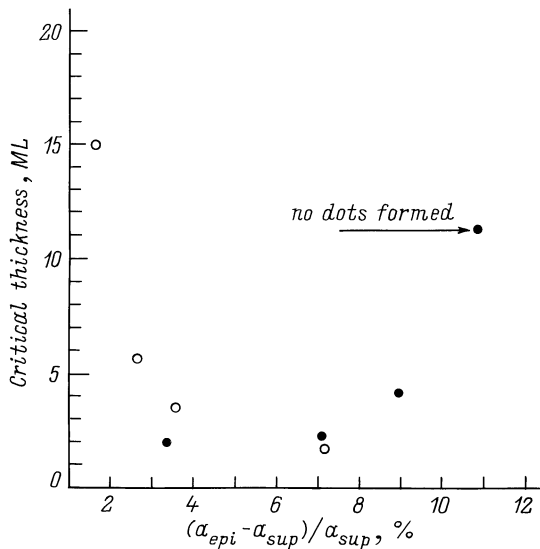
Зависимость эффективной толщины осажденного  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , отвечающей началу островкового роста ( $h_c$ ), от величины рассогласования постоянных решеток эпитаксиального слоя и подложки ( $\delta$ ) приведена на рис. 1 для температуры осаждения  $480^\circ\text{C}$ :

$$\delta = (a_{\text{epi}} - a_{\text{sub}})/a_{\text{sub}}, \quad (1)$$

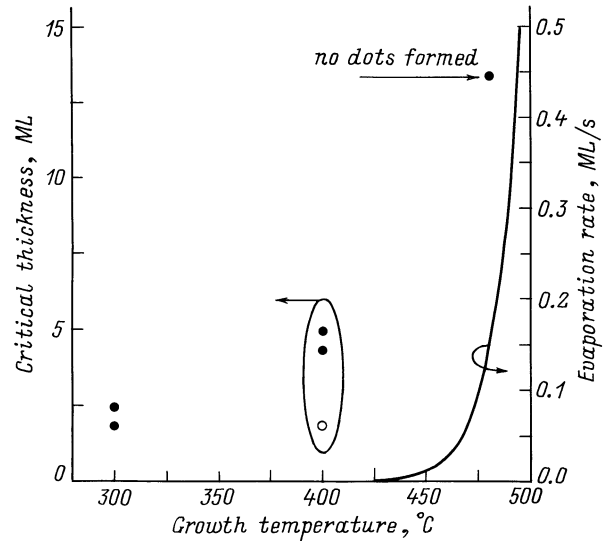
где  $a_{\text{epi}}$  и  $a_{\text{sub}}$  — постоянная решетки осаждаемого слоя и подложки соответственно.

Было обнаружено, что при осаждении на поверхность Si(100) слоя GaAs, что соответствует  $\delta \approx 4\%$ , переход к островковому росту наблюдается по достижении 2 монослоев (МС). Повышение мольной доли InAs в осаждаемом материале приводит сперва к медленному, а начиная с  $x = 0.5$  к более резкому увеличению  $h_c$ . При осаждении чистого InAs ( $\delta = 11.5\%$ ) при указанных условиях образования островков вообще не наблюдалось в ДБЭ вплоть до 11 МС.

На рис. 1 приведены для сравнения наши данные по зависимости  $h_c$  от  $\delta$  для системы островков  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  на поверхности GaAs(100). Поскольку причиной перехода от двумерного к трехмерному режиму роста является напряжение, обусловленное рассогласованием постоянных решеток эпитаксиального слоя и подложки, увеличение рассогласования должно, вообще говоря, приводить к уменьшению критической толщины перехода в режим островкового роста, как и наблюдается экспериментально в случае осаждения InGaAs на GaAs (см. также [10]). В противоположность этой системе, в случае осаждения InGaAs на Si критическая толщина начала островкового роста увеличивается, а не убывает по мере увеличения рассогласования.



**Рис. 1.** Зависимость толщины осажденного  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , соответствующей началу островкового роста ( $h_c$ ), от величины рассогласования постоянной решетки ( $\delta$ ) по отношению к подложке: Si (темные точки), GaAs (светлые точки). Температура осаждения  $480^\circ\text{C}$ .



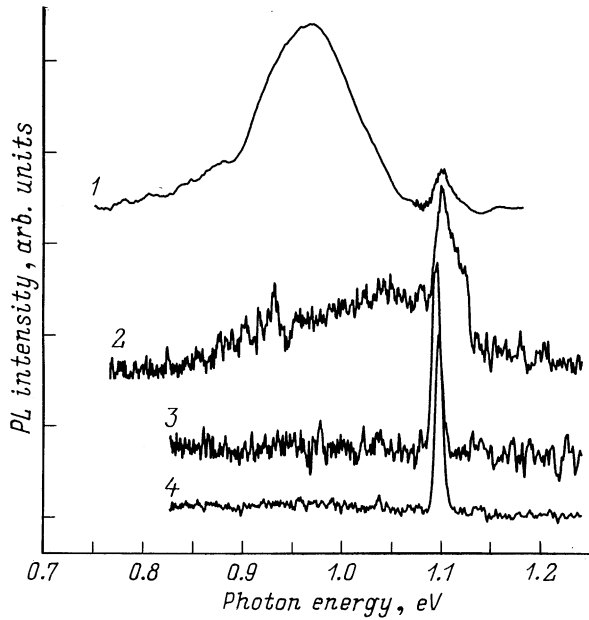
**Рис. 2.** Зависимость толщины осажденного InAs, соответствующей началу островкового роста при осаждении на поверхность Si(100), от температуры осаждения. Давление мышьяка составляет  $1 \cdot 10^{-6}$  (темные точки) и  $3 \cdot 10^{-6}$  Па (светлые точки). Сплошная кривая — температурная зависимость скорости переиспарения InAs с поверхности Si, вычисленная с учетом влияния напряжения рассогласования.

На рис. 2 представлена зависимость эффективной толщины  $h_c$  начала островкового роста InAs на поверхности Si от температуры осаждения. Как видно из приведенного графика, если при низких температурах (около  $300^\circ\text{C}$ ) трехмерный режим роста достигается после осаждения около 2 МС, повышение температуры подложки до  $400^\circ\text{C}$  приводит к увеличению требуемого количества материала вплоть до 5 МС, а при  $480^\circ\text{C}$  и выше переход к островковому росту вообще не наблюдался.

Трехкратное увеличение давления мышьяка при осаждении InAs при  $400^\circ\text{C}$  позволяет ускорить процесс формирования островков. В этом случае, как показано на рис. 2, островковый режим роста достигается по осаждению 2 МС, что соответствует величине  $h_c$  при  $300^\circ\text{C}$  и обычном давлении мышьяка. Однако, как при меньшей ( $300^\circ\text{C}$ ), так и при большей ( $480^\circ\text{C}$ ) температурах увеличение давления As не оказывает заметного влияния на критическую толщину.

Таким образом, существует некоторая критическая температура осаждения, выше которой перехода к островковому росту не наблюдается. Вблизи этой температуры величина  $h_c$  в существенной степени определяется давлением мышьяка.

Согласно теории спонтанного формирования трехмерных зародышей [11], существенное влияние на этот процесс оказывает величина поверхностной энергии, которая в свою очередь может зависеть от условий осаждения. Это позволяет качественно объяснить влияние температуры и давления мышьяка на процесс образования островков InGaAs на поверхности кремния. К увеличению эффективной толщины осажденного



**Рис. 3.** Спектры фотолуминесценции, записанные при 77 К, для структур с островками  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  в матрице Si (7 МС InAs при температуре осаждения  $400^\circ\text{C}$  (1) и 3 МС  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  при  $480^\circ\text{C}$  (2)). Для сравнения приведены спектры структуры с двумерным слоем InAs в матрице Si (3.5 МС InAs при  $400^\circ\text{C}$ ) (3), а также Si-подложки (4).

InGaAs, отвечающей началу островкового роста, с увеличением температуры может также приводить к частичному переиспарению атомов In с ростовой поверхности. Как известно, начало интенсивного переиспарения In при осаждении на поверхность GaAs соответствует температуре около  $540^\circ\text{C}$  [12]. Большая величина напряжения рассогласования в случае осаждения InAs на поверхность Si дает вклад в энергию Гиббса и приводит к сдвигу точки начала интенсивного переиспарения в сторону меньших температур. На рис. 2 приведена расчетная кривая скорости переиспарения InAs с поверхности Si, вычисленная согласно термодинамической модели [13]. Как видно, при использованной в экспериментах скорости роста InAs, равной 0.3 МС/с, переиспарение может оказаться существенным при температурах  $460^\circ\text{C}$  и выше, однако при более низких температурах его влияние мало, и оно, по-видимому, не может быть решающей причиной увеличения  $h_c$  с ростом температуры.

Спектры фотолуминесценции (ФЛ) некоторых образцов, содержащих массивы зарощенных кремнием островков InGaAs, представлены на рис. 3. Для сравнения представлены также спектры ФЛ от кремниевого буферного слоя и от образца, в котором количество осажденного InGaAs было недостаточно для перехода в островковый режим роста, и, таким образом, формирования трехмерных островков не наблюдалось. В последних случаях в спектрах ФЛ наблюдается лишь линия кремния на 1.1 эВ, связанная с испусканием  $TO$ -фонона. Формирование массива островков InGaAs приводит к появлению в спектрах

ФЛ новой линии с длиной волны около  $1.2 \div 1.3$  мкм. Увеличение мольной доли GaAs в материале, образующем островки, приводит к закономерному коротковолновому сдвигу излучения островков, обусловленному увеличением ширины запрещенной зоны InGaAs.

Малая эффективная масса электронов и относительно небольшой разрыв зоны проводимости на границе Si/InGaAs может привести к отсутствию связанного электронного состояния в тонких двумерных слоях InGaAs в кремнии [1]. Мы полагаем, что именно с этим связано отсутствие излучения от InGaAs в образцах докритической толщины. В то же время формирование островков, как и в случае системы квантовых точек InGaAs в матрице GaAs [14], приводит к понижению энергии размерного квантования и существованию электронного уровня в островках, вызывая появление линии в диапазоне  $1.2 \div 1.3$  мкм. Более того, отсутствие этой линии в спектрах образцов, в которых островки не были сформированы, доказывает, что она не обусловлена точечными дефектами на границе InGaAs–Si или примесями в кремниевой матрице.

Мы полагаем, что оптимизация режимов выращивания как самих островков InGaAs, так и процесса их зарощивания кремнием позволит повысить интенсивность излучения и позволяет надеяться на возможное применение самоорганизующихся массивов островков InGaAs в Si в качестве основы для нового поколения светоизлучающих приборов на кремнии.

Таким образом, нами исследовано влияние условий осаждения и величины рассогласования постоянных решеток эпитаксиального слоя и подложки на формирование массива островков InGaAs на Si(100) при молекулярно-пучковой эпитаксии. Обнаружена anomalous зависимость критической толщины, отвечающей началу островкового роста, от величины рассогласования — увеличение мольной доли InAs приводит к возрастанию критической толщины, в отличие от случая формирования островков InGaAs на GaAs(100). Существует некоторая критическая температура осаждения, выше которой переход к островковому росту не наблюдается. Вблизи критической температуры повышение давления мышьяка ускоряет формирование островков. Образцы, содержащие массив островков InGaAs в матрице Si, проявляют в спектрах люминесценции линию с длиной волны в диапазоне  $1.2 \div 1.3$  мкм, в зависимости от мольной доли InAs.

Работа выполнена при поддержке INTAS (грант № 96-0242) и программы "Физика твердотельных наноструктур" (проект 97-1090).

## Список литературы

- [1] T. Yamada, M. Tachikawa, T. Sasaki, H. Mori, Y. Kadota. Appl. Phys. Lett., **70**, 1614 (1997).
- [2] T. Egawa, Y. Hasegawa, T. Jimbo, M. Umeno. Appl. Phys. Lett., **67**, 2995 (1995).

- [3] N.N. Ledentsov. *Proc. 23<sup>rd</sup> Int. Conf. on Phys. Semicond.* (Berlin, Germany, July 21–26, 1996), ed. by M. Scheffler and R. Zimmermann (World Scientific, Singapore, 1996) v. 1, p. 19.
- [4] P. Blood. In: *Physics and technology of heterostructure devices*, ed. by D.V. Morgan and R.H. Williams (Peter Perigrinus, 1991) Chapter 7, p. 231.
- [5] L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. LeRoux. *Appl. Phys. Lett.*, **47**, 1099 (1985).
- [6] P.M. Petroff, S.P. DenBaars. *Superlat. Microstruct.*, **15**, 15 (1994).
- [7] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов. *ФТП*, **28**, 1439 (1994).
- [8] G.E. Cirlin, V.G. Dubrovskii, V.N. Petrov, N.K. Polyakov, N.P. Korneeva, V.N. Demidov, A.O. Golubok, S.A. Masalov, D.V. Kurochkin, O.M. Gorbenko, N.I. Komyak, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.R. Kovsh, M.V. Maximov, A.F. Tsatsul'nikov, B.V. Volovik, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg. *Semicond. Sci. Technol.*, **13**, 1262 (1998).
- [9] A. Ishisaka, Y. Shiraki. *J. Electrochem. Soc.*, **133**, 666 (1986).
- [10] D. Leonard, K. Pond, P.M. Petroff. *Phys. Rev. B*, **50**, 11 687 (1995).
- [11] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, D. Bimberg. *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 2968 (1995).
- [12] M. McElhinney, C.R. Stanley. *Electron. Lett.*, **29**, 1302 (1993).
- [13] А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш, А.Е. Жуков, В.М. Устинов, П.С. Копьев. *ФТП*, **31**, 1153 (1997).
- [14] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов, А.Ф. Цацульников, Ж.И. Алферов, Д.Л. Федоров, Д. Бимберг. *ФТП*, **30**, 1345 (1996).

*Редактор В.В. Чалдышев*

## **Effect of growth conditions on formation and luminescent properties of InGaAs quantum dots in a Si matrix**

A.E. Zhukov, A.Yu. Egorov, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, N.N. Ledentsov, M.V. Maximov, A.F. Tsatsul'nikov, B.V. Volovik, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov

A.F. Ioffe Physico-Technical Institute,  
Russian Academy of Sciences  
194021 St.Petersburg, Russia

**Abstract** Effect of growth conditions at molecular beam epitaxy and lattice mismatch between epilayer and substrate on formation process of InGaAs islands on a Si(100) surface is studied. Increase in the mismatch (InAs mole fraction) leads to increase in the critical thickness corresponding to the onset of island growth mode, in opposite to formation of InGaAs islands on GaAs(100). Rise of the deposition temperature also increases the critical thickness, whereas increase in the arsenic pressure has the opposite effect. Structures containing an array of InGaAs islands in a Si matrix demonstrate luminescent line in the range of  $1.2 \div 1.3 \mu\text{m}$  depending on InAs mole fraction.

e-mail: zhukov@beam.ioffe.rssi.re