

# Гетероэпитаксиальный рост InAs на Si: новый тип квантовых точек

© Г.Э. Цырлин<sup>¶</sup>, В.Н. Петров, В.Г. Дубровский, Ю.Б. Самсоненко, Н.К. Поляков, А.О. Голубок, С.А. Масалов, Н.И. Комяк, В.М. Устинов<sup>†</sup>, А.Ю. Егоров<sup>†</sup>, А.Р. Ковш<sup>†</sup>, М.В. Максимов<sup>†</sup>, А.Ф. Цацульников<sup>†</sup>, Б.В. Воловик<sup>†</sup>, А.Е. Жуков<sup>†</sup>, П.С. Копьев<sup>†</sup>, Н.Н. Леденцов<sup>†</sup>, Ж.И. Алфёров<sup>†</sup>, Д. Бимберг\*

Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,  
198103 Санкт-Петербург, Россия

<sup>†</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

\* Технический университет, Берлин, Германия

(Получена 1 марта 1999 г. Принята к печати 2 марта 1999 г.)

Представлены результаты по исследованию механизма гетероэпитаксиального роста в системе InAs/Si методами дифракции быстрых электронов на отражение, сканирующей туннельной микроскопии и фотолюминесценции. Показано, что при определенных условиях роста нанообъекты InAs образуются на поверхности Si непосредственно в процессе роста при молекулярно-пучковой эпитаксии. Определен диапазон температур подложки, приводящих к формированию наноразмерных островков. Квантовые точки InAs, выращенные на буферном слое Si и зарастенные сверху слоем кремния толщиной 50 нм, привели к появлению в спектрах фотолюминесценции линии на длине волны 1.3 мкм при 77 К и 1.6 мкм при 300 К.

## Введение

Кремний в настоящее время является основным материалом микроэлектроники, занимающим приблизительно 90% на рынке полупроводниковых приборов. Такие его свойства, как высокая теплопроводность, механическая прочность, присутствие стабильного окисла на поверхности, а также наличие бездислокационных подложек большого диаметра делают этот материал незаменимым для большинства применений.

Вместе с тем в области оптоэлектронных приборов (лазеры, светодиоды и др.) применение кремния пока не получило широкого распространения. Причина в том, что кремний обладает непрямой структурой зон и излучательная рекомбинация без взаимодействия с дополнительной частицей (например, фононом) невозможна. Такая ситуация характерна для всех непрямозонных полупроводников (AlAs, GaP и др.). При этом известно, что для соединений A<sup>III</sup>B<sup>V</sup> внедрение тонких квантово-размерных слоев, квантовых точек или квантовых проволок прямозонного материала (GaAs, InAs) в непрямозонную матрицу (AlAs) приводит к кардинальному возрастанию эффективности излучательной рекомбинации и таким образом делается возможным изготовление лазеров и светодиодов.

По аналогии с соединениями A<sup>III</sup>B<sup>V</sup> можно предположить, что внедрение квантовых точек узкозонного прямозонного полупроводника (например, InAs) в матрицу кремния также позволит создать эффективные светоизлучающие приборы [1]. Ранее нами была экспериментально доказана принципиальная возможность получения квантовых точек InAs на поверхности кремния [2].

В данной работе мы приводим результаты исследования гетероэпитаксиального роста InAs на поверхности

Si (100) методами дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО), сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) и фотолюминесценции (ФЛ).

## 1. Эксперимент

Ростовые эксперименты проводились на установке молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) ЭП 1203 с использованием подложек Si (100), прошедших предварительную подготовку по описанной в [3] методике. Образцы наклеивались с помощью индия на стандартный молибденовый держатель. Поток индия был откалиброван предварительно по осцилляциям зеркального рефлекса ДБЭО и соответствовал 0.1 монослоя (ML) в 1 с для InAs при росте твердого раствора InGaAs на GaAs с молярной долей по индию  $\sim 15\%$ . Удаление окисного слоя с поверхности Si производилось путем нагрева подложки в ростовой камере до температуры  $820 \div 870^\circ\text{C}$  с выдержкой в течение 15 мин, после чего наблюдалась типичная для поверхности Si (100) поверхностная реконструкция ( $2 \times 1$ ) или доменная структура смешанного типа ( $2 \times 1$ ) и ( $1 \times 2$ ). Далее температура образца понижалась и производилось нанесение InAs методом традиционной МПЭ. После нанесения определенной толщины слоя InAs процесс роста прерывался и образец быстро охлаждался до комнатной температуры. Процессы удаления окисного слоя и роста контролировались *in situ* с помощью комплекса регистрации и обработки картин ДБЭО [4]. Морфология поверхности образцов исследовалась *ex situ* с помощью метода СТМ по ранее описанным в [5,6] методикам изучения квантово-размерных структур InAs на поверхностях GaAs. Для проведения длительных СТМ измерений образцы помещались в вакуумное масло для защиты поверхности от окисления на воздухе. Для проведения исследований методом возбуждения фотолюминесценции квантово-размерные структуры InAs зара-

<sup>¶</sup> Факс: (812) 251 70 38  
E-mail: cirilin@iai.rssi.ru

шивались слоем Si толщиной  $50 \div 100$  нм методом традиционной МПЭ. Для возбуждения фотолюминесценции был использован  $\text{Ar}^+$ -лазер с длиной волны излучения 514.5 нм, а в качестве детектора Ge-фотодиод. Плотность мощности возбуждения составляла  $0.2 \div 200$  Вт/см<sup>2</sup>.

## 2. Экспериментальные результаты

Характерной особенностью InAs/Si(100) является сильная зависимость механизма роста от условий роста (температуры подложки, соотношения потоков и т.д.), что проявляется в морфологии поверхности. Так, наблюдение за динамикой ДБЭО показывает, что в случае роста при достаточно высокой температуре подложки ( $T_s = 470 \div 500^\circ\text{C}$ ) картины дифракции сохраняют линейчатую структуру вплоть до толщины 50 ML и более, причем поверхностная реконструкция изменяется с  $(2 \times 1)$  на  $(3 \times 1)$  или  $(1 \times 1)$ . Осаждение InAs при более низкой температуре подложки ( $T_s < 450^\circ\text{C}$ ) приводит к трансформации линейчатой картины ДБЭО в картину, характерную для трехмерного роста, (точечные рефлексы) уже при толщине  $\sim 0.7 \div 5$  ML (в зависимости от соотношения потоков). Исследование поверхности методом СТМ показало, что в случае роста при высоких температурах,  $T_s > 450^\circ\text{C}$ , наблюдается образование двух типов морфологических особенностей: гофрированная структура с высотой модуляции  $\sim 20$  нм и кластеры размером  $\sim 400$  нм. Другая ситуация наблюдается при понижении температуры до  $T_s \lesssim 450^\circ\text{C}$ . В этом случае образуется пространственно-однородный массив островков нанометрового диапазона [2].

Различие в морфологии поверхности, формирующейся при разных температурах образца, может быть объяснено, во-первых, изменением поверхностной свободной энергии системы при возрастании температуры и, соответственно, с переходом от образования когерентных трехмерных островков нанометрового диапазона к мезоскопическим трехмерным кластерам, находящимся на поверхности гофрированного смачивающего слоя, и, во-вторых, с различными значениями коэффициентов прилипания InAs на поверхность Si(100) при разных температурах.

На рис. 1 приведена типичная динамическая зависимость интенсивности нулевого рефлекса на картине ДБЭО, снятая при угле падения  $1^\circ$  и угле отражения  $1.5^\circ$  в условиях роста, при которых происходит переход от двух- к трехмерному механизму роста. Мы предполагали, что данный переход начинается в момент, обозначенный левой стрелкой, т.е. в начале преобразования линейчатой структуры картины ДБЭО в точечные рефлексы. По аналогии с гетероэпитаксиальной системой InAs/GaAs мы назвали эту величину критической толщиной образования нанобъектов на поверхности ( $d_{\text{crit}}$ ). Момент стабилизации объемной картины обозначен правой стрелкой. Характеристическое время образования массива островков InAs (временной интер-

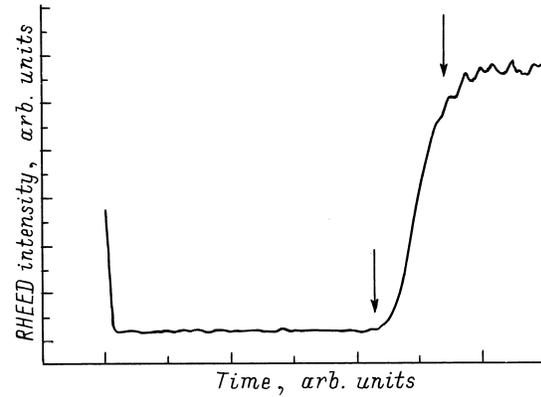


Рис. 1. Типичная динамическая зависимость интенсивности рефлекса ДБЭО (RHEED) при переходе от двумерного к трехмерному гетероэпитаксиальному росту InAs/Si.

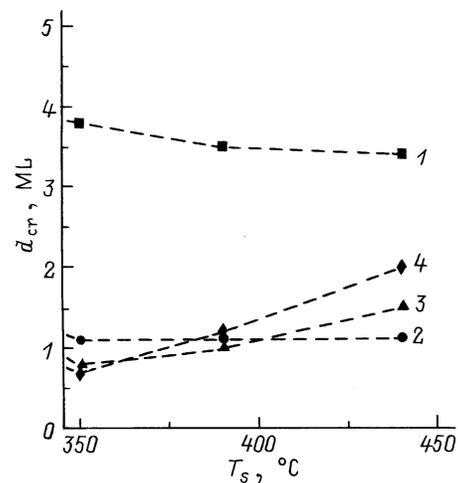
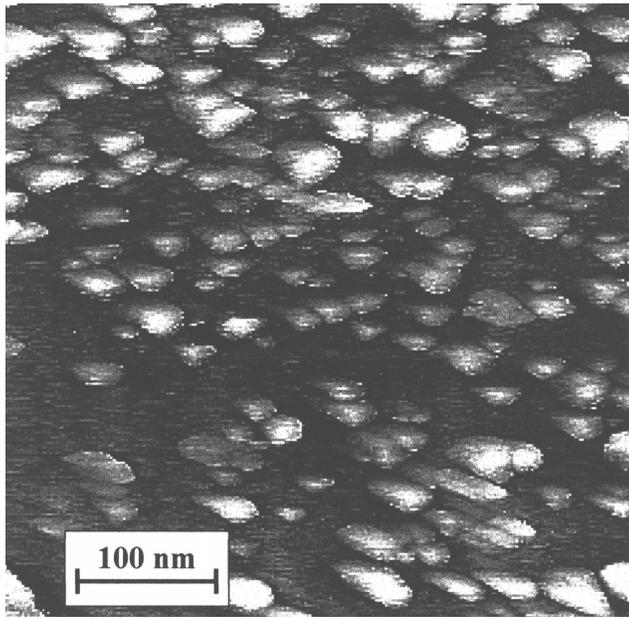


Рис. 2. Зависимость критической толщины образования нанобъектов  $d_{\text{crit}}$  от температуры подложки  $T_s$  при соотношении потоков  $[\text{As}_4]/[\text{In}] = 2$  (1), 5 (2), 8 (3), 12 (4).

вал между стрелками) составляет  $\sim 1$  с (при скорости роста  $0.1$  ML/с). Приблизительно такая же величина характерна для образования квантовых точек в системе InAs/GaAs.

На рис. 2 суммированы данные, полученные из исследований методом ДБЭО, по зависимости  $d_{\text{crit}}$  от температуры подложки в интервале  $T_s = 350 \div 450^\circ\text{C}$  и соотношения потоков  $[\text{As}_4]/[\text{In}] = 2 \div 12$ . Нижний предел в температурном интервале выбран по двум причинам: во-первых, из-за трудностей в определении точного значения  $T_s$  при таких низких величинах, и во-вторых, вследствие того, что покрывающий слой Si, выращенный при низких  $T_s$ , обладает низким кристаллическим качеством, что приводит к невозможности получения приборных структур. Это подтверждается нашими данными [7], согласно которым не наблюдается сигнала ФЛ в структурах, где квантовые точки InAs зарождались слоем Si при температурах подложки ниже  $350^\circ\text{C}$ .



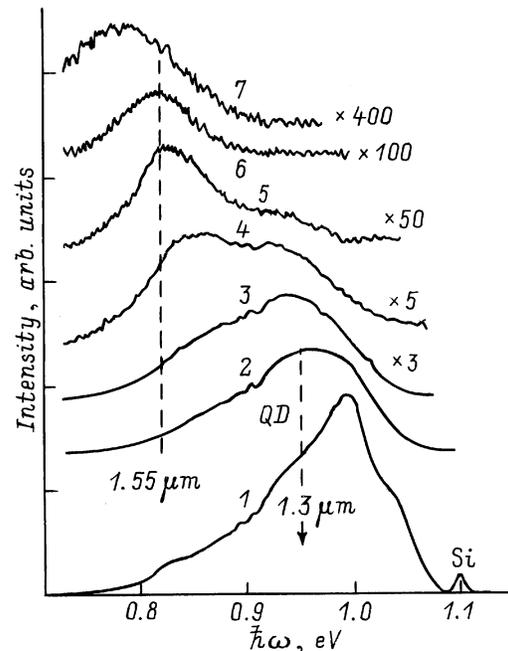
**Рис. 3.** СТМ изображение поверхности после осаждения 1.2 ML InAs на Si(100) при  $T_s = 380^\circ\text{C}$ . Стороны изображения параллельны кристаллографическим направлениям  $[0\bar{1}1]$  и  $[011]$ .

Из результатов, приведенных на рис. 2, следует, что переход от двух- к трехмерному росту в системе InAs/Si (при данных условиях роста) происходит в диапазоне  $0.7 \div 4.0$  ML. Это свидетельствует о том, что в рассматриваемой гетероэпитаксиальной системе возможна реализация как чисто островкового механизма роста (Фольмера–Вебера), так и смешанного механизма роста с образованием смачивающего слоя и системы трехмерных островков (Странски–Крастанова). Детальное исследование этого явления будет приведено в отдельной статье.

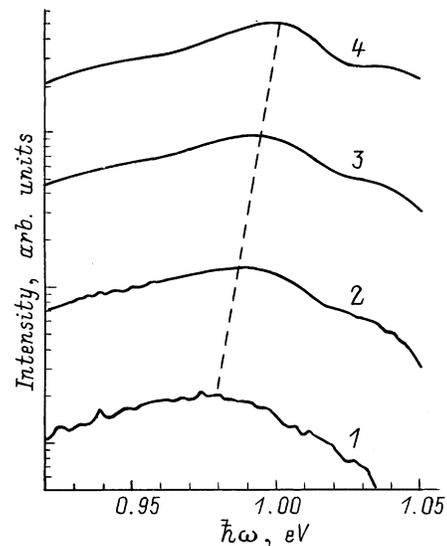
В качестве примера на рис. 3 приведено СТМ изображение участка поверхности Si(100) после осаждения 1.2 ML InAs при соотношении потоков  $[\text{As}_4]/[\text{In}] = 8$  и температуре осаждения  $380^\circ\text{C}$  (рост был остановлен в момент, обозначенный правой стрелкой на рис. 1). Следует отметить, что в данном случае островки в основании обладают преимущественно треугольной формой, в отличие от случая осаждения при более низкой температуре ( $250^\circ\text{C}$ ), где островки были ромбовидной формы при значительно большей поверхностной плотности [2].

Исследование оптических свойств квантовых точек InAs, помещенных в кремниевую матрицу путем зарращивания образовавшихся наноразмерных островков слоем кремния толщиной 50 нм после осаждения 7 ML InAs при температуре подложки  $T_s = 400^\circ\text{C}$  и давлении мышьяка в камере  $1 \cdot 10^{-8}$  Тор, показало, что в спектре ФЛ появляется широкая линия ( $\sim 100$  мэВ) в районе длины волны  $\lambda = 1.3$  мкм при температуре наблюдения  $T = 77$  К. Увеличение температуры наблюдения до

комнатной приводит к монотонному смещению линии ФЛ в длинноволновую область вплоть до  $\lambda = 1.6$  мкм при  $T = 290$  К (рис. 4). Данной линии не наблюдалось как в спектрах используемых подложек Si(100), так и в спектрах образцов, где средняя толщина осажденного InAs не превышала критическую. Увеличение интенсивности возбуждения приводит к сдвигу максимума линии



**Рис. 4.** Спектры фотолюминесценции квантовых точек InAs/Si при температурах  $T$ , К: 1 — 10, 2 — 70, 3 — 110, 4 — 150, 5 — 190, 6 — 230, 7 — 290. Плотность мощности возбуждения  $P = 100$  Вт/см<sup>2</sup>.



**Рис. 5.** Спектры фотолюминесценции квантовых точек InAs/Si при плотностях мощности возбуждения  $P$ , Вт/см<sup>2</sup>: 1 — 0.2, 2 — 2, 3 — 20, 4 — 200.  $T = 10$  К.

ФЛ в область более высоких энергий (рис. 5). Природа сдвига до конца не ясна. Подобный эффект наблюдался, например, в случае квантовых точек II типа [8]; он может быть связан с электрическим зарядом, аккумулированным в квантовых точках [9].

Таким образом, нами показана принципиальная возможность прямого формирования квантовых точек InAs на Si (100) в процессе МПЭ.

Определен диапазон температур подложки, приводящих к формированию наноразмерных островков. Квантовые точки InAs, выращенные сверху слоем кремния, приводят к появлению в спектрах фотолюминесценции линии 1.3 мкм при 77 К и 1.6 мкм при 300 К.

Авторы благодарят Д.Н. Демидова, Н.П. Корнееву за участие в ростовых экспериментах и В.А. Шукина за полезные обсуждения.

Данная работа выполнена при частичной поддержке ИНТАС (грант 96-0242), научной программы "Физика твердотельных наноструктур" (проект 98-2029) и РФФИ (проект 98-02-18317). Г.Э. Цырлин благодарит за финансовую поддержку ИНТАС (грант YSF 98-54).

## Список литературы

- [1] N.N. Ledentsov. *Prog. 23th Int. Conf. Phys. Semiconductors* (Berlin, 1996), ed. by M. Scheffler and R. Zimmermann (World Scientific, Singapore, 1996) v. 1, p. 19.
- [2] Г.Э. Цырлин, В.Н. Петров, В.Г. Дубровский, С.А. Масалов, А.О. Голобок, Н.И. Комяк, Н.Н. Леденцов, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. *Письма ЖТФ*, **24** (8), 10 (1998).
- [3] A. Ishisaka, Y. Shiraki. *J. Electrochem. Soc.*, **133**, 666 (1986).
- [4] Г.М. Гурьянов, В.Н. Демидов, Н.П. Корнеева, В.Н. Петров, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цырлин. *ЖТФ*, **67** (8), 111 (1997).
- [5] G.E. Cirlin, G.M. Guryanov, A.O. Golubok, S.Ya. Tapissev, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, M. Grundmann, D. Bimberg. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 97 (1995).
- [6] А.О. Голубок, С.А. Масалов, Н.Б. Пономарева, В.Н. Петров, С.Я. Типисев, Г.Э. Цырлин. *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*, вып. 2, 70 (1998).
- [7] A.Yu. Egorov, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, M.V. Maksimov, G.E. Cirlin, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, P. Werner, Zh.I. Alferov. *J. Cryst. Growth* (in press).
- [8] F. Hatami, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, F. Heinrichsdorff, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, O. Gösele, J. Heydenreich, U. Richter, S.V. Ivanov, B.Ya. Meltser, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 656 (1995).
- [9] A.F. Tsatsul'nikov, A.Yu. Egorov, P.S. Kop'ev, A.R. Kovsh, M.V. Maximov, V.M. Ustinov, B.V. Volivik, A.E. Zhukov, Zh.I. Alferov, G.E. Cirlin, A.O. Golubok, S.A. Masalov, V.N. Petrov, N.N. Ledentsov, R. Heitz, M. Grundmann, D. Bimberg, I.P. Soshnikov, P. Werner, U. Gösele et al. *Proc. 24th Int. Conf. Phys. Semiconductors* (Jerusalem, 1998) (World Scientific, Singapore, 1998) (in press).

Редактор Л.В. Шаронова

## Heteroepitaxial growth of InAs on Si substrate: a new type of quantum dots

G.E. Cirlin, V.N. Petrov, V.G. Dubrovskii, Yu.B. Samsonenko, N.K. Polyakov, A.O. Golubok, S.A. Masalov, N.I. Komyak, V.M. Ustinov<sup>†</sup>, A.Yu. Egorov<sup>†</sup>, A.R. Kovsh<sup>†</sup>, M.V. Maximov<sup>†</sup>, A.F. Tsatsul'nikov<sup>†</sup>, B.V. Volovik<sup>†</sup>, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev<sup>†</sup>, N.N. Ledentsov<sup>†</sup>, Zh.I. Alferov<sup>†</sup>, D. Bimberg\*

Institute for Analytical Instrumentation,  
Russian Academy of Sciences,  
198103 St.Petersburg, Russia

<sup>†</sup> A.F. Ioffe Physicotechnical Institute,  
Russian Academy of Sciences,  
194021 St.Petersburg, Russia

\* Institut für Festkörperphysik, Technische  
Universität Berlin, Germany