

УДК 538.950

## МОРФОЛОГИЯ И ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ САМОФОРМИРУЮЩИХСЯ НАНООСТРОВКОВ GeSi/Si(001), ВЫРАЩЕННЫХ МЕТОДОМ ГОРЯЧЕЙ ПРОВОЛОКИ

© 2013 г. *В.Г. Шенгуров,<sup>1</sup> В.Ю. Чалков,<sup>1</sup> С.А. Денисов,<sup>1</sup> Д.О. Филатов,<sup>1</sup> А.В. Круглов,<sup>2</sup>  
М.В. Степихова,<sup>3</sup> Д.Е. Спириин<sup>4</sup>*

<sup>1</sup>Научно-исследовательский физико-технический институт ННГУ им. Н.И. Лобачевского

<sup>2</sup>Нижегородский госуниверситет им. Н.И. Лобачевского

<sup>3</sup>Институт физики микроструктур РАН, Н. Новгород

<sup>4</sup>Воронежский госуниверситет

shengurov@phys.unn.ru

Поступила в редакцию 04.04.2013

Впервые исследованы морфология и спектры фотолюминесценции (ФЛ) самоформирующихся наностроек GeSi/Si(001), выращенных методом горячей проволоки. Полученные зависимости размеров и плотности наностроек от температуры подложки и количества осаждённого Ge соответствуют установленным ранее для наностроек GeSi/Si(001), выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Однако во всём исследованном диапазоне температур роста (500 ÷ 700°C) наблюдалась тенденция к коалесценции островков, связанная с наличием в ростовой камере GeH<sub>4</sub> во время осаждения Ge, что увеличивает скорость поверхностной диффузии адатомов Ge и тем самым способствует коалесценции островков. В спектрах ФЛ (77 К) доминируют линии, связанные с дислокациями несоответствия в коалесцированных островках.

*Ключевые слова:* самоформирующиеся наностроек GeSi, молекулярно-лучевая эпитаксия, метод горячей проволоки, морфология, фотолюминесценция.

### Введение

Одним из приоритетных направлений развития современной физики полупроводников и оптоэлектроники в последнее десятилетие являлась так называемая кремниевая оптоэлектроника [1]. Главной задачей указанной области науки и техники является создание на основе Si светоизлучающих устройств (светодиодов, инжекционных и др. лазеров). Основной проблемой, которую необходимо решить для достижения указанной цели, является непрямозонность Si, в связи с чем вероятность безызлучательной рекомбинации в нём значительно больше, чем излучательной. В качестве одного из путей повышения эффективности электролюминесценции (ЭЛ) в Si рассматривается использование гетероструктур (ГС) с наностройками GeSi, формирующимися в процессе гетероэпитаксии Ge на Si по так называемому механизму Странски–Крастанова [2]. Ожидается, что, благодаря эффекту размерного квантования, удастся повысить вероятность квазипрямых межзонных оптических переходов в кремниевых НС и повысить эффективность ЭЛ в них до значений, позволяющих говорить о приборном применении [3]. Уже в первых работах наблюдалась интенсивная фотолюминесценция (ФЛ) в ГС с само-

формирующимися наностройками Ge/Si(001) в практически важном для оптоволоконной связи диапазоне длин волн  $\lambda = 1.3 \div 1.55$  мкм (так называемом коммуникативном диапазоне) [4]. С тех пор был проделан большой объём работ по изучению процессов роста и свойств наностроек GeSi/Si с целью поиска путей повышения выхода ФЛ и ЭЛ в них (см., например, обзоры [2, 5, 6]). Хотя на этом пути были достигнуты значительные успехи, тем не менее получить лазерную генерацию в ГС с наностройками Ge/Si пока не удалось. Одна из причин тому – весьма сложные (в отличие, например, от КТ InAs/GaAs(001) [7]) закономерности трансформации формы и состава наностроек Ge/Si(001) в процессе роста, до сих пор ещё до конца не изученные. Это затрудняет получение ГС с необходимыми для оптоэлектронных применений параметрами (ключевыми параметрами являются поверхностная плотность наностроек  $N_s$ , их однородность по размерам, энергии основных межзонных переходов  $E_0$ ).

Настоящая работа посвящена изучению морфологии и оптических свойств ГС GeSi/Si(001) с самоформирующимися островками, выращенных методом горячей проволоки [8]. Слои Si осаждались из сублимационных источников в условиях сверхвысокого вакуума

(СВВ), а для осаждения Ge в ростовую камеру напускался GeH<sub>4</sub> при парциальном давлении  $p_g \sim 10^{-4} \div 10^{-3}$  Торр, который разлагался на поверхности Ta-проволоки, расположенной параллельно подложке на расстоянии нескольких сантиметров и нагреваемой пропусканием через неё электрического тока, создавая таким образом поток атомов Ge, падающий на подложку. Для практического применения данного метода для выращивания ГС с наностройками GeSi/Si(001) для приборного применения необходимо установить зависимость морфологии, электронных и оптических свойств островков, выращиваемых данным методом, от условий роста. К настоящему времени процессы зарождения и роста островков GeSi/Si(001) исследованы достаточно подробно для структур, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), и менее подробно — методом газофазной эпитаксии (ГФЭ). В [9, 10] исследованы морфология и оптические свойства наностроек GeSi/Si(001), выращенных методом сублимационной молекулярно-лучевой эпитаксии (СМЛЭ) в среде GeH<sub>4</sub> [11]. В этом методе слои Si осаждаются из сублимационных источников в СВВ, а для осаждения Ge в ростовую камеру напускался GeH<sub>4</sub> ( $p_g \sim 10^{-4} \div 10^{-3}$  Торр), который разлагается на поверхности нагретой подложки. Данный метод представляет собой гибрид МЛЭ с сублимационным источником Si и ГФЭ при низком давлении.

В [8, 12] изучены особенности роста одно-родных эпитаксиальных слоёв (ЭС) Si<sub>x</sub>Ge<sub>1-x</sub> методом горячей проволоки из SiH<sub>4</sub> и GeH<sub>4</sub>. В то же время исследований самоформирующихся наностроек GeSi/Si(001), выращенных методом горячей проволоки, до настоящего времени не проводилось. Целью настоящей работы являлось изучение особенностей морфологии и оптических свойств самоформирующихся островков GeSi/Si(001), выращенных методом горячей проволоки, по сравнению с островками, выращенными методами МЛЭ, ГФЭ и СМЛЭ в среде GeH<sub>4</sub>.

### Методика эксперимента

Объектами исследования являлись ГС с самоформирующимися наностройками GeSi/Si(001), выращенные методом горячей проволоки при помощи СВВ МЛЭ установки, спроектированной и построенной в Научно-исследовательском физико-техническом институте (НИФТИ) Нижегородского государственного университета (ННГУ) им. Н.И. Лобачевского. Для изучения связи между условиями роста, морфологией и оптическими свойствами самоформирующихся

островков GeSi/Si(001) применялся стандартный подход, обычно используемый для решения подобных задач. Выращивались образцы двух типов: 1) на подложках Si(001) КДБ-0,002 с поверхностными островками для исследования морфологии методом атомно-силовой микроскопии (АСМ), 2) на подложках Si(001) КДБ-12 с наностройками, выращенными в тех же условиях и зарощенными покровным слоем Si толщиной  $\approx 40$  нм, — для исследования оптических свойств ГС методом спектроскопии ФЛ.

Буферные и покровные слои Si выращивались при давлении остаточных газов в ростовой камере  $\sim 10^{-8}$  Торр из сублимационного источника Si и имели тот же тип проводимости и концентрацию легирующей примеси, что и подложка. Перед ростом подложка отжигалась при температуре 1250°C в течение 30 минут. По окончании отжига температура подложки снижалась до 1000°C и проводилось осаждение буферного слоя Si толщиной  $d_b \approx 400 \pm 50$  нм. Скорость роста слоев Si составляла  $\approx 1$  мкм/час.

Условия роста островков GeSi определялись следующими параметрами ростового процесса: температура подложки во время осаждения Ge  $T_g$ , давление GeH<sub>4</sub> в ростовой камере  $p_g$  и время осаждения Ge  $t_g$ . После осаждения буферного слоя сублимационный источник Si отключался, температура подложки уменьшалась до  $T_g = 500 \div 700^\circ\text{C}$ , после чего в ростовую камеру проводили напуск моногермана (GeH<sub>4</sub>) и пропускание электрического тока через Ta-полоску, расположенную параллельно подложке на расстоянии  $\approx 40$  мм. Рост пленки Ge происходит путем пиролиза GeH<sub>4</sub> на нагретой до температуры  $T_s \approx 1200^\circ\text{C}$  Ta-полоске. Номинальная толщина осажённого слоя Ge  $d_{\text{Ge}}$  при заданной  $T_s$  задавалась путем варьирования парциального давления GeH<sub>4</sub> в ростовой камере  $p_g$  и временем напуска GeH<sub>4</sub> в ростовую камеру  $t_g$ . Значения  $p_g$  варьировались в пределах  $(4 \div 9) \cdot 10^{-4}$  Торр,  $t_g$  — в пределах 0.5 ÷ 2.0 мин. Время установления  $p_g$  составляло  $\approx 10$  с. После окончания процесса осаждения Ge ток через Ta-полоску выключался и GeH<sub>4</sub> откачивался из ростовой камеры с помощью диффузионного насоса. Время установления  $p_g$  до уровня  $< 10^{-6}$  Торр составляло  $\approx 1$  мин.

В структурах, предназначенных для спектроскопии ФЛ, наностройки зарощивались покровным слоем Si из источника Si  $p$ -типа с удельным сопротивлением  $\approx 15$  Ом·см.

Исследования зависимости морфологии массивов поверхностных островков GeSi/Si(001) от условий роста проводились методом АСМ с помощью сканирующего зондового микроскопа Solver Pro производства компании NT-MDT

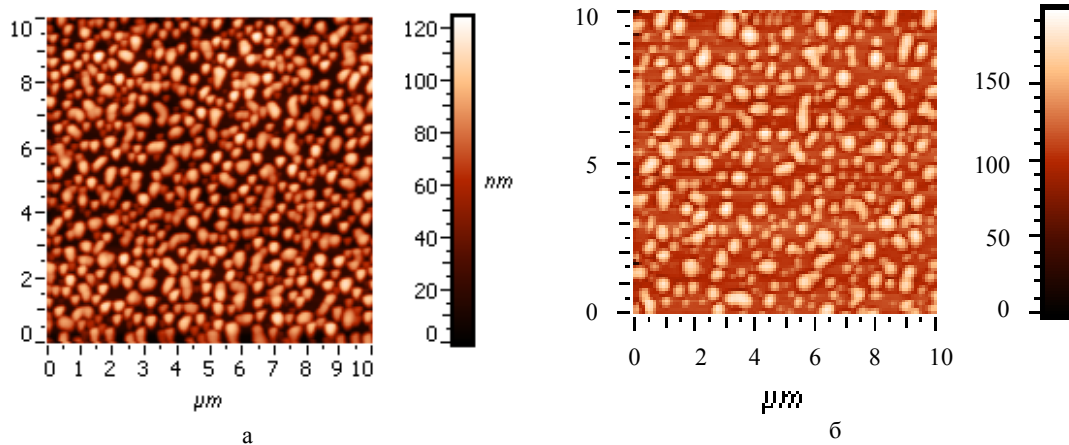


Рис. 1. АСМ-изображения поверхности ГС с поверхностными наноструктурами GeSi/Si(001), выращенных при  $p_g = 9 \cdot 10^{-4}$  Торр,  $t_g = 2$  мин и различных температурах подложки  $T_g$ , °C: а – 600; б – 700

(Зеленоград, Россия). АСМ-исследования проводились в атмосферных условиях в контактном режиме. Использовались Si I-образные кантилеверы NT-MDT CSG-01 с радиусом кривизны острия  $R_p < 10$  нм (согласно паспортным данным). Аспектное отношение зондов  $A_R$  составляло 10 : 1, жесткость  $1 \div 2$  Н/м. Неопределённость измерения положения острия зонда на поверхности образца составляла: в плоскости поверхности (координаты  $x, y$ ) –  $\pm 10$  нм; высота (координата  $z$ ) –  $\pm 0.1$  нм. Для обеспечения указанной точности результатов АСМ-измерений регулярно проводилась калибровка АСМ по координатам  $x, y$  и  $z$  с помощью тестовых структур NT-MDT TGZ-3 и TGT-1. Обработка результатов АСМ-исследований производилась с помощью специализированного программного обеспечения для обработки и анализа данных СЗМ NT-MDT Nova Image Analysis 2.1.2.

Морфология массивов поверхностных островков GeSi/Si(001) характеризовалась следующими параметрами:

- средняя высота островков  $\langle H \rangle$ ;
- средний латеральный размер островков по основанию (на уровне  $0.1 \langle H \rangle$  над плоскостью смачивающего слоя Ge)  $\langle D \rangle$ ;
- поверхностная плотность островков  $N_s$ .

Для определения вышеуказанных параметров морфологии массивов поверхностных островков GeSi/Si(001) из данных АСМ-измерений использовался блок анализа частиц (Particle Analysis) программного обеспечения NT-MDT Nova Image Analysis 2.1.2. Для выделения островков на АСМ-изображении применялся стандартный подход к идентификации островков по пороговому значению высоты  $z$ , которое выбиралось на уровне  $0.1 \langle H \rangle$  над плоскостью смачивающего слоя Ge.

Спектры ФЛ структур с зарощенными массивами островков измерялись при помощи фурье-спектрометра Bomem DA3. Возбуждение ФЛ осуществлялось многомодовым  $\text{Ar}^+$ -лазером непрерывного излучения (длина волны излучения 514 нм, мощность излучения 200 мВт). Регистрация сигнала ФЛ проводилась охлаждаемым Ge-фотодетектором фирмы Northcoast.

### Результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведены АСМ-изображения поверхности ГС GeSi/Si(001) с поверхностными наноструктурами, выращенных при  $p_g = 9 \cdot 10^{-4}$  Торр,  $t_g = 2$  мин и различных значениях  $T_g$ . Увеличение  $T_g$  с 600 до 700°C привело к уменьшению поверхностной плотности островков  $N_s$  и к увеличению их средних размеров  $\langle D \rangle$  и высоты  $\langle H \rangle$  (табл.). В то же время возросло относительное число слившихся между собой (коалесцировавших) островков (рис. 1). При уменьшении  $T_g$  до 500°C поверхностная плотность островков увеличивается, а размеры островков уменьшаются (рис. 2а). На поверхности образца присутствуют как пирамидальные, так и куполообразные островки, а также некоторое количество коалесцировавших кластеров. Уменьшение времени роста  $t_g$  (и, соответственно, номинальной толщины осаждённого слоя Ge  $d_{\text{Ge}}$ ) вдвое не приводит к существенному уменьшению поверхностной плотности островков (рис. 2б), однако плотность коалесцировавших кластеров уменьшается.

Уменьшение давления  $\text{GeH}_4$  в ростовой камере  $p_g$  до  $4 \cdot 10^{-4}$  Торр (что также приводит, при прочих равных условиях, к уменьшению номинальной толщины осаждённого слоя Ge  $d_{\text{Ge}}$  вследствие уменьшения скорости крекинга

Таблица

Параметры морфологии массивов самоформирующихся наностроек GeSi/Si(001)

№ образца	$T_g$ , °C	$p_g$ , Торр	$t_g$ , мин	$\langle D \rangle$ , нм	$\langle H \rangle$ , нм	$N_{s_2}$ , см <sup>2</sup>
10-634	700	$9 \cdot 10^{-4}$	2	$351 \pm 201$	$35 \pm 21$	$3.1 \cdot 10^8$
10-595	600	—//—	—//—	$275 \pm 78$	$20 \pm 9.5$	$4.3 \cdot 10^8$
10-635	500	—//—	—//—	$176 \pm 39$	$18 \pm 7$	$4.2 \cdot 10^9$
10-638	—//—	—//—	1	$98 \pm 90$	$10.8 \pm 10.4$	$3.2 \cdot 10^9$
10-639	—//—	—//—	0.5	$78 \pm 20$	$7.4 \pm 6.2$	$6.1 \cdot 10^9$
10-641	—//—	$4 \cdot 10^{-4}$	—//—	$78 \pm 59$	$7.3 \pm 6.6$	$4.4 \cdot 10^9$

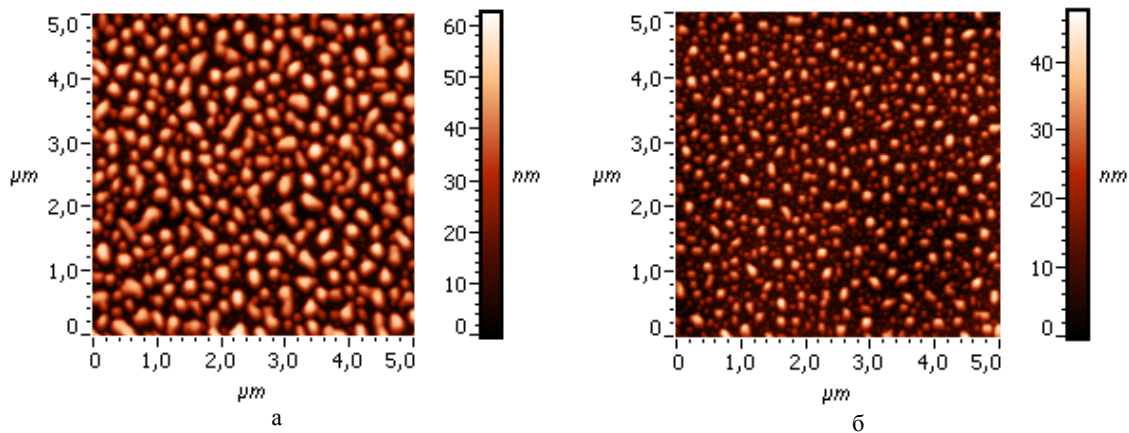


Рис. 2. АСМ-изображения поверхности структур с самоформирующимися наностройками GeSi/Si(001), выращенных при  $T_g = 500^\circ\text{C}$ ,  $p_g = 9 \cdot 10^{-4}$  Торр и различных значениях  $t_g$ , мин: а – 2; б – 1

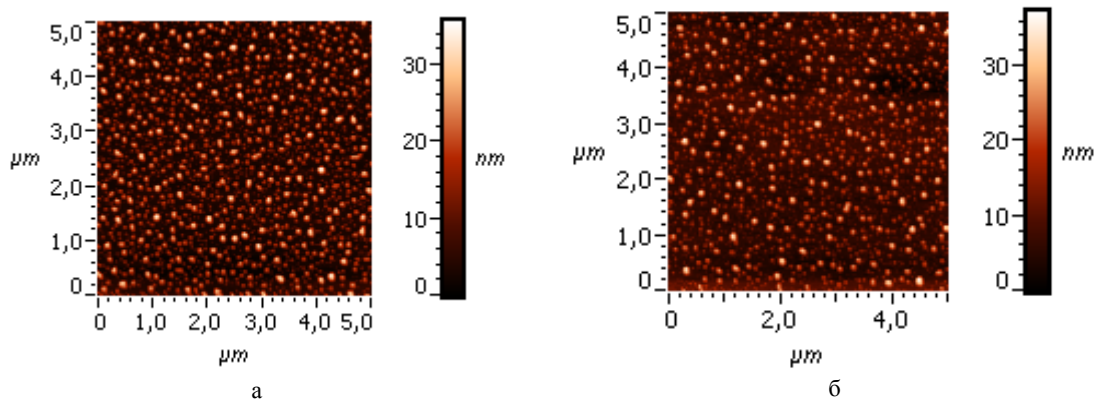


Рис. 3. АСМ-изображение поверхности структур с самоформирующимися наностройками GeSi/Si(001), выращенных при  $T_g = 500^\circ\text{C}$ ,  $t_g = 0.5$  мин и различных значениях  $p_g$ ,  $10^{-4}$  Торр: а – 9; б – 4

GeH<sub>4</sub> на поверхности горячей проволоки и, соответственно, уменьшения потока атомов Ge на подложку) приводит к почти полному исчезновению слившихся островков, а также к уменьшению количества куполообразных островков по сравнению с количеством пирамидальных (рис. 3).

Таким образом, установленные в данной работе зависимости размеров и плотности наностроек GeSi/Si(001), выращенных методом горячей проволоки, от температуры подложки  $T_g$  и количества осаждённого Ge, в целом, соответствуют полученным ранее для наностроек GeSi/Si(001), выращенных методами МЛЭ, опубликованным в литературе. Однако во всём исследованном диапазоне  $T_g$  наблюдалась тен-

денция к коалесценции островков, в отличие от случая роста островков методом МЛЭ. Отмеченное различие может быть обусловлено наличием в ростовой камере GeH<sub>4</sub> во время осаждения Ge, что может приводить к попаданию на поверхность подложки не до конца расщеплённых радикалов ( $-\text{GeH}_3$ ,  $=\text{GeH}_2$  и  $\equiv\text{GeH}$ ), а также атомарного водорода, которые могут пассивировать оборванные связи на поверхности растущего слоя, что, в свою очередь, увеличивает скорость поверхностной диффузии адатомов Ge и тем самым способствует коалесценции островков.

На рис. 4 представлен спектр ФЛ (77 К) ГС с наностройками GeSi/Si(001), выращенными

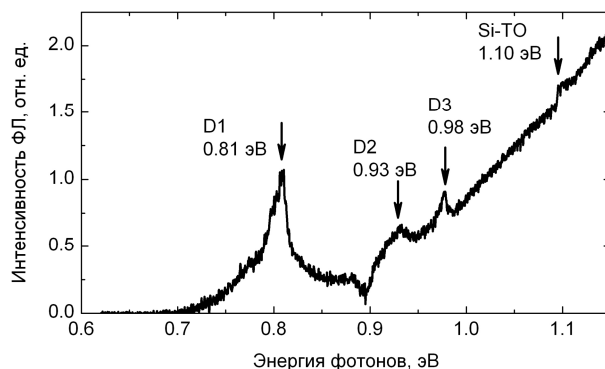


Рис. 4. Спектр ФЛ (77 К) структуры с выращенными наноструктурами GeSi/Si(001), выращенной при  $T_g = 500^\circ\text{C}$ ,  $p_g = 9 \cdot 10^{-4}$  Торр и  $t_g = 2$  мин

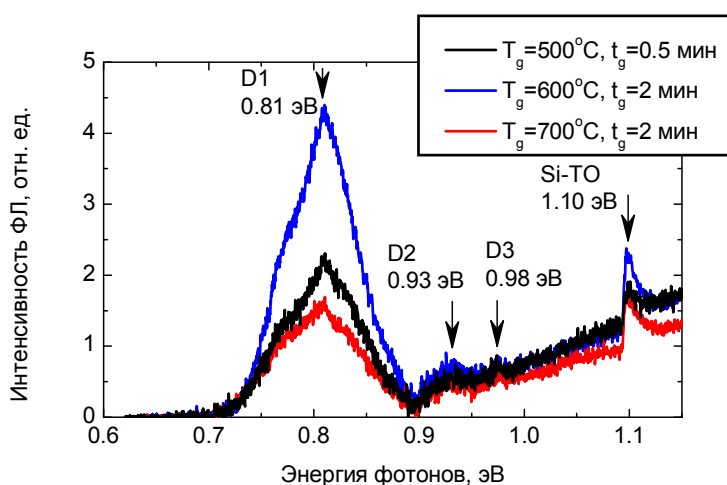


Рис. 5. Спектр ФЛ (77 К) структуры с выращенными наноструктурами GeSi/Si(001), выращенных при  $p_g = 9 \cdot 10^{-4}$  Торр и различных значениях  $t_g$  и  $T_g$

при  $T_g = 500^\circ\text{C}$ ,  $p_g = 9 \cdot 10^{-4}$  Торр и  $t_g = 2$  мин и выращенными слоем Si. В спектре ФЛ, кроме пика с энергией максимума  $h\nu_m \approx 1.10$  эВ, связанного с краевой ФЛ Si с участием ТО-фонона, наблюдаются линии с энергиями максимумов  $h\nu_m \approx 0.81$  эВ,  $\approx 0.93$  эВ и  $\approx 0.98$  эВ, спектральные положения которых соответствуют положению пиков дислокационной ФЛ в GeSi D1, D2, D3, соответственно [13]. Таким образом, наблюдаемые в спектрах ФЛ данной структуры линии могут быть связаны с дислокационной ФЛ в релаксированных островках GeSi. Заметим, что на поверхности образца с поверхностными островками, выращенными в тех же условиях (рис. 2а), наблюдается значительное количество коалесцированных кластеров, которые заведомо содержат дислокации несоответствия.

На рис. 5 приведены спектры ФЛ (77 К) трёх образцов с наноструктурами GeSi/Si(001), выращенными при различных температурах. Во всех трёх спектрах доминирует линия с  $h\nu_m \approx 0.81$  эВ. Также в спектрах ФЛ различаются линии с  $h\nu_m \approx 0.93$  эВ и  $\approx 0.98$  эВ. Независимость поло-

жения основного пика ФЛ от  $T_g$  свидетельствует, что данный пик (равно как и другие пики, наблюдающиеся в спектрах ФЛ) обусловлен дислокациями несоответствия в релаксированных островках GeSi. Линии ФЛ, обусловленные межзонными излучательными переходами в островках GeSi, по-видимому, не различаются на фоне дислокационной ФЛ.

Заметим, что наибольшая интенсивность пика ФЛ с  $h\nu_m \approx 0.81$  эВ наблюдалась на образце, выращенном при  $T_g = 600^\circ\text{C}$  и  $t_g = 2$  мин. На поверхности образца с поверхностными островками, выращенными в тех же условиях (рис. 1а), наблюдается наибольшая плотность коалесцированных кластеров. Подобные кластеры наблюдаются и на поверхности образца, выращенного при  $T_g = 700^\circ\text{C}$ , однако при данной температуре роста, согласно литературным данным, преимущественным механизмом релаксации упругих напряжений в островках является не формирование дислокаций несоответствия, а диффузия Si из подложки в объём островка [14].

### Заклучение

Результаты настоящей работы показывают, что установленные в ней зависимости размеров и плотности самоформирующихся наностроек GeSi/Si(001), выращенных методом горячей проволоки, от температуры подложки и количества осаждённого Ge, в целом, соответствуют полученным ранее для наностроек GeSi/Si(001), выращенных методом МЛЭ, опубликованным в литературе. Однако во всём исследованном диапазоне температур роста (500 ÷ 700°C) наблюдалась тенденция к коалесценции островков, в отличие от случая роста островков методом МЛЭ. Отмеченное различие может быть обусловлено наличием в ростовой камере GeH<sub>4</sub> во время осаждения Ge, что увеличивает скорость поверхностной диффузии адатомов Ge и тем самым способствует коалесценции островков. В спектрах ФЛ (77 К) исследованных образцов доминируют линии, связанные с дислокациями несоответствия в коалесцированных островках. Для нахождения режимов роста, обеспечивающих получение методом горячей проволоки массивов островков GeSi/Si(001), демонстрирующих высокую эффективность фотолюминесценции в островках, необходимы дополнительные исследования.

*Работа выполнена в рамках ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России».*

### Список литературы

1. Pavesi L. // J. Phys.: Cond. Matter. 2003. V. 15. № 26. P. R1169–R1196.
2. Shiraki Y., Sakai A. // Surf. Sci. R. 2005. V. 59. № 7–8. P. 153–207.
3. Красильник З.Ф., Новиков А.В. // УФН. 2000. Т. 170. № 3. С. 338–341.
4. Abstreiter G., Schittenhelm P., Engel C. et al. // Semicond. Sci. Technol. 1996. V. 11. № 11S. P. 1521–1528.
5. Пчеляков О.П., Болховитянов Ю.Б., Двуреченский А.В. и др. // ФТП. 2000. Т. 34. № 11. С. 1281–1299.
6. Berbezier I., Ronda A. // Surf. Sci. R. 2009. V. 64. № 1. P. 47–98.
7. Леденцов Н.Н., Устинов В.М., Щукин В.А. и др. // ФТП. 1998. Т. 32. № 4. С. 385–410.
8. Mukherjee C., Seitz H., Schroder B. // Appl. Phys. Lett. 2001. V. 78. № 22. P. 3457–3459.
9. Филатов Д.О., Круглова М.В., Исаков М.А. и др. // Изв. РАН. Сер. Физ. 2008. Т. 72. № 2. С. 267–270.
10. Филатов Д.О., Круглова М.В., Исаков М.А. и др. // ФТП. 2008. Т. 42. № 11. С. 1116–1121.
11. Светлов С.П., Шенгуров В.Г., Чалков В.Ю. и др. // Изв. РАН. Сер. Физ. 2001. Т. 65. № 2. С. 204–207.
12. Орлов Л.К., Потапов А.В., Ивин С.В. // ЖТФ. 2000. Т. 70. № 6. С. 102–107.
13. Kveder V., Badylevich M., Steinman E. et al. // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 84. № 12. P. 2106–2108.
14. Liao X.Z., Zou J., Cockayne D.J.H. // Phys. Rev. B. 1999. V. 60. № 23. P. 15605–15608.

### MORPHOLOGY AND PHOTOLUMINESCENCE OF SELF-ASSEMBLED GeSi/Si(001) NANOLANDS GROWN BY HOT WIRE METHOD

*V.G. Shengurov, V.Yu. Chalkov, S.A. Denisov, D.O. Filatov, A.V. Kruglov,  
M.V. Stepihova, D.E. Spirin*

The morphology and PL spectra of self-assembled GeSi/Si(001) nanolands grown by the hot wire method have been studied for the first time. Nanoland size and density dependencies on the substrate temperature and the deposited amount of Ge have been found to correspond to those found earlier for the nanolands grown by MBE. However, the nanolands tended to coalesce in the whole growth temperature range (500 ÷ 700°C). This was related to the presence of GeH<sub>4</sub> inside the growth chamber, which enhances the surface diffusion of Ge adatoms and, therefore, promotes the islands coalescence. The PL (77K) spectra show dominant lines related to misfit dislocations in the coalesced islands.

*Keywords:* self-assembled GeSi nanolands, molecular beam epitaxy (MBE), hot wire method, morphology, photoluminescence (PL).