

ФИЗИКА ТВЁРДОГО ТЕЛА

УДК 538.911

ОСОБЕННОСТИ ПРОЦЕССА РОСТА И ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ САМОФОРМИРУЮЩИХСЯ ОСТРОВКОВ GeSi/Si(001), ВЫРАЩЕННЫХ МЕТОДОМ СУБЛИМАЦИОННОЙ МОЛЕКУЛЯРНО-ЛУЧЕВОЙ ЭПИТАКСИИ В СРЕДЕ GeH₄

© 2010 г.

М.А. Исаков¹, Д.О. Филатов¹, М.О. Марычев²,
В.Г. Шенгуров¹, В.Ю. Чалков¹, С.А. Денисов¹

¹ Научно-исследовательский физико-технический институт
Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского

² Нижегородский госуниверситет им. Н.И. Лобачевского

filatov@phys.unn.ru

Поступила в редакцию 17.08.2010

Проанализирована зависимость морфологии самоформирующихся островков GeSi/Si(001), выращенных методом сублимационной молекулярно-лучевой эпитаксии в среде GeH₄, от условий роста. Показано, что рост островков происходит по механизму Лифшица – Слёзова – Вагнера. На основе анализа зависимости спектров фотолюминесценции островков от мощности накачки, с учётом неоднородности состава и заполнения островков фотовозбуждёнными носителями, предложена модель рекомбинационных переходов в островках.

Ключевые слова: самоформирующиеся островки GeSi/Si(001), сублимационная молекулярно-лучевая эпитаксия в среде GeH₄, оствальдовское созревание, механизм Лифшица – Слёзова – Вагнера, фотолюминесценция.

Введение

Гетероструктуры (ГС) с самоформирующимися наноструктурами GeSi/Si(001) являлись в последние 15 лет объектами интенсивных исследований в связи с потенциальными возможностями создания на их основе различных приборов кремниевой оптоэлектроники, в частности светодиодов и инжекционных лазеров [1]. В последнее время усилился интерес к фотоэлектрическим свойствам ГС с наноструктурами GeSi/Si(001) в связи с проблемой расширения рабочего спектрального диапазона фотодетекторов на базе Si в инфракрасную область (в так называемый коммуникативный диапазон длин волн $\lambda = 1.3 \div 1.55$ мкм) [2].

В большинстве опубликованных работ, посвящённых изучению процессов роста и свойств самоформирующихся наноструктур GeSi/Si(001), исследовались ГС, выращенные методами молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) или, реже, газофазной эпитаксии (ГФЭ). Предметом исследования в настоящей работе являются механизмы роста и фотолюминесцен-

ции (ФЛ) ГС с самоформирующимися островками GeSi/Si(001), выращенными методом сублимационной МЛЭ (СМЛЭ) в среде GeH₄ [3]. Данный метод был впервые предложен и разработан в Научно-исследовательском физико-техническом институте Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского (НИФТИ ННГУ). В этом методе слои Si осаждаются из сублимационного источника в условиях сверхвысокого вакуума (СВВ), а для осаждения Ge в ростовую камеру напускается GeH₄. Типичные значения парциального давления GeH₄ p_g в ростовой камере составляют $\sim 10^{-4} \div 10^{-2}$ Торр. Рост пленки Ge происходит за счёт пиролиза GeH₄ на нагретой подложке. Таким образом, данный метод является комбинацией МЛЭ с сублимационным источником Si и ГФЭ при низком давлении.

Необходимым условием практического применения метода СМЛЭ в среде GeH₄ для выращивания приборных ГС GeSi/Si(001) с самоформирующимися островками с необходимыми параметрами является установление зависимости морфологии, электронных и оптических

свойств островков, выращиваемых данным методом, от условий роста. В литературе широко представлены исследования процессов зарождения и роста самоформирующихся наноструктур GeSi/Si(001), выращенных методом МЛЭ, и менее широко — методом ГФЭ [1, 4, 5]. В то же время ГС с самоформирующимися островками GeSi/Si(001), выращенные методом СМЛЭ в среде GeH₄, вплоть до недавнего времени оставались неизученными. В [6, 7] исследовались зависимости морфологии и спектров ФЛ самоформирующихся островков GeSi/Si(001), выращенных методом СМЛЭ в среде GeH₄ в диапазоне температур подложки $T_g = 700 \div 800^\circ\text{C}$, от условий роста (p_g , время напуска GeH₄ в ростовую камеру t_g). Было отмечено, что морфология массивов поверхностных островков GeSi/Si(001), полученных методом СМЛЭ в среде GeH₄, существенно отличается от морфологии островков, выращенных методом МЛЭ в эквивалентных условиях. Было высказано предположение, что при росте методом СМЛЭ в среде GeH₄ существенное влияние на морфологию островков оказывают процессы коалесценции по механизму, подобному механизму Лифшица – Слёзова [8]. Однако выводы работ [6, 7] носили в основном качественный характер.

В настоящей работе проведён количественный анализ зависимостей параметров морфологии самоформирующихся островков GeSi/Si(001), выращенных методом СМЛЭ в среде GeH₄, от условий роста. Показано, что хотя зарождение островков происходит, как и в процессе МЛЭ, по механизму Странски – Крастанова, при дальнейшем росте определяющее влияние на морфологию островков оказывают процессы оствальдовского созревания по механизму Лифшица – Слёзова – Вагнера [9]. Также приводятся результаты исследования зависимости спектров ФЛ островков от интенсивности фотовозбуждения. Предложена модель, объясняющая особенности спектров ФЛ в ГС с островками GeSi/Si(001), выращенных методом СМЛЭ в среде GeH₄, с учётом неоднородности распределения Ge по объёму островков, а также заполнения островков фотовозбуждёнными носителями заряда.

Экспериментальная часть

Исследованные ГС с самоформирующимися островками GeSi/Si(001) были выращены при помощи оригинальной установки для СМЛЭ в среде GeH₄, спроектированной и построенной в НИФТИ ННГУ. Буферные и покровные слои Si выращивались при давлении остаточных газов в

ростовой камере $\sim 10^{-8}$ Торр из сублимационного источника *p*-Si марки КДБ-15. Перед этим подложка отжигалась при температуре 1250°C в течение 30 мин. По окончании отжига температура подложки снижалась до 1000°C и проводилось осаждение буферного слоя Si толщиной $d_b = 400 \pm 50$ нм. Скорость роста слоев Si составляла ≈ 2 мкм/час. После осаждения буферного слоя сублимационный источник Si отключался, температура подложки уменьшалась до $T_g = 700 \div 800^\circ\text{C}$, после чего в ростовую камеру напускался GeH₄. Номинальная толщина осаждаемого слоя Ge d_{Ge} при фиксированных значениях T_g и p_g определялась значением t_g . Значения p_g варьировались в пределах $5 \times 10^{-4} \div 1.3 \times 10^{-3}$ Торр, t_g — в пределах $0.25 \div 5.0$ мин. Время установления заданного значения p_g составляло ≈ 10 с. После окончания процесса осаждения Ge клапан-накататель закрывался и GeH₄ откачивался из ростовой камеры с помощью диффузионного насоса. Время восстановления давления остаточных газов в ростовой камере до уровня $\sim 10^{-6}$ Торр составляло ≈ 1 мин. При выращивании структур, предназначенных для спектроскопии ФЛ, после откачки GeH₄ до указанного выше давления, вновь включался сублимационный источник Si, и проводилось осаждение покровного слоя Si толщиной $d_b = 40 \pm 5$ нм при температуре подложки $\approx 600^\circ\text{C}$.

Номинальная толщина осаждаемого слоя Ge d_{Ge} при определённых значениях T_g , p_g и t_g определялась методом обратного резерфордовского рассеяния (ОРР) в Научно-исследовательском институте ядерной физики (НИИ ЯФ) Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова (МГУ) П.С. Черных. В диапазоне $t_g = 1 \div 5$ мин d_{Ge} была пропорциональна t_g . В области $t_g < 1$ мин зависимость $d_{Ge}(t_g)$ отклонялась от линейной, что было связано с переходными процессами установления давления при напуске и откачке GeH₄.

Исследования зависимости морфологии массивов поверхностных островков GeSi/Si(001) от условий роста проводились методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) в атмосферных условиях с помощью АСМ SolverPro производства компании NT-MDT (Зеленоград, Россия) в полуконтактном режиме. АСМ-измерения были выполнены в Научно-образовательном центре «Физика твердотельных наноструктур» (НОЦ ФТНС) ННГУ С.В. Сипровой. Использовались Si I-образные кантилеверы NT-MDT NSG-11 с радиусом кривизны острия $R_p < 10$ нм (согласно паспортным данным). Неопределённость измерения положения острия зонда на поверхности

образца составляла: в плоскости поверхности (координаты x, y) – ± 10 нм; высоты (координата z) – ± 1 нм. Для обеспечения указанной точности проводились калибровка АСМ по координатам x, y и z , а также контроль значений R_p с помощью тестовых структур NT-MDT TGZ-3 и TGT-1, соответственно.

Морфология массивов поверхностных островков GeSi/Si характеризовалась следующими параметрами:

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

Для выделения островков на АСМ-изображении использовался стандартный метод идентификации островков по пороговому значению высоты z .

Спектры ФЛ гетероструктур с выращенными покровным слоем Si островками GeSi измерялись при 77 К при помощи решеточного монохроматора Spectra Pro-558 производства компании Acton Research Corp. (США). Образцы помещались в молибденитовый сосуд Дьюара с жидким азотом. Возбуждение ФЛ осуществлялось многомодовым Ag^+ -лазером непрерывного излучения. Спектр излучения лазера состоял из четырёх линий, длины волн которых λ_e находились в спектральном диапазоне $488 \div 514$ нм. Максимальная мощность излучения лазера составляла ≈ 1.0 Вт. Измерения с помощью измерителя мощности лазерного излучения ИМО-2 показали, что $\approx 3/4$ мощности лазерного излучения терялось на отражение на элементах оптической схемы (фокусирующие линзы, светофильтры, сосуд Дьюара и др.), так что эффективная мощность фотовозбуждения P_e составляла ≈ 250 мВт.

Возбуждающее излучение фокусировалось на поверхности образца в пятно диаметром $D_e \approx 500$ мкм. Регистрация ФЛ проводилась охлаждаемым фотодетектором Acton Research ID-441C на базе InGaAs/InP-фотодиода (рабочий диапазон длин волн $0.75 \div 1.6$ мкм) на модулированном сигнале методом синхронного детектирования при помощи цифрового синхронного детектора Stanford Research Systems (США) SR-810.

Результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведены зависимости средней высоты $\langle H \rangle$, среднего латерального размера $\langle D \rangle$ и поверхностной плотности N_s островков GeSi/Si(001), выращенных при различных значениях T_g и p_g , от t_g . АСМ-изображения остров-

ков приведены в [7, 10]. Зависимости параметров морфологии островков от t_g могут быть аппроксимированы степенными функциями вида $y(x) = Ax^b$. Это указывает, что определяющее влияние на морфологию массивов поверхностных островков GeSi/Si(001), выращенных методом СМЛЭ в среде GeH₄, оказывают процессы остальдовского созревания [11].

В настоящее время для описания процессов остальдовского созревания поверхностей общепринятой является модель Лифшица – Слэзова – Вагнера (ЛСВ) [9], в рамках которой оригинальная модель Лифшица – Слэзова [8, 12] распространяется на случай системы зародышей на поверхности подложки, которые могут обмениваться между собой адатомами посредством поверхностной диффузии. В модели ЛСВ поздняя стадия эволюции системы зародышей на поверхности подложек определяется эффектом Гиббса – Томсона [13, 14], в силу которого вероятность встраивания адатома в островок зависит от радиуса кривизны границы островка с подложкой. Атомы отделяются с большей вероятностью от меньших островков и остаются с большей вероятностью на больших островках.

В настоящее время модель ЛСВ находит широкое применение для описания процессов эволюции систем самоформирующихся наноструктур на поверхности подложки как в процессе осаждения, так и в процессе послеростовых термообработок. В частности, в [15] модель ЛСВ применяется для описания эволюции массива островков GeSi/Si(001) в процессе послеростового отжига. Приведённые на рис. 1 зависимости $\langle H \rangle$, $\langle D \rangle$ и N_s от t_g показывают, что в процессе СМЛЭ в среде GeH₄ остальдовское созревание происходит непосредственно в процессе роста островков, хотя, как было установлено в [6, 7], зарождение островков GeSi/Si(001) происходит по механизму Странски – Крастнова. При этом, пока и поскольку островки остаются упруго-напряжёнными, упругое взаимодействие островков с подложкой препятствует коалесценции [16]. Однако по мере того как всё больше островков становятся релаксированными, упругое взаимодействие с подложкой оказывает всё меньшее влияние на рост островков, и дальнейшая эволюция ансамбля островков происходит по механизму ЛСВ.

Количественно зависимость радиуса островка r от времени t в модели ЛСВ определяется уравнением

$$\frac{dr}{dt} = \frac{1}{r} \left(\frac{1}{r_c} - \frac{1}{r} \right), \quad (1)$$

где r_c — критический радиус устойчивости зародыша. Островки с $r < r_c$ растворяются, в то время как островки с $r > r_c$ растут.

Характерными признаками оствальдовского созревания являются увеличение среднего размера и уменьшение плотности островков с те-

чением времени по степенному закону [11]. В модели ЛСВ $\langle r \rangle(t) \propto t^{1/2}$, $N_s(t) \propto t^{-3/2}$ [9]. Для зависимостей $\langle D \rangle(t_g)$ и $\langle H \rangle(t_g)$ на рис. 1а и б $0.32 < b < 1.02$, при этом b уменьшается с ростом T_g и p_g . Возможность обмена атомами Ge между островками посредством поверхностной

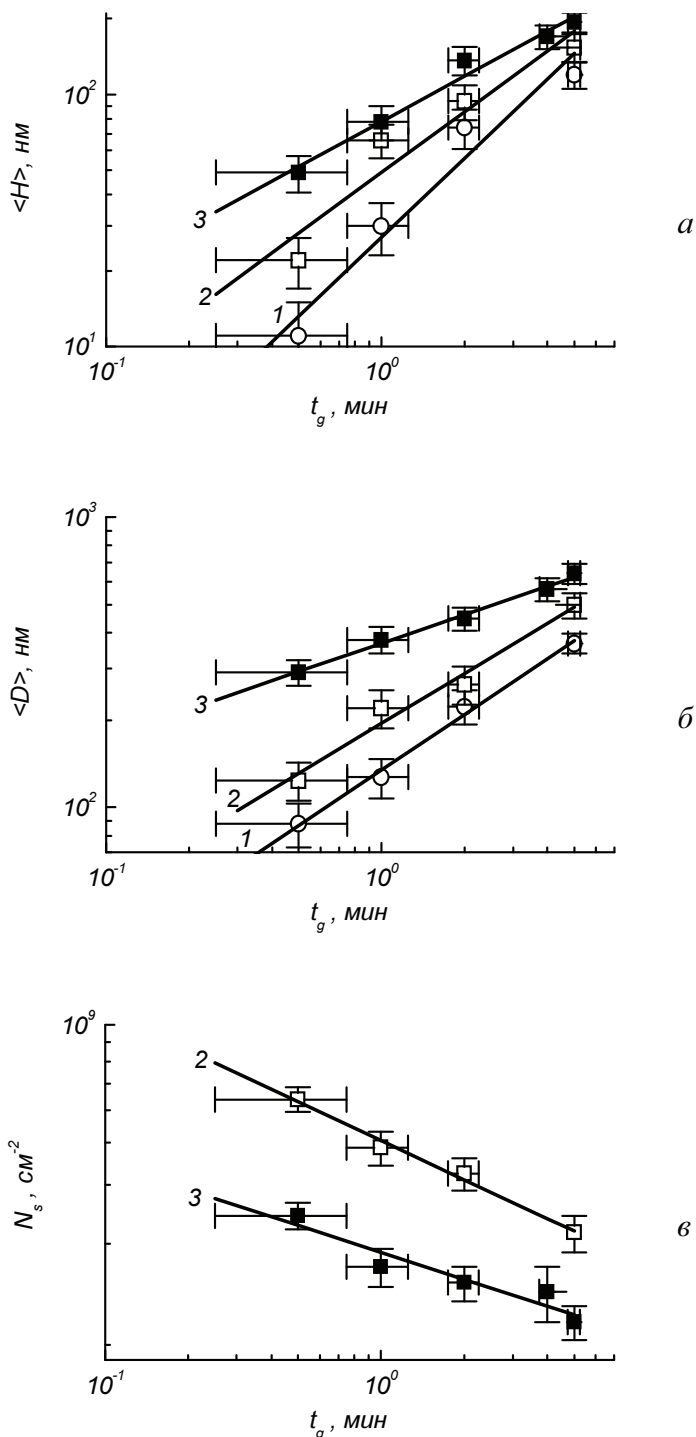


Рис. 1. Зависимости средней высоты $\langle H \rangle$ (а), среднего размера $\langle D \rangle$ (б) и поверхностной плотности островков GeSi/Si(001) N_s (в) от времени напуска GeH_4 в ростовую камеру t_g . T_g , °C: 1, 2 – 700, 3 – 800; p_g , 10^{-4} Торр: 1 – 5.0, 2, 3 – 9.0

диффузии является необходимым условием для реализации механизма ЛСВ. Увеличение скорости поверхностной диффузии адатомов Ge, а также не до конца расщеплённых радикалов $-\text{GeH}_3$, $=\text{GeH}_2$ и $\equiv\text{GeH}$ стимулируется повышением T_g , а также пассивацией оборванных связей на поверхности роста атомами водорода, отщеплёнными от молекул GeH_4 в процессе пиролиза. Пассивация оборванных связей на растущей поверхности приводит также к уменьшению вероятности появления новых центров роста, что, в свою очередь, приводит к уменьшению изначальной поверхностной плотности островков.

Подобные установленным в настоящей работе закономерности эволюции морфологии самоформирующихся островков с увеличением количества осажденного материала наблюдались также при выращивании самоформирующихся островков GeSi/Si(001) методом ГФЭ при низком давлении [17], а также квантовых точек (КТ) InAs/GaAs(001) методом МОС-гидридной эпитаксии при пониженном давлении [18]: количество и размеры дислоцированных кластеров InGaAs увеличивались при повышении давления газа-носителя (водорода). По-видимому, для процессов ГФЭ характерны сходные закономерности зависимости морфологии самоформирующихся наноструктур от условий роста, связанные с процессами остальдовского созревания, независимо от осажденного вещества.

С другой стороны, в модели ЛСВ не учитываются многие важные детали механизма роста самоформирующихся островков: кинетика реакции пиролиза GeH_4 на поверхности смачивающего слоя и островков, трансформация формы островков в процессе роста, приводящая к бимодальному распределению островков по размерам [1, 5], диффузия Si из подложки в объём островков [19] и т. д. Так, зависимости $N_s(t_g)$, приведённые на рис. 1в, качественно согласуются с предсказываемыми моделью ЛСВ, однако N_s убывает с увеличением t_g медленнее, чем ожидалось в соответствии с теорией ($-0.39 < b < -0.27$). Теория ЛСВ базируется на предположении постоянства количества вещества, составляющего островки. В процессе эпитаксии это, очевидно, не имеет места, поскольку на поверхность подложки постоянно поступает Ge. Кроме того, в объём островков активно диффундирует Si из подложки [19]. В результате суммарный объём островков не остается постоянным, а растет со временем. Как следствие, размеры островков растут в процессе роста быстрее, а плотность падает медленнее, чем предсказывает модель ЛСВ.

Другим фактором, влияющим на процесс остальдовского созревания, является формирование разрывов смачивающего слоя вокруг островков GeSi [6, 10]. Подобные разрывы наблюдались ранее на структурах, выращенных методом МЛЭ [20]. Граница разрыва и смачивающего слоя представляет собой потенциальный барьер для диффузии адатомов Ge, поэтому образование разрывов ограничивает приток адатомов к островку. В модели ЛСВ предполагается, что скорость массообмена между островками лимитируется скоростью отрыва адатомов от границы островков – подложка. Как показывают результаты настоящей работы, именно этот режим реализуется в процессе роста островков GeSi/Si(001) методом СМЛЭ в среде GeH_4 . Наряду с повышенной скоростью поверхностной диффузии, этому способствует также и наличие разрывов смачивающего слоя вокруг островков. Альтернативный случай, когда скорость массообмена между островками лимитируется скоростью поверхностной диффузии, описан Чакаверти [21].

На рис. 2 приведены спектры ФЛ гетероструктуры GeSi/Si(001) с самоформирующимися островками, выращенными при $p_g = 9 \times 10^{-4}$ Торр, $T_g = 700^\circ\text{C}$ и $t_g = 1.0$ мин ($d_{\text{Ge}} \approx 10.3$ мс), измеренные при различных значениях мощности фотовозбуждения P_e . Помимо линий краевой ФЛ в Si с участием ТО-фонона (Si–ТО), в спектрах наблюдаются линии, связанные с излучательными межзонными оптическими переходами в островках GeSi [6, 7]. Эти линии могут быть разложены на две гауссовы компоненты NC_1 и NC_2 (на рис. 2 показано такое разложение для трёх спектров). Расщепление линий ФЛ не может быть связано с наличием в островках фононных и бесфононных переходов, поскольку разность энергий между максимумами была различна в спектрах ФЛ, измеренных на образцах, выращенных в различных условиях ($27 \div 52$ мэВ), что не соответствует энергиям фононов ни в Si, ни в твёрдом растворе $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ с соответствующим значением x ($0.2 \div 0.3$) [6, 7].

Тонкую структуру линий ФЛ в островках GeSi можно объяснить, принимая во внимание неоднородность пространственного распределения Ge по объёму островков. В [22, 23] методом растровой Оже-микроскопии (РОМ) было установлено наличие тонкого (толщиной ~ 1 нм) обогащённого Ge приповерхностного слоя вблизи вершины островков GeSi/Si(001), выращенных методом СМЛЭ в среде GeH_4 . По данным РОМ, в этом слое x достигает 0.9, тогда как в объёме островков $x = 0.25 \div 0.35$, в зависимости от T_g и других условий роста, и рас-

пределение Ge по глубине островка более однородно. Такое распределение Ge по объёму островка энергетически выгодно, поскольку вершина островка является концентратором упругих напряжений растяжения, следовательно, концентрация Ge в вершине островка понижает его упругую энергию.

Предположим, что компонента NC_1 связана с межзонными переходами из состояний зоны проводимости покровного слоя Si вблизи его границы с обогащённым Ge приповерхностным слоем островка (переход 1 на рис. 3) на размерно-квантованные дырочные состояния в обогащенном Ge слое (такие переходы являются непрямыми в реальном пространстве), а компонента NC_2 – с прямыми в реальном пространстве переходами из электронных состояний в зоне проводимости в неквантованные дырочные состояния в валентной зоне внутри островка GeSi (переход 2 на рис. 3). Сделаем оценки толщины прослойки Ge a исходя из энергии максимума компоненты NC_1 . Для этого используем упрощенную одномерную модель зонной структуры островка GeSi/Si(001) в приближении плоских зон (рис. 3а). Поскольку, по данным РОМ, эффективная толщина прослойки Ge составляет ~ 1 нм, а, с другой стороны, радиус кривизны поверхности островка, по данным АСМ, ~ 10 мкм, можно рассматривать прослойку Ge на вершине островка как квантовую яму (КЯ). Предположим, что Ge распределён в материале островка однородно. На рис. 3а представлен расчётный профиль зон вдоль вертикальной оси островка при 77 К для $x = 0.3$, рассчитанный с использованием модели [24]. Прослойка Ge_xSi_{1-x} считалась псевдоморфной, её толщина h принималась равной типичной средней высоте островков $\langle H \rangle \approx 20$ нм.

Одномерное уравнение Шрёдингера для тяжёлых дырок в потенциале рис. 3а в приближении эффективной массы с граничными условиями Бастарда (непрерывность ψ и $m^{-1}d\psi/dz$, где m и $\psi(z)$ – эффективная масса и огибающие волновых функций размерно-квантованных состояний тяжёлых дырок, соответственно, на границах слоёв структуры [25]) решалось стандартным методом [26]. Первый корень характеристического уравнения, соответствующий основному состоянию тяжёлых дырок, локализованному в слое Ge E_{hh1} , находился численно методом Ньютона. Рассматривая E_{hh1} как функцию a , находили значения a , при которых энергия непрямого в реальном пространстве перехода NC_1 $E_{hh1} = 0.86$ эВ. Для фоновых переходов было найдено $a \approx 0.51$ нм, для бесфонового – $a \approx 0.45$ нм. Оба значения по порядку величины согласуются с данными РОМ.

На рис. 3а показаны также огибающие волновых функций основного состояния тяжёлых дырок в двойной КЯ $\psi_{hh1}(z)$ для случаев фоновых и бесфонового переходов. Огибающие не локализованы полностью в прослойке Ge, а достаточно глубоко проникают как в покровный слой Si, так и в слой GeSi. Как следствие, перекрытие огибающих данных состояний с огибающими волновых функций электронов в зоне проводимости существенно как для электронных состояний в островке GeSi, так и для состояний в зоне проводимости в покровном слое Si. Таким образом, в рамках приближения плоских зон нельзя определить, с какими именно переходами связана компонента NC_1 – переходами типа 1 или типа 3 (рис. 3а).

Рассмотрим влияние заряда фотовозбуждённых носителей на зонную структуру островков в условиях измерения ФЛ, т. е. в условиях сильного фотовозбуждения. Коэффициент собственного оптического поглощения Si на длине волны фотовозбуждения $\alpha \approx 2 \times 10^{-4} \text{ см}^{-1}$ [27]. Оценим концентрацию избыточных носителей в окрестности островков Δn . Одномерное уравнение непрерывности для полубесконечного полупроводника, освещаемого излучением с энергией кванта $h\nu_e$, в стационарном состоянии [28]

$$\frac{dn}{dt} = G - \frac{\Delta n}{\tau_r} + D_n \frac{d^2n}{dz^2} = 0, \quad (2)$$

где

$$G = \frac{4\alpha P_e(1-R)}{\pi D_e^2 h\nu_e} \exp(-\alpha z) \quad (3)$$

– скорость фотогенерации избыточных носителей, τ_r – рекомбинационное время жизни носителей, R – коэффициент оптического отражения на поверхности полупроводника, D_n – коэффициент диффузии электронов. Из решения (2) с граничными условиями

$$\begin{aligned} D_n \frac{d\Delta n}{dz} &= S_n \Delta n, z = 0 \\ \Delta n &= 0, z \rightarrow \infty, \end{aligned} \quad (4)$$

где S_n – скорость поверхностной рекомбинации, имеем:

$$\Delta n(0) = \frac{L_n}{1 + \alpha L_n} \cdot \frac{G}{S_n + \frac{L_n}{\tau_r}}, \quad (5)$$

где L_n — длина диффузии электронов. Принимая для p -Si с $p_0 = 2 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$ при 77 К $\tau_r = 4 \times 10^{-5} \text{ с}$, $L_n = 50 \text{ мкм}$ и $S_n = 10^2 \text{ см/с}$ [27] и принимая во внимание, что $d_c \ll L_n$, α^{-1} , имеем $\Delta n(d_c) \approx \Delta n(0) \approx 1.5 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Положения

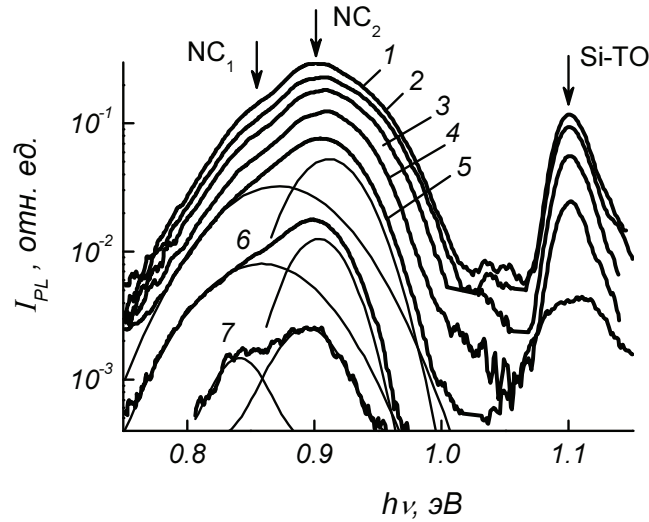


Рис. 2. Зависимость спектров ФЛ (77 К) гетероструктуры с самоформирующимися островками GeSi/Si(001) от мощности фотовозбуждения P_e , мВт: 1 – 250; 2 – 210; 3 – 150; 4 – 90; 5 – 40; 6 – 15; 7 – 5

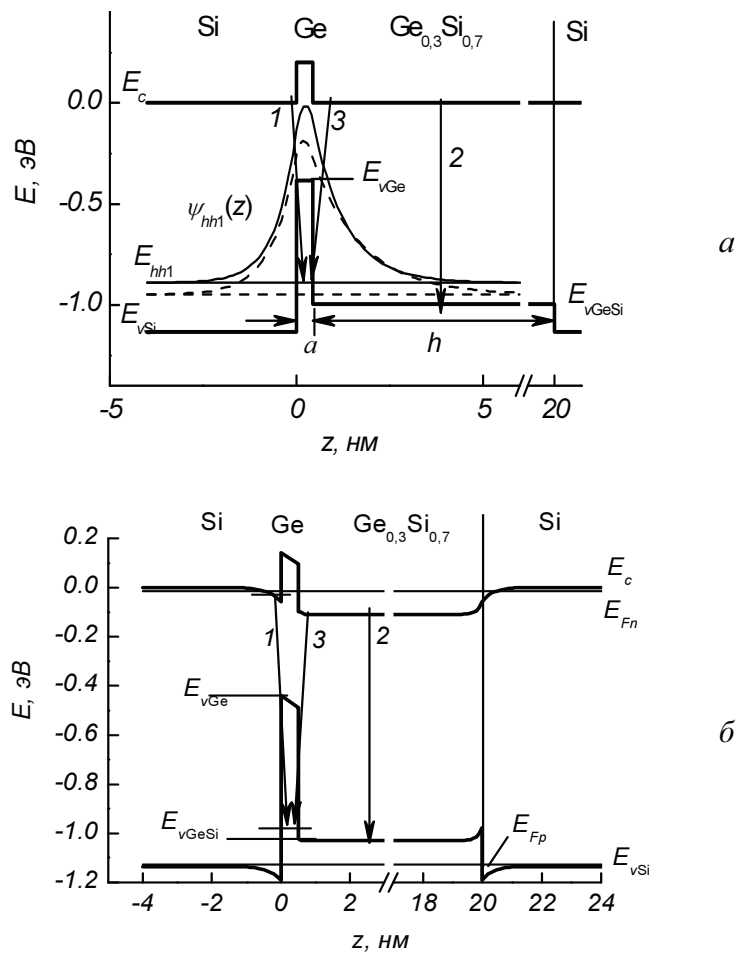


Рис. 3. Зонная диаграмма (77 К) островка $\text{Ge}_{0.3}\text{Si}_{0.7}$ с тонким приповерхностным слоем Ge на вершине в приближении плоских зон (а) и с учётом зарядки островка избыточными носителями в условиях сильного фотовозбуждения (б). Показаны уровни энергии и огибающие волновых функций основного состояния тяжёлых дырок в островке, рассчитанные для случаев бесфононного (—) и фононного (---) переходов

квазиуровней Ферми для электронов и дырок (F_n и F_p , соответственно) относительно краёв зон в Si находились из уравнений

$$\begin{aligned} \Delta n &= N_c F_{1/2} \left(\frac{F_n - E_c}{k_B T} \right), \\ \Delta p &= N_v F_{1/2} \left(\frac{E_v - F_p}{k_B T} \right), \end{aligned} \quad (6)$$

где N_c и N_v – значения эффективной плотности состояний в зоне проводимости и в валентной зоне Si, соответственно, $F_{1/2}$ – интеграл Ферми порядка 1/2. Корни уравнений (6) находились численно методом Ньютона. Были получены значения $E_c - F_n \approx 18$ мэВ и $F_p - E_v \approx 12$ мэВ.

Предположим, что в стационарном состоянии имеет место квазиравновесие между носителями в Si и в островках GeSi. В данном приближении уравнение Пуассона для потенциала электронов $\phi(z)$ может быть записано как

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \phi}{dz^2} &= \frac{e}{\epsilon_s \epsilon_0} \left[N_c F_{1/2} \left(\frac{F_n - E_c(z)}{k_B T} \right) - \right. \\ &\left. - N_v F_{1/2} \left(\frac{E_v(z) - F_p}{k_B T} \right) - p_0 \right], \end{aligned} \quad (7)$$

где

$$E_c(z) = \begin{cases} e\phi(z), & z < 0, z > a \\ e\phi(z) + \Delta E_{c\text{Ge}}, & 0 < z < a \end{cases}, \quad (8)$$

$$E_v(z) = \begin{cases} e\phi(z) - E_{g\text{Si}}, & z < 0, z > a + h \\ e\phi(z) - E_{g\text{Si}} + \Delta E_{v\text{Ge}}, & 0 < z < a \\ e\phi(z) - E_{g\text{Si}} + \Delta E_{v\text{GeSi}}, & a < z < a + h, \end{cases} \quad (9)$$

где $E_{g\text{Si}}$ – ширина запрещенной зоны Si.

Граничные условия для уравнения Пуассона:

$$\phi(z) \rightarrow 0, z \rightarrow \pm\infty. \quad (10)$$

Уравнение (7) с граничными условиями (10) решалось численно методом прогонки.

На рис. 3б представлена расчётная зонная диаграмма островка $\text{Ge}_{0.3}\text{Si}_{0.7}/\text{Si}(001)$ с прослойкой Ge на поверхности в условиях сильного фотовозбуждения. Заполнение островка избыточными носителями приводит к изгибу зон на границах островка с окружающим материалом (Si). При достаточно малых значениях x , фактически, гетероструктура GeSi/Si является гетероструктурой I типа. Рассмотренный эффект приводит к доминированию в островках прямых в реальном пространстве переходов (компонента NC_2 на рис. 2). Напротив, в спектрах ФЛ структур с островками GeSi/Si(001), выращенных методом МЛЭ, доминируют не прямые в реальном пространстве переходы типа 1 (фононные и

бесфононные) [1, 5]. В силу отмеченных выше причин островки, выращенные методом МЛЭ, как правило, характеризуются меньшими размерами и большими значениями x , чем выращенные методом СМЛЭ в среде GeH_4 в эквивалентных условиях (T_g, d_{Ge}). В связи с этим заряд дырок, локализованных в островках, выращенных методом МЛЭ, экранируется, в основном, электронами, локализованными на границах островков – Si.

Заметим, что межзонные оптические переходы между трехмерными состояниями в зоне проводимости GeSi в двумерные дырочные состояния в КЯ Ge на поверхности островка (переходы типа 3 на рис. 3) являются запрещёнными [29]. В связи с этим компонента NC_1 , наиболее вероятно, связана с переходами из двумерных состояний в треугольной КЯ для электронов, образованной изгибом зон вблизи границы покровного слоя Si с обогащённым Ge слоем, в двумерные дырочные состояния в последнем (переходы типа 1 на рис. 3). Оценка туннельной прозрачности для электронов слоя Ge толщиной 0.5 нм в квазиклассическом приближении составляет ~ 0.1 , так что электронные состояния в треугольной КЯ являются квазилокализованными. На рис. 4а представлены зависимости интегральной интенсивности линий ФЛ I_{PL} от P_e для компонент NC_1 и NC_2 . Зависимость $I_{PL}(P_e)$ для компоненты NC_2 может быть аппроксимирована степенной функцией вида $I_{PL} \propto (P_e)^b$ с показателем степени $b \approx 1.1$, т. е. практически линейной, что соответствует случаю линейной рекомбинации в островках. Интенсивность компоненты NC_1 при низких уровнях фотовозбуждения также растёт с увеличением P_e почти линейно. Однако при $P_e > 40$ мВт зависимость $I_{PL}(P_e)$ выходит на насыщение и даже несколько убывает, что может быть связано с заполнением основного состояния в треугольной КЯ вблизи границы обогащённого Ge слоя на поверхности островка с покровным слоем Si. В случае когда состояния электронов и дырок вблизи дна двумерных подзон заполнены, скорость межзонной излучательной рекомбинации между соответствующими состояниями в КЯ также испытывает насыщение [29].

На рис. 4б представлены зависимости энергии максимумов компонент NC_1 и NC_2 линии ФЛ в островках $h\nu_m$ от P_e . В области $P_e < 40$ мВт $h\nu_m$ для обеих компонент возрастает с ростом P_e . Сходная зависимость наблюдалась в [30], где она была связана с увеличением заполнения дырочных состояний в островках с ростом P_e . При $P_e > 40$ мВт $h\nu_m$ для компоненты NC_2 практически не зависит от P_e , тогда как для компо-

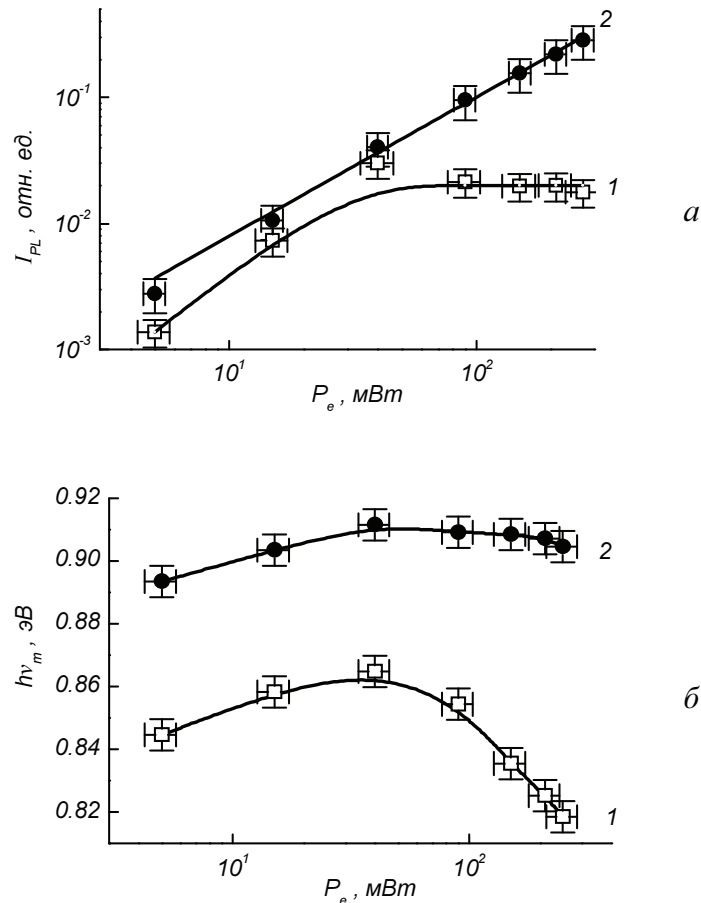


Рис. 4. Зависимость интегральной интенсивности I_{PL} (а) и энергии максимумов $h\nu_m$ (б) компонент линий ФЛ (77 К) в островках GeSi/Si, приведённых на рис. 2, от мощности фотовозбуждения P_e : 1 – NC₁; 2 – NC₂

ненты NC₁ $h\nu_m$ уменьшается с ростом P_e . Указанный эффект может быть объяснён тем, что с увеличением P_e увеличиваются концентрации избыточных носителей заряда Δn и Δp как в островках, так и в окружающем материале (Si). Это, в свою очередь, приводит к увеличению напряжённости электрического поля на границах островков с матрицей Si, в том числе — как в КЯ для дырок, связанной с обогащённой Ge прослойкой на поверхности островка, так и в КЯ для электронов, связанной с изгибом зон вблизи границы указанной прослойки с покровным слоем Si (рис. 3б). Наблюдаемое уменьшение $h\nu_m$ с ростом P_e для компоненты NC₁ можно рассматривать как проявление квантово-размерного эффекта Ванье – Штарка.

Заключение

Анализ зависимости морфологии самоформирующихся островков GeSi/Si(001), выращенных методом СМЛЭ в среде GeH₄, от условий роста показывает, что в диапазоне температуры роста 700 ÷ 800°C и давления GeH₄ в ростовой

камере $5 \times 10^{-4} \div 1.5 \times 10^{-3}$ Торр определяющее влияние на морфологию островков оказывают процессы оствальдовского созревания по механизму Лифшица – Слёзова – Вагнера. Анализ зависимости спектров фотолюминесценции от интенсивности фотовозбуждения показывает, что длинноволновая компонента линии фотолюминесценции, связанной с островками GeSi, обусловлена межзонными излучательными рекомбинационными переходами электронов, локализованных в треугольной квантовой яме на границе покровного слоя Si и островка, на двумерные дырочные состояния в прослойке на поверхности островка, обогащённой Ge (непрямыми в реальном пространстве). Коротковолновая компонента линии фотолюминесценции в островках обусловлена переходами из состояний зоны проводимости в состояния валентной зоны внутри островка (прямыми в реальном пространстве). Показано, что заполнение островков GeSi/Si(001) избыточными носителями заряда в условиях сильного фотовозбуждения может приводить к тому, что начиная с некоторого значения интенсивности фотовозбуждения

островки достаточно больших размеров с достаточно низкой концентрацией Ge в их материале становятся гетероструктурами I типа. Как следствие, в спектрах фотолюминесценции таких островков доминируют линии, связанные с прямыми в реальном пространстве переходами внутри островков.

Авторы выражают благодарность С.В. Сипровой (физический факультет ННГУ) и П.С. Черных (НИИ ЯФ МГУ) за АСМ- и ОРР-измерения соответственно.

Работа выполнена при поддержке Фонда гражданских исследований и разработок США (US Civilian Research and Development Foundation, CRDF) BRHE RUX-0-001-NN-06/BP1MO1 и Федерального агентства по образованию РФ (РНИ.2.1.1.3615 и 2.1.1.4737).

Список литературы

- Berbezier I., Ronda A. // Surf. Sci. R. 2009. V. 64. P. 47–98.
- Якимов А.И., Двуреченский А.В., Кириенко В.В. и др. // ФТТ. 2005. Т. 47. С. 37–40.
- Светлов С.П., Шенгуров В.Г., Чалков В.Ю. и др. // Изв. РАН. Сер. Физ. 2001. Т. 65. С. 204–207.
- Пчеляков О.П., Болховитянов Ю.Б., Двуреченский А.В. и др. // ФТП. 2000. Т. 34. С. 1281–1299.
- Shiraki Y., Sakai A. // Surf. Sci. R. 2005. V. 59. P. 153–207.
- Филатов Д.О., Круглова М.В., Исаков М.А. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2008. Т. 72. С. 267–270.
- Филатов Д.О., Круглова М.В., Исаков М.А. и др. // ФТП. 2008. Т. 42. С. 1116–1121.
- Лифшиц И.М., Слэзов В.В. // ЖЭТФ. 1958. Т. 35. С. 479–487.
- Wagner C.Z. // Zeitschr. Elektrochem. 1961. V. 65. S. 581–591.
- Филатов Д.О., Круглова М.В., Исаков М.А. и др. // Неорг. мат. 2008. Т. 44. С. 1287–1292.
- Ostwald W.Z. // Zeitschr. Phys. Chem. 1900. B. 34. S. 495–503.
- Lifshitz I.M., Slyozov V.V. // J. Phys. Chem. Solids. 1961. V. 19. P. 35–50.
- Thomson W. (Lord Kelvin) // Phil. Mag. 1871. V. 43. P. 448–452.
- Gibbs J.W. // Trans. Connect. Acad. 1876. V. 3. P. 108–248.
- Kamins T.I., Medeiros-Ribeiro G., Ohlberg D.A.A. et al. // J. Appl. Phys. 1999. V. 85. P. 1159–1162.
- Shchukin V.A., Ledentsov N.N., Kop'ev P.S. et al. // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 75. P. 2968–2970.
- Goryll M., Vescan L., Lüth H. // Mat. Sci. Eng. B. 2000. V. 69–70. P. 251–256.
- Tang X.-H., Du A.-Y., Zhao J.-H. et al. // Trans. Nonferr. Metals Soc. China. 2006. V. 16. P. S25–S28.
- Liao X.Z., Zou J., Cockayne D.J.H. et al. // Phys. Rev. B. 1999. V. 60. P. 15605–15608.
- Chaparro S.A., Zhang Y., Drucker J. // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 76. P. 3534–3536.
- Chakraverty B.K. // J. Phys. Chem. Solids. 1967. V. 28. P. 2413–2421.
- Максимов Г.А., Красильник З.Ф., Филатов Д.О. и др. // ФТТ. 2005. Т. 47. С. 26–29.
- Maximov G.A., Krasil'nik Z.F., Novikov A.V. et al. Composition Analysis of Single GeSi/Si Nanoclusters by Scanning Auger Microscopy // In: Nanophysics, Nanoclusters, and Nanodevices / Ed. Kimberly S. Gehar. NY: Nova Science, 2006. P. 87–123.
- Алешкин В.Я., Бекин Н.А. // ФТП. 1997. Т. 31. С. 171–178.
- Weissbuch C., Vinter B. Quantum Semiconductor Structures: Fundamentals and Applications. NY: Academic Press, 1991. 292 p.
- Ландау Л.Д., Лившиц Е.М. Теоретическая физика: В 10 т. Т. 3. Квантовая механика: нерелятивистская теория. М.: Наука, 1989. 412 с.
- New semiconductor materials. characteristics and properties. Electronic archive / ФТИ РАН им. А.Ф. Иоффе. СПб. [Электронный ресурс]. URL: <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/> (дата обращения 16.12.2009).
- Moss T.S. // J. Electron. Control. 1955. V. 1. P. 126–135.
- Vasko F.T., Kuznetsov A.V. Electronic States and Optical Transitions in Semiconductor Heterostructures. B.: Springer, 1999. 426 p.
- Tsybeskov L., Lee E.-K., Chang H.-Y. et al. // Adv. Opt. Tech. 2008. № 21. P. 8032–8035.

PECULIARITIES OF THE GROWTH AND PHOTOLUMINESCENCE OF SELF-ASSEMBLED GeSi/Si(001) NANOISLANDS GROWN BY SUBLIMATION MOLECULAR BEAM EPITAXY IN GeH₄ AMBIENT

M.A. Isakov, D.O. Filatov, M.O. Marychev, V.G. Shengurov, V.Yu. Chalkov, S.A. Denisov

The dependence of the morphology of the self-assembled GeSi/Si(001) nanoislands grown by sublimation molecular beam epitaxy in a GeH₄ ambient on the growth conditions has been analyzed. The islands have been shown to grow by Lifshitz – Slyozov – Wagner mechanism. A model for the recombination transitions in the islands taking into account the nonuniformity of the islands' composition and their charging by the photoexcited carriers based on the analysis of the dependence of the photoluminescence spectra on the excitation intensity has been proposed.

Keywords: self-assembled GeSi/Si(001) nanoislands, sublimation molecular beam epitaxy in a GeH₄ ambient, Ostwald ripening, Lifshitz – Slyozov – Wagner mechanism, photoluminescence.