

Низкоэнергетическая фотолюминесценция структур с GeSi/Si(001) самоорганизующимися наноструктурами

Н. В. Востоков, Ю. Н. Дроздов, З. Ф. Красильник, Д. Н. Лобанов¹⁾, А. В. Новиков, А. Н. Яблонский

Институт физики микроструктур РАН, 603950 Нижний Новгород, Россия

Поступила в редакцию 29 июля 2002 г.

Исследована зависимость спектров фотолюминесценции структур с GeSi/Si(001) самоорганизующимися островками от температуры роста. Показано, что смещение пика фотолюминесценции от островков в область меньших энергий при понижении температуры роста связано с подавлением диффузии Si в островки и увеличением доли Ge в них. Обнаружен сигнал фотолюминесценции от GeSi островков в области энергий вплоть до 0.6 эВ, что значительно меньше ширины запрещенной зоны объемного Ge. Положение пика фотолюминесценции от островков хорошо описывается моделью непрямого в реальном пространстве оптического перехода с учетом реального состава и упругих напряжений островков. Получены одно- и многослойные структуры с GeSi/Si(001) самоорганизующимися наноструктурами, имеющими сигнал фотолюминесценции в области 1.3 ÷ 2 мкм при комнатной температуре.

PACS: 78.55.Ap, 78.67.Hc, 81.05.Cy, 81.15.Ny

В последние несколько лет значительно вырос интерес к различного рода низкоразмерным системам на кремневых подложках, связанный с возможностью создания на их основе светоизлучающих приборов и фотодетекторов. Одним из активно разрабатываемых направлений в этой области являются Si_{1-x}Ge_x/Si(001) гетероструктуры с самоорганизующимися наноструктурами и квантовыми точками. В подобных структурах наблюдается интенсивная полоса фотолюминесценции (ФЛ) в области длин волн $\lambda = 1.3 \div 1.6$ мкм (0.75 ÷ 0.95 эВ) [1], имеющей большое практическое значение для передачи и приема информации с использованием оптоволоконных линий связи.

Одна из теоретических моделей [2] связывает появление данного сигнала ФЛ от островков с непрямой в реальном пространстве излучательной рекомбинацией дырок локализованных в островках, и электронов, находящихся в Si на гетерогранице II-типа с островком. Согласно модели [2], для структур с Ge/Si(001) самоорганизующимися островками не прямой оптический переход должен наблюдаться вплоть до энергий ~ 0.4 эВ (~ 3 мкм), что значительно меньше ширины запрещенной зоны не только объемного Si, но и объемного Ge. Однако до сих пор линия ФЛ от островков наблюдалась в области энергий 0.75 ÷ 0.95 эВ [3], что меньше ширины запрещенной зоны Si, но больше ширины запрещенной зоны Ge. Одной из причин данного расхождения теории и эксперимента для структур, выращенных при

температурах осаждения германия выше 50 °С, является образование GeSi сплава в островках, вызванное ускоренной упругими напряжениями диффузией Si в островки [4]. Образование GeSi сплава в островках часто не учитывается при описании оптических и электрофизических свойств структур с наноструктурами, что приводит к некорректной интерпретации экспериментальных результатов.

В данной работе спектры фотолюминесценции одно- и многослойных структур с GeSi/Si(001) самоорганизующимися наноструктурами, выращенными при различных температурах осаждения Ge, анализируются с учетом реальных параметров островков: размеров, состава и упругих напряжений.

Исследованные структуры были выращены на подложках Si(001) методом молекулярно-лучевой эпитаксии из твердых источников. Структуры с самоорганизующимися наноструктурами состояли из буферного слоя Si и слоя Ge с эквивалентной толщиной от 5 до 10 монослоев (МС) (1 мс \approx 0.14 нм). Осаждение Ge проходило при температурах $T_g = 600, 700$ и 750 °С. Структуры для фотолюминесцентных измерений имели покровный слой Si, рост которого проходил при тех же температурах, что и осаждение Ge. Многослойные структуры были выращены при $T_g = 600$ и 700 °С и состояли из 5 периодов слоев Ge с эквивалентной толщиной 7.5 МС, разделенных промежуточными слоями кремния толщиной 30 и 60 нм, соответственно. Исследования морфологии поверхности структур выполнены на атомно-силовом микроскопе (АСМ) "Solver" P4, рентгенодифракционные (РД) исследования – на дифрактометре ДРОН-4.

¹⁾e-mail: dima@ipm.sci-nnov.ru

Спектры ФЛ GeSi гетероструктур записывались с помощью фурье-спектрометра BOMEM DA3.36. Для регистрации спектров использовались охлаждаемые Ge и InSb детекторы. Для возбуждения ФЛ использовался Ar⁺-лазер (линия 514.5 нм).

Проведенные ранее исследования роста GeSi nanoостровков при различных температурах осаждения Ge показали [4, 5], что при $T_g \geq 600^\circ\text{C}$ в nanoостровках происходит образование GeSi сплава непосредственно в процессе осаждения германия. При понижении T_g с 750 до 600°C доля Ge в островках увеличивается, что приводит к уменьшению размеров островков [4, 5]. Согласно АСМ исследованиям, размер куполообразных островков в плоскости роста уменьшался с $200 \div 250$ нм до $60 \div 80$ нм, а высота с $30 \div 35$ нм до $10 \div 12$ нм при понижении T_g с 750 до 600°C [4, 5]. В то же время по данным рентгенодифракционного анализа и комбинационного рассеяния света доля Ge в незарощенных куполообразных островках увеличивалась с $x = 40 \div 50\%$ для $T_g = 750^\circ\text{C}$ до $x = 70 \div 75\%$ для $T_g = 600^\circ\text{C}$ [4, 5]. Образование GeSi раствора в островках связано с диффузией Si, ускоренной неоднородными полями упругих напряжений от островков [6]. Величина остаточных упругих напряжений (RES) незарощенных куполообразных островков лежала в диапазоне $\text{RES} = 50 \div 10\%$ и не зависела от температуры роста. Отсутствие зависимости RRS от T_p связано с тем, что форма куполообразных островков (отношение высоты к латеральному размеру), которая во многом определяет степень релаксации упругих напряжений в них, не зависит от температуры осаждения Ge. При высокотемпературном ($T_g > 500^\circ\text{C}$) зарощивании островков происходит уменьшение высоты островков [7] и увеличение доли Si в них [4]. По данным рентгенодифракционного анализа обратного пространства в окрестности (004) и (404) отражений от Si подложки среднее содержание Ge в островках в многослойных структурах уменьшается с $x = 48 \pm 5\%$ до $x = 36 \pm 5\%$ при увеличении температуры роста с $T_g = 600$ до 700°C . Полученные значения доли Ge в зарощенных островках в многослойных структурах значительно меньше доли Ge в незарощенных островках. Величина остаточных упругих напряжений островков, независимо от температуры роста, составляет $\text{RES} = 80 \pm 20\%$. Увеличение RES в островках при зарощивании вызвано тем, что при росте покровного слоя Si исчезает свободная поверхность островка, на которой происходила релаксация значительной части упругих напряжений в незарощенных структурах.

Изменение состава островков с ростом температуры осаждения Ge проявляются в спектрах ФЛ (рис.1).

На спектрах ФЛ структур с nanoостровками, измеренных при 77 К с помощью Ge приемника (рис.1а), кроме линии ФЛ в области 1.1 эВ, связанной с излуча-

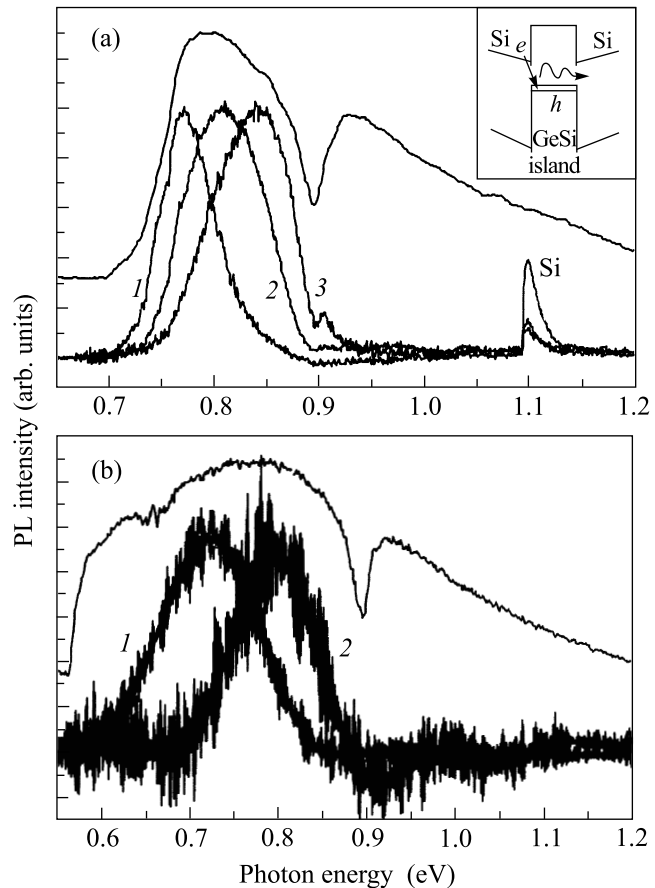


Рис.1. Спектры ФЛ структур, выращенных при 600°C (кривая 1), 700°C (кривая 2) и 750°C (кривая 3), зарегистрированные при 77 К с помощью Ge (а) и InSb (б) приемников. Верхние кривые на снимках соответствуют спектральным характеристикам приемников. Провал в области 0.9 эВ связан с поглощением в кварцевом окне фурье-спектрометра. Все спектры нормированы на максимум сигнала ФЛ от островков. На вставке схематически изображена модель непрямого оптического перехода в GeSi островках (см. текст)

тельной рекомбинацией свободного экситона в Si, наблюдается широкая полоса ФЛ в области $0.7 \div 0.9$ эВ. Появление данной полосы ФЛ связано с непрямым в реальном пространстве оптическим переходом между дырками, локализованными в островках, и электронами, находящимися в Si на гетерогранице II рода с островком [2]. Схематически данный не прямой оптический переход изображен на вставке рис.1а, на которой показано положение 2Δ долин зоны проводимости и уровня тяжелых дырок в окрестности GeSi

островка. Из спектров ФЛ (рис.1а) видно, что при понижении температуры роста максимум пика ФЛ от островков смещается в область меньших энергий. Данное смещение пика ФЛ от островков вызвано увеличением доли Ge в островках при понижении температуры роста [4, 5]. С ростом доли Ge в островках происходит увеличение разрыва валентных зон на гетерогранице кремний – островок и, как следствие, уменьшение энергии непрямого оптического перехода в островках (см. вставку на рис.1а).

Из спектров ФЛ, снятых с помощью Ge детектора (рис.1а), видно, что низкоэнергетический край сигнала ФЛ от островков, выращенных при $T_g = 600^\circ\text{C}$, определяется границей спектральной характеристики данного детектора. Спектры ФЛ структур, измеренные при 77 К с помощью InSb приемника (рис.1б), показали, что значительная часть сигнала ФЛ от островков, выращенных при $T_g = 600^\circ\text{C}$, расположена в области энергий, значительно меньших ширины запрещенной зоны объемного Ge ($E = 0.735\text{ эВ}$ при 77 К). Наличие сигнала ФЛ от островков в области энергий, меньших ширины запрещенной зоны объемного Ge, может служить подтверждением модели [2], связывающей пик ФЛ от островков с непрямым в реальном пространстве оптическим переходом. Необходимо отметить, что максимальная чувствительность InSb приемника более чем на два порядка уступает чувствительности Ge детектора.

Сравнительный анализ спектров ФЛ одно- и многослойных структур с островками, выращенных при $T_g = 600$ и 700°C , показал (рис.2), что, кроме значительного усиления сигнала ФЛ от островков, в многослойных структурах происходит смещение пика ФЛ от островков на $15 \div 25\text{ мэВ}$ в сторону более высоких энергий. Данное смещение пика ФЛ от островков связывается с уменьшением среднего содержания Ge в островках за счет диффузии Si из барьерных слоев в островки при более продолжительном, по сравнению с однослойными, росте многослойных структур. В работе [8] при исследовании многослойных структур с GeSi/Si(001) островками методами электронной микроскопии была показано, что содержание Ge в островках уменьшается с увеличением глубины залегания слоя островков. Это связано с большим временем, в течение которого происходит взаимодиффузия атомов в нижних слоях многослойных структур по сравнению с верхними слоями. Можно предположить, что состав островков в однослойных структурах соответствует составу островков в верхних слоях многослойных структур, поскольку условия роста (температура и время роста покровного слоя Si) для них одинаковы. Содержание Ge в островках верхних

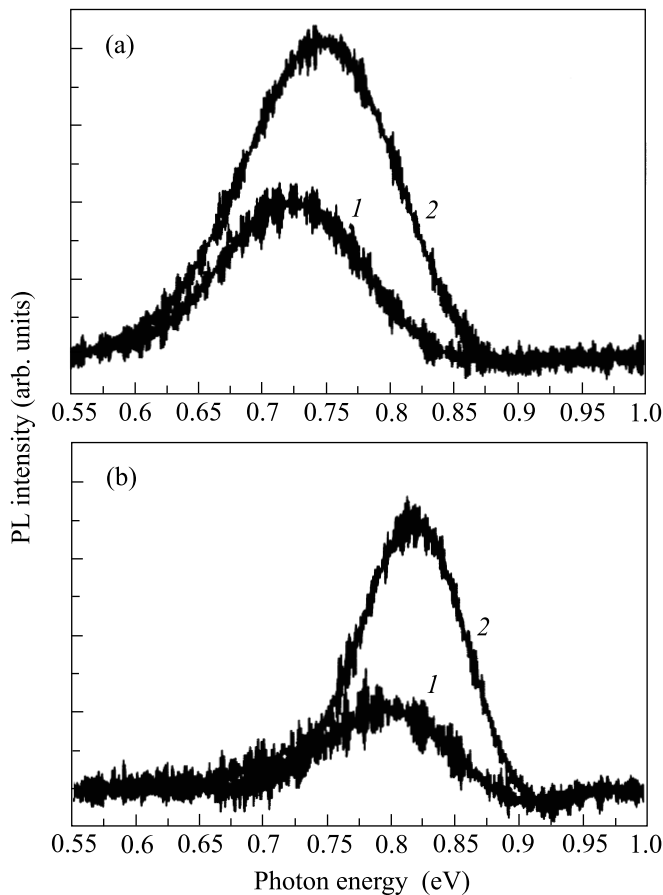


Рис.2. Спектры ФЛ одно- (кривые 1) и многослойных (кривые 2) структур с наноструктурами, выращенных при 600°C (а) и 700°C (б). Спектры зарегистрированы при 77 К с помощью InSb приемника

слоев многослойных структур выше усредненного по всем слоям [8], поэтому доля Ge в островках в однослойных структурах выше, чем в многослойных. Уменьшение среднего содержания Ge в островках в многослойных структурах по сравнению с однослойными и приводит к обнаруженному смещению пика ФЛ от островков в область больших энергий. Зависимостью состава островков от глубины их залегания вызвано также уширение пика ФЛ от островков в многослойных структурах (рис.2). Ширина линии ФЛ от островков в многослойных структурах увеличивается, несмотря на уменьшение разброса островков по размерам и их пространственную упорядоченность, наблюдаемые в многослойных структурах [9]. Очевидно, что ширина пика ФЛ от островков в исследуемых структурах определяется не разбросом островков по размерам, а разницей в составе островков, расположенных в различных слоях.

Как было отмечено выше, в многослойных структурах с островками удалось определить среднее со-

держание Ge в островках и степень релаксации упругих напряжений в них. Согласно результатам рентгенодифракционного анализа, среднее содержание Ge в островках уменьшается с $x = 48 \pm 5\%$ до $x = 36 \pm 5\%$ при увеличении температуры роста с $T_g = 600$ до 700°C . Зная состав и упругие напряжения островков, можно оценить положение энергетических зон в окрестности островков. При расчетах слой островков рассматривался как однородно напряженный слой, толщина и состав которого соответствовала высоте и составу островков. Данная аппроксимация возможна, так как по данным АСМ снимков в исследованных структурах минимальный размер куполообразных островков в плоскости роста был > 50 нм и в 5 раз превосходил их высоту. В расчетах учитывалось изменение положения энергетических зон Si вблизи островка, связанное с распространением полей упругих напряжений от островков в Si слой (см. вставку на рис.1а). Согласно выполненным расчетам, энергия прямого в реальном пространстве оптического перехода, связанного с рекомбинацией электронов и дырок, локализованных в островках, должна составлять $E = 0.83 \pm 0.05$ эВ для $T_g = 600^\circ\text{C}$ и $E = 0.89 \pm 0.04$ эВ для $T_g = 700^\circ\text{C}$. Полученные значения энергии больше энергий, при которых наблюдается сигнал фотolumинесценции от островков. В то же время, вычисленные значения энергии непрямого в реальном пространстве оптического перехода между дырками, локализованными в островках, и электронами, находящимися в Si, (см. вставку на рис.1а) составляют $E = 0.76 \pm 0.05$ эВ для $T_g = 600^\circ\text{C}$ и $E = 0.86 \pm 0.04$ эВ для $T_g = 700^\circ\text{C}$. Данные значения энергии хорошо согласуются с положением пиков ФЛ от островков в многослойных структурах (рис.2), что служит подтверждением модели [2], связывающей сигнал ФЛ от островков с непрямой в реальном пространстве оптической рекомбинацией носителей заряда.

Расчеты зонной диаграммы структур с островками показали, что величина разрыва валентных зон на гетерогранице Si – островок в зависимости от температуры роста составляет от 250 мэВ (для $T_g = 700^\circ\text{C}$) до 350 мэВ (для $T_g = 600^\circ\text{C}$). Данные значения энергии более чем на порядок превосходят тепловую энергию, которой обладают носители заряда при комнатной температуре (25 мэВ). Благодаря этому, значительная часть дырок остается локализованной в островках даже при комнатной температуре. В исследованных структурах сигнал ФЛ от островков наблюдался вплоть до комнатной температуры (рис.3). Для многослойной структуры, выращенной при $T_g = 600^\circ\text{C}$, значительная часть сигнала ФЛ от ост-

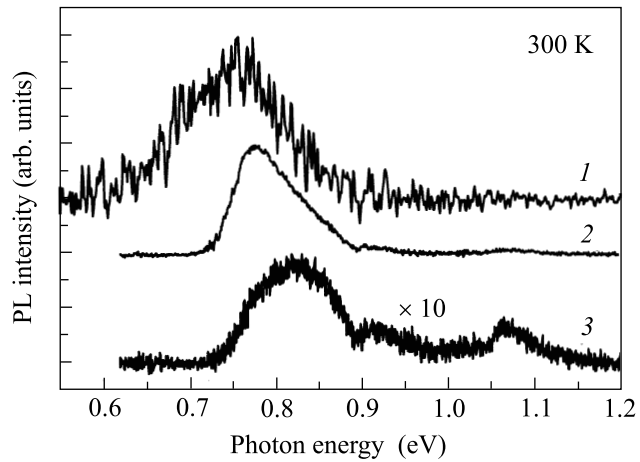


Рис.3. Спектры ФЛ многослойных структур с наноструктурами, выращенных при 600°C (кривая 1 и 2) и 700°C (кривая 3), измеренные при комнатной температуре с помощью InSb (кривая 1) и Ge (кривые 2 и 3) детекторов. Спектры записаны при мощности оптической накачки 50 Вт/см^2

ровков располагается в области энергий, меньших ширины запрещенной зоны объемного Ge (кривая 1 на рис.3). Интенсивность сигнала ФЛ от островков, сформированных при $T_g = 600^\circ\text{C}$, примерно на порядок больше интенсивности сигнала ФЛ от островков, выращенных при $T_g = 700^\circ\text{C}$ (рис.3). Более высокая интенсивность сигнала ФЛ от островков, выращенных при $T_g = 600^\circ\text{C}$, связана с лучшей локализацией дырок в островках, выращенных при более низкой температуре и, следовательно, имеющих меньшие размеры, большее содержание Ge и больший разрыв валентных зон на гетерогранице с Si. Снижение содержания Ge в островках при повышении температуры роста приводит также к уменьшению потенциальной ямы для электронов, находящейся в Si на гетерогранице с островком (см. вставку на рис.1а). Потенциальная яма для электронов вызвана проникновением упругих напряжений от островков в Si слой, а ее глубина увеличивается с ростом рассогласования кристаллических решеток Si и островка. Так как по данным рентгеновской дифракции величина остаточных упругих напряжений островков не зависит от температуры роста, рассогласование кристаллических решеток между Si и островком будет больше для островков, имеющих большее содержание Ge. Следовательно, потенциальная яма для электронов также будет больше вблизи островков, имеющих большую долю Ge.

Сравнение спектров ФЛ структур с островками, записанных при 77 и 300 К (рис.1 и рис.3), показывает, что положение линии ФЛ от островков имеет бо-

лее слабую зависимость от температуры измерения, чем положение линии ФЛ, связанной с оптической рекомбинацией свободного экситона в Si. Это связано с тем, что уменьшение ширины запрещенной зоны при увеличении температуры измерения компенсируется увеличением заселенности дырками возбужденных уровней в островках. Оптическая рекомбинация дырок с этих уровней, имеющая большую энергию, приводит к слабой температурной зависимости положения сигнала ФЛ, связанного с островками.

В работе выполнены исследования спектров ФЛ GeSi одно- и многослойных структур с наноструктурами в зависимости от температуры роста. Показано, что с понижением температуры роста пик ФЛ от островков смещается в область меньших энергий. Данное смещение вызвано подавлением диффузии Si в островки и увеличением доли Ge в них при понижении температуры роста. Для структур с наноструктурами, выращенных при 600 °С, обнаружен сигнал ФЛ от островков при энергиях, меньших ширины запрещенной зоны объемного Ge. Сдвиг в область больших энергий пика ФЛ от островков в многослойных структурах по сравнению с однослойными связывается с уменьшением среднего содержания Ge в островках при более продолжительном росте многослойных структур. С учетом реального состава и упругих напряжений зародившихся островков положение пика ФЛ от островков хорошо описывается моделью непрямого в реальном пространстве оптического перехода между дырками, локализованными в островках, и электронами, находящимися в Si на гетеро-

границе II рода с островком. Получены структуры с GeSi/Si(001) самоорганизующимися наноструктурами, имеющие сигнал ФЛ в области 1.3 ÷ 2 мкм вплоть до комнатной температуры, что открывает возможность создания светоизлучающих диодных структур на основе кремневой технологии в практически интересной области длин волн ~ 1.55 мкм.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты # 00-02-16141 и # 02-02-16792), Программы поддержки ведущих научных школ РФ (проект # 00-15-966118) и программ Минпромнауки РФ.

1. H. Sunamura, N. Usami, Y. Shiraki, and S. Fukatsu, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 3024 (1995).
2. В. Я. Алешкин, Н. А. Бекин, Н. Г. Калугин и др., *Письма в ЖЭТФ* **67**, 46 (1998).
3. K. Eberl, M. O. Lipinski, Y. M. Manz et. al., *Physica E* **9**, 164 (2001).
4. A. V. Novikov, B. A. Andreev, N. V. Vostokov et al., *Materials Science and Engineering B* **89**, 62 (2002).
5. М. Я. Валах, Н. В. Востоков, С. А. Гусев и др., *Известия Академии наук: Серия физическая* **66**(2), 160 (2002).
6. S. A. Chaparro, J. Drucker, Y. Zhang et. al., *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1199 (1999).
7. P. Sutter, E. Mateeva, J. S. Sullivan, and M. G. Lagally, *Thin Solid Films* **336**, 262 (1998).
8. X. Z. Liao, J. Zou, D. J. H. Cockayne et. al., *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1258 (2001).
9. J. Tersoff, C. Teichert, and M. C. Lagally, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1675 (1996).