

**Электролюминесценция р-п структур с квантовыми точками InAs/GaAs, выращенных методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений**

**Н.В.Байдусь<sup>1</sup>, А.А.Бирюков, Б.Н.Звонков, А.В.Здоровейшев, П.Б.Моисеева, С.М.Некоркин, Е.А.Ускова**

*Научно-исследовательский физико-технический институт Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского  
проспект Гагарина 23, корп.3, Нижний Новгород 603950, Россия*

Приведены результаты исследований фото- и электролюминесценции р-п гетероструктур с квантовыми точками InAs/GaAs, и описана технология их получения методом МОС-гидридной эпитаксии. Для легирования слоя р-GaAs и улучшения морфологии гетерограницы с КТ применялась обработка поверхности роста в тетрахлориде углерода, вводимого в реактор в процессе роста. Изготовлены образцы светоизлучающих на длине волны 1,3 мкм диодов.

**1. Введение**

Гетероструктуры (ГС) с самоорганизованными квантовыми точками InAs/GaAs вызывают повышенный интерес благодаря перспективам применения в оптоэлектронике, в частности, для создания высокоэффективных инжекционных лазеров и светоизлучающих диодов, работающих в диапазоне длин волн 1,3–1,5 мкм. При получении таких ГС методом МОС-гидридной газофазной эпитаксии (МОСГЭ) возникают трудности, связанные, например, с изменением параметров КТ при последующем наращивании высокотемпературных эмиттерных слоев, что проявляется в коротковолновом сдвиге энергии основного перехода слоя КТ вследствие диффузионного перемешивания атомов In и матрицы [1,2]. Другим нежелательным фактором, сопровождающим рост псевдоморфных КТ, является образование дислоцированных кластеров, увеличивающих скорость безизлучательной рекомбинации и снижающих эффективность фотолюминесценции (ФЛ). Необходимо подобрать также оптимальный режим эпитаксиального роста р-п активной области, способной излучать в указанном диапазоне длин волн.

В [3] нами приведены некоторые данные об электролюминесценции (ЭЛ) р<sup>+</sup>-n<sup>+</sup> ГС со встроенными в р-область одним или двумя слоями нелегированных КТ InAs/GaAs, полученных методом МОСГЭ. Область р<sup>+</sup>-GaAs получалась путем легирования цинком в процессе роста. В данной работе сообщается о люминесцентных характеристиках ГС с легированными КТ, в технологии изготовления которых применялся четыреххлористый углерод CCl<sub>4</sub>. В МОСГЭ CCl<sub>4</sub> обычно используется как источник акцепторной примеси углерода при получении р-GaAs [4]. Однако

<sup>1</sup> Тел.: +7-8312-65-69-67; E-mail: Baidus@phys.unn.ru

экспонирование потоком  $\text{CCl}_4$  можно применять не только для легирования растущих слоев. Так, при эпитаксии слоев, содержащих индия,  $\text{CCl}_4$  взаимодействует с поверхностью роста с образованием летучих соединений In и C, вызывая тем самым уменьшение коэффициентов вхождения как индия, так и акцепторного углерода. При формировании квантовой ямы InGaAs в матрице GaAs такое взаимодействие вызывает изменение формы профиля ее потенциала [5]. В настоящей работе исследовалась возможность использования воздействия  $\text{CCl}_4$  на слои самоорганизующихся КТ InAs с целью легирования углеродом, а также модификации их параметров для получения ГС, пригодных для формирования светоизлучающих диодов (СИД) на длину волны 1,3 мкм.

## **2. Методика эксперимента**

Эпитаксиальные ГС выращивались методом МОСГЭ в горизонтальном реакторе при атмосферном давлении на подложках полуизолирующего или  $\text{p}^+$ -GaAs (100). В качестве источников использовались триметилгаллий (ТМГ), триметилиндий (ТМИ) и арсин. Квантовые точки InAs формировались на буферном слое n-GaAs путем поочередной подачи в реактор ТМГ и арсина с прерыванием роста. Такой режим позволяет выращивать крупные КТ, но при этом часто образуется большое количество дефектов в виде кластеров [6]. Количество вводимого ТМИ составляло 0,5–1,0 мкмоль, что соответствовало номинальному покрытию 4–8 монослоев InAs. Количество вводимого  $\text{CCl}_4$  составляло 0,03–0,3 мкмоль, т.е. в несколько раз меньше количества ТМИ. Структуры с КТ, выращенные без участия  $\text{CCl}_4$ , являлись контрольными.

Исследовались спектральные характеристики ФЛ и ЭЛ, на атомно-силовом микроскопе изучалась морфология поверхности, холловским методом определялась концентрация носителей тока. Все измерения проводились при 300<sup>0</sup> и 77<sup>0</sup>К. Для измерения ЭЛ на обе стороны структур наносились омические контакты, затем выкалывались чипы размером 500×500 мкм<sup>2</sup>, которые спаивались на медный теплоотвод. Спектры ЭЛ снимались на постоянном токе в прямом смещении при выходе излучения через сколотую грань.

## **3. Влияние $\text{CCl}_4$ на рост и термостабильность КТ**

В первой серии опытов изучалось влияние температуры роста  $T_p$  на спектры ФЛ и электрические характеристики ГС. Четыреххлористый углерод вводился в реактор во время формирования КТ; количество ТМИ имело минимальное из указанного выше значений. При  $T_p = 520^{\circ}\text{C}$ , температуре, оптимальной для роста нелегированных КТ [7], форма спектра ФЛ (рис.1, кр.1) аналогична спектру ФЛ контрольных образцов. Введение  $\text{CCl}_4$  проявлялось в образовании акцепторного дельта-слоя, концентрация дырок в котором изменялась от  $1 \cdot 10^{12}$  до  $7 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$  приблизительно пропорционально количеству введенного  $\text{CCl}_4$ .

Повышение  $T_p$  существенно уменьшало концентрацию акцепторов, и уже при  $T_p = 550^{\circ}\text{C}$  концентрация дырок была меньше  $10^{11} \text{ см}^{-2}$ . Положение максимума ФЛ при увеличении  $T_p$  сдвигалось, как и в контрольных ГС, в коротковолновую область

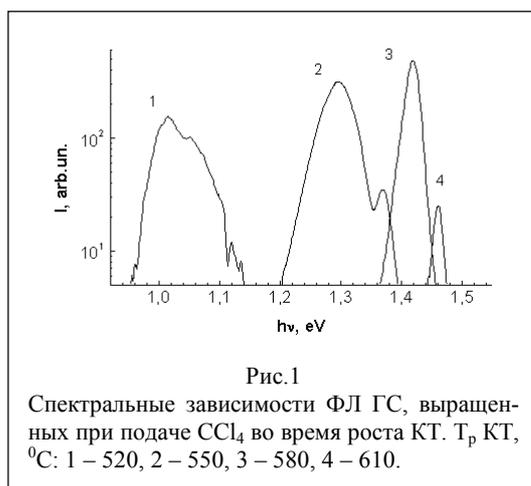


Рис.1

Спектральные зависимости ФЛ ГС, выращенных при подаче  $\text{CCl}_4$  во время роста КТ.  $T_p$  КТ,  $^\circ\text{C}$ : 1 – 520, 2 – 550, 3 – 580, 4 – 610.

(рис.1, кр.2–4), однако на значительно большую величину ( $\approx 80$  и  $\approx 450$  мэВ, соответственно). Очевидно, что при  $T_p$  более  $550^\circ\text{C}$   $\text{CCl}_4$  эффективно удаляет In с поверхности роста, при этом в первую очередь исчезают КТ, а затем утончается смачивающий слой.

Образец, выращенный при  $610^\circ\text{C}$ , имеет (в соответствии со значением энергии максимума ФЛ) всего один монослой InAs. Узкий  $\sim 15$  мэВ пик этой структуры (рис.1, кр.4) указывает на гладкость гетерограниц. Таким образом, с повышением темпе-

ратуры роста уменьшается роль  $\text{CCl}_4$  как источника акцепторной примеси, и возрастает доля, участвующая в реакции травления InAs.

Обнаруженное температурное различие воздействия  $\text{CCl}_4$  на поверхность роста InAs было использовано в следующей серии опытов с целью улучшения морфологии и повышения резкости гетерограницы КТ и GaAs, в том числе при создании p-n перехода. Квантовые точки InAs росли при введении в реактор большого количества ТМИ и номинальном покрытии около 8 монослоев при температуре  $520\text{--}530^\circ\text{C}$ . В этих условиях формируются, как правило, КТ крупного размера, имеющие максимум ФЛ в более длинноволновом диапазоне (вблизи 1,3 мкм), чем на рис.1. Однако после нанесения такого количества In на поверхности наряду с КТ наблюдается большое количество кластеров (рис.2а), увеличивающих, как отмечалось выше, вклад безизлучательной рекомбинации. При зарастивании InAs слоем арсенида галлия, толщиной  $\sim 5$  нм, квантовые точки оказываются покрытыми GaAs, но кластеры по-прежнему выступают над поверхностью (рис.2б). Если затем в реактор ввести  $\text{CCl}_4$ , и одновременно повысить до  $580^\circ\text{C}$  температуру роста, то происходит полное удаление кластеров с поверхности, а на месте наиболее крупных кластеров появляются кратеры (рис.2в). Интенсивность ФЛ этих ГС оказывается примерно на порядок большей, чем у контрольных образцов.

При продолжении зарастивания такого вида КТ слоем  $\sim 20$  нм GaAs получается поверхность, показанная на рис.2г. Неровности поверхности не превышают 10 монослоев, что является типичной величиной при росте GaAs.

Выращенные таким способом ГС с покрывным слоем GaAs (20 нм и более) оказались более устойчивыми по сравнению с контрольными к постростовой термооб-

работке. Она проводилась в атмосфере водорода в течение 30 минут в интервале 430–650<sup>0</sup>С – диапазоне температур, применяющихся обычно в процессе изготовления СИД. Структуры с КТ, подвергнутые воздействию  $CCl_4$ , имели коротковолновый сдвиг энергии максимума интенсивности ФЛ только после термообработки при 650<sup>0</sup>С, и он был примерно в 3 раза меньше, чем у контрольных ГС (20 – 30 и ~80 мэВ, соответственно). Интенсивность ФЛ структур, особенно имеющих тонкий покровный слой, увеличивалась при этом от 2 до 5 раз, в то время как контрольные образцы обычно показывали после термообработки относительное гашение ФЛ.

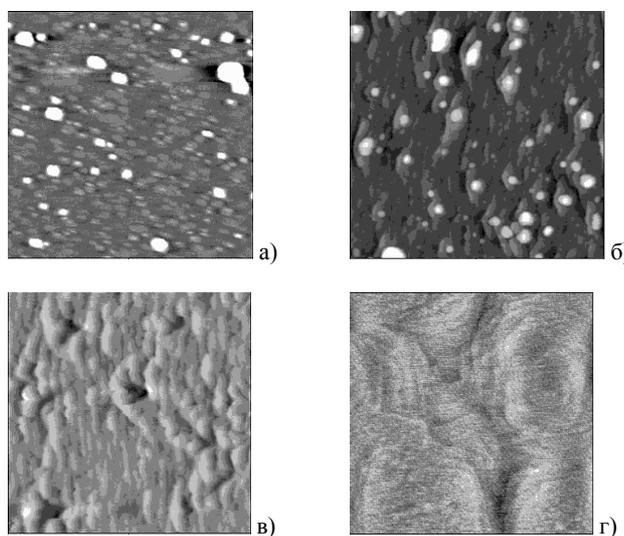


Рис.2

Морфология поверхности гетероструктур с КТ InAs/GaAs.  
Размер кадра 2,5×2,5 мкм<sup>2</sup>.

#### 4. Светозлучающие диоды с КТ

С учетом полученных результатов был выращен ряд ГС со встроенным анизотипным гетеропереходом для последующего формирования на них СИД. Квантовые точки размещали или в середине области нелегированного GaAs, толщиной 0,3мкм, или в центре резкого  $p^+-n^+$ -перехода. Перед наращиванием верхнего контактного  $p^+$ -GaAs, который, в отличие от [3], легировали углеродом, применялась процедура травливания кластеров InAs с помощью  $CCl_4$ .

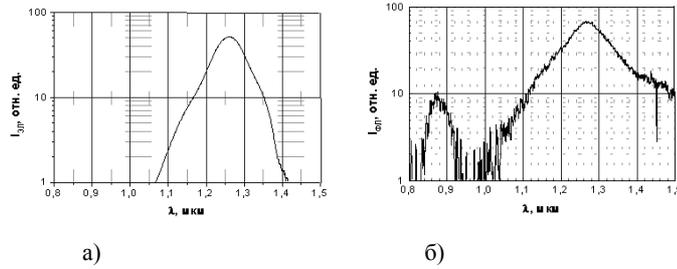


Рис.3

Спектры ЭЛ (а) и ФЛ (б) образца с КТ, помещенными в середине нелегированной области. Температура измерения  $300^0\text{K}$ .

Вольт-амперные характеристики p-n-переходов имели хорошее выпрямление с коэффициентом идеальности 1,5 – 1,7. Спектральные характеристики ЭЛ (рис.3а) и ФЛ (рис.3б) диодов, где между КТ и  $p^+$ -слоем GaAs имеется нелегированная прослойка, практически совпадали и представляли собой один основной максимум, связанный с КТ, и небольшие плечи. Максимум от контактного слоя  $p^+$  наблюдался только в ФЛ, когда излучение собиралось с поверхности структуры. Это свидетельствует о высокой эффективности захвата инжектированных носителей в КТ.

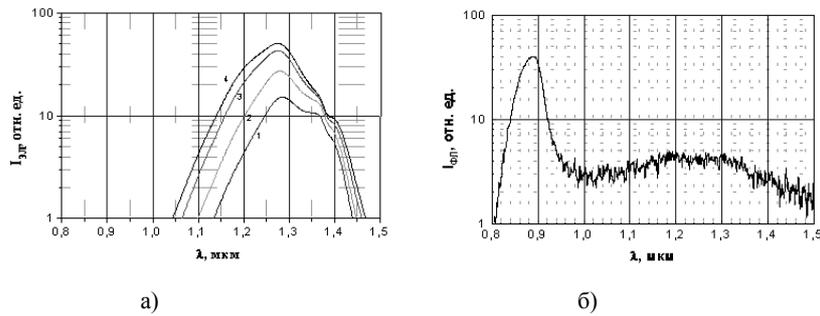


Рис.4

а) Спектры ЭЛ ( $300\text{K}$ ) образца с КТ в области резкого  $p^+-n^+$ -перехода. Ток накачки, А: 1 – 0,2; 2 – 0,6; 3 – 1,0; 4 – 1,5. б) Спектр ФЛ ( $300^0\text{K}$ ).

Когда КТ локализовались в области резкого  $p^+-n^+$ -перехода, спектр ФЛ, в основном, определялся рекомбинацией в  $p^+-\text{GaAs}$  (рис.4б), что обусловлено, по-видимому, недостаточно хорошим захватом фотогенерированных носителей квантовыми точками, расположенными в области сильного поля перехода. Однако при измерении ЭЛ, как и в первом случае, излучение связано исключительно с КТ (рис.4а). Спектр ЭЛ этого образца сдвинут в сторону длинных волн по сравнению с первым, и состоит из пиков, соответствующих основному и возбужденному состоя-

ниям КТ. Небольшой провал в длинноволновой области спектра обусловлен линией поглощения воды. Общая ширина линии при малом токе (кр.1) на полувысоте равна  $\approx 110$  мэВ. Спектры на рис.4а приведены для различных значений тока накачки. Видно, что с увеличением тока интенсивность ЭЛ возрастает в несколько раз, и при его значениях  $\geq 1$  А появляется третий пик, соответствующий, по-видимому, заполнению второго возбужденного уровня КТ.

Отметим, что гетероструктуры, подвергнутые обработке  $\text{CCl}_4$ , начинают излучать при гораздо меньших токах накачки по сравнению с ГС, в которых контактный слой  $\text{p}^+$ -GaAs легирован цинком [3]. Это может быть обусловлено, по-видимому, тем, что улучшение морфологии границы InAs/GaAs повышает совершенство р-п-гетероперехода.

### 5. Заключение

Таким образом, в результате проведенных экспериментов разработан технологический режим МОС – гидридной эпитаксии гетероструктур с термостабильными легированными углеродом КТ InAs/GaAs, включающий обработку поверхности роста потоком  $\text{CCl}_4$ . Показано, что в зависимости от конкретных условий взаимодействие  $\text{CCl}_4$  с поверхностью, содержащей атомы индия (InAs), протекает различным образом, и это можно использовать для управления параметрами КТ InAs, улучшения планарности границы раздела с покровным слоем GaAs, повышения эффективности фото- и электролюминесценции ГС.

Экспонирование поверхности роста  $\text{CCl}_4$  и формирование КТ InAs в непосредственной близости от  $\text{p}^+$ -слоя GaAs, легированного углеродом, позволяет получать р-п-гетероструктуры, излучающие на длине волны 1,3 мкм.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант № 01-02-16441) и Отделения Науки НАТО (программа “Наука для Мира”, грант SfP-973799 “Semiconductors”).

### Литература

- [1] Чжао Чжень, Бедарев Д.А., Воловик Б.В., Леденцов Н.Н., Лунев А.В., Максимов М.В, Цацульников А.Ф., Егоров А.Ю., Жуков А.Е., Ковш А.Р., Устинов В.М., Копьев П.С. Исследование влияния состава и условий отжига на оптические свойства квантовых точек (In,Ga)As в матрице (Al,Ga)As //ФТП. 1999. Т.33. С.91.
- [2] Leon R., Fafard S., Piva P.G, Ruvimov S., Liliental-Weder Z. Tunable intersublevel transitions in self-forming semiconductor quantum dots //Phys.Rev.B. 1998. V.58. P.4262.
- [3] Звонков Н.Б., Звонков Б.Н., Байдусь Н.В., Карпович И.А. Электролюминесценция гетероструктур с самоорганизованными квантовыми точками GaAs/InGaAs, полученных методом МОС-гидридной эпитаксии //Вестник Нижегородского университета, сер “Физика твердого тела”. 2000. Вып. 1(3). С.202.
- [4] Батукова Л.М., Бабушкина Т.С., Дроздов Ю.Н., Звонков Б.Н., Малкина И.Г., Янькова Т.Н. Свойства  $\delta$ -легированных углеродом слоев GaAs, полученных МОС-гидридной эпитаксией //Неорганические материалы. 1993. Т.29,№3. С.309.

- [5] Бирюков А.А., Звонков Б.Н., Ускова Е.А., Алешкин В.Я., Шагин В.Н. Особенности использования четыреххлористого углерода в качестве источника акцепторной примеси для легирования квантовых ям InGaAs //Матер. Совец. “Нанофотоника”. –Н. Новгород: ИФМ РАН, 2001, с.98.
- [6] Patella P., Fanfoni M., Arciprete F., Nuffris S., Placidi E., Balzarotti A. Kinetic aspects of the morphology of self-assembled InAs quantum dots on GaAs(001) //Appl. Phys. Lett. 2001. V.78. P.320.
- [7] Zvonkov B.N., Karpovich I.A., Baidus N.V., Filatov D.O., Morozov S.V., Gushina Yu.Yu. Surfactant effect of bismuth in the MOVPE growth of the InAs quantum dots on GaAs //Nanotechnology. 2000. V.11. P.221.

### **Electroluminescence of p-n InAs/GaAs quantum dots heterostructures grown by MOVPE<sup>1)</sup>**

**N.V.Baidus<sup>1)</sup>, A.A.Birukov, B.N.Zvonkov, A.V.Zdoroveishev, S.M.Nekorkin, P.B.Mokeeva, and E.A.Uskova**

*Physical-Technical Research Institute of NNSU, Nizhni Novgorod, 603950, Russia*

Photo- and electroluminescence properties of InAs/GaAs quantum dots p-n heterostructures were investigated. The influence of CCl<sub>4</sub> introducing in process of formation InAs/GaAs quantum dots (QD) by metalorganic vapor phase epitaxy (MOVPE) at atmospheric pressure was investigated. It was shown that the reaction between CCl<sub>4</sub> and growing InAs layer is strong depending on growth temperature. At low temperatures (below 550<sup>0</sup>C) carbon embeds to crystal lattice as an acceptor impurity. At higher temperatures the main phenomenon is formation of volatile indium compounds followed by the evaporation of ones. Such a behavior of tetrachloride carbon can be used for tuning of QD parameters and surface smoothing of GaAs cap layer. The strong influence of QD thermal stability on the cap layer thickness, and technology fabrication parameters were found. The QDs after doping by carbon from tetrachloride carbon have the most thermal stability. Those properties of QDs permit us to fabricate light emitting at 1,3 μm wavelength diodes.

---

<sup>1)</sup> Proc. NATO Project SfP-973799 Semiconductors 2nd Workshop. Nizhni Novgorod, 2002

<sup>1)</sup> Phone: +7-8312-65-69-67; E-mail: Baidus@phys.unn.ru