

КВАНТОВО-РАЗМЕРНЫЕ ОСТРОВКОВЫЕ ПЛЕНКИ НА ОСНОВЕ ДИСЕЛЕНИДА ОЛОВА

© 2012 г. А. Р. Кушхов, Д. С. Гаев*, О. И. Рабинович, А. Г. Столяров*

Национальный исследовательский технологический университет

“Московский институт стали и сплавов”

E-mail: askerk@misis.ru; olegr@misis.ru

**Кабардино-Балкарский государственный университет, Нальчик*

E-mail: dahir@mail.ru

Поступила в редакцию 17.11. 2010 г.

Инконгруэнтным испарением пленочных структур состава $\text{Sn}_{1-x}\text{Se}_x$ получены островковые пленки на основе промежуточных фаз, образующихся в системах Ge–Se и Sn–Se. Методом атомно-силовой микроскопии исследована морфология поверхности полученных структур. Установлено влияние условий процесса выращивания на характер распределения островков по размерам.

ВВЕДЕНИЕ

Полупроводниковые соединения с самоорганизованными квантово-размерными точками (КТ) весьма перспективны для создания эффективных светоизлучающих диодов, лазеров, лавинных фотоприемников, работающих в ИК и видимой областях спектра [1–3]. Для получения структур с самоорганизованными КТ используются молекулярно-лучевая эпитаксия (МВЕ) [1]; газофазная (МОСVD) [1, 4] и атомно-слоевая (ALE) [5] эпитаксия, в том числе и газофазная эпитаксия с фотостимуляцией (РАVPE) [6, 7]. Несмотря на то что этими методами получают высококачественные структуры, их технологическая реализация и эксплуатация требует существенных экономических затрат, с одной стороны, а с другой – каждый из них имеет свои физико-химические особенности, ограничивающие их широкое применение в решении задач формирования квантово-размерных структур с заданным набором свойств. В частности, для метода МВЕ появляются ограничения при получении массивов КТ на основе промежуточных фаз, образующихся в системах, которые характеризуются высокой упругостью паров и инконгруэнтным испарением. Этим характеризуются системы $A^{II}B^{VI}$, $A^{IV}B^{VI}$ и $A^{III}B^V$, в которых образуется целый ряд полупроводниковых соединений, обладающих уникальным набором свойств и имеющих прикладной характер. В связи с этим поиск новых подходов в решении задач направленного формирования квантово-размерных структур, учитывающих особенности фазовых равновесий в системах с легколетучим компонентом, представляет важный практический интерес.

Целью настоящей работы явилось установление условий роста и методов исследования

свойств островковых пленок на основе диселенида олова, имеющего перспективу практического использования в квантовой и оптической электронике.

ОБЪЕКТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Островковые пленки получали методом инконгруэнтного испарения пленок заданного состава и толщины. Методика получения образцов подробно изложена в [8]. Исходные пленочные структуры получали следующим образом. На окисленные подложки кремния марки КДБ-10 (111) осаждали пленки толщиной 0.5 мкм состава $A_{1-x}\text{Se}_x$, где A – Ge или Se ($x = 0.9$ а. долей). Осаждение пленок проводили методом взрывного испарения малых навесок соответствующего сплава. Исходные структуры помещались в испарительную ячейку с индивидуальным разогревом, которая размещалась в вакуумной камере. Испарения пленочных структур проводились при температуре, отвечающей температуре ликвидуса сплава, и давлении аргона в вакуумной камере 30 кПа и 100 Па.

ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Структурные исследования выращенных островковых структур проводились методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) на приборе Solver Pro ЕС. Сканирование поверхностей островковых пленок проводилось на воздухе при нормальных условиях в полуконтактном режиме. Обработка АСМ-изображений с целью выявления особенностей в распределении островков по ха-

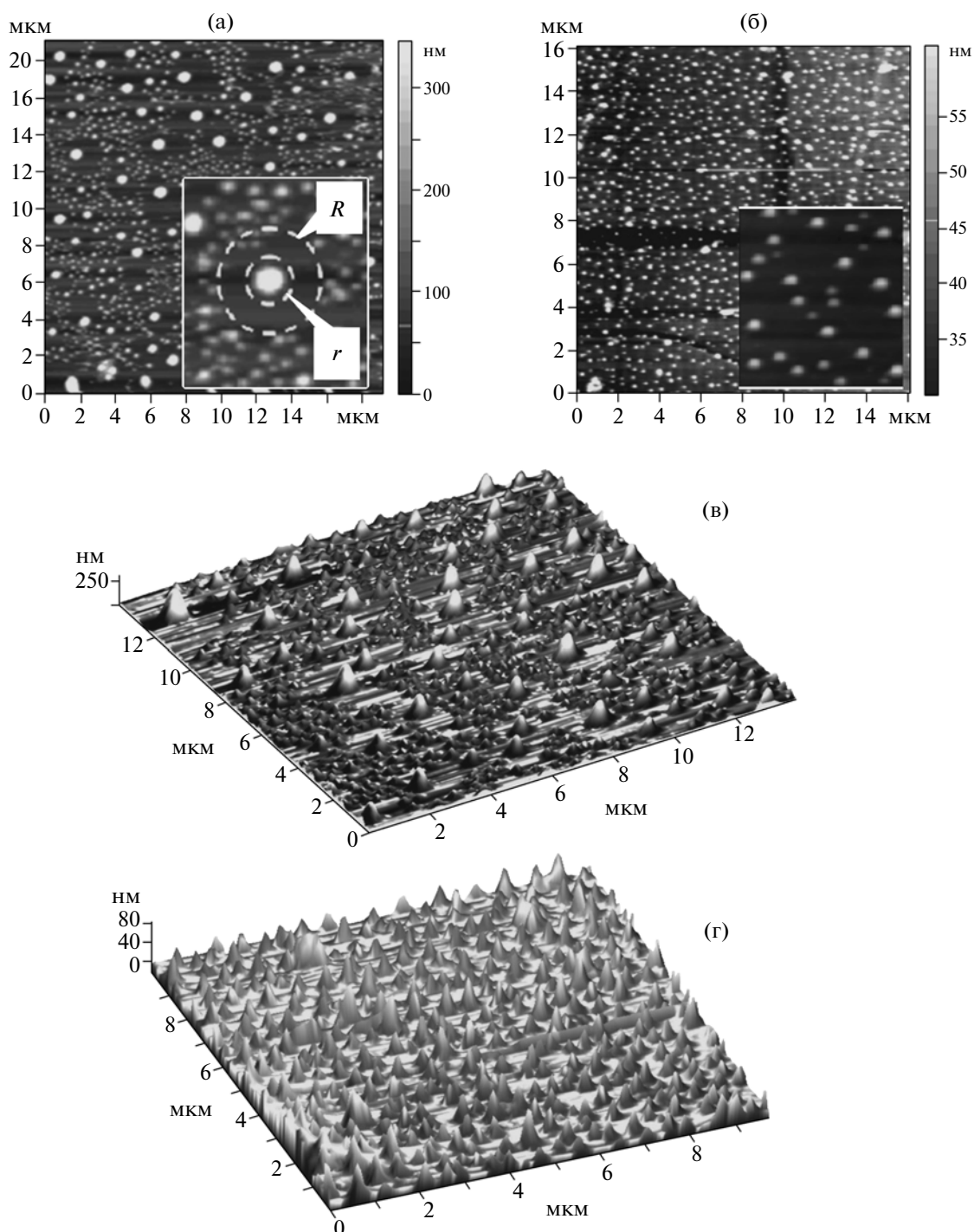


Рис. 1. АСМ-изображения окисленной поверхности кремния с выращенными на ней островками диселенида олова: а, б – топография поверхности образцов, полученных испарением пленки при давлении 30 кПа и 100 Па (на врезке фрагменты изображения поверхности, полученные при большем разрешении); в, г – 3D-изображения поверхности тех же структур, представленных на фрагментах а и б. Изображения получены на атомно-силовом микроскопе Solver.

рактическим размерам (высота и диаметр структур) проводилась с применением программ обработки АСМ-изображений, входящих в состав программного обеспечения Nova, поставляемого вместе с микроскопом. На рис. 1 приведены типичные для всех образцов АСМ-изображения поверхности экспериментальных структур

на основе диселенида олова, которые были получены испарением пленок при температуре 870 К при различных давлениях аргона в камере. Как видно из АСМ-изображений поверхности, подложки покрыты образованиями островкового типа. Рентгенодифракционный анализ полученных структур показал, что островки на

поверхности являются кристаллитами соединения SnSe_2 . При идентификации использовалась картотека эталонных образцов (PDWIN).

Распределение островков диселенида олова, полученных при испарении с остаточным давлением аргона в камере 30 кПа, характеризуется тремя группами островков. Первые две группы представляют собой структуры островкового типа 1 и 2 (рис. 1а) с характеристическими размерами (средний диаметр основания – D и средняя высота – H) $D_1 = 300\text{--}400$, $H_1 = 110\text{--}220$ и $D_2 = 80\text{--}100$, $H_2 = 10\text{--}15$ нм. Третья группа представляет собой зародыши практически полусферического типа $D_3 = 7\text{--}10$, $H_3 = 5\text{--}8$ нм. Усредненное по всем экспериментальным образцам значение плотности зародышевых образований по 1-й, 2-й и 3-й группам составляет 2.4×10^{11} , 1.06×10^{12} и $2.75 \times 10^{12} \text{ м}^{-2}$ соответственно. На рис. 1б приведены АСМ-изображения образцов, полученных при давлении 100 Па. Анализ топографии поверхности этой серии образцов показывает, что однородность распределения островков по размерам существенно выше, чем на первой серии. Распределение островков по размерам для этой серии носит двухмодальный характер. Характеристические размеры этих групп следующие: 1-я – $D_1 = 100\text{--}150$, $H_1 = 40\text{--}70$; 2-я – $D_2 = 75\text{--}100$, $H_2 = 10\text{--}15$ нм. Усредненное по всем экспериментальным образцам значение плотности зародышевых образований по 1-й и 2-й группам составляет 6×10^{12} и $8 \times 10^{12} \text{ м}^{-2}$ соответственно. Отмеченные особенности в характере распределения островков по размерам наглядно просматриваются на 3D-изображениях (рис. 1 в, 1 г), которые представлены в увеличенном масштабе по оси Z . Анализ АСМ-изображения (рис. 1а) показывает: чем больше островок, тем дальше от него формируются соседние зародыши, как правило, с малыми характеристическими размерами. Это может быть связано с тем, что при росте островка большего размера он уменьшает концентрационное насыщение с большей площади, исключая возможность зарождения на соседних островках вблизи него [9].

Обработка АСМ-изображений позволила установить зависимость между эффективным радиусом R (численно определяется как радиус круга, площадь которого равна площади свободной от островков зоны вблизи выбранного островка) и средним радиусом основания островка r , равным $D/2$ (рис. 1а, вставка). Зависимость $R(r)$ представлена на рис. 2. Данная связь хорошо коррелирована и близка к линейной.

В работе также проведены исследования спектральных зависимостей коэффициента поглощения структур на основе диселенида олова, полученных испарением при давлении аргона в камере 100 Па. В этом случае в качестве подложки

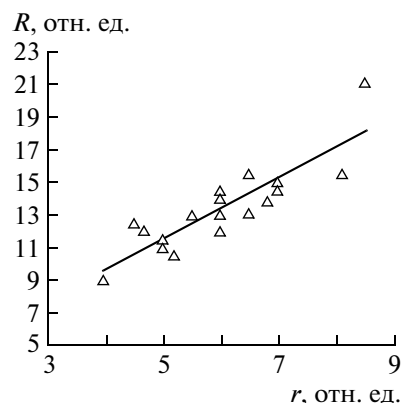


Рис. 2. Зависимость радиуса зоны эффективного действия островка от его характеристических размеров.

использовались стекла марки К-8, которые в ближней ИК, видимой и ближней УФ-областях имеют коэффициент пропускания на уровне 95–100%. Спектры поглощения снимались на спектрометре USB2000+ в спектральном диапазоне 200–1100 нм. Определение ширины запрещенной зоны по данным оптического поглощения вблизи фундаментального края проводились аналогично [10]. При этом среднее значение оптической ширины запрещенной зоны, определенное из экспериментальных спектров поглощения, составило 1.37 ± 0.1 эВ. Соответствующие значения для объемных образцов SnSe_2 , приводимые в различных публикациях, лежат в пределах 0.9–1.03 эВ. Смещение фундаментального края оптического поглощения в коротковолновую область указывает на проявление эффектов размерного квантования спектра электронных состояний [11–13].

Опираясь на известные закономерности роста островковых пленочных структур [9] и полученные экспериментальные результаты, предложена феноменологическая модель роста островков инконгруэнтным испарением халькогенидных пленок. Неоднородность в распределении островков по размерам на структурах, полученных методом инконгруэнтного испарения, можно связать со сдвинутыми во времени процессами их зарождения и формирования. На начальной стадии испарения (отбора конденсата) формируются зародыши 1-й группы (рис. 3). Их зарождение и рост на этой стадии, вероятнее всего, осуществляется по механизму Фольмера–Вебера [12]. До тех пор, пока уровень маточной фазы (пленка) не дойдет до уровня I, растущие зародыши имеют полусферическую форму. Как только уровень маточной фазы выравнивается и опускается ниже уровня I, рост зародышей 1-й группы идет в объеме ниже текущего уровня маточной фазы. Таким образом, за счет преимущественного роста в направлении плоскости подложки зародышевое образование начинает приобретать островковую форму. Уменьшение объема маточной фазы (ниже уров-



Рис. 3. Схематическое изображение роста зародышевых образований на различных этапах процесса.

ния I) приводит к увеличению скорости концентрационного насыщения компонентом A . Как следствие, это приводит к появлению устойчивых зародышевых образований 2-й группы в пространстве маточной фазы между зародышами 1-й группы. Изотропный рост зародышей 2-й группы продолжается до того момента, пока уровень маточной фазы не опустится ниже уровня II. Далее начинается островковый рост зародышей 2-й группы, и одновременно идет процесс формирования первичных зародышей 3-й группы. Образование островкового типа на основе зародышей 3-й группы происходит при объеме маточной фазы ниже уровня III.

Зарождение островков 2-й и 3-й групп происходит вне зоны эффективного “снятия” концентрационного насыщения островками 1-й группы в маточной фазе. Можно предположить, что при высокой плотности зародышей островков 1-й группы структуры должны характеризоваться более однородным распределением. Поскольку в этом случае вероятность перекрытия зон эффективного действия островков повышается и, как следствие, снижается вероятность зарождения островков 2-й группы, и тем более 3-й группы. Учитывая особенность получения островковых пленок методом [9], можно прийти к заключению, что для получения структур с однородным распределением островков необходимо проводить процесс инконгруэнтного испарения при высоких скоростях отбора конденсата. Данный вывод подтверждается характером распределения островков в пленках, полученных для второй серии образцов (рис. 1б) при высокой скорости испарения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментальные результаты на феноменологическом уровне дают основание полагать, что для получения структур с однородным распределением необходимо проводить процесс инконгруэнтного испарения при высоких скоростях испарения пленки на начальной стадии.

По результатам анализа АСМ-изображений поверхности установлено, что при росте островковых пленок существует зависимость распреде-

ления островков по размерам от условий процесса выращивания.

Данные значения ширины запрещенной зоны указывают на проявление эффекта размерного квантования спектра электронных состояний в полученных островковых структурах.

Подбором скорости инконгруэнтного испарения материала пленки можно направленно вырастить островковые пленки халькогенидов с заданным распределением островков по размерам, что в конечном итоге позволит получить структуры с определенным набором структурных, оптических и электрофизических свойств.

Работа выполнена при финансовой поддержке Программы создания и развития Национального исследовательского технологического университета “МИСиС”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Morkoc H.* Handbook of nitride semiconductors and devices. Wiley: VCH, 2008. V. 1–3. 3563 p.
2. *Леденцов Н.Н., Устинов В.М., Шукин В.А. и др.* // ФТП. 1998. Т. 32. № 4. С. 385.
3. *Асрян Л.В., Сурис Р.А.* // ФТП. 2004. Т. 38. № 1. С. 3.
4. *Yoshikawa A., Matsumoto S., Yamaga S. et al.* // J. Cryst. Growth. 1990. № 101. P. 305.
5. *Yao T.* // Jpn. J. Appl. Phys. 1986. № 25(7). P. L544.
6. *Коваленко А.В., Мекечко А.Ю., Тищенко В.В. и др.* // ФТТ. 1994. Т. 36. С. 1350.
7. *Бродин М.С., Бондарь Н.В., Коваленко А.В. и др.* // Квантовая электроника. 1993. № 20(7). С. 629.
8. *Гаев Д.С., Павлова Л.М., Кузнецов Г.Д. и др.* // Изв. вузов. Материалы электронной техники. 2006. № 4. С. 47.
9. *Кукушкин С.А., Осипов А.В.* // УФН. 1998. Т. 168. С. 1083.
10. *Sharma J., Singh G., Thakur A. et al.* // J. Opt. Adv. Mater. 2005. № 7(4). P. 2085.
11. *Schlaf R., Pettenkofer C., Jaegermann W.* // J. Appl. Phys. 1999. № 85(9). P. 6550.
12. *Демиховский В.Я., Вугальтер Г.А.* Физика квантовых низкоразмерных структур. М.: Логос, 2000. 250 с.
13. *Александров Л.Н.* Переходные области эпитаксиальных полупроводниковых пленок. Новосибирск: Наука, 1986. 270 с.