

©1995 г.

ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫЕ СВОЙСТВА КВАНТОВЫХ ТОЧЕК InAs НА ВИЦИНАЛЬНОЙ ПОВЕРХНОСТИ GaAs(100)

Н.Н.Леденцов, М.В.Максимов, Г.Э.Цырлин,
Б.Н.Петров,* Г.М.Гурьянов**

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе РАН,
194021, Санкт-Петербург, Россия

*Институт аналитического приборостроения РАН,
198103, Санкт-Петербург, Россия

(Получена 10 января 1995 г. Принята к печати 16 января 1995 г.)

Образование упорядоченных массивов упруго-напряженных кластеров InAs при молекулярно-пучковой эпитаксии и их люминесцентные свойства в существенной степени определяются углом разориентации поверхности GaAs от направления [100] в сторону [011]. Показано, что увеличение угла разориентации приводит к уменьшению характерных размеров квантовых точек и сдвигу соответствующего пика фотoluminesценции в коротковолновую область спектра. Увеличение времени экспозиции поверхности в потоке мышьяка при субмомолекулярной молекулярно-пучковой эпитаксии не влияет на форму и интенсивность линии фотoluminesценции от квантовых точек, полученных на сингулярной поверхности. При этом на сильно разориентированной поверхности наблюдается длинноволновый сдвиг и уменьшение интенсивности линии фотoluminesценции, свидетельствующие об уменьшении плотности и увеличении размеров квантовых точек.

Эффект спонтанного образования однородных массивов упруго-напряженных островков на поверхности полупроводников, наблюдаемый при достижении некоторой критической толщины псевдоморфного слоя, рассматривается в настоящее время, как один из наиболее перспективных методов получения квантовых точек непосредственно в полупроводниковой матрице [1–3]. С другой стороны, достаточно высокая степень однородности островков по форме и размерам, наличие ближнего или дальнего опрыска в расположении островков относительно друг друга [4,5] указывают на наличие сложных взаимодействий в системе и на существенную модификацию механизма роста по сравнению с моделью Фольмера–Вебера и Странски–Крастанова.

В данной работе мы исследовали влияние умышленной разориентации поверхности подложки от направления [100] на процесс образования упруго-напряженных островков InAs на поверхности арсенида галлия при молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ). В качестве экспериментальной методики использовалась низкотемпературная фотoluminesценция (ФЛ). Мы обнаружили, что разориентация поверхности и

условия роста оказывают существенное влияние на характерный размер, разброс по размерам и плотность точек, а также на критическую толщину псевдоморфного слоя. В нашем случае линия люминесценции, соответствующая излучению квантовых точек, смещена в сторону больших энергий кванта при росте на разориентированных подложках по сравнению с сингулярными, что согласуется с меньшим характерным размером кластера InAs, выявленном ранее в исследованиях с помощью сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) [6]. Увеличение времени прерывания роста между циклами осаждения InAs в субмонослоевой моде не приводит к изменению формы линии ФЛ от квантовых точек в случае сингулярной и слабо разориентированной поверхности (2.5°). В случае сильно разориентированной поверхности (7.2°) вместо одной линии в спектре ФЛ наблюдаются две — соответствующая сплошному слою InAs средней толщиной около 1.6 монослоя и квантовым точкам большего размера, что свидетельствует о том, что точки, образующиеся на начальном этапе морфологической трансформации упруго-напряженного слоя, являются в данном случае метастабильными.

Ростовые эксперименты проводились на установке МПЭ ЭП 1203 на сингулярных и разориентированных на 2.5 и 7.2° в сторону [011] подложках полуизолирующего GaAs(100). Прошедшие химическую обработку по описанной в [7] методике три образца (сингулярный и два вицинальных) наклеивались с помощью индия на один молибденовый держатель таким образом, чтобы неравномерность температурного поля нагревателя образца и градиенты потоков на поверхности были минимальными. После удаления окисного слоя в ростовой камере при температуре подложки $T_s = 580^\circ\text{C}$ в потоке As₄ выращивался буферный слой GaAs толщиной 1 мкм при сохранении реконструкции поверхности (2×4) и $T_s = 600^\circ\text{C}$. После выращивания буферного слоя выращивалась сверхрешетка, состоящая из пяти пар слоев GaAs/Al_{0.25}Ga_{0.75}As (20 Å/20 Å), с целью исключения возможности диффузии и дрейфа неравновесных носителей в полуизолирующую подложку с высокой концентрацией глубоких примесей (Cr). Далее выращивался слой GaAs толщиной 70 Å и температура образца в потоке мышьяка понижалась до $T_s = 470^\circ\text{C}$. Активный слой выращивался в режимах субмонослоистого молекулярно-пучкового эпитаксиального (СМПЭ) роста для образцов с номинальной толщиной InAs 2 монослоя и различными временами выдержки в потоке As₄ после каждого полумонослоистого цикла выращивания арсенида индия (2 и 30 с) и традиционного МПЭ роста для образцов с номинальной толщиной InAs 4 монослоя. После завершения процедуры роста активного слоя при той же температуре выращивался слой GaAs толщиной 70 Å. Далее T_s устанавливалась 600 °C и выращивался слой GaAs толщиной 130 Å. После этого выращивалась сверхрешетка, состоящая из пяти пар слоев GaAs/Al_{0.25}Ga_{0.75}As (20 Å/230 Å), с целью исключения влияния поверхностной рекомбинации. При росте сверхрешеток после каждого слоя GaAs производилась выдержка поверхности образца в потоке As₄ в течение 20 с. Давление мышьяка в ростовой камере во всех экспериментах поддерживалась постоянным на уровне $4 \cdot 10^{-6}$ Па. Значения ранее откалиброванных потоков Ga, Al и In с помощью наблюдения осциляций зеркального рефлекса дифракции быстрых электронов на отра-

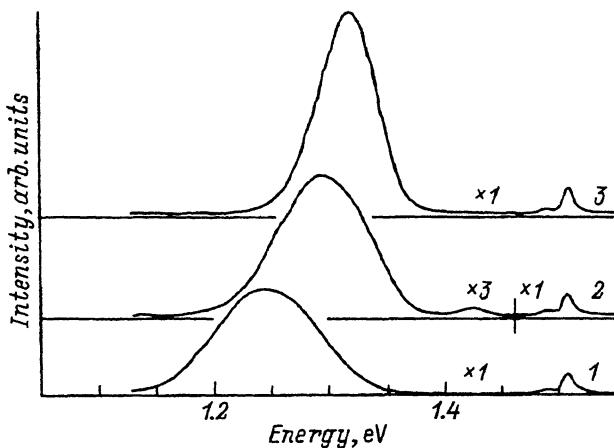


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции для квантовых точек InAs, полученных методом СМПЭ. Номинальная толщина — 2 монослоя, выдержка между циклами — 2 с. 1 — сингулярная поверхность, 2 — разориентация 2.5° , 3 — разориентация 7.2° .

жение устанавливались таким образом, чтобы скорости роста GaAs, AlGaAs и InAs соответствовали 0.6, 0.75 и 0.1 монослоя/с.

Спектры фотолюминесценции возбуждались гелий-неоновым лазером с длиной волны 632.8 нм. Плотность возбуждения составляла 1 Вт/см². Температура наблюдения составляла 77 К.

Спектры ФЛ структур с квантовыми точками, полученными при осаждении двух монослоев InAs на сингулярной и вицинальных (2.5 и 7.2°) поверхностях GaAs, представлены на рис. 1. Время прерывания роста между циклами в данном случае составляло 2 с. Из рисунка следует, что при увеличении угла разориентации подложки пик ФЛ последовательно смещается в сторону больших энергий фотона при одновременном уменьшении его ширины на полувысоте от 100 до 57 мэВ. Это соответствует уменьшению размера квантовых точек (КТ), меньшему разбросу по размерам, что хорошо согласуется с данными СТМ для незарошенных структур [6]. Вместе с тем в спектрах ФЛ наблюдается немонотонное поведение интенсивности и формы линии ФЛ. Для образца, выращенного на слабо разориентированной поверхности, интенсивность ФЛ от КТ существенно ниже, чем в случае сингулярной поверхности, что может быть объяснено существенно меньшей концентрацией точек. С этим фактом согласуется и появление линии ФЛ с энергией максимума 1.425 эВ, соответствующей сплошному слою InAs толщиной порядка 1.6 монослоя. В случае же структуры, выращенной на сильно разориентированной поверхности, пик ФЛ от КТ смещен в коротковолновую сторону, его интенсивность весьма высока, а пик ФЛ, соответствующий сплошному слою InAs, в спектре отсутствует. Два последних факта свидетельствуют об образовании кластеров InAs относительно небольшого размера, но с высокой поверхностной плотностью.

Для прояснения немонотонного изменения спектров ФЛ при увеличении угла разориентации нами были исследованы аналогичные структуры, в которых время прерывания роста между циклами осаждения InAs составляло 30 с. Соответствующие спектры ФЛ приведены на

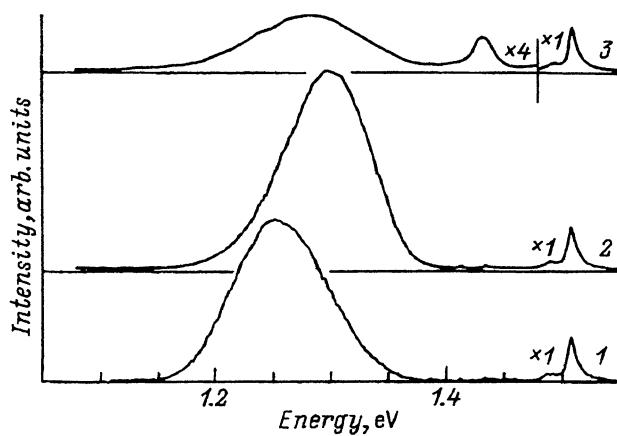


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции для квантовых точек InAs, полученных методом СМПЭ. Номинальная толщина — 2 монослоя, выдержка между циклами — 30 с. 1 — сингулярная поверхность, 2 — разориентация 2.5° , 3 — разориентация 7.2° .

рис. 2. Сопоставление данных, приведенных на рис. 1 и 2, показывает, что увеличение времени прерывания роста практически никак не скаживается ни на интенсивности, ни на форме линии, ни на положении пика ФЛ от квантовых точек в случае сингулярной поверхности. Наблюдается лишь некоторое уменьшение полной ширины на половине высоты линии (от 100 до 90 мэВ). Данный факт свидетельствует о том, что характерный размер точек не изменяется и является, по-видимому, равновесным. В случае слабо разориентированной подложки (2.5°) увеличение времени прерывания роста между циклами осаждения привело к резкому возрастанию интенсивности точечной полосы и гашению линии, соответствующей сплошному слою InAs. Концентрация точек, таким образом, существенно возрастает в этом случае. Наиболее кардинальные изменения происходят при увеличении времени прерывания роста в случае образца, выращенного на сильно разориентированной подложке. Интенсивная линия с максимумом при 1.32 эВ исчезает из спектра. Вместо нее появляются две линии: одна — при 1.43 эВ соответствует сплошному слою InAs, другая — слабая линия вблизи 1.27 эВ соответствует квантовым точкам большего размера с малой плотностью. Таким образом, кластеры InAs, образующиеся на начальном этапе трансформации упруго-напряженного слоя на сильно разориентированной поверхности, являются метастабильными и постепенно трансформируются, увеличивая размер и уменьшая поверхностную плотность с увеличением выдержки между циклами.

Влияние разориентации подложки на форму и интенсивность линии ФЛ в случае квантовых точек, сформированных при осаждении 4 монослоев InAs при МПЭ росте, демонстрируется на рис. 3. Увеличение средней толщины осажденного InAs приводит к существенному смещению линии ФЛ от квантовых точек в сторону меньших энергий фотона, что соответствует увеличению характерного размера кластеров InAs. При этом, как и в случае точек, полученных при осаждении двух монослоев, линия ФЛ смещается в сторону больших энергий фотона по мере увеличения угла разориентации, свидетельствуя о монотонном уменьшении характерного размера кластера InAs. Как следует

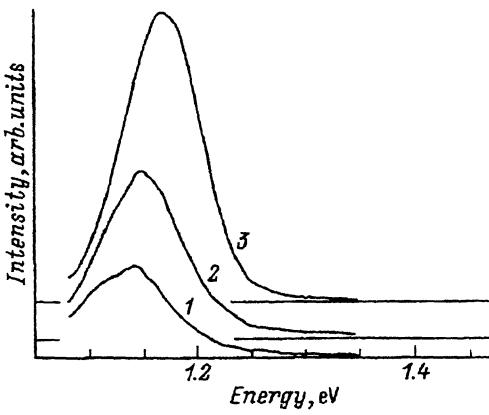


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции для квантовых точек InAs, полученных методом МПЭ. Номинальная толщина — 4 монослоя. 1 — сингулярная поверхность, 2 — разориентация 2.5° , 3 — разориентация 7.2° .

из рис. 3, интенсивность ФЛ квантовых точек монотонно возрастает по мере увеличения угла разориентации, что говорит о том, что в данном случае поверхностная плотность точек высока и при больших углах разориентации.

Таким образом, разориентация поверхности приводит к уменьшению характерных размеров и плотности кластеров InAs. Указанный факт может быть объяснен высокой концентрацией ступеней на исходной поверхности. При гетероэпитаксии напряженного слоя ступени InAs, по видимому, обеспечивают эффективную релаксацию упругих напряжений в слое за счет напряжения подложки GaAs [8], и критическая толщина псевдоморфного слоя возрастает. Согласно нашим данным, кинетика играет существенную роль на начальном этапе образования кластеров InAs, в то время как при заметном превышении критической толщины формируются устойчивые квазиравновесные структуры. Вместе с тем изменение разориентации поверхности и условий роста позволяет получить систему квантовых формирований с заранее заданными геометрическими параметрами (латеральные размеры и плотность квантовых точек).

В заключение авторы выражают благодарность Ю.Б.Самсоненко, В.Б.Губанову и Н.К.Полякову за помощь в проведении ростовых экспериментов.

Список литературы

- [1] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C.M. Reaves, S.P. Denbaars, P.M. Petroff. *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 3203 (1993).
- [2] J.M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, C. Vatet. *Appl. Phys. Lett.* **64**, 196 (1994).
- [3] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Christen, R. Heitz, J. Böhmer, F. Heinrichsdorff, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Verner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. *Proc. 22th Int Conf. on Physics of Semicond.* (Vancouver, Canada, 1994) (в печати).
- [4] V. Bressler-Hill, A. Lorke, S. Verma, P.M. Petroff, K. Pond, W.H. Weinberg. *Phys. Rev. B*, **50**, 8479 (1994).
- [5] G.M. Guryanov, G.E. Cirlin, V.N. Petrov, N.K. Polyakov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipishev, E.P. Musikhina, V.B. Gebanov, Yu.B. Samsonenko, M.N. Ledentsov. *Surf. Sci.*, **331–333** (1995).

- [6] Г.М. Гурьянов, Г.Э. Цирлин, В.Н. Петров, Ю.Б. Самсоненко, В.Б. Губанов, Н.К. Поляков, А.О. Голубок, С.Я. Типисев, Е.П. Мусихина, Н.Н. Леденцов. ФТП (принята к печати).
- [7] Г.М. Гурьянов, Н.Н. Леденцов, В.Н. Петров, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цирлин, А.Г. Филиретов. Письма в ЖТФ, **19**, 64 (1993).
- [8] В.И. Марченко. ЖЭТФ, **81**, 1141 (1981).

Редактор В.В. Чалдышев

Luminescence properties of InAs quantum dots on vicinal GaAs(100) surface

N.N.Ledentsov, M.V.Maximov, G.E.Cirlin, V.N.Petrov, G.M.Guryanov**

A.F.Ioffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences, 194021 St.Petersburg, Russia

*Institute for Analytical Instrumentation, Russian Academy of Sciences, 198103 St.Petersburg, Russia
