

## ФОРМИРОВАНИЕ ВЕРТИКАЛЬНО СОВМЕЩЕННЫХ МАССИВОВ НАПРЯЖЕННЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК InAs В МАТРИЦЕ GaAs(100)

© А.Ю.Егоров, А.Е.Жуков, П.С.Копьев, Н.Н.Леденцов,  
М.В.Максимов, В.М.Устинов, А.Ф.Щацельников, Н.А.Берт,  
А.О.Косогов, Д.Бимберг\*, Ж.И.Алферов

Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

\*Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Berlin,  
Hardenbergstr. 36, D-10623 Berlin, Germany

(Получена 18 октября 1995 г. Принята к печати 26 октября 1995 г.)

Предложен и реализован метод, позволяющий управляемо изменять форму и размеры упругонапряженных островков InAs, выращиваемых в матрице GaAs. Метод основан на обнаруженном эффекте вертикального совмещения островков соседних рядов, наблюдаемом при разделении нескольких рядов островков спейсерами, толщина которых не превышает характерную высоту островков. В результате вертикального совмещения происходит формирование квантовых точек непиримидальной формы, обладающих увеличенным отношением высоты к основанию, что подтверждается просвечивающей электронной микроскопией. Результаты оптических исследований подобных структур указывают на существенные изменения в энергетическом спектре носителей в квантовых островках InAs.

Массивы квантовых точек (QD) в матрице более широкозонного материала перспективны для улучшения приборных характеристик инжекционных лазеров. Так, например, теоретически предсказанная величина характеристической температуры для лазеров с активной областью на основе квантовой ямы (ограничение носителей в одном направлении) составляет  $T_0 = 285$  К, тогда как для активной области на основе квантовых точек (ограничение в трех направлениях)  $T_0$  стремится к бесконечности, что связано с  $\delta$ -образной плотностью состояний в случае трехмерного ограничения [1]. Для создания массивов QD *in situ* было предложено использовать спонтанный распад сильно напряженного слоя (In,Ga)As, выращиваемого на поверхности GaAs(100), на когерентные, приблизительно одинаковые по размерам островки, зарращиваемые затем GaAs [2]. Применяя указанный метод, мы создали инжекционные лазеры на основе QD, обладающие повышенной температурной стабильностью пороговой плотности тока ( $J_{th}$ ) в области температур жидкого азота:  $T_0 = 330 \div 350$  К,  $J_{th} \sim 200 \div 120$  А/см<sup>2</sup>

для  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As-QD}$  [3] и  $T_0 = 425\text{ K}$ ,  $J_{\text{th}} \sim 70\text{ A/cm}^2$  для  $\text{InAs-QD}$  [4]. Однако при увеличении температуры выше  $120\div 140\text{ K}$  пороговая плотность тока начинает быстро возрастать, достигая  $1\div 3\text{ kA/cm}^2$  при  $300\text{ K}$ , по-видимому, вследствие «испарения» носителей из квантовых точек из-за недостаточной энергии локализации.

Исследования методами просвечивающей электронной микроскопии и атомно-силовой микроскопии показывают, что островки  $\text{InAs}$ , образующиеся на поверхности  $\text{GaAs}(100)$ , имеют пирамидальную форму с отношением основания к высоте порядка  $2\div 3$ . Типичные размеры основания составляют  $\sim 8\div 12\text{ нм}$  при высоте  $\sim 4\div 6\text{ нм}$  [5]. Размер квантовых точек можно изменять в некоторых пределах, изменяя количество осажденного  $\text{InAs}$  или время прерывания роста после осаждения  $\text{InAs}$ . Максимальный латеральный рамер точек  $\sim 12\text{ нм}$ . Попытка увеличить этот размер за счет дальнейшего осаждения  $\text{InAs}$  (более 4 монослоев) приводит к появлению макроскопических дислокационных кластеров. При объеме, близком к критическому для образования дислокаций несоответствия, высота точек все еще мала ( $\sim 6\text{ нм}$ ) [5].

Вследствие значительного различия размеров островков в направлении роста и в плоскости поверхности роста энергия локализации носителей зависит в основном от высоты островков. Увеличение высоты позволило бы увеличить энергию локализации носителей при сохранении латерального квантования. Кроме того, при использовании массива квантовых точек в качестве активной области лазера увеличение высоты островков позволит достичь большего перекрытия области ограничения носителей со световой волной, т. е. увеличения коэффициента оптического ограничения.

В настоящей работе нами сообщается о возможности модификации формы и размеров квантовых точек  $\text{InAs}$  в матрице  $\text{GaAs}$ , позволяющей значительно увеличить высоту когерентных островков при сохранении размеров основания. В основе метода лежит эффект вертикального совмещения островков соседних рядов, наблюдаемый при разделении нескольких рядов точек достаточно узкими прослойками (спейсерами) широкозонного материала. Изменение формы островков подтверждается просвечивающей электронной микроскопией (ПЭМ), а изменения электронного спектра — исследованиями фотолюминесценции (ФЛ).

Структуры выращивались методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) на подложках  $\text{GaAs}(100)$ . Технологические режимы осаждения и геометрия образцов описаны в [6]. Фотолюминесценция исследовалась при  $77\text{ K}$ , возбуждалась  $\text{He-Ne}$ -лазером (энергия возбуждающего кванта  $1.954\text{ эВ}$ ) и регистрировалась охлаждением  $\text{Ge}$ -фотодиодом. Мощность возбуждения составляла  $20\text{ Вт/см}^2$ . ПЭМ-исследования были выполнены на микроскопе Philips EM 420 при ускоряющем напряжении  $100$  или  $120\text{ кВ}$ . Образцы для ПЭМ подготавливались в геометрии «вид в плане» и в поперечном сечении с помощью общепринятых процедур соответственно химического травления и механической шлифовки-полировки с последующим распылением ионами  $\text{Ar}^+$ .

При осаждении  $\text{InAs}$  на первоначально планарную поверхность  $\text{GaAs}(100)$ , по достижении эффективной толщины  $\text{InAs} \sim 1.7$  монослоев (МС), происходил переход от двумерного (послойного) к трехмерному (островковому) режиму роста  $\text{InAs}$ , приводящий к возникновению точечной картины дифракции быстрых электронов (ДБЭ) на отражение.

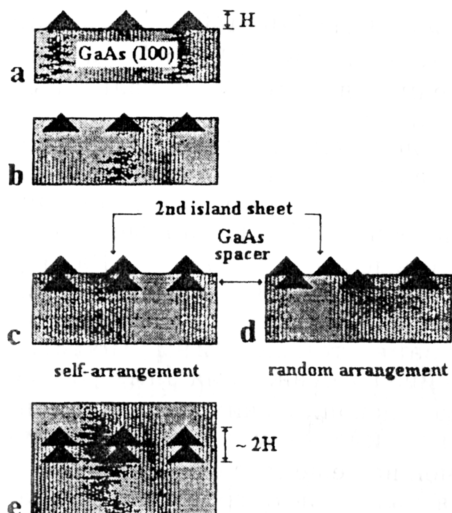
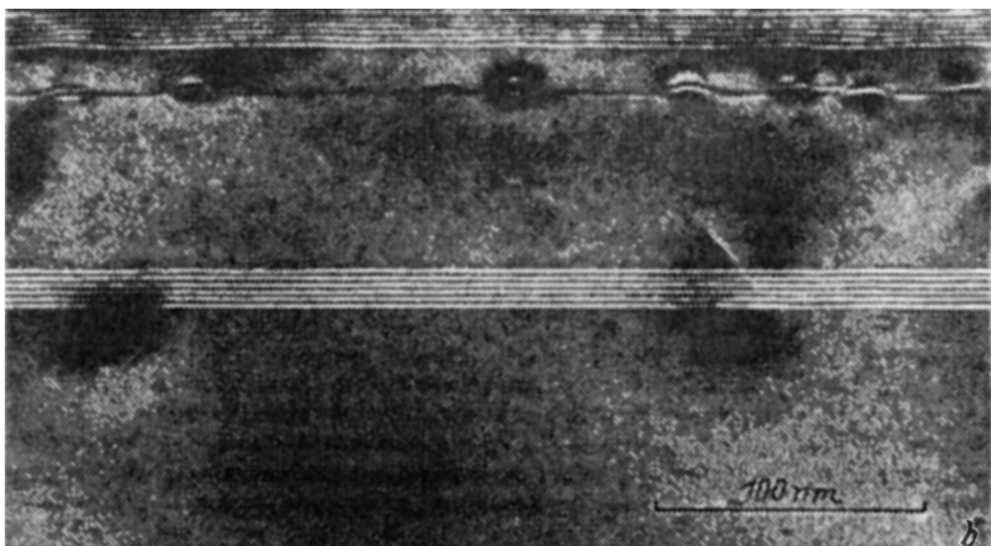
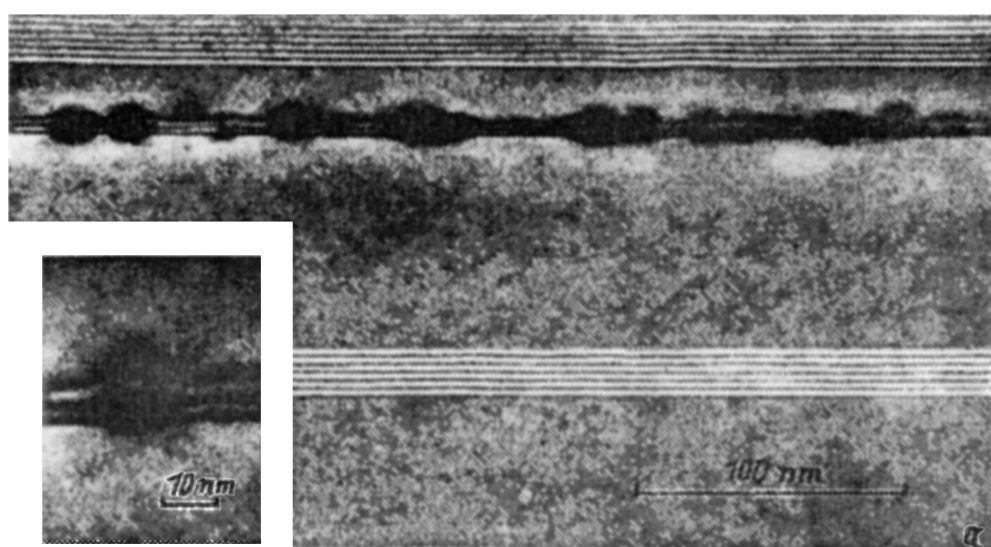


Рис. 1. Схематическое изображение механизма роста при двухкратном осаждении InAs: *a* — формирование островков InAs по достижении 1.7 МС; *b* — частичное зарастивание островков слоем GaAs (спейсером) с эффективной толщиной, меньшей высоты островков; *c* — повторное формирование массива островков InAs с учетом эффекта самосовмещения; *d* — повторное формирование массива островков InAs при случайном расположении островков второго ряда; *e* — окончательная геометрия структуры.

Эти изменения в наблюдаемой картине ДБЭ обусловлены прохождением электронного пучка сквозь микроскопические островки, сформировавшиеся на поверхности (рис. 1, *a*). При зарастивании массива островков InAs слоем GaAs происходила постепенная планаризация поверхности, завершающаяся, по данным ДБЭ, после приблизительно 5–8 нм.

Если толщина прикрывающего слоя GaAs выбрана меньшей, чем характерная высота островков, можно полагать, что на поверхности останутся особенности, отвечающие вершинам островков InAs (рис. 1, *b*). Исследования с помощью ПЭМ [7], в которых для выявления профиля зарастивания использовались тонкие слои (маркеры) AlAs, показывают, что такая ситуация действительно может реализоваться. После того как первый зарастивающий слой GaAs был сформирован, мы проводили повторное осаждение InAs. При последующем осаждении 1.7 МС InAs точечная картина дифракции восстанавливалась, свидетельствуя о повторном формировании массива островков. Если при этом формирование островков второго ряда InAs будет преимущественно происходить в местах указанных особенностей, результирующее распределение InAs приведет к возникновению островков с основанием, примерно совпадающим с основанием островков первого ряда, и приблизительно удвоенной высотой (рис. 1, *c*, *e*).

Для исследования характера распределения InAs при многократном осаждении нами были выращены структура (обозначенная QD3), содержащая три ряда островков, разделенных спейсерами номинальной толщиной 25 Å. Эффективная толщина InAs в каждом цикле составляла 1.7 МС. ПЭМ изображение поперечного сечения структуры QD3, полученное в режиме темного поля, приведено на рис. 2, *a*. Для сравнения на рис. 2, *b* представлено изображение поперечного сечения образца QD1, выращенного по обычной процедуре и содержащего ряд островков, образовавшихся в результате осаждения 1.7 МС InAs. Как видно из рис. 2, *a*, при повторном осаждении InAs не происходит формирования островков InAs на планарных участках поверхности, закрытых выращенным GaAs, — материал собирается в местах, где уже имеются сформированные островки первого ряда. Такая же ситуация име-



**Рис. 2.** Темнопольные в рефлексе 004 ПЭМ-микрофотографии поперечных сечений структур, полученных с помощью трех (QD3) (a) и одного (QD1) (b) циклов осаждения InAs. На вставке — увеличенное изображение одного из многоуровневых островков InAs, образовавшихся в результате вертикального совмещения.

ет место и для третьего цикла осаждения InAs. Это явление названо нами эффектом вертикального самосовмещения.

Проявление этого эффекта подтверждается также результатами изучения образцов типа QD1 и QD3, подготовленных в геометрии «вид в плане». В случае независимого зарождения островков различных рядов их поверхностная плотность в образцах с одним (QD1) или с тремя (QD3) циклами осаждения InAs должна существенно различаться, вплоть до трехкратного увеличения плотности в образце типа QD3 по сравнению с QD1. Измерения поверхностной плотности островков



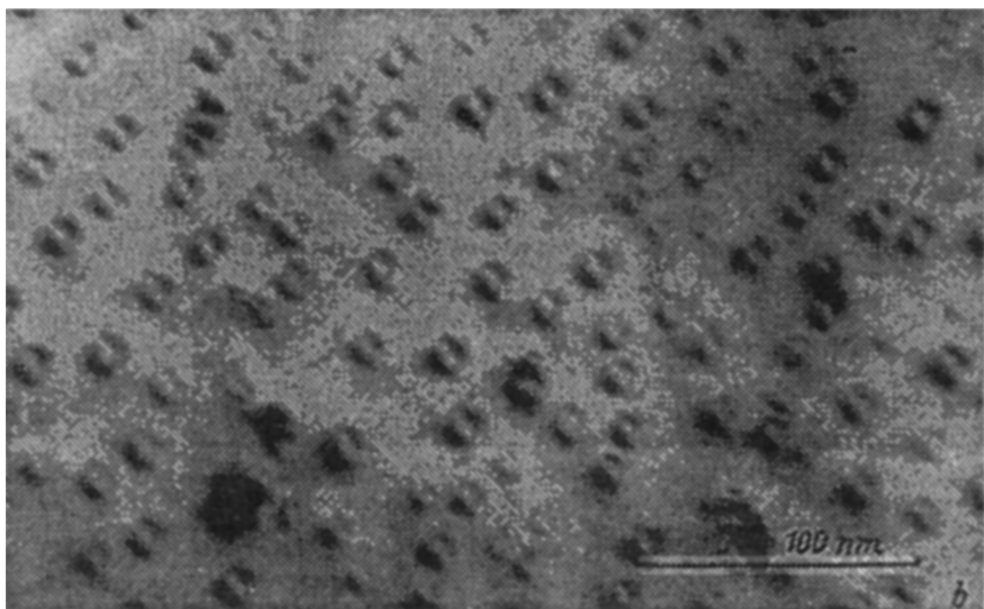
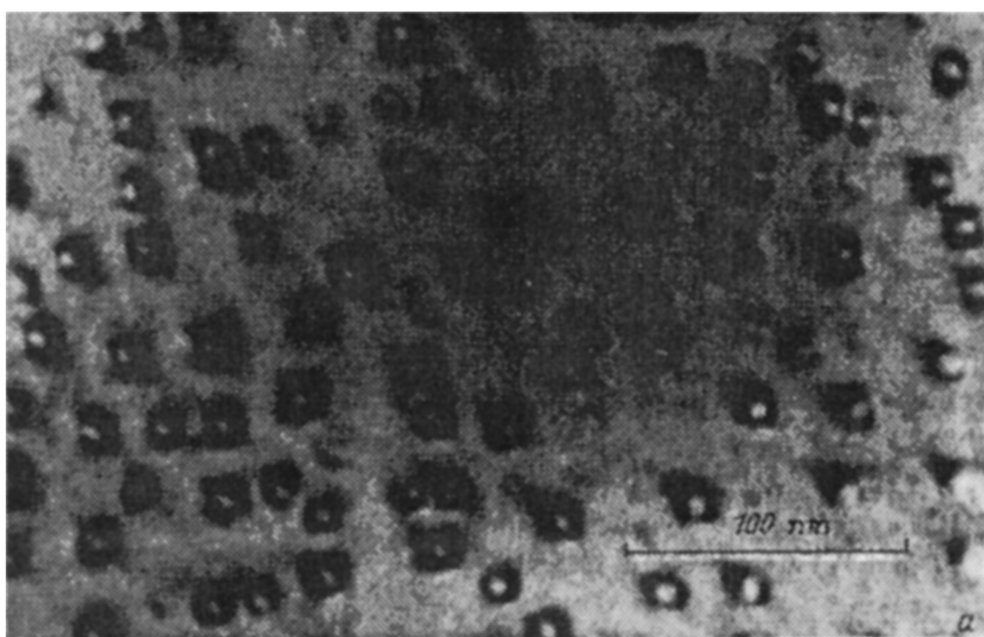


Рис. 3. Светлопольные ПЭМ-изображения структур: а — с тремя рядами островков InAs, QD3 (изображение в оси зоны [001], параллельной направлению роста); б — с одним рядом островков InAs, QD1 (изображение в рефлексе 220).

InAs, проведенные на ПЭМ-изображениях «в плане» (рис. 3), показывают, что она практически одинакова и составляет  $3.0 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$  для QD3 и  $3.2 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$  для QD1. Это означает, что рост в последующих циклах продолжается в местах, заданных островками первого уровня.

Таким образом, в результате многократного осаждения образуются новые объекты — островки InAs непиримидальной формы. Можно видеть, что они обладают увеличенным отношением высоты к основанию вследствие протяженности в направлении роста при сохранении основания. Типичные размеры составляют  $140 \div 150 \text{ \AA}$  в основании при  $\sim 120 \text{ \AA}$  в высоту. Следует отметить отсутствие дислокаций несоответствия, что предполагает сохранение островков InAs бездислокационными.

Из приведенных исследований с помощью дифракционной ПЭМ сложно судить о форме полученных многоуровневых островков InAs, образующихся в результате вертикального совмещения, так как значительный вклад в контраст вносит деформационная составляющая, что приводит к размытию изображений. Тем не менее достаточно отчетливое изображение спейсера GaAs на темном контрастном фоне, соответствующем трехуровневому островкам InAs в образце QD3 (рис. 2, а), позволяет сделать вывод о том, что островки соседних уровней не смыкаются, а разделены тонкими прослойками GaAs. Кроме того, увеличение латеральных размеров пятен, соответствующих островкам верхнего уровня, по сравнению с изображениями островков нижнего уровня, по-видимому, отображает реальный процесс латеральных размеров островков в верхних уровнях.

На рис. 4 приведены спектры ФЛ при 77 К структур QD3 и QD1. Спектральное положение пика ФЛ (1.26 эВ) хорошо согласуется с величиной, сообщенной в [2,8] и соответствующей начальной стадии формирования квантовых островков. Для образца QD3, содержащего номинально три ряда островков, линия люминесценции сдвинута в длинноволновую сторону почти на 100 мэВ по сравнению со случаем однократного осаждения InAs. Мы полагаем, что это является прямым следствием увеличения высоты сформированных точек, приводящим к понижению энергии размерного квантования. Как видно из рис. 4, при двухкратном осаждении InAs (образец QD2) линия ФЛ расположена при промежуточной энергии, что дополнительно подтверждает предложенную интерпретацию.

Уменьшение полной ширины линии до  $\sim 40$  мэВ в образцах QD2 и QD3 по сравнению с  $\sim 70$  мэВ в образце QD1 может быть связано с уменьшением влияния неоднородности размеров островков при увеличении их среднего объема. Такое объяснение может иметь силу только в том случае, если повторное осаждение InAs не снижает упорядочения в пространственном распределении островков InAs. В самом деле, если бы распределение InAs при осаждении второго и последующего циклов носило случайный характер (рис. 1, d), то привело бы к случайному перекрытию островков соседних рядов. В результате наблюдалась бы чрезвычайно широкая полоса ФЛ с энергией испускаемых фотонов, покрывающей диапазон от  $\sim 1.26$  эВ (островок, не нашедший соседа в другом ряду) до  $\sim 1.18$  эВ (три островка друг над другом). В действительности реализуется только последний случай (рис. 1, c).

Трансформация напряженного слоя InAs на планарной поверхности GaAs в массив упорядоченных островков предполагает, что по достижении определенного значения упругого напряжения островковое распределение становится энергетически более выгодным [9]. Причиной перераспределения InAs является выигреш в энергии упругого

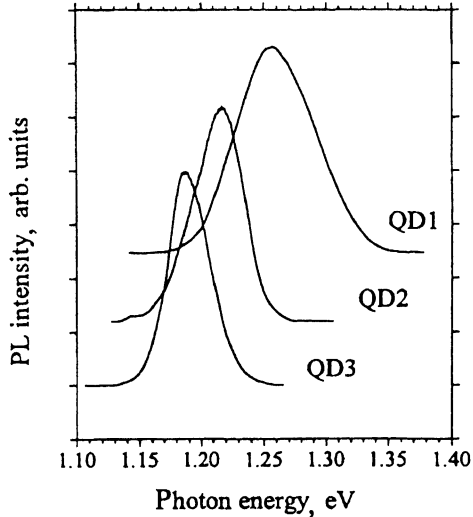


Рис. 4. Спектры фотолюминесценции (PL) структур, полученных однократным (QD1), двухкратным (QD2) и трехкратным (QD3) осаждением InAs по 1.7 монослоя в каждом цикле, разделенных спейсерами номинальной толщиной  $d_{sp} = 2.5$  нм. Температура измерения — 77 К.

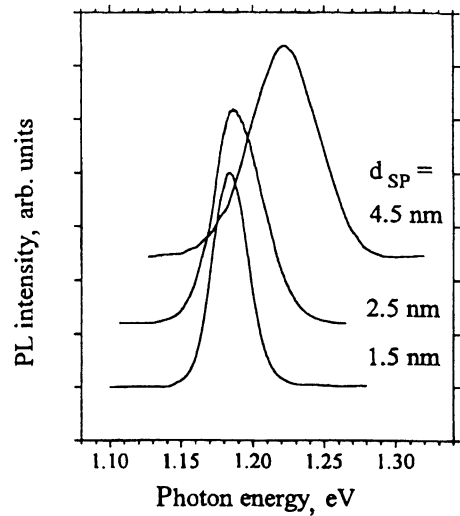


Рис. 5. Спектры фотолюминесценции (PL) структур, полученных трехкратным осаждением InAs по 1.7 монослоя в каждом цикле, разделенных спейсерами номинальной толщиной  $d_{sp} = 1.5, 2.5$  или 4.5 нм. Температура измерения — 77 К.

напряжения за счет уменьшения числа связей InAs–GaAs. При повторном осаждении InAs на поверхность, частично покрытую арсенидом галлия, особенности на поверхности, связанные с вершинами пирамид InAs, могут служить зародышами островков второго ряда. Поскольку латеральное расстояние между соседними островками меньше длины поверхностной диффузии атомов In, последние имеют возможность достигать зародышей, формируя второй ряд островков. Этот механизм, как мы полагаем, и приводит к наблюдаемому самосовмещению островков соседних рядов.

Вследствие контраста, вызванного напряжением и приводящего к размытию профиля состава, ПЭМ-изображения не позволяют выявить истинную форму многоуровневых островков, и прежде всего в области срастания рядов. Фотолюминесценция является более чувствительным методом благодаря сильному влиянию формы квантово-размерных островков на положение энергетических уровней. Сужение или расширение области срастания будет приводить, соответственно, к увеличению или снижению энергии оптического перехода. Очевидно, что при ширине спейсера, приблизительно соответствующей высоте начальных островков ( $\sim 4\div 5$  нм), область срастания островков соседних рядов чрезвычайно мала. На рис. 5 приведены спектры ФЛ для серии образцов, полученных трехкратным осаждением InAs с эффективной толщиной 1.7 МС и различающихся шириной спейсеров  $d_{sp}$ . В то время как положение максимума ФЛ для образцов с  $d_{sp} = 1.5$  и 2.5 нм практически совпадает, при увеличении спейсера до 4.5 нм наблюдается сильный ( $\sim 40$  эВ) сдвиг в коротковолновую сторону. Мы полагаем, что этот сдвиг может быть приписан сильному разделению

островков соседних рядов при выбранной ширине спейсера. Отметим, что, насколько нам известно, образец с  $d_{sp} = 1.5$  нм проявляет рекордно узкую ширину линии фотолюминесценции (28 мэВ) из когда-либо наблюдававшихся в структурах с квантовыми точками InAs в матрице GaAs.

Интенсивная фотолюминесценция из структур типа QD2 и QD3 подразумевает возможность использования подобных структур в качестве активной области светоизлучающих приборов. В настоящее время ведутся работы в этом направлении.

Таким образом, нами предложен и реализован метод, позволяющий модифицировать форму и размеры упругонапряженных островков InAs, выращиваемых в матрице GaAs. Метод основан на эффекте самосовмещения островков соседних рядов, разделенных спейсерами, толщина которых не превышает характерную высоту островков. В результате происходит формирование квантовых точек непиримидальной формы, обладающих увеличенным отношением высоты к основанию. Результаты исследования фотолюминесценции находятся в согласии с данными, полученными с помощью просвечивающей электронной микроскопии.

Авторы благодарны Р.В. Золотаревой за техническую помощь в приготовлении образцов для ПЭМ.

Работа выполнялась при поддержке Программы Министерства науки Российской Федерации «Физика твердотельных наноструктур» (проект 2-001) и программы INTAS (проект 94-1028). В части ПЭМ-исследований работа также поддержана Международным научным фондом (грант R1U300).

#### Список литературы

- [1] Y. Arakawa, H. Sakaki. Appl. Phys. Lett., **40**, 939 (1982).
- [2] P.M. Petroff, S.P. DenBaars. Superlat. Microstruct., **15**, 15 (1994); L. Goldstein. Appl. Phys. Lett., **47**, 1099 (1985).
- [3] N. Kirstaedter, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, S.S. Ruvimov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zn.I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich. Electron. Lett., **30**, 1416 (1994).
- [4] *Int. Conf. on Solid State Device and Materials (SSDM'95)* (Japan, 1995).
- [5] J.M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, O. Vatel. Appl. Phys. Lett., **64**, 196 (1994).
- [6] N.N. Ledentsov, P.D. Wang, C.M. Sotomayor-Torres, A.Yu. Egorov, M.V. Maksimov, V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev. Phys. Rev. B, **50**, 12 171 (1994).
- [7] P. Chen, Q. Xie, A. Madhukar, L. Chen, A. Konkar. J. Vac. Sci. Technol. B, **12**, 2568 (1994).
- [8] J.-M. Gerard, J.-B. Jean, J. Lefebvre, J.M. Moison, N. Lebouche, F. Barthe. *Workbook of 8-th Int. Conf. on MBE* (Osaka, Japan, 1994) p. 381.
- [9] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, O. Schmidt, R. Heitz, J. Bohrer, D. Bimberg, V.M. Ustinov, V.A. Shchukin, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, S. Zaitsev, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich. 7th Int. Conf. Modul. Semicond. Struct. (Madrid, 1995).

Редактор Л.В. Шаронова

# Formation of vertically coupled arrays of InAs quantum dots in GaAs(100) matrix

*A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, N. N. Ledentsov, M. V. Maksimov, V. M. Ustinov, A. F. Tsatsul'nikov, N. A. Bert, A. O. Kosogov, D. Bimberg\*, Zh. I. Alferov*

A. F. Ioffe Physico-Technical Institute, Russian Academy of Sciences,  
194021 St. Petersburg, Russia

\*Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Berlin  
Hardenbergstr. 36, D-10623 Berlin, Germany

We propose a novel method to control the shape and size of strained InAs islands inserted into a GaAs matrix. The method is based on the effect of vertical arrangement of neighbour island sheets. This effect has been found to occur when GaAs spacer thicknesses are comparable with a typical island height. The vertical arrangement effect leads to the formation of non-pyramidal quantum dots with enhanced base-to-height ratio as confirmed by TEM. Results of optical studies of the structures in question point are the changes in energy spectrum of carriers confined in InAs quantum islands.

---