

Формирование наноструктур InGaAs/GaAs методами субмонослойного напыления из молекулярных пучков

© Г.Э. Цырлин, В.Н. Петров, В.Г. Дубровский, Н.К. Поляков, С.Я. Типисев, А.О. Голубок, Н.Н. Леденцов*

Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,
Санкт-Петербург, Россия

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

(Получена 25 октября 1996 г. Принята к печати 31 октября 1996 г.)

Методом сканирующей туннельной микроскопии исследованы морфологические характеристики ансамбля нанообъектов InGaAs/GaAs на сингулярных и вицинальных поверхностях GaAs (100). Наноструктуры формировались с использованием различных модификаций молекулярно-пучковой эпитаксии. Установлено, что на морфологию поверхности оказывает сильное влияние как кинетика роста, так и умышленная разориентация поверхности.

Введение

Изучение эффектов самоорганизации является одним из основных направлений в современной фундаментальной и прикладной физике поверхности. В настоящее время, например, активно исследуются процессы формирования наноструктур за счет самоорганизации поверхности полупроводников [1–5]. Самоорганизация наноструктур на поверхности полупроводников при гетероэпитаксиальном росте в рассогласованных по параметру решетки системах обусловлена релаксацией упругих напряжений в объеме и на поверхности. Квантовые точки и квантовые проволоки, в которых движение носителей заряда ограничено по трем или двум направлениям, обладают уникальными оптическими свойствами [6,7], открывают пути к созданию оптоэлектронных приборов нового поколения [8,9]. Наблюдение сверхузких линий катодоллюминесценции однозначно указывает на дельтаобразный спектр плотности электронных состояний [6]. Достигнутый прогресс в теории образования наноструктур [10,11], обнаружение эффектов упорядоченности квантово-размерных образований на поверхности в системе InGaAs/GaAs [12,13] и возможность "настройки" характерных размеров образующихся наноструктур при варьировании технологических условий роста (температуры подложки, скорости роста и соотношения потоков) в методе молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) [10,14], а также разориентации поверхности подложки [8,15,16], позволяет надеяться на получение квантово-размерных структур с заранее заданными геометрическими свойствами. Дополнительным параметром, с помощью которого можно производить управление размерами наноструктур, является изменение ростовых мод (субмонослойная МПЭ, атомно-последовательная МПЭ) для выращивания слоев, претерпевающих фазовый переход при росте по механизму Странски–Крастанова. В данной работе методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) исследуются морфологические характеристики ансамбля квантовых точек InGaAs/GaAs, полученных на сингулярных и вицинальных поверхностях GaAs (100) с помощью различных модификаций метода МПЭ.

1. Эксперимент

Ростовые эксперименты проводились на установке ЭП 1203 на подложках GaAs (100) (сингулярные образцы) и подложках GaAs (100), поверхность которых разориентирована на 3° и 7° в сторону [011] (вицинальные образцы). Методика химической предростовой подготовки поверхности пластин описана в [17]. При исследовании влияния разориентации подложки на морфологию поверхности сингулярные и вицинальные образцы 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 $T_s = 610\text{--}630^\circ\text{C}$ в потоке As_4 , методом традиционной молекулярно-пучковой эпитаксии выращивался буферный слой GaAs толщиной 0.25 мкм при сохранении реконструкции поверхности (2×4) и $T_s = 550^\circ\text{C}$. Буферный слой легировался бериллием до концентрации $\sim 10^{16}\text{ см}^{-3}$ для уверенного захвата туннельного тока при последующем исследовании поверхности методом сканирующей туннельной микроскопии.

После выращивания буферного слоя температура образца в потоке мышьяка понижалась до $T_s = 470^\circ\text{C}$ (момент изменения поверхностной реконструкции (2×4) на $c(4 \times 4)$). Давление мышьяка при открытой заслонке мышьяка в ростовой камере во всех экспериментах поддерживалось постоянным на уровне $4 \cdot 10^{-6}$ Па.

Выращивание слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ проводились в режимах субмонослойного эпитаксиального роста. Схематически временные зависимости положения заслонок молекулярных источников In, Ga и As приведены на рис. 1. Использовались следующие ростовые моды: субмонослойная МПЭ (СМПЭ) [18] (рис. 1, a для InAs и рис. 1, b для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$), субмонослойная миграционно-стимулированная эпитаксия (СМСЭ) [19] (рис. 1, c для InAs и рис. 1, d для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$), атомно-последовательная МПЭ (АПМПЭ) [20] (рис. 1, e), и (или) их комбинации. В каждом случае осаждалось 3 монослоя (МС) либо

Перечень исследуемых образцов, их технологические параметры и геометрические характеристики

Номер образца	Ростовая мода	Вицинальность	Латеральные размеры, нм	Поверхностная плотность, см ⁻²	Состав
1	СМПЭ	нет	6–15	–	In _{0.66} Ga _{0.33} As
2	СМСЭ	нет	10	1.5 · 10 ¹¹	In _{0.66} Ga _{0.33} As
3	СМСЭ	нет	18	1.1 · 10 ¹¹	InAs
4	СМСЭ	3°	19	0.7 · 10 ¹¹	InAs
5	СМСЭ	7°	10	1.3 · 10 ¹¹	InAs
6	МПЭ + СМПЭ	нет	–	–	InAs
7	МПЭ + СМПЭ	3°	–	–	InAs
8	МПЭ + СМПЭ	7°	14	1.4 · 10 ¹¹	InAs
9	АПМПЭ + СМПЭ	3°	–	–	InAs
10	АПМПЭ + СМПЭ	7°	–	–	InAs

арсенида индия, либо твердого раствора In_xGa_{1-x}As. После завершения роста нагреватель образца немедленно удалялся из зоны держателя образца.

Состояние поверхности контролировалось *in situ* дифракцией быстрых электронов на отражение (ДБЭО). Система ДБЭО включала в себя высокочувствительную видеокамеру, видеомагнитофон для записи динамики картин ДБЭО во время роста, компьютера для обработки записываемой информации, интерфейса, осуществляющего сопряжение видеокамеры с видеомагнитофоном и компьютером, и программного обеспечения, позволяющего производить обработку картин ДБЭО в реальном масштабе времени [21]. Калибровка скоростей роста GaAs и InAs проводилась с помощью измерения осцилляций интенсивности зеркального рефлекса на картине ДБЭО. Скорости роста GaAs и InAs в процессе экспериментов были постоянными и равными 0.5 и 0.1 монослоя/с соответственно.

Морфология поверхности образцов исследовалась *ex situ* с помощью сканирующего туннельного микроскопа, методика и режимы измерений описаны в [13,16]. Многократно воспроизводимые и устойчивые СТМ изображения были получены на различных участках исследуемых образцов. Для проведения длительных СТМ измерений образцы помещались в вакуумное масло для защиты поверхности от окисления на воздухе. Подобная защита позволила получать воспроизводимые СТМ изображения в течение месяца после изъятия образцов из вакуумной камеры.

2. Результаты и их обсуждение

В таблице приведены номера исследуемых образцов, соответствующие им технологические параметры и их основные геометрические характеристики.

На рис. 2, *a, b* приведены СТМ изображения для образцов 1 и 2 (In_xGa_{1-x}As, СМПЭ и СМСЭ технологии) соответственно. Из рисунка видно, что морфология поверхности качественно изменяется при использовании

различных методов выращивания. В случае СМПЭ наблюдается наличие как относительно больших (~ 15 нм), так и небольших (~ 6 нм) квантовых точек, разделение которых слабо выражено (т.е. островки частично коалесцированы). При СМСЭ росте квантовые точки латерально разделены, характеризуются высокой поверхностной плотностью и обладают относительно малой дисперсией по размерам.

На рис. 3 приведены СТМ изображения для образцов 3–5 соответственно (InAs, СМСЭ рост). Как показывают данные ДБЭО, в данном случае вследствие большей величины рассогласования постоянных решеток квантовые точки образуются при меньшей толщине напыленного слоя, чем для образцов 1 и 2. Для сингулярной поверхности (рис. 3, *a*) характерно наличие хорошо разделенных квантовых точек, расположенных изотропно. Преимущественно изотропное распределение характерно и для вицинальных поверхностей, однако по мере увеличения угла разориентации возрастает их плотность при сохранении или уменьшении латеральных размеров (рис. 3, *b, c*).

Проведенные ранее исследования показали, что на морфологию поверхности оказывает существенное влияние кинетика роста, в том числе и на начальной стадии. С целью исследования влияния ростовых мод на морфологию поверхности нами варьировалась ростовая методика на начальной стадии, т.е. при образовании первых полутора монослоев InAs. Использовались традиционная МПЭ и атомно-послойная МПЭ. Оставшиеся полтора монослоя осаждались при СМПЭ моде. На рис. 4 приведены СТМ изображения для образцов 6–8 соответственно. Для сингулярного и слабо разориентированного образца на поверхности наблюдается мезоскопическая структура с малой концентрацией квантовых точек. При увеличении угла разориентации формируется ансамбль квантовых точек, расположенных в примитивной квазидвумерной решетке с векторами вдоль направлений [001] и [010]. При использовании на начальной стадии метода АПМПЭ на вицинальных образцах наблюдается коалесценция квантовых точек в конгломераты (рис. 5, *a, b*,

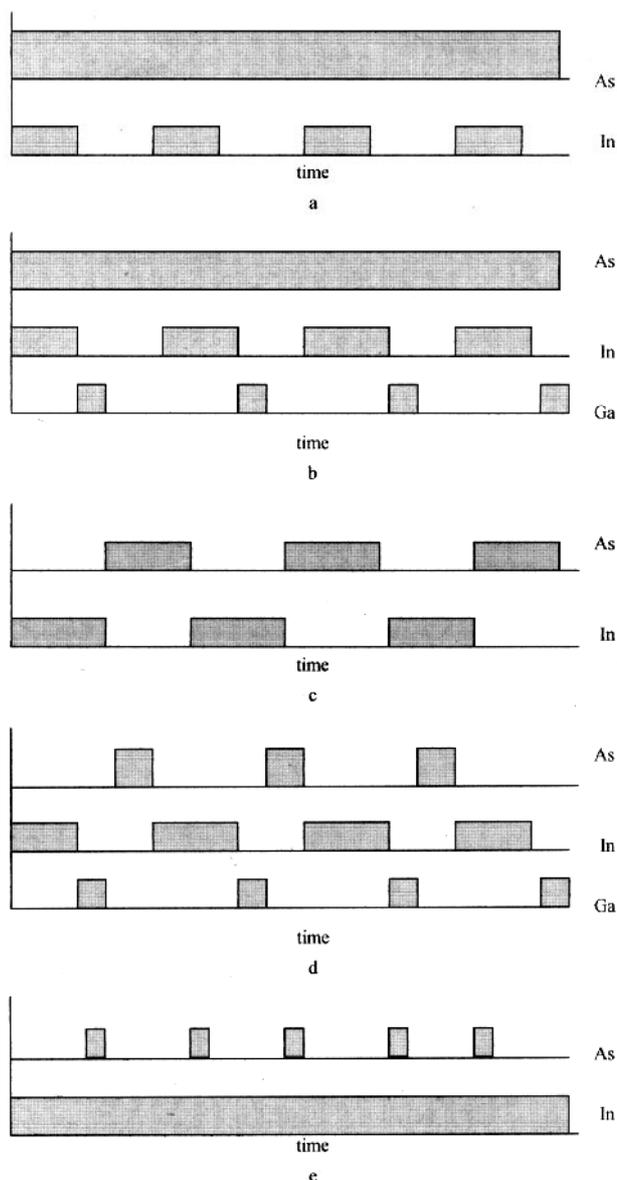


Рис. 1. Временные зависимости положения заслонок при СМПЭ InAs (a) и InGaAs (b), СМСЭ InAs (c) и InGaAs (d) и АПМПЭ (e). Состояние открытой заслонки заштриховано, закрытой — не заштриховано.

образцы 9 и 10 соответственно) вне зависимости от степени разориентации поверхности.

Приведенные нами результаты свидетельствуют о существенном влиянии как кинетики роста, так и разориентации поверхности на морфологию слоев InGaAs/GaAs (100). Полученные ранее результаты, касающиеся зависимости структурных и оптических свойств квантово-размерных структур в методе МПЭ от давления компоненты V группы [14], подтверждают влияние кинетики роста на результирующую морфологию поверхности. Согласно нашим данным, использование методами СМСЭ приводит к образованию ансамбля квантовых точек с высокой плотностью и малой диспе-

рсией по латеральным размерам по сравнению с другими технологиями. Данный эффект, по-видимому, может быть объяснен более быстрым накоплением напряжения в гетероструктуре, достаточным для распада слоя на трехмерные образования под действием сил упругого напряжения. Это в свою очередь приводит к тому, что толщина псевдоморфного слоя меньше, чем при использовании методов одновременного напыления элементов V и III групп. Влияние вицинальности поверхности на морфологию образующихся наноструктур обусловлено дополнительным механизмом релаксации упругих напряжений за счет присутствия на поверхности набора мономолекулярных ступеней. В отдельных случаях их большая плотность может привести к качественному изменению морфологии поверхности по сравнению с сингулярной или слабо разориентированной поверхностью, особенно в случае более "толстого" псевдоморфного слоя (рис. 4, a-c).

Таким образом, были исследованы некоторые субмонослойные технологические методы создания самоорга-

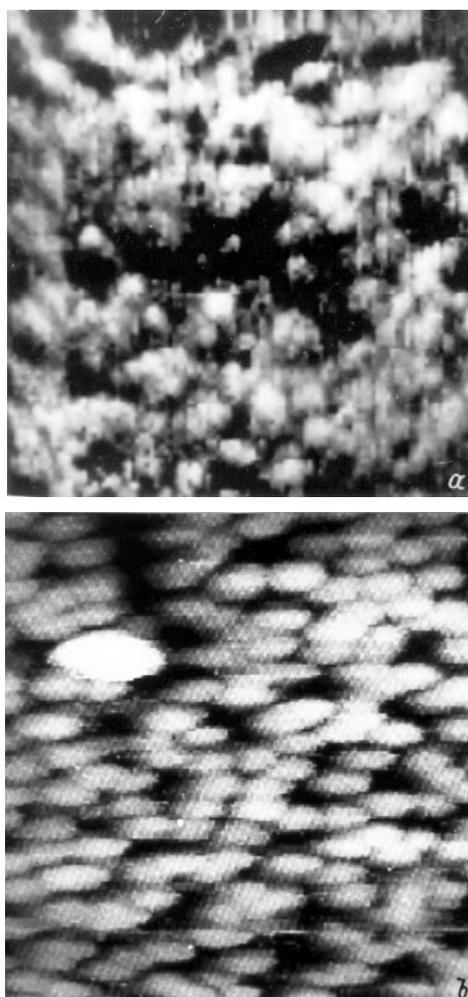


Рис. 2. СТМ изображения участков поверхности после осаждения 3 монослоев $\text{In}_{0.66}\text{Ga}_{0.33}\text{As}$ на GaAs (100) при СМПЭ (a) и СМСЭ (b). Площадь сканирования 400 нм × 400 нм для обоих случаев. Стороны изображений параллельны направлениям [011] и $[\bar{0}\bar{1}\bar{1}]$.

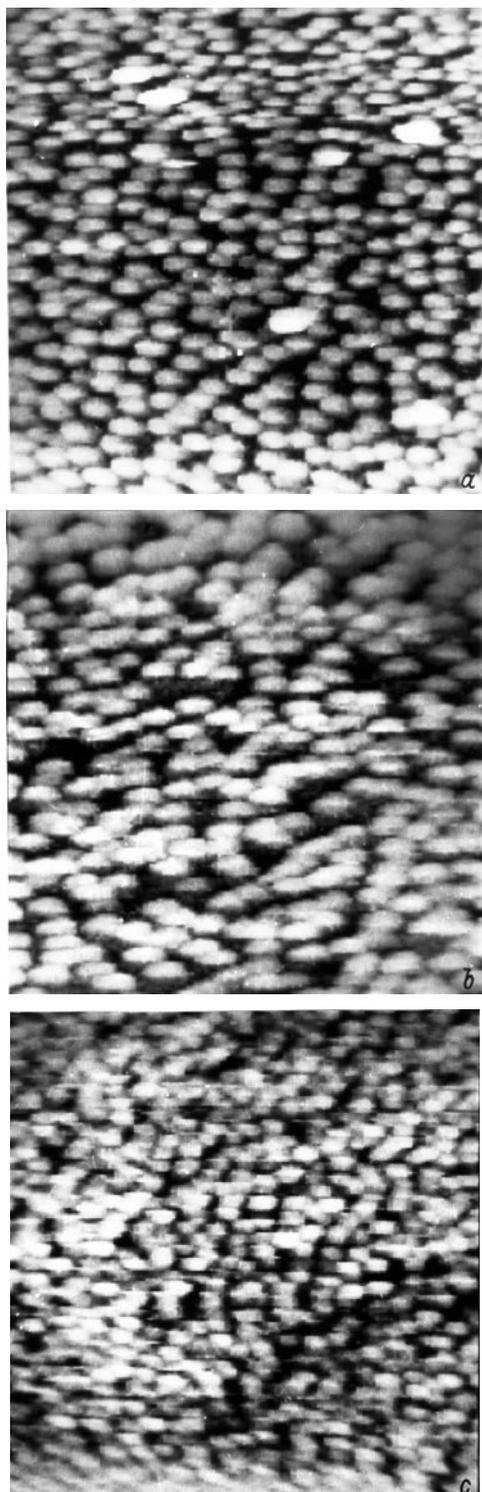


Рис. 3. СТМ изображения участков поверхности после осаждения 3 монослоев InAs на GaAs (100) при СМСЭ. *a* — сингулярная поверхность, *b* — разориентация 3° , *c* — разориентация 7° . Площадь сканирования $600 \text{ нм} \times 600 \text{ нм}$ для всех случаев. Стороны изображений параллельны направлениям $[011]$ и $[0\bar{1}1]$.

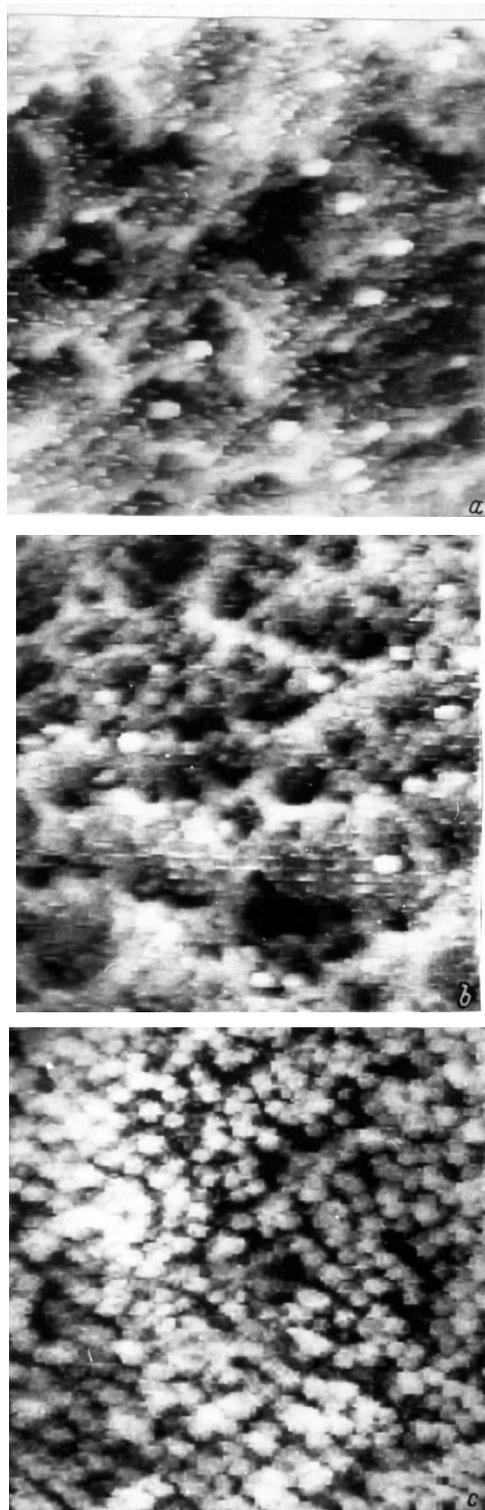


Рис. 4. СТМ изображения участков поверхности после осаждения 3 монослоев InAs на GaAs (100) при МПЭ + СМПЭ. *a* — сингулярная поверхность, *b* — разориентация 3° , *c* — разориентация 7° . Площадь сканирования $900 \text{ нм} \times 900 \text{ нм}$ для всех случаев. Стороны изображений параллельны направлениям $[011]$ и $[0\bar{1}1]$.

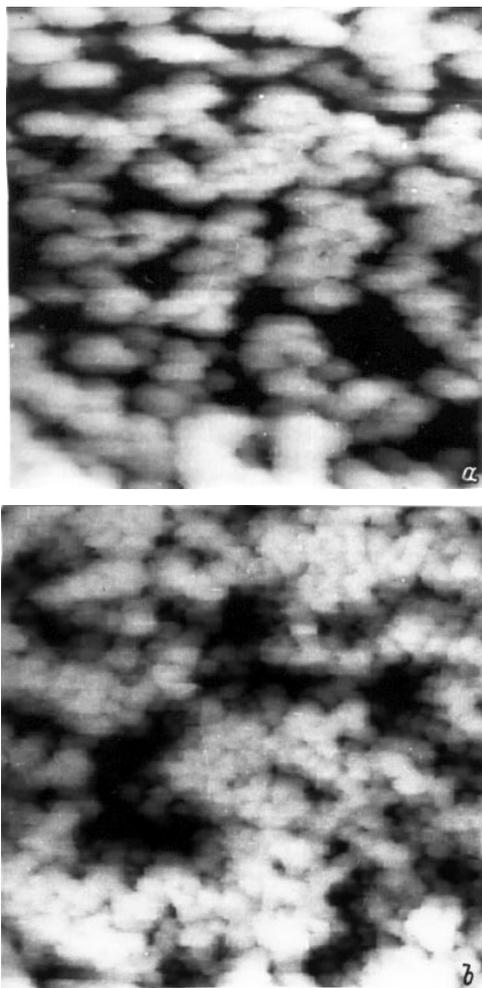


Рис. 5. СТМ изображения участков поверхности после осаждения 3 монослоев InAs на GaAs(100) при АПМПЭ + СМПЭ. *a* — разориентация 3° , *b* — разориентация 7° . Площадь сканирования $900 \text{ нм} \times 900 \text{ нм}$ для обоих случаев. Стороны изображений параллельны направлениям $[011]$ и $[0\bar{1}1]$.

низованных ансамблей квантовых точек в гетероэпитаксиальной системе InGaAs/GaAs. Полученные результаты однозначно указывают на влияние кинетических параметров на структурные свойства квантово-размерных образований. Разориентация поверхности также оказывает влияние на морфологию поверхности, в отдельных случаях приводящую к изменению механизмов роста.

Данная работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 95-02-05084-а), фонда INTAS (грант № 94-1028) и научной программы "Физика твердотельных наноструктур".

Список литературы

[1] В.И. Марченко. ЖЭТФ, **81**, 1141 (1981).
 [2] Y.-W. Mo, B.S. Swartzentruber, R. Kariotis, M.B. Webb, M.G. Lagally. Phys. Rev. Lett. **63**, 2393 (1989).

[3] I. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. Le Roux. Appl. Phys. Lett., **47**, 1099 (1985).
 [4] R. Nözel, N.N. Ledentsov, L. Däweritz, M. Hohenstein, K. Ploog. Phys. Rev. Lett., **67**, 3812 (1991).
 [5] J. Tersoff, R.M. Tromp. Phys. Rev. Lett., **70**, 2782 (1993).
 [6] M. Grundmann, J. Christen, N.N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, M.V. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Phys. Rev. Lett., **74**, 4043 (1995).
 [7] R. Leon, S. Fafard, D. Leonard, J.I. Merz, P.M. Petroff. Phys. Rev. B, **50**, 11 687 (1994).
 [8] N. Kirstaedter, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, S.S. Ruvimov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gösele, J. Heydenreich. Electron. Lett., **30**, 1416 (1994).
 [9] D.S.I. Mui, D. Leonard, L.A. Coldren, P.M. Petroff. Appl. Phys. Lett., **66**, 1620 (1995).
 [10] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, D. Bimberg. Phys. Rev. Lett., **75**, 2968 (1995).
 [11] C. Priester, M. Lanoo. Phys. Rev. Lett., **75**, 93 (1995).
 [12] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Christen, R. Heitz, J. Böhrer, F. Heinrichsdorff, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, 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 ed by D.J. Lookwood (World Scientific, Singapore, 1995) v. 3, p. 1855.
 [13] G.E. Cirlin, G.M. Guryanov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipishev, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, M. Grundmann, D. Bimberg. Appl. Phys. Lett., **67**, 97 (1995).
 [14] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, O. Schmidt, R. Heitz, J. Böhrer, 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, A.O. Kosogov, P. Werner, U. Gösele, J. Heydenreich. Sol. St. Electron., **40**, 785 (1996).
 [15] Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, Г.Э. Цырлин, В.Н. Петров, Г.М. Гурьянов. ФТП, **29**, 1295 (1995).
 [16] G.M. Guryanov, G.E. Cirlin, V.N. Petrov, N.K. Polyakov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipishev, E.P. Musikhina, V.B. Gubanov, Yu.B. Samsonenko, N.N. Ledentsov. Surf. Sci. **331-333**, 414 (1995).
 [17] Г.М. Гурьянов, Н.Н. Леденцов, В.Н. Петров, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цырлин, А.Г. Филаретов. Письма ЖТФ, **19**, вып. 18, 64 (1993).
 [18] P.D. Wang, N.N. Ledentsov, C.M. Sotomayor Torres, P.S. Kop'ev, V.M. Ustinov. Appl. Phys. Lett., **64**, 1526 (1994).
 [19] Г.Э. Цырлин, А.О. Голубок, С.Я. Типисев, Н.Н. Леденцов, Г.М. Гурьянов. ФТП, **29**, 1697 (1995).
 [20] Y. Gonzalez, L. Gonzalez, F. Briones. J. Cryst. Growth. **111**, 120 (1991).
 [21] Г.М. Гурьянов, В.Н. Демидов, Н.П. Корнеева, Г.Э. Цырлин. ПТЭ, № 3, 167 (1996).

Редактор В.В. Чалдышев

InGaAs/GaAs nanostructures obtained by submonolayer molecular beams deposition techniques

G.E. Cirilin, V.N. Petrov, V.G. Dubrovskii, N.K. Polyakov,
S.Ya. Tipsishev, A.O. Golubok, N.N. Ledentsov*

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

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

Abstract Morphological characteristics of InGaAs/GaAs nanoobjects are investigated using scanning tunnelling microscopy. These nanostructures were obtained on singular and vicinal GaAs(100) surfaces by several modifications of molecular beam epitaxy. It is found that there is a strong influence of growth kinetics and surface misorientation of the surface morphology arrangement.