Исследование перехода от двумерного к трехмерному росту в системе InAs/GaAs с помощью дифракции быстрых электронов на отражение

© Г.Э. Цырлин, Н.П. Корнеева, В.Н. Демидов, Н.К. Поляков, В.Н. Петров, Н.Н. Леденцов*

Институт аналитического приборостроения Российской академии наук, 198103 Санкт-Петербург, Россия * Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 18 апреля 1997 г. Принята к печати 23 апреля 1997 г.)

С помощью специально разработанной системы регистрации и анализа картин дифракции быстрых электронов на отражение исследована динамика перехода от двухмерного к трехмерному механизму роста в гетероэпитаксиальной системе InAs/GaAs. Впервые анализ динамики изменения картин дифракции был использован для изучения кинетики образования квантовых точек. Обнаружен временной сдвиг на динамических зависимостях интенсивности дифракции на картинах, снятых при различных дифракционных углах, объясняемый различными размерами трехмерных островков на начальной стадии распада псевдоморфного слоя. При определенных условиях выращивания квантовых точек InAs/GaAs наблюдалось появление рефлексов, наклоненных на 45° по отношению к основным. Это свидетельствует об упорядочении островков в кристаллографических направлениях [001] и [010].

1. Введение

В настоящее время наблюдается значительный интерес к формированию полупроводниковых наноструктур непосредственно при молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) [1–3]. Одним из наиболее перспективных путей создания квантовых точек, как объектов с ограничением движения зарядов по всем 3 направлениям, является гетероэпитаксиальный рост в рассогласованных системах, например в системе InAs/GaAs [4–10]. В данном случае для формирования квантовых точек используется эффект спонтанного распада псевдоморфного слоя на массив когерентных наноостровков на границе раздела полупроводников различного состава с достаточно большим рассогласованием по параметру постоянной решетки. В настоящее время имеется достаточно большое количество публикаций, в которых исследование геометрических свойств ансамбля квантовых точек проводится с помощью трансмиссионной электронной микроскопии (ТЭМ), сканирующей туннельной микроскопии (СТМ), атомно-силовой микроскопии (АСМ) и т.д. Однако все эти методы не являются методами исследования поверхности in situ. На изображения, полученные по методу ТЭМ, сильное влияние оказывают поля напряжений, а информация, получаемая с помощью СТМ и АСМ, отображает структуру поверхности после закаливания образца. При МПЭ наиболее распространенной диагностикой in situ контроля состояния поверхности и динамики ее изменения является дифракция быстрых электронов на отражение (ДБЭО). В данной работе описаны результаты исследования методом ДБЭО динамики перехода от 2-мерного к 3-мерному механизму гетероэпитаксиального роста в системе InAs/GaAs при различных модификациях технологии МПЭ.

2. Метод эксперимента

Для проведения исследования методом ДБЭО мы сконструировали систему регистрации и анализа картин ДБЭО, работающую в реальном масштабе времени с дискретностью 40 нс [11]. Система включает в себя чувствительную видеокамеру, соединенную через интерфейс с компьютером и видеомагнитофоном. Программное обеспечение системы позволяет анализировать любое место на дифракционном изображении, а также изменение интенсивности на картине дифракции вдоль выбранного направления.

Ростовые эксперименты производились на установке МПЭ типа ЭП1203. После выращивания буферного слоя GaAs в условиях сохранения поверхностной реконструкции (2 × 4) температура поверхности понижалась до появления сверхструктуры (2 × 2) для исключения десорбции атомов In. Условия роста сохранялись во время всех экспериментов одинаковыми: скорость роста InAs — 0.1 монослоя в секунду, отношение потоков As/In — порядка 10, температура подложки для слоев арсенида индия — 470°С. Использовались две разновидности метода МПЭ: субмонослойная МПЭ (СМПЭ) [12] и субмногослойная миграционно-стимулированная эпитаксии (СМСЭ) [13]. При методе СМПЭ заслонка источника As всегда открыта, в то время как заслонка источника In открывается периодически. В случае роста по методу СМСЭ заслонки для пучков As и In открываются попеременно. В обоих случаях каждый цикл осаждения атомов In на поверхность составлял 0.5 монослоя (МС). Информация о состоянии поверхности контролировалась визуально на телевизионном мониторе с одновременной записью на видеомагнитофон.

3. Результаты эксперимента и их обсуждение

В результате анализа дифракционных картин установлено, что появление объемных рефлексов, соответствующих переходу от 2-мерного к 3-мерному механизму роста, происходит при бо́льшем количестве осажденного InAs в методе СМПЭ по сравнению с СМСЭ при прочих равных условиях роста. Это связано с тем, что накопление напряжения (вследствие рассогласования постоянных решетки GaAs и InAs) происходит быстрее при СМСЭ из-за более металл-стабилизированных условий роста (поверхностные реконструкции (3×1) и (1×1) для СМСЭ и СМПЭ, соответственно [14]).

Измерения интенсивности картин дифракции вдоль профиля основных рефлексов указывают на достаточно сложный механизм перехода от 2-мерного к 3-мерному механизму роста при распаде псевдоморфного слоя InAs на ансамбль островков. При СМПЭ после напыления 0.2 MC InAs картина ДБЭО становится слегка размытой и далее (в интервале 10÷15 MC) на картине начинает появляться объемная составляющая дифракционных рефлексов. Эта стадия роста характеризуется корругированной структурой поверхности [15]. При достижении толщины напыляемого слоя InAs критической величины (порядка 16÷18 МС) картина дифракции быстро трансформируется в чисто объемные рефлексы и не изменяется вплоть до толщин, достигающих десятков МС InAs. В случае СМСЭ общая картина изменений сохраняется, однако переход от размытых рефлексов к чисто объемной картине происходит более резко. Расстояние между объемными рефлексасми соответствует постоянной решетки InAs для обоих ростовых мод. На рис. 1 представлена динамика изменения интенсивности рефлекса 0.1 СМСЭ. Момент появления островков на поверхности, оцененной из данных ДБЭО, происходит при напылении 1.6 МС с точностью 0.02 МС.



Рис. 1. Динамика изменения интенсивности рефлекса (01) в процессе субмонослойной молекулярно-пучковой эпитаксии. Около рисунков цифрами указана толщина InAs в единицах монослоя; стрелка показывает момент появления объемных рефлексов.

Физика и техника полупроводников, 1997, том 31, № 10



Рис. 2. Временные зависимости интенсивности дифракционной картины, снятые при углах отражения $4^{\circ}(1)$, $5^{\circ}(2)$ и $8^{\circ}(3)$ в режиме субмонослойной молекулярно-пучковой эпитаксии.

Исследование кинетики перехода от 2-мерного к 3-мерному механизму роста показало, что существует интервал, в течение которого происходит образование 3-мерных островков на поверхности. На рис. 2 приведены временные зависимости интенсивности ДБЭО, снятые при разных углах отражения. Как следует из рис. 2, наблюдаются различные моменты времени, при которых интенсивность рефлексов начинает резко возрастать. Момент насыщения интенсивности также различен для разных углов отражения. Минимум интенсивности соответствует началу перехода от 2-мерного к 3-мерному механизму роста, а насыщение наступает тогда, когда размеры островков достигают стационарных величин. Мы связываем наблюдаемый сдвиг с различными размерами островков (по высоте и по периметру) на начальной стадии распада псевдоморфного слоя. После наступления насыщения наблюдается упорядочение размеров островков и растет лишь их поверхностная плотность. Это подтверждается результатами СТМ и оптических исследований подобных структур [16], где увеличение количества InAs, осажденного на GaAs с 2 до 3 MC, приводило к увеличению плотности квантовых точек на поверхности, в то время как их латеральные размеры оставались прежними. Согласно данным [17,18], переход от 2- к 3-мерному механизму роста в системе InAs/GaAs происходит через промежуточное образование квазитрехмерных кластеров (высотой 2 × 4 MC), а появление на поверхности островков InAs проходит через стадию с наибольшим разбросом по геометрическим размерам. При дальнейшем напылении InAs происходит стабилизация островков по размерам. Наши последние данные по оптическим исследованиям ансамбля InAs/GaAs, в целом подтверждают эту модель гетероэпитаксиального роста и находятся в согласии с данными изменения картин ДБЭО на начальном этапе распада псевдоморфного слоя.

Во время ростовых экспериментов мы наблюдали изменения в картинах ДБЭО, заключающиеся в появлении рефлексов, наклоненных на 45° по отношению к основным рефлексам при превышении критической толщины слоя InAs. Данные изменения свидетельствуют об упорядочении островков в направлениях [001] и [010]. В соответствии с выводами из работы [19] минимум поверхностной энергии соответствует пространственному распределению островков в виде 2-мерной квадратной решетки с осями вдоль направлений [001] и [010]. Тем самым теоеретические результаты [19] дают качественное объяснение динамики картин ДБЭО. Данные исследований подобных структур по методам ТЭМ и СТМ также подтверждают, что островки располагаются в виде 2-мерной периодической решетки [5,16].

4. Заключение

Таким образом, приведенные результаты свидетельствуют о том, что изучение ДБЭО является методом, позволяющим точно *in situ* контролировать момент перехода от 2-мерного к 3-мерному механизму роста, в частности при гетероэпитаксиальном росте в системе InAs/GaAs. Исследования динамики изменения картин ДБЭО подтверждают, что кинетика роста оказывает значительное влияние на эволюцию морфологии поверхности на начальной стадии роста.

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

Список литературы

- Y.-W. Mo, B.S. Swartzentruber, R. Kariotis, M.B. Webb, M.G. Lagally. Phys. Rev. Lett., 63, 2393 (1989).
- [2] R. Nötzel, N.N. Ledentsov, L. Däweritz, M. Hohenstein, K. Ploog. Phys. Rev. Lett., 67, 3812 (1991).
- [3] J. Tersoff, R.M. Tromp. Phys. Rev. Lett., 70, 2782 (1993).
- [4] L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. Le Roux. Appl. Phys. Lett., 47, 1099 (1985).
- [5] M. Grundmann, J. Christen, N.N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Phys. Rev. Lett., 74, 4043 (1995).
- [6] R. Leon, S. Fafard, D. Leonard, J.I. Merz, P.M. Petroff. Phys. Rev. B, 50, 11 687 (1994).
- [7] 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).

- [8] D.S.I. Mui, D. Leonard, L.A. Coldren, P.M. Petroff. Appl. Phys. Lett., 66, 1620 (1995).
- [9] G.E. Cirlin, G.M. Guryanov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipissev, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, M. Grundmann, D. Bimberg. Appl. Phys. Lett., 67, 97 (1995).
- [10] G.M. Guryanov, G.E. Cirlin, V.N. Petrov, N.K. Polyakov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipissev, E.P. Musikhina, V.B. Gubanov, Yu.B. Samsonenko, N.N. Ledentsov. Surf. Sci., 331–333, 414 (1995).
- [11] В.Б. Губанов, Г.М. Гурьянов, В.Н. Демидов, В.Г. Дубровский, Н.П. Корнеева, В.Н. Петров, Н.К. Поляков, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цырлин. Науч. приборостроение, 6, № 1/2, 3 (1996).
- [12] P.D. Wang, N.N. Ledentsov, C.M. Sotomayor Torres, P.S. Kop'ev, V.M. Ustinov. Appl. Phys. Lett., 64, 1526 (1994).
- [13] Г.Э. Цырлин, А.О. Голубок, С.Я. Типисев, Н.Н. Леденцов, Г.М. Гурьянов. ФТП, 29, 1697 (1995).
- [14] G.M. Guryanov, G.E. Cirlin, V.N. Petrov, N.K. Polyakov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipissev, V.B. Gubanov, Yu.B. Samsonenko, N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, M. Grundmann, D. Bimberg, Zh.I. Alferov. Surf. Sci., 352–354, 651 (1996).
- [15] G.M. Guryanov, G.E. Cirlin, A.O. Golubok, S.Ya. Tipissev, N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, M. Grundmann, D. Bimberg, Zh.I. Alferov. Surf. Sci., 352–354, 646 (1996).
- [16] G.E. Cirlin, V.N. Petrov, N.K. Polyakov, V.N. Demidov, N.P. Korneeva, A.O. Golubok, S.Ya. Tipissev, V.G. Dubrovskii, G.M. Guryanov, M.V. Maximov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg. *Abstracts Int. Symp. "Nanostructures: physics and technology 96"* (St.Petersburg, Russia, 1996) p. 375.
- [17] N.P. Kobayashi, T.R. Ramachandran, P. Chen, A. Madhukar. Appl. Phys. Lett., 68, 3299 (1996).
- [18] T.R. Ramachandran, R. Heitz, P. Chen, A. Madhukar. Appl. Phys. Lett., **70**, 640 (1997).
- [19] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, P.S. Kop'ev, D. Bimberg. Surf. Sci., 352–354, 117 (1996).

Редактор Т.А. Полянская

Transition from two- to three–dimensional InAs/GaAs growth studied with reflection high-energy electron diffraction

G.E. Cirlin, N.P. Korneeva, V.N. Demidov, N.K. Polyakov, V.N. Petrov, N.N. Ledentsov*

Institute for Analytical Instrumentation, Russian Academy of Sciences, 198103 St.Petersburg, Russia * A.F.loffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences, 194021 St.Petersburg, Russia

Abstract Using a specially designed reflection high-energy electron diffraction (RHEED) system, the 2D-3D transition during InAs/GaAs heteroepitaxial growth is studied. For the first time the dynamics of RHEED patterns is used for a detailed analysis of the kinetics of quantum dots formation. It is found that there is a shift in time-dependent reflection intensity curves which is explained by different lateral sizes of 3D islands at the initial stage of pseudomorphic layer decomposition. At appropriate growth conditions the tilted streaks making 45° angle with the main streaks are observed on RHEED patterns during InAs/GaAs quantum dots formation, which indicates an ordering of the islands in rows along [001] and [010] directions.