

Массивы напряженных квантовых точек InAs в матрице (In,Ga)As, выращенные на подложках InP методом молекулярно-пучковой эпитаксии

© В.М. Устинов, А.Е. Жуков, А.Ф. Цацульников, А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш,
М.В. Максимов, А.А. Суворова, Н.А. Берт, П.С. Копьев

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

(Получена 11 марта 1997 г. Принята к печати 19 марта 1997 г.)

Методом молекулярно-пучковой эпитаксии синтезированы массивы напряженных островков InAs в матрице (In,Ga)As на подложке InP(100) и проведено исследование их структурных и оптических свойств. Согласно данным просвечивающей электронной микроскопии и дифракции быстрых электронов, критическая толщина, отвечающая началу островкового роста, составляет 3 монослоя. Образующиеся островки InAs являются когерентно напряженными, размер основания варьируется от 20 до 90 нм. Формирование островков приводит к появлению в спектрах фотолюминесценции доминирующей длинноволновой линии, сдвигающейся в сторону меньшей энергии с увеличением эффективной толщины InAs. Излучение, обусловленное островками InAs, перекрывает диапазон длин волн $1.65 \div 2$ мкм.

Массивы полупроводниковых квантовых точек (КТ) перспективны для применений в инжекционных лазерах. В частности, было предсказано значительное уменьшение пороговой плотности тока и снижение ее температурной зависимости [1]. Одним из наиболее перспективных способов создания массивов КТ является метод, основанный на эффектах самоорганизации, наблюдаемых при осаждении методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) сильно напряженного слоя. К настоящему времени структурные и оптические свойства массивов КТ (In,Ga)As, помещенных в матрицу (Al,Ga)As [2,3], а также инжекционных лазеров на их основе достаточно хорошо изучены [4,5]. Применение их в качестве активной области инжекционного лазера позволило достичь непрерывного режима генерации через основное состояние КТ вплоть до комнатной температуры при выходной мощности около 1 Вт и пороговой плотности тока менее 100 А/см^2 [5,6].

Большинство лазеров на основе КТ (In,Ga)As изучали в диапазоне $0.9 \div 1.1$ мкм. Проведенные исследования показали, что длина волны излучения КТ, полученных на подложках GaAs, ограничена в длинноволновом пределе значениями $1.27 \div 1.3$ мкм [7,8]. Увеличение диапазона излучения, достижимого в структурах с КТ, вплоть до 2 мкм является актуальной задачей для применений в системах волоконной оптической связи и контроля загрязнения окружающей среды.

Как будет показано в настоящей работе, продвинуться в интересующий диапазон длин волн позволяет использование массивов квантовых островков InAs, помещенных в матрицу (In,Ga)As, выращенную на подложке InP(100). Подобные структуры представляют также интерес с точки зрения фундаментальных исследований спонтанного формирования объектов с пониженной размерностью, дополняя исследования, проводимые в системе материалов (In,Ga)As/(Al,Ga)As. Кроме того, управляемое изменение степени согласования матрицы и подложки позволяет изучить влияние остаточного

напряжения на процесс формирования трехмерных зародышей. Мы впервые сообщаем о создании методом МПЭ и исследовании структурных и оптических свойств массивов квантовых островков InAs, сформированных в матрице (In,Ga)As, согласованной по параметру решетки с подложкой InP.

Исследуемые структуры были выращены методом МПЭ с твердотельным источником As₄ в установке Riber-32P на полуизолирующих подложках InP(100). В середину слоя (In,Ga)As толщиной 0.15 мкм, выращенного на буферном слое толщиной 0.2 мкм и ограниченного со стороны подложки и поверхности короткопериодными сверхрешетками InAlAs(2 нм)–InGaAs(2 нм), помещали исследуемый слой (массив островков) InAs. Эффективное количество осажденного InAs в активной области Q_{InAs} варьировали в различных образцах в пределах $0 \div 13$ монослоев (МС). Температура осаждения составляла 500°C , а скорость роста приблизительно 10 нм/мин для слоев InGa(Al)As и 15 нм/мин при осаждении InAs в активной области. Рост проводили в условиях обогащения мышьяком.

Степень согласования постоянных решетки материалов матрицы и подложки InP определяли методом двухкристалльной рентгеновской дифракции на тестовых слоях толщиной 1 мкм. Величина рассогласования составляла менее 10^{-3} , что обеспечивает псевдоморфный рост слоев InGa(Al)As вплоть до толщины 1 мкм [9]. Фотолюминесценцию исследовали при $10 \div 150$ К, возбуждали He–Ne-лазером (энергия возбуждающего кванта 1.954 эВ) и регистрировали охлажденным InSb-фотодиодом. Мощность возбуждения составляла 20 Вт/см^2 . Исследования по методу просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) были выполнены на микроскопе Philips EM 420 при ускоряющем напряжении 100 кВ. Образцы для ПЭМ были подготовлены с помощью общепринятого метода механической шлифовки–полировки с последующим распылением ионами Ag^+ и

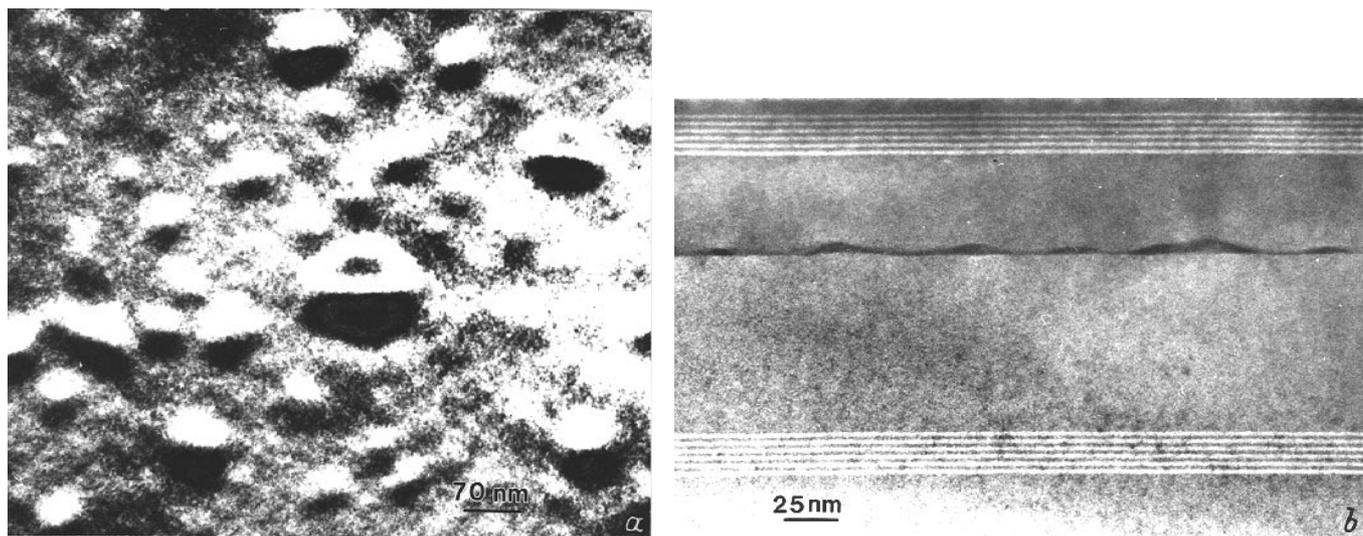


Рис. 1. Изображение структуры, изготовленной осаждением 6 монослоев InAs в матрице (In,Ga)As: *a* — вид в плоскости структуры, *b* — поперечное сечение. Данные получены методом просвечивающей электронной микроскопии.

исследовались в планарной геометрии и в поперечном сечении.

Переход от двумерного к трехмерному режиму роста InAs определялся по изменению в наблюдаемой картине дифракции быстрых электронов (ДБЭ) на отражение. Образование трехмерных зародышей приводило к возникновению штриховой картины дифракции, тогда как в случае атомно-гладкой поверхности наблюдаемая картина состоит из системы полос ("тяжей"), расположенных перпендикулярно поверхности подложки. Согласно нашим данным, этот переход имеет место при $Q_{\text{InAs}} \approx 3.0 \div 3.3$ монослоя, что хорошо согласуется с результатами, приведенными в работе [10] для осаждения InAs в матрице (In,Al)As/InP, а также с наблюдениями [2,11] для системы $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ на GaAs, которая характеризуется приблизительно такой же величиной рассогласования между напряженным слоем и матрицей. Однако следует отметить, что в отличие от системы материалов $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ в исследуемом случае штриховой контраст картины ДБЭ выражен более слабо. Как мы полагаем, это свидетельствует о том, что трехмерные островки InAs, сформированные на поверхности InGaAs/InP, характеризуются меньшим отношением высоты к основанию, поскольку штриховой контраст образуется в результате прохождения электронного пучка сквозь микроскопический рельеф на поверхности.

На рис. 1, *a* приведена ПЭМ микрофотография (в планарной геометрии) структуры, сформированной в результате осаждения 6 монослоев InAs. Изображение получено вдоль направления [001] в рефлексе $g = 200$. На представленном изображении отчетливо наблюдается плотный массив островков. Характерный контраст обусловлен когерентным напряжением островков InAs. Средний диаметр основания островков, согласно данным ПЭМ (рис. 1, *a*), составляет приблизительно 50 нм, что заметно превышает соответствующую величину напряженных островков (In,Ga)As в матрице GaAs, которая в

зависимости от условий осаждения может варьироваться в пределах $8 \div 20$ нм [12]. Следует отметить, что размеры островков, определенные в настоящей работе с помощью дифракционной ПЭМ могут быть несколько завышены вследствие распространения полей напряжения в матрицу.

На рис. 1, *b* представлено изображение поперечного сечения образца ($g = 200$). Области темного контраста соответствуют InAs. Островки InAs, имеющие в сечении приблизительно треугольную форму, лежат на тонком смачивающем слое InAs. При зарастивании массива островков слоем InGaAs планарная поверхность роста восстанавливается, о чем свидетельствует отсутствие изгиба интерфейсов в сверхрешетке InGaAs/InAlAs (верхняя часть рис. 1, *b*). Типичная высота островков составляет приблизительно $4 \div 5$ нм. В согласии с данными ДБЭ островки характеризуются малым отношением высоты к основанию (1:10).

Таким образом, данные просвечивающей электронной микроскопии подтверждают формирование в активной области трехмерных напряженных островков в образцах с эффективной толщиной осажденного InAs, большей 3 МС. Подробному исследованию структурных свойств подобных структур методами ПЭМ, в том числе высокого разрешения, будет посвящена отдельная работа.

На рис. 2 представлены спектры фотолюминесценции (ФЛ) структур с различной эффективной толщиной осажденного InAs, измеренные при 77 К. Излучение из матрицы объемного (In,Ga)As, полученное для образца с $Q_{\text{InAs}} = 0$, имеет максимум при энергии 799 мэВ, при ширине пика 17 мэВ. В спектрах образцов, содержащих массив островков ($Q_{\text{InAs}} \geq 3$ МС), наблюдается интенсивная полоса, сильно сдвинутая в длинноволновую область по отношению к излучению из матрицы (In,Ga)As. Типичная ширина этой линии составляет $35 \div 37$ мэВ. Интегральная интенсивность ФЛ остается

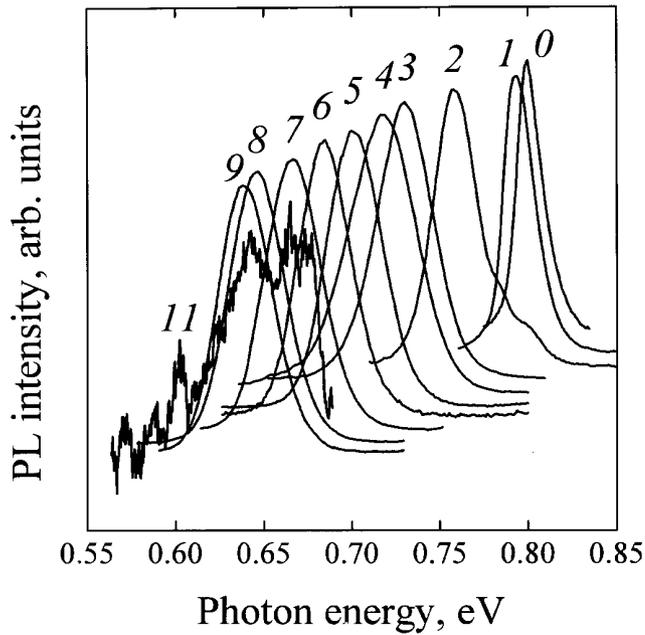


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции (77 К) гетероструктур (In,Ga)As/InAs/(In,Ga)As. Цифры у кривых — количество осажденного арсенида индия Q_{InAs} , измеренного в единицах монослоев.

приблизительно постоянной вплоть до $Q_{\text{InAs}} = 9$ МС, после чего наблюдается резкое падение интенсивности (более чем на 2 порядка в случае 11 МС). Для образца с $Q_{\text{InAs}} = 13$ МС не было зарегистрировано какого-либо сигнала люминесценции при использованной системе детектирования.

Увеличение количества осажденного InAs приводит к закономерному сдвигу максимума ФЛ в длинноволновую сторону. Энергетическое положение максимума линии ФЛ при 77 К как функции Q_{InAs} приведено на рис. 3. Экспериментальные данные сравниваются с результатами работы [13], в которой с помощью применения специальных технологических приемов формирование островков при осаждении InAs на поверхности (In,Ga)As было подавлено (квантовая яма (In,Ga)As/InAs/(In,Ga)As). Отчетливо видно, что, как только имеет место формирование трехмерных островков InAs, энергия пика становится значительно меньше значений, полученных для квантовой ямы. Энергетическая разница достигает 65 мэВ для островков в 9 МС. Полученные данные показывают, что излучение напряженных островков InAs в матрице (In,Ga)As перекрывает при 77 К диапазон длин волн 1.65–2.0 мкм. Наибольшая длина волны излучения, достигнутая в настоящей работе (77 К, $Q_{\text{InAs}} = 9$ МС), составляет 1.944 мкм.

Полученные данные, описывающие зависимость спектрального положения и интегральной интенсивности линии ФЛ в исследованных структурах с массивами островков InAs от количества осажденного материала, могут быть, как нам представляется, удовлетворительно объяснены в рамках следующей модели. Перераспределение

осажденного InAs, приводящее к формированию в активной области массива трехмерных островков, приводит к резкому увеличению энергии локализации носителей вследствие увеличения эффективного размера активной области в направлении, перпендикулярном интерфейсу, по сравнению со случаем двумерного распределения того же количества осажденного материала. Этим объясняется длинноволновый сдвиг линии ФЛ по отношению к излучению из квантовой ямы (In,Ga)As/InAs. При увеличении эффективной толщины осажденного арсенида индия, как и в случае островков InAs в матрице GaAs [2,7], имеет место увеличение среднего размера островков, что приводит к дальнейшему сдвигу линии люминесценции в сторону меньших энергий. В то же время псевдоморфный рост напряженных островков может поддерживаться до некоторого критического размера, сверх которого происходит образование дислокаций несоответствия. Дальнейшее увеличение количества осажденного InAs приводит к тому, что все большая доля островков превышает критический размер и не участвует в излучательной рекомбинации из-за большого числа дефектов [7]. В результате наблюдается снижение интегральной интенсивности люминесценции. Таким образом, можно заключить, что существенная доля островков InAs достигает критического размера при эффективной толщине осажденного материала порядка 11–13 МС.

На рис. 4 показаны температурные зависимости сдвига максимума полосы ФЛ. Как видно из этого рисунка, для структур с эффективной толщиной InAs, равной 6 и 9 МС, в области температур 10–80 К наблюдается более быстрое смещение максимума ФЛ в сторону меньших энергий фотонов по сравнению с образцом с

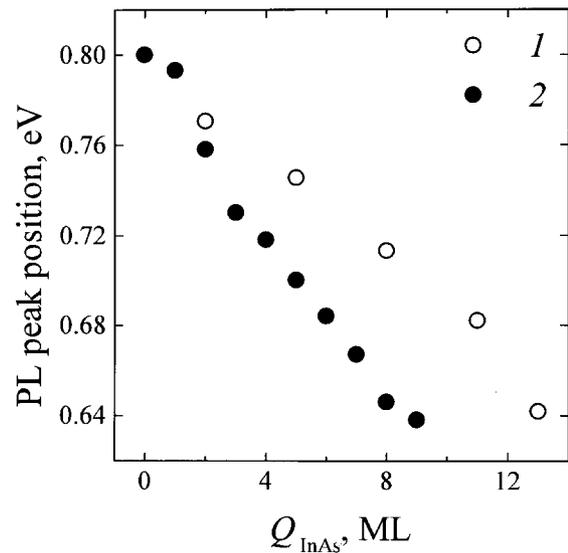


Рис. 3. Спектральное положение максимума линии фотолюминесценции (77 К) в зависимости от количества осажденного арсенида индия Q_{InAs} , измеренного в единицах монослоев (ML) для случаев: 1 — двумерного распределения InAs, согласно данным [13]; 2 — островкового распределения InAs, данные настоящей работы.

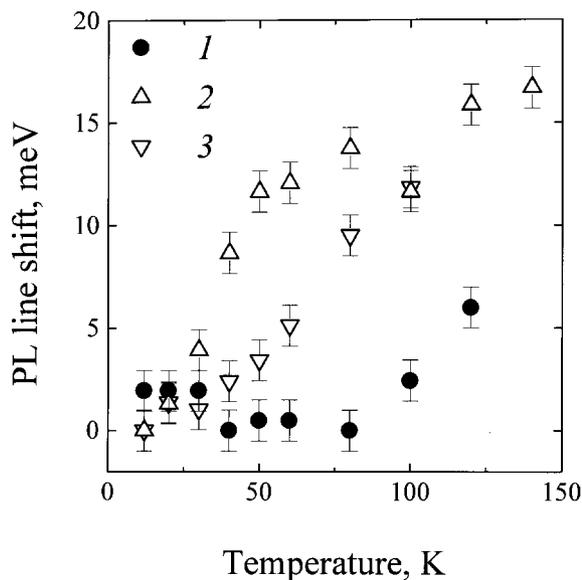


Рис. 4. Сдвиг максимума линии фотолюминесценции в зависимости от температур T в структурах, отличающихся количеством осажденного арсенида индия Q_{InAs} , МС: 1 — 2, 2 — 6, 3 — 9.

2 МС InAs, в котором образования КТ не произошли и сдвиг линии ФЛ которого отражает изменение ширины запрещенной зоны (In,Ga)As. Подобное значительное смещение полосы ФЛ также наблюдалось для КТ InAs в матрице GaAs [14] и было приписано разной энергии локализации для КТ различного размера. Возрастание температуры приводит к увеличению вероятности термического выброса неравновесных электронов и дырок из КТ небольшого размера, для которых энергия локализации невелика. Это приводит к уменьшению интенсивности коротковолновой области линии, обусловленной рекомбинацией через такие КТ, и, таким образом, к длинноволновому смещению полосы ФЛ. Поскольку в структуре с 3 МС InAs, которая соответствует начальному этапу формирования островков, КТ имеют меньшие размеры по сравнению со случаем осаждения 6 и 9 МС InAs, выброс носителей и, следовательно, смещение максимума полосы ФЛ начинается при более низких температурах.

Таким образом, методом МПЭ с использованием эффектов самоорганизации синтезированы массивы напряженных островков InAs в матрице (In,Ga)As и проведено предварительное исследование их структурных и оптических свойств. Переход к островковому росту InAs, согласно данным по ДБЭ и просвечивающей электронной микроскопии, происходит по достижении 3 монослоев. Образующиеся островки InAs лежат на тонком смачивающем слое, являются когерентно напряженными и имеют диаметр основания в пределах $20 \div 90$ нм при высоте $4 \div 5$ нм. Увеличение эффективной толщины осажденного InAs приводит к длинноволновому сдвигу максимума люминесценции, более быстро по срав-

нению со случаем двумерного распределения того же количества материала.

В заключение следует отметить, что структуры с напряженными островками InAs в матрице (In,Ga)As/InP позволяют продвинуться в диапазон длин волн до 2 мкм, обладая одновременно потенциальными возможностями нуль-мерных систем.

Работа была выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 96-02-17824) и программы Министерства науки РФ "Физика твердотельных наноструктур" (проект 2-001).

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).
- [3] J.M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, O. Vatel. Appl. Phys. Lett., **64**, 196 (1994).
- [4] S.V. Zaitsev, N.Yu. Gordeev, Yu.M. Sherniakov, V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, A.Yu. Egorov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, N. Kirstaedter, D. Bimberg. Proc. 9th Int. Conf. on Superlattices, Microstructures and Microdevices, July 14–19, 1996, Liege, Belgium.
- [5] V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.R. Kovsh, A.E. Zhukov, N.N. Ledentsov, M.V. Maksimov, A.F. Tsatsul'nikov, N.Yu. Gordeev, S.V. Zaitsev, Yu.M. Shernyakov, N.A. Bert, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, J. Bohrer, D. Bimberg, A.O. Kosogov, P. Werner, U. Gosele (Принято к печати в J. Cryst. Growth, **175** (1997)).
- [6] Ю.М. Шерняков, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, С.В. Зайцев, А.Р. Ковш, И.Л. Крестников, А.В. Лунев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.В. Сахаров, В.М. Устинов, Чжао Чжэнь, П.С. Копьев, Ж.И. Алферов, Д. Бимберг. Письма ЖЭТФ (в печати).
- [7] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов, А.Ф. Цацульников, Ж.И. Алферов, Д.Л. Федоров, Д. Бимберг. ФТП, **30**, 1345 (1996).
- [8] R.P. Mirin, J.P. Ibbetson, K. Nishi, A.C. Gossard, J.E. Bowers. Appl. Phys. Lett., **67**, 3795 (1995).
- [9] А.Е. Жуков, А.Ю. Егоров, В.М. Устинов, А.Ф. Цацульников, М.В. Максимов, Н.Н. Фалеев, П.С. Копьев. ФТП, **31**, 19 (1997).
- [10] S. Fafard, Z. Wasilewski, J. McCaffrey, S. Raymond, S. Charbonneau. Appl. Phys. Lett., **68**, 991 (1996).
- [11] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов. ФТП, **28**, 1439 (1994).
- [12] S. Ruvimov, P. Werner, K. Scheerschmidt, U. Richter, U. Gosele, J. Heydenreich, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Inst. Phys. Conf. Ser. No 146, 31 (1995).
- [13] E. Tounie, O. Brandt, K. Ploog. Semicond. Sci. Technol., **8**, S236 (1993).
- [14] А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, С.С. Рувимов, В.М. Устинов, В.В. Комин, И.В. Кочнев, П.С. Копьев, Ж.И. Алферов. ФТП, **30**, 1793 (1996).

Редактор Т.А. Полянская

Arrays of strained InAs quantum dots in an (In,Ga)As matrix grown on InP substrates by molecular beam epitaxy

V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, A.F. Tsatsul'nikov,
A.Yu. Egorov, A.R. Kovsh, M.V. Maximov,
A.A. Suvorova, N.A. Bert, P.S. Kop'ev

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

Abstract In the present work we report on the growth by molecular beam epitaxy and structural and optical characterization of the strained InAs quantum dots embedded in an (In,Ga)As matrix lattice matched to InP substrate. The onset of island growth mode after depositing 3 monolayers of InAs was revealed by transmission electron microscopy and high energy electron diffraction. The InAs islands formed are coherently strained and have a base length of order 20÷90 nm. The island formation leads to appearance of an additional long-wave dominant line in photoluminescence spectra that shifts towards lower energy with an increase in the effective InAs thickness. The emission of InAs islands covers the wavelength band within 1.65÷2 μm .