

Самоорганизация квантовых точек в многослойных структурах InAs/GaAs и InGaAs/GaAs при субмонослойной эпитаксии

© Г.Э. Цырлин, В.Н. Петров, С.А. Масалов, А.О. Голубок

Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,
198103 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 27 октября 1998 г. Принята к печати 18 ноября 1998 г.)

Приводятся экспериментальные результаты по исследованию методами дифракции быстрых электронов на отражение и сканирующей туннельной микроскопии многослойных структур квантовых точек InGaAs/GaAs, полученных методами субмонослойной эпитаксии на сингулярных и вицинальных подложках GaAs(100). Представленные результаты указывают на существование в многослойных структурах эффектов пространственного упорядочения нанообъектов как в случае InAs, так и в случае гетероэпитаксиальных слоев InGaAs.

1. Введение

Одним из основных направлений в современной фундаментальной и прикладной физике поверхности является изучение процессов формирования наноструктур путем самоорганизации поверхности при гетероэпитаксиальном росте в рассогласованных по параметру постоянной решетки системах [1,2]. Это связано с тем, что квантовые точки и квантовые проволоки, образующиеся в результате распада напряженного псевдоморфного слоя на границе раздела подобных полупроводников, открывают пути к созданию оптоэлектронных приборов нового поколения [3,4] и позволяют моделировать и изучать свойства "искусственных атомов" [5]. Достигнутый прогресс в теории образования наноструктур [6] и обнаружение эффектов упорядоченности квантово-размерных образований на поверхности в системе (InAs, InGaAs)/GaAs непосредственно при молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) [7,8] позволяют надеяться на получение квантово-размерных структур с заранее заданными геометрическими свойствами. В работе [9] предложена модель процесса самоорганизации квантовых точек, состоящая в создании многослойных структур, и приведены подтверждающие экспериментальные данные по "эффективной" самоорганизации $\text{Si}_{0.25}\text{Ge}_{0.75}$ на поверхности Si. Результаты [10] также подтверждают эффективность этой методики при формировании квантовых точек методом классической молекулярно-пучковой эпитаксии в системе InAs/GaAs. Использование так называемых "складированных" квантовых точек, т.е. многослойных систем с электронно-связанными в вертикальном направлении квантовыми точками, в качестве активной области полупроводникового лазера уже позволило существенно улучшить его приборные характеристики (пороговый ток, мощность излучения и характеристическая температура) [11,12].

Цель данной работы — исследование методами дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО) *in situ* и сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) *ex situ* морфологических характеристик ансамбля квантовых точек при их самоорганизации в многослойных структурах InAs/GaAs и InGaAs/GaAs, полученных ме-

тодами субмонослойной миграционно-стимулированной эпитаксии (СМСЭ) и субмонослойной молекулярно-пучковой эпитаксии (СМПЭ) на сингулярных и вицинальных подложках GaAs(100).

2. Эксперимент

Ростовые эксперименты проводились на установке ЭП1203 на сингулярных и разориентированных в сторону направления [011] подложках GaAs(100). Прошедшие химическую обработку по описанной в [13] методике образцы (сингулярный и вицинальные) 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 $T_s = 610 \div 630^\circ\text{C}$ в потоке As_4 методом традиционной МПЭ выращивался буферный слой GaAs толщиной 300 нм при сохранении реконструкции поверхности (2×4) и $T_s = 550^\circ\text{C}$. Буферный слой легировался бериллием до концентрации порядка 10^{16} 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 (4×4)). Соотношение потоков As_4/Ga было постоянным при всех экспериментах и равнялось 3. Формирование каждого из слоев квантовых точек InAs, InGaAs проводилось в режимах роста СМСЭ или СМПЭ, подробно описанных в [14]. При режиме СМСЭ заслонки элементов V и III групп открываются последовательно, в то время как при СМПЭ мышьяк осаждается все время, а поток металла направляется на подложку циклично.

Во всех случаях выращивалось 3 монослоя (МС) InGaAs или InAs при последовательном циклическом осаждении 0.5 монослоя материала (всего 6 циклов). Далее образовавшиеся трехмерные наноструктуры зарастивались слоем GaAs:Be (степень легирования $p = 10^{16} \text{ см}^{-3}$) методом традиционной МПЭ при той же $T_s = 470^\circ\text{C}$

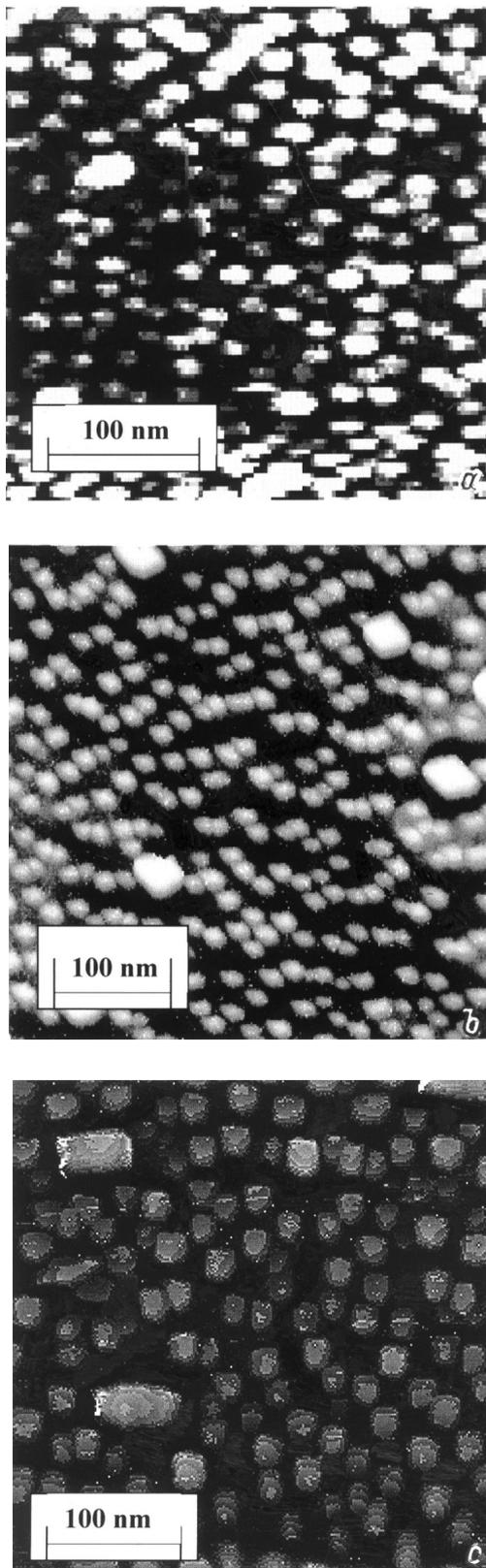


Рис. 1. СТМ изображения участков поверхности после осаждения одного слоя (а), пяти (b) и десяти слоев (с) InAs на GaAs(100). Стороны изображений параллельны направлениям $[011]$ и $[0\bar{1}1]$.

и процесс формирования квантовых точек повторялся. Для выращивания многослойных структур была создана специальная система автоматизации управления заслонками молекулярных источников по предварительно заданной программе с возможностью многократного повторения вложенных циклов. После завершения роста последнего слоя квантовых точек нагреватель образца немедленно отключался и удалялся из зоны держателя образца. Состояние поверхности контролировалось *in situ* с помощью автоматизированной системы регистрации и обработки картин дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО). Система состояла из высокочувствительной видеокамеры, видеомагнитофона для записи динамики картин ДБЭО во время роста с целью дальнейшей детальной обработки, компьютера для обработки видеoinформации в реальном масштабе времени и интерфейса, осуществляющего сопряжение видеокамеры с видеомагнитофоном и компьютером [15]. Калибровка скоростей роста GaAs и InAs проводилась предварительно с помощью измерения осцилляций интенсивности зеркального рефлекса на картине ДБЭО на калибровочном образце. Скорости роста GaAs и InAs в процессе экспериментов составляли соответственно 0.3 и 0.8–0.1 МС/с.

Морфология поверхности образцов исследовалась *ex situ* с помощью сканирующего туннельного микроскопа (СТМ), методика и режимы измерений описаны в [16,17]. Для проведения длительных СТМ измерений образцы после извлечения из камеры роста помещались в кремнийсодержащее вакуумное масло с целью защиты их поверхности от окисления. Подобная защита позволила получать воспроизводимые СТМ изображения в течение месяца после изъятия образцов из вакуумной камеры. Многократно воспроизводимые и устойчивые СТМ изображения были получены на различных участках исследуемых образцов в режиме постоянного тока при положительном смещении на образце.

3. Результаты и обсуждение

Исследование процессов гетероэпитаксиального роста многослойных структур *in situ* методом ДБЭО показало, что распад псевдоморфного слоя в верхних слоях на массив трехмерных островков происходит при меньшей толщине напыляемого материала по сравнению со случаем нижнего слоя. Так, в случае СМСЭ InAs/GaAs при формировании первого слоя многослойной структуры образование трехмерных островков происходит после напыления 1.7 МС, а на последующих слоях распад псевдоморфного слоя наблюдается уже после 1.0–1.1 МС. По нашему мнению, данный эффект объясняется накоплением напряжения, вызванного образованием трехмерных островков в нижних слоях, что вносит дополнительный вклад в суммарную упругую напряженность многослойной структуры. В меньшей степени он выражен при росте $\text{In}_{0.67}\text{Ga}_{0.33}\text{As}/\text{GaAs}$, где распад псевдоморфного слоя на

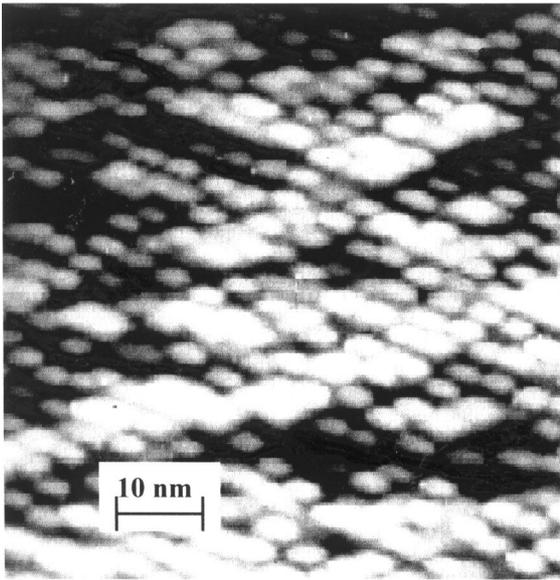


Рис. 2. СТМ изображение поверхности после осаждения 10 слоев квантовых точек InAs на сингулярную поверхность GaAs(100) при толщине слоев GaAs между слоями квантовых точек, равной 6 нм. Стороны изображения параллельны направлениям $[011]$ и $[0\bar{1}1]$.

первом слое наблюдается при 3.0 МС, а на последующих при $2.7 \div 2.8$ МС. Это, по-видимому, связано с меньшей напряженностью нанокристаллитов, либо с меньшей высотой островков InGaAs в матрице арсенида галлия по сравнению со случаем InAs. Подобный же эффект наблюдается в случае режима СМСЭ.

На рис. 1, *a-c* приведены СТМ изображения поверхности образцов после напыления в режиме СМСЭ одного, пяти и десяти слоев квантовых точек InAs на сингулярную поверхность GaAs(100) при средней толщине слоя арсенида галлия между ними 5 нм. Статистический анализ приведенных изображений указывает на то, что с ростом числа слоев в многослойной структуре происходит увеличение латеральных размеров квантовых точек и уменьшение их плотности, что особенно заметно при большем количестве слоев. Так, латеральные размеры составляют $d = 12$ и 18 нм, поверхностная плотность равна $\rho = 2.5 \cdot 10^{11}$ и $9 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ при 1 и 10 слоях квантовых точек соответственно. Следует отметить, что подобные тенденции наблюдались и методом просвечивающей электронной микроскопии на подобных образцах в работах [11,12]. При увеличении количества слоев наблюдается также появление квантово-размерных кристаллитов двух выраженных размеров при одновременном уменьшении отклонения от средних размеров островков и их локальная пространственная упорядоченность в ряды вдоль направлений $[010]$ и $[001]$. Плотность островков больших размеров невелика и составляет примерно 1/100 часть от общего количества квантовых точек.

Увеличение толщины слоя GaAs между слоями квантовых точек до величины 6 нм приводит к значительным изменениям в поверхностной морфологии. На рис. 2 приведено СТМ изображение поверхности после напыления 10 слоев квантовых точек InAs на сингулярную поверхность при данной толщине GaAs. Наблюдается три основных отличия по сравнению с рис. 1, *c*: большая степень пространственной упорядоченности квантовых точек вдоль направлений $[010]$ и $[001]$, их большая плотность и отсутствие островков различных размеров. Средние размеры и поверхностная плотность в данном случае составляют $d = 18$ нм и $\rho = 10^{11} \text{ см}^{-2}$.

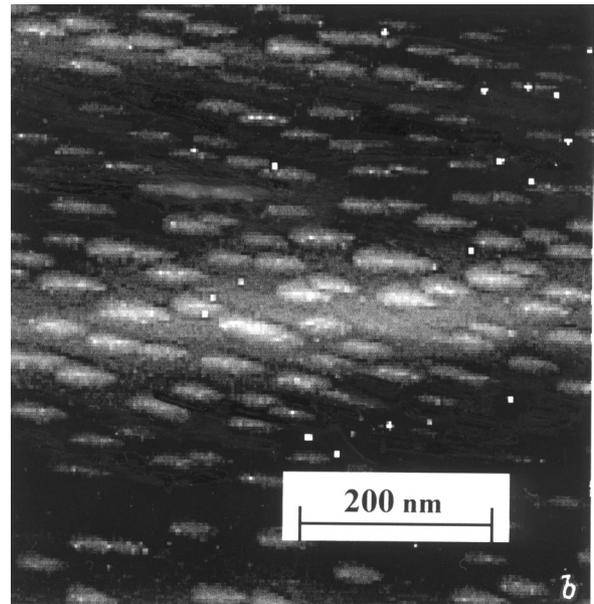
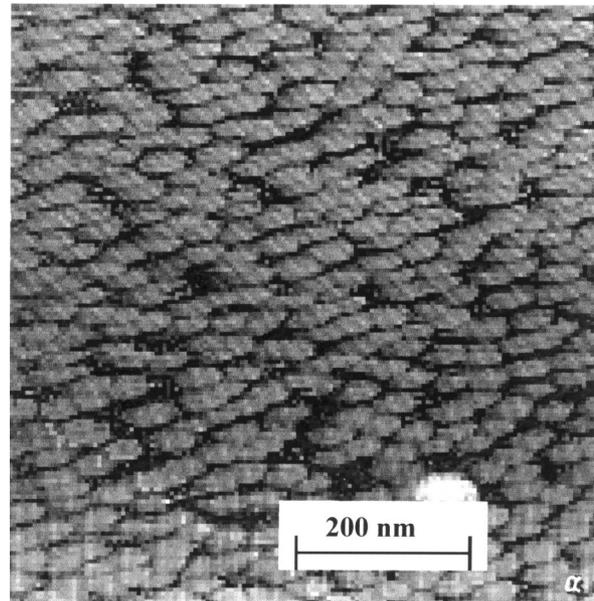


Рис. 3. СТМ изображения поверхности после напыления по методу СМСЭ одного (*a*) и десяти (*b*) слоев квантовых точек $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.67$) при толщине между слоями 50 нм. Стороны изображений параллельны направлениям $[011]$ и $[0\bar{1}1]$.

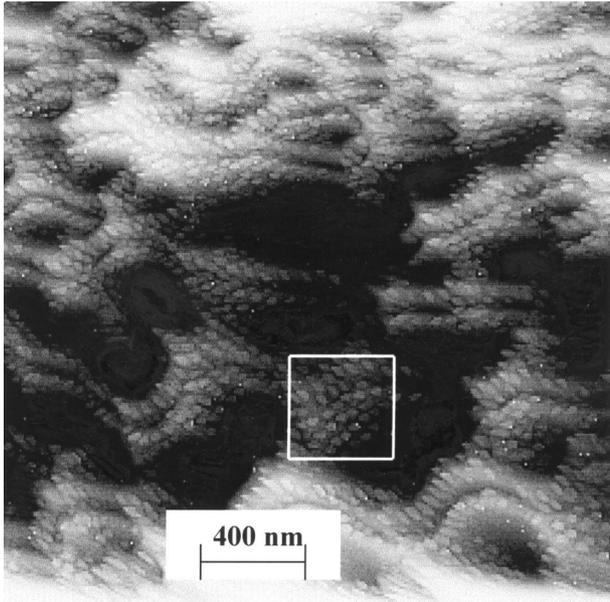


Рис. 4. СТМ изображение участка поверхности в случае использования подложки GaAs(100), разориентированной на 7° в сторону направления [011] при осаждении 20 слоев квантовых точек методом СМСЭ. Стороны изображения параллельны направлениям [011] и $[0\bar{1}1]$.

Изменение в составе твердого раствора $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.67$) также приводит к существенным изменениям в морфологии поверхности. На рис. 3 приведены СТМ изображения поверхности после напыления одного (рис. 3, *a*) и десяти слоев (рис. 3, *b*) квантовых точек (толщина между слоями 50 нм) при использовании метода СМСЭ. В случае одиночного слоя квантовые точки расположены изотропно. Для многослойной структуры характерно наличие анизотропии в пространственном расположении нанобъектов вдоль направлений [010] и [001] и характерных латеральных размеров вдоль направлений [011] и $[0\bar{1}1]$. Среднее отношение размеров в последнем случае равно 4. Следует отметить, что подобная анизотропия наблюдалась в работе [18], что приводило к анизотропии рабочих характеристик гетеролазеров, рабочая область которых состояла из многослойной структуры InGaAs/GaAs.

Дальнейшие исследования показали, что улучшение латеральной упорядоченности возможно при использовании вицинальных поверхностей и (или) при увеличении количества слоев квантовых точек. На рис. 4 приведено СТМ изображение участка поверхности площадью $2 \times 2 \text{ мкм}^2$ в случае использования подложки GaAs(100), разориентированной на 7° в сторону направления [011] при осаждении 20 слоев квантовых точек методом СМСЭ. Участки поверхности разбиты на гладкие террасы, расположенные между ступенями со средней высотой порядка 10–20 МС (3–6 нм). Образование данных ступеней обусловлено, по-видимому, известным эффектом складирования моноатомных ступеней, изна-

чально сформированных на вицинальной поверхности, в процессе эпитаксиального роста [19,20]. На поверхности террас образуются однородные массивы квантовых точек, ориентированные вдоль направлений [010] и [001] (например, внутри выделенного участка изображения).

4. Заключение

Таким образом, нами были проведены исследования методами ДБЭО и СТМ особенностей образования многослойных структур в системе InGaAs/GaAs(100) при субмонослойной эпитаксии из молекулярных пучков. Установлено, что критическая толщина образования квантовых точек уменьшается при увеличении количества слоев нанобъектов, что особенно заметно при напылении второго слоя. Данный эффект объясняется эффективным накоплением упругого напряжения в многослойной структуре по мере возрастания количества слоев. Показано, что увеличение количества слоев и (или) вицинальности поверхности приводит к большей упорядоченности квантовых точек на верхних слоях, увеличению их размеров и уменьшению плотности. Данный эффект характерен как для системы InGaAs/GaAs, так и InAs/GaAs. Изменение толщины спейсера между слоями квантовых точек приводит к изменениям в пространственном распределении квантовых точек в верхних слоях.

Авторы благодарят Н.К. Полякова, Д.Н. Демидова, Н.П. Корнееву и Ю.Б. Самсоненко за участие в ростовых экспериментах и Н.Н. Леденцова, Д. Бимберга и В.Г. Дубровского за полезные обсуждения.

Данная работа выполнена при частичной поддержке научной программы "Физика твердотельных наноструктур" (грант № 98-2029) и РФФИ (грант № 98-02-18317). Г.Э. Цырлин благодарит за финансовую поддержку ИНТАС (грант № YSF 98-54).

Список литературы

- [1] L. Goldstein, F. Flas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. Le Roux. Appl. Phys. Lett., **47**, 1099 (1985).
- [2] Y.-W. Mo, B.S. Swartzentruber, R. Kariotis, M.B. Webb, M.G. Lagal-Ly. Phys. Rev. Lett., **63**, 2393 (1989).
- [3] 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. Gössele, J. Heydenreich. Electron. Lett., **30**, 1416 (1994).
- [4] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, O. Schmidt, R. Heitz, J. Böhrer, D. Bimberg, V.M. Ustinov, V.A. Shchukin, A.Ya. Egorov, A.E. Zhukov, S. Zaitsev, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, S.S. Ruvimov, A.O. Kosogov, P. Werner, U. Gössele, J. Heydenreich. Sol. St. Electron., **40**, 785 (1996).
- [5] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Щукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП, **32**, 358 (1998).
- [6] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, D. Bimberg. Phys. Rev. Lett., **75**, 2968 (1995).

- [7] G.E. Cirlin, G.M. Guryanov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipsishev, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, M. Grundmann, D. Bimberg. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 97 (1995).
- [8] M. Grundmann, J. Christen, N.N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gössele, J. Heydenreich, V.M. Ustinov, A.Ya. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, *Zh.I. Alferov. Phys. Rev. Lett.*, **74**, 4043 (1995).
- [9] J. Tersoff, C. Teichert, M.G. Lagally. *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 1675 (1996).
- [10] S.A. Komarov, G.S. Solomon, J.S. Harris, Jr. *Proc. 5th Int. Symp. "Nanostructures; physics and technology 97"* (St.Petersburg, Russia, 1997) p. 314.
- [11] А.Е. Жуков, А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.Ф. Цацульников, С.В. Зайцев, Н.Ю. Гордеев, П.С. Копьев, Д. Бимберг, Ж.И. Алферов. *ФТП*, **31**, 483 (1997).
- [12] Ю.М. Шерняков, А.Ю. Егоров, Б.В. Воловик, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, А.В. Лунев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.В. Сахаров, В.М. Устинов, Чжао Чжень, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. *Письма ЖТФ*, **24**, вып. 9, 50 (1998).
- [13] 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).
- [14] G.M. Guryanov, G.E. Cirlin, V.N. Petrov, N.K. Polyakov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipsishev, 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] Г.М. Гурьянов, В.Н. Демидов, Н.П. Корнеева, В.Н. Петров, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цырлин. *ЖТФ*, **67**, вып. 8, 111 (1997).
- [16] G.M. Guryanov, G.E. Cirlin, V.N. Petrov, N.K. Polyakov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipsishev, E.P. Musikhina, V.B. Gubanov, Yu.B. Samsonenko, N.N. Ledentsov. *Surf. Sci.*, **331–333**, 414 (1995).
- [17] А.О. Голубок, С.А. Масалов, Н.Б. Пономарева, В.Н. Петров, С.Я. Типисев, Г.Э. Цырлин. *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*, вып. 2, 70 (1998).
- [18] Ю.М. Шерняков, А.Ю. Егоров, Б.В. Воловик, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, А.В. Лунев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.В. Сахаров, В.М. Устинов, Чжао Чжень, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. *Письма ЖТФ*, **24**, вып. 9, 50 (1998).
- [19] T. Ide, A. Yamashita, T. Mizutani. *Phys. Rev. D*, **46**, 1905 (1992).
- [20] P. Smilauer. *Vacuum*, **50**, 115 (1998).

Редактор Т.А. Полянская

Self-organizing quantum dots in InAs/GaAs and InGaAs/GaAs multilayer structures grown by submonolayer epitaxy

G.E. Cirlin, V.N. Petrov, S.A. Masalov, A.O. Golubok

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

Abstract Reflection high energy electron diffraction and scanning tunneling microscopy experimental results for multilayer InGaAs/GaAs quantum dot structures obtained by submonolayer epitaxy on singular and vicinal GaAs(100) substrates are presented. It is shown that the effects of surface spatial ordering are observed for both InAs and InGaAs on GaAs heteroepitaxial multilayered structures.