

07

## Ионно-лучевая кристаллизация наноструктур InAs/GaAs(001)

© С.Н. Чеботарев<sup>1</sup>, А.С. Пащенко<sup>1</sup>, А. Williamson<sup>2</sup>, Л.С. Лунин<sup>1</sup>,  
В.А. Ирха<sup>3</sup>, В.А. Гамидов<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Южный научный центр РАН, Ростов-на-Дону, Россия

<sup>2</sup> Aix-Marseille Université, Marseille, France

<sup>3</sup> Специальное конструкторско-технологическое бюро „ИНВЕРСИЯ“,  
Ростов-на-Дону, Россия

<sup>4</sup> Technische Universität Ilmenau, Ilmenau, Germany

E-mail: chebotarev.sergei@gmail.com

Поступило в Редакцию 19 сентября 2014 г.

Предложен метод ионно-лучевой кристаллизации наноструктур InAs/GaAs(001) с квантовыми точками. Уточнены коэффициенты распыления GaAs и InAs в диапазоне энергий  $E_{Ar^+} = 200\text{--}300\text{ eV}$  и угле падения аргонового пучка  $\theta = 30^\circ$ . Продемонстрирована возможность достижения скоростей роста до 0.1 ML/s для InAs, 0.05 ML/s для GaAs. Данные атомно-силовой и электронной микроскопии, фотолюминесценции, комбинационного рассеяния показывают, что повышение плотности тока пучка с 5 до  $15\text{ }\mu\text{A}/\text{cm}^2$  при энергии  $E_{Ar^+} = 200\text{ eV}$  и температуре подложки  $T = 480^\circ\text{C}$  приводит к увеличению латеральных размеров квантовых точек с 15 до 25 nm и поверхностной плотности с  $2 \cdot 10^{10}$  до  $9 \cdot 10^{10}\text{ cm}^{-2}$ . Повышение плотности тока до  $20\text{ }\mu\text{A}/\text{cm}^2$  при той же энергии ионов сопровождается резким увеличением средних латеральных размеров квантовых точек до 70 nm и уменьшением плотности до  $3 \cdot 10^{10}\text{ cm}^{-2}$ .

Полупроводниковые гетероструктуры на квантово-размерных эффектах получили широкое распространение в современной электронике. Наибольшие успехи достигнуты в создании лазеров и фотодетекторов на квантовых ямах и квантовых точках (КТ). Обнадеживающие перспективы наблюдаются в разработке фотоэлектрических преобразователей на гетероструктурах с КТ [1]. Общеизвестными и хорошо исследованными технологическими методами получения наногетероструктур являются молекулярно-лучевая и газофазная эпитаксии [2]. Помимо указанных технологических методов для получения наноматериалов с КТ активно адаптируются „классические“ методы: жидкофазная эпитаксия [3], распыление лазерными, электронными и ионными пучками [4].

Последний из вариантов использован нами ранее для формирования КТ в системе Ge/Si [5–7]. Цель работы заключалась в демонстрации возможности самоорганизованного роста КТ InAs на подложках GaAs(001), используя для создания ростового массопотока распыление мишени низкоэнергетическим аргоновым пучком малой плотности.

Получение экспериментальных образцов осуществляли в рабочей камере магистрально-модульного комплекса „ЦНА-9“. Предварительный вакуум обеспечивался двухступенчатой системой откачки, состоящей из форвакуумного (НВР-16Д) и турбомолекулярного (ТМН-1500) насосов. Глубокий вакуум в ростовой камере создавался магниторазрядными геттерными насосами (НВГМ-5-1), в транспортной камере — двумя геттерными насосами (НМДИ-0.25). Система вакуумирования поддерживала в транспортной камере давление порядка  $10^{-4}$  Па; в ростовой камере не хуже  $10^{-6}$  Па. Ростовая камера оснащена азотной криогенной панелью для вымораживания остаточных газов и несорбированных массопотоков. Нагрев подложки осуществлялся вольфрамовой спиралью в диапазоне температур 300–900°C.

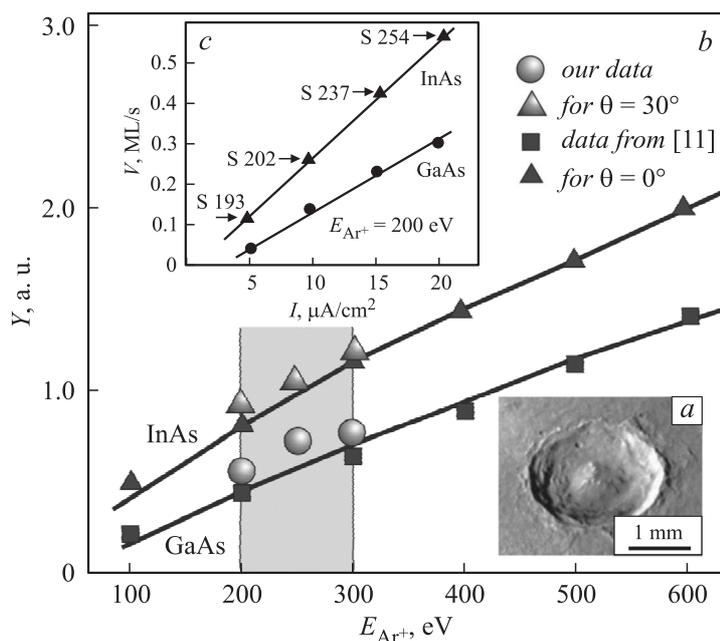
Описанная установка оснащалась ионным источником IQE 11/35 производства SPECS GmbH. Рабочим газом служил аргон сверхвысокой чистоты (ТУ 2114-006-45905715-2010). Диаметр ионного пучка в области контакта с мишенью составлял 21 mm при рабочем расстоянии „мишень–подложка“ 125 mm. Угол между аргоновым потоком и мишенью равнялся 30°. Энергия ионов изменялась в диапазоне 200–300 eV. Мишенями и подложками служили пластины арсенида галлия АГЧТ-1(001) и арсенида индия ИМЭТ-1(001) диаметром 50 mm.

Исследование морфологии поверхности образцов проводилось на атомно-силовом микроскопе Solver-HV в полуконтактном режиме зондами серии NSG10. Изучение смачивающих слоев и отдельных квантовых точек проводили на просвечивающем электронном микроскопе (ПЭМ) Теснаі G2 Spirit. Фотолюминесценцию наноструктур исследовали в спектральном диапазоне от 620 до 2480 meV при температуре 77 К. Источником оптического излучения служил инжекционный лазер с длиной волны 402 nm и мощностью излучения 8.5 mW. Регистрацию фотолюминесцентного сигнала осуществляли с помощью монохроматора МДР-23 и германиевого *p-i-n*-фотодиода, охлаждаемого жидким азотом. Спектры комбинационного рассеяния измеряли на InVia Raman спектрометре производства Renishaw Inc. Возбуждение осуществлялось аргоновым лазером мощностью 10 mW на длине волны 476 nm.

В системе InAs/GaAs переход от 2D- к 3D-росту в режиме Странского–Крастанова происходит при критической толщине слоя InAs 1.5 ML [8]. Для поддержания режима самоорганизации при ионно-лучевой кристаллизации на поверхности GaAs важно обеспечить сверхмалую скорость осаждения (доли монослоя в секунду). Она определяется массопотоком распыленного материала, который характеризуется коэффициентом распыления  $Y$ . Для создания сверхмалых скоростей роста на подложке необходимо обеспечить условия реализации минимальных коэффициентов распыления. Определение коэффициентов распыления обычно осуществляют прецизионным взвешиванием или измерением высоты ступеньки маскированного слоя на подложке [9]. Нами предложено измерять объем образовавшегося на мишени кратера, что в совокупности с данными о токе аргонового пучка и плотности материала позволяет рассчитать коэффициенты распыления. Изображение типичного кратера показано на рис. 1, *a*. Оптическая и электронная микроскопия не могут быть использованы для измерения объема. Атомно-силовая микроскопия не позволяет измерять объекты с размерами более  $50 \times 50 \mu\text{m}$ . Идеальным вариантом решения этой задачи является лазерная сканирующая конфокальная микроскопия. Встроенное программное обеспечение микроскопа Keyence VK-9700 автоматически рассчитывает объем кратера.

Отметим, что результаты измерения коэффициента распыления арсенида галлия аргоновым пучком представлены в статье [10]. Известные нам результаты исследования распыления арсенида индия при нормальном падении аргонового пучка выполнены только в ФТИ им. А.Ф. Иоффе [11]. Однако для распыления материала на подложку нормальное падение пучка непригодно. Необходимы данные о распылении материала под другими углами. На рис. 1, *b* показаны литературные и авторские данные о низкоэнергетичных коэффициентах распыления GaAs и InAs аргоновым пучком. В выделенной серым цветом области энергий 200–300 eV показаны результаты измерений коэффициентов распыления при угле падения  $\theta = 30^\circ$ , выполненные по описанной выше методике. Более высокие значения коэффициентов распыления GaAs и InAs для угла  $\theta = 30^\circ$  согласуются с теорией Ямамуры [12].

При выбранной конфигурации „мишень–подложка“ осаждается весь распыленный материал. На рис. 1, *c* показаны калибровочные зависимости скорости осаждения GaAs и InAs в зависимости от плотности тока аргонового пучка. Энергия ионов поддерживалась постоянной и



**Рис. 1.** Кратер после распыления (а). Коэффициенты распыления InAs и GaAs (b). Скорость ионно-лучевой кристаллизации (с).

составляла  $E_{Ar^+} = 200$  eV. Видно, что для выбранной пары двухкомпонентных полупроводников даже на широко распространенном ионном оборудовании достижимы скорости роста в десятые доли монослоя в секунду.

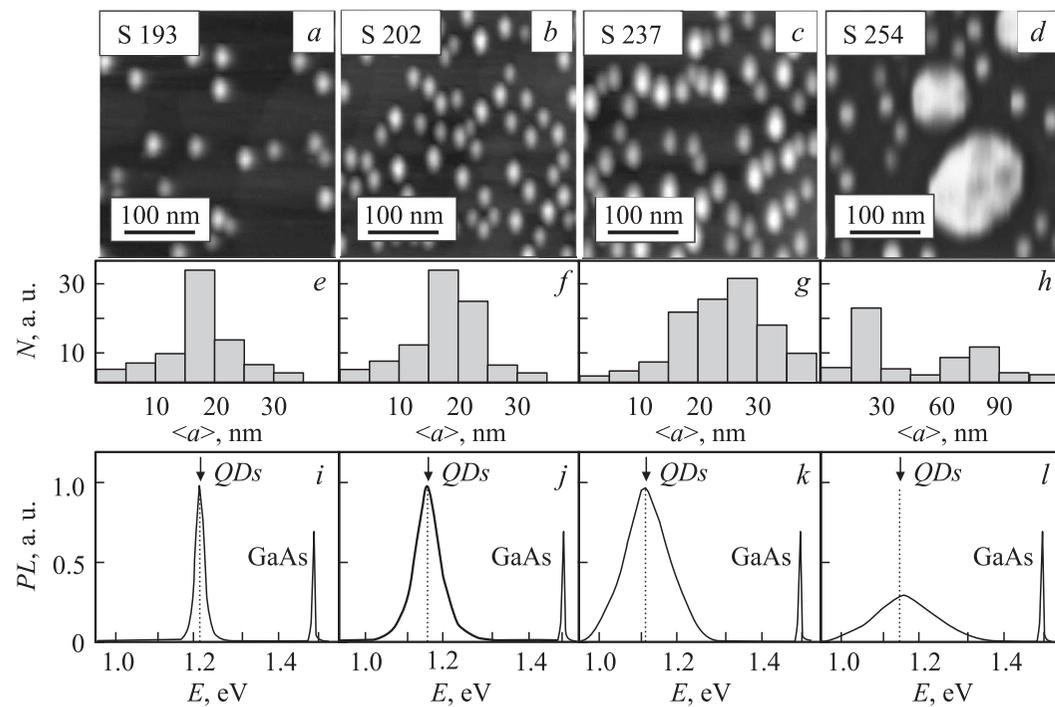
Использовались мишени InAs(001) и GaAs(001), подвергнутые стандартной химической обработке. Подложка и мишень предварительно отжигались. На подложку при температуре  $580^\circ C$  наносился  $0.5 \mu m$  слой арсенида галлия. Варьируемым параметром выступала плотность тока аргонового пучка, задающая скорость процесса  $V$ . Самоорганизованный рост массива КТ осуществлялся из распыленного потока InAs при температуре подложки  $480^\circ C$ . Толщина „квасислоя“ в экспериментах с разной скоростью осаждения выдерживалась постоянной и равнялась  $2.5$  nm. Прерывание процесса роста осуществлялось стоп-экраном. Выращенные образцы (S 193, S 202, S 237, S 254) подвергались микро-

скопическим исследованиям. Для фотолюминесцентных, рамановских и ПЭМ-измерений приготавливалась другая партия образцов. Вначале получали массив КТ InAs при разных плотностях тока аргонового пучка в условиях, описанных выше. Затем на образцы при температуре  $450^\circ$  со скоростью  $0.2 \text{ ML/s}$  наносился покровный слой арсенида галлия толщиной  $25 \text{ nm}$ .

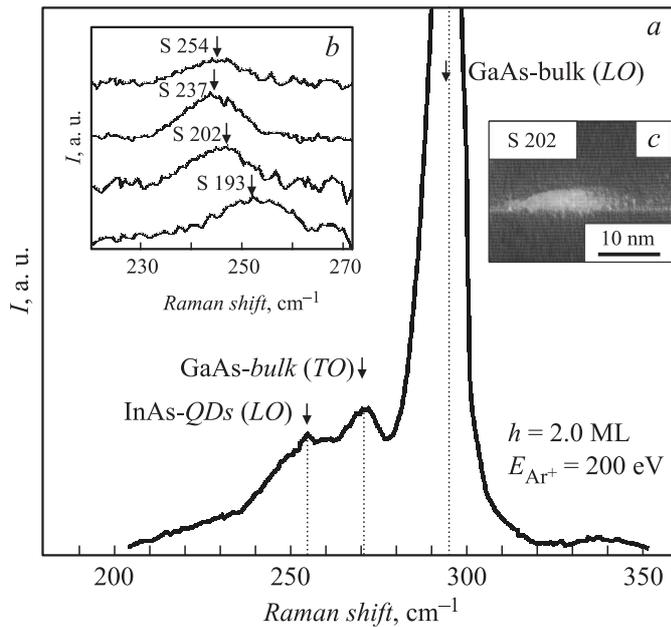
Результаты АСМ-исследования морфологии поверхности образцов без покровного слоя показаны на рис. 2, *a–d*. Возрастание плотности первичного аргонового пучка с  $5$  до  $15 \mu\text{A/cm}^2$  приводит при равных температурных условиях к повышению поверхностной плотности КТ с  $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  до  $9 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Также наблюдается увеличение среднего латерального размера КТ с  $15$  до  $25 \text{ nm}$ , что наглядно демонстрируется диаграммами на рис. 2, *e–g*. При повышении плотности тока до  $20 \mu\text{A/cm}^2$  наблюдается формирование *dome*-структур с размерами  $60–100 \text{ nm}$  (рис. 2, *d*). Средняя поверхностная плотность падает до  $3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ , а усредненный размер наноструктур составляет порядка  $55 \text{ nm}$  (рис. 2, *h*).

Нормализованные по интенсивности спектры фотолюминесценции образцов с покровным слоем приведены на рис. 2, *i–l*. Пики фотолюминесценции, формируемые при переходах на квантовых ямах, менее интенсивны. Можно выделить 2 особенности фотолюминесценции выращенных образцов: первая проявляется в виде уширения пика фотолюминесценции КТ и связывается нами с увеличением неоднородности их размеров при больших плотностях аргонового пучка, вторая заключается в „красном“ смещении максимума спектра фотолюминесценции, обусловленном увеличением размеров КТ для образцов S 193, S 202, S 237, полученных при плотностях тока  $5$ ,  $10$  и  $15 \mu\text{A/cm}^2$  соответственно. С повышением плотности тока до  $20 \mu\text{A/cm}^2$  (образец S 254), как установлено выше, на поверхности GaAs формируется массив КТ InAs с большой долей *dome*-структур. Этот факт проявляется на спектре фотолюминесценции сильным снижением интенсивности КТ пика, обусловленного уменьшением доли *hut*-структур (рис. 2, *l*).

Рис. 3, *a* отражает спектр комбинационного рассеяния образца S 193 с покровным слоем. Наблюдается интенсивный пик при  $295 \text{ cm}^{-2}$ , обусловленный рассеянием LO-фононов подложки GaAs при  $x(yz)\bar{x}$ -поляризации. Слабый пик при  $270 \text{ cm}^{-2}$  отвечает рассеянию на TO-фононах GaAs. Правее при  $254 \text{ cm}^{-2}$  различим пик комбинационного рассеяния на КТ InAs. На рис. 3, *b* приведены спектры комбинационного



**Рис. 2.** АСМ-изображения массивов КТ InAs (*a–d*). Гистограммы распределения по размерам (*e–h*). Спектры фотолюминесценции (*i–l*).



**Рис. 3.** Спектр комбинационного рассеяния образца S 193 (a). Фоновые спектры наноструктур InAs–КТ/GaAs (b). ПЭМ-изображение КТ образца S 202 (c).

рассеяния для образцов, полученных при разных плотностях ионного тока. Смещение пиков обусловлено в первую очередь уменьшением упругих напряжений в слоях с КТ, во вторую — увеличением средних размеров КТ. Пики дрейфуют к *LO*-фононному рассеянию на недеформированном монокристаллическом арсениде индия при  $242 \text{ cm}^{-2}$ . Отметим, что увеличение размеров КТ образца S 254 сопровождается незначительным обратным смещением пика КРС. Это объясняется, по-видимому, сильной релаксацией упругих напряжений в слое с *dome*-структурами. На рис. 3, c в качестве примера представлено ПЭМ-изображение одиночной КТ *hut*-типа, где отчетливо виден смачивающий слой. Полученные данные комбинационного рассеяния коррелируют с результатами микроскопических и фотолюминесцентных измерений.

В работе продемонстрирована возможность получения методом ионно-лучевой кристаллизации наноструктур InAs–QD/GaAs(001). Уточнены коэффициенты распыления монокристаллических арсени-

да галлия и арсенида индия при малых энергиях распыления  $E_{Ar^+} = 200\text{--}300\text{ eV}$  и угле падения аргонового пучка  $\theta = 30^\circ$ . Коэффициенты распыления рассчитывались по результатам измерений объемов кратера распыленного материала, выполненных с использованием лазерной конфокальной микроскопии. Показана возможность достижения сверхмалых скоростей роста до 0.1 ML/s для InAs и 0.05 ML/s для GaAs. Данные атомно-силовой и электронной просвечивающей микроскопии, фотолюминесценции и комбинационного рассеяния показывают, что повышение плотности тока пучка с 5 до  $15\text{ }\mu\text{A}/\text{cm}^2$  при энергии  $E_{Ar^+} = 200\text{ eV}$  и температуре подложки  $T = 480^\circ\text{C}$  приводит к увеличению латеральных размеров КТ *hut*-типа с 15 до 25 nm и поверхностной плотности с  $2 \cdot 10^{10}$  до  $9 \cdot 10^{10}\text{ cm}^{-2}$ . Повышение плотности тока до  $20\text{ A}/\text{cm}^2$  при той же энергии ионов сопровождается образованием не пригодных для изготовления приборных структур *dome*-типа со средним размером 70 nm. Поверхностная плотность падает до  $3 \cdot 10^{10}\text{ cm}^{-2}$ . Таким образом, показано, что условия выращивания образца S202 (средний латеральный размер *hut*-КТ — 15 nm, поверхностная плотность —  $6 \cdot 10^{10}\text{ cm}^{-2}$ ) являются приемлемыми для получения методом ионно-лучевой кристаллизации квантово-размерных оптоэлектронных гетероструктур.

Авторы благодарят д.т.н. А.П. Савостьянова (центр коллективного пользования „Нанотехнологии“ Южно-Российского государственного политехнического университета) за оказание содействия в проведении фотолюминесцентных измерений, к.ф.-м.н. Г.В. Валова (Южный научный центр) за проведение микроскопических исследований.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках ФЦП „Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития научно-технологического комплекса России на 2014–2020 годы“ (соглашение о предоставлении субсидии № 14.576.21.0033, уникальный идентификатор RFMEFI57614X0033).

## Список литературы

- [1] Luque A., Linares P.G., Mellor A., Andreev V.M., Marti A. // Appl. Phys. Lett. 2013. V. 103. P. 123 901.
- [2] Антонов А.В., Востоков Н.В., Дроздов М.Н., Молдавская Л.Д., Шашкин В.И., Хрыкин О.И., Яблонский А.Н. // ФТП. 2010. Т. 44. В. 11. С. 1511–1513.

- [3] *Мусеев К.Д., Пархоменко Я.А., Гущина Е.В., Анкудинов А.В., Михайлова М.П., Берт Н.А., Яковлев Ю.П.* // ФТП. 2009. Т. 43. В. 8. С. 1142–1150.
- [4] *Verma V.B., Reddy U., Dias N.L., Bassett K.P., Li X., Coleman J.J.* // J. Quantum electronics. 2010. V. 46. N 12. P. 1827–1833.
- [5] *Чеботарев С.Н., Пащенко А.С., Лунин Л.С., Ирха В.А.* // Письма в ЖТФ. 2013. Т. 39. В. 16. С. 30–37.
- [6] *Лунин Л.С., Чеботарев С.Н., Пащенко А.С.* // Неорганические материалы. 2013. Т. 49. № 5. С. 457–461.
- [7] *Лунин Л.С., Чеботарев С.Н., Пащенко А.С., Дудников С.А.* // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2013. № 1. С. 40–45.
- [8] *Leonard D., Pond K., Petroff P.M.* // Phys. Rev. B. 1994. V. 50. N 16. P. 11 687–11 692.
- [9] *Берт Н.А., Сошников И.П.* // ЖТФ. 1997. Т. 67. В. 6. С. 113–117.
- [10] *Sigmund P.* // Thin Solid Films. 2012. V. 520. P. 6031–6049.
- [11] *Soshnikov I.P., Kudriavtsev Yu.A., Lunev A.V., Bert N.A.* // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. B. 1997. V. 127/128. P. 115–118.
- [12] *Matsunami N., Yamamura Y., Hikawa H., Itoh N., Kazumata Y., Miyagawa S., Morita K., Shimuzu R., Tawara H.* // Atomic Data and Nuclear Data Tables. 2002. V. 31. P. 1–80.