

Формирование структуры квантовых нитей InGaAs в матрице арсенида галлия

© Л.К. Орлов, Н.Л. Ивина

Институт физики микроструктур Российской академии наук,
603950 Нижний Новгород, Россия

E-mail: orlov@ipm.sci-nnov.ru

(Поступила в Редакцию 1 июля 2003 г.)

Обсуждается возможность формирования массивов одномерных квантовых проводников на базе пористых многослойных структур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с двумерным газом носителей заряда в слоях $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. Переход от монокристаллической матрицы к пористой прослеживается методом сканирующей атомно-силовой микроскопии. Понижение размерности электронно-дырочного газа в формируемых объектах, т.е. переход от двумерной системы к одномерной, устанавливается из анализа зависимостей положения и ширины спектральной линии в спектрах фотолюминесценции от времени травления образца. Подобная процедура осуществлена как на многослойных периодических сверхрешетках, так и на структуре с одиночным слоем $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, расположенным в приповерхностном слое арсенида галлия. Выполнены измерения электрофизических характеристик электронов в пористых сверхрешетках в зависимости от температуры, подтверждающие не только формирование новой структуры вещества, но и показывающие смену механизма рассеяния электронов в квазиодномерных транспортных каналах, формируемых в системе.

Работа выполнена в рамках гранта Министерства образования Российской Федерации (грант № E02-3.4-347) и при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 01-02-16778).

В последние годы заметно возрос интерес к пористым полупроводниковым материалам, на основе которых естественным образом непосредственно в процессе электрохимического травления кристалла могут быть сформированы объекты пониженной размерности, включая двумерные плоскости [1,2], квантовые проволоки [3,4] и туннельно-связанные цепочки квантовых нульмерных гранул [5,6]. Одна из таких идей, направленная на создание системы квантовых проволок, связывается с заполнением пор исходной диэлектрической матрицы (предполагаются пористый Si, кристаллы опала и цеолиты [7,8]) веществом другого химического состава, имеющего металлический, либо полупроводниковый тип проводимости. Однако практическая реализация идеи использования пористого материала для формирования в его плоскостях низкоразмерных включений, в том числе обладающих свойствами квантовых сверхрешеток [8], сталкивается с серьезными проблемами. Последние связаны, прежде всего, с трудностью формирования внутри пор исходной матрицы нитей другого материала нанометрового сечения с совершенной кристаллической структурой и малой степенью разброса параметров, и одновременно обладающих приемлемыми электрическими характеристиками.

Для обсуждения предлагается отличная от высказанных другими авторами идея создания массивов квантовых проволок в объеме полупроводниковой матрицы. Способ изготовления двумерных массивов квантовых нитей основан на их самоформировании в процессе электролитического травления слоистых гетероэпитаксиальных структур, в которые непосредственно при их эпитаксиальном выращивании уже встроены слои нанометровой толщины с двумерным электронно-дырочным

газом [9–11]. Доказательство успешной реализации идеи формирования двумерных массивов квантовых нитей в пористых многослойных гетерокомпозициях требует, однако, проведения более тщательного, чем это сделано в [9–11], анализа свойств формируемых объектов различными методами и по возможности на большем числе разнообразных структур.

В настоящей работе обсуждается характер изменения структуры кристалла и свойств электронно-дырочного газа до начала и после окончания процесса электрохимического травления образцов на основе данных, полученных методом сканирующей атомно-силовой микроскопии, фотолюминесценции и эффекта Холла. Более детально, чем в [10], на примере как многослойных, так и однослойных структур, проанализированы характер сдвига и ширины спектральных линий фотолюминесценции в зависимости от времени травления образца (от поперечного, вдоль плоскости роста структуры, размера нитей, формирующих квантовую сетку). Для экспериментов в качестве исходной матрицы были выбраны эпитаксиальные однослойные и многослойные, в том числе периодические, полупроводниковые гетероструктуры $\text{GaAs}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, выращенные методом газофазной эпитаксии при атмосферном давлении на полуизолирующих подложках GaAs (100) [12]. Слои $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ в исходных образцах образовывали одиночные либо двойные квантовые ямы. Структуры были селективно легированы донорной примесью до концентрации $10^{16} - 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Общее число N квантово-размерных слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ в выбранных структурах варьировалось от 1 до 10. Краткая информация о составе и толщинах слоев в исследованных структурах представлена в таблице. Квантовые ямы в многослойной структуре отстояли одна от

Параметры структур GaAs/InGaAs/GaAs, использованных в эксперименте

№ образца	x	Число слоев InGaAs	d_1 , nm	d_{qw} , nm	d_b , nm	D , nm
1 — 3253	0.15	1		9		—
2 — 3253	0.15	3		7, 9, 11		30
3 — 2053	0.25	10	21	7	7	70
4 — 2039	0.25	8	15	5	5	70
5 — 2040	0.25	10	23	9	5	70

Примечание. Здесь d_{qw} — толщина отдельной квантовой ямы, d_b — толщина барьера в двойной квантовой яме, $d_1 = 2d_{qw} + d_b$ — толщина двойной квантовой ямы, x — содержание индия в тройном соединении.

другой в матрице GaAs на расстоянии D , составляющем несколько десятков нанометров.

Выбранная процедура формирования двумерных массивов, образованных одномерными проводниками, заключалась в вытравливании вертикальных каналов в кристалле, секущих плоскости слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, встроенных в матрицу GaAs. Электрохимическое травление проводилось в спиртовом растворе фтористо-водородной кислоты при плотностях токов 20–40 мА/см² в присутствии ультрафиолетовой подсветки. Токи при этом текли по слоям структуры вдоль поверхности образца. В процессе травления структуры возникающие в материале поры со временем растравливаются, толщина поперечных перегородок уменьшается, что может в конечном итоге сказаться на характеристиках электронов (дырок), локализованных в слоях тройного соединения. В частности, при формировании пористого кристалла на базе структур, содержащих двумерный электронный газ, можно ожидать понижения размерности его электронной подсистемы вследствие появления дополнительного пространственного ограничения двумерных носителей заряда не только в направлении, перпендикулярном плоскости слоев, но и в плоскости формируемой двумерной сетки. Свойства формируемого плоского массива квазиодномерных нитей могут существенным образом отличаться от свойств исходной полупроводниковой структуры.

Факт формирования пористой структуры в образце подтверждается снимками поверхности образца на сканирующем зондовом микроскопе (рис. 1) [9,10]. До травления (рис. 1, *a*) поверхность имела полосчатый вид с глубиной канавок до 4 нм. Наблюдаемая структура поверхности может быть связана со ступенями роста, но нельзя исключать из рассмотрения и качество полировки применяемых для эпитаксии пластин. После окончания процесса травления (рис. 1, *b*) поверхность структуры кардинальным образом меняется и приобретает вид, характерный для пористых систем. На поверхности исследуемых образцов наблюдалось значительное число пор с видимой глубиной до 100 нм. Геометрия травления структуры (контакт электролит–полупроводник и металлический (Au) контакт расположены с одной

стороны пластины) была выбрана такой, что линии тока в гетерокомпозиции, выращенной на полуизолирующей GaAs подложке, были направлены как поперек, так и вдоль поверхности образца, в основном по слоям $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, обладающим достаточно высокой двумерной проводимостью. Геометрия линий тока, возможно, способствовала тому, что травление образцов могло идти как в поперечном, так и в продольном (вдоль плоскости слоев структуры) направлении, формируя в слоях $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ двумерную сетку из сложного переплетения нитей.

В качестве метода, позволяющего обнаружить эффект формирования массивов квантовых нитей в плоскости двумерного слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ при травлении образца, естественно выбрать любой из оптических методов (например, фотолюминесценцию), положительно зарекомендовавших себя при тестировании других низкоразмерных объектов. Измерения фотолюминесцентных спектров были выполнены на стандартном решеточном спектрометре (МДР-23) с возбуждением от гелий-неонового лазера. В качестве приемника использовались либо электронный фотоумножитель, либо охлаждаемый Ge диод. Отчетливо наблюдаемая при температуре жидкого азота линия фотолюминесценции от измеряемой структуры позволяет легко проследить по изменению

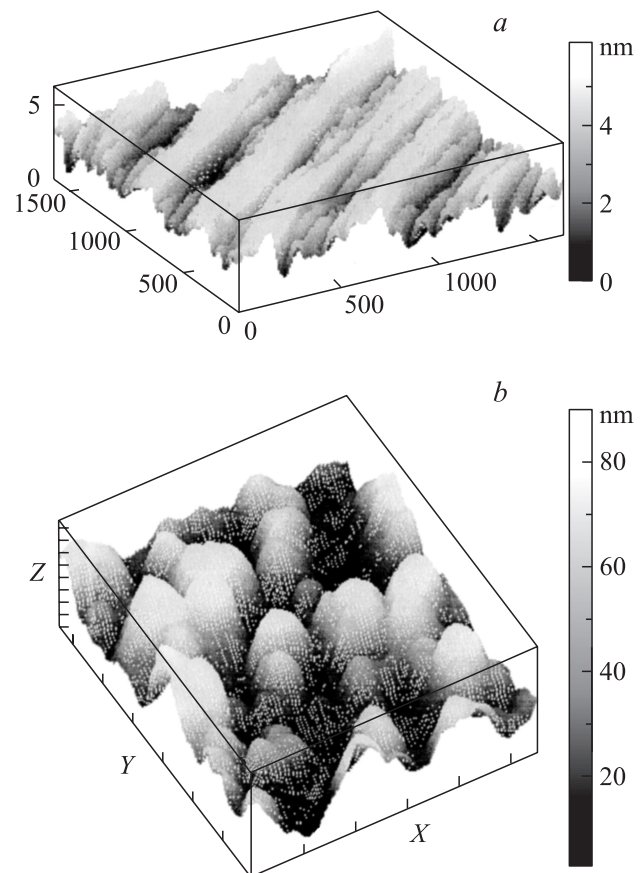


Рис. 1. Изображения поверхности структуры (образец 4), полученные методом сканирующей атомно-силовой микроскопии до начала (*a*) и после окончания (*b*) процесса травления.

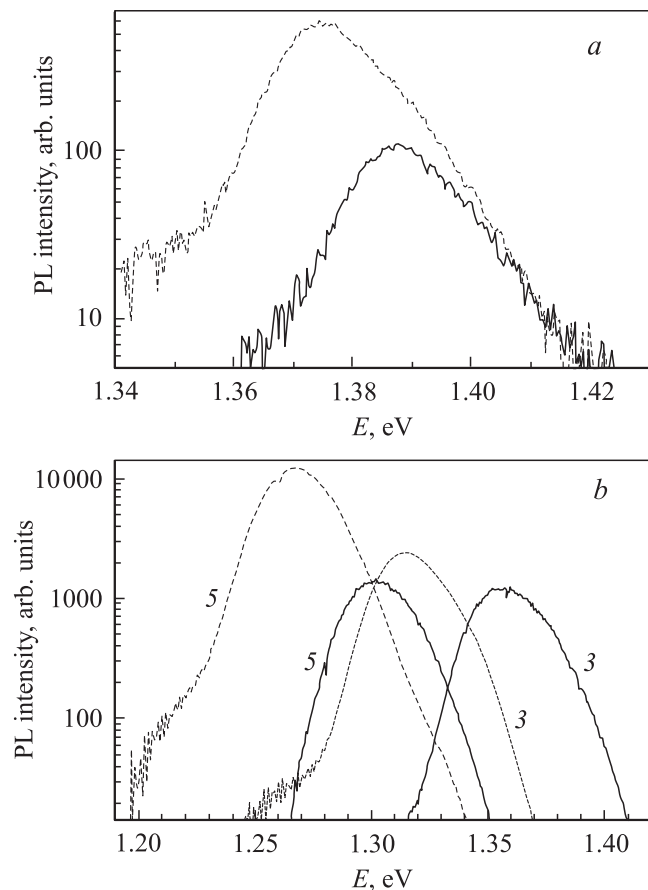


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции, снятые при $T = 77$ К от образцов *1* (*a*), *3* и *5* (*b*) до начала (штриховые кривые) и после окончания процесса травления (сплошные линии), проведенного в течение 23 (для образца *1*) и 110 min (для образцов *3, 5*).

положения и ширины спектральной линии возможную трансформацию двумерного спектра электронно-дырочного газа системы в одномерный при электрохимическом травлении образца. Прежде всего, при травлении структуры в спектре фотолюминесценции предполагалось обнаружить, и это было подтверждено первыми экспериментами [10], тенденцию к сдвигу линии излучения в более высокую область частот при одновременном уменьшении ее ширины вследствие резкого возрастания плотности электронных состояний при понижении размерности системы.

Использование для реализации поставленной цели эпитаксиальных гетерокомпозиций с небольшим числом квантовых ям (образцы *1, 3* в таблице), расположенных достаточно близко к внешней поверхности структуры, требует выбора особых условий травления, чтобы вытравливание микропор в кристалле не сопровождалось одновременным стравливанием поверхности образца в целом [11]. В этом случае удастся проследить за ходом влияния микропористости на фотолюминесцентные свойства даже для одного-единственного слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, удаленного от внешней поверхно-

сти на незначительное (около $1 \mu\text{m}$) расстояние. Характерный спектр фотолюминесценции для одной из таких структур (образец *1* в таблице) с одним квантово-размерным слоем $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$, измеренный при температуре $T = 77$ К, приведен на рис. 2, *a* (штриховая кривая). Здесь же представлен вид резонансного пика, полученный после травления образца в течение 23 min (сплошная кривая). Линия излучения от двумерного пористого слоя $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ испытывает небольшое, но достаточно заметное смещение в коротковолновую область спектра.

Аналогичный коротковолновый сдвиг линии фотолюминесценции наблюдался во всех без исключения исследованных пористых структурах, в том числе в пористых сверхрешетках (образцы *3–5*), содержащих последовательность двойных симметричных квантовых ям (рис. 2, *b*). В отличие от образца *4*, подробно изученного раньше [9,10], общее время травления образцов *3, 5* было увеличено и достигало примерно двух часов. Нужно заметить, что исходные спектры всех сверхрешеток (штриховые кривые) имели достаточно большую ширину W порядка 30 meV на полувысоте спектральной линии, обусловленную естественным разбросом параметров слоев, и с большой точностью опи-

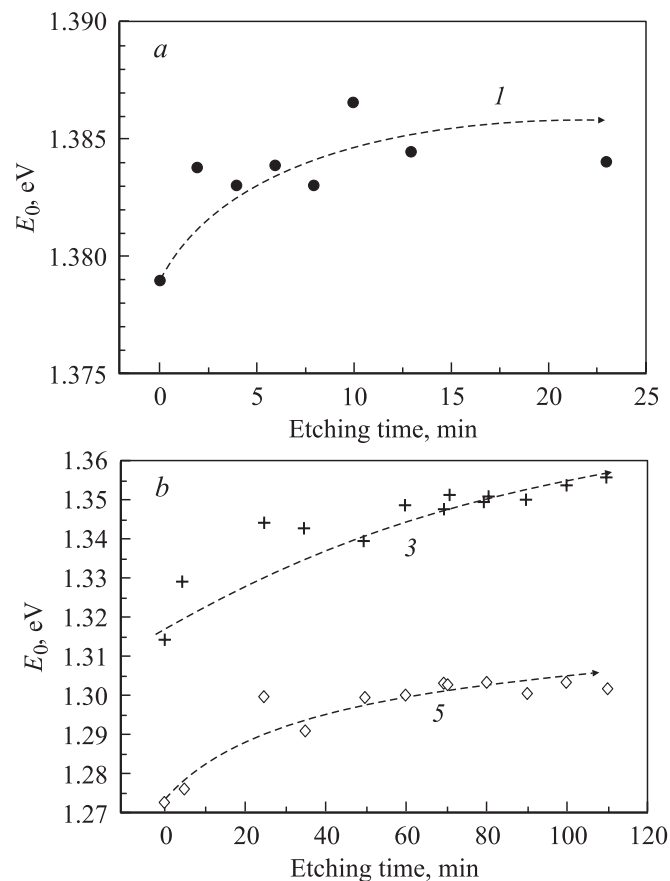


Рис. 3. Зависимости положения максимума линий фотолюминесценции E_0 от времени травления образцов: *a* — *1*, *b* — *3* и *5*. (Штриховая линия показывает тенденцию в поведении соответствующей зависимости).

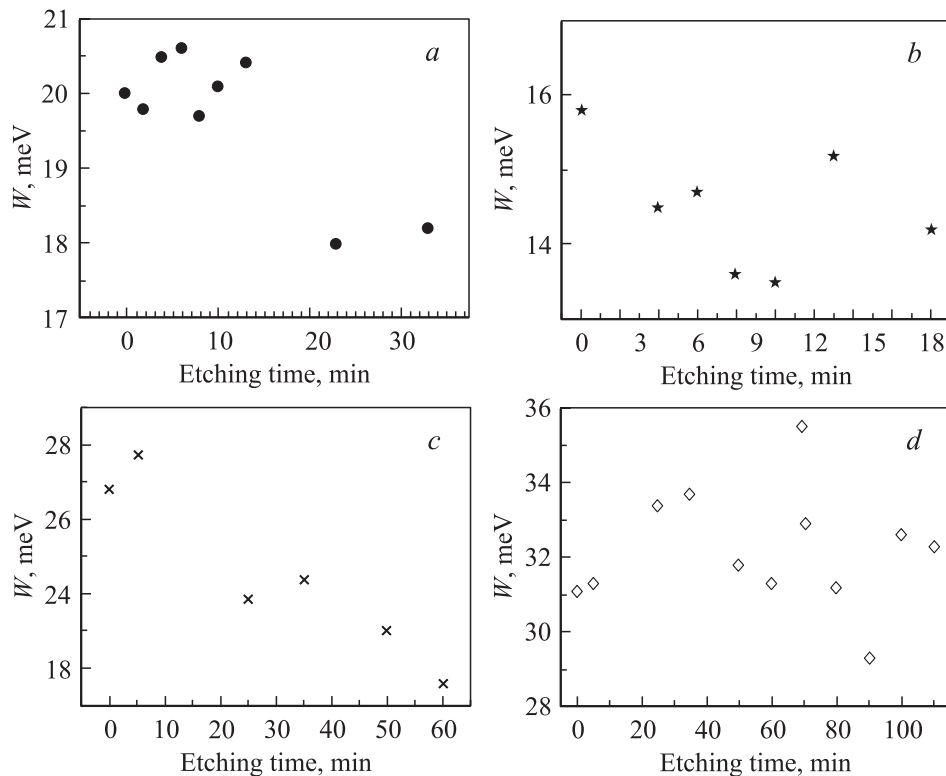


Рис. 4. Зависимости значений ширины W линий фотолюминесценции на полувысоте от времени травления образцов: a — 1, b — 2 (линия соответствует промежуточному слою InGaAs), c — 4, d — 5.

сывались гауссовыми кривыми. Ширина спектральной линии сверхрешеток в 1.5–2 раза превышала ширину спектральной линии, полученной от одного слоя. Точность измерения спектров соответствовала величине 0.1–0.3 meV и определялась разрешающей способностью дифракционных решеток.

Зависимость наблюдаемого сдвига линий фотолюминесценции от времени травления образцов представлена на рис. 3. Коротковолновой сдвиг линии люминесценции, характерный для всех исследованных образцов, как уже отмечалось ранее [10], вероятнее всего, может быть связан с появлением дополнительного пространственного ограничения в транспортных каналах структуры вследствие их трансформации из двумерных в одномерные при формировании в плоскости слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ двумерной сетки. Проявляющееся при травлении образца небольшое изменение упругой деформации слоев приводит, как показано в [13], к обратному эффекту, т.е. к уменьшению ширины запрещенной зоны на величину, не превышающую 5 meV, обуславливая незначительное смещение линии фотолюминесценции в длинноволновую область спектра. Конкуренция механизмов, приводящих при травлении образцов к сдвигу линии фотолюминесценции в разные стороны, может приводить к разбросу точек на зависимостях $E_0(t)$, представленных на рис. 3. Для структур 1, 2 увеличение времени травления повышало вероятность травления верхнего слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, что вводило огра-

ничение на время травления образца. Данный факт был продемонстрирован на примере структуры 2 с тремя слоями $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ различной толщиной в работе [11]. Для сверхрешеток общее время травления может быть существенно увеличено, вследствие чего наблюдаемый сдвиг спектрального пика за счет дополнительного квантово-размерного эффекта выражен более сильно и разброс точек на зависимостях $E_0(t)$ проявляется не так заметно (рис. 3, b). Используя простейшую модель прямоугольного сечения формируемой квантовой нити для наблюдаемого сдвига линий фотолюминесценции $\Delta E = \Delta E_e + \Delta E_h = \pi^2 \hbar^2 / 2d_2^2 (1m_e + 1/m_h)$, где $m_{e(h)} = 0.06 (0.4)m_0$ — эффективные массы электрона (дырки) в слое $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ соответственно, имеем $\Delta E \approx 40$ meV, что соответствует ширине бокового сечения нити $d_2 \approx 13$ nm.

Понижение размерности спектра носителей заряда в полупроводнике, обуславливающее переход от двумерной системы к квазиодномерной, с неизбежностью будет приводить к изменению характера плотности состояний в энергетическом спектре электронной подсистемы. В структуре с двумерным электронным газом зависимость плотности состояний $\rho(E)$ от энергии имеет ступенчатый вид и $\rho(E) \sim \sum_n (E - E_{nl})^0$. Дополнительное понижение размерности спектра электронов на единицу в процессе формирования в слоях гетерокомпозиции структуры квантовых нитей приводит к более ярко выраженной энергетической зависимости плотно-

сти состояний в одномерной подзоне резонансного вида $\rho(E) \sim (E - E_{nw})^{-1/2}$. Здесь E_{nl} и E_{nw} — края энергетических подзон в квантовом слое и квантовой нити соответственно. Повышение плотности состояний в окрестности краев энергетических зон, аналогично структурам с квантовыми точками, приводит к уменьшению ширины спектральных линий в спектре фотолюминесценции, что весьма привлекательно для формирования на их основе гетеролазеров.

Исходные спектральные кривые монокристаллических сверхрешеток (рис. 2, *b*) по сравнению с образцом 1 с одним квантовым слоем (рис. 2, *a*) имеют достаточно большую ширину резонансной линии $W \sim 27\text{--}32\text{ meV}$, связанную с разбросом параметров структуры (например, толщины квантовой ямы как в пределах одного, так и нескольких периодов сверхрешетки). В процессе травления некоторых образцов наблюдалось последовательное уменьшение ширины спектральной линии на несколько meV . В частности, это хорошо было видно на примере структуры 4 (рис. 4, *c*), где величина W менялась в зависимости от времени травления в течение одного часа от 27 до 21 meV . Аналогичная зависимость наблюдалась и для образцов 1, 2 с небольшим числом квантовых ям, где травление в течение примерно получаса привело к уменьшению исходной ширины спектральных линий приблизительно на 2 meV (рис. 4, *a, b*). Это говорит о том, что влияние эффекта дополнительного пространственного ограничения в формируемой сетке квантовых нитей оказывается выраженным более сильно, чем ожидаемое усиление роли статистических неоднородностей, возникающих в процессе травления. Понятно, что образование при травлении абсолютно гладких зеркальных границ нитей одного размера маловероятно. Наличие шероховатостей на границах способствует появлению дополнительных состояний в системе типа состояний Тамма и Шокли. Более того, наличие на поверхности пор зарядовых состояний может приводить к перекрытию одномерных каналов, обуславливая появление дополнительных неоднородностей в системе [14] и как следствие к дополнительному уширению спектральных линий. Это, в частности, хорошо видно из рис. 4, *b, d*, где возникновение дополнительных неоднородностей при вытравливании пор в многослойных структурах 2, 5 приводит к значительному разбросу экспериментальных данных от измерения к измерению. Сильный разброс значений ширины линии в зависимости от времени травления не мешает, однако, видеть и для этих образцов тенденцию к уменьшению ширины линии. Наблюдаемые зависимости указывают на то, что механизмы, работающие в разные стороны (статистическая неоднородность и возрастание плотности состояний в спектре электронов), имеют примерно одинаковую эффективность и довольно чувствительны к процессу травления.

Интегральная интенсивность линий фотолюминесценции в процессе травления образцов практически для всех структур уменьшалась [10]. Снижение эффективности излучения связано с уменьшением объема активного

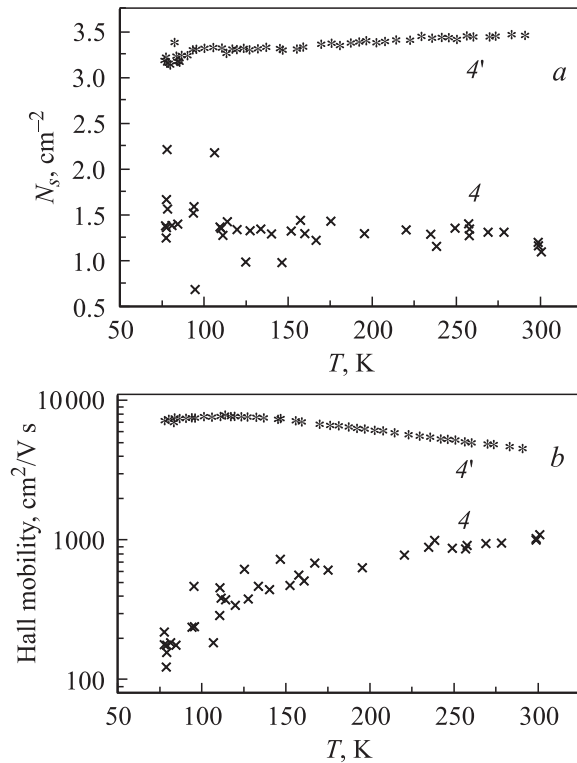


Рис. 5. Температурные зависимости поверхностной концентрации (*a*) и холловской подвижности (*b*) электронов, полученные методом Ван дер Пау для монокристаллического (кривые 4') и пористого (кривые 4) образца 4.

светоизлучающего слоя вследствие его вытравливания. С другой стороны, ухудшение зеркальных характеристик поверхности структур в процессе их травления, приводящее к уменьшению интенсивности отраженного сигнала возбуждающего лазера, будет приводить к увеличению доли поглощаемой в образце мощности, что в свою очередь в отдельных случаях может способствовать увеличению эффективности фотолюминесценции из структуры [1].

Исследование одномерных квантовых объектов представляет особый интерес в связи с ожидаемыми от них специфическими не только оптическими, но и транспортными свойствами [15,16]. Однако для сеток квантовых нитей, полученных электролитическим травлением плоскостойких квантовых гетерокомпозиций, возрастание роли поверхностных состояний и эффекта экранировки [14], способствующего наряду с обрывом нитей в сетке проявлению различного рода перколяционных эффектов, может сильно усложнить характер зависимостей, наблюдаемых при протекании тока по структуре. На это указывают, в частности, и предварительные результаты измерения эффекта Холла, проведенные на пористом образце 4 (рис. 5), и их сопоставление с данными, полученными на исходных монокристаллических образцах [17]. Появление дополнительного довольно эффективного механизма рассеяния, связанного с граничными состояниями и зарядами на

хорошо развитой поверхности пор, приводит не только к уменьшению концентрации и подвижности электронов в пористом слое $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ по отношению к монокристаллическому слою, но и коренным образом меняет характер температурной зависимости подвижности (рис. 5, b). В пористых образцах с нестабилизированной поверхностью рассеяние на границах доминирует над фононным механизмом рассеяния электронов в каналах даже при комнатной температуре, обуславливая спад подвижности электронов при снижении температуры измерения.

Авторы выражают глубокую признательность сотрудникам НИФТИ ННГУ: Н.А. Алябиной за помощь, оказанную при травлении образцов, Б.Н. Звонкову за предоставленные для работы образцы монокристаллических структур, Р.А. Рубцовой за помощь в проведении электрофизических измерений, а также сотруднику ИФМ РАН Н.В. Востокову за снятие снимков поверхности образцов на сканирующем зондовом микроскопе.

Список литературы

- [1] Ю.Н. Бузынин, С.А. Гусев, Ю.Н. Дроздов, З.Ф. Красильник, А.В. Мурель, Д.Г. Ревин, В.Н. Шашкин, И.В. Шуляшова. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования **5**, 40 (1996).
- [2] Н.С. Аверкиев, Л.П. Казакова, Э.А. Лебедев, Ю.В. Рудь, А.Н. Смирнов, Н.Н. Смирнова. ФТП **34**, 757 (2000).
- [3] А.Д. Грозав, Н.И. Лепорда. ФТТ **38**, 1924 (1996).
- [4] D.P. Yu, Y.J. Xing, Q.L. Hang et al. Physica E **9**, 305 (2001).
- [5] Е.С. Демидов. Письма в ЖЭТФ **71**, 351 (2000).
- [6] Е.С. Демидов, В.В. Карзанов, В.Г. Шенгуров. Письма в ЖЭТФ **67**, 794 (1998).
- [7] В.Н. Богомолов, А.И. Задорожний, Т.М. Павлова, В.П. Петрановский, В.П. Подхалюзин, А.Л. Холкин. Письма в ЖЭТФ **31**, 406 (1980).
- [8] В.Н. Богомолов, А.И. Задорожний, Т.М. Павлова. ФТП **15**, 2029 (1981).
- [9] L.K. Orlov, N.L. Ivina, N.A. Alyabina, B.N. Zvonkov, E.S. Demidov. Phys. Stat. Solid. (a) **3**, 981 (2003).
- [10] Л.К. Орлов, Н.Л. Ивина. Письма в ЖЭТФ **75**, 584 (2002).
- [11] L.K. Orlov, N.L. Ivina, N.A. Alyabina, N.V. Vostokov, B.N. Zvonkov, E.S. Demidov. Proc. of Int. Conf. on Solid State Crystals: Material Sciences and Applications (2002). Zakopane, Poland (2003). P. 38.
- [12] В.Я. Алешкин, Б.Н. Звонков, Е.Р. Линькова, А.В. Мурель, Ю.А. Романов. ФТП **27**, 931 (1993).
- [13] Л.К. Орлов, Н.Л. Ивина, Ю.Н. Дроздов, Н.А. Алябина. Письма в ЖТФ **28**, 24, 1 (2002).
- [14] С.Г. Петросян, А.Я. Шик. ФТП **26**, 763 (1992).
- [15] J. Voit. Rep. Progress in Phys. **58**, 977 (1995).
- [16] F.D.M. Haldane. J. Phys. C: Solid State Phys. **14**, 2585 (1981).
- [17] Л.К. Орлов, Н.Л. Ивина, Р.А. Рубцова, Ю.А. Романов. ФТТ **42**, 3, 537 (2000).