

# Квантовые точки InSb, полученные методом жидкофазной эпитаксии на подложке InGaAsSb/GaSb

© Л.А. Сокура, Я.А. Пархоменко, К.Д. Моисеев, В.Н. Неведомский, Н.А. Берт

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

E-mail: sokura@mail.ioffe.ru

(Получена 31 января 2017 г. Принята к печати 15 февраля 2017 г.)

Методом жидкофазной эпитаксии на поверхности эпитаксиального слоя  $\text{In}_{0.25}\text{GaAsSb}$ , изопериодного с подложкой GaSb(001), впервые сформированы квантовые точки InSb в интервале температур  $T = 450\text{--}467^\circ\text{C}$ . Просвечивающая электронная микроскопия показала, что форма квантовой точки близка к усеченному конусу, а распределение их в ансамбле по высоте и размеру основания является моносферным. Крупные квантовые точки (размер основания  $\sim 30\text{--}50$  нм, высота 3 нм) имели специфический контраст на изображении в планарной геометрии с дифракционным контрастом, что указывало на присутствие дефектов несоответствия. Модификация химического состава рабочей поверхности подложки за счет нанесения эпитаксиального слоя  $\text{In}_{0.25}\text{GaAsSb}$  позволила в 3 раза увеличить плотность ансамбля ( $1 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ ) квантовых точек InSb по сравнению с осаждением непосредственно на бинарное соединение GaSb.

DOI: 10.21883/FTP.2017.08.44804.8533

## 1. Введение

Гетероструктуры с квантовыми точками (КТ) InSb в матрице InAs излучают, как правило, в длинноволновой области среднего инфракрасного диапазона (3–5 мкм) [1], тогда как для продвижения в коротковолновую часть (2–3 мкм) необходимы более широкозонные матрицы, чем арсенид индия [2]. Такой матрицей может служить бинарное соединение антимонид галлия или многокомпонентные твердые растворы на его основе, изопериодные с GaSb. Впервые слои наноструктур InSb на подложке GaSb были получены методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) при  $455^\circ\text{C}$  [3], при этом массивы КТ были разреженными, поверхностная плотность их составляла  $3 \cdot 10^7 \text{ см}^{-2}$ . Особенности технологии получения КТ методом газовой эпитаксии из металлоорганических соединений (МОГФЭ) подробно рассмотрены в работах [4,5]. При стандартном процессе наращивания узкозонных материалов на основе InSb как методом МПЭ, так и методом МОГФЭ, плотность массивов когерентных КТ на поверхности бинарной подложки не превышала  $(2\text{--}5) \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$  [6].

Ранее мы сообщали о получении массивов наноструктур InSb на поверхности бинарной подложки GaSb методом жидкофазной эпитаксии (ЖФЭ) [7]. По результатам исследований с использованием атомно-силовой микроскопии (АСМ) было установлено, что при выбранном составе раствора–расплава характерные температуры для формирования КТ в системе InSb/GaSb лежат в интервале  $T = 450\text{--}465^\circ\text{C}$ , что на  $25^\circ\text{C}$  выше, чем для системы InSb/InAs ( $425\text{--}440^\circ\text{C}$ ) [8]. Однако осаждение КТ InSb на подложку GaSb методом ЖФЭ сталкивается с технологическими проблемами, приводящими к подрастворению подложки GaSb при ее контакте с раствором–расплавом In–Sb. Кроме того, плотность

наноструктур InSb при их формировании на подложке GaSb была относительно низкой ( $\leq 3 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$ ).

В настоящей работе сообщается о первых результатах получения методом ЖФЭ самоорганизующихся КТ InSb на поверхности многокомпонентного эпитаксиального слоя GaInAsSb, выращенного на подложке GaSb и изопериодного с ней.

## 2. Методика эксперимента

Массивы КТ InSb были получены методом ЖФЭ с использованием подложки антимонида галлия с ориентацией рабочей поверхности (001), на которой предварительно при  $510^\circ\text{C}$  был выращен изопериодный с GaSb эпитаксиальный слой  $\text{In}_{0.25}\text{GaAsSb}$  толщиной 4 нм. Осаждение КТ InSb на поверхность комбинированной подложки  $\text{In}_{0.25}\text{GaAsSb}/\text{GaSb}$  осуществлялось в процессе кратковременного контакта эпитаксиального слоя с пересыщенным раствором–расплавом сурьмы в индии при различных температурах контакта в интервале  $T = 450\text{--}467^\circ\text{C}$ . Во всех случаях использовали индиевый раствор–расплав одного и того же состава, насыщенный сурьмой при одной и той же температуре. Массивы КТ не зарастали, а оставались открытыми на поверхности гетероструктуры. Подробности технологического процесса формирования квантовых точек приведены в работе [8].

Выращенные гетероструктуры исследовали с помощью просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) на микроскопе JEOL JEM 2100F с ускоряющим напряжением 200 кВ в режимах дифракции и изображения с дифракционным контрастом. Образцы для электронно-микроскопических исследований подготавливали в планарной геометрии и в поперечном сечении в соответствии со стандартной процедурой, с предва-

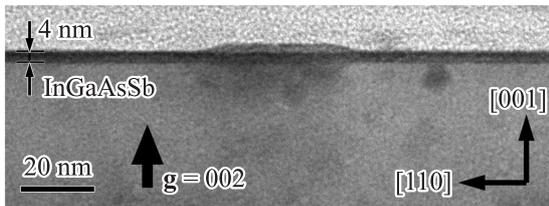
рительным механическим утончением и последующим распылением пучком ионов  $\text{Ar}^+$  с энергией 4 кэВ.

### 3. Экспериментальные результаты и обсуждение

Для исследования методами ПЭМ были выбраны образцы с КТ InSb, осажденными на эпитаксиальный слой  $\text{In}_{0.25}\text{GaAsSb}$  при двух предельных температурах из интервала 450–467°C.

При исследовании поперечного сечения образца с КТ, осажденными при 467°C, на поверхности эпитаксиального слоя  $\text{In}_{0.25}\text{GaAsSb}$  наблюдались плоские наноструктуры. Характерный пример такого изображения представлен на рис. 1. Как можно видеть, в поперечном сечении наноструктуры имеют трапециевидную форму, размер их основания составляет  $L = 30\text{--}50\text{ нм}$ , высота наноструктур в основном лежит в диапазоне  $h = 2\text{--}4\text{ нм}$ , что совпадает со средним значением 3 нм, полученным из АСМ-измерений для образца, выращенного при близкой температуре  $T = 465^\circ\text{C}$  [7].

На изображениях в планарной геометрии наноструктуры в обоих образцах главным образом имеют округ-

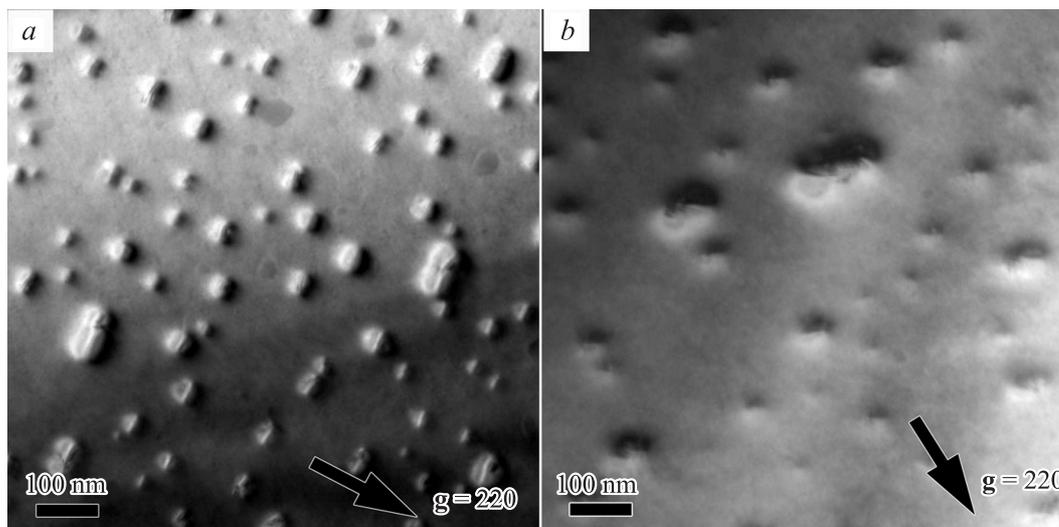


**Рис. 1.** Светлопольное изображение поперечного сечения ( $g = 002$ ) образца с КТ InSb, осажденными при  $T = 467^\circ\text{C}$ .

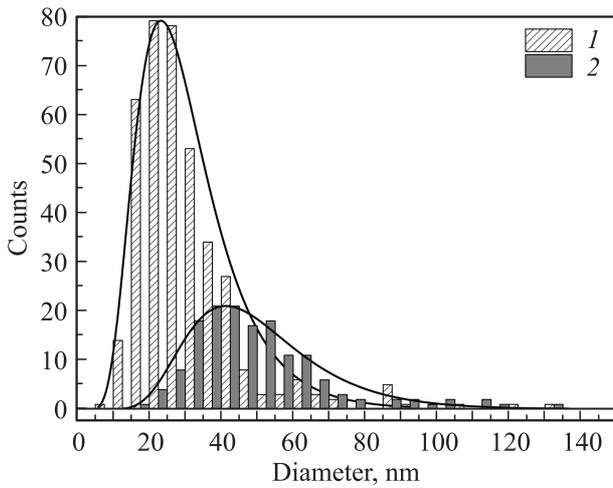
лую форму, крупные островки оказываются вытянутыми вдоль одного и того же из двух направлений  $[110]$  в плоскости подложки (рис. 2). Плотность массива наноструктур возрастает от  $0.4 \cdot 10^{10}$  до  $1 \cdot 10^{10}\text{ см}^{-2}$  при понижении температуры осаждения от 467 до  $450^\circ\text{C}$ . Гистограммы распределения наноструктур по размеру основания в обоих образцах приведены на рис. 3. Как видно из рисунка, понижение температуры осаждения приводит к уменьшению среднего размера основания наноструктур от 45 до 25 нм. Аналогичные изменения плотности и размеров КТ с изменением температуры осаждения наблюдались ранее для системы InAs/GaAs, полученной методом МПЭ [9], и InSb/InAs, полученной ЖФЭ [8].

В двулучевых дифракционных условиях на изображениях наноструктур в планарной геометрии обнаруживаются картины муара (рис. 4), полосы которого при действующем дифракционном векторе  $\mathbf{g} = \bar{2}20$  или  $\mathbf{g} = 2\bar{2}0$  эквидистантны и располагаются перпендикулярно ему. Очевидно, что в формировании картины муара при действующем дифракционном векторе типа  $\mathbf{g} = 220$  принимают участие атомные плоскости (220) подложки и КТ. Измеренный период муара равен 6 нм для  $\mathbf{g} = \bar{2}20$  (рис. 4, a). Для  $\mathbf{g} = 2\bar{2}0$  муаровые полосы имеют линзоподобную форму, период муара уменьшается от 8 нм по центру наноструктур до 5 нм по краям (рис. 4, b).

Появление картины муара в электронно-микроскопическом изображении, как известно, вызвано различием межплоскостных расстояний контактирующих кристаллов. Для свободностоящей на подложке и когерентной с ней КТ такое различие может возникнуть из-за упругой деформации, в результате которой межплоскостные расстояния в КТ, совпадая с соответствующими расстояниями в подложке на границе КТ–подложка, изменяются по высоте КТ. В результате



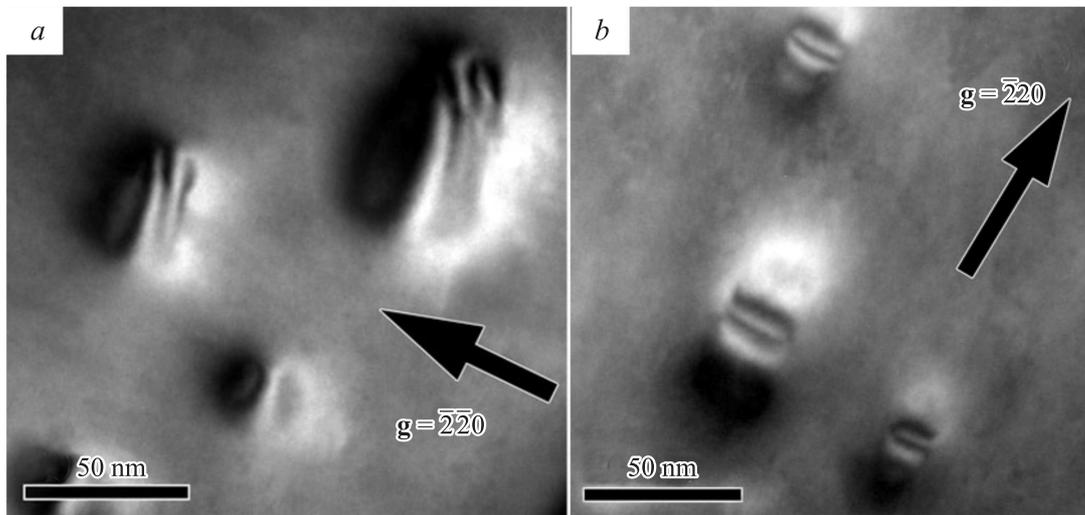
**Рис. 2.** Изображение в планарной геометрии в двулучевых дифракционных условиях ( $g = 220$ ) образцов с КТ InSb, осажденными при  $T = 450$  (a) и  $467^\circ\text{C}$  (b).



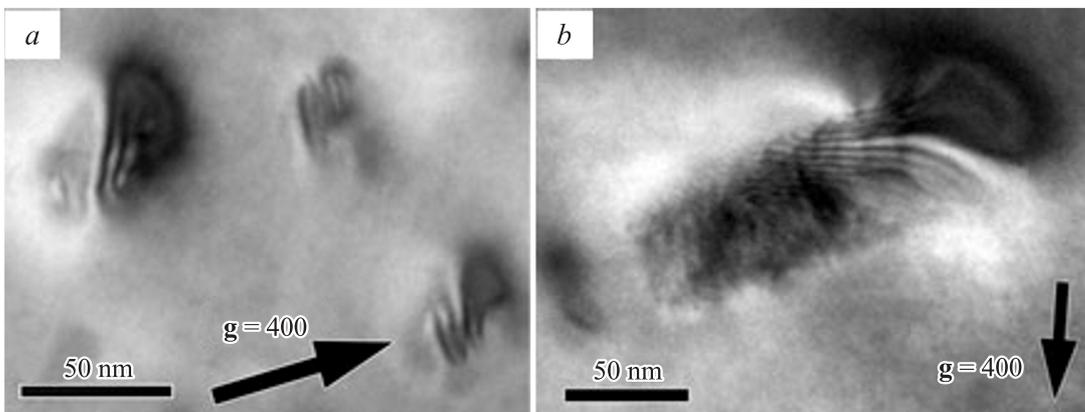
**Рис. 3.** Гистограммы распределения по размеру основания для КТ InSb, осажденных при  $T = 450$  (1) и  $467^\circ\text{C}$  (2).

на электронно-микроскопических изображениях когерентных КТ в планарной геометрии возникает псевдомуар [10], обусловленный отличием среднего межплоскостного расстояния в КТ от соответствующего межплоскостного расстояния в подложке. Возникновение и рисунок такого псевдомуара определяются степенью упругой релаксации КТ, которая, в свою очередь, сильно зависит от формы КТ, описываемой аспектным отношением — отношением высоты КТ к ее диаметру ( $h/L$ ). В нашем случае КТ имеют малую высоту ( $h = 2-4$  нм) и большой размер основания ( $L = 30-40$  нм), аспектное отношение составляет  $h/L \approx 0.1$ . Степень упругой релаксации КТ при такой ее форме существенно мала и не вызывает появления муара.

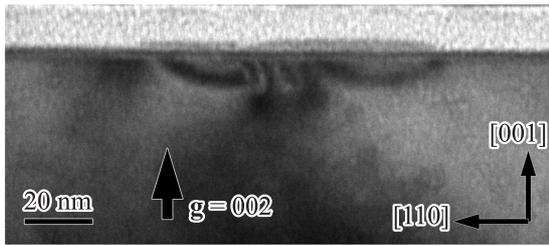
Другой причиной возникновения муара на изображениях КТ является ее пластическая деформация за счет генерации дислокаций несоответствия и/или дефектов упаковки. Вычисленное по измеренному периоду муара



**Рис. 4.** Изображения в двулучевых дифракционных условиях при  $g = \bar{2}\bar{2}0$  (a) и  $\bar{2}\bar{2}0$  (b) КТ InSb, осажденных при  $T = 450^\circ\text{C}$ .



**Рис. 5.** Искажение картины муара на двулучевых изображениях ( $g = 400$ ) КТ InSb, осажденных при  $T = 450$  (a) и  $467^\circ\text{C}$  (b).



**Рис. 6.** Светлопольное изображение ( $g = 200$ ) в поперечном сечении образца с КТ InSb, осажденными при  $T = 467^\circ\text{C}$ .

межплоскостное расстояние в КТ  $d_{220} = 0.225$  нм, что больше соответствующего межплоскостного расстояния в кристаллической решетке подложки GaSb (0.215 нм). Это означает, что исследуемые КТ являются некогерентными и содержат дефекты несоответствия.

Дополнительным подтверждением присутствия дефектов несоответствия в КТ являются искажения на картине муара, возникающие на изображениях с действующим дифракционным вектором  $g = 0\bar{4}0$  или  $g = 400$  для крупных КТ. Примеры искажений муара для обоих исследованных образцов можно видеть на рис. 5. Нерегулярность и искривление полос муара являются, очевидно, следствием наличия протяженных дефектов кристаллической решетки КТ. При этом на изображениях крупных КТ, полученных при  $467^\circ\text{C}$ , картина муара имеет особенности, характерные для дефекта упаковки, как нами ранее было показано посредством моделирования [11]. Кроме того, на изображениях поперечных сечений крупных (размер основания 70–90 нм) и некоторых более мелких КТ под их основанием наблюдаются неоднородности деформационного контраста (рис. 6), что также является косвенным подтверждением присутствия структурных дефектов.

Исходя из среднего размера основания и средней высоты, получаем, что объем, рассчитанный для КТ в форме диска, равен  $3.7 \cdot 10^3$  нм<sup>3</sup> при температуре осаждения  $450^\circ\text{C}$  и  $5.7 \cdot 10^3$  нм<sup>3</sup> при  $467^\circ\text{C}$ . Увеличение объема КТ с повышением температуры осаждения может объясняться тем, что в массивах исследуемых КТ наблюдаются случайные наноструктуры большого размера с дефектной структурой. При повышении температуры осаждения вследствие возрастания скорости миграции адатомов по поверхности подложки большие дефектные наноструктуры увеличиваются за счет уменьшения размеров и плотности мелких когерентных наноструктур.

Суммарный объем InSb, содержащийся в массиве КТ на площади  $1$  см<sup>2</sup> для образца, выращенного при  $T = 450^\circ\text{C}$ , оказывается равен  $3.7 \cdot 10^{-8}$  см<sup>3</sup>, что примерно соответствует 1 монослою однородно осажденного материала. Для  $T = 467^\circ\text{C}$  суммарный объем InSb уменьшается на  $\sim 30\%$ , что обусловлено, по-видимому, меньшей степенью пересыщения раствора–расплава при повышении температуры контакта.

## 4. Заключение

Методом ЖФЭ на поверхности эпитаксиального слоя четверного твердого раствора  $\text{In}_{0.25}\text{GaAsSb}$ , изопериодного с подложкой GaSb (001), впервые сформированы КТ InSb. Образование КТ имело место при кратковременном контакте пересыщенного сурьмой индиевого раствора–расплава с поверхностью эпитаксиального слоя при  $T = 450\text{--}467^\circ\text{C}$ .

По результатам электронно-микроскопических исследований установлено, что форма КТ близка к усеченному конусу. Распределение ансамбля КТ по размерам содержит один выраженный максимум. В образце, осаждение в котором производили при низкой температуре ( $450^\circ\text{C}$ ), КТ имели среднюю высоту  $h = 4.9$  нм и средний размер основания  $L = 31$  нм, что соответствовало аспектному соотношению  $h/L = 0.16$ . При повышении температуры осаждения до  $467^\circ\text{C}$  средняя высота КТ уменьшилась до  $h = 2.8$  нм, тогда как средний размер основания возрос до  $L = 51$  нм, при этом среднее аспектное соотношение уменьшилось в 3 раза ( $h/L = 0.05$ ). С повышением температуры контакта от  $450$  до  $467^\circ\text{C}$  также уменьшилась плотность массива КТ от  $1 \cdot 10^{10}$  до  $0.4 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>.

Таким образом, изменение химического состава поверхности, на которую осаждаются КТ, путем введения многокомпонентного эпитаксиального слоя InGaAsSb при сохранении величины несоответствия постоянных решетки контактирующих материалов и температурного режима наращивания привело к повышению плотности массива КТ InSb по сравнению с их осаждением на поверхность бинарного соединения GaSb от  $3 \cdot 10^9$  до  $1 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>.

Структурные исследования выполнены с использованием оборудования федерального ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ (ФТИ им. А.Ф. Иоффе).

## Список литературы

- [1] В.В. Романов, Э.В. Иванов, К.Д. Моисеев. ФТП, **48**, 938 (2014).
- [2] F. Doré, C. Cornet, P. Caroff, A. Ballestar, J. Even, N. Bertru, O. Dehaese, I. Alghoraibi, H. Folliot, R. Piron, A. Le Corre, S. Loualiche. Phys. Status Solidi C, **3**, 3920 (2006).
- [3] N. Bertru, O. Brandt, M. Wassermeier, K. Ploog. Appl. Phys. Lett., **68**, 31 (1996).
- [4] P. Mock, G.R. Booker, N.J. Mason, R.J. Nicholas, E. Aphantery, T. Topuria, N.D. Browning. Mater. Sci. Eng. B, **80**, 112 (2001).
- [5] S. Shusterman, Y. Paltiel, A. Sher, V. Ezersky, Y. Rosenwaks. J. Cryst. Growth, **291**, 363 (2006).
- [6] N. Deguffroy, V. Tasco, A.N. Baranov, E. Tournie, B. Satpari, A. Trampert, M. Dunaevski, A. Titkov, M. Ramonda. J. Appl. Phys., **101**, 124309 (2007).
- [7] Я.А. Пархоменко, П.А. Дементьев, К.Д. Моисеев. ФТП, **50**, 993 (2016).

- [8] К.Д. Моисеев, Я.А. Пархоменко, Е.В. Гушина, А.В. Анкудинов, М.П. Михайлова, Н.А. Берт, Ю.П. Яковлев. ФТП, **43**, 1142 (2009).
- [9] Н.А. Черкашин, М.В. Максимов, А.Г. Макаров, В.А. Щукин, В.М. Устинов, Н.В. Луковская, Ю.Г. Мусихин, Г.Э. Цырлин, Н.А. Берт, Ж.И. Алфёров, Н.Н. Леденцов, Д. Бимберг. ФТП, **37**, 890 (2003).
- [10] Н.А. Берт, А.Л. Колесникова, И.К. Королев, А.Е. Романов, А.Б. Фрейдин, В.В. Чалдышев, Е.С. Aifantis. ФТТ, **53** (10), 1986 (2011).
- [11] N.A. Bert, V.N. Nevedomskiy, L.A. Sokura. J. Phys.: Conf. Ser., **586**, 012004 (2015).

Редактор Л.В. Шаронова

## InSb quantum dots grown by liquid-phase epitaxy on the InGaAsSb/GaSb substrate

L.A. Sokura, Y.A. Parkhomenko, K.D. Moiseev,  
V.N. Nevedomsky, N.A. Bert

loffe Institute,  
194021 St. Petersburg, Russia

**Abstract** InSb quantum dots (QDs) were obtained by liquid phase epitaxy in the temperature range  $T = 450\text{--}467^\circ\text{C}$  on the surface of the  $\text{In}_{0.25}\text{GaAsSb}$  epitaxial layer lattice matched to GaSb(001) substrate for the first time. It was shown by transmission electron microscopy study that QDs had a shape similar to truncated cone and exhibited the monomodal distribution in the height and the lateral size in their ensemble. The large QDs (base size about 30–50 nm, height of 3 nm) manifested specific contrast in a plan-view diffraction-mode image that indicated presence of mismatch defects. Modifying the chemical composition of the working surface of a substrate by applying the  $\text{In}_{0.25}\text{GaAsSb}$  epitaxial layer provided a 3-fold increase in the InSb QDs density ( $1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ) compared with deposition directly on the GaSb binary compound.