03,08,10

Геометрия квантовых точек InSb, выращенных на поверхности матричного слоя In(As,Sb)

© Я.А. Пархоменко, П.А. Дементьев, К.Д. Моисеев ¶

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия

¶ E-mail: mkd@iropt2.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 3 июля 2025 г.
В окончательной редакции 3 июля 2025 г.
Принята к публикации 4 июля 2025 г.

Методом жидкофазной эпитаксии получены массивы квантовых точек InSb на матричных слоях твердых растворов в системе InAs–InSb. Показано влияние дополнительного элемента, вводимого в кристаллическую решетку матричного слоя, на поверхностную плотность, геометрические параметры и структурные свойства наращенных наногетероструктур. Присутствие общего элемента в матричном слое $InAs_{1-y}Sb_y$ и нановстровках InSb позволило повысить поверхностную плотность квантовых точек до $1.8 \cdot 10^{10}\,cm^{-2}$. Наблюдалась трансформация формы нановстровков (от выпуклой линзы до усеченной пирамиды) в зависимости от матричного слоя в интервале составов $0 < y < 0.09$. Была предложена модель формы самоорганизующихся квантовых точек InSb, осаждаемых на поверхность тройного твердого раствора в системе InAs–InSb.

Ключевые слова: квантовые точки, твердые растворы, InAs, InSb, атомно-силовая микроскопия, наногетероструктуры.

DOI: 10.61011/FTT.2025.08.61312.176-25

1. Введение

Массивы квантовых точек (КТ) InSb в системе InSb/InAs могут быть получены разными технологическими методами [1–3]. На примере достаточно простого и недорогого метода жидкофазной эпитаксии (ЖФЭ) была продемонстрирована возможность получать массивы квантовых точек InSb на подложках InAs с поверхностной плотностью до $2 \cdot 10^{10}\,cm^{-2}$ [4]. Данные КТ были наращены непосредственно на поверхности монокристаллической подложки InAs с рабочей поверхностью, ориентированной в плоскости (001), в интервале температур $T = 420–450\,^{\circ}C$. Был обнаружен бимодальный характер распределения КТ InSb на поверхности бинарного соединения InAs, что выражалось в присутствии наряду с малыми КТ (3 nm в высоту и 26 nm в диаметре) нанообъектов большего размера (10 nm в высоту и 56 nm в диаметре) с меньшей на порядок поверхностной плотностью [5]. Согласно результатам исследований, проведенных с помощью просвечивающего электронного микроскопа, малые КТ были практически однородными по составу без примеси мышьяка, тогда как период муара для крупных квантовых точек мог быть связан с попаданием атомов As (до концентрации порядка 24 %) в квантовую точку In(As, Sb) и соответствующим изменением параметра решетки нанообъекта. При этом предполагаемая форма полученных нанообъектов была близка к форме полусферы с основанием в виде овала, вызванной легкой асимметрией в зависимости от роста вдоль направлений типа [110] или $[1\bar{1}0]$ на кристаллографической плоскости (001).

Известно, что изменение мольного состава многокомпонентного твердого раствора открывает возможность управлять шириной запрещенной зоны и энергетической диаграммой эпитаксиального слоя, полученного на его основе [6]. Более того, использование многокомпонентного твердого раствора в качестве матричного слоя позволяет задавать параметры постоянной решетки матрицы и первоначальное рассогласование между контактирующими полупроводниками, и, следовательно, управлять величиной деформации в наногетероструктурах, содержащих КТ. В работе [7] было показано, что при изменении состава матричного слоя InAsSbP, на который непосредственно осуществлялось осаждение КТ из соединения InSb, за счет введения дополнительных элементов, например фосфора и сурьмы, заметно меняется распределение по размерам осажденных нанообъектов. Целью настоящей работы является возможность показать влияние дополнительного элемента, вводимого в кристаллическую решетку матрицы, на поверхностную плотность, геометрические параметры и структурные свойства КТ, наращенных на ней.

2. Эксперимент и методики исследования нанообъектов в системе InSb/InAs

Для выращивания гетероструктур с КТ InSb была применена установка для жидкофазной эпитаксии на базе диффузионной печи СДО-125/4. Эпитаксиальное наращивание массивов КТ проводилось в горизонтальном кварцевом реакторе с использованием графитовой кассеты „пенального“ типа в потоке водорода при фиксированной температуре $T_{gr} = 425\,^{\circ}C$. Получение массивов КТ InSb производилось в едином технологическом

процессе с наращиванием матричного слоя при скорости охлаждения системы $v_{gr} = 0.3\,^{\circ}$C/min. В качестве матричных слоев использовались эпитаксиальные слои твердых растворов в системе In–As–Sb, которые наращивались на монокристаллические подложки InAs(001).

Рельеф поверхности изучался с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) Solver P47H и зондовой лаборатории „Интегра Аура“, производства российской компании НТ-МДТ. Измерения проводились в полуконтактном режиме с применением кремниевых консолей (кантилеверов) NSG01 с типичной резонансной частотой около 150 kHz и характерной жесткостью 5 N/m. Амплитуда свободных резонансных колебаний самого кончика кантилевера, где крепится АСМ зонд, составляла порядка 60 nm. Полуконтактный режим называют иногда еще и режимом прерывистого контакта, так как небольшую долю периода колебаний зонд контактирует с поверхностью образца. При исследовании образцов с квантовыми точками InSb, раздельно расположенными на открытой поверхности InAs, амплитуда вынужденных колебаний кантилевера выбиралась примерно в два раза меньше, чем амплитуда свободных колебаний. АСМ исследования проводились в атмосферных условиях при комнатной температуре, при этом средняя сила взаимодействия АСМ зонда с поверхностью образца оказывалась все еще достаточно малой, на уровне примерно 0.5 nN, что, в свою очередь, не приводило к деформации, как рельефа квантовых точек, так и заостренного кончика самого зонда.

Экспериментальные данные, полученные из АСМ-изображений поверхностей массивов с незаращенными КТ InSb, анализировались с помощью программы статистической обработки SPM Image Magic, специально разработанной для автоматического определения координат, высоты и диаметра обособленных объектов с формой близкой к сферической. Самым достоверным определяемым параметром квантовых точек является их высота. Автоматически определяемый диаметр объекта может быть немного искажен за счет аппаратного эффекта свертки с формой заостренного кончика зонда. В нашем распоряжении была зондовая лаборатория „Интегра Аура“, снабженная датчиками обратной связи по всем трем координатам, поэтому с высокой степенью достоверности также определялись координаты квантовых точек в плоскости, точность в измерении которых сказывается на еще одном важном параметре — средней поверхностной плотности объектов. Z-сканер был откалиброван с помощью сертифицированной тестовой решетки TGZ01 с высотой ступени 18.5 nm.

3. Массивы квантовых точек InSb на поверхности эпитаксиальных слоев в системе твердых растворов In–As–Sb

Массивы когерентных КТ были получены в процессе эпитаксиального осаждения бинарного соединения InSb

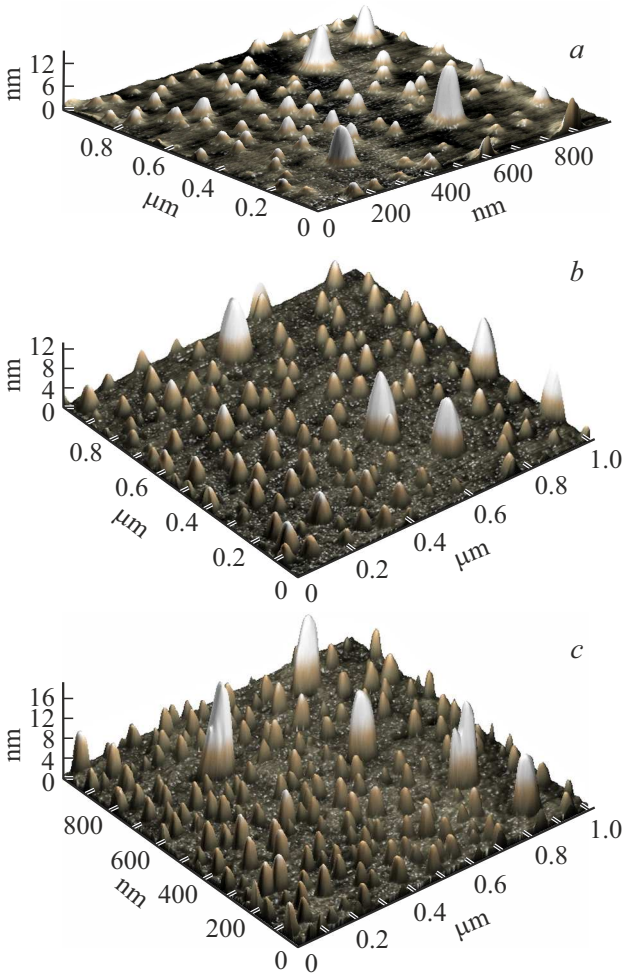

Рис. 1. 3D-топографии массивов квантовых точек на поверхности эпитаксиального слоя InAs (*a*), $InAs_{0.94}Sb_{0.06}$ (*b*) и $InAs_{0.91}Sb_{0.09}$ (*c*).

на поверхность многокомпонентных матричных слоев на основе твердых растворов $InAs_{1-y}Sb_y$ в интервале составов $0 < y < 0.09$ (рис. 1). Был обнаружен бимодальный характер распределения полученных КТ InSb как при наращивании на поверхность бинарного соединения InAs, так и на поверхность эпитаксиального слоя тройного твердого раствора $InAs_{1-y}Sb_y$. Как видно из рисунка, концентрация больших КТ почти не менялась (предварительная оценка поверхностной плотности составляла порядка $6 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$), тогда как суммарная плотность массивов КТ InSb, полученных на матричных слоях тройного твердого раствора InAsSb, возрастала.

Статистические гистограммы (рис. 2), полученные путем обработки АСМ-изображений, показывают, что основную часть массивов КТ составляют когерентные упругонапряженные нанооствровки [5]. При проведении анализа статистических гистограмм исследуемых массивов КТ было обнаружено увеличение средней высоты (h) и одновременное уменьшение среднего латерального размера (D) малых нанооствровков при возрастании содержания сурьмы в матричном слое (см. таблицу).

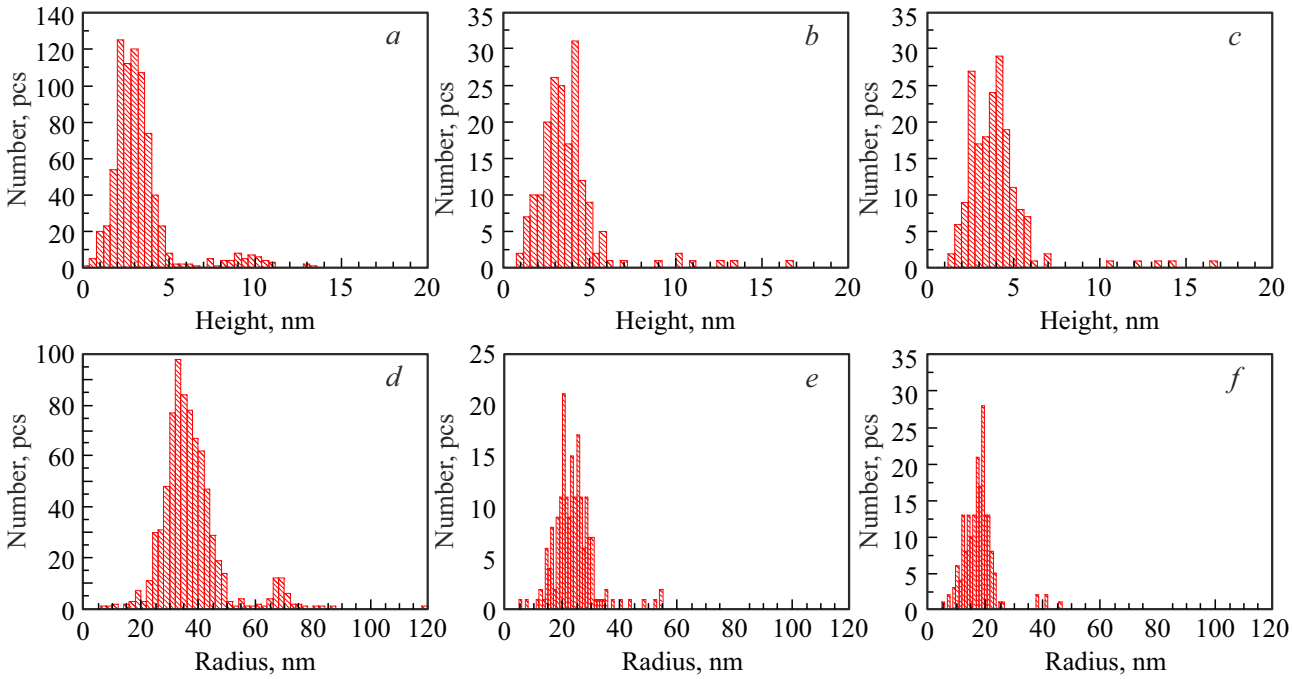

Рис. 2. Статистические данные распределения по высоте и латеральному параметру для КТ InSb, полученных на поверхности бинарного соединения InAs (a, d) и трехкомпонентных твердых растворов $InAs_{0.94}Sb_{0.06}$ (b, e) и $InAs_{0.91}Sb_{0.09}$ (c, f).

Поверхностная плотность и геометрические параметры КТ, полученных на матричных слоях на основе твердых растворов $InAs_{1-y}Sb_y$

Содержание Sb в матричном слое, y	Поверхностная плотность КТ, 10^{10} cm^{-2}	Высота малых КТ, nm	Латеральный размер малых КТ, nm	Актуальный параметр, h/D	Рассогласование твердого раствора относительно подложи InAs
0	0.8	2.5	34	0.07	0
0.06	1.25	3.2	22	0.145	$+4.2 \cdot 10^3$
0.09	1.8	4.0	18	0.22	$+6.3 \cdot 10^3$

При этом наблюдалась линейная зависимость геометрических параметров КТ от состава твердого раствора $InAs_{1-y}Sb_y$ (рис. 3, a). В зависимости от содержания атомов сурьмы в эпитаксиальном слое тройного твердого раствора $InAs_{1-y}Sb_y$ наблюдалась трансформация формы осаждаемых КТ InSb: плоская линзоподобная капля с актуальным параметром $h/D = 0.07$ при $y = 0$ преобразуется в рельефный куполообразный нанооствровок с $h/D = 0.22$ при $y = 0.09$. В итоге мы получаем увеличение актуального параметра (h/D), что может повлиять на энергетический спектр собственных состояний самой квантовой точки.

Следовательно, форма КТ InSb, полученных на эпитаксиальных слоях тройного твердого раствора InAsSb, напрямую зависела от концентрации общего, как для матрицы, так и для квантовой точки элемента V группы в кристаллической решетке матричного слоя. Мы предполагаем, что химический состав поверхности матричного слоя влияет на адгезию контактирующих соединений. Присутствие общего элемента (Sb) в матричном слое и КТ может способствовать лучшему взаимодействию между нанообъектом и матрицей за счет общих химических связей, что, в свою очередь, может привести не только к изменению формы нанообъекта, но и к более плотной упаковке полученных массивов КТ.

И действительно, поверхностная плотность малых КТ резко возрастала с увеличением доли сурьмы в матричном слое. Наблюдаемый рост достаточно хорошо описывается нелинейной зависимостью (рис. 3, b), которую можно представить в виде степенной функции

$$F(y) = n_0 + (Ay)^3,$$

где n_0 — значение поверхностной плотности КТ при осаждении на бинарную поверхность $(y = 0)$, A — коэффициент, отвечающий составу твердого раствора матричного слоя. Очевидно, что, атомы сурьмы в слое твердого раствора могут выступать в качестве дополнительных центров формирования нанообъектов. Таким образом, введение в матричный слой химического

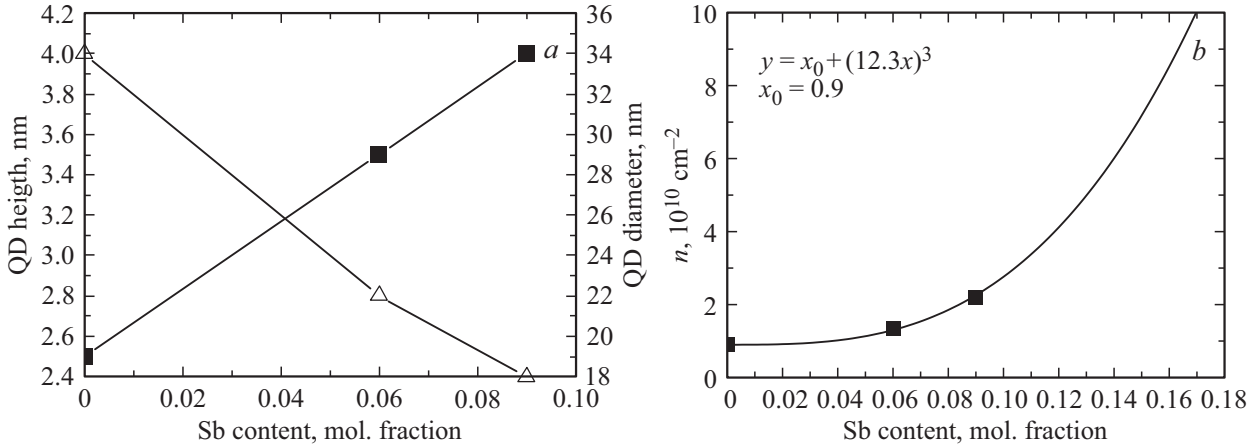

Рис. 3. Зависимости структурных характеристик осаждаемых массивов КТ InSb от состава матричного слоя InAsSb: *a* — параметры нанообъекта, *b* — поверхностная плотность КТ.

элемента, присутствующего также и в КТ, запускает дополнительный канал формирования потенциальных центров кристаллизации, что выражается в степенной зависимости поверхностной плотности когерентных наноостровков от содержания сурьмы в тройном твердом растворе, т. е. достаточно небольшое увеличение сурьмы приводит к значительному увеличению концентрации наращенных КТ.

Однако дальнейшее увеличение содержания сурьмы в наращенном матричном слое может быть ограничено стехиометрией тройного твердого раствора. Дело в том, что введение в кристаллическую решетку бинарного соединения (InAs) дополнительного элемента V группы (Sb) как атома замещения для As приводит к увеличению параметра решетки эпитаксиального слоя тройного твердого раствора ($InAs_{1-y}Sb_y$) относительно бинарной подложки арсенида индия [8]. Это, в свою очередь, ведет к нарушению морфологии осажденного слоя и появлению на его поверхности структурных дефектов (продольных дислокаций и др.), что указывает на переход в фазу осаждения релаксированного соединения.

Также следует учитывать влияние химического состава поверхности матричного слоя на конфигурацию КТ. Известно, что формирование упорядоченных массивов трехмерных когерентно напряженных наноостровков происходит за счет эффекта самоорганизации в результате релаксации напряжения, возникающего из-за различия в значениях параметров кристаллической решетки наращиваемого полупроводника и полупроводниковой матрицы, на которую идет осаждение [9]. Как было сказано выше, наличие в кристаллической решетке тройного твердого раствора ($InAs_{1-y}Sb_y$) дополнительного элемента V группы (Sb) ведет к увеличению параметра решетки эпитаксиального слоя относительно бинарной подложки (InAs). В свою очередь, рассогласование матричного слоя по отношению к бинарному соединению InSb уменьшается. Следовательно, в эпитаксиальной гетероструктуре InAsSb/InSb ожидается уменьшение внутреннего напряжения по сравнению со структурой на основе бинарных соединений InAs и InSb. Появляется возможность увеличения высоты КТ путем наращивания дополнительных монослоев антимонида индия за счет увеличения предела критической толщины напряженного слоя.

Помимо изменения средних характеристических параметров полученных нами КТ наблюдалось изменение конфигурации осаждаемых нанообъектов. На рис. 4 показаны 3D-изображения наноостровков, которые являются репрезентативными для КТ, рассматриваемых в данной работе. Квантовые точки антимонида индия, полученные на бинарном матричном слое арсенида индия, имели форму линзы с эллипсовидным основанием. В работе [5], было показано, что когерентно напряженные нанообъекты сохраняют верхнюю поверхность плавной, без каких-либо резких переходов и сингулярностей. Следует также отметить, что форма наноостровков оставалась одинаковой вне зависимости от способа подготовки матричной поверхности: химически обработанной или эпитаксиально наращенной (см. рис. 4, *a* и 4, *b*). Считается, что наружная поверхность осаждаемого эпитаксиального слоя имеет лучшую планарность по сравнению с рабочей поверхностью подложки, подготовленной с помощью влажного химического травления [10]. Тем не менее, значения поверхностных плотностей массивов КТ для обеих поверхностей тоже были одинаковы. Таким образом, можно сделать предположение, что именно химический состав матричной поверхности имеет решающее влияние на форму и плотность осаждаемых КТ.

В процессе проведения эксперимента нами был изменен химический состав матричной поверхности путем введения дополнительного химического элемента в кристаллическую структуру бинарного соединения InAs. В результате, при осаждении КТ InSb на поверхность тройного твердого раствора $InAs_{1-y}Sb_y$ наблюдалось появление наноостровков с ограненной формой. В нашем случае ухудшение морфологии матричного слоя, рассогласованного с подложкой InAs, приводило к образованию дополнительных центров сингулярности, что

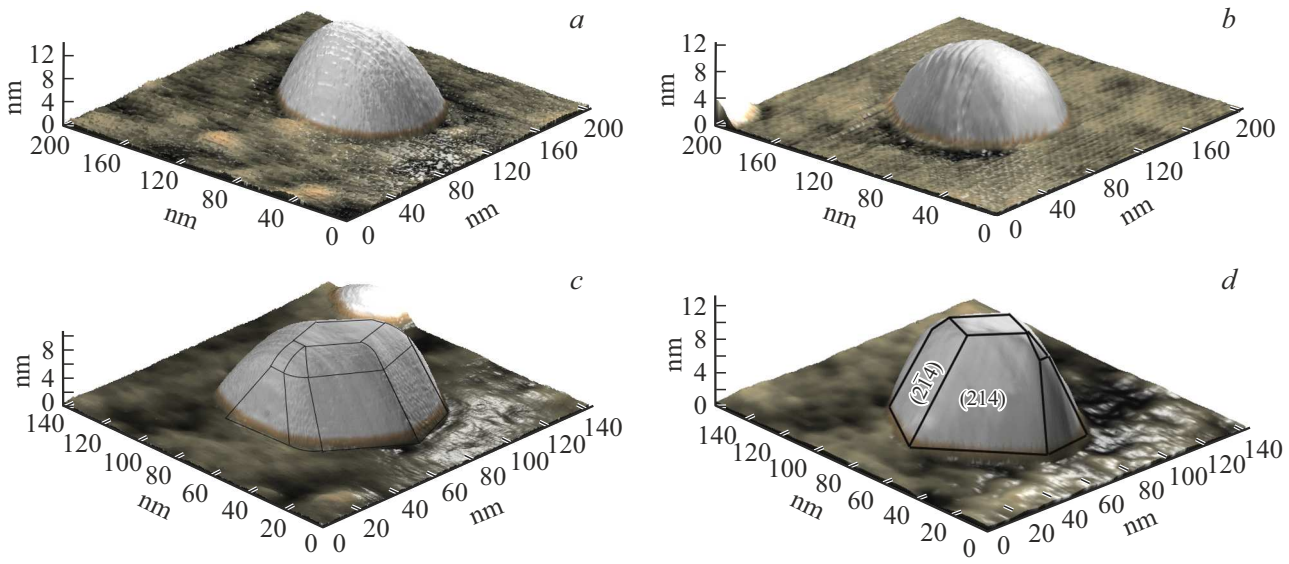

Рис. 4. Одиночная квантовая точка InSb на поверхности бинарного InAs (a, b) и трехкомпонентного InAsSb (c,d) соединения.

выражалось в трансформации формы нанооствровков. При небольших количествах сурьмы в эпитаксиальном слое тройного твердого раствора на наружной поверхности КТ появляются многочисленные мелкие грани (рис. 4, c). В основании нанообъекта образуется многоугольник, сформированный гранями, которые располагаются параллельно кристаллографическим плоскостям. При дальнейшем увеличении содержания сурьмы количество граней уменьшается (рис. 4, d), при этом становятся более выраженными грани, параллельные определенных кристаллографическим плоскостям. Остальные грани не очень хорошо разрешены и не показывают четких краев. Основание нанообъекта преобразуется в восьмиугольник и даже в шестиугольник, а полученные КТ могут быть представлены в виде усеченной пирамиды.

Для гетероструктуры $InAs_{0.91}Sb_{0.09}$/InSb плоскую вершину КТ можно описать как ромбовидное плато с углами 120° и 60°, соответственно. Значения углов были экспериментально получены из горизонтальной 2D-проекции АСМ-изображения нанообъекта. Как видно из рис. 4, d, с правой и левой стороны изображения можно выделить две четко выраженные грани, которые определяют форму КТ. Угол наклона между этими гранями и матричной поверхностью (001) был получен из профиля сечения, перпендикулярного данным граням, и составлял порядка $29 \pm 2°$. Следует подчеркнуть, что интервал допустимых углов был получен путем усреднения измерений нескольких КТ. Мы полагаем, что на матричной поверхности тройного твердого раствора $InAs_{0.91}Sb_{0.09}$ могут быть наращены КТ со сторонами, ограниченными кристаллографическими плоскостями семейства (214). Определение индексов Миллера для обозначения полученных граней было достигнуто путем учета углов ромбовидного плато в основании КТ и углов наклона граней, ограничивающих боковые стороны КТ. Отметим, что определение индексов Миллера этих граней является достаточно сложной задачей, так как погрешность измерений все еще слишком велика, и объявленные значения можно считать оценочными. На основании полученных экспериментальных данных мы предлагаем модель формы самоорганизующихся квантовых точек InSb, осаждаемых на поверхность тройного твердого раствора в системе InAs–InSb, которые ограничены, по крайней мере, четырьмя гранями, ориентированными параллельно плоскостям $\{nm4\}$, где $n = 2; -2$ и $m = 1; -1$. Мы полагаем, что существует определенный критический размер КТ, который определяется размером граней {214}. Грани {214} могут быть стабильны до определенного размера, когда прирост свободной энергии из-за релаксации деформации внутри трехмерного островка не превышает поверхностную энергию нанообъект [11]. Следовательно, результирующие поверхностные энергии могут быть ответственны за резкое распределение размеров самоорганизованных InAs КТ и, следовательно, должны быть рассмотрены в дальнейших теоретических исследованиях.

4. Заключение

Таким образом, было обнаружено, что бимодальный характер распределения КТ InSb на поверхности матричного слоя, полученного на основе соединений в системе InAs–InSb, не зависел от содержания сурьмы в тройном твердом растворе. Было показано, что изменение состава матричного слоя путем введения химического элемента, общего для кристаллической решетки как матрицы, так и квантовой точки, позволяет увеличить не только поверхностную плотность осаждаемых нанообъектов, но и их актуальный параметр. Присутствие общего элемента в матричном слое и КТ способствует умножению общих

химических связей, что в свою очередь помогает улучшить взаимодействие между нанообъектом и матричным слоем. Однако, ухудшение морфологии матричного слоя, рассогласованного относительно подложки за счет присутствия дополнительного химического элемента в кристаллической решетке, приводит к изменению внутреннего напряжения внутри наногетероструктуры, что вызывает трансформацию формы КТ. Полученные данные подтверждают тот факт, что состав матричной поверхности определяет форму осаждаемого нанообъекта. Наблюдаемую в эксперименте трансформацию формы нанооствровков от выпуклой линзы до усеченной пирамиды следует учитывать при расчете энергетического спектра собственных состояний КТ InSb в гетероструктуре $InAs_{1-y}Sb_y$/InSb.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] F. Hatami, S.M. Kim, H.B. Yuen, J.S. Harris. Appl. Phys. Lett. **89**, 133115 (2006).
[2] К.Д. Моисеев, Я.А. Пархоменко, А.В. Анкудинов, Е.В. Гущина, М.П. Михайлова, А.Н. Титков, Ю.П. Яковлев. Письма в ЖТФ **33**, *7*, 50 (2007).
[3] A. Karim, O. Gustafsson, L. Hussain, Q. Wang, B. Noharet, M. Hammar, J. Anderson, J. Song. Proc. SPIE **8439**, 84391J (2012).
[4] K. Moiseev, E. Ivanov, Ya. Parkhomenko. Electronics **12**, 609 (2023). https://doi.org/10.3390
[5] К.Д. Моисеев, Я.А. Пархоменко, Е.В. Гущина, А.В. Анкудинов, М.П. Михайлова, Н.А. Берт, Ю.П. Яковлев. ФТП **43**, *8*, 1142 (2009).
[6] Т.И. Воронина, Т.С. Лагунова, К.Д. Моисеев, Н.А. Прокофьева, Т.Б. Попова, М.А. Сиповская, В.В. Шерстнев, Ю.П. Яковлев. ФТП **25**, *9*, 1639 (1991).
[7] K. Moiseev, P. Dement'ev, V. Romanov, M. Mikhailova. J. Cryst. Growth **318**, 379 (2011).
[8] В.В. Романов, Э.В. Иванов, К.Д. Моисеев. ФТТ **61**, *10*, 1746 (2019).
[9] B.J. Spencer, J. Tersoff. Phys. Rev. B **63**, 205424 (2001).
[10] В.В. Романов, П.А. Дементьев, К.Д. Моисеев. ФТП **50**, *7*, 927 (2016).
[11] J. Marquez, L. Geelhaar, K. Jacobi. Appl. Phys. Lett. **78**, 2309 (2001).

Редактор А.Н. Смирнов