

Особенности эпитаксиального роста узкозонных квантовых точек InSb на подложке InAs

© К.Д. Моисеев[†], Я.А. Пархоменко, Е.В. Гущина, А.В. Анкудинов,
М.П. Михайлова, Н.А. Берт, Ю.П. Яковлев

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

(Получена 29 января 2009 г. Принята к печати 4 февраля 2009 г.)

В интервале температур $T = 420\text{--}450^\circ\text{C}$ методом жидкофазной эпитаксии на подложках InAs были получены массивы когерентных квантовых точек InSb с плотностью $(0.9\text{--}2) \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$, размеры которых составляли 3 нм в высоту и 13 нм в диаметре. Обнаружен бимодальный характер распределения квантовых точек по размерам, который был объяснен комбинированным механизмом роста этих нанобъектов. Впервые изучены структурные характеристики отдельной квантовой точки InSb, сформированной на поверхности InAs, с помощью методов атомно-силовой микроскопии и просвечивающей электронной микроскопии. Для квантовых точек в системе InSb/InAs впервые наблюдались картины муаровых узоров, при этом период муара 3.5 нм соответствовал квантовым точкам InSb без примеси мышьяка.

PACS: 68.37.Lp, 68.37.Ps, 81.07.Ta, 81.15.Lm

1. Введение

Создание и изучение нанобъектов пониженной размерности, квантовых ям и квантовых точек, является актуальной задачей как для фундаментальных исследований, так и для приложений в наноэлектронике и оптоэлектронике. Движущей силой для формирования таких нанобъектов выступает существенная разница в постоянных кристаллических решетках материала квантовой точки и материала матрицы (например, для систем InAs/GaAs и InSb/InAs рассогласование параметров составляет 7%). Детальное обсуждение технологии получения и возможностей управления характеристиками структур с квантовыми точками было проведено на примере системы InAs/GaAs [1]. Было показано, что спектральное положение линии излучения определяется эффективной толщиной осажденного слоя и шириной запрещенной зоны материала матрицы. Оптоэлектронные приборы на основе гетероструктур с квантовыми точками InAs, помещенными в широкозонную матрицу GaAs или InP, работают в интервале длин волн 1.3–1.55 мкм, который активно востребован для телекоммуникационных приложений [2]. Гетероструктуры на основе квантовых точек InSb, полученных на узкозонных подложках InAs и GaSb, являются перспективными для создания оптоэлектронных приборов, работающих в среднем инфракрасном (ИК) диапазоне, 3–5 мкм, который представляет интерес для приложений экологии и медицины [3,4].

Особенности технологии получения квантовых точек в системе InSb/GaSb методами молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) и газофазной эпитаксии из металл-органических соединений (МОГФЭ) были подробно рассмотрены в работах [5,6]. Отмечено, что при стандартном процессе наращивания узкозонных материалов

на основе полупроводниковых соединений антимонида индия как методом МПЭ, так и методом МОГФЭ плотность массивов когерентных квантовых точек на поверхности бинарной подложки не превышала $3 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$. Только применение специальных методик выращивания (например, двухступенчатого наращивания, включающего осаждение при низкой температуре, $T < 350^\circ\text{C}$, и отжиг при $T > 500^\circ\text{C}$) позволило увеличить концентрацию нанобъектов до 10^{12} см^{-2} [6].

Были также предприняты попытки получить квантовые точки InSb на подложках InAs методами МПЭ и МОГФЭ [7,8]. Массивы квантовых точек InSb с размерами 10 нм в высоту и 80 нм в диаметре с поверхностной плотностью $6 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$ были получены методом МПЭ при $T = 390^\circ\text{C}$, при этом точки начинали формироваться при осаждении на поверхность подложки 1.8 монослоя антимонида индия [7]. Использование попеременного осаждения методом МОГФЭ одного из компонентов в атомарном виде с последующим отжигом в потоке другого компонента позволило увеличить концентрацию нанобъектов до 10^{11} см^{-2} [8]. В работе [9] был предложен метод жидкофазной эпитаксии (ЖФЭ) для получения массивов квантовых точек InSb на подложке InAs. Использование достаточно простого и недорогого метода ЖФЭ дает возможность получать массивы квантовых точек большой плотности (до $2 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$) в интервале температур $T = 400\text{--}450^\circ\text{C}$ [10]. Однако до настоящего времени детального изучения формы квантовых точек и плотности массивов в системе узкозонных материалов InSb/InAs не проводилось.

В данной работе впервые представлены результаты исследований структурных свойств квантовых точек антимонида индия, сформированных на поверхности подложки арсенида индия методом жидкофазной эпитаксии. Исследуемые массивы квантовых точек не были закрыты слоем. Изучались форма и размеры отдельной квантовой

[†] E-mail: mkd@iropt2.ioffe.rssi.ru

точки, а также поверхностная плотность и однородность массивов квантовых точек InSb в зависимости от условий осаждения (температуры контакта, скорости роста и состава раствора–расплава).

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

Для выращивания гетероструктур с квантовыми точками антимонида индия была применена стандартная установка для жидкофазной эпитаксии на базе диффузионной печи СДО-125/4. Эпитаксиальное наращивание массивов квантовых точек проводилось в горизонтальном кварцевом реакторе с использованием графитовой кассеты „пенального“ типа в потоке водорода. В качестве подложек использовались монокристаллические пластины арсенида индия с ориентацией рабочей поверхности в кристаллографической плоскости (100).

Наращивание массивов квантовых точек InSb на подложках InAs проводилось из растворов–расплавов, обогащенных атомарным индием. Для приготовления шихты использовались индий в элементарном виде с чистотой 5N и бинарное соединение — антимонид индия с концентрацией остаточных примесей $\sim 10^{15} \text{ см}^{-3}$. Перед процессом эпитаксиального наращивания поверхность подложки была предварительно подготовлена путем химического полирующего травления. Эпитаксиальное наращивание квантовых точек InSb проводилось в температурном интервале $T = 400\text{--}450^\circ\text{C}$ при различных скоростях охлаждения системы (0.3 или $0.6^\circ\text{C}/\text{мин}$). При достижении заданного значения температуры подложка плавно протаскивалась под раствором–расплавом. Образование массивов квантовых точек происходило непосредственно в момент контакта расплавленной шихты с поверхностью подложки.

Рельеф поверхности изучался с помощью атомно-силовых микроскопов (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 $\sim 150 \text{ кГц}$ и характерной жесткостью 5 Н/м . Амплитуда свободных резонансных колебаний самого кончика кантилевера, где крепится АСМ-зонд, составляла величину $\sim 60 \text{ нм}$. 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, отдельно расположенными на открытой поверхности InAs, амплитуда вынужденных колебаний кантилевера выбиралась примерно в 2 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 достаточно малой, на уровне $\sim 0.5 \text{ нН}$, что не приводило к деформации как рельефа квантовых точек, так и заостренного кончика самого зонда [11].

Экспериментальные данные, полученные из АСМ-изображений поверхностей массивов с незаряженными квантовыми точками 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 достоверно 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 измерения 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 нм . Методика исследования поверхности, примененная в данной работе, была описана ранее [12].

Образцы с массивами незаряженных квантовых точек InSb на поверхности InAs для исследований с помощью просвечивающего электронного микроскопа (ПЭМ) были подготовлены по стандартной процедуре с использованием методов предварительного механического утончения и последующего финишного травления ионами Ar^+ с энергией 4 кэВ . ПЭМ-исследования проводились на микроскопе JEOL JEM 2100F с ускоряющим напряжением 200 кВ с использованием дифракционного режима и режима высокого разрешения. Для определения поверхностной концентрации и латеральных размеров нанообъектов полученные гетероструктуры исследовались в планарной геометрии. В отличие от АСМ-изображений, ПЭМ-измерения позволяют достаточно точно определять диаметр квантовой точки.

3. Условия формирования массивов квантовых точек InSb/InAs

На рис. 1 приведено АСМ-изображение участка поверхности образца, полученного в результате эпитаксиального наращивания антимонида индия при температуре контакта расплава с подложкой $T = 445^\circ\text{C}$ и скорости охлаждения $0.3^\circ\text{C}/\text{мин}$. Согласно полученным данным, на поверхности арсенида индия наблюдается массив плотностью 10^9 см^{-2} отдельно стоящих квантовых точек со средними размерами 10 нм по высоте и 56 нм в диаметре. Структурный фактор соотношения высоты и диаметра для средней квантовой точки составляет

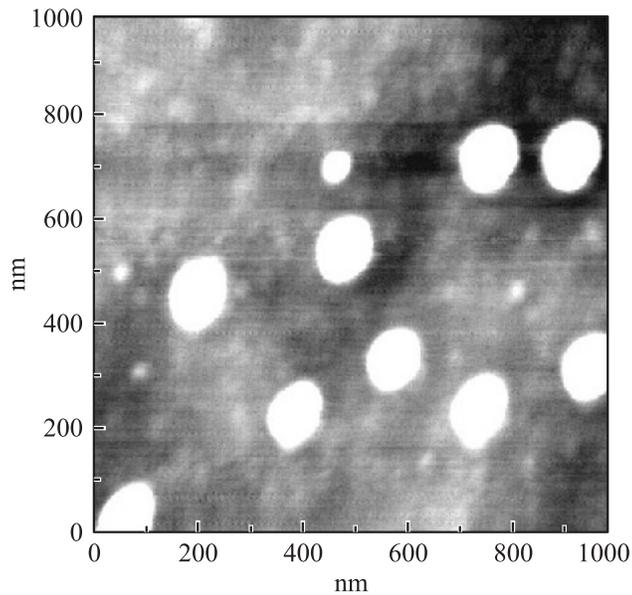


Рис. 1. Топографическое АСМ-изображение поверхности образца, полученного при температуре $T = 445^\circ\text{C}$. Плотность квантовых точек $1 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$.

$p = 1 : 6$. Отметим, что полученные параметры квантовых точек InSb (высота, диаметр и плотность) близки к величинам, найденным для массивов квантовых точек InSb/InAs, полученных при наращивании методом МПЭ при $T = 390^\circ\text{C}$ [8].

Таблица 1. Плотность массивов и высота квантовых точек в зависимости от температуры контакта жидкой фазы с поверхностью подложки при скорости охлаждения системы $0.3^\circ\text{C}/\text{мин}$ и фиксированном составе раствора-расплава

Температура контакта, $^\circ\text{C}$	Плотность квантовых точек, 10^{10} см^{-2}	Средняя высота квантовых точек, нм
420	1.6	2.5
425	1.2	2.8
430	1.0	3.0
435	0.9	3.4
440	0.7	3.6
445	0.1	9.6

При понижении температуры контакта при наращивании методом ЖФЭ ($T < 440^\circ\text{C}$) наблюдалось появление массивов квантовых точек InSb с меньшими размерами: 3–4 нм высотой и 15–20 нм в диаметре при средней поверхностной плотности $(0.7–1.0) \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ (табл. 1). Таким образом, структурное соотношение высоты и диаметра для малых квантовых точек уже составляет $p = 1 : 5$. На рис. 2 приведено АСМ-изображение поверхности образца, полученного при температуре контакта $T = 430^\circ\text{C}$, из которого видно бимодальное распределение нанообъектов по размерам. Дальнейшее понижение температуры эпитаксиального роста приво-

дит к увеличению поверхностной плотности и уменьшению латеральных размеров малых квантовых точек (средняя высота — 2.5 нм, средний диаметр — 12 нм). Из рис. 3 видно, что при температуре роста 420°C степень бимодальности осталась примерно такой же, как и для образца, полученного при 430°C (несколько больших нанообъектов на сотню маленьких), но общая поверхностная плотность квантовых точек возросла более чем в 1.5 раза ($1.6 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$). Следует подчеркнуть, что массивы квантовых точек меньшего размера появляются

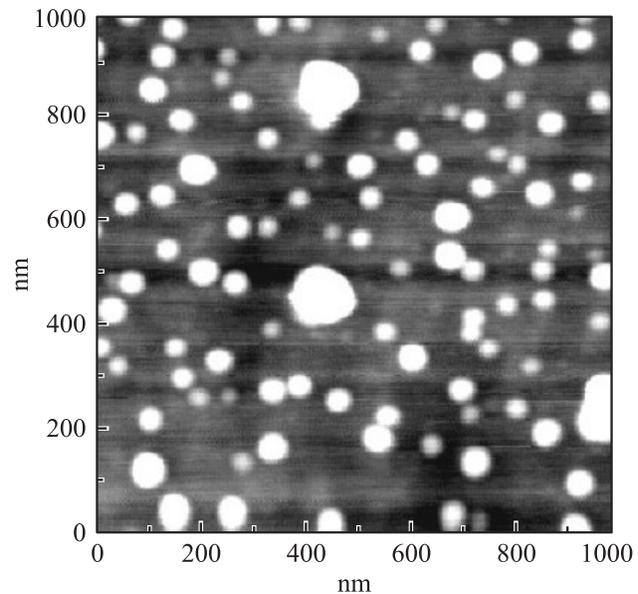


Рис. 2. Топографическое АСМ-изображение поверхности образца, полученного при температуре $T = 430^\circ\text{C}$. Плотность квантовых точек $1 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$.

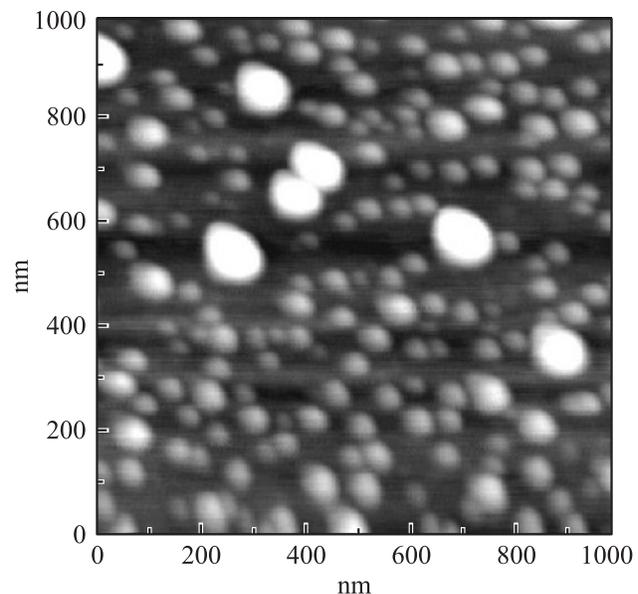


Рис. 3. Топографическое АСМ-изображение поверхности образца, полученного при температуре $T = 420^\circ\text{C}$. Плотность квантовых точек $1.6 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$.

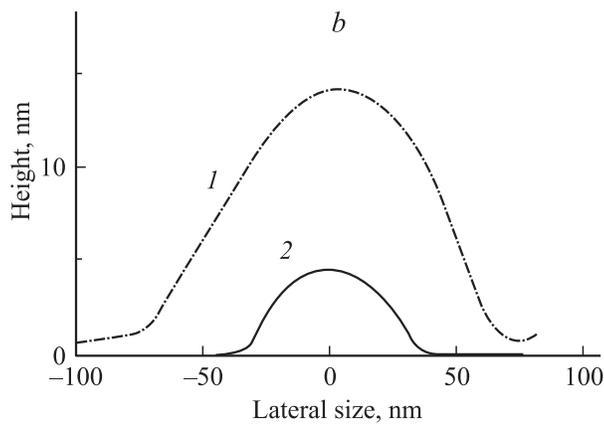
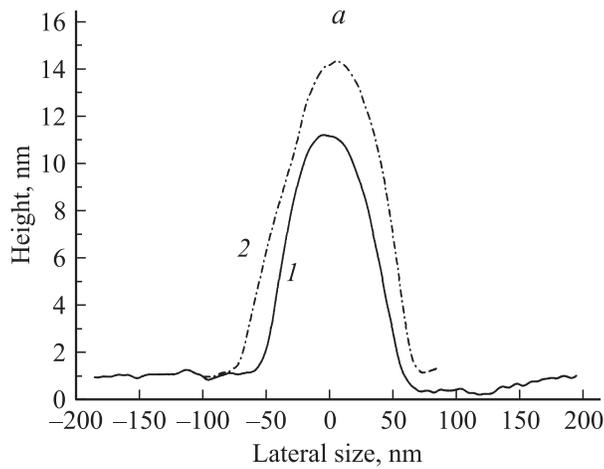


Рис. 4. *a* — АСМ-профили больших квантовых точек, полученных при температурах роста 445°C (1) и 430°C (2). *b* — АСМ-профили большой (1) и маленькой (2) квантовых точек, полученных при температуре роста $T = 430^\circ\text{C}$.

пороговым образом, и при наращивании в интервале температур от 440 до 420°C они присутствуют наряду с большими квантовыми точками. При этом высота больших квантовых точек увеличивается примерно на 2–3 нм, а их латеральные размеры увеличиваются до 70 нм (рис. 4, *a*). Как видно из рис. 1–3, форма как маленьких, так и больших квантовых точек подобна форме круглой выпуклой линзы с небольшой асимметрией вдоль одной из осей в плоскости образца. На рис. 4, *b* представлены характерные профили для большой и малой квантовых точек, полученных при $T = 430^\circ\text{C}$.

При понижении температуры контакта ниже 445°C поверхностная плотность больших квантовых точек уменьшалась в 1.5–2 раза. Статистические отклонения числа больших квантовых точек в поле выборки 1×1 мкм, возможно, связаны с конкретным участком исследуемой поверхности образца и определяются неоднородностями поверхности матричного материала. Неоднородное распределение больших квантовых точек InSb по поверхности InAs может быть вызвано формиро-

ванием их на краях монослойных ступенек поверхности самой подложки, которые могут выступать как центры кристаллообразования, и не зависит от температуры контакта.

Результаты морфологических исследований особенностей рельефа поверхности для образцов, полученных при различных температурах роста, приведены в табл. 1. Эти данные показывают, что плотность квантовых точек увеличивается с понижением температуры эпитакциального наращивания, в то время как их средняя высота уменьшается (рис. 5). Из рис. 5, *a, b* также видно, что существуют два характерных интервала температур ($T > 440^\circ\text{C}$ и $T < 440^\circ\text{C}$), когда наблюдается различный ход зависимостей плотности массивов и средней высоты квантовых точек от величины температуры эпитаксии. При температурах $T > 440^\circ\text{C}$ видно резкое увеличение средней высоты квантовых точек и одновременно значительное уменьшение их поверхностной плотности, что может отражать переход от одного механизма формирования квантовых точек к другому, например, к островковому росту [13]. Можно предположить, что при наращивании бинарного антимонида индия на поверхности бинарного арсенида индия существует критическое значение температуры контакта ($T_C = 440^\circ\text{C}$), при

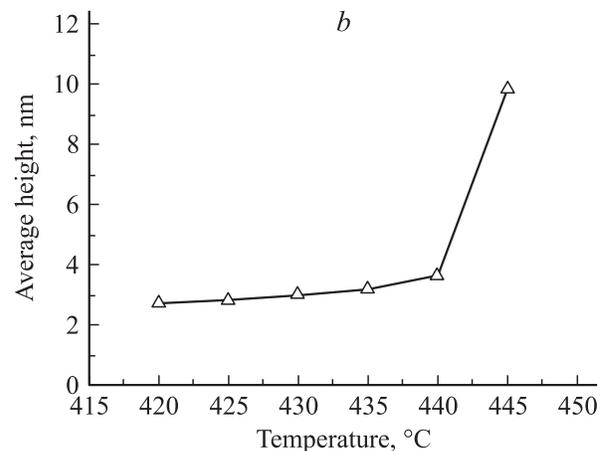
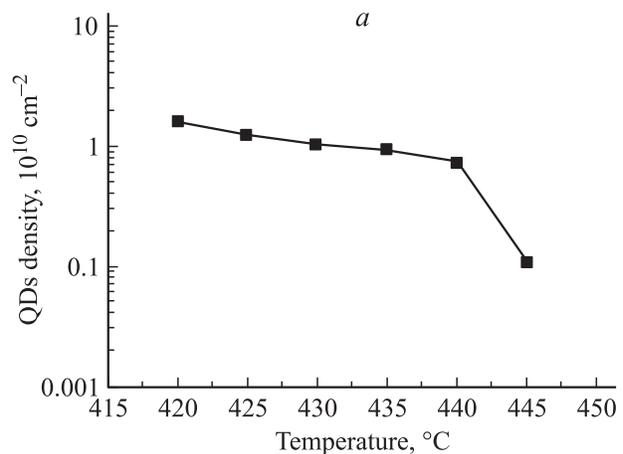


Рис. 5. Зависимости плотности квантовых точек (QDs) (*a*) и средней высоты квантовых точек (*b*) от температуры роста.

котором происходит формирование массивов когерентных квантовых точек InSb. При температурах $T < T_C$ одновременно с островковым ростом может происходить формирование нанообъектов согласно механизму Странски–Крастанова. Режим формирования квантовых точек в рамках механизма Странски–Крастанова предполагает предварительное смачивание поверхности подложки — существует смачивающий слой, при увеличении толщины которого за счет эластичных деформаций создаются необходимые условия. Скорость образования квантовых точек может быть достаточно быстрой (доли секунды) и лимитируется скоростью подачи материала или скоростью миграции уже осажденных атомов по поверхности подложки. При эпитаксиальном наращивании методом ЖФЭ вся поверхность подложки уже покрыта раствором–расплавом и образование квантовых точек происходит одновременно в момент контакта жидкой фазы с поверхностью матрицы.

Бимодальное поведение квантовых точек антимонида индия указывает на тот факт, что существует достаточно сложный обмен анионами между квантовой точкой антимонида индия (Sb) и подложкой арсенида индия (As), который в значительной степени определяется поверхностной энергией и коэффициентами эластичности контактирующих материалов. Не исключен комбинированный характер наращивания нанообъектов из материала, сильно рассогласованного с матрицей: механизм роста Вольмера–Вебера (большие квантовые точки высотой 10 нм и более) одновременно с механизмом роста Странски–Крастанова (когерентные квантовые точки высотой до 5 нм). Как правило, получение массивов когерентных квантовых точек методом Странски–Крастанова характеризуется достаточно узким гауссовым распределением по высоте и диаметру [1], что мы и наблюдали в эксперименте для образцов, представленных в данной работе [10]. Увеличение размеров больших квантовых точек, полученных при температурах контакта ниже критической, $T < T_C$ (см. рис. 4, а), может быть объяснено тем, что в момент контакта раствора–расплава с подложкой в центрах кристаллообразования матрицы (неоднородностях поверхности подложки) происходит осаждение по механизму Вольмера–Вебера, который при снятии начального пересыщения переходит в режим роста Странски–Крастанова.

Следует подчеркнуть, что структуры, полученные при температурах контакта $430 < T < 440^\circ$, характеризовались полным отсутствием каких-либо капель раствора–расплава на поверхности образца. Данный факт свидетельствует о том, что в этом температурном интервале жидкая фаза раствора–расплава полностью удалялась с поверхности подложки в процессе роста и не приводила к нарушению качества поверхности образца. Уменьшение температуры до $T < 430^\circ\text{C}$ или повышение ее до $T > 440^\circ\text{C}$ приводило к появлению капель индия на поверхности образца после удаления раствора–расплава. Частичное выпадение раствора–расплава на поверхность подложки в виде капель индия размером в несколько

Таблица 2. Экспериментальные параметры массивов квантовых точек для различных скоростей охлаждения раствора–расплава при температуре контакта $T = 425^\circ\text{C}$

Скорость охлаждения, $^\circ\text{C}/\text{мин}$	Плотность квантовых точек, 10^{10} см^{-2}	Средняя высота квантовых точек, нм
0.3	1.2	2.8
0.6	1.3	2.2

Таблица 3. Плотность квантовых точек в зависимости от состава жидкой фазы раствора–расплава для различных скоростей охлаждения системы при температуре контакта $T = 440^\circ\text{C}$

Отклонение от оптимального состава, %	Плотность квантовых точек, 10^{10} см^{-2}	
	Скорость охлаждения $0.3^\circ\text{C}/\text{мин}$	Скорость охлаждения $0.6^\circ\text{C}/\text{мин}$
–1.84	0.226	0.38
–1.38	0.31	0.43
–0.92	0.55	
–0.46	0.65	
0	0.7	0.76
0.92	0.5	
1.38	0.4	

микрон может быть объяснено нестабильностью температурного режима жидкой фазы и началом внутренней кристаллизации за счет неоптимального (либо недостаточного, либо слишком сильного) пересыщения раствора–расплава.

Известно, что изменение температуры контакта определяет степень пересыщения раствора–расплава. Тогда степень пересыщения раствора–расплава можно управлять, например, изменяя состав жидкой фазы при фиксированной температуре контакта или меняя скорость охлаждения всей системы при фиксированном составе жидкой фазы. В этом случае центры кристаллообразования играют важную роль в распределении и однородности квантовых точек. Следует также принять во внимание тот факт, что в процессе наращивания квантовых точек время контакта жидкой фазы с поверхностью подложки достаточно мало, от 0.5 до 1 с. В этом случае увеличение скорости охлаждения раствора–расплава в 2 раза приводило в основном к увеличению среднего размера квантовых точек и плотности распределения квантовых точек по поверхности подложки (табл. 2).

Аналогичный результат достигается также и при более высокой температуре контакта. В табл. 3 приведены экспериментальные данные зависимости поверхностной плотности квантовых точек, полученных при $T = 440^\circ$, от состава жидкой фазы. Из рис. 6 видно, что существует определенный состав раствора–расплава, при котором достигается максимальное значение плотности массива квантовых точек. Отклонение от оптимального состава

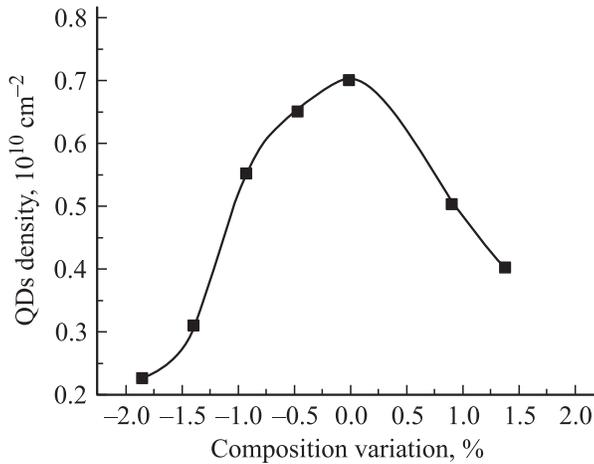


Рис. 6. Зависимость плотности квантовых точек (QDs) от состава раствора-расплава. Скорость охлаждения $0.3^\circ\text{C}/\text{мин}$.

более чем на 1% приводит к существенному уменьшению плотности квантовых точек. Можно утверждать, что плотность наращённых квантовых точек напрямую зависит от внутреннего пересыщения раствора-расплава. Увеличение скорости охлаждения системы в 2 раза приводит к небольшому увеличению (10%) поверхностной плотности массивов квантовых точек для оптимального состава жидкой фазы, так же как и при более низкой температуре контакта (табл. 2). По мере удаления в область неоптимальных составов раствора-расплава влияние скорости охлаждения становится значительным. Это может определяться динамикой транспорта атомов сурьмы в среде расплавленного металлического индия к границе раздела расплав-подложка.

Мы полагаем, что формирование больших квантовых точек InSb на подложке InAs обусловлено особенностями (неоднородностями) поверхности матричного материала и происходит в независимости от критического значения пересыщения раствора-расплава, при превышении которого начинается когерентный рост самоорганизующихся квантовых точек. Такие квантовые точки могут быть упруго напряжены и не содержат дислокационных дефектов, что подтверждается исследованиями при помощи метода просвечивающей электронной микроскопии.

4. Одиночная квантовая точка InSb на поверхности InAs

Как было отмечено выше, по данным атомно-силовой микроскопии высота и поверхностная плотность нанообъектов определяются достаточно точно, а их размеры в плоскости, как правило, завышены из-за инструментального эффекта. Латеральные параметры квантовых точек при измерении с помощью АСМ могут быть уширены примерно в 2 раза по сравнению с реальными размерами за счет конечной кривизны кончика

зонда. Этот факт подтверждают измерения массивов незарощённых квантовых точек, проведенные с помощью просвечивающего электронного микроскопа. Для определения поверхностной плотности квантовых точек образцы исследовались в планарной геометрии. На основании данных, полученных из АСМ-измерений, был выбран типичный образец с бимодальным характером распределения массивов квантовых точек по размерам: температура контакта $T = 430^\circ\text{C}$, оптимальный состав жидкой фазы раствора-расплава, скорость охлаждения системы $0.3^\circ\text{C}/\text{мин}$.

На рис. 7 отчетливо виден массив квантовых точек, которые можно разделить по латеральному параметру на два типа: крупные — от 30 до 45 нм (тип A) и мелкие — размером менее 17 нм (тип B). Поверхностная плотность крупных и мелких объектов составила $2.5 \cdot 10^9$ и $1.1 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ соответственно. Эти результаты находятся в хорошем согласии с данными, полученными по измерению размеров и плотности объектов методом АСМ (см. разд. 3). Видно также, что при бимодальном характере роста когерентные квантовые точки и большие квантовые точки располагаются по поверхности подложки отдельно друг от друга на расстоянии, значительно превышающем их латеральные размеры. В предыдущем разделе также было высказано предположение о комбинированном механизме наращивания квантовых точек при использовании жидкофазной эпитаксии, сочетающем режимы Вольмера-Вебера и Странски-Крастанова. Вопрос о механизме роста в настоящее время находится в состоянии обсуждения и выходит за рамки данной работы, поскольку для его определения требуются дополнительные исследования. Важно отметить, что для квантовых точек обоих типов (A и B) наблюдается характерный муаровый узор с периодом, соответствующим каждому определенному типу (рис. 8 и 9). Направление муаровых полос совпадает с кристаллографическими плоскостями семейства $\{220\}$. Ранее аналогичные картины муаровых узоров наблюдались для систем с квантовыми точками InAs/GaAs и InN/GaN, InSb/GaSb [4, 14, 15]. Для системы InSb/InAs такие картины с муаровым узором наблюдались впервые.

Характерная картина из чередующихся светлых и темных полос, называемая муаровым узором, возникает

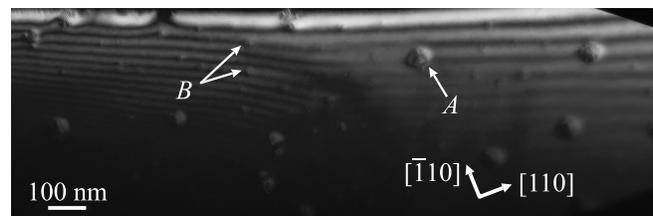


Рис. 7. ПЭМ-фотография поверхности образца с массивом незарощенных квантовых точек в системе InSb/InAs, полученная в планарной геометрии в отражении 220. На снимке отчетливо видны два типа нанообъектов: крупные (A) и мелкие (B).

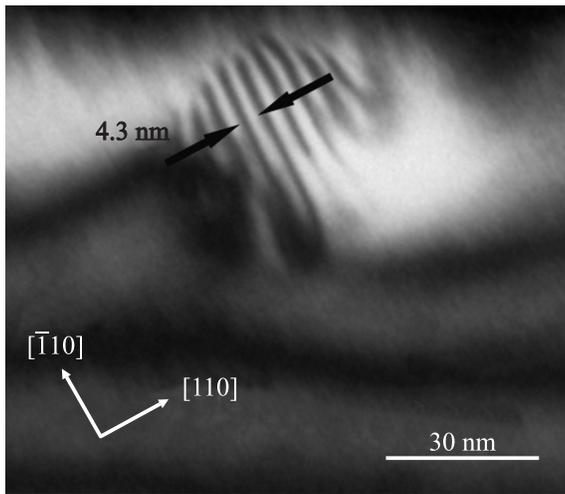


Рис. 8. Темнопольное ПЭМ-изображение „большой“ квантовой точки InSb, полученное в отражении 220.

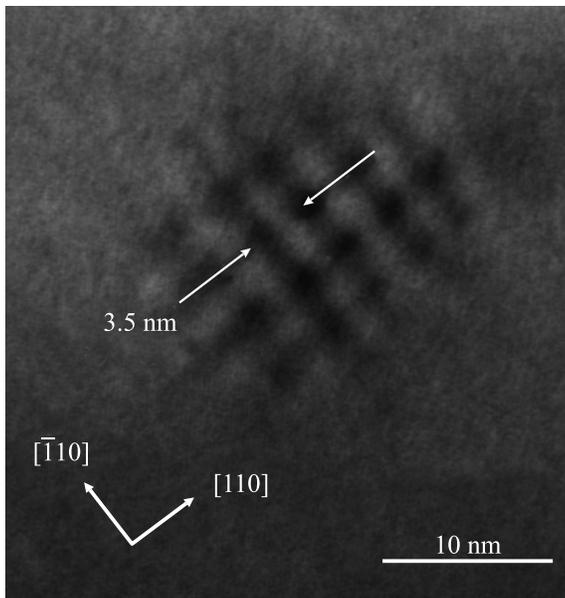


Рис. 9. ПЭМ-изображение „мелкой“ квантовой точки InSb, полученное в оси зоны.

в случае наложения друг на друга двух кристаллов, отличающихся по постоянной решетки и(или) развернутых друг относительно друга. Если рассматривать просто наложение двух одинаково ориентированных тонких кристаллических пленок друг на друга с большой площадью поверхности, то период муара определяется только параметрами решетки одного и другого кристалла:

$$\sigma = \frac{1}{(1/d_1) - (1/d_2)}, \quad (1)$$

где d_1 и d_2 — соответствующие межплоскостные расстояния данных кристаллов, вычисляемые по формуле $d = \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}$, h, k, l — индексы Миллера данных плоскостей.

В случае помещения небольшого включения одного материала в другой материал с отличающимся параметром решетки также возможно образование муаровых полос, однако при этом важным параметром становится наличие напряжений внутри квантовой точки, а также ее форма и размеры. В работе [14] детально исследована зависимость периода муаровых полос от формы квантовых точек InAs в матрице GaAs. Было показано, что, помимо параметров решетки двух материалов, в случае маленьких островков существенным оказывается влияние напряжений внутри них. Стоит отметить, что система InSb/InAs близка к системе InAs/GaAs по параметру рассогласования постоянных решетки ($\sim 7\%$), поэтому мы можем воспользоваться результатами данной работы для трактовки муаровых узоров, наблюдающихся на исследуемых структурах с квантовыми точками InSb на подложке InAs. Считая, что квантовая точка имеет форму усеченной пирамиды (такая форма максимально приближена к форме выпуклой круглой линзы), период муара можно определить, зная отношение высоты h к латеральному размеру b квантовой точки. Введем величину $\tau = b'/b$ как отношение верхнего основания усеченной пирамиды b' к нижнему b .

Как уже отмечалось, при исследовании поверхности образца с массивом квантовых точек InSb методом ПЭМ были обнаружены нанобъекты двух типов — большие и маленькие. Отношение высоты квантовой точки к ее диаметру $p = h/b$ приблизительно одинаково для обоих типов и равно 0.2, т.е. 1 : 5. В работе [14] приведена теоретически построенная зависимость периода муара σ от параметра p для когерентных квантовых точек, состоящих только из соединения, рассогласованного относительно матрицы на 7% по параметру постоянной кристаллической решетки. Очевидно, что отношение $p = 0.2$ соответствует периоду муара 3.3 нм при $\tau = 0.25$. Полученные экспериментальные значения периода муара для мелких и крупных квантовых точек составили 3.5 и 4.3 нм соответственно. Таким образом, период муаровых полос для мелких квантовых точек (тип B) в точности соответствует расчетному значению для чистого материала InSb.

Увеличение периода муара для крупных квантовых точек может быть объяснено либо присутствием мышьяка внутри включения, либо частичной потерей когерентности включений. При изучении ПЭМ-изображений, сформированных с различным действующим дифракционным вектором, дислокационный контраст не наблюдался, что указывало на отсутствие дислокаций в квантовых точках, и мы считаем их когерентными. Тогда увеличение периода муара может быть объяснено наличием мышьяка внутри квантовой точки, и для определения его содержания можно воспользоваться концентрационным правилом Вегарда для постоянной решетки тройного твердого раствора $\text{InAs}_x\text{Sb}_{1-x}$:

$$a_{\text{InAsSb}} = a_{\text{InSb}}(1-x) + a_{\text{InAs}}x, \quad (2)$$

где a_{InSb} , a_{InAs} — постоянные решетки InSb, InAs.

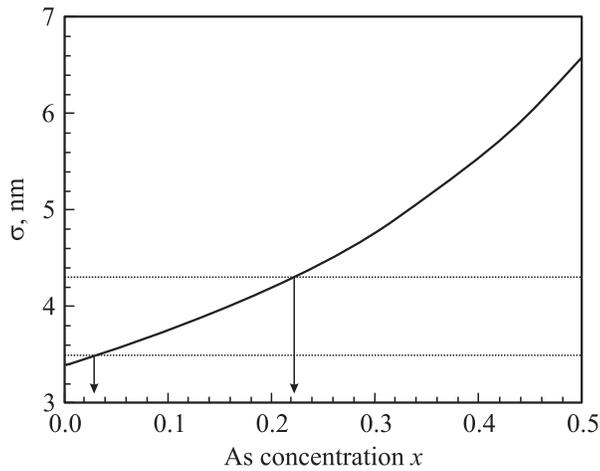


Рис. 10. Расчетные значения периода муаровых полос для эпитаксиальных слоев в системе InAs/InAsSb в зависимости от содержания мышьяка в InAsSb. Стрелками обозначены составы тройного твердого раствора, соответствующие различным наблюдаемым периодам муаровых полос σ .

Направление полос муара совпадает с кристаллографическими плоскостями семейства $\{220\}$, соответствующие межплоскостные расстояния в этом случае равны

$$d_1(\text{InAs}) = \frac{a_{\text{InAs}}}{\sqrt{8}}, \quad d_2(\text{InAsSb}) = \frac{a_{\text{InAsSb}}}{\sqrt{8}}. \quad (3)$$

Поскольку параметр решетки твердого раствора $\text{InAs}_x\text{Sb}_{1-x}$ является функцией концентрации мышьяка x в нем, то и период муара интерференционной картины, рассчитываемый по формуле (1), также будет функцией от x . На рис. 10 приведена зависимость расчетного периода муара в системе InAs/In(As)Sb от содержания мышьяка в квантовой точке. Экспериментально полученное значение периода муара для квантовых точек соответствует содержанию As $\sim 3\%$ в мелкой квантовой точке и $\sim 24\%$ в большой квантовой точке. Значение $\sim 3\%$ можно считать сопоставимым с погрешностью эксперимента, следовательно, мелкие квантовые точки когерентны, бездислокационны и состоят из чистого арсенида индия. Наличие включений арсенида индия в больших квантовых точках подтверждает наше предположение об островковом механизме их образования.

5. Заключение

В результате проведенных исследований были определены условия эпитаксиального наращивания массивов квантовых точек бинарного соединения арсенида индия на монокристаллическую подложку арсенида индия методом ЖФЭ, при которых достигаются высокая плотность нанобъектов (квантовых точек) и достаточно резкое распределение по размерам. Была использована методика осаждения из пересыщенного раствора–расплава при минимальном времени контакта

жидкой фазы с подложкой (время контакта < 1 с) при плавном протаскивании раствора–расплава со скоростью ~ 10 см/с и при различных скоростях охлаждением системы (0.3 и $0.6^\circ\text{C}/\text{мин}$). В интервале температур $T = 420\text{--}450^\circ\text{C}$ были получены массивы когерентных квантовых точек InSb с плотностью $(0.9\text{--}2) \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$, размеры которых составляли 3 нм в высоту и 13 нм в диаметре. Обнаружен бимодальный характер распределения квантовых точек арсенида индия на поверхности бинарного соединения арсенида индия, который может быть объяснен комбинированным механизмом роста нанобъектов. Это выражалось в появлении, наряду с малыми квантовыми точками, квантовых точек большего размера (10 нм в высоту и 56 нм в диаметре) с меньшей на порядок поверхностной плотностью. Мы предполагаем, что формирование больших квантовых точек связано с особенностями (неоднородностями) поверхности подложки арсенида индия, и они формируются до критического значения пересыщения раствора–расплава, при превышении которого начинается когерентный рост самоорганизующихся квантовых точек. Такие квантовые точки упруго напряжены и не содержат дислокационных дефектов. Как показал анализ полученных данных для данного способа наращивания квантовых точек в системе InSb/InAs, наиболее существенными факторами, от которых зависят параметры квантовых точек, являются температура роста и состав раствора–расплава.

Впервые изучены структурные характеристики отдельной квантовой точки InSb, сформированной на поверхности InAs, с помощью методов атомно-силовой микроскопии и посвечивающей электронной микроскопии. Для квантовых точек InSb/InAs впервые наблюдались картины муаровых узоров. Период муара 3.5 нм соответствует практически чистым квантовым точкам InSb без примеси мышьяка, период 4.3 нм соответствует концентрации As $\sim 24\%$ в квантовой точке In(As)Sb. Показано, что период муара для крупных квантовых точек может быть связан с попаданием атомов As в квантовую точку InSb и соответствующим изменением параметра решетки.

Работа частично поддержана в рамках программ Президиума РАН, ОФН РАН и РФФИ.

Список литературы

- [1] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Шукин, П.С. Копьев, Ж.А. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП, **32**, 385 (1998).
- [2] V. Grundmann. Physica E, **5**, 167 (2000).
- [3] А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, П. Кубат, К.Д. Моисеев, С. Цивиш, Ю.П. Яковлев. ФТП, **35**, 375 (2001).
- [4] M. Mikhailova, N. Stoyanov, I. Andreev, B. Zhurtanov, S. Kizhaev, E. Kunitsyna, K. Salikhov, Yu. Yakovlev. Proc. SPIE, **6585**, 658 526 (2007).
- [5] V. Tasco, N. Deguffroy, A.N. Baranov, E. Tournie, B. Satpari, A. Trampert, M. Dunaevski, A. Titkov. J. Cryst. Growth, **301**, 713 (2007).

- [6] P. Mock, G.R. Booker, N.J. Mason, R.J. Nicholas, E. Aphandery, T. Topuria, N.D. Browning. *Mater. Sci. Eng. B*, **80**, 112 (2001).
- [7] S. Shusterman, Y. Paltiel, A. Sher, V. Ezersky, Y. Rosenwaks. *J. Cryst. Growth*, **291**, 363 (2006).
- [8] F. Hatami, S.M. Kim, H.B. Yuen, J.S. Harris. *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 133 115 (2006).
- [9] A. Krier, X.L. Huang, A. Hammiche. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **34**, 874 (2001).
- [10] К.Д. Моисеев, Я.А. Пархоменко, А.В. Анкудинов, Е.В. Гущина, М.П. Михайлова, А.Н. Титков, Ю.П. Яковлев. *Письма ЖТФ*, **33** (7), 50 (2007).
- [11] D. Passeri, A. Bettucci, M. Germano, M. Rossi, A. Alippi, S. Orlanducci, M.L. Terranova, M. Ciavarella. *Rev. Sci. Instrum.*, **76**, 093 904 (2005).
- [12] M.S. Dunaevsky, A.V. Ankudinov, Z.F. Krasilnik, D.N. Lobanov, A.V. Novikov, R. Laiho, A.N. Baranov, D.A. Yarekha, P. Girard, A.N. Titkov. *Proc. 11th Int. Symp. Nanostructures: Physics and Technology* (St.Petersburg, Russia, 2003) p. 103.
- [13] D.J. Eaglesham, M. Cerullo. *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 1943 (1990).
- [14] Y. Androussi, T. Benabbas, A. Lefebvre. *Ultramicroscopy*, **93**, 161 (2002).
- [15] J.G. Lozano, D. Gonzalez, A.M. Sanchez, D. Araujo, S. Ruffenach, O. Briot, R. Garcia. *Phys. Status Solidi C*, **3**, 1687 (2006).

Редактор Л.В. Шаронова

Peculiarity of the epitaxial growth of narrow-gap InSb quantum dots on InAs substrate

K.D. Moiseev, Ya.A. Parkhomenko, E.V. Gushchina, A.V. Ankudinov, V.P. Mikhailova, N.A. Bert, Yu.P. Yakovlev

loffe Physicotechnical Institute
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

Abstract Massifs of coherent InSb quantum dots with density of $(0.9-2) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, 3 nm in the height and 13 nm in the diameter were obtained on InAs substrates by liquid-phased epitaxy in the temperature range $T = 420-450^\circ\text{C}$. Bimodal character of the size distribution of these quantum dots was observed, that was explained by combine mode of the nanoobjects growth. Structural characterization of a single InSb quantum dot deposited on InAs surface was performed by atomic force microscopy and transmission electron microscopy methods. Moiré fringes pictures of quantum dots in InSb/InAs system were observed for the first time, and pure InSb quantum dot without any As inclusions demonstrated the moiré period as large as 3.5 nm.