

## Структуры GaAs с квантовыми точками InAs и As, полученные в едином процессе молекулярно-лучевой эпитаксии

© В.Н. Неведомский<sup>¶</sup>, Н.А. Берт, В.В. Чалдышев<sup>¶¶</sup>, В.В. Преображенский\*, М.А. Путьто\*, Б.Р. Семягин\*

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

\* Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук,  
630090 Новосибирск, Россия

(Получена 30 декабря 2008 г. Принята к печати 15 мая 2009 г.)

Методом молекулярно-лучевой эпитаксии выращены эпитаксиальные слои GaAs, содержащие полупроводниковые квантовые точки InAs, сформированные по механизму Странского–Крастанова, и металлические квантовые точки As, сформированные путем самоорганизации в слое GaAs, выращенном при низкой температуре и содержащем большой избыток мышьяка. Методом просвечивающей электронной микроскопии проведены исследования микроструктуры полученных образцов. Установлено, что металлические квантовые точки As, формирующиеся в непосредственной близости от полупроводниковых квантовых точек InAs, имеют большие размеры, чем находящиеся на удалении. Это явление, по-видимому, есть результат воздействия деформационных полей квантовых точек InAs на процессы самоорганизации квантовых точек As. Другим явлением, вероятно, связанным с локальными деформациями вокруг квантовых точек InAs, оказывается формирование V-образных дефектов (дефектов упаковки) при заращивании квантовых точек InAs слоем арсенида галлия при низкотемпературной молекулярно-лучевой эпитаксии. Такие дефекты оказывают сильное воздействие на процессы самоорганизации квантовых точек As. В частности, при высокотемпературном отжиге, необходимом для формирования крупных квантовых точек As путем коалесценции (оствальдовского созревания), наличие V-образных дефектов приводит к растворению квантовых точек As в их окрестности. При этом избыточный мышьяк, скорее всего, диффундирует на открытую поверхность образца за счет каналов ускоренной диффузии по плоскостям дефектов упаковки.

PACS: 68.55.Ac, 68.55.Jk, 68.55.Nq, 68.65.Nb, 81.07.Ta, 81.15.Ni

Молекулы и массивы связанных квантовых точек являются в настоящее время объектами все возрастающего внимания исследователей. Формирование таких объектов существенно расширяет набор энергетических параметров и физических свойств наноструктур. Например, использование массивов связанных квантовых точек позволяет значительно улучшить параметры и расширить спектральный диапазон работы лазеров на полупроводниковых квантовых точках (ПКТ) [1]. Формирование молекул квантовых точек изменяет параметры экситонных состояний в них и меняет взаимодействие экситонных состояний со светом. Методы самоорганизации, обеспечивающие получение молекул и массивов ПКТ, в настоящее время достаточно хорошо разработаны и продолжают совершенствоваться [2].

Массивы связанных металлических квантовых точек (МКТ) в среде вызывают интерес с точки зрения взаимодействия света с плазмонными возбуждениями и реализацией новых концепций плазмонной нанофотоники и нелинейной оптики (см., например, [3,4]). Для формирования МКТ обычно используются методы нанесения тонких пленок и литографии. Поскольку литографические методы трудно совместимы с методами самоорганизации ПКТ, экспериментальная реализация гибридных наноструктур, содержащих полупроводниковые и металлические квантовые точки, представляет

собой трудноразрешимую задачу в рамках известных подходов. Нам не известны экспериментальные работы, в которых бы управляемо и воспроизводимо формировались молекулы полупроводниковых и металлических квантовых точек.

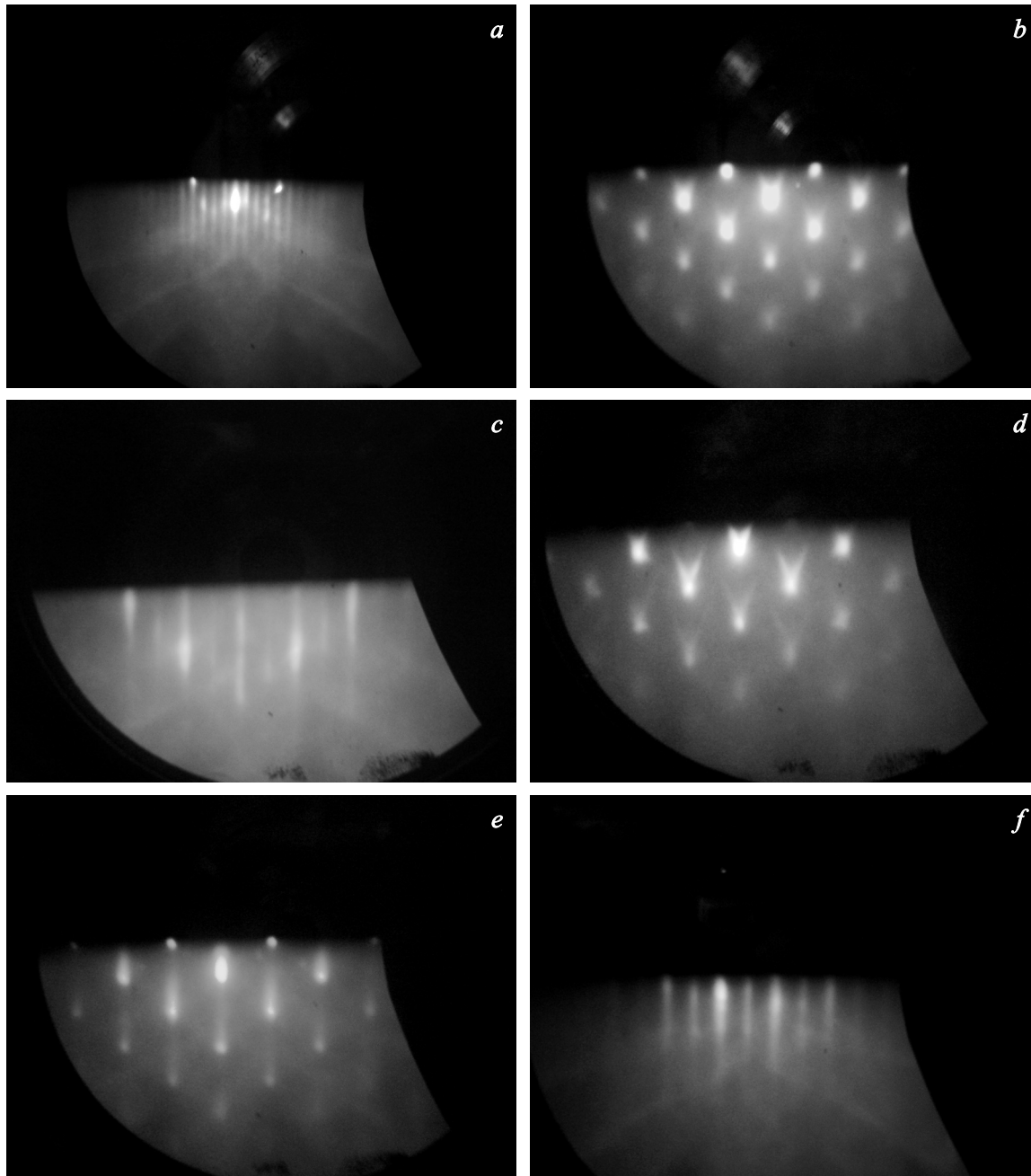
В данной работе впервые сообщается о создании путем самоорганизации в кристаллической матрице арсенида галлия массивов МКТ и ПКТ в рамках единого процесса молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ).

Исследованные образцы были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках полупроводникового GaAs с ориентацией  $(001) \pm 0.5^\circ$ . Процессы на поверхности роста контролировались методом дифракции быстрых электронов на отражение (RHEED). Наблюдение дифракционной картины проводилось в азимуте  $[0\bar{1}1]$ . На рис. 1,  $a-f$  приведены дифракционные картины поверхности образцов на различных стадиях выращивания.

Перед осаждением слоя InAs на поверхности подложки выращивался буферный слой GaAs при температуре  $580^\circ\text{C}$  со скоростью роста  $1\text{ мкм/ч}$  толщиной  $0.2\text{ мкм}$ . При этом наблюдалась обычная для выращивания GaAs(001) картина основных рефлексов RHEED (рис. 1,  $a$ ). После роста буферного слоя поток галлия перекрывался, температура подложки понижалась до  $460^\circ\text{C}$ , и осаждались три монослоя (МС) InAs со скоростью роста  $0.05\text{ МС/с}$ . Температура подложки определялась по методике, описанной в [5]. Плотность потока  $\text{As}_4$  составляла  $P_{\text{As}_4} = 1 \cdot 10^{15}\text{ ат/см}^2 \cdot \text{с}$ , что при тем-

<sup>¶</sup> E-mail: nevedom@mail.ioffe.ru

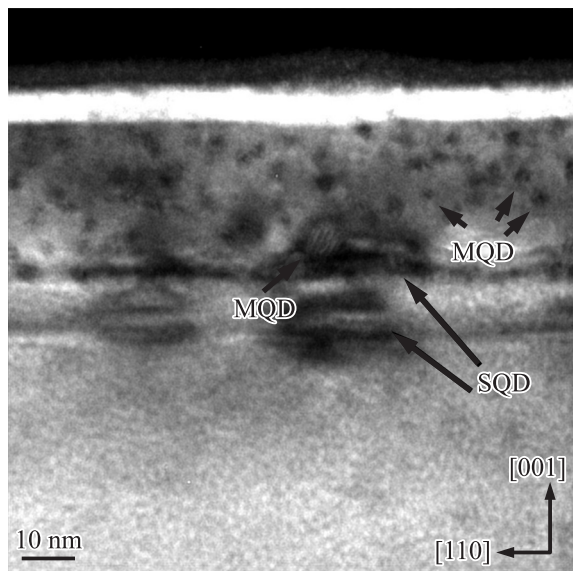
<sup>¶¶</sup> E-mail: Chald@gvg.ioffe.ru



**Рис. 1.** Картины дифракции быстрых электронов на отражение, наблюдаемые на разных стадиях выращивания образцов: *a* — после выращивания буферного слоя GaAs при 580°C; *b* — после формирования первого слоя ПКТ InAs; *c* — после зарращивания первого слоя ПКТ InAs; *d* — после формирования второго слоя ПКТ InAs; *e* — после зарращивания второго слоя ПКТ InAs слоем LT-GaAs; *f* — после зарращивания второго слоя ПКТ InAs слоем GaAs при 460°C.

пературе 460°C соответствовало условиям стабилизации поверхности InAs мышьяком. Оперативное управление плотностью потока мышьяка обеспечивалось использованием источника мышьяка вентильного типа. Срыв псевдоморфного роста и формирование квантовых точек происходили при наращивании 1.9–2 монослоев InAs. При этом на дифракционной картине RHEED появлялись точечные рефлексы (рис. 1, *b*). Сформированный первый слой InAs с квантовыми точками зарращивался

слоем арсенида галлия толщиной 10 нм при температуре 460°C. В процессе зарращивания точечные рефлексы пропадали, и появлялись следы основных рефлексов. После осаждения 10 нм GaAs наблюдались четкие основные и сверхструктурные рефлексы (рис. 1, *c*), что свидетельствует об атомарной гладкости поверхности. Затем наращивался второй слой InAs и формировались ПКТ, что сопровождалось появлением точечных рефлексов на картинах RHEED (рис. 1, *d*). Зарращивание вто-



**Рис. 2.** Светлопольное изображение, полученное в двухлучевых дифракционных условиях с действующим дифракционным вектором  $g = 002$ , поперечного сечения  $(1\bar{1}0)$  образца, содержащего одновременно массивы ПКТ InAs и МКТ As (SQD и MQD соответственно, отмечены стрелками). МКТ As формировались при  $500^\circ\text{C}$ .

рого слоя ПКТ InAs производилось арсенидом галлия при низкой ( $200^\circ\text{C}$ ) температуре (ЛТ). Слой ЛТ-GaAs имел толщину 30 нм. В процессе зарастивания второго слоя ПКТ низкотемпературным GaAs наблюдалось снижение интенсивности точечных рефлексов. По мере увеличения толщины растущего слоя поверхность частично выглаживалась и появлялись основные рефлексы. Наличие на дифракционной картине после зарастивания одновременно основных и точечных рефлексов (рис. 1, *e*) свидетельствует о неполном выглаживании поверхности.

В тех же условиях, что и основные образцы, были выращены контрольные образцы с двойным слоем ПКТ InAs, в которых верхний слой GaAs наращивался при температуре  $460^\circ\text{C}$ . В этом случае уже на начальных этапах происходило значительное улучшение морфологических параметров поверхности, которое приводило к исчезновению точечных рефлексов и появлению тяжелой основных и сверхструктурных рефлексов (рис. 1, *f*).

Известно [6,7], что слои ЛТ-GaAs содержат избыточный мышьяк, который при отжиге формирует нановключения полуметалла As (МКТ). Выращенные структуры отжигались непосредственно в установке МЛЭ под потоком  $\text{As}_4$ , но при закрытых источниках Ga и In. Время такого отжига составляло  $\sim 15$  мин, а температура варьировалась от  $400$  до  $600^\circ\text{C}$ . Контрольные образцы отжигу не подвергались.

Полученные образцы исследовались методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) в планарной проекции (001) и в поперечном сечении (110).

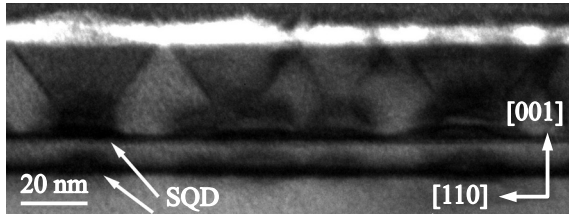
Исследования проводились в электронном микроскопе JEOL JEM2100F при ускоряющем напряжении 200 кВ. Образцы для исследований были приготовлены посредством механической обработки с последующим распылением пучком  $\text{Ar}^+$ -ионов с энергией 2–4 кэВ под углом  $11^\circ$  к поверхности.

Электронно-микроскопическое изображение поперечного сечения образца с комбинированным набором квантовых точек после отжига при  $500^\circ\text{C}$  представлено на рис. 2. На изображении наблюдается характерный контраст от двух пар вертикально-упорядоченных ПКТ InAs, правая из которых отмечена стрелками. Характерный латеральный размер ПКТ InAs составляет 20–30 нм, а их высота достигает 8 нм. С учетом того, что толщина промежуточного слоя GaAs составляет 10 нм и деформационные поля от нижележащих квантовых точек достигают его поверхности, самоорганизация ПКТ InAs во втором плоском массиве должна происходить непосредственно над ПКТ InAs первого слоя, где обеспечивается выигрыш в энергии упругой деформации кристаллической решетки [1,2]. Наши электронно-микроскопические исследования показали, что практически все ПКТ InAs действительно образуют пары в вертикальном направлении.

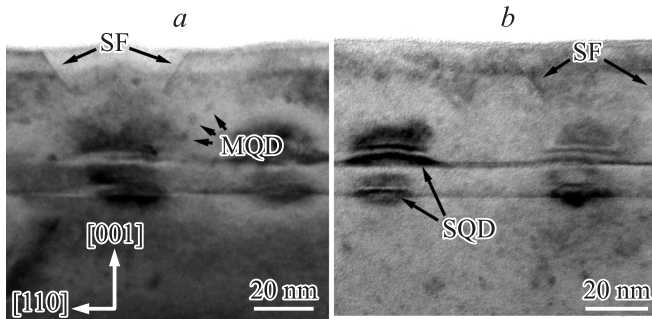
В верхнем слое GaAs, выращенном при низкой температуре, наблюдаются включения с характерным электронно-микроскопическим контрастом полос муара, свидетельствующим о том, что эти включения представляют собой кристаллические МКТ As, самоорганизованные в матрице GaAs при отжиге [8,9]. Средний размер МКТ As после отжига при  $500^\circ\text{C}$  составляет 4–5 нм, что соответствует типичному размеру включений As в толстых ( $\sim 1$  мкм) слоях ЛТ-GaAs, полученных в таких же условиях [7]. Однако, как видно из рис. 2, МКТ As, расположенная в непосредственной близости от правой ПКТ InAs и демонстрирующая отчетливую картину полос муара, имеет значительно больший размер, достигающий 8 нм. Причина этого явления, по-видимому, состоит в том, что упругие деформационные поля, возникающие вблизи ПКТ InAs, обеспечивают более выгодные условия для преципитации As. Напомним, что тонкие слои InAs в ЛТ-GaAs являются прекурсорами для гетерогенной преципитации нестехиометрического As в GaAs [10–12].

Согласно закону коалесценции Лифшица–Слезова, наличие в ансамбле более крупных наночастиц должно приводить к их дальнейшему росту за счет растворения и поглощения более мелких. Таким образом, полученные данные показывают принципиальную возможность самоорганизации наноструктур, содержащих в матрице арсенида галлия комбинированный набор квантовых точек различной природы: ПКТ InAs и МКТ As.

Практическая реализация таких структур сталкивается, однако, с рядом трудностей. Прежде всего зарастивание верхнего массива ПКТ InAs слоем GaAs при низкой температуре часто сопровождается генерацией специфических V-образных дефектов. Электронно-микро-



**Рис. 3.** Светлопольное изображение, полученное в двухлучевых дифракционных условиях с действующим дифракционным вектором  $g = 002$ , поперечного сечения  $(1\bar{1}0)$  образца с ПКТ InAs (SQD, отмечены стрелками), не подвергнутого финишной термообработке и не содержащего МКТ As.



**Рис. 4.** Светлопольные изображения, полученные в двухлучевых дифракционных условиях, поперечного сечения  $(1\bar{1}0)$  образца с ПКТ InAs после отжига при 500°C ( $g = 002$ ) (a) и 600°C ( $g = 004$ ) (b). Отмечены стрелками: SF — дефекты упаковки, MQD — МКТ As, SQD — ПКТ InAs.

скопическое изображение таких дефектов в поперечном сечении структуры показано на рис. 3. Видно, что V-образные дефекты зарождаются на границе верхнего массива ПКТ InAs с LT-GaAs и далее распространяются вдоль плоскостей  $\{111\}$ . Подобные дефекты наблюдались ранее в GaAs с ПКТ InAs (см., например, [13]). Геометрия V-образных дефектов на электронно-микроскопических изображениях позволяет предположить, что они, скорее всего, представляют собой дефекты упаковки, ограниченные парами частичных дислокаций. Следует подчеркнуть, что формирование V-образных дефектов происходит на стадии зарастивания ПКТ InAs слоем LT-GaAs и не связано с процессом самоорганизации МКТ As в матрице арсенида галлия.

Наличие V-образных дефектов, однако, должно влиять на процесс самоорганизации МКТ As. Действительно, самоорганизация МКТ As происходит путем диффузии и преципитации атомов избыточного As в матрице GaAs. Наличие протяженных дефектов структуры, распространяющихся к свободной поверхности, создает каналы ускоренной диффузии атомов As к поверхности и, как следствие, может не только нарушать процесс самоорганизации МКТ As, но и приводить к растворению уже имеющихся МКТ As. Подобную ситуацию иллюстрирует рис. 4, на котором для сравнения показаны

электронно-микроскопические изображения поперечного сечения образцов, один из которых подвергался термообработке при 500°C, другой — при 600°C. Видно, что в обоих образцах присутствуют дефекты упаковки и ПКТ InAs. В образце, подвергнутом отжигу при 500°C, наблюдаются также МКТ As, как расположенные в непосредственной близости от ПКТ As, так и удаленные от них. После отжига при 600°C контраста, связанного с МКТ As, обнаружить не удастся. Это может быть обусловлено либо их отсутствием, либо настолько малыми их размерами, что не обеспечивается формирование контраста, достаточного для их надежной визуализации.

Таким образом, проведенные нами электронно-микроскопические исследования показывают принципиальную возможность осуществления самоорганизации в структуре на основе GaAs двух массивов квантовых точек различной природы в рамках хорошо совместимых методов: МЛЭ в режиме Странского–Крастанова для формирования ПКТ InAs, низкотемпературной МЛЭ для осаждения слоя пересыщенного твердого раствора As в GaAs и последующей термообработки для формирования МКТ As посредством преципитации. Полученные данные свидетельствуют, что ПКТ InAs, расположенные в объеме или примыкающие к объему, в котором происходит преципитация As, оказывают существенное влияние на процесс самоорганизации МКТ As. То обстоятельство, что МКТ As, находящиеся в непосредственной близости от ПКТ InAs, достигают большего размера, чем МКТ As на удалении, открывает путь к формированию гибридных наноструктур ПКТ–МКТ в объеме эпитаксиального слоя GaAs. Реализация таких структур требует решения проблемы генерации V-образных дефектов при низкотемпературном зарастивании массива ПКТ InAs.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, грант № 08-02-01215.

## Список литературы

- [1] N.N. Ledentsov. IEEE J. Select. Topics Quant. Electron., **8**, 1015 (2002).
- [2] *Self-Assembled Quantum Dots*, ed. by Z.M. Wang (Springer, Berlin, 2008).
- [3] S.A. Maier, H.A. Atwater. J. Appl. Phys., **98**, 011 101 (2005).
- [4] M.W. Klein, T. Tritzschler, M. Wegener, S. Linden. Phys. Rev. B, **72**, 115 113 (2005).
- [5] В.В. Преображенский, М.А. Пулято, Б.Р. Семягин. ФТП, **36**, 897 (2002).
- [6] Л.Г. Лаврентьева, М.Д. Вилисова, В.В. Преображенский, В.В. Чалдышев. В кн.: *Нанотехнологии в полупроводниковой электронике*, под ред. А.Л. Асеева (Изд. СО РАН, Новосибирск, 2004).
- [7] Н.А. Берт, А.И. Вейнгер, М.Д. Вилисова, С.И. Голощанов, И.В. Ивонин, С.В. Козырев, А.В. Куницын, Л.Г. Лаврентьева, Д.И. Лубышев, В.В. Преображенский, Б.Р. Семягин, В.В. Третьяков, В.В. Чалдышев, М.П. Якубеня. ФТТ, **35**, 2609 (1993).

- [8] A. Claverie, Z. Liliental-Weber. *Phil. Mag.*, **65**, 981 (1992).
- [9] Н.А. Берт, В.В. Чалдышев. *ФТП*, **30**, 1889 (1996).
- [10] T.M. Cheng, C.V. Chang, A. Chin, M.F. Huang, J.H. Huang. *Appl. Phys. Lett.*, **64**, 2517 (1994).
- [11] Н.А. Берт, В.В. Чалдышев, Д.И. Лубышев, В.В. Преображенский, Б.Р. Семягин. *ФТП*, **29**, 2232 (1995).
- [12] N.A. Bert, V.V. Chaldyshev, N.N. Faleev, A.A. Kunitsyn, D.I. Lubyshv, V.V. Preobrazhenskii, B.R. Semyagin, V.V. Tretyakov. *Semicond. Sci. Technol.*, **12**, 51 (1997).
- [13] K. Sears, J. Wong-Leung, H.H. Tan, C. Jagadish. *J. Appl. Phys.*, **99**, 113 503 (2006).

*Редактор Л.В. Шаронова*

## **GaAs structures with InAs and As quantum dots produced in a single process of molecular beam epitaxy**

*V.N. Nevedomskii, V.V. Chaldyshev, N.A. Bert, V.V. Preobrazhenskii\*, M.A. Putyato\*, B.R. Semyagin\**

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

\* Institute of Semiconductor Physics,  
Russian Academy of Sciences, Siberian Branch,  
630090 Novosibirsk, Russia

**Abstract** Molecular-beam epitaxy was utilized to grow GaAs epitaxial layers containing InAs semiconductor quantum dots (SQD) formed by Stranski–Krastanov mechanism and As metal quantum dots (MQD) formed by self-organization in the GaAs layer grown at low temperature and containing a large arsenic excess. The microstructure of the samples was studied by transmission electron microscopy. It revealed that As MQDs forming in a close vicinity of InAs SQDs are large than MQDs being far from SQDs. This phenomenon seems to result from the influence of the deformation fields of InAs SQDs on the self-organization processes of As MQDs. The other phenomenon apparently related to the local deformation around InAs SQDs is formation of V-shape defects (stacking faults) during the low-temperature molecular-beam epitaxy overgrowth of the InAs SQDs by the GaAs layer. Such defects impact the self-organization processes of As MQDs. In particular, at the high-temperature anneal, which is required for large As MQD formation by Ostwald ripening, presence of the V-shape defects leads to dissolution of As MQDs in their vicinity. The released excess arsenic is likely to diffuse to the open surface of the sample by enhanced diffusion channels on the staking faults planes.