

06;07

Формирование квантовых точек при докритической толщине осаждения InAs на GaAs(100)

© А.А. Тонких, Г.Э. Цырлин, В.Г. Дубровский,
Ю.Б. Самсоненко, Н.К. Поляков, В.А. Егоров,
А.Г. Гладышев, Н.В. Крыжановская, В.М. Устинов

Институт аналитического приборостроения РАН, С.-Петербург
E-mail: iap@ianin.spb.su
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург

Поступило в Редакцию 5 марта 2003 г.

Методами дифракции быстрых электронов на отражение и фотолюминесценции проведены исследования массивов InAs квантовых точек, сформированных на поверхности GaAs(100). Количество осажденного InAs соответствует толщине смачивающего слоя, меньшей критической толщины перехода от двумерного к трехмерному росту. Экспериментально показано, что при толщинах осаждения 1.5 и 1.6 монослоя и последующей выдержке в потоке As₄ происходит формирование островков на поверхности. Исследовано влияние температуры подложки на кинетические характеристики формирования островков InAs/GaAs.

В последние годы неуклонно растет количество работ, посвященных исследованию процессов формирования квантовых точек (КТ) в гетероэпитаксиальных системах, рассогласованных по параметру решетки, в частности в системе In(Ga,Al)As/GaAs. Это во многом обусловлено успехами в создании полупроводниковых лазерных диодов с активной областью на основе массивов КТ [1,2]. Тем не менее до сих пор остается довольно много малоизученных эффектов, связанных с механизмами формирования КТ. В частности, в работах [3,4] было показано, что при осаждении InAs на поверхность GaAs с промежуточными толщинами 1.0–1.5 монослоя (МС) формируются так называемые „паркетные“ структуры. Характерной особенностью данных структур является наличие периодичности. При средней высоте нанобъектов ~ 2–3 МС и латеральных размерах ~ 25 nm они были удалены друг от друга в среднем на 30 nm. Кроме того, в [4] было показано, что применение

выдержки в потоке As_4 ведет к увеличению периода в подобных структурах до величины порядка 40–50 nm. Нами были продолжены исследования в данном направлении. В отличие от работ [3,4] в настоящей работе исследуется процесс трансформации упругонапряженного смачивающего слоя InAs толщиной 1.5–1.6 МС в массив островков нанометрового диапазона и остаточный смачивающий слой различной (в зависимости от условий осаждения InAs) толщины.

Исследуемые образцы выращивались на установке молекулярно-пучковой эпитаксии ЭП1203 на полуизолирующих подложках GaAs(100). Процессы осаждения начального слоя InAs, а также трансформация упругонапряженного слоя в систему островки–смачивающий слой контролировались *in situ* с помощью наблюдения за картинами дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО). Были выращены две серии образцов. В первой серии толщина осажденного InAs составляла 1.6 МС, во второй — 1.5 МС. Образцы, входящие в одну серию, различались температурой подложки, при которой происходило осаждение InAs. В этом случае температура изменялась в диапазоне 420–485°C. После осаждения слоя InAs поверхность образца выдерживалась определенное время в потоке As_4 . Для разных образцов это время составляло от 1.5 до 2.5 min. Непосредственно после этого поверхность покрывалась слоем GaAs толщиной 50 Å при той же температуре подложки. Кроме того, для предотвращения транспорта неравновесных носителей при проведении оптических исследований в приповерхностную область и в область подложки активная область ограничивалась с обеих сторон короткопериодными сверхрешетками $Al_{0.25}Ga_{0.75}As/GaAs$ (5 пар, 25 Å/25 Å). Сверху структура покрывалась слоем GaAs толщиной 5 nm. Для буферной области, сверхрешеток и верхнего слоя GaAs температура роста составляла 585°C. Фотолуминесценция (ФЛ) возбуждалась Ar^+ -лазером ($\lambda = 514.5$ nm, плотность возбуждения ~ 100 W/cm²). Излучение детектировалось охлаждаемым Ge фотодиодом.

В таблицу сведены основные параметры и результаты измерений исследуемых образцов. *In situ* наблюдения за ДБЭО картинами показали, что при осаждении InAs пленки толщиной 1.6 МС на поверхности не происходит образования островков. Характерная дифракционная картина в этом случае линейчатая и демонстрирует лишь основные рефлексы, сверхструктурные рефлексы отсутствуют. Следующая за осаждением InAs выдержка в потоке As_4 приводит (в большинстве

Параметры исследуемых образцов

Образец	Толщина InAs, ML	Tsub, °C	Время форм., s	Положение пика КТ, eV	Положение пика СС, eV
a	1.6	485	13	1.079	1.346
b	1.6	450	4	1.117	1.339
c	1.6	420	2	1.169	1.333
d	1.5	485	> 90	—	1.377
e	1.5	450	20	1.130	1.345
f	1.5	420	15	1.140	1.341

случаев) к кардинальному изменению ДБЭО картины. Наблюдается характерное для островкового роста появление объемных дифракционных рефлексов. После появления объемных рефлексов поверхность образцов выдерживается еще некоторое время под потоком As_4 , что приводит к появлению на ней наклонных линейчатых рефлексов, исходящих из объемных, которые соответствовали дифракции электронов от боковых граней островков. Характерным моментом образования КТ мы считали момент появления точечных рефлексов, а по моменту появления наклонных дополнительных рефлексов нами оценивалось время достижения островками квазиравновесных размеров. На рис. 1 приведены зависимости времен формирования КТ от температуры подложки для структур с 1.5 и 1.6 МС InAs. Из рисунка видно, что формирование островков происходит для обеих толщин. При толщине осаждения 1.5 МС и температуре подложки 485°C образования КТ не наблюдалось при временах выдержки более 90 s. Для структур с 1.5 МС InAs момент образования КТ наступает значительно позднее по отношению к образцам, содержащим 1.6 МС InAs.

На рис. 2 изображены спектры фотолюминесценции (ФЛ) от структур с эффективной толщиной осажденного InAs 1.6 МС. Спектры соответствуют образцам, выращенным при температурах 485°C (*a*), 450°C (*b*) и 420°C (*c*). Характерный спектр ФЛ содержит, по крайней мере, два пика. Первый из них (длинноволновый $\sim 1.1 - 1.2$ eV) соответствует излучению из КТ, второй (коротковолновый ~ 1.35 eV) — излучению из смачивающего слоя (СС). Анализ спектров ФЛ позволяет выявить несколько характерных закономерностей. Во-первых, при снижении температуры выращивания InAs слоя и покрывающего

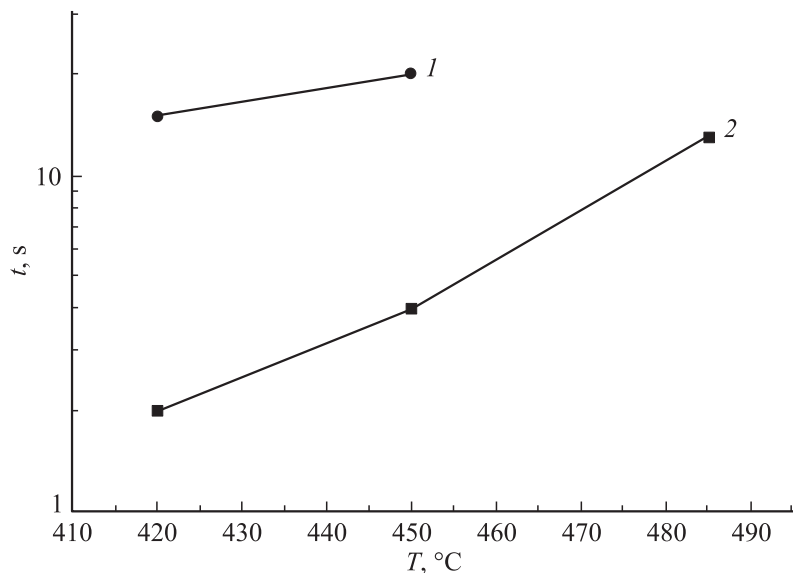


Рис. 1. Зависимости времен формирования КТ от температуры подложки для структур с 1.5 (1) и 1.6 (2) мс InAs.

его слоя GaAs наблюдается снижение интенсивности ФЛ. Это происходит, по-видимому, вследствие ухудшения качества эпитаксиальных слоев, характерного для роста при низкой температуре подложки, которое объясняется неконтролируемым встраиванием примесных центров безызлучательной рекомбинации. Подобное поведение проявляется также и во второй серии образцов. Во-вторых, при снижении температуры подложки наблюдается сдвиг максимума длины волны ФЛ спектра от КТ в коротковолновую сторону, а сдвиг максимума длины волны СС в длинноволновую сторону (рис. 3 и 4). Как видно из сравнения рис. 3 и 4, характерный размер КТ увеличивается как при уменьшении общего количества нанесенного материала, так и при росте температуры. Характерное время формирования КТ уменьшается при понижении температуры подложки и при увеличении общего количества нанесенного InAs. Отметим, что особенностью данной системы

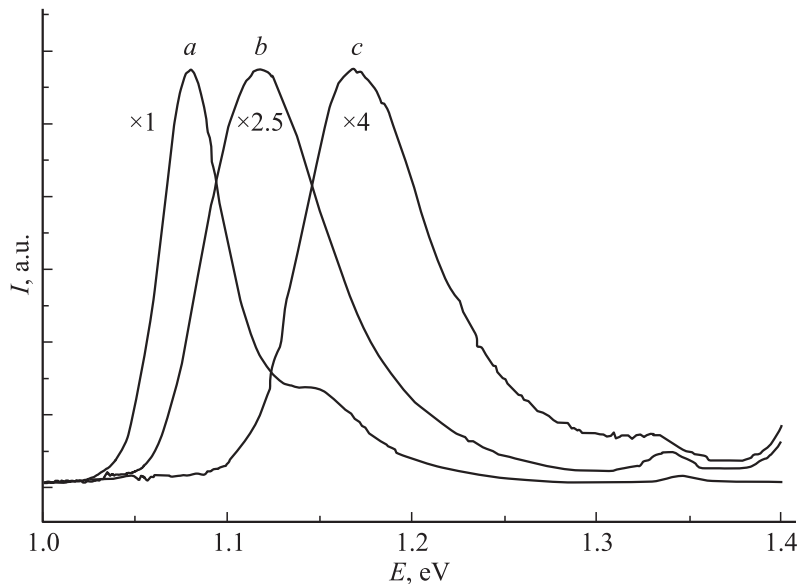


Рис. 2. Влияние температуры осаждения на положение пиков фотолюминесценции для структур с 1.6 мкм InAs.

является снижение времени образования КТ при снижении температуры подложки независимо от толщин осажденного InAs.

Полученные в работе результаты могут быть интерпретированы в рамках теоретической модели кинетики формирования КТ в расогласованных гетероэпитаксиальных системах [5]. В данной модели рассматривается процесс нуклеации и роста КТ по механизму Странски–Крастанова из метастабильного СС, толщина которого превосходит равновесную толщину, определяемую балансом упругих и смачивающих сил [6]. Движущей силой перехода от $2D$ к $3D$ росту является релаксация упругих напряжений в островках, а основным механизмом роста — потребление вещества из СС, вызванное диффузионным потоком за счет разности упругих энергий в СС и островке [7]. Оценки показывают, что равновесная толщина СС для системы InAs/GaAs(100) примерно равна 1 мкм. Критическая толщина СС, соответствующая максимальной интенсивности нуклеации островков при включенном

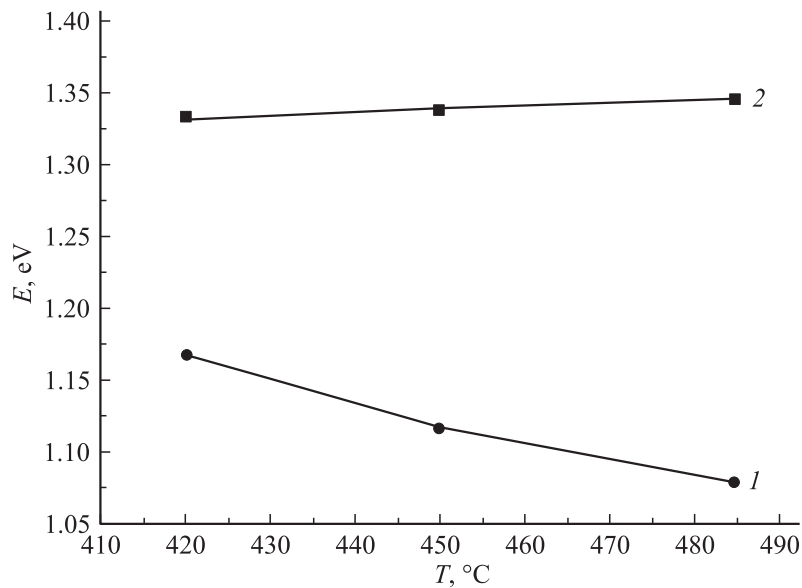


Рис. 3. Зависимости положений пиков фотолюминесценции квантовых точек (1) и смачивающего слоя (2) от температуры для структур с 1.6 МС InAs.

потоке In, составляет ~ 1.7 МС. Следовательно, интервал 1–1.7 МС (докритический интервал) соответствует такой области метастабильности СС, в которой образование когерентных островков является, с одной стороны, уже энергетически выгодным, а с другой стороны, происходит еще с заметно меньшей интенсивностью, чем при закритических толщинах СС. Теоретическое рассмотрение нуклеации и роста островков при докритических толщинах в рамках модели [5] позволяет сделать следующие выводы. Интенсивность нуклеации и плотность КТ увеличивается, а характерный размер КТ уменьшается с увеличением количества осажденного материала. Это полностью соответствует полученным экспериментальным результатам. Температурная зависимость характерного размера КТ разбивается на две области по толщине СС. В области малых толщин СС квазиравновесный размер КТ уменьшается с увеличением температуры, а при толщинах, близких к критической, — увеличивается с увеличением температуры, как и в случае закритиче-

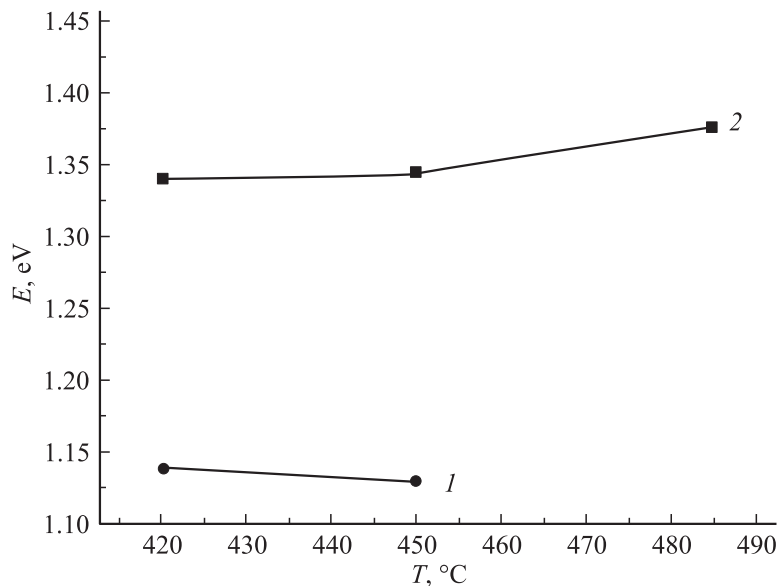


Рис. 4. Зависимости положений пиков фотолюминесценции квантовых точек (1) и смачивающего слоя (2) от температуры для структур с 1.5 МС InAs.

ской толщины [5]. Именно этот случай и осуществляется в проведенных нами экспериментах с толщинами СС 1.5–1.6 МС. Исследование зависимости характерных времен образования КТ требует отдельного рассмотрения. Более подробно результаты теоретического рассмотрения процесса формирования КТ при докритической толщине СС будет проведено в другом сообщении.

Таким образом, нами был экспериментально установлен факт возникновения островков в системе InAs/GaAs (001) при осаждении пленки InAs с толщиной ниже критической толщины перехода от двумерного к трехмерному росту. Было показано, что на времена формирования островков влияет как толщина осажденной пленки InAs, так и температура подложки. С уменьшением толщины InAs слоя на 0.1 МС времена образования островков увеличиваются на порядок величины при прочих равных условиях; при понижении температуры подложки переход в систему островки–смачивающий слой происходит

быстрее. Было предложено интерпретировать полученные в работе результаты в рамках теоретической модели кинетики формирования КТ в рассогласованных гетероэпитаксиальных системах.

Данная работа выполнена при частичной финансовой поддержке научными программами Министерства промышленности, науки и технологии.

Г.Э. Цырлин выражает признательность Alexander von Humboldt Stiftung.

Список литературы

- [1] *Ustinov V.M.* et al. // *Nanotechnology*. 2000. V. 11. P. 397–400.
- [2] *Ustinov V.M., Zhukov A.E.* // *Semicond. Sci. Technol.* 2000. V. 15. P. R41–R45.
- [3] *Cirlin G.E., Guryanov G.M., Golubok A.O., Tapissev S.Ya., Ledentsov N.N., Kop'ev P.S., Grundmann M., Bimberg D.* // *Appl. Phys. Lett.* 1995. V. 67. P. 97–99.
- [4] *Guryanov G.M., Cirlin G.E., Golubok A.O., Tapissev S.Ya., Ledentsov N.N., Shchukin V.A., Grundmann M., Bimberg D., Alferov Zh.I.* // *Surf. Sci.* 1996. V. 352–354. P. 646.
- [5] *Tonkikh A.A., Dubrovskii V.G., Cirlin G.E., Egorov V.A., Ustinov V.M., Werner P.* // *Phys. Stat. Sol (b)*. 2003. V. 236. N 1. P. R1–R3.
- [6] *Müller P., Kern R.* // *Appl. Surf. Sci.* 1996. V. 102. P. 6–11.
- [7] *Osipov A.V., Schmitt F., Kukushkin S.A., Hess P.* // *Appl. Surf. Sci.* 2002. V. 188. P. 156–162.