

Формирование квантовых точек InAs в матрице GaAs при росте на разориентированных подложках

© А.Ф. Цацульников, Б.В. Воловик, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, Чжао Чжень, В.Н. Петров*, Г.Э. Цырлин*, Д. Бимберг†, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров

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

* Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,
198103 Санкт-Петербург, Россия

† Institute für Festkörperphysik, Berliner Technische Universität,
D-10623 Berlin, Germany

(Получена 29 мая 1997 г. Принята к печати 3 июня 1997 г.)

Были проведены исследования формирования квантовых точек InAs, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии в режиме субмонослойной миграционно-стимулированной эпитаксии на поверхностях GaAs(100) с различными углами и направлениями разориентации. Показано, что при осаждении 2 монослоев InAs увеличение угла разориентации выше 3° вдоль направлений [010], $[0\bar{1}1]$ и [011] приводит к формированию нескольких групп квантовых точек, различающихся как геометрическими размерами, так и электронной структурой.

Введение

Большое значение в последнее время в физике полупроводников придается структурам с квантовыми точками (КТ), т. е. объектам, имеющим ограничение по всем трем пространственным направлениям. Наиболее широко используемым методом получения таких объектов является использование эффекта влияния спонтанной трансформации напряженного слоя (In,Ga)As на поверхности (Al,Ga)As на массив однородных островков [1–3]. Использование этих КТ в качестве активной области инжекционного полупроводникового лазера позволило создать лазеры с высокой температурной стабильностью, низкой пороговой плотностью тока и получить генерацию в непрерывном режиме при комнатной температуре мощностью порядка 1 Вт [4–6]. Для улучшения характеристик лазеров на КТ необходимо обеспечить уменьшение дисперсии КТ по размерам, что приведет к сужению линии фотолюминесценции. Существует несколько способов управляемо влиять на размеры КТ — формирование равновесных КТ [7], мультиплицирование КТ [8,9], осаждение КТ на разориентированные поверхности [10–12].

В данной работе мы исследовали оптические свойства КТ InAs, осажденных на поверхность GaAs(100), разориентированную вдоль различных кристаллических направлений. Разориентация поверхности приводит к возникновению террас, размеры которых зависят от угла разориентации. Появление таких террас влияет на энергетику поверхности, что может обеспечить лучшее ориентационное упорядочивание КТ [13]. Кроме того, степень и направление разориентации сильно влияют на латеральные размеры формирующихся КТ [10,11]. Проведенные в данной работе исследования показывают существование нескольких метастабильных групп КТ различного размера, возникающих при осаждении слоя

InAs на разориентированную поверхность GaAs. Возникновение и размеры таких КТ определяются величиной и направлением разориентации, а также количеством осажденного InAs.

Эксперимент

Ростовые эксперименты проводились на установке молекулярно-пучковой эпитаксии Riber-32 на вицинальных подложках полуизолирующего GaAs(100) с различными углами и направлениями разориентации. На молибденовый держатель образца одновременно наклеивались с помощью индия несколько образцов с различной разориентацией по углу и направлениям. Процессы роста производились при постоянном вращении держателя образца с целью уменьшения влияния неравномерности молекулярных потоков и температурного поля нагревателя держателя. После удаления окисного слоя в ростовой камере в потоке As выращивался буферный слой GaAs толщиной 300 нм при температуре подложки $T_s = 630^\circ\text{C}$. Эта температура в нашем случае соответствует моменту перехода реконструкции поверхности (2×4) в (3×1) и выбиралась из соображений улучшения электрофизических и оптических параметров слоев [14]. После буферного слоя выращивалась сверхрешетка, состоящая из 5 пар слоев GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As (2 нм/2 нм) с целью исключения возможности диффузии неравновесных носителей в полуизолирующую подложку с высокой концентрацией глубоководных примесей (Cr). Далее выращивался слой GaAs толщиной 7 нм и температура образца в потоке As понижалась до $T_s = 470^\circ\text{C}$ (момент перехода поверхностной реконструкции (2×4) в (2×2)). Активный слой выращивался в режиме субмонослойной миграционно-стимулированной эпитаксии [11], заключающемся в циклическом осаждении In (при отсутствии потока As), в количестве, необходимом для осаждения

0.5 монослоя InAs, с дальнейшей выдержкой в течение $2 \div 30$ с в потоке As. Общая номинальная толщина InAs составляла 2 или 3 монослоя (4 или 6 циклов осаждения). После завершения процедуры роста активного слоя при той же температуре выращивался слой GaAs толщиной 7 нм. Далее устанавливалась $T_s = 630^\circ\text{C}$ и выращивался слой GaAs толщиной 7 нм. После этого выращивалась сверхрешетка, состоящая из 5 пар слоев GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As (2 нм/2 нм), с целью исключения влияния поверхностной рекомбинации. При росте сверхрешеток после каждого слоя GaAs производилась выдержка поверхности образца в потоке As в течение 20 с. Давление As в ростовой камере во всех экспериментах поддерживалось постоянным на уровне $4 \cdot 10^{-6}$ Торр. Значения ранее откалиброванных потоков Ga, Al и In устанавливались таким образом, чтобы скорости роста GaAs, AlGaAs и InAs равнялись 0.5, 0.68 и 0.1 монослоя в секунду соответственно. Измерения скоростей роста производились с помощью системы наблюдения осцилляций зеркального рефлекса дифракции быстрых электронов на отражение [15] при энергии первичного пучка 10 кэВ.

Фотолюминесценция (ФЛ) возбуждалась Ar⁺-лазером и регистрировалась охлаждаемым фотоэлектронным умножителем. Исследования ФЛ проводились в гелиевом температурном криостате замкнутого цикла.

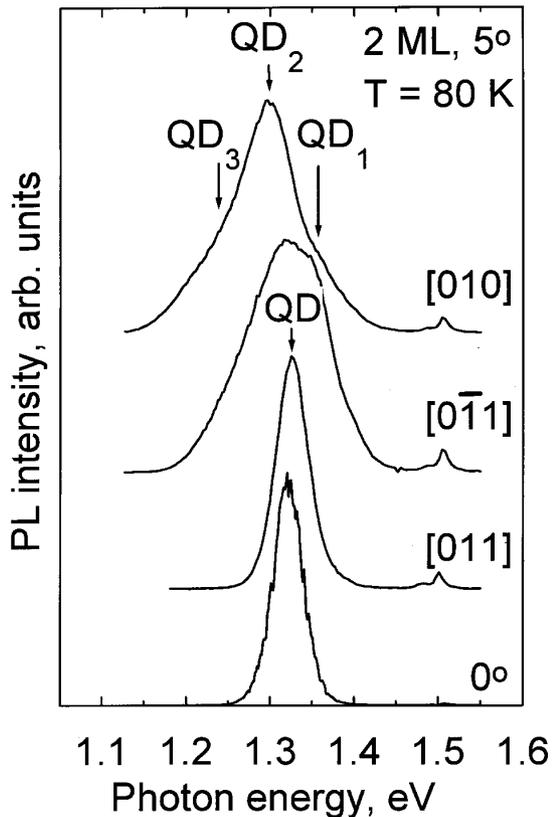


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции для структур с 2 монослоями InAs на подложках, разориентированных на 5° вдоль кристаллографических направлений, указанных на рисунке.

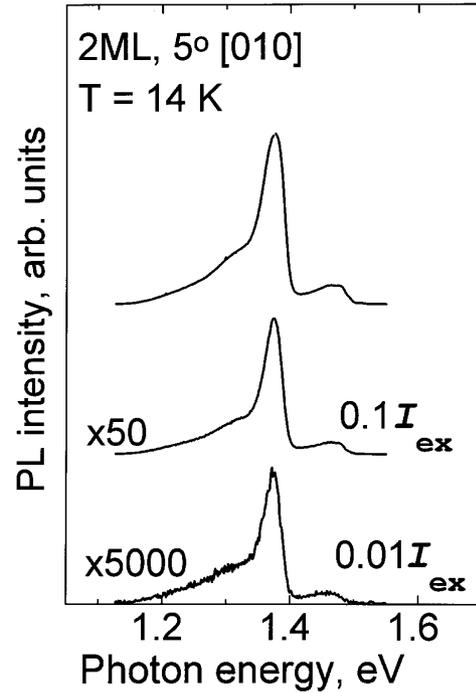


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции для образца с 2 монослоями InAs на подложках, разориентированного на 5° относительно направления [010] при различных интенсивностях возбуждающего света I_{ex} .

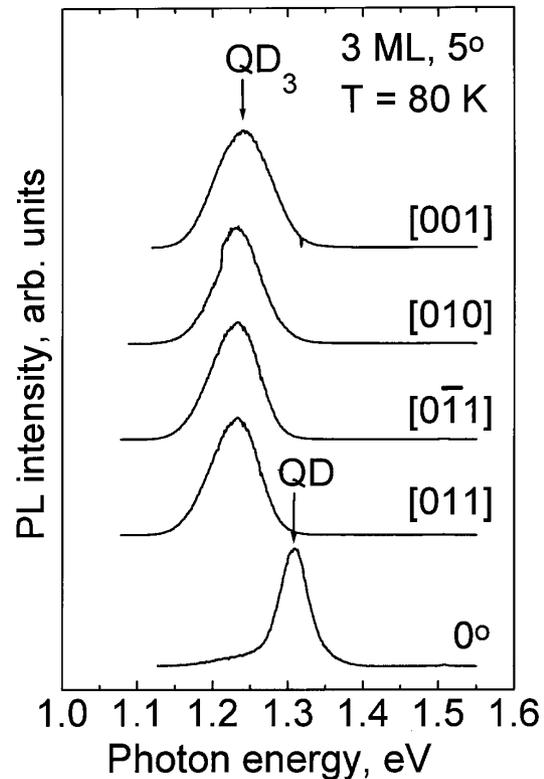


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции для структур с 3 монослоями InAs на подложках, разориентированных на 5° вдоль кристаллографических направлений, указанных на рисунке.

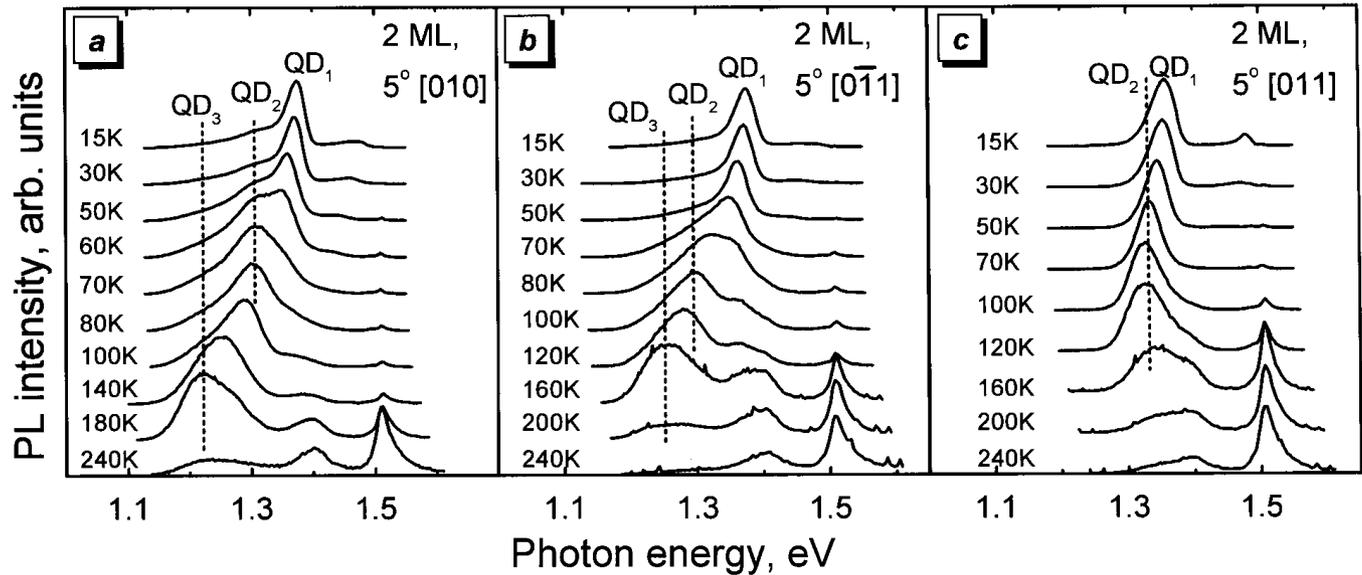


Рис. 4. Спектры фотолуминесценции для структур с 2 монослоями InAs на подложках, разориентированных на 5° относительно направлений: *a* — [010], *b* — [011], *c* — [011]. Температура измерения спектров указана около кривых.

Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведены спектры ФЛ для структур, содержащих слой InAs толщиной 2 монослоя (МС), выращенных на точно ориентированной подложке (100) (образец 2-0) и на подложках, разориентированных на 5° вдоль различных кристаллографических направлений. Как видно из данного рисунка, спектры образцов, выращенных на подложках с разориентацией вдоль направлений [010], [011] и [011] (в дальнейшем образцы 2-5[010], 2-5[011], 2-5[011]), различны. Разориентация вдоль направлений [010] и [011] приводит к появлению 3 линий ФЛ, обозначенных на рис. 1 как QD_1 , QD_2 и QD_3 . В спектре образца 2-5[011] в данных условиях наблюдается только одна линия QD , положение которой совпадает с полосой в спектре ФЛ образца 2-0. Уменьшение интенсивности возбуждающего света при $T = 14$ K (когда термический выброс носителей из локализованных состояний практически подавлен) не вызывает значительного изменения формы спектра образца 2-5[010] (рис. 2). Это свидетельствует о том, что линии QD_1 , QD_2 и QD_3 связаны с рекомбинацией через различные объекты.

Увеличение эффективной толщины осажденного InAs до 3 МС приводит к тому, что доминирующей в спектре ФЛ становится линия QD_3 (рис. 3), положение которой (около 1.24 эВ) практически совпадает с положением линии QD_3 в спектре образцов с 2 МС InAs. Мы полагаем, что полоса QD_3 обусловлена рекомбинацией через равновесные для миграционно-стимулированной эпитаксии квантовые точки [7]. В то же время в спектре структуры 3-0 (нижняя кривая на рис. 3), выращенной на точно ориентированной подложке, полоса QD_3 слабо выражена, а основной является коротковолновая линия

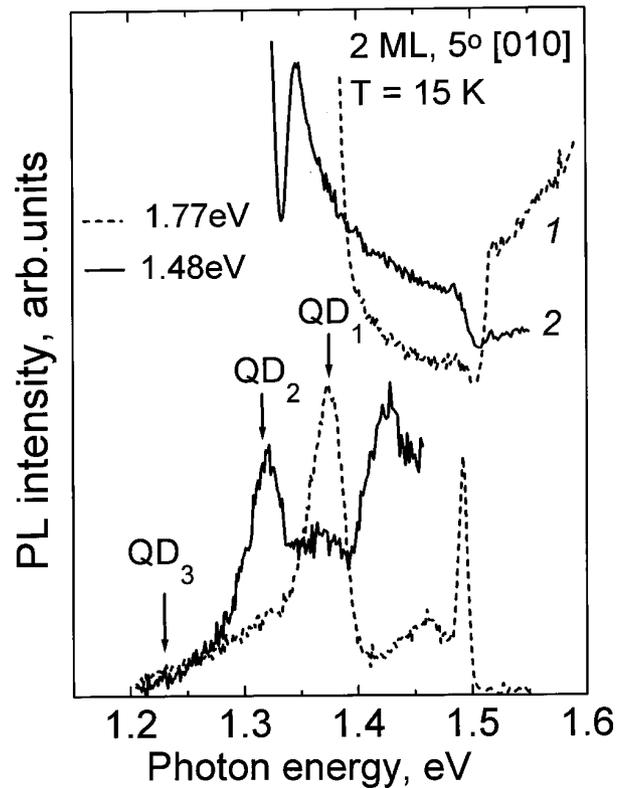


Рис. 5. Спектры возбуждения фотолуминесценции (верхние кривые) и спектры фотолуминесценции (нижние кривые) при возбуждении светом с различной длиной волны для образца 2-5[010]. Энергии регистрации спектров возбуждения 1 и 2 совпадают с максимумами линий QD_1 и QD_2 соответственно.

Угол разори- ентации, град.	Длина террасы L , Å	Направление разориентации	Положение линий в спектрах		
			QD_1 , мэВ	QD_2 , мэВ	QD_3 , мэВ
3	60	[010]	—	1.32	—
5	35	[010]	1375 ± 5	1300 ± 5	1220 ± 5
		$[0\bar{1}1]$	1373 ± 5	1300 ± 10	1250 ± 5
		[011]	1355 ± 5	1325 ± 5	—
7	23	[010]	1376 ± 5	1292 ± 5	1261 ± 5

QD , связанная с КТ меньшего размера. Таким образом, разориентация приводит к увеличению вероятности формирования равновесных КТ, что согласуется с данными, полученными с помощью сканирующей туннельной микроскопии [12]. На рис. 4 показаны спектры ФЛ для структур 2-5[010], 2-5[0 $\bar{1}1$] и 2-5[011], измеренные при различной температуре (сдвиг каждой кривой в коротковолновую сторону определяется соответствующим температурным изменением ширины запрещенной зоны GaAs.). Как видно из этого рисунка, для образцов 2-5[010] и 2-5[0 $\bar{1}1$] в области низких температур в спектре доминирует полоса QD_1 . Возрастание температуры до примерно 70 К приводит к падению интенсивности этой полосы и основной в спектре становится полоса QD_2 . Дальнейшее увеличение температуры приводит к тому, что доминирующей становится линия QD_3 . Для всех линий наблюдается длинноволновый сдвиг максимума с ростом температуры, что является типичным для ФЛ, обусловленной КТ. В спектре образца 2-5[011] при низких температурах также является доминирующей линия QD_1 . Увеличение температуры до примерно 100 К приводит к преобладанию в спектре полосы QD_2 . Полоса QD_3 в спектре этой структуры отсутствует. Таким образом, полученные результаты свидетельствуют о том, что в данных условиях в образце 2-5[011] образования равновесных КТ не произошло.

Положения максимумов линий QD_1 , QD_2 и QD_3 для исследованных структур приведены в таблице. Как видно, положение полос QD_1 , QD_2 для образцов 2-5[010] и 2-5[0 $\bar{1}1$] совпадает. В то же время линия QD_3 в спектре структуры 2-5[0 $\bar{1}1$] смещена в коротковолновую сторону на примерно 30 мэВ по сравнению с той же линией в спектре структуры 2-5[010], что свидетельствует об уменьшении размеров КТ, обуславливающих данную линию, в образце 2-5[0 $\bar{1}1$]. Для образца 2-5[011] наблюдается коротковолновое смещение линии QD_2 и длинноволновое смещение полосы QD_1 , что также свидетельствует об изменении размеров КТ при их формировании на поверхности GaAs данной ориентации.

Для исследования природы возникновения линий QD_1 и QD_2 мы исследовали спектры возбуждения ФЛ и изменение формы спектра ФЛ с изменением энергии возбуждающего света (рис. 5) для образца 2-5[010]. Как видно из спектра возбуждения линии QD_2 , при сильном приближении энергии возбуждения к энергии регистрации происходит значительное падение интенсивности

ФЛ. Такое поведение ФЛ типично для КТ и обусловлено δ -образной плотностью энергетических состояний в КТ. ФЛ появляется, когда энергия возбуждающего света попадает в резонанс с возбужденными состояниями в КТ. Кроме того, это указывает на отсутствие переноса неравновесных носителей между КТ при низкой температуре. Спектр возбуждения полосы QD_2 содержит максимум, который смещается при изменении энергии регистрации таким образом, что энергетическое расстояние между положением этого максимума и энергией регистрации остается постоянным. Оно составляет примерно 30 мэВ, что соответствует энергии LO-фонона в InAs. Кроме того, уменьшение энергии возбуждающего света до значений, меньших ширины запрещенной зоны GaAs, приводит к тому, что преобладающей в спектре становится линия QD_2 . Такое поведение ФЛ, по-видимому, обусловлено фонным механизмом захвата носителей в КТ. Если энергия связи электрона в КТ, с которыми связана полоса QD_2 , меньше энергии LO-фонона в InAs, то это может приводить к более медленному захвату носителей в такие КТ при возбуждении электронно-дырочных пар светом с энергией больше ширины запрещенной зоны GaAs. При резонансном возбуждении электронно-дырочные пары генерируются непосредственно в возбужденные состояния КТ, что и приводит к изменению интенсивности линий QD_2 .

Для изучения влияния разориентации на ФЛ нами были также исследованы структуры с различной величиной угла разориентации, т.е. с разной длиной террас. Для образца с 2 МС InAs и с разориентацией 3° (образец 2-3[010]) в спектре наблюдается только одна линия, сдвинутая в длинноволновую сторону на примерно 10 мэВ по отношению к полосе КТ в образце, выращенном на точно ориентированной подложке (рис. 6). Увеличение степени разориентации до 5° вдоль направлений [010] и [0 $\bar{1}1$], как уже было показано выше, приводит к расщеплению линии ФЛ на 3 полосы. Дальнейшее увеличение степени разориентации до 7° (образец 2-7[010]) не вызывает изменения спектрального положения линий QD_1 и QD_2 , (рис. 7). Таким образом, размеры КТ, с которыми связаны эти полосы, по-видимому, практически не изменились. В то же время наблюдается значительное смещение линии QD_3 в область высоких энергий фотонов. Аналогичное коротковолновое смещение с увеличением степени разориентации наблюдалось для линий ФЛ в спектрах образцов с 2 МС InAs, разориентированных

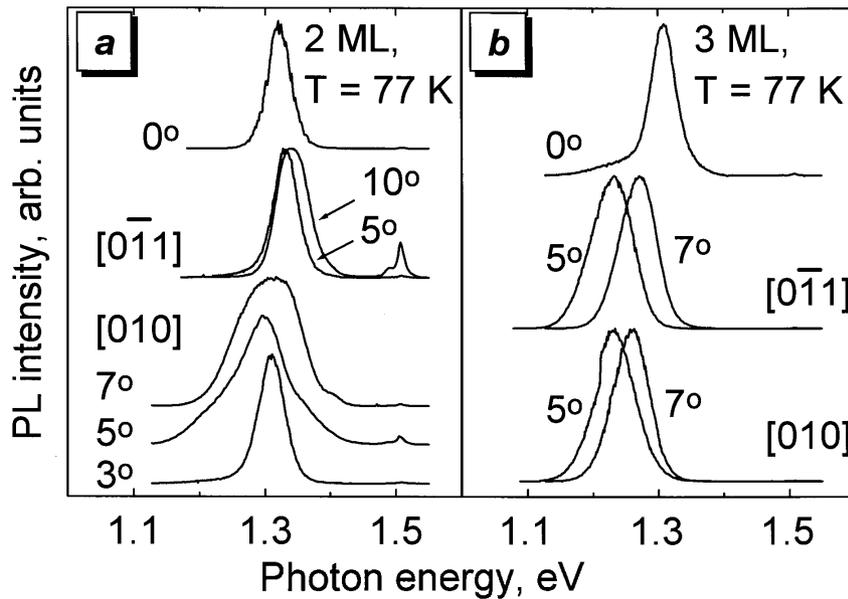


Рис. 6. Спектры фотолуминесценции для структур с толщиной слоя InAs в единицах монослоя: *a* — 2, *b* — 3. Температура измерения, направление и угол разориентации указаны на рисунках.

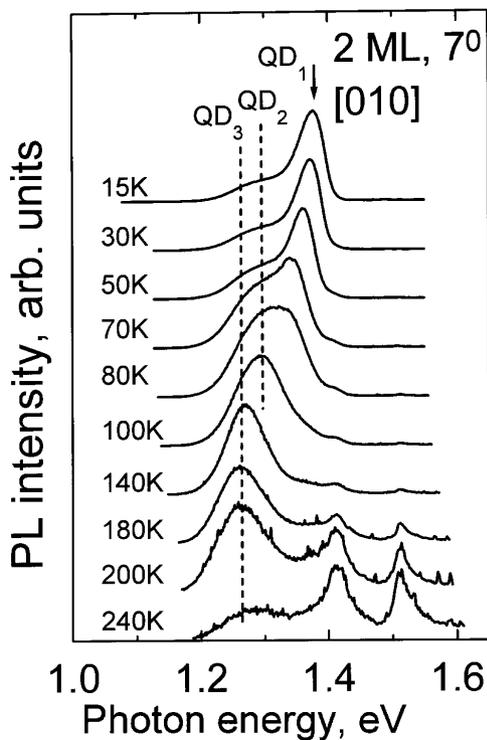


Рис. 7. Спектры фотолуминесценции для образца с 2 монослоями InAs, разориентированного на 7° вдоль направления $[010]$. Температура измерения спектров указана около кривых.

вдоль направления $[011]$, и для образцов с 3 МС InAs, разориентированных вдоль направлений $[0\bar{1}1]$ и $[010]$. В таблице приведены положения максимумов линий QD_1 , QD_2 и QD_3 для структур с различной степенью

разориентации и длины террас L . Из этой таблицы видно, что, как только длина террасы становится меньше 60 \AA , происходит расщепление линии ФЛ на 3 полосы для разориентации вдоль направления $[010]$. Это может быть связано с тем, что длина террасы становится меньше длины основания КТ. Увеличение степени разориентации приводит к значительному смещению полосы QD_3 в коротковолновую область спектра, что связано, по-видимому, с изменением геометрических размеров КТ, с которыми связана эта линия.

Таким образом, было показано, что увеличение степени разориентации приводит к изменению размеров получаемых КТ. Наиболее сильное влияние оказывает разориентация вдоль направлений $[010]$ и $[0\bar{1}1]$. При осаждении 2 МС InAs на поверхность GaAs, разориентированную вдоль этих направлений, образуются группы КТ разного размера. Однако выбором угла и направления разориентации можно контролировать формирование КТ одинакового размера. Поскольку КТ, образующиеся при осаждении 2 МС InAs, перспективны для применения в инжекционных лазерах [4], полученные результаты свидетельствуют о возможности сужения спектра усиления таких лазеров.

В заключение авторы благодарят Д.Н. Демидова и Н.П. Корнееву за помощь в проведении экспериментов по выращиванию структур.

Данная работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 95-02-05084-а, 96-02-17824 и 95-618), фонда INTAS (грант 94-1028), Volkswagen Foundation и научной программы "Физика твердотельных наноструктур".

Список литературы

- [1] L. Goldstein, F. Glass, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. Le Roux. Appl. Phys. Lett., **47**, 1099 (1985).
- [2] P.M. Petroff, S.P. Den Baars. Superlat. Microstr., **15**, 15 (1994).
- [3] M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, O. Vatel. Appl. Phys. Lett., **64**, 196 (1994).
- [4] Ж.И. Алферов, Н.А. Берг, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, А.О. Косоков, И.Л. Крестников, Н.Н. Леденцов, А.В. Лунев, М.В. Максимов, А.В. Сахаров, В.М. Устинов, А.Ф. Цацульников, Ю.М. Шерняков, Д. Бимберг. ФТП, **30**, 351 (1996).
- [5] Ж.И. Алферов, Н.Ю. Гордеев, С.В. Зайцев, П.С. Копьев, И.В. Кочнев, В.В. Комин, И.Л. Крестников, Н.Н. Леденцов, А.В. Лунев, М.В. Максимов, С.С. Рувимов, А.В. Сахаров, А.Ф. Цацульников, Ю.М. Шерняков, Д. Бимберг. ФТП, **30**, 357 (1996).
- [6] Ю.М. Шерняков, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, С.В. Зайцев, А.Р. Ковш, И.Л. Крестников, А.В. Лунев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.В. Сахаров, В.М. Устинов, Чжао Чжэнь, П.С. Копьев, Ж.И. Алферов, Д. Бимберг. Письма ЖТФ, **23**, 51 (1997).
- [7] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, O. Schmidt, R. Heitz, J. Bohrer, D. Bimberg, V.M. Ustinov, V.A. Shchukin, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, S. Zaitsev, P.S. Kor'ev, Zh.I. Alferov, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Gosele. Invited paper for Conf. "Modulated Semiconductor Structures" (MSS-7).
- [8] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, N. Kobayashi. Phys. Rev. Lett., **75**, 2542 (1995).
- [9] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов, А.Ф. Цацульников, Н.А. Берг, А.О. Косоков, Д. Бимберг, Ж.И. Алферов. ФТП, **30**, 1682 (1996).
- [10] A. Sasaki. Thin Sol. Films, **267**, 24 (1995).
- [11] Г.Э. Цырлин, А.О. Голубок, С.Я. Типисев, Н.Н. Леденцов, Г.М. Гурьянов. ФТП, **29**, 1697 (1995).
- [12] G.E. Cirlin, V.N. Petrov, N.K. Polykov, V.N. Demidov, N.P. Korneeva, A.O. Golubok, S.Ya. Tipissev, V.G. Dubrovskii, G.M. Guryanov, M.V. Maximov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg. Proc. Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology" (St. Petersburg, Russia, 1996) p. 375.
- [13] G.E. Cirlin, G.M. Guryanov, A.O. Golubok, S.Ya. Tipissev, N.N. Ledentsov, P.S. Kor'ev, M. Grundmann, D. Bimberg. Appl. Phys. Lett., **67**, 97 (1995).
- [14] В.В. Губанов, Г.М. Гурьянов, Н.Н. Леденцов, В.Н. Петров, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цырлин. Письма ЖТФ, **19**, 73 (1993).
- [15] Г.М. Гурьянов, В.Н. Демидов, Н.П. Корнеева, В.Н. Петров, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цырлин. ЖТФ, **67**, № 8, 111 (1997).

Редактор Т.А. Полянская

Formation of InAs quantum dots in a GaAs matrix by growth on vicinal substrates

A.F. Tsatsul'nikov, B.V. Volovik, N.N. Ledentsov, M.V. Maximov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, Zhao Zhen, V.N. Petrov*, G.E. Cirlin*, D. Bimberg†, P.S. Kor'ev, Zh.I. Alferov

A.F. Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Science,
194021 St. Petersburg, Russia

* Institute for Analytical Instrumentation,
Russian Academy of Sciences,
198103 St. Peterburg, Russia

† Institute für Festkörperphysik,
Berliner Technische Universität,
D-10623 Berlin, Germany

Abstract Formation of InAs quantum dots obtained by a submonolayer migration enhanced molecular-beam epitaxy on misoriented GaAs(100) surfaces have been studied. Dependence of the formation on the angle and degree of the misorientation have been investigated. Increasing the misorientation degree above $\sim 3^\circ$ for structures with 2 monolayers InAs leads to splitting the QD array to several groups of the QDs which are different both in size and in electronic structure.