

Особенности роста квантовых точек InAs на вицинальной поверхности GaAs (001), разориентированной в направлении [010]

© В.П. Евтихийев, В.Е. Токранов, А.К. Крыжановский, А.М. Бойко, Р.А. Сурис,
А.Н. Титков, А. Накамура*, М. Ичида*

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

*Центр объединенных исследований по физике и технике при Нагойском университете,
464-01 Нагойя, Япония

(Получена 15 января 1998 г. Принята к печати 19 января 1998 г.)

Методом атомно-силовой микроскопии исследованы структуры с InAs-квантовыми точками, полученные молекулярно-пучковой эпитаксией на вицинальных поверхностях GaAs (001), разориентированных в направлении [010] на 1, 2, 4 и 6 град. Показано, что при выбранном направлении разориентации вицинальная поверхность GaAs (010) покрывается сетью ступенчатых террас. Уплотнение сети террас по мере увеличения угла разориентации приводит к блокированию поверхностной диффузии адсорбированных атомов и делает возможным получение более плотных и более однородных ансамблей квантовых точек при одновременном существенном снижении вероятности их коалесценции.

Для реализации уникальных электронных свойств полупроводниковых квантовых точек (КТ), обусловленных δ -образной для КТ зависимостью плотности электронных состояний от энергии, требуется создание плотных массивов однородных квантовых точек [1]. Традиционные методы приготовления полупроводниковых наноструктур, основанные на литографии с последующим травлением, к сожалению, не позволяют получать достаточно однородные ансамбли КТ. Использование подобных методов приводит, одновременно, к заметной дефектности интерфейсов в структурах. В связи с этим большое внимание исследователей в настоящее время привлекает способ получения КТ непосредственно во время гетероэпитаксиального роста рассогласованных по параметру решетки полупроводников по механизму Странского–Крастанова [2]. Напряжения, возникающие из-за рассогласования параметров решеток, приводят к последовательной смене моды роста с двумерной на трехмерную. Увеличение энергии системы, вызванное механическими напряжениями, частично компенсируется за счет образования свободных от дислокаций nanoостровков — КТ. Для одной из наиболее изученных систем InAs/GaAs (001) критическая для перехода к островковому росту толщина слоя InAs составляет примерно 1.5 монослоя [3].

В ряде работ [4–6] было подробно изучено влияние основных ростовых параметров молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) на плотность и размеры InAs-КТ. Было установлено, что увеличение толщины осаждаемого InAs-покрытия приводит к росту размеров и плотности КТ. Варьирование отношения потоков элементов III и V групп и температуры подложки также влияет на эти параметры и позволяют управлять плотностью массивов КТ в диапазоне концентраций $10^8 - 10^{11} \text{ см}^{-2}$ [4,5]. Формирование массивов InAs-КТ с плотностью большей $3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ на точно ориентированной поверхности GaAs (001), как правило, сопровождается коалесценцией

заметного числа КТ в большие острова, что приводит к резкому уширению функции распределения КТ по размерам [5]. Рассматриваемые данные свидетельствуют об определяющей роли диффузии поверхностных адатомов в процессе формирования КТ. Увеличение длины поверхностной диффузии, вызванное увеличением температуры подложки, приводит к увеличению размеров InAs-КТ и уменьшению их плотности [6].

В работе [7] было исследовано влияние угла разориентации GaAs (001)-подложки в направлении [111B] на

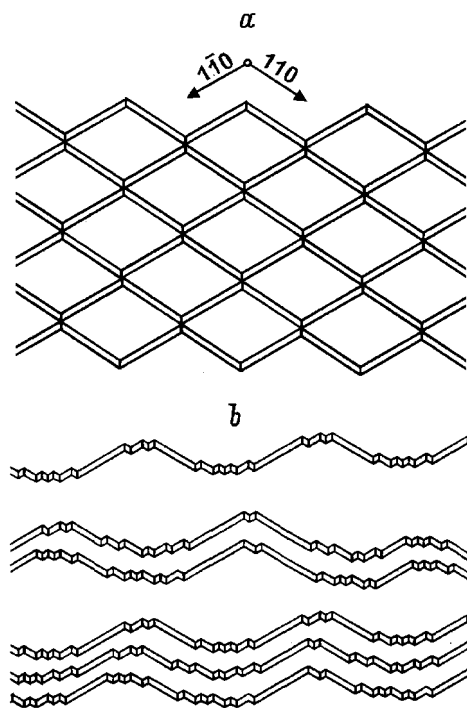


Рис. 1. Схематические изображения структуры вицинальной поверхности GaAs (001), разориентированной в направлении [010]: *a* — идеальной, *b* — реально ожидаемой.

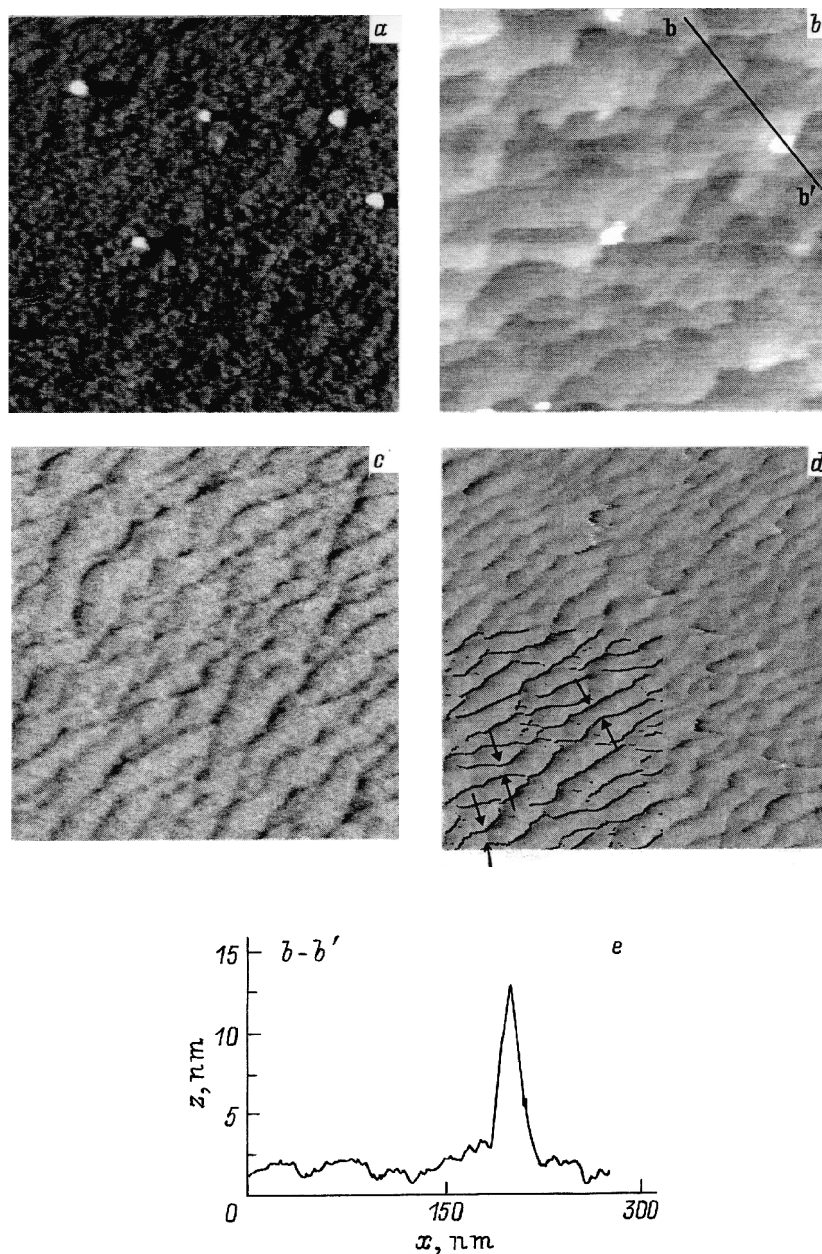


Рис. 2. Изображения (500×500 нм) вицинальных поверхностей GaAs (001), полученные методом атомно-силовой микроскопии. Поверхности покрыты слоем InAs толщиной 1.8 нм. Углы разориентации поверхности GaAs, град.: $a - 0$, $b - 1$, $c - 2$, $d - 6$. На рис. 2, e показан профиль поверхности, соответствующий прямой $b-b'$ на рис. 2, b . Стрелками на ретушированной части рис. 2, d показаны отдельные сужения между террасами.

функцию распределения InGaAs-КТ по размерам. Авторы обнаружили, что увеличение угла разориентации от 0° до 41° приводило к уменьшению размеров КТ и увеличению их плотности. Эти результаты объяснялись в работе тем, что увеличение угла разориентации приводит к увеличению на разориентированных поверхностях плотности ступеней роста и, как следствие, к уменьшению длины поверхностной диффузии.

Среди возможных направлений разориентации поверхности GaAs (001) особый интерес представляет направление [010]. На таким образом разориентированной

вицинальной поверхности должны возникать ступени, распространяющиеся по двум направлениям [110] и $[\bar{1}10]$ [8]. Пересечение этих ступеней может формировать на поверхности сеть террас специфической конфигурации, изображенную на рис. 1, a . В работе [9] было предложено использовать такие вицинальные поверхности для создания упорядоченного распределения легирующих примесей или субмонослойных островков InAs. Авторы показали, что упорядоченное распределение возможно из-за преимущественного встраивания адатомов в углы террас.

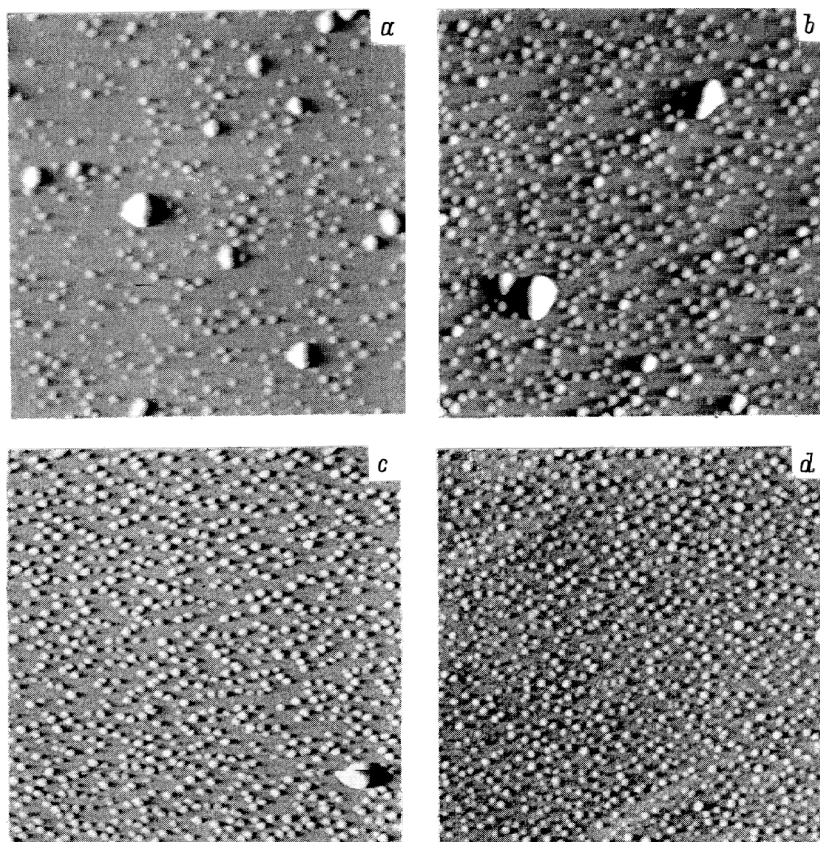


Рис. 3. Изображения, полученные методом атомно-силовой микроскопии, вицинальных поверхностей GaAs (001), покрытых слоем InAs толщиной 3 МС. Углы разориентации поверхности GaAs, град.: *a* — 0, *b* — 1, *c* — 2, *d* — 6.

Наша работа посвящена исследованию влияния разориентации поверхности GaAs (001) в направлении [010] на размеры, распределение и плотность InAs-КТ, выращиваемых методом МПЭ. Исследование роста КТ на таких вицинальных поверхностях представляется интересным по следующей причине. В соответствии с моделью Y. Takaga с соавт. [10] на границах ступеней существуют энергетические барьеры в поверхностном потенциале для диффундирующих адатомов. Эти барьеры должны препятствовать диффузии адатомов с одной террасы на другую. Представленный на рис. 1, *a* идеальный вид вицинальной поверхности, на которой каждая терраса ограничена ступенями [110] и $\bar{1}\bar{1}0$ с четырех сторон, является предельным и труднодостижимым в реализации случае. В действительности высокая вероятность ухода атомов с внешних углов террас должна приводить к скруглению углов и, как результат, к частичному объединению террас, как это схематически показано на рис. 1, *b*. Мы предполагаем, что диффузия адатомов между террасами, даже соединенными воротами (gateways), по-прежнему будет затруднена. В этом случае рост КТ в каждом месте будет происходить преимущественно за счет материала, осадившего на той же террасе. Очевидно, что такое блокирование диффузии должно приводить к изменению плотности, размера и однородности ансамбля КТ.

Мы вырастили слои InAs толщиной 1.8 и 3 моно-слоя (МС) методом МПЭ на поверхностях GaAs (001), разориентированных в направлении [010] на 0, 1, 2, 4, 6 град. Сравнительно небольшая область изменения углов была выбрана для того, чтобы изучаемые поверхности отличались друг от друга только плотностью ступеней роста, а не качественными изменениями морфологии поверхности, вызванными приближением к новым сингулярным граням. Каждый процесс эпитаксии проводился одновременно на всех поверхностях с выбранными углами разориентации. Для создания однородной сетки террас перед началом эпитаксии InAs выращивался буферный слой GaAs в режиме "step-flow". Рост проводился на установке МПЭ ЦНА-4. Условия перехода в режим роста step-flow определялись с помощью метода дифракции быстрых электронов (ДБЭ). Скорость роста InAs порядка 0.15 МС/с калибровалась по осцилляциям ДБЭ. Ошибка в определении скорости роста InAs не превышала 5%.

Структура поверхности образцов изучалась методом атомно-силовой микроскопии (АСМ). Изображения поверхности получались в комнатных условиях при сканировании в режиме постоянной силы давления (контактной моде). Пространственное разрешение, достигавшееся с помощью иглы из Si_3N_4 радиусом $R < 300 \text{ \AA}$, расположенной на V-образной микроконсоли (cantilever),

позволяло достоверно наблюдать на поверхности даже моноатомные ступеньки и, следовательно, было достаточно точным для обнаружения и характеристики гораздо более крупных объектов, которыми являются КТ.

На рис. 2 представлены АСМ изображения вицинальных поверхностей с толщиной InAs-покрытия в 1.8 МС. Как и ожидалось, поверхности оказались разбиты на атомно-гладкие террасы, часть из которых соединена воротами. Увеличение угла разориентации приводит к увеличению линейной плотности и уменьшению ширины террас. Средняя ширина террас составляла, соответственно, 500 Å для 1°, 360 Å для 2°, и 250 Å для 6°. Эти значения заметно больше размеров террас, рассчитанных в предположении, что высота ступени составляет один монослой. Наблюдаемые отличия объясняются известным явлением "складывания" моноатомных ступеней (step-bunching), усиливающимся по мере увеличения угла разориентации [11]. Анализ профилей АСМ-изображения на рис. 2 показал, что в нашем случае среднее значение высоты террасы возрастает с увеличением угла разориентации от 2–3 МС для 1° до примерно 10 МС для 6°.

Толщина InAs-покрытия в 1.8 МС соответствует только началу роста островков по механизму Странского–Крастанова. Действительно, на поверхности образцов с разориентацией 0° и 1° наблюдаются лишь отдельные редкие КТ. При этом интересно отметить, что дальнейшее увеличение угла разориентации приводит к исчезновению и этих КТ. Рассмотрение АСМ изображений и профиля высоты КТ на рис. 2 показывает, что КТ преимущественно располагаются на краях террас, примыкающих к вышележащим террасам. Такое расположение КТ соответствует представлению о преимущественном встраивании адсорбированных атомов в изломы вышележащих ступеней [9,12].

На рис. 3 представлены АСМ изображения вицинальных поверхностей с толщиной InAs-покрытия в 3 МС. На поверхностях наблюдается возникновение большого числа InAs-КТ, плотность которых возрастает, а размер уменьшается с увеличением угла разориентации. На поверхностях также присутствуют большие InAs-острова, образованные в результате коалесценции InAs-КТ. Однако их количество резко уменьшается с увеличением угла разориентации, и на поверхности с разориентацией в 6° большие InAs-острова практически отсутствуют. Гистограммы распределений КТ по высоте, представленные на рис. 4, показывают, что средняя высота InAs-КТ изменяется от 34 Å для 0° до 20 Å для 6°. Дисперсия по высоте при этом уменьшается от ±15% до ±10% соответственно. Так как из-за плотного расположения КТ на поверхности не удастся увидеть под ними ступени, отсчет высоты КТ производился от усредненной высоты поверхности. Таким образом, на АСМ изображениях эффективная высота КТ складывается из собственно высоты КТ и высоты террасы под ней, которая вследствие явления складывания атомных ступеней сама обладает дисперсией по высоте. Поэтому

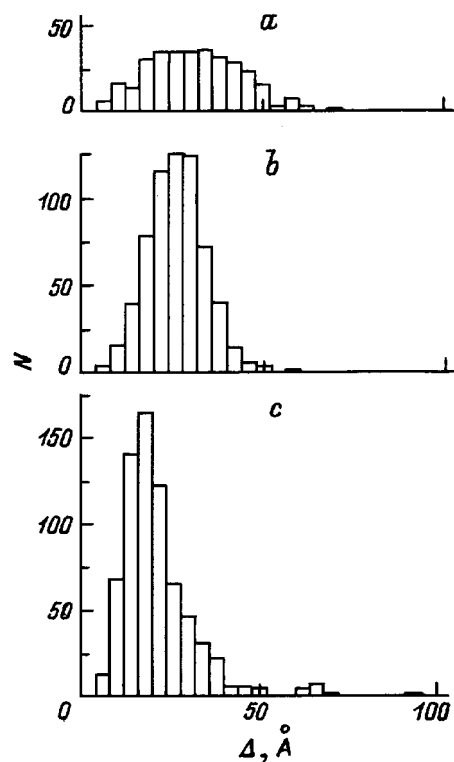


Рис. 4. Гистограммы распределения квантовых точек InAs по высоте (Δ) для вицинальных поверхностей GaAs с углами разориентации в град.: *a* — 0, *b* — 2, *c* — 6. *N* — количество точек.

реально достигнутая дисперсия InAs-КТ по высоте на самом деле меньше $\pm 10\%$.

Обнаруженные изменения плотности КТ, распределения КТ по размерам, а также отсутствие больших островков на вицинальных поверхностях мы объясняем подавлением процесса диффузии адатомов In из-за террасистой структуры таких поверхностей. Обращает на себя внимание большая величина эффекта. Разориентация поверхности GaAs (001) в направлении [010] всего на 2° практически подавляет коалесценцию КТ и резко увеличивает их плотность. При этом характер разбиения поверхности на террасы, как можно видеть на рис. 2, казалось бы оставляет возможность диффузии адатомов вдоль ступеней через ворота, соединяющие отдельные террасы.

Чтобы получить представление о возможной роли диффузии адатомов вдоль ступеней, оценим скорость коалесценции КТ, расположенных на соседних террасах. В общем случае рост квантовой точки происходит за счет атомов, адсорбированных на площади радиусом $R \leq L$, где L — эффективная длина поверхностной диффузии адатомов. Концентрация адатомов вблизи квантовой точки является функцией величины падающего потока, температуры подложки и радиуса квантовой точки [13]. Если в окрестности квантовой точки радиусом R оказывается вторая точка, то конкуренция

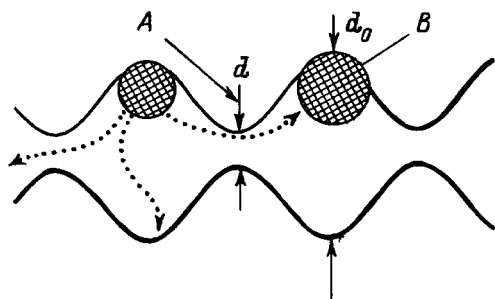


Рис. 5. Модель соединяющихся террас, использованная при расчете. B — квантовая точка, A — ворота между террасами.

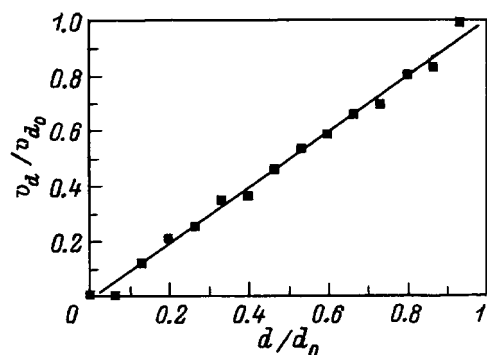


Рис. 6. Зависимость отношения максимальных скоростей переноса (v_d/v_{d_0}) от относительной ширины ворот, соединяющих террасы (d/d_0).

между ними может привести к поглощению точки с меньшим радиусом, т.е. к коалесценции. Поскольку в нашем случае потенциальные барьеры на краях террас препятствуют перескоку адатомов с террасы на террасу, мы рассматривали коалесценцию соседних КТ только за счет движения адатомов через ворота, соединяющие террасы (см. рис. 5). В этом приближении мы моделировали движение адатомов методом Монте-Карло и определяли количество адатомов ν , начавших движение на краю первой квантовой точки и достигших края соседней за единицу времени. Очевидно, что определяемое таким образом значение ν является максимальной скоростью переноса вещества от одной КТ к другой и, соответственно, максимальной скоростью коалесценции. Такой односторонний характер переноса соответствует ситуации, когда радиус первой точки R_1 много меньше радиуса второй точки R_2 . На рис. 6 представлена зависимость отношения максимальной скорости коалесценции v_d (для террас с шириной ворот d) к максимальной скорости коалесценции v_{d_0} (для террас без сужения) от относительной величины ворот d/d_0 (d_0 — диаметр КТ). Увеличение сужения приводит к замедлению процесса коалесценции и при величине $d/d_0 = 0.5$ максимальная скорость коалесценции снижается примерно вдвое. Линейный характер зависимости для этой модели по сути отражает тот факт, что величина диффузионного потока

с точки на точку прямо пропорциональна ширине ворот. Учет обратного диффузионного потока со второй точки на первую, отражающий реальное соотношение размеров точек R_1/R_2 , может только уменьшить скорость коалесценции. Проведенное рассмотрение показывает, что заметное блокирование диффузии адатомов между соседними террасами делает маловероятным участие в коалесценции КТ, расположенных на более отдаленных террасах, что и требовалось объяснить.

Таким образом, результаты работы показывают, что создание сети террас на вицинальных поверхностях GaAs (001), разориентированных в направлении [010], открывает интересную возможность управления плотностью, размером и однородностью InAs-КТ, снижает вероятность коалесценции КТ и увеличивает критическую толщину InAs-покрытия.

Авторы благодарят А.Б. Комиссарова за помощь в приготовлении образцов.

Работа была поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты 95-02-06038, 96-02-17952 и 97-02-18291) и Государственной программой "Физика твердотельных наноструктур" (грант 97-2014).

Список литературы

- [1] L.V. Asryan, R.A. Suris. *Semicond. Sci. Techn.*, **11**, 554 (1996).
- [2] I.N. Stranski, L.Von Krastanow. *Akad. Wiss. Lit. Mainz Abh. Math. Naturwiss. Kl. Lib.*, **146**, 797 (1939).
- [3] D. Leonard, K. Pond, P.M. Petroff. *Phys. Rev. B*, **50**, 11687 (1994).
- [4] G.S. Solomon, J.A. Trezza, J.S. Harris. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 991 (1995).
- [5] J.M. Moison, F. Hoozay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, O. Vatel. *Appl. Phys. Lett.*, **64**, 196 (1994).
- [6] G.S. Solomon, J.A. Trezza, J.S. Harris. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 3161 (1995).
- [7] J. Oshinowo, M. Nishioka, S. Ishida, Y. Arakawa. *Jap. J. Appl. Phys.*, **33**, L1634 (1994).
- [8] M. Kasu, N. Kobayashi. *Jap. J. Appl. Phys.*, **33**, 712 (1994).
- [9] D.H. Ploog, L. Daweritz. *Mater. Sci. Techn.*, **11**, 820 (1995).
- [10] Y. Tokura, H. Saito, T. Fukui. *J. Cryst. Growth*, **94**, 46 (1989).
- [11] T. Ide, A. Yamashita, T. Mizutani. *Phys. Rev. B*, **46**, 1905 (1992).
- [12] N. Ikoma, S. Ohkouchi. *Jap. J. Appl. Phys.*, **34**, L724 (1995).
- [13] A.Yu. Kaminski, R.A. Suris. *Sol. St. Commun.*, **8**, 609 (1994).

Редактор Т.А. Полянская

Characteristics of the InAs quantum dots growth on the vicinal GaAs (001) surfaces misoriented to the [010] direction

V.P. Evtikhiev, V.E. Tokranov, A.K. Kryganovskii,
A.M. Boiko, R.A. Suris, A.N. Titkov, A. Nakamura*,
M. Ichida*

A.F. Ioffe Physicotechnical Institute
Russian Academy of Sciences,
194021 St.Petersburg, Russia
*CIRSE, Nagoya University,
464-01 Nagoya, Japan

Abstract We present AFM studies of the InAs quantum dots (QDs) MBE grown of the vicinal GaAs (001) surfaces misoriented to the direction [010] by 1, 2, 4 and 6 degrees. For the chosen misorientation direction the vicinal surfaces are covered with the net of stepwise terraces. Condensation of the terraces with the increase of the misorientation angle leads to suppression of the adatom surface diffusion and permits to achieve higher densities and better homogeneity of the InAs QDs, which simultaneously decreases probability of the QDs coalescence.

E-mail: evt@mbe.ioffe.rssi.ru