

# Самоорганизующиеся наноразмерные кластеры InP в матрице InGaP/GaAs и InAs в матрице InGaAs/InP

© Д.А. Винокуров, В.А. Капитонов, О.В. Коваленков, Д.А. Лившиц, З.Н. Соколова, И.С. Тарасов, Ж.И. Алфёров

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

(Получена 22 января 1999 г. Принята к печати 26 января 1999 г.)

Методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений получены массивы напряженных наноразмерных кластеров двух типов: InP в матрице  $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$  на подложке GaAs (100) и InAs в матрице  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  на подложке InP (100). Проведено исследование их структурных и фотолюминесцентных свойств. Показано, что образующиеся наноразмерные кластеры имеют размеры 80 нм (InP/InGaP) и  $25 \div 60$  нм (InAs/InGaAs). В спектрах фотолюминесценции полученных наноразмерных кластеров наблюдались полосы в диапазонах длин волн  $0.66 \div 0.72$  и  $1.66 \div 1.91$  мкм при 77 К, положение максимума которых не изменялось с увеличением эффективной толщины InP и InAs. Эффективность излучения наноразмерных кластеров InP на 2 порядка превосходила интенсивность излучения кластеров InAs.

## 1. Введение

Образование самоорганизующихся наноразмерных кластеров (НК) при гетероэпитаксиальном выращивании сильно напряженных полупроводниковых слоев привлекает к себе внимание благодаря возможности создания трехмерного (3D) электронного ограничения в однородных и когерентных (бездислокационных) кластерах. В отличие от наноразмерных гетероструктур, сформированных при использовании сложных фотолитографических процедур, самоорганизующиеся гетероструктуры, полученные методами молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) и МОС-гидридной эпитаксии (газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений), обладают высокой плотностью состояний благодаря трехмерному квантованию и высокой излучательной эффективностью из-за низкой плотности дефектов [1].

Цель настоящей работы — получение методом МОС-гидридной эпитаксии и исследование двух типов гетероструктур с НК. Один тип представляет собой кластеры фосфида индия в матрице  $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$ , изорешеточной с подложкой GaAs [2–4]. Другим объектом исследования являются НК InAs в матрице  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ , изорешеточной подложке InP [5–8].

Статья состоит из пяти разделов. После введения, во втором разделе, описана методика выращивания гетероструктур, в третьем разделе приведены результаты исследования гетероструктур методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), в четвертом — результаты исследования фотолюминесцентными методами; в пятом разделе обсуждаются результаты работы.

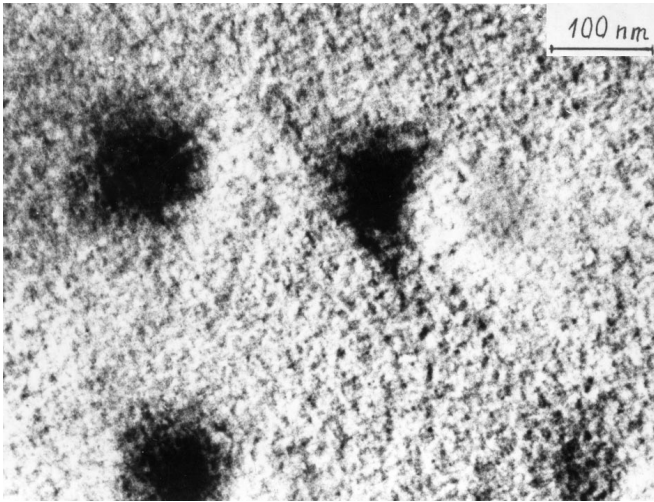
## 2. Методика выращивания гетероструктур

В данной работе методом МОС-гидридной эпитаксии на установке Epiquip VP 50-RP при пониженном давлении (100 мбар) в горизонтальном реакторе прямоугольного сечения с высокочастотным нагревом подложкодержателя выращивались самоорганизующиеся наноразмерные кластеры InP и InAs на подложках GaAs и InP соответственно.

В качестве исходных реагентов использовался триметилгаллий (ТМГ), триметилиндий (ТМИ), арсин (20%-я смесь с водородом) и фосфин (30%-я смесь с водородом). Газом — носителем служил водород с точкой росы не выше  $-90^\circ\text{C}$ .

Выращивание структур с НК InP в матрице InGaP проводилось при температуре  $T_g = 700^\circ\text{C}$  на подложках GaAs ориентации (100). Структуры содержали слой НК InP, номинальная толщина которого варьировалась от 0.5 до 12 монослоев (ML). Слой с НК был заключен между буферным слоем  $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$  толщиной 0.5 мкм, согласованным по параметру решетки с подложкой, и верхним широкозонным слоем  $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$  толщиной 0.04 мкм.

Структуры с НК InAs в матрице InGaAs выращивались на подложках InP ориентации (100) при температуре роста  $T_g = 600^\circ\text{C}$ . Эти структуры были аналогичны по геометрии структурам с НК InP и содержали от 2 до 10 ML InAs, заключенных между нижним и верхним слоями  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  толщиной 0.25 и 0.04 мкм соответственно. Скорости роста составляли для обоих типов структур  $2 \text{ \AA}/\text{с}$  для бинарных соединений и  $8 \text{ \AA}/\text{с}$  для тройных твердых растворов.



**Рис. 1.** ПЭМ-фотография участка структуры, содержащей номинально 3 ML InP.

Кроме того, НК InAs выращивались при пониженных температурах  $T_g = 550$  и  $500^\circ\text{C}$ . Поэтому после формирования нижнего буферного слоя при  $T_g = 600^\circ\text{C}$  рост прерывался для понижения температуры на 2 и 2.5 мин соответственно. Верхний широкозонный слой выращивался при температуре роста НК InAs.

### 3. Исследование гетероструктур методом просвечивающей электронной микроскопии

Исследования структур с НК проводились в планарной геометрии на высоко разрешающем электронном микроскопе Philips EM 420 с напряжением 120 кВ.

На рис. 1 представлена ПЭМ-фотография участка структуры, содержащей номинально 3 ML InP. На изображении видны наноразмерные островки, достаточно однородные по размерам, обладающие четкой картиной напряжений вокруг НК, по которой можно оценить поперечный размер НК — 80 нм со средней плотностью по поверхности  $3 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$ .

ПЭМ-изображение НК InAs дает менее контрастную картину распределения полей напряжений, чем в случае НК InP. Тем не менее, по ней можно идентифицировать два типа НК: со средними поперечными размерами 60 и 25 нм с примерно одинаковой средней плотностью  $(1 \div 2) \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ .

### 4. Фотолюминесцентные исследования гетероструктур

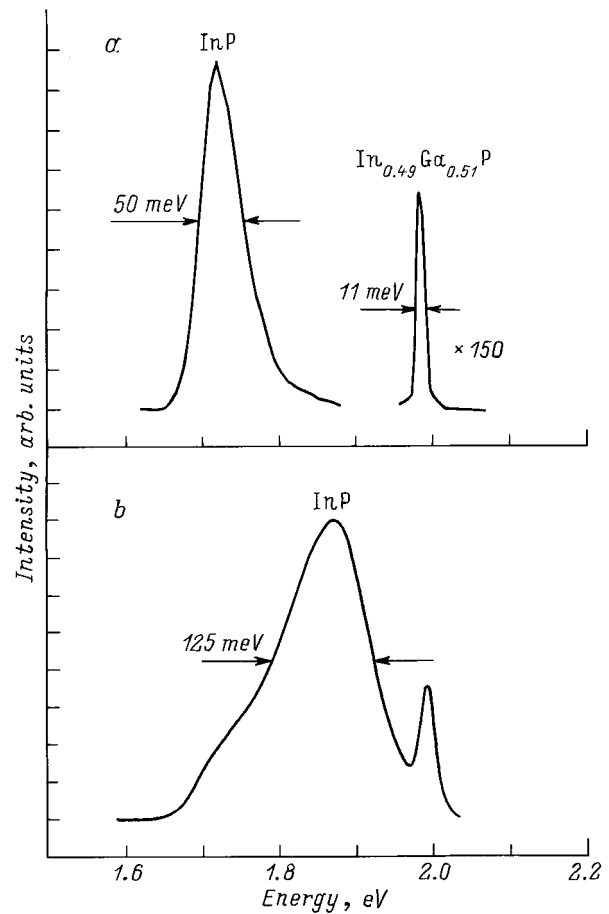
Для возбуждения фотолюминесценции (ФЛ) в исследуемых образцах применялся  $\text{Ag}^+$ -лазер с длиной волны излучения 0.514 мкм. Сигнал от гетероструктуры

регистрировался фотоэлектронным умножителем с максимальной спектральной чувствительностью в диапазоне длин волн  $\lambda = 0.35 \div 0.9$  мкм для структур, содержащих НК InP, и GaSb-фотодиодом с максимальной чувствительностью в диапазоне длин волн  $\lambda = 1.3 \div 2.4$  мкм для регистрации длинноволновых спектров НК InAs.

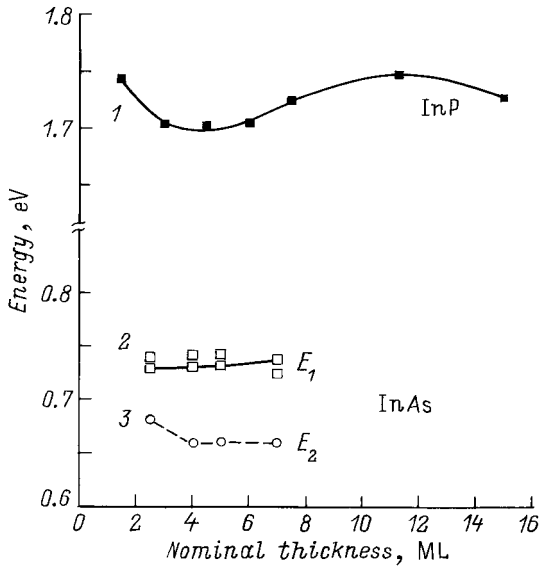
Плотность мощности возбуждающего излучения обычно составляла  $100 \text{ Вт/см}^2$  для НК InP и  $5 \text{ кВт/см}^2$  для НК InAs, что обусловлено значительно меньшим квантовым выходом излучения от НК InAs.

#### 4.1. НК InP в матрице $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P/GaAs}$

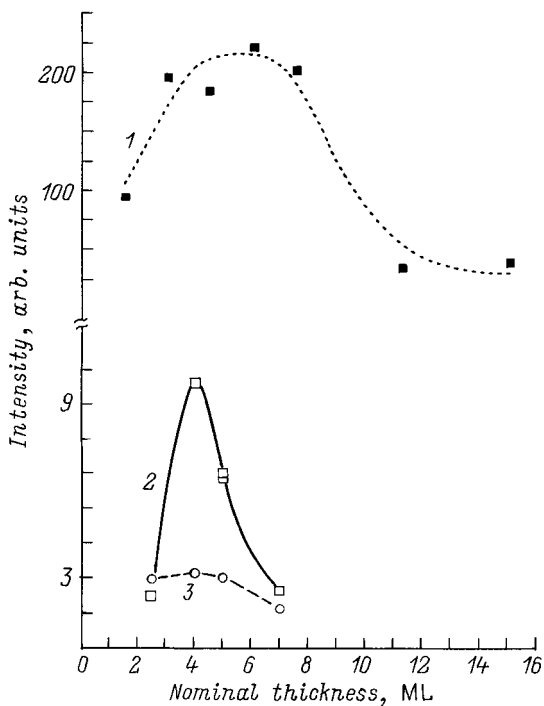
На рис. 2, а представлен спектр ФЛ при температуре  $T = 77 \text{ K}$  структуры, содержащей НК InP, полученные при номинальной толщине осажденного InP 3 ML в матрице  $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$ . В спектре ФЛ наблюдаются две полосы излучения, различающиеся квантовой эффективностью на 2 порядка. Интенсивная полоса с энергией в максимуме 1.72 эВ и полушириной 50 мэВ, по-видимому, соответствует излучению НК InP. Полоса излучения с максимумом на энергии 1.98 эВ и полушириной 11 мэВ



**Рис. 2.** Спектр фотолюминесценции при  $T = 77 \text{ K}$  структуры с нанокластерами InP при плотности мощности накачки  $100 \text{ Вт/см}^2$  (а) и  $5 \text{ кВт/см}^2$  (б). Номинальная толщина осажденного InP 3 ML.



**Рис. 3.** Энергия максимума интенсивности фотолюминесценции при  $T = 77$  К в зависимости от номинальной толщины осажденного материала для нанокластеров: 1 — InP; 2 — InAs, пик  $E_1$ ; 3 — InAs, пик  $E_2$ .



**Рис. 4.** Зависимость интенсивности фотолюминесценции при  $T = 77$  К от номинальной толщины осажденного материала для нанокластеров: 1 — InP; 2 — InAs, пик  $E_1$ ; 3 — InAs, пик  $E_2$ .

соответствует излучению матрицы  $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$ . С увеличением плотности мощности возбуждающего излучения спектр ФЛ значительно уширяется. При плотности мощности возбуждения  $5 \text{ кВт/см}^2$  начинает доминировать высокоэнергетичная полоса с энергией в максимуме ин-

тенсивности  $1.88 \text{ эВ}$  с полушириной  $125 \text{ мэВ}$  (рис. 2, b). При этом интенсивность ФЛ НК InP становится сопоставимой с интенсивностью излучения матрицы InGaP. Изменение спектра ФЛ при высоком уровне накачки, по нашему мнению, связано с люминесценцией из так называемого смачивающего слоя InP.

На рис. 3 (кривая 1) приведена зависимость энергии максимума фотолюминесцентного излучения НК InP от количества монослоев осажденного материала InP. Положение максимума полосы ФЛ НК InP остается практически неизменным в диапазоне  $2 \div 7 \text{ ML}$  осажденного материала. Это отличается от случая квантовых ям, у которых энергия максимума полосы ФЛ уменьшается с увеличением толщины слоя. Слабая зависимость энергии ФЛ от количества осажденного InP, по-видимому, свидетельствует об однородности размеров НК.

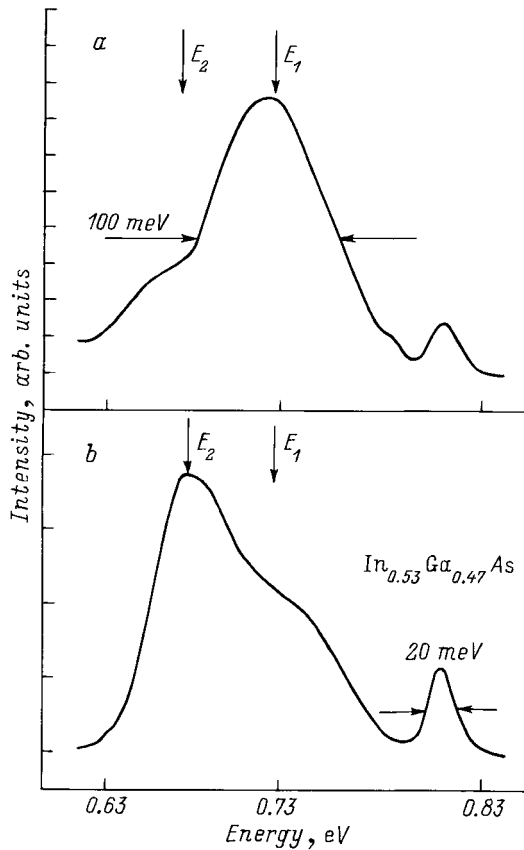
На рис. 4 (кривая 1) приведена зависимость интенсивности ФЛ от количества осажденного InP. Максимальная интенсивность ФЛ приходится на структуры с содержанием  $6 \text{ ML}$  InP, в которых внешняя квантовая эффективность составляла  $30\%$  при  $T = 77 \text{ К}$ . Резкое ухудшение излучательных характеристик гетероструктур происходит при увеличении номинальной толщины InP (более  $7 \text{ ML}$ ), что можно объяснить коалесценцией НК InP и ростом числа дислокаций.

#### 4.2. НК InAs в матрице $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$

На рис. 5 представлены спектры ФЛ при  $T = 77 \text{ К}$  структуры, содержащей НК InAs в матрице  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  при номинальной толщине осажденного InAs  $4 \text{ ML}$  (рис. 5, a) и  $2.5 \text{ ML}$  (рис. 5, b). В спектрах наблюдается широкая полоса с двумя максимумами, приходящимися на энергии  $E_1 = 0.73 \text{ эВ}$  и  $E_2 = 0.66 \text{ эВ}$ . Эти максимумы мы связываем с излучением НК InAs двух характерных размеров ( $25$  и  $60 \text{ нм}$ ). Кроме того, в обоих спектрах присутствует в несколько раз менее интенсивная и узкая ( $20 \text{ мэВ}$ ) полоса, соответствующая излучению матрицы  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ . Следует отметить, что квантовый выход люминесценции НК InAs существенно ниже, чем НК InP.

На рис. 3 (кривые 2 и 3) приведены зависимости энергии максимумов двух полос ФЛ  $E_1$  и  $E_2$  от количества монослоев осажденного InAs. В диапазоне от  $2.5$  до  $7 \text{ ML}$  энергии обеих полос слабо зависят от количества осажденного InAs. При этом квантовая эффективность коротковолновой полосы  $E_1 = 0.73 \text{ эВ}$  имеет максимум в районе  $4 \text{ ML}$  (рис. 4, кривая 2), а квантовая эффективность полосы с  $E_2 = 0.66 \text{ эВ}$  (рис. 4, кривая 3) остается практически неизменной для  $2.5 \div 7 \text{ ML}$  осажденного InAs.

В гетероструктурах с НК InAs интенсивность длинноволновой полосы ФЛ ( $E_2 = 0.66 \text{ эВ}$ ) превосходит интенсивность полосы с  $E_1 = 0.73 \text{ эВ}$  при малом количестве монослоев осажденного материала (рис. 4). С увеличением количества монослоев InAs (более  $3 \text{ ML}$ ) интенсивней оказывается коротковолновая полоса. Следовательно, при малой толщине осажденного материала



**Рис. 5.** Спектр фотолюминесценции при  $T = 77$  К структуры с нанокластерами InAs при номинальной толщине осажденного слоя InAs 4 ML (a) и 2.5 ML (b). Плотность мощности накачки  $5 \text{ кВт/см}^2$ .

(2.5 ML), по-видимому, преобладают НК InAs большего размера, а с увеличением толщины осажденного InAs возрастает количество НК меньшего размера и их вклад в ФЛ оказывается определяющим. Подобное явление наблюдалось в работе [8], в которой исследовались аналогичные структуры при помощи атомно-силовой микроскопии. В гетероструктурах с НК InAs, выращенных при  $T_g = 500$  и  $550^\circ\text{C}$ , в спектрах ФЛ было зарегистрировано длинноволновое излучение в диапазоне  $\lambda = 1.78 \div 1.91 \text{ мкм}$  при  $T = 77$  К.

## 5. Обсуждение результатов

Проведенные в работе исследования показали, что в структурах с НК InAs, выращенных методом МОС-гидридной эпитаксии, может быть получено излучение в диапазоне  $\lambda = 1.66 \div 1.91 \text{ мкм}$  при  $T = 77$  К. Гетероструктуры с НК InP при  $T = 77$  К излучают в диапазоне  $\lambda = 0.66 \div 0.72 \text{ мкм}$ . Излучение НК InP оказывается интенсивнее на 2 порядка, чем излучение НК InAs. Одной из причин малой интенсивности излучения НК InAs является слабое ограничение электронов в зоне проводимости НК InAs. В сильно напряжен-

ной гетероструктуре  $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{InP}$  квантовая яма для электронов в области НК, по нашим оценкам, по крайней мере на 100 мэВ глубже, чем в случае НК InAs, поэтому локализация электронов в НК InP гораздо сильнее. Расчет точных значений глубины потенциальной ямы в рассматриваемых наноструктурах затруднен большим разбросом как значений констант деформационного потенциала, так и распределением скачка потенциала между зоной проводимости и валентной зоной, приводимых в литературе [9].

Особенностью исследуемых нами НК по сравнению с полученными методом МПЭ в работе [6] является очень слабая зависимость положения максимума полосы ФЛ от количества осажденного материала НК (рис. 3). Подобная зависимость положения максимума полосы ФЛ в НК InP, выращенных методом МОС-гидридной эпитаксии, от количества осажденного материала также наблюдалась в работе [4]. Такой характер зависимости может быть объяснен тем, что наноразмерные кластеры развиваются до своего критического размера, соответствующего минимуму энергии, приходящейся на единицу площади поверхности трехмерных когерентных островков [1]. Увеличение количества осажденного вещества сначала приводит только к увеличению плотности НК. В работе [10] показано, что оптимальный размер островков существует не только для разреженного массива НК, но и для плотного массива взаимодействующих островков. При дальнейшем увеличении количества осажденного материала возникает коалесценция НК. Это приводит к появлению большого числа НК, размер которых значительно превышает критический [6,8], при этом образуются дислокации, вызывающие снижение интенсивности ФЛ (рис. 4).

В заключение авторы выражают благодарность Н.А. Берту и Ю.Г. Мусихину за проведение исследований образцов на электронном микроскопе, а также Р.А. Сурису за обсуждение результатов и ценные советы.

Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект 98-02-18266), а также проектом 96-2005 по МНТП "Физика твердотельных наноструктур".

## Список литературы

- [1] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Шукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП, **32**, 385 (1998).
- [2] O.V. Kovalenkov, D.A. Vinokurov, D.A. Livshits, I.S. Tarasov, N.A. Bert, S.G. Konnikov, Zh.I. Alferov. Proc. 23rd Int. Symp. Compound Semicond. (St. Petersburg, 1996) [Inst. Phys. Conf. Ser., N 155, Ch. 3, p. 271].
- [3] Д.А. Винокуров, В.А. Капитонов, О.В. Коваленков, Д.А. Лившиц, И.С. Тарасов. Письма ЖТФ, **24**(16), 1 (1998).
- [4] W. Seifert, N. Carlsson, M.-E. Pistol, L. Samuelson. Appl. Phys. Lett., **75**, 2968 (1995).

- [5] O.V. Kovalenkov, I.S. Tarasov, D.A. Vinokurov, V.A. Kapitonov. *Abstracts Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology"* (St. Petersburg, 1998) p. 268.
- [6] В.М. Устинов, А.Е. Жуков, А.Ф. Цацульников, А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш, М.В. Максимов, А.А. Суворова, Н.А. Берг, П.С. Копьев. *ФТП*, **31**, 1256 (1997).
- [7] В.М. Устинов, А.Р. Ковш, А.Е. Жуков, А.Ю. Егоров, Н.Н. Леденцов, А.В. Лунев, Ю.М. Шерняков, М.В. Максимов, А.Ф. Цацульников, Б.В. Воловик, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров. *Письма ЖТФ*, **24**, 49 (1998).
- [8] M. Taskinen, M. Soranen, H. Lipsanen, J. Tulkki, T. Tuomi, J. Ahopelto. *Surf. Sci.*, **376**, 60 (1997).
- [9] S. Adachi. *Physical Properties of III-V Semiconductor Compounds* (John Wiley & Sons Inc., 1992).
- [10] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, D. Bimberg. *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 2968 (1995).

Редактор Л.В. Шаронова

## Self-assembling nanoscale islands of InP in InGaP/GaAs and InAs in InGaAs/InP heterostructures

D.A. Vinokurov, V.A. Kapitonov, D.A. Livshits,  
Z.N. Sokolova, I.S. Tarasov, Zh.I. Alferov

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

**Abstract** Two types of strained nanoscale islands InP in  $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$  matrix on GaAs (100) substrate and InAs in  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  matrix on InP (100) substrate were grown by the metal-organic vapour-phase epitaxy. The structural and photoluminescent properties of such heterostructures were studied. It has been shown that lateral size of the grown nanoscale islands are 80 nm for InP/InGaP heterostructures and  $25 \div 60$  nm for InAs/InGaAs. Long-wavelength peaks ( $0.66 \div 0.72 \mu\text{m}$  and  $1.66 \div 1.91 \mu\text{m}$ ) in photoluminescence spectra were detected at 77 K. Energy peaks observed were not shifted with the increase of effective thickness of InP and InAs. The radiative efficiency of InP nanoscale islands was two orders greater than that of InAs ones.

E-mail: tarasov@hpld.ioffe.rssi.ru