УДК 621.315.592

XX Международный симпозиум "Нанофизика и наноэлектроника", Нижний Новгород, 14—18 марта 2016 г.

Гибридные нитевидные нанокристаллы AlGaAs/GaAs/AlGaAs с квантовой точкой, полученные методом молекулярно-пучковой эпитаксии на поверхности кремния

© Г.Э. Цырлин⁺*[△], И.В. Штром⁺*[▼], Р.Р. Резник^{+□}, Ю.Б. Самсоненко⁺*, А.И. Хребтов⁺, А.Д. Буравлев⁺*[▼], И.П. Сошников⁺*[▼][‡]

+ Санкт-Петербургский академический университет Российской академии наук,

194021 Санкт-Петербург, Россия

* Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,

190103 Санкт-Петербург, Россия

 $^{\triangle}$ Университет ИТМО,

197101 Санкт-Петербург, Россия

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской акедемии наук,

194021 Санкт-Петербург, Россия

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,

195251 Санкт-Петербург, Россия

‡ Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет "ЛЭТИ" им. В.И. Ульянова (Ленина)

197376 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: cirlin@beam.ioffe.ru

(Получена 27 апреля 2016 г. Принята к печати 10 мая 2016 г.)

Приведены данные по росту и исследованию свойств наноструктур типа "вставка GaAs, внедренная в AlGaAs нитевидный нанокристалл", выращенных на поверхности Si(111) методом молекулярно-пучковой эпитаксии с использованием золота в качестве катализатора. Показано, что, варьируя условия эпитаксиального роста, можно получать квантово-размерные структуры типа квантовой точки, излучающие в широком интервале длин волн как для активной, так и барьерной областей. Предлагаемая технология открывает новые возможности по интеграции прямозонных соединений A^{III}B^V и кремния.

1. Введение

Актуальность исследований нитевидных нанокристаллов (ННК) объясняется необходимостью решения важной задачи — создания новых непланарных полупроводниковых наноматериалов и наносистем с контролируемыми свойствами. Данные материалы могут быть использованы и уже используются при разработке приборов микроэлектроники, оптоэлектроники, аналитической биомедицины, эмиссионных катодов, зондов для сканирующей туннельной микроскопии, высокоэффективных преобразователей солнечной энергии и т.д. [1]. Особый интерес представляют ННК с комбинированной размерностью, например, типа "квантовая точка (КТ) в ННК". Это, во-первых, позволяет формировать упорядоченные по размерам КТ в системах материалов III-V, как однослойные, так и мультиплицированные. Во-вторых, у подобных наноструктур появляются новые электронные и оптические свойства, поэтому данные гибридные материалы — объекты интенсивного исследования в современной физике. Ранее нами была показана принципиальная возможность формирования нанометровых вставок InAsP в теле InP HHK [2,3] и GaAs в теле AlGaAs HHK [4,5]. В развитие данного направления в настоящей работе приводятся данные по росту и исследованию свойств наноструктур типа "квантовая точка GaAs, внедренная в AlGaAs HHK", выращенных на поверхности Si(111) методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) с использованием золота в качестве катализатора.

2. Эксперимент

МПЭ рост проводился с помощью установки Riber 21 Сотрасt, оснащенной, помимо ростовой камеры, вакуумно-совмещенной камерой для нанесения Au (камера металлизации). В качестве подложек использовались полированные полуизолирующие пластины кремния с ориентацией поверхности (111). Рост производился в два этапа. После удаления окисного слоя с поверхности подложки, предварительно обработанной в водном растворе HF (10:1) при температуре 850°С, температура образца понижалась до 550°С и производилось напыление пленки золота толщиной $\sim 0.1-0.2$ нм



Рис. 1. Картина дифракции быстрых электронов на отражение после роста Al_{0.5}Ga_{0.5}As HHK в течение 5 мин.

в камере металлизации. После минутной выдержки для создания равномерных капель Аи температура понижалась до комнатной и образец переносился в ростовую камеру без нарушения условий сверхвысокого вакуума. В ростовой камере температура повышалась до 510°С, далее открывались заслонки Al, Ga и As и производилось выращивание AlGaAs HHK в течение 20 мин в Аs-стабилизированных условиях роста. Картины ДБЭО свидетельствовали об образовании чисто вюрцитной фазы ННК уже после напыления 50 нм AlGaAs, которая не менялась в течение всего роста (типичная картина ДБЭО приведена на рис. 1). После этого заслонка А1 перекрывалась на несколько секунд (5-15), вследствие чего на вершине AlGaAs HHK образовывался GaAs наноостровок (КТ). Далее А1 заслонка открывалась вновь на 5 мин для формирования покрывающего слоя. Номинальный состав x по A1 в твердом растворе, измеренный из соотношения потоков для роста слоя на поверхности подложки GaAs(100), изменялся в пределах x = 0.3 - 0.6. Скорость роста AlGaAs поддерживалась постоянной и составляла 1 монослой в секунду (МС/с). Таким образом, скорости роста GaAs и AlAs менялись в соответствии с необходимой мольной долей х в твердом растворе $Al_xGa_{1-x}As$ (0.3/0.7, 0.4/0.6, 0.5/0.5, $0.6/0.4 \,\mathrm{MC/c}$).

Исследование поверхностной морфологии проводилось методами растровой электронной микроскопии (РЭМ). Излучательные свойства массивов ННК исследовались на специальном оптическом стенде, включающем дисперсионный спектрометр, собранный на базе монохроматора МДР-204-2 (ООО "ЛОМО Фотоника"). Фотолюминесценция (ФЛ) возбуждалась непрерывным неодимовым лазером (длина волны 532 нм), плотность мощности возбуждения составляла около 10 Вт/см⁻².

В качестве фотоприемника использовался фотоэлектронный умножитель Hamamatsu R928. Возбуждение и детектирование сигнала ФЛ проводились в нормальной геометрии. Измерения проводились при температуре 10 К, для их проведения образцы с ННК помещались в гелиевый криостат замкнутого цикла.

3. Результаты и их обсуждение

Из РЭМ изображений выращенных образцов следует (рис. 2), что с повышением мольной доли А1 как форма, так и высота ННК изменяются. Форма меняется с "карандашевидной" на "конусообразную" с увеличением высоты заостренной части, приобретая практически конический вид при x = 0.6. Высота также значительно уменьшается с 3 (x = 0.3) до 0.8 (x = 0.6) мкм. Данные изменения характерны для ННК, рост которых лимитирован различными факторами, такими как, например, температура роста [6]. В нашем случае это происходит из-за значительной разницы в энергии связи (а значит, и коэффициента миграции по поверхности) адатомов Al и Ga. Будучи сильнее связанным с поверхностью, атомы Al блокируют миграцию атомов Ga, что становится более выраженным при увеличении отношения Al/Ga. Как было установлено, образование вставки GaAs в теле ННК не приводит к изменению его геометрии, а зависит лишь от мольной доли Al.

Из проведенных ФЛ измерений следует ряд интересных фактов. Примеры ФЛ спектров приведены на рис. 3, в том числе для разных составов AlGaAs HHK (что проявляется в разных длинах волн излучения в коротковолновой части спектров), а также GaAs вставок (в длинноволновой). Во-первых, показано, что при росте AlGaAs HHK самоорганизованно происходит формирование достаточно сложной структуры, состоящей из стрежня ННК с одним составом по А1 (всегда меньшем, например положение E_{g1} на рис. 3) и оболочки, обладающих более высоким составом (положение Eg2 на рис. 3). При этом оба этих состава меньше в 2-3 раза, чем номинальный. С помощью формулы $E_{g(AlGaAs)}$ (x) = 1.512 + 1.455x (эВ) [7] мы оценили составы твердого раствора AlGaAs как в стержне, так и в оболочке ННК, в зависимости от номинального состав (т.е. измеренного на калибровочном образце GaAs(100) перед

Рассчитанные из данных фотолюминесценции составы в стрежне и оболочке AlGaAs HHK в сравнении с номинальным составом, определенным из данных по росту AlGaAs на поверхности GaAs(100)

Номинальный состав	Реальный состав <i>х</i> в стержне	Реальный состав <i>х</i> в оболочке
$\begin{array}{c} Al_{0.3}Ga_{0.7}As\\ Al_{0.4}Ga_{0.6}As\\ Al_{0.5}Ga_{0.5}As\\ Al_{0.6}Ga_{0.4}As \end{array}$	0.10 0.12 0.15 0.20	0.13 0.16 0.22 0.28



Рис. 2. РЭМ изображения гибридных AlGaAs/GaAs/AlGaAs HHK с разным составом Al в твердом растворе (номинальные величины). $a - Al_{0.5}Ga_{0.5}As$, $b - Al_{0.4}Ga_{0.6}As$, $c - Al_{0.5}Ga_{0.5}As$, $d - Al_{0.6}Ga_{0.4}As$.

ростом ННК), данные приведены в таблице. Следует отметить, что подобное образование самоорганизованной структуры типа "стержень-оболочка" ранее упоминалось как при МПЭ [8], так и газофазной эпитаксии [9]. Однако приведенные результаты противоречат друг другу. Так, в первом случае, как и в данной работе, мольный состав x у оболочки был выше, чем у стержня, в то время как в работе [9] — наоборот. Детальный анализ причин, приводящих к подобному феномену, приведен в отдельной статье [10].

В длинноволновой части спектра присутствуют линии ФЛ, ответственные за излучение из GaAs KT. Важным является то, что в зависимости от величины вставки (времени ее формирования) их положение может варьироваться. При этом всегда длина волны KT сдвинута по отношению к объемному GaAs в коротковолновую область, что свидетельствует об образовании квантованной структуры. Так, для состава Al_{0.3}Ga_{0.7}As, в зависимости от времени роста KT (5–15 с), длина волны излучения лежит в диапазоне 750–780 нм (не приведено



Рис. 3. Спектры фотолюминесценции, снятые при T = 10 К, гибридных AlGaAs/GaAs/AlGaAs HHK с разным содержанием Al в твердом растворе и разным временем роста GaAs KT: x = 0.4, 12 с; x = 0.5, 15 с.

на рисунке). Возникает также возможность получения излучения от GaAs KT на одной и той же длине волны при разных составах оболочки AlGaAs (рис. 3), хотя при этом возникает необходимость увеличения времени роста GaAs в случае более высокосоставного AlGaAs (15 и 12 с роста GaAs для номинального состава x 0.5 и 0.4 соответственно). Таким образом, меняя время роста GaAs вставки, а также состав AlGaAs ННК, становится возможным контролируемо получать гибридную систему на основе нитевидных нанокристаллов AlGaAs/GaAs/AlGaAs с заранее заданной зонной диаграммой. Кроме того, предлагаемая технология позволяет интегрировать прямозонные соединения $A^{III}B^V$ и кремний.

Данная работа выполнена при финансовой поддержке гранта РНФ № 14-12-00393.

Список литературы

- В.Г. Дубровский, Г.Э. Цырлин, В.М. Устинов. ФТП, 43 (12), 1585 (2009).
- [2] M. Tchernycheva, G.E. Cirlin, G. Patriarche, L. Travers, V. Zwiller, U. Perinetti, J.-C. Harmand. Nano Lett., 7, 1500 (2007).
- [3] Г.Э. Цырлин, М. Tchernycheva, G. Patriarche, J.-C. Harmand. ФТП, 46 (2), 184 (2012).
- [4] V.N. Kats, V.P. Kochereshko, A.V. Platonov, T.V. Chizhova, G.E. Cirlin, A.D. Bouravleuv, Yu.B. Samsonenko, I.P. Soshnikov, E.V. Ubyivovk, J. Bleuse, H. Mariette. Semicond. Sci. Technol., 27, 015009 (2012).
- [5] D. Barettin, A.V. Platonov, A. Pecchia, V.N. Kats, G.E. Cirlin, I.P. Soshnikov, A.D. Bouravleuv, L. Besombes, H. Mariette, M.A. der Maur, A.D. Carlo. IEEE J. Select. Top. Quant. Electron., 19 (5), 1901209 (2013).
- [6] V.G. Dubrovskii, N.V. Sibirev, G.E. Cirlin, M. Tchernycheva, J.C. Harmand, V.M. Ustinov. Rhys. Rev. E, 77, 031606 (2008).
- [7] T.F. Kuech, D.J. Wolford, R. Potemski, J.A. Bradley, K.H. Kelleher, D. Yan, J.P. Farrell, P.M.S. Lesser, F.H. Pollak. Appl. Phys. Lett., 51, 505 (1987).
- [8] C. Chen, S. Shehata, C. Fradin, R. LaPierre, C. Couteau, G. Weihs. Nano Lett., 7, 2584 (2007).
- [9] S.K. Lim, M.J. Tambe, M.M. Brewster, S. Gradečak. Nano Lett. 8, 1386 (2008).
- [10] V.G. Dubrovskii, I.V. Shtrom, R.R. Reznik, Yu.B. Samsonenko, A.I. Khrebtov, I.P. Soshnikov, S. Rouvimov, G.E. Cirlin. Направлено в Nanotechnology.

Редактор Г.А. Оганесян

Hybrid AlGaAs/GaAs/AlGaAs nanowires with quantum dot grown by molecular beam epitaxy on silicon

G.E. Cirlin⁺*[△], I.V. Shrom ⁺*[▼], R.R. Reznik⁺[□], Yu.B. Samsonenko⁺*, A.I. Khebrov⁺, A.D. Bouravleuv⁺*[▼], I.P. Soshnikov⁺*^{▼‡}

* St. Petersburg Academic University, Russian Academy of Sciences, 194021 St. Petersburg, Russia
* Institute for Analytical Instrumentation, Russian Academy of Sciences, 190103 St. Petersburg, Russia
^ ITMO University, 197101 St. Petersburg, Russia
* loffe Institute, 194021 St. Petersburg, Russia
[^] Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, 195251 St. Petersburg, Russia
[‡] St. Petersburg Electrotechnical University "LETI", 197376 St. Petersburg, Russia

Abstract The data on the growth peculiarities and physical properties of GaAs insertions embedded in AlGaAs nanowires grown on Si(111) substrates by Au-assisted molecular beam epitaxy are presented. It is shown that by varying of the growth parameters it is possible to form structures like quantum dots emitting in a wide wavelengths range for both active and barrier parts. The technology proposed opens new possibilities for the integration of direct-band A^{III}B^V materials on silicon platform.