

## Статистический анализ топографических АСМ-изображений самоорганизованных квантовых точек

© В.А. Севрюк, П.Н. Брунков<sup>¶</sup>, И.В. Шальнев, А.А. Гуткин, Г.В. Климко,  
С.В. Гронин, С.В. Сорокин, С.Г. Конников

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

(Получена 8 октября 2012 г. Принята к печати 17 октября 2012 г.)

С целью получения статистических данных о размерах квантовых точек используется анализ топографических изображений, полученных методом атомно-силовой микроскопии. В силу неидеальности подложки, содержащей на расстояниях 1–10 мкм перепады высоты величиной порядка размера наночастиц, а также недостаточного разрешения близко расположенных точек из-за конечности радиуса закругления зонда АСМ автоматизация процесса статистического анализа их большого массива требует специальных методик обработки топографических изображений, устраняющих потерю части частиц, возникающую при обычной обработке. В качестве такой методики применена свертка исходной матрицы АСМ изображения со специально подобранной матрицей, позволяющей определить положение каждой наночастицы и затем, используя исходную матрицу, измерить их геометрические параметры. Приведены результаты статистического анализа указанным методом самоорганизованных квантовых точек InAs, сформированных на поверхности эпитаксиального слоя AlGaAs. Показано, что их концентрация, средний размер и полуширина распределения по высоте существенно зависят от потока In и общего объема осажденного InAs, изменяющихся в незначительных пределах.

В настоящее время ведутся интенсивные разработки в области создания оптоэлектронных полупроводниковых приборов, содержащих массивы самоорганизованных квантовых точек (КТ) [1–4]. Свойства этих приборов определяются энергиями электронных состояний в квантовых точках, которые сильно зависят от размеров последних.

В связи с этим для ряда приборов получение контролируемого монодисперсного массива этих точек является важной задачей технологии, которая должна быть обеспечена методом статистического анализа размеров КТ. В данной работе предлагается использовать для этого анализ полученной методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) топографии образцов, представляющих собой подложку из полупроводникового материала, на поверхности которой сформированы КТ. Такие образцы получают на одном из промежуточных этапов изготовления приборных гетероструктур с КТ. Типичный радиус кончика зонда АСМ имеет величину порядка 10 нм [5], что вносит значительные искажения в измерение латеральных размеров КТ с характерным размером того же порядка или меньше [6]. Однако при низкой концентрации КТ на поверхности измерения их высоты методом АСМ являются достаточно корректными.

Исследования топографии поверхности образцов проводились на атомно-силовом микроскопе Dimension 3100 (Veeco) при комнатной температуре и влажности атмосферы 20% с использованием зондов RTESP [5]. Радиус закругления конца зонда 10 нм. Рельеф поверхности образца определялся в полуконтактном режиме АСМ.

### 1. Метод обработки топографических АСМ-изображений

Прежде всего следует отметить, что относительно большие площади поверхности подложки ( $1 \times 1$  мкм и более), требуемые для статистического анализа большого массива КТ, не являются идеально ровной поверхностью, а характеризуются перепадом высоты в несколько нанометров на длине 1–10 мкм. Кроме того, в топографическом изображении такой поверхности обнаруживаются и мелкомасштабные изменения высоты меньшей величины, существующие реально или вызванные неконтролируемыми загрязнениями поверхности и шумами измерительной аппаратуры, а близко расположенные КТ разрешаются недостаточно хорошо из-за конечной величины радиуса закругления зонда АСМ.

В этих условиях автоматизация процесса статистического анализа большого массива наночастиц по геометрическим размерам усложняется и требует специальных приемов, так как определение положения наночастиц с помощью сечения изображения АСМ-топографии на фиксированной высоте может привести к потере значительного количества исследуемых частиц.

В процессе выполнения измерений топографии поверхности методом АСМ формируется изображение, которое может быть представлено в виде матрицы  $Toro(i, j)$ , где  $i$  и  $j$  — количество строк и столбцов соответственно. Каждый элемент матрицы  $Toro(i, j)$  содержит величину высоты топографии в точке с координатами  $(i\Delta x, j\Delta y)$ , где  $\Delta x$  и  $\Delta y$  — шаги сканирования в соответствующем латеральном направлении.

<sup>¶</sup> E-mail: brunkov@mail.ioffe.ru

На АСМ-изображении топографии высота рельефа отражается в тональности серого цвета: чем выше, тем светлее, поэтому положению наночастиц соответствуют светлые области на более темном фоне. Для реализации автоматического определения координат наночастиц на АСМ-изображении необходимо определить координаты светлых областей. Обычно для этих целей используют дифференциальные операторы 1-го и 2-го порядков, которые позволяют определить контуры наночастиц [7–9]. Однако наличие шумов в сигнале топографии приводит к значительному увеличению шумов в изображении после дифференцирования. Поэтому для детектирования контура наночастиц используют комплексный фильтр, реализующий сглаживание сигнала посредством применения оператора на основе функции Гаусса и дифференцирование на основе оператора Лапласа. Эта комбинированная операция реализуется в фильтрах Лапласа–Гаусса (Laplace of Gaussian или LoG) [10–12].

Для обработки с помощью этого фильтра цифровых изображений, которые имеют матричное представление, необходимо сформировать матрицу дискретной аппроксимации, так называемую маску фильтра Лапласа–Гаусса ( $\text{LoG}(i, j)$ ), элементы которой должны приближенно соответствовать двумерному (2D) лапласиану гауссиана [10]:

$$\text{LoG}_\sigma(x, y) = -\frac{1}{\pi\sigma^4} \left[ 1 - \frac{x^2 + y^2}{2\sigma^2} \right] \times \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2\sigma^2}\right). \quad (1)$$

Параметр  $\sigma$  в выражении (1) есть стандартное отклонение в функции Гаусса,  $x$  и  $y$  — латеральные координаты точки поверхности.

Отличительными особенностями матрицы  $\text{LoG}(i, j)$  в соответствии с выражением (1) являются ее симметрия, наличие отрицательного пика в центре и положительного перепада высот по окружности основания пика. Сумма всех элементов маски фильтра Лапласа–Гаусса должна быть равна нулю, для того чтобы плоскость постоянной высоты на первоначальном АСМ-изображении после преобразования трансформировалась в плоскость  $Z = 0$ .

Для обработки АСМ-изображений к матрице топографического АСМ изображения  $\text{Toro}(i, j)$  нами применялась операция свертки с маской  $\text{LoG}(13 \times 13)$  фильтра Лапласа–Гаусса с безразмерным стандартным отклонением  $\sigma^* = 2.0$  (величина  $\sigma^*$  определяет стандартное отклонение в единицах шага сканирования  $\Delta x$ , при котором было получено первичное изображение):

$$\text{NewToro}(n, m) = \sum_{i=1}^{13} \sum_{j=1}^{13} \text{LoG}(i, j) \text{Toro}(n-i, m-j), \quad (2)$$

где

$$\text{LoG}(j,j) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 2 & 2 & 2 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2 & 2 & 3 & 3 & 4 & 3 & 3 & 2 & 2 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 2 & 3 & 3 & 3 & 2 & 3 & 3 & 3 & 2 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 3 & 3 & 1 & -4 & -6 & -4 & 1 & 3 & 3 & 1 & 0 \\ 1 & 2 & 3 & 3 & -4 & -14 & -19 & -14 & -4 & 3 & 3 & 2 & 1 \\ 1 & 2 & 4 & 2 & -6 & -19 & -24 & -19 & -6 & 2 & 4 & 2 & 1 \\ 1 & 2 & 3 & 3 & -4 & -14 & -19 & -14 & -4 & 3 & 3 & 2 & 1 \\ 0 & 1 & 3 & 3 & 1 & -4 & -6 & -4 & 1 & 3 & 3 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 2 & 3 & 3 & 3 & 2 & 3 & 3 & 3 & 2 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 2 & 2 & 3 & 3 & 4 & 3 & 3 & 2 & 2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 2 & 2 & 2 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Граничные элементы матрицы  $\text{Toro}(i, j)$  при этом исключаются из рассмотрения.

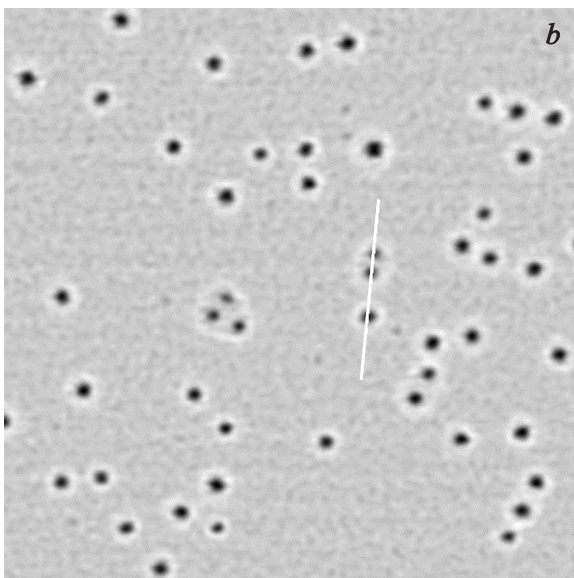
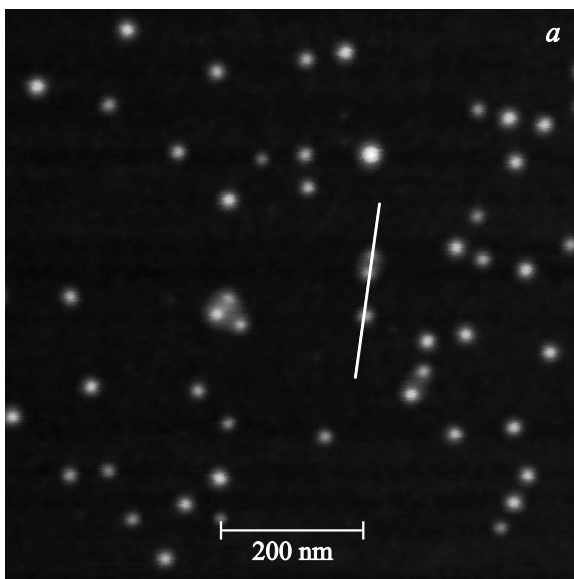
Для эффективного детектирования наночастиц латеральные размеры матрицы  $\text{LoG}(i, j)$  должны заметно превышать латеральный размер мелкомасштабных флуктуаций высоты на первичной АСМ-топографии, а величина  $\sigma = \sigma^* \cdot \Delta x$  должна быть в несколько раз меньше полуширины изображения исследуемых наночастиц.

Указанные выше особенности маски  $\text{LoG}(i, j)$  позволяют в результате операции свертки (соотношение (2)) получить изображение  $\text{NewToro}(n, m)$ , в котором наклонные плоскости большой протяженности, связанные с неидеальностью подложки, преобразуются практически в плоскости  $z = 0$  (шероховатость такой плоскости на несколько порядков ниже высоты исследуемых наночастиц на обработанном изображении  $\text{NewToro}(n, m)$ ). Мелкомасштабные неровности поверхности подложки сглаживаются, а вершины пиков, связанных с исследуемыми наночастицами, обостряются.

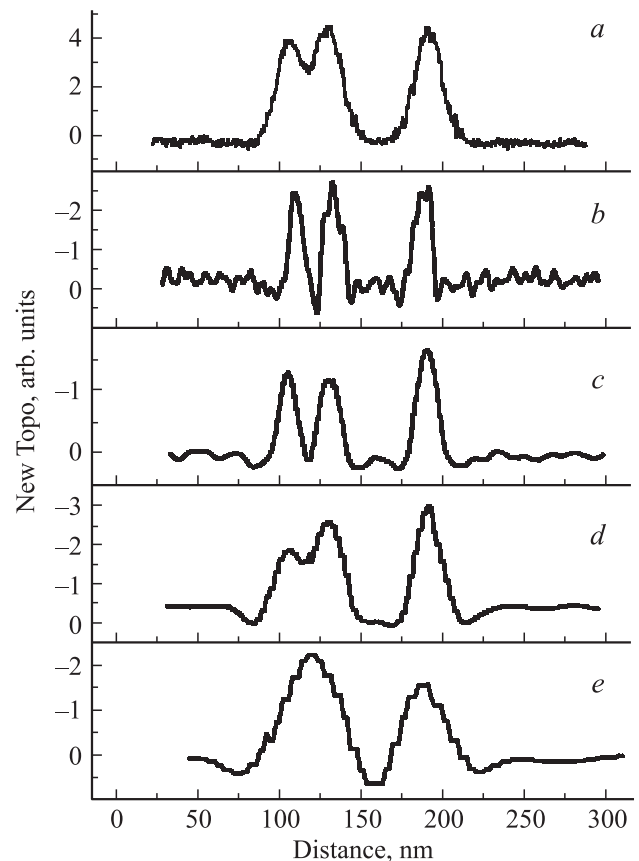
Полученное в результате операции свертки изображение  $\text{NewToro}(n, m)$  используется для определения координат всех наночастиц путем задания нижней границы высоты, по сечению на которой находятся отдельные объекты. Эти координаты затем используются для нахождения исследуемых наночастиц на первичной АСМ-топографии  $\text{Toro}(i, j)$ . В дальнейшем, анализируя окрестность каждой частицы на первичной АСМ-топографии и применяя обычные методы усреднения, можно определить высоту частицы. Такой способ позволяет автоматически обрабатывать АСМ-изображения с большим количеством наночастиц (более 1 тысячи). Описанная процедура допускает вариацию параметров фильтрации и использование различных пробных матриц с различными размерами соответственно размерам изображений исследуемых частиц.

Для тестирования программы статистического анализа АСМ-изображений использовались образцы, представляющие собой наночастицы золота с диаметром 5 нм [13,14], зафиксированные на слюде с помощью поли-L-лизина.

На рис. 1, *a* представлено АСМ-изображение поверхности такого образца, которое имеет размер  $0.8 \times 0.8$  мкм и получено с шагом  $\Delta x = 0.65$  нм. Матрица этого изображения имеет размер  $1226 \times 1226$  элементов. На рис. 2, *a* представлен профиль топографии золотых наночастиц вдоль линии на рис. 1, *a*. Наряду с одиночной наночастицей золота на профиле видны две близко расположенные частицы. Видно, что высота наночастиц около 5 нм, при этом шумовая дорожка имеет ширину порядка 0.2 нм. Полная ширина на половине высоты изображения одиночной наночастицы золота составляет величину около 20 нм (рис. 2, *a*), что связано с тем, что кончик зонда АСМ имеет радиус закругления около 10 нм.

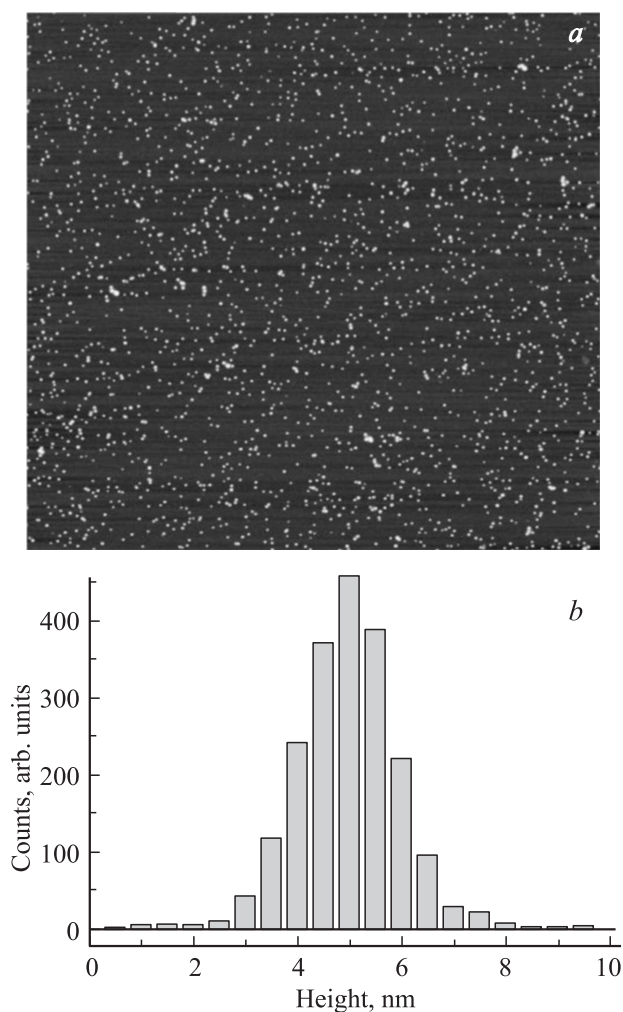


**Рис. 1.** Топографические АСМ-изображения наночастиц золота на поверхности слюды на площади  $0.8 \times 0.8$  мкм с разрешением  $1226 \times 1226$  до (*a*) и после (*b*) проведения операции свертки.



**Рис. 2.** Профили изображений золотых наночастиц вдоль сплошной линии на рис. 1 до (*a*) и после проведения операции свертки топографических изображений площади  $0.8 \times 0.8$  мкм с разрешением  $1226 \times 1226$  (*b*),  $615 \times 615$  (*c*),  $309 \times 309$  (*d*) и  $155 \times 155$  (*e*).

На рис. 2, *b* приведен профиль этого же сечения на изображении, полученном после применения операции свертки (выражение (2)) с маской LoG( $i, j$ ) к АСМ-изображению с разрешением  $1226 \times 1226$  и шагом  $\Delta x = 0.65$  нм, равным шагу на рис. 1, *a*. Видно, что изображения близко расположенных наночастиц достаточно хорошо разделились, но при этом повысился относительный уровень шума. Это связано с тем, что в этом случае величина параметра  $\sigma = \sigma^* \Delta x = 1.30$  нм, отвечающая за сглаживание в фильтре Лапласа–Гаусса, слишком мала. Для ее увеличения можно увеличивать размер маски фильтра, что эквивалентно увеличению  $\sigma^*$ . Это ведет к росту времени обработки АСМ-изображения. С другой стороны, тот же эффект может быть получен при увеличении шага  $\Delta x$ , что ведет к уменьшению размера матрицы исходного АСМ-изображения и, следовательно, к сокращению времени обработки АСМ-изображения. На рис. 2, *c–e* приведены профили на изображениях, полученных после применения операции свертки (соотношение (2)) с маской LoG( $i, j$ ) к АСМ-изображениям той же области, что и на рис. 1, *a*, с разрешением  $615 \times 615$ ,  $309 \times 309$  и  $155 \times 155$  и шагом



**Рис. 3.** *a* — топографические АСМ-изображения наночастиц золота с диаметром 5 нм на поверхности слюды. Площадь сканирования  $5 \times 5$  мкм. *b* — гистограмма распределения наночастиц золота по высоте.

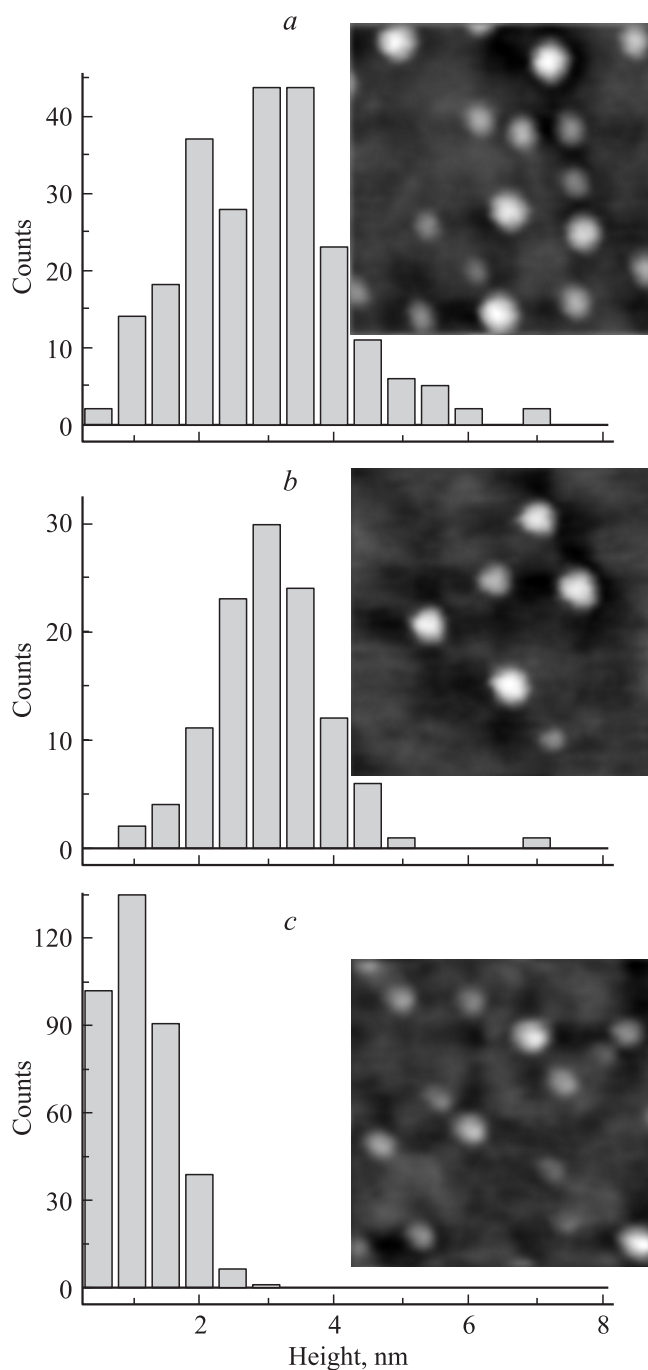
$\Delta x = 2.60, 5.20$  и  $10.40$  нм соответственно. Видно, что уровень шума значительно уменьшается, однако при  $\Delta x > 2.60$  нм наблюдается размывание профиля золотых наночастиц из-за слишком большой величины параметра  $\sigma$ .

Статистическая обработка изображения площади поверхности размером  $5 \times 5$  мкм, на которой находилось 2048 наночастиц, с помощью описанной выше методики анализа показала, что средний размер наночастиц золота находится на уровне 5 нм (рис. 3), полуширина распределения — порядка 1 нм, что достаточно хорошо коррелирует с данными производителя [13].

## 2. Исследование самоорганизованных InAs-квантовых точек

Образцы с поверхностными самоорганизованными InAs КТ выращивались методом молекулярно-пучковой

эпитаксии (МПЭ) в двухкамерной установке STE3526 фирмы SemiTEq (Россия). Рост КТ происходил на поверхности нелегированных эпитаксиальных слоев  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$  при температуре  $520^\circ\text{C}$ , соотношении потоков  $\text{As}/\text{In} \sim 120$  и времени выдержки КТ под потоком As после формирования 5 мин. Контроль и управление процессом формирования InAs КТ, который происходил



**Рис. 4.** Гистограммы распределения высоты квантовых точек InAs на поверхности AlGaAs, сформированных при разных технологических условиях: А (*a*), В (*b*), С (*c*) (см. таблицу). Соответствующие вставки показывают топографические АСМ изображения размером  $200 \times 200$  нм.

Параметры роста квантовых точек для образцов А, В, С

Образцы	$H$ , МС	$V$ , МС/с
А	1.82	0.020
В	1.85	0.015
С	1.79	0.017

в режиме Странского–Крастанова [1–3], осуществлялись с использованием системы дифракции быстрых отраженных электронов. Критическая толщина для начала формирования InAs КТ составляет примерно 1.7 монослоя (МС) [15].

При выращивании КТ в исследуемой серии образцов варьировались поток In (0.015–0.02 МС/с) и время осаждения (85–130 с) InAs, которые и являлись основными параметрами, определяющими размер и плотность КТ. Величина потока In ( $V$ ) и общего объема ( $H$ ) осажденного материала для исследованных образцов приведена в таблице.

АСМ-изображения топографии образцов с КТ для статистического анализа измерялись для площади  $1 \times 1 \text{ мкм}^2$ . Гистограммы распределения высоты КТ приведены на рис. 4, а–с. Из сравнения данных для образца С с данными для образцов А и В (см. таблицу и рис. 4) отчетливо видно, что уменьшение количества осажденного материала InAs приводит к уменьшению средней высоты КТ с 3 до 1 нм. Вместе с тем снижение скорости роста КТ (с 0.02 (образец А) до 0.015 МС/с (образец В), как видно из гистограмм (рис. 4, а и б), привело к уменьшению полуширины пика распределения высот КТ с 1.3 до 0.5 нм. Одновременно наблюдается уменьшение плотности КТ (см. АСМ-изображения топографии образцов, рис. 4, а и б) с  $2.4 \cdot 10^{10}$  до  $1.2 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$  в образцах А и В соответственно. Эти изменения могут быть обусловлены увеличением интенсивности переиспарения и времени поверхностной миграции адатомов In при уменьшении скорости роста (см. таблицу).

### 3. Заключение

Развитая методика получения данных о количестве и статистическом распределении высоты квантовых точек из анализа топографических АСМ-изображений подложек с выращенными на них квантовыми точками позволяет автоматически анализировать образцы с площадью порядка нескольких микрон с большим количеством наночастиц в условиях, когда исследуемая площадь образца содержит перепады высоты порядка высоты наночастиц и близко расположенные частицы разрешаются недостаточно хорошо.

Анализ топографических АСМ-изображений самоорганизованных InAs-квантовых точек, выращенных методом МПЭ на подложке из эпитаксиального GaAlAs,

показал, что их концентрация, средний размер и полуширина распределения по высоте существенно зависят от параметров роста, изменяющихся в незначительных пределах.

Развитая методика обработки АСМ-топографий может применяться и для образцов с любыми другими наночастицами.

Работа выполнена с использованием оборудования регионального ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ при поддержке грантов РФФИ № 10-02-00852-а и № 11-02-12215-офи-м, а также Министерства образования и науки РФ.

### Список литературы

- [1] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Щукин, П.С. Копьёв, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП, **32**, 385 (1998).
- [2] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (John Wiley & Sons Ltd., Chichester, 1998).
- [3] *Self-Assembled Quantum Dots*, ed. by Z.M. Zhiming (Lecture Notes in Nanoscale Science and Technology, v. 1, Springer, 2008).
- [4] *Quantum Dot Devices*, ed. by Z.M. Zhiming (Lecture Notes in Nanoscale Science and Technology, v. 13, Springer, 2012).
- [5] <http://www.brukerafimprobes.com/>; <http://www.ntmdt-tips.com/>
- [6] J.S. Villarrubia. J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol., **102**, 425 (1997).
- [7] *Введение в контурный анализ*, под ред. Я.А. Фурман. (М., Физматлит, 2003).
- [8] Р. Гонсалес, Р. Вудс. *Цифровая обработка изображений* (М., Техносфера, 2005).
- [9] Б.В. Бардин, В.В. Манойлов, И.В. Чубинский-Надеждин, Е.К. Васильева, И.В. Заруцкий. Научное приборостроение, **20**, 88 (2010).
- [10] D. Marr, E. Hildreth. Proc. Royal Soc. (London) B, Biol. Sci., **207**, 187 (1980).
- [11] Б. Яне. *Цифровая обработка изображений* (М., Техносфера, 2007).
- [12] P. Chuklanov, S.A. Ziganshina, A.A. Bukharaev. Surf. Interface Anal., **38**, 679 (2006).
- [13] PELCO AFM Gold Calibration Kit: <http://www.tedpella.com/>
- [14] J. Vesenka, S. Manne, R. Giberson, T. Marsh, E. Henderson. Biophysical J., **65**, 992 (1993).
- [15] Г.Э. Цырлин, Н.П. Корнеева, В.Н. Демидов, Н.К. Поляков, В.Н. Петров, Н.Н. Леденцов. ФТП, **31**, 1230 (1997).

Редактор Т.А. Полянская

## Statistical analysis of topography AFM images of self-organized quantum dots

*V.A. Sevriuk, P.N. Brunkov, I.V. Shalnev, A.A. Gutkin, G.V. Klimko, S.V. Gronin, S.V. Sorokin, S.G. Konnikov*

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

**Abstract** To obtain statistical parameters of quantum dots it suggested using analysis of AFM topography images of substrate with grown quantum dots. The automation of statistical analysis process of large array of quantum dots requires special treatment of the topography images eliminating loss of particles, which occurs during standard processing due to nonideality of the substrate, which is characterized by height gradients of size of nanoparticle on distance of  $1-10\mu\text{m}$  and insufficient lateral resolution of closely spaced quantum dots caused by the finite size of the AFM tip apex. It proposed to use convolution product of original matrix of AFM image with special matrix, which allows to find the lateral position of each nanoparticles, and then, using original matrix to determine their geometrical parameters. It is presented results of statistical analysis using stated above technique of InAs self-organized quantum dots, formed on the surface of AlGaAs epitaxial layer. It is shown that their concentration, average size and full width at half maximum of height distribution strongly depends on In flow and total deposited volume of InAs, which are varied in negligible ranges.