

08

Особенности роста массивов квантовых точек InAs с низкой поверхностной плотностью методом молекулярно-пучковой эпитаксии

© С.А. Блохин¹, А.П. Васильев², А.М. Надточий³, Н.Д. Прасолов¹, В.Н. Неведомский¹,
М.А. Бобров¹, А.А. Блохин¹, А.Г. Кузьменков¹, Н.А. Малеев¹, В.М. Устинов²

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

² Научно-технологический центр микроэлектроники и субмикронных гетероструктур РАН, Санкт-Петербург, Россия

³ Национальный исследовательский университет „Высшая школа экономики“, Санкт-Петербург, Россия
E-mail: blokh@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 10 октября 2022 г.

В окончательной редакции 1 ноября 2022 г.

Принято к публикации 1 ноября 2022 г.

Экспериментально исследовано влияние температуры подложки и потока адатомов In на структурные и оптические характеристики массивов квантовых точек InAs с низкой поверхностной плотностью. Повышение температуры подложки в условиях высокого потока адатомов In способствует усилению их поверхностной миграции и некоторому снижению плотности массива квантовых точек до уровня $\sim (1-2) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, однако при этом наблюдается существенный коротковолновый сдвиг спектра фотолюминесценции, несмотря на увеличение латеральных размеров точек. Уменьшение падающего потока адатомов In при оптимальных температурах подложки позволяет более эффективно уменьшить плотность точек (до уровня $\sim (1-2) \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$), а также сместить спектр фотолюминесценции точек в длинноволновую область (до $\sim 1200 \text{ nm}$ при температуре измерений 10 К).

Ключевые слова: молекулярно-пучковая эпитаксия, квантовые точки, поверхностная плотность.

DOI: 10.21883/PJTF.2022.24.54024.19389

Разработка неклассических источников света, необходимых для современных оптических квантовых технологий, включая квантовую метрологию, квантовую криптографию и линейные квантовые вычисления, является крайне сложной технологической задачей [1]. Самоорганизующиеся полупроводниковые квантовые точки (КТ) в системе материалов InGaAs/AlGaAs открывают широкие перспективы для создания истинных однофотонных излучателей [2]. Для реализации эффективных источников одиночных фотонов необходимо не только обеспечить высокую эффективность вывода фотонов и направленность излучения, но и уменьшить поверхностную плотность массива КТ InAs до уровня $1 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ и ниже. Возможный подход к снижению поверхностной плотности КТ InAs заключается в осаждении тонкого слоя InAs с толщиной, близкой к критической толщине перехода из послойного режима роста в островковый (далее 2D \rightarrow 3D-трансформация) [3]. Однако в рамках данного подхода крайне сложно получить однофотонное излучение в спектральных диапазонах 1.3 и 1.55 μm , наиболее интересных для создания телекоммуникационных систем, обеспечивающих полную безопасность обмена данными с использованием протоколов квантовой криптографии. Для реализации однофотонного излучения в телекоммуникационных диапазонах требуются более крупные КТ [4]. В рамках технологии молекулярно-пучковой эпитаксии возможное решение связано с уменьшением потока адатомов In к поверх-

ности растущего слоя и усилением поверхностной миграции адатомов In, поскольку в таком режиме роста для уменьшения механических напряжений и поверхностной энергии адатомы In предпочтительно внедряются в уже существующие трехмерные объекты (КТ) вместо образования новых. Такие условия эпитаксиального роста можно реализовать за счет повышения температуры подложки [5,6], уменьшения скорости роста КТ [7,8], прерывания роста [9], формирования градиента потока при остановке вращения держателя подложки [10] или его наклоне [11], формирования полей напряжений в нижележащем эпитаксиальном слое [12] или при комбинации данных подходов. Однако конкретные режимы роста массивов КТ InAs пониженной плотности в существенной степени зависят от конфигурации ростовой камеры, расположения источников материалов, конструкции эффузионных ячеек и манипулятора держателя подложки.

В настоящей работе приведены результаты комплексных исследований по поиску режимов эпитаксиального роста массивов КТ InAs на подложках GaAs, обеспечивающих контролируемое снижение поверхностной плотности КТ. Изучено влияние температуры подложки и уменьшения потока адатомов In на структурные характеристики КТ InAs.

Все исследованные структуры были выращены на подложках (001) GaAs методом молекулярно-пучковой эпитаксии в установке Riber 21 Compact с твердо-

тельным источником мышьяка. Структуры состоят из одного слоя КТ InAs, сформированного в режиме роста Странского–Крастанова путем осаждения InAs некоторой эффективной толщины при эффективном давлении мышьяка $As_4 \cdot 2 \cdot 10^{-7}$ Torr. Температура подложки при осаждении КТ InAs варьировалась в диапазоне 460–540°C, тогда как рост остальных эпитаксиальных слоев осуществлялся при температуре 600°C. В структурах, предназначенных для проведения исследований методом атомно-силовой микроскопии (АСМ), после формирования массива КТ эпитаксиальный рост останавливался и выполнялось быстрое охлаждение подложки в потоке мышьяка. В структурах, предназначенных для проведения исследований методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), массив КТ InAs наращивался слоем GaAs толщиной 30 nm, причем первые 10 nm слоя осаждались при температуре роста КТ.

Количественно скорость роста InAs можно определить по времени трансформации картины дифракции быстрых электронов от характерной для послойного (двумерного) роста к характерной для роста когерентно-напряженных островков (трехмерного) (далее время 2D → 3D-трансформации). Общепринято, что 2D → 3D-трансформация наблюдается при осаждении слоя InAs критической толщины (~ 1.6 – 1.7 ML) на поверхность GaAs. Однако скорость роста InAs зависит не только от падающего потока адатомов In, но и от коэффициента прилипания адатомов In к поверхности. С повышением температуры подложки увеличивается десорбция адатомов In с растущей поверхности и уменьшается коэффициент их прилипания, тогда как падающий на подложку поток адатомов In определяется температурой эффузионной ячейки и не зависит от температуры подложки. Поэтому эффективная скорость роста InAs (V_{eff}) определялась по времени 2D → 3D-трансформации при температуре подложки 460°C, когда десорбцией адатомов In можно пренебречь и коэффициент прилипания адатомов In к поверхности близок к единице.

На рис. 1 приведены зависимости времени 2D → 3D-трансформации от температуры подложки при различных потоках адатомов In, соответствующих значениям $V_{eff} = 0.25$, 0.05 и 0.01 Å/s. При пониженных температурах подложки (менее 485°C) наблюдается пропорциональное увеличение времени 2D → 3D-трансформации по мере снижения потока адатомов In к поверхности растущего слоя. Однако с повышением температуры подложки происходит рост времени 2D → 3D-трансформации, что обусловлено не только увеличением десорбции адатомов In, но и усилением эффекта перемешивания осаждаемого InAs с нижележащим GaAs, приводящего к росту значения критической толщины InAs [13]. В конечном счете начиная с некоторой критической температуры десорбция адатомов In начинает превалировать над адсорбцией, и образование КТ не наблюдается.

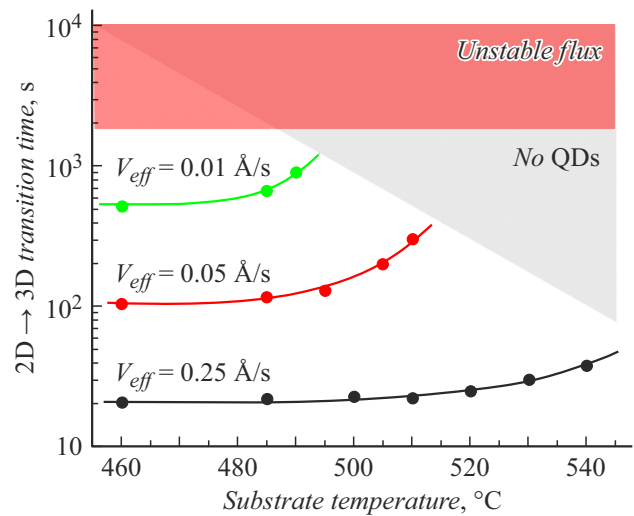


Рис. 1. Зависимости времени 2D → 3D-трансформации от температуры подложки при осаждении InAs при потоках адатомов In, соответствующих скоростям роста InAs $V_{eff} = 0.25$, 0.05 и 0.01 Å/s.

Результаты анализа поверхностной плотности массива КТ InAs, полученного осаждением InAs толщиной ~ 2.2 ML (контролировалось как превышение времени 2D → 3D-трансформации на 30%, так как критическая толщина зависит от температуры подложки и потока адатомов In), при различной температуре подложки и потоке адатомов In представлены на рис. 2. Согласно данным АСМ, при высоком потоке адатомов In ($V_{eff} \sim 0.25$ Å/s) увеличение температуры подложки с 485 до 510°C ведет к снижению поверхностной плотности массива КТ с $4 \cdot 10^{10}$ до $1.8 \cdot 10^{10}$ cm $^{-2}$ и существенному увеличению латеральных размеров КТ, что хорошо коррелирует с ранее опубликованными данными [5,14]. При дальнейшем росте температуры подложки проявляется тенденция к образованию больших кластеров и/или конгломератов КТ, содержащих дислокации, которые частично испаряются при последующем наращивании КТ в зависимости от толщины прикрывающего слоя GaAs [15]. Следует отметить, что в условиях высокой скорости десорбции и усиленной поверхностной миграции адатомов In режим охлаждения образца оказывает существенное влияние на морфологию незарощенных КТ, поэтому оценка поверхностной плотности КТ из АСМ-данных в этих случаях носит скорее качественный характер, а для количественной оценки следует ориентироваться на результаты исследований методом ПЭМ.

В то же время уменьшение потока адатомов In позволяет более эффективно контролировать поверхностную плотность КТ за счет более продолжительной поверхностной миграции (так как увеличивается время 2D → 3D-трансформации) [7]. При температуре подложки 485°C и потоке адатомов In, соответствующем скорости $V_{eff} \sim 0.01$ Å/s, наблюдается снижение поверх-

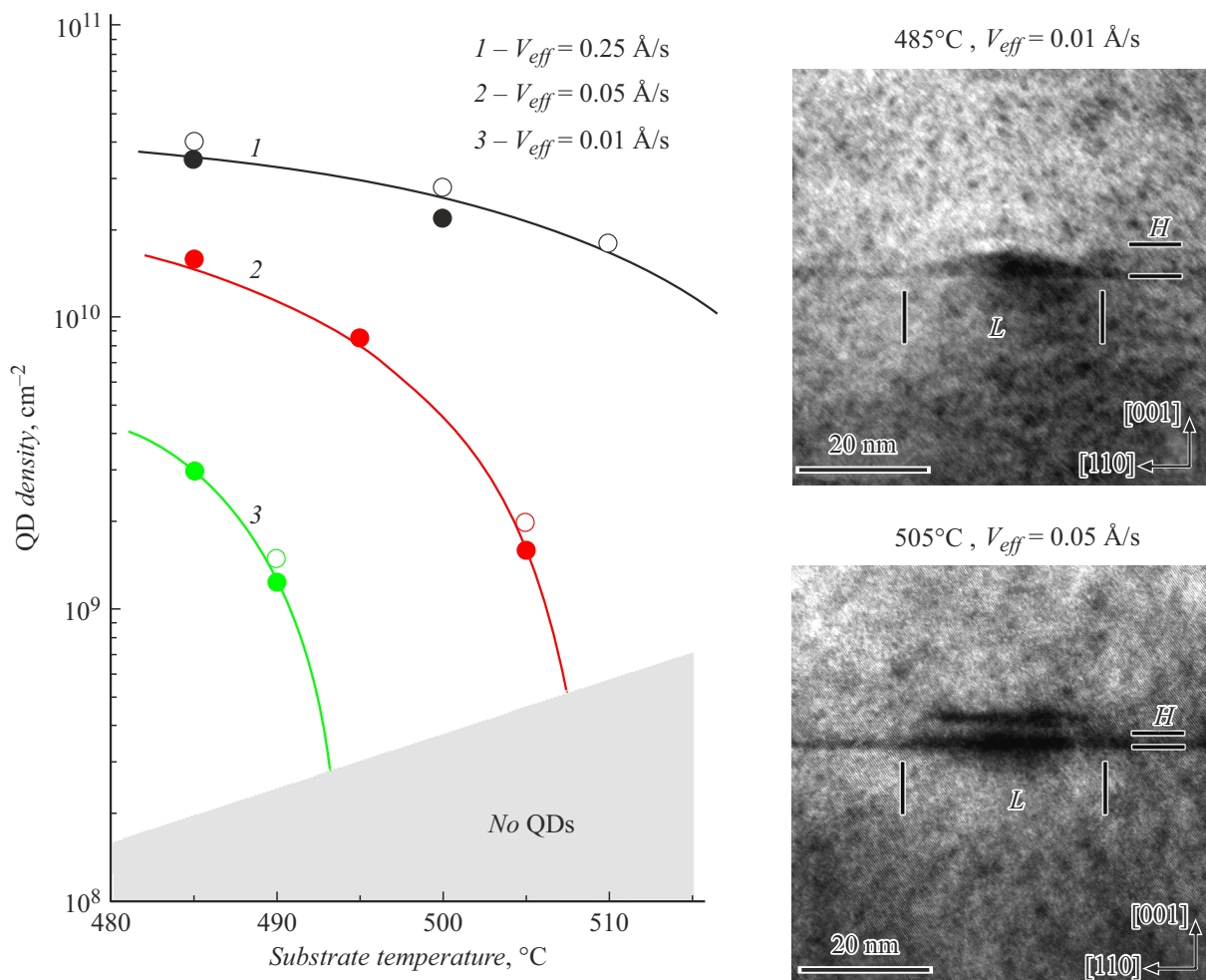


Рис. 2. Зависимости средней плотности массива КТ InAs (2.2 ML) от температуры подложки при потоках адатомов In, соответствующих скоростям роста слоя InAs $V_{eff} = 0.25, 0.05$ и 0.01 \AA/s . Закрашенными кружками показана плотность КТ, полученная методом АСМ, светлыми кружками — плотность КТ, полученная методом ПЭМ. Серым цветом выделена область, где не формируются КТ. На вставках приведены характерные ПЭМ-изображения поперечного сечения $(1\bar{1}0)$ индивидуальных КТ InAs, сформированных в различных режимах роста.

ностной плотности КТ до $3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Хотя в работе [7] была показана принципиальная возможность снижения плотности КТ до уровня $2 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ при дальнейшем уменьшении падающего потока адатомов In, но обеспечить стабильную работу эффузионной ячейки в таком режиме технически крайне сложно. Заметная десорбция при пониженных потоках адатомов In ограничивает выбор предельной температуры формирования КТ InAs: не более 510 и 495°C при значениях $V_{eff} \sim 0.05$ и $\sim 0.01 \text{ \AA/s}$ соответственно. В результате поверхностную плотность массива КТ можно контролируемо снизить до уровня $\sim (1-2) \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$, используя температуры подложки 505 и 490°C при выборе соответствующих скоростей $V_{eff} \sim 0.05$ и $\sim 0.01 \text{ \AA/s}$. В целом достигнутые значения поверхностной плотности КТ хорошо коррелируют с результатами работ [6,7] при сравнимых потоках адатомов In, несмотря на существенное различие в температурах роста.

Следует отметить, что эффективная реализация источников одиночных фотонов на массивах КТ InAs с более низкой плотностью (ниже $1 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$) требует применения *in situ* электронно-пучковой литографии, объединенной с системой спектроскопии катодолуминесценции [15,16], или *in situ* криофотолитографии, совмещенной с системой микрофотолуминесценции [17–19], чтобы обеспечить предварительный отбор и пространственную селекцию подходящих по спектральным характеристикам одиночных КТ при криогенных температурах.

На рис. 3 представлены спектры фотолуминесценции (ФЛ) для КТ InAs (2.2 ML), выращенных при различных режимах, полученные в условиях криогенных температур и низкой плотности накачки для адекватной оценки степени неоднородного уширения массива КТ. С одной стороны, увеличение температуры подложки в условиях высокого потока адатомов In ($V_{eff} > 0.25 \text{ \AA/s}$)

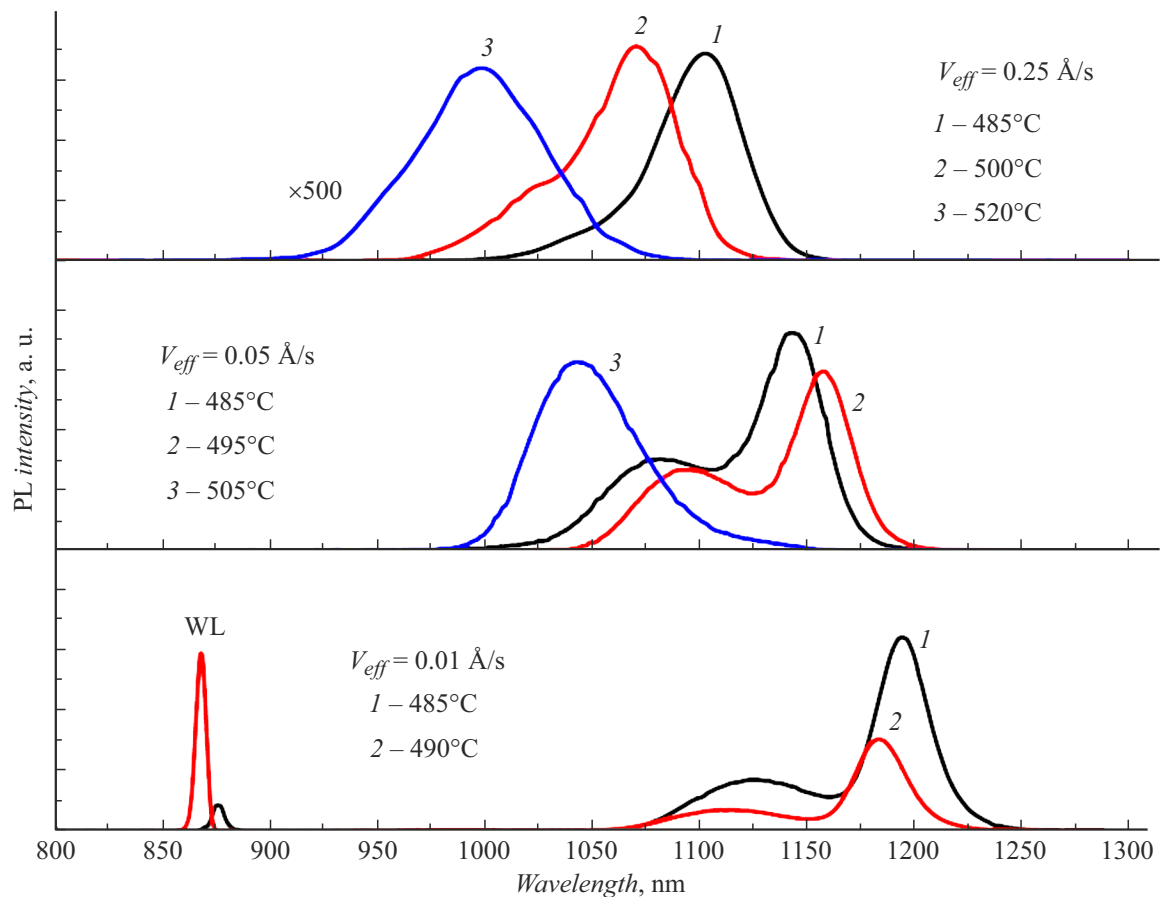


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции КТ InAs (2.2 ML), выращенных при различных температурах подложки и потоках адатомов In, соответствующих скоростям роста слоя InAs $V_{eff} = 0.25, 0.05$ и 0.01 \AA/s . Оптическая накачка лазером YAG:Nd (532 nm), плотность возбуждения 30 W/cm^2 , температура измерений 10 K.

способствует формированию массива КТ InAs с формой основного пика спектра ФЛ, близкой к гауссовой, что можно интерпретировать как более симметричное, но широкое распределение КТ по размерам. Кроме того, в этом случае наблюдается коротковолновый сдвиг пика ФЛ КТ (до $\sim 1000 \text{ nm}$). С учетом наблюдаемого увеличения латеральных размеров это может свидетельствовать как о значительном уменьшении высоты КТ (как следствие, об уменьшении объема КТ) [20], так и об усилении эффекта перемешивания осаждаемого InAs с нижележащим GaAs [13]. Однако в случае КТ InAs, выращенных при температурах подложки выше 520°C , дополнительно наблюдается резкое падение интенсивности ФЛ, что, по-видимому, можно связать с образованием дислокаций в КТ, превышающих некоторый критический объем, и/или образованием больших дислоцированных кластеров InAs. С другой стороны, снижение потока адатомов In ведет к заметному длинноволновому сдвигу спектра ФЛ КТ (с ~ 1102 до $\sim 1195 \text{ nm}$), что коррелирует с результатами работы [7]. ПЭМ-исследования выявили увеличение средних латеральных размеров КТ (до $27 \pm 2 \text{ nm}$) и изменение формы КТ от пирамидальной к более плоской (см. верхнюю вставку на рис. 2). Допол-

нительно наблюдается уменьшение полуширины пика основного состояния КТ, что можно интерпретировать как формирование более однородного массива КТ. При низких потоках адатомов In в спектрах ФЛ можно видеть существенный вклад от смачивающего слоя (WL), что свидетельствует об уменьшении плотности массива КТ.

Следует отметить, что спектры ФЛ образцов, выращенных при повышенной температуре подложки в условиях пониженного потока адатомов In, имеют особенности по сравнению со спектрами ФЛ аналогичных образцов, выращенных в условиях с высоким потоком адатомов In ($V_{eff} > 0.25 \text{ \AA/s}$). Так, при промежуточном потоке адатомов In ($V_{eff} \sim 0.05 \text{ \AA/s}$) по мере роста температуры подложки (с 485 до 495°C) сначала наблюдается дополнительный длинноволновый сдвиг длины волны основного состояния КТ (с ~ 1143 до $\sim 1158 \text{ nm}$), что свидетельствует о дальнейшем росте объема КТ. Однако при температуре подложки 505°C ситуация резко меняется и наблюдается тенденция, близкая к случаю КТ InAs, выращенных при высоком потоке адатомов In и повышенной температуре: дальнейшее увеличение латеральных размеров КТ (до $31 \pm 2 \text{ nm}$) и изменение формы КТ (см. нижнюю вставку на рис. 2), сопровожда-

ющееся образованием дислокаций в более крупных КТ и, как следствие, коротковолновым сдвигом максимума спектра ФЛ КТ (до ~ 1043 nm). Следует отметить, что при более высоких температурах подложки КТ уже не формируются.

В случае низкого потока адатомов In ($V_{eff} \sim 0.01$ Å/s) даже небольшое увеличение температуры подложки с 485 до 490°C ведет к коротковолновому сдвигу длины волны основного состояния КТ ($c \sim 1195$ до ~ 1183 nm), что указывает на невозможность дальнейшего увеличения объема КТ InAs в рамках рассмотренного подхода. При этом наблюдаемое увеличение интенсивности пика смачивающего слоя и снижение интенсивности излучения КТ можно интерпретировать как снижение поверхностной плотности массива КТ [7].

Таким образом, минимизация потока адатомов In (скорость $V_{eff} < 0.01$ Å/s) к поверхности растущего слоя с целью усиления поверхностной миграции адатомов In позволяет одновременно эффективно уменьшить плотность массива КТ InAs до уровня $\sim (1-3) \cdot 10^9$ см $^{-2}$, а также обеспечить сдвиг пика ФЛ, соответствующего основному состоянию КТ, вплоть до 1.3 μ m при комнатной температуре. Однако данный метод эффективно работает лишь в узком ($\sim 5-10^\circ$ C) диапазоне температур.

Благодарности

Анализ структурных параметров массива КТ выполнен с использованием ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ (ФТИ им. А.Ф. Иоффе).

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ и DFG в рамках научного проекта № 20-52-12006. А.М. Надточий благодарит Программу фундаментальных исследований НИУ ВШЭ.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] C. Santori, D. Fattal, Y. Yamamoto, *Single-photon devices and applications* (Wiley-VCH, Weinheim, 2010).
- [2] P. Michler, *Quantum dots for quantum information technologies* (Springer, Stuttgart, 2017). DOI: 10.1007/978-3-319-56378-7
- [3] D. Leonard, K. Pond, P.M. Petroff, *Phys. Rev. B*, **50** (16), 11687 (1994). DOI: 10.1103/PhysRevB.50.11687
- [4] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Шукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг, *ФТП*, **32** (4), 385 (1998). [N.N. Ledentsov, V.M. Ustinov, V.A. Shchukin, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, D. Bimberg, *Semiconductors*, **32** (4), 343 (1998). DOI: 10.1134/1.1187396].
- [5] N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, D. Bimberg, V.M. Ustinov, N.A. Cherkashin, Yu.G. Musikhin, V.B. Volovik, G.E. Cirlin, Zh.I. Alferov, *Semicond. Sci. Technol.*, **16** (6), 502 (2001). DOI: 10.1088/0268-1242/16/6/316
- [6] G. Trevisi, L. Seravalli, P. Frigeri, S. Franchi, *Nanotechnology*, **20** (41), 415607 (2009). DOI: 10.1088/0957-4484/20/41/415607
- [7] B. Alloing, C. Zinoni, L.H. Li, A. Fiore, G. Patriarche, *J. Appl. Phys.*, **101** (2), 024918 (2007). DOI: 10.1063/1.2427104
- [8] S. Huang, Z. Niu, H. Ni, Y. Xiong, F. Zhan, Z. Fang, J. Xia, *J. Cryst. Growth*, **301-302**, 751 (2007). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2006.11.299
- [9] L.H. Li, N. Chauvin, G. Patriarche, B. Alloing, A. Fiore, *J. Appl. Phys.*, **104** (8), 083508 (2008). DOI: 10.1063/1.3000483
- [10] J. Sun, P. Jin, Z.-G. Wang, *Nanotechnology*, **15** (12), 1763 (2004). DOI: 10.1088/0957-4484/15/12/012
- [11] R. Kumar, Y. Maidaniuk, S.K. Saha, Y.I. Mazur, G.J. Salamo, *J. Appl. Phys.*, **127** (6), 065306 (2020). DOI: 10.1063/1.5139400
- [12] Z.-S. Chen, B. Ma, X.-J. Shang, Y. He, L.-C. Zhang, H.-Q. Ni, J.-L. Wang, Z.-C. Niu, *Nanoscale Res. Lett.*, **11** (1), 382 (2016). DOI: 10.1186/s11671-016-1597-0
- [13] Ch. Heyn, *Phys. Rev. B*, **64** (16), 165306 (2001). DOI: 10.1103/PhysRevB.64.165306
- [14] Н.А. Черкашин, М.В. Максимов, А.Г. Макаров, В.А. Шукин, В.М. Устинов, Н.В. Луковская, Ю.Г. Мусихин, Г.Э. Цырлин, Н.А. Берг, Ж.И. Алфёров, Н.Н. Леденцов, Д. Бимберг, *ФТП*, **37** (7), 890 (2003). [N.A. Cherkashin, M.V. Maksimov, A.G. Makarov, V.A. Shchukin, V.M. Ustinov, N.V. Lukovskaya, Yu.G. Musikhin, G.E. Cirlin, N.A. Bert, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, *Semiconductors*, **37** (7), 861 (2003). DOI: 10.1134/1.1592865].
- [15] I. Kamiya, I. Tanaka, H. Sakaki, *J. Cryst. Growth*, **201-202**, 1146 (1999). DOI: 10.1016/s0022-0248(99)00005-6
- [16] M. Gschrey, F. Gericke, A. Schüssler, R. Schmidt, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Rodt, A. Strittmatter, S. Reitzenstein, *Appl. Phys. Lett.*, **102** (25), 251113 (2013). DOI: 10.1063/1.4812343
- [17] S. Rodt, S. Reitzenstein, *Nano Express*, **2** (1), 014007 (2021). DOI: 10.1088/2632-959X/abed3c
- [18] A.K. Nowak, S.L. Portalupi, V. Giesz, O. Gazzano, C. Dal Savio, P.-F. Braun, K. Karrai, C. Arnold, L. Lanco, I. Sagnes, A. Lemaître, P. Senellart, *Nat. Commun.*, **5**, 3240 (2014). DOI: 10.1038/ncomms4240
- [19] L. Sapienza, M. Davanço, A. Badolato, K. Srinivasan, *Nat. Commun.*, **6**, 7833 (2015). DOI: 10.1038/ncomms8833
- [20] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, V.M. Ustinov, Yu.G. Musikhin, V.B. Volovik, A. Schliwa, O. Stier, R. Heitz, D. Bimberg, *MRS Online Proc. Library*, **618**, 79 (2000). DOI: 10.1557/proc-618-79