

# Резонансное комбинационное рассеяние света и атомно-силовая микроскопия многослойных наноструктур InGaAs/GaAs с квантовыми точками

© М.Я. Валах<sup>¶</sup>, В.В. Стрельчук, А.Ф. Коломыс, Yu.I. Mazur\*, Z.M. Wang\*, M. Xiao\*, G.J. Salamo\*

Институт физики полупроводников им. В.Е. Лашкарёва Национальной академии наук Украины, 03028 Киев, Украина

\* University of Arkansas, Department of Physics, 72701 Arkansas, USA

(Получена 1 июня 2004 г. Принята к печати 16 июня 2004 г.)

Методами атомно-силовой микроскопии, фотолюминесценции и комбинационного рассеяния света исследован переход от двухмерного (2D) псевдоморфного роста к трехмерному (3D) (наноостровковому) в многослойных структурах  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ , полученных молекулярно-лучевой эпитаксией. Номинальная концентрация In в  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  варьировалась от  $x = 0.20$  до  $0.50$ . Толщина осаждаемых слоев  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  и GaAs составляли 14 и 70 монослоев соответственно. Показано, что при данных толщинах переход 2D–3D имеет место при  $x \geq 0.27$ . Установлено, что формирование квантовых точек  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (наноостровков) не сводится к классическому механизму Странского–Крастанова, а существенно модифицируется процессами вертикальной сегрегации атомов In и интердиффузии атомов Ga. В результате  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  может моделироваться 2D слоем с пониженной концентрацией In ( $x < 0.20$ ), переходящим в тонкий слой, включающий наноостровки, обогащенные In ( $x > 0.60$ ). Для многослойных структур  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  можно реализовать латеральное выстраивание квантовых точек в цепочки в направлении  $[110]$  и улучшение однородности их размеров.

## 1. Введение

Одним из важных направлений в фундаментальной и прикладной физике твердого тела является изучение процессов самоорганизованного формирования полупроводниковых квантовых точек (КТ) при молекулярно-пучковом росте напряженных гетеросистем. Считается, что этот процесс осуществляется по механизму Странского–Крастанова, так что при достижении некоторой критической толщины осаждаемого слоя происходит упругая релаксация деформаций с образованием на тонком (несколько монослоев) двухмерном (2D) смачивающем слое трехмерных (3D) наноостровков (квантовых точек).

Наиболее интенсивно исследовались квантовые точки InAs, возникающие в результате 2D–3D перехода при эпитаксии напряженных гетероструктур InAs/GaAs. В последнее время появились свидетельства того, что зарождение и рост КТ InAs не сводятся к классическому механизму Странского–Крастанова. Указывалось на возможное влияние вертикальной сегрегации атомов In и интердиффузии атомов Ga [1]. Для КТ  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ , сформированных в матрице GaAs, ситуация еще более усложняется одновременным осаждением катионов двух типов. Кроме того, несмотря на то что на сегодняшний день получены высокие плотности массивов КТ  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $\sim 10^{11} \text{ см}^{-2}$ ), имеющие место вариации размеров и формы КТ затрудняют широкое приборное применение. Использование многослойных структур позволяет практически решить вопрос вертикального упорядочения КТ в направлении роста и улучшить

однородность их размеров [2,3], но латеральное упорядочение (в плоскости гетерограницы) остается проблемой [4–6]. В случае многослойных наноостровковых структур  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  процесс упорядочения критическим образом зависит от поверхностной упругой анизотропии материала матрицы [7] и кристаллографической ориентации поверхности [8]. Ранее мы показали, что для многослойной системы, используя процесс прерывания роста при осаждении разделяющего слоя GaAs, с ростом количества слоев можно реализовать латеральное выстраивание КТ в линии. Параметры КТ и характер их пространственного упорядочения определяются условиями эпитаксиального роста.

В данной работе методами атомно-силовой микроскопии, резонансного комбинационного рассеяния и фотолюминесценции исследованы процессы формирования и оптические свойства КТ в многослойных структурах  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ . Показана возможность формирования в таких структурах латерально-упорядоченных массивов КТ при осаждении на плоскость (100) твердого раствора  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ .

## 2. Методика эксперимента

Многослойные структуры  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  с квантовыми ямами и квантовыми точками выращивались на полуизолирующих подложках (100) GaAs методом молекулярно-пучковой эпитаксии. После удаления с поверхности оксидного слоя буферный слой GaAs в 0.5 мкм выращивался при скорости роста 1 монослой (МС) в секунду. Выращивание всех образцов осуществлялось при постоянном давлении паров As, равном  $10^{-5}$  Торр.

<sup>¶</sup> E-mail: valakh@isp.kiev.ua

Первая серия 8-периодных структур  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}(14 \text{ МС})/\text{GaAs}(70 \text{ МС})$  выращивалась при температуре подложки  $520^\circ\text{C}$ . Номинальное содержание  $\text{In}$  составляло  $x = 0.2, 0.25, 0.28, 0.30$  и  $0.35$ . Переход от псевдоморфного 2D роста к 3D моде роста контролировался по дифракции высокоэнергетических электронов. При указанных толщинах  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  для образцов с  $x = 0.2$  и  $0.25$  переход 2D–3D не реализовался. Для  $x = 0.28, 0.30$  и  $0.35$  он проявился при достижении толщины  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  слоя 14.0, 10.7 и 7.4 МС соответственно.

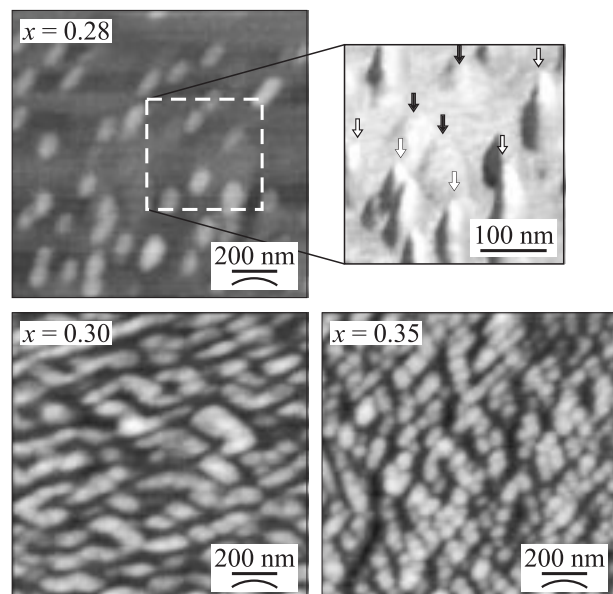
Вторая серия структур  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}(9.8 \text{ МС})/\text{GaAs}(60 \text{ МС})$  выращивалась при температуре подложки  $540^\circ\text{C}$  и скоростях роста  $\text{GaAs}$  и  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  — 0.4 и 0.2 МС/с соответственно. Разделяющие слои  $\text{GaAs}$  осаждались с использованием процедуры прерывания роста.

Спектры комбинационного рассеяния (КРС) возбуждались Nd-YAG-лазером ( $\lambda = 1.0642 \text{ мкм}$ ) непрерывного действия и регистрировались интерферометром Фурье ВОМЕМ. Спектры фотолуминесценции (ФЛ) возбуждались линией 488 нм аргонового лазера. Наноморфология поверхности образцов исследовалась на атомно-силовом микроскопе (АСМ) AFM Dimension 3000 (DI Nano Scope IIIA).

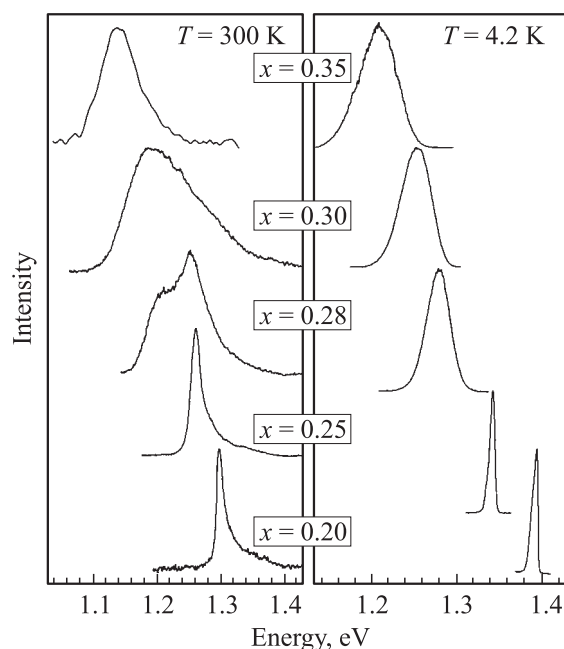
### 3. Результаты исследований и их обсуждение

На рис. 1 показаны АСМ-изображения верхнего непокрытого слоя КТ  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  для 8-периодных структур  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  с  $x \geq 0.28$ . При  $x = 0.28$  видны КТ двух видов: более высокие 3D островки (тип А) и более плоские, с малым отношением высоты к латеральному размеру, 2D островки (тип В). В обоих случаях основания КТ — эллипсы с ориентацией главной и побочной осей вдоль направлений  $[\bar{1}10]$  и  $[110]$  соответственно. С ростом  $x$  плотность островков возрастает, и распределение по размерам становится более однородным. При изменении  $x$  от 0.30 до 0.35 наблюдается уменьшение средних длин главной и побочной осей эллипса от 42 до 35 нм и от 22 до 15 нм соответственно. Несмотря на то что при  $x = 0.35$  КТ касаются друг друга, характерная для случая  $\text{InAs}$  коалесценция с образованием крупных островков не проявилась. Это может свидетельствовать об отмеченном выше неоднородном распределении  $\text{In}$  и  $\text{Ga}$  в слое  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  вследствие процесса вертикальной сегрегации атомов  $\text{In}$  в верхние участки КТ  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  [9].

В спектрах ФЛ (рис. 2) при  $x = 0.2$  и  $0.25$  проявилась интенсивная полоса излучения квантовой ямы (КЯ)  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ . Ее асимметрия при  $T = 300 \text{ К}$  обусловлена термически активированным захватом носителей в области с меньшим содержанием  $\text{In}$  и (или) монослойными флуктуациями толщины КЯ. При  $T = 4.2 \text{ К}$  асимметрия линий ФЛ отсутствует.

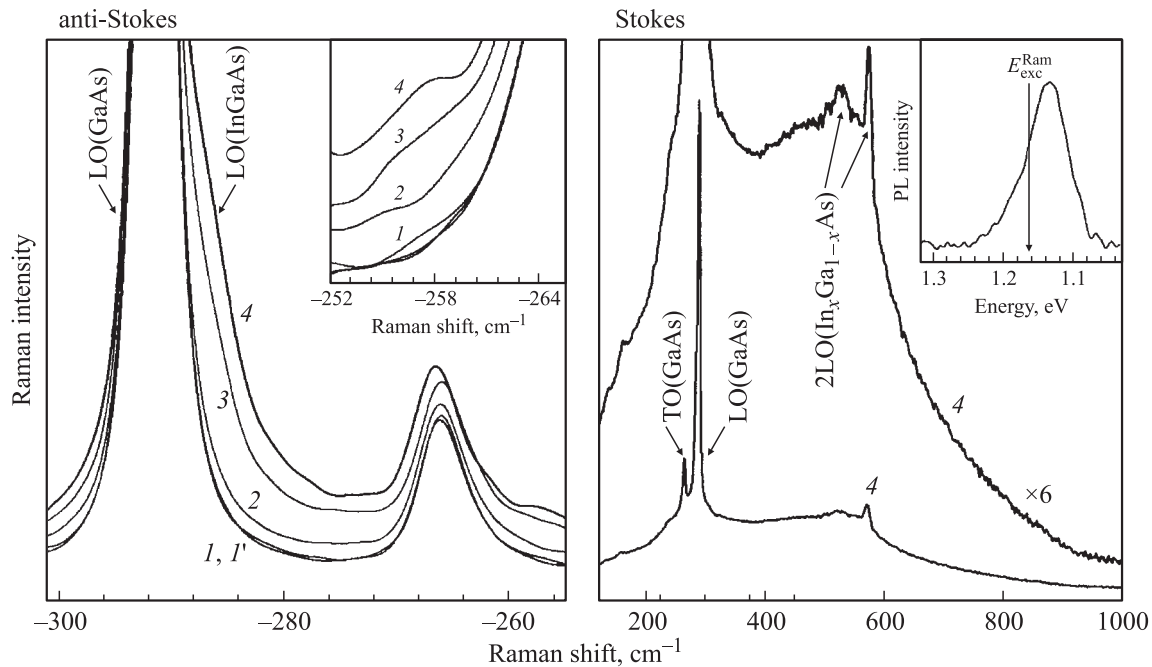


**Рис. 1.** АСМ-изображения непокрытых слоев  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  с квантовыми точками в структурах  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  с разной номинальной концентрацией  $\text{In}$   $x$ . На вставке — увеличенное изображение образца с  $x = 0.28$ ; квантовые точки типа А обозначены светлыми стрелками, типа В — темными.



**Рис. 2.** Спектры фотолуминесценции многослойной структуры  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  с разной концентрацией  $\text{In}$  в слоях  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  при  $T = 300$  и  $4.2 \text{ К}$ . Энергия кванта возбуждения — 2.54 эВ.

Морфологический переход 2D–3D в образце с  $x = 0.28$  обусловил резкое уширение полосы ФЛ. При комнатной температуре регистрируются две перекрывающиеся полосы излучения. При  $T < 100 \text{ К}$  проявляется



**Рис. 3.** Спектры комбинационного рассеяния света в антистоксовой и стоксовой областях для многослойных структур  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  с номинальной концентрацией In  $x$ : 1 — 0.2, 2 — 0.28, 3 — 0.30, 4 — 0.35. Кривые 2–4 смещены по вертикали. Кривая 1' соответствует структуре GaAs/GaAs (100). На вставке в стоксовой части показан спектр фотолуминесценции структуры с  $x = 0.35$  при энергии кванта возбуждения 2.54 эВ. Стрелкой показана энергия кванта возбуждения спектра КРС ( $E_{\text{exc}}^{\text{Ram}} = 1.165$  эВ).  $T = 300$  К.

только низкоэнергетическая компонента излучения. При  $T > 100$  К происходит перераспределение интенсивности в пользу высокоэнергетической полосы. Определенная из температурных исследований энергия активации гашения высокоэнергетической полосы ( $\sim 47$  мэВ) точно соответствует разнице энергий между максимумами этих полос. Мы предполагаем, что это перераспределение обусловлено термоактивированным переходом носителей из больших КТ, обогащенных индием, в малые плоские (рис. 1) с меньшим содержанием In. Последние можно рассматривать как „предвестники“ зарождения более высоких 3D островков. Возможному альтернативному объяснению обсуждаемого температурного перераспределения интенсивностей за счет „включения“ возбужденных состояний КТ противоречит отсутствие какого-либо перераспределения интенсивности рассматриваемых полос при значительном варьировании уровня возбуждения.

Отметим высокую эффективность захвата носителей квантовыми точками с последующим высвечиванием. Так, ФЛ достаточно толстых барьерных слоев GaAs была в сотни раз слабее. В то же время в образцах без островков ( $x = 0.20$  и  $0.25$ ) интенсивность излучения из КЯ  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  была всего в несколько раз больше интенсивности ФЛ барьерных слоев GaAs.

На рис. 3 представлены спектры КРС в стоксовой и антистоксовой областях для исследованных структур при  $T = 300$  К. Для сравнения кривой 1' показан спектр дополнительной структуры, в которой на под-

ложку GaAs (100) был осажден при тех же условиях эпитаксиальный слой GaAs, толщина которого равнялась суммарной толщине разделительных барьерных и верхнего защитного слоев GaAs в исследованных структурах  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ . Совпадение кривых 1 и 1' свидетельствует о том, что до образования КТ измеряемый спектр КРС полностью определяется рассеянием только на LO ( $291.7 \text{ см}^{-1}$ ) и TO ( $266.5 \text{ см}^{-1}$ ) фоновых возбуждениях защитного, разделяющих и буферного слоев GaAs. Слабое рассеяние на TO-фононах, запрещенное от плоскости (100), проявилось из-за незначительных нарушений кристаллической структуры в разделяющих слоях GaAs.

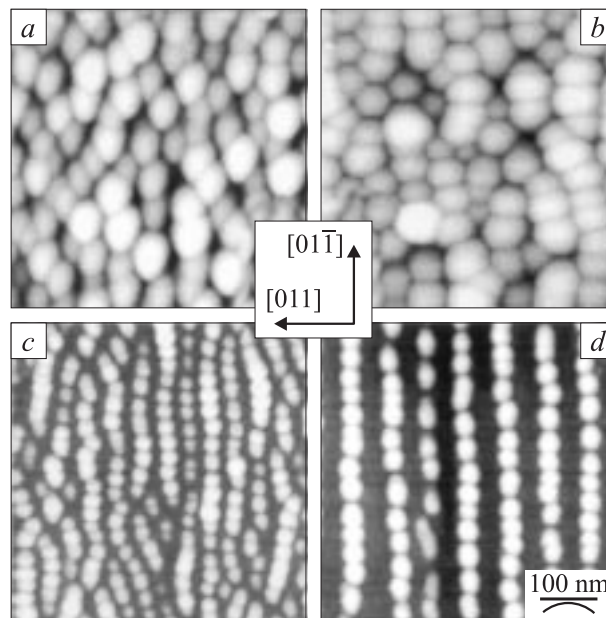
Для структур с  $x \geq 0.28$  образование наноструктур проявляется в дополнительном рассеянии в спектральных диапазонах  $280\text{--}288 \text{ см}^{-1}$  и  $255\text{--}260 \text{ см}^{-1}$ . Мы считаем, что оба эти сигнала связаны с вкладом рассеяния на LO-возбуждениях в  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ . Как известно, этот твердый раствор относится к материалам с так называемым двухмодовым типом перестройки фононов [10], где одновременно проявляются оптические фононы в областях частот, характерных для обоих бинарных компонент, образующих твердый раствор. В нашем случае речь идет о двух LO(GaAs)-подобных модах, связанных с наличием в  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  области двух субслоев, значительно различающихся по содержанию In. Этот факт согласуется с отмечавшимся выше проявлением вертикальной сегрегации In.

Более очевидное доказательство существования двух областей с разной концентрацией In следует из анализа двухфونнного 2LO-стоксового КРС для образца с  $x = 0.35$ . В этом случае реализовались практически точные условия выходного резонанса с электронным возбуждением КТ, обогащенных In (см. вставку на рис. 3 в стоксовой области). В резонансных условиях за счет фрелиховского взаимодействия должно усиливаться рассеяние на продольных оптических фононах. Как видно из рис. 3, в спектре 2-го порядка проявилось два пика рассеяния: достаточно узкий пик с частотой  $573 \text{ см}^{-1}$  ( $\Gamma = 9.6 \text{ см}^{-1}$ ) и заметно более широкий при  $528 \text{ см}^{-1}$  ( $\Gamma = 23 \text{ см}^{-1}$ ). Данные значения неплохо соответствуют удвоенным частотам LO-фононов, отмеченных выше в спектре КРС 1-го порядка.<sup>1</sup> Приближенная оценка на основании полученных значений частот LO(GaAs)-подобных фононов и концентрации In по известной зависимости частот фононов от состава для объемного  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  [12] дала „истинные“ значения  $x_{\text{tr}} = 0.15$  и  $0.65$  в слое InGaAs и внутри квантовых точек соответственно. Для более точного определения значений  $x_{\text{tr}}$  необходимо учесть эффекты пространственного ограничения и деформации.

Таким образом, можно заключить, что особенность формирования КТ  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  в напряженных гетероструктурах состоит в образовании на границе с подложкой GaAs двумерного слоя  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  с пониженной (по сравнению с номинальной) концентрацией In. Это обусловлено стремлением системы к термодинамической стабильности путем уменьшения рассогласования постоянных решетки подложки и эпитаксиального слоя. Реализуется это перераспределение компонентного состава InGaAs за счет самоиндуцированной вертикальной сегрегации атомов In и интердиффузии атомов Ga в интерфейсную область гетероструктуры. В результате оказывается, что выступающие из обедненного индием 2D слоя  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  3D островки характеризуются концентрацией индия, которая примерно вдвое превышает номинальную. Такой, в первом приближении, двухступенчатый характер распределения In в многослойной структуре  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  подтвердили и рентгенодифракционные исследования [13].

Как отмечалось выше, характерной особенностью полученных КТ  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  является эллиптическая форма их основания. Последнее, вероятно, обусловлено анизотропией поверхностной диффузии атомов In или Ga (предположительно, In), стимулированной анизотропией деформаций. Чтобы проверить эту гипотезу, нами выращена другая серия образцов с КТ  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x = 0.5$ ).

<sup>1</sup> В работе [11] сообщалось о наблюдении интерфейсных (IF) мод электростатической природы в спектрах резонансного КРС в самоорганизованных КТ InAs/GaAs. Появление IF-мод возможно лишь при наличии дискретной границы между разделяющими GaAs-слоями КТ  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ . Однако в нашем случае сегрегация атомов In в направлении роста структуры приводит к размытому характеру интерфейса относительно величины  $x$ , вследствие чего появление IF-мод электростатической природы маловероятно.



**Рис. 4.** АСМ-изображения непокрытых арсенидом галлия слоев  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  в структурах  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$  с квантовыми точками. Число слоев InGaAs:  $a - 2$ ,  $b - 7$ ,  $c - 9$ ,  $d - 17$ .

На рис. 4 представлены результаты АСМ-исследования структур  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$  (100) с непокрытыми арсенидом галлия слоями InGaAs. Как видно из рис. 4, при осаждении второго слоя  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  образуется массив латерально неупорядоченных КТ, имеющих эллиптическую форму основания. При увеличении количества периодов имеет место заметное улучшение однородности размеров КТ. Уже для 9-периодной структуры наблюдается латеральное выстраивание КТ вдоль направления  $[01\bar{1}]$  в виде цепочек. Для 17-периодной многослойной структуры длина таких цепочек КТ достигает 5 мкм.

## 4. Заключение

Таким образом, исследования морфологического перехода 2D–3D, стимулированного изменением концентрации индия в 8-периодных структурах  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  показали, что квантовые точки  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  с  $x_{\text{tr}} \gg x$  образуются на достаточно толстом обедненном индием слое  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  с  $x_{\text{tr}} < x$ . Этот факт свидетельствует, что процесс зарождения квантовых точек (наноостровков)  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  не сводится к классическому механизму Странского–Крастанова, а существенно модифицируется процессами вертикальной сегрегации атомов In и интердиффузией атомов Ga. Показано, что наблюдаемый эффект эллиптической формы основания КТ может быть значительно усилен при выращивании многослойных структур. В результате может быть реализован эффект латерального выстраивания КТ в цепочки в направлении  $[\bar{1}10]$  и улучшение однородности их размеров.

## Список литературы

- [1] Rosenaur, D. Gerthsen, D. Van Dyck, M. Arzberger, G. Böhm, G. Abstreiter. Phys. Rev. B, **64**, 245 334 (2001); I. Kegel, T.H. Metzger, A. Lorke, J. Peist, J. Stangl, G. Bauer, K. Nordlund, W.V. Schoenfeld, P.M. Petroff. Phys. Rev. B, **63**, 035 318 (2001); T. Walther, A.G. Gullis, D.J. Norris, M. Hopkinson. Phys. Rev. Lett., **86**, 2381 (2001); N. Liu, J. Ternsoff, O. Baklenov, A.L. Holmes, Jr., C.K. Shih. Phys. Rev. Lett., **84**, 334 (2000).
- [2] C. Teichert, L.J. Peticolas, J.C. Bean, J. Ternsoff, M.J. Lagally. Phys. Rev., B, **53**, 16 334 (1996).
- [3] G.S. Salamon, S. Komarov, J.S. Hariss, Y. Yamamoto. J. Cryst. Growth, **175/176**, 707 (1997).
- [4] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, N. Kabayashi. Phys. Rev. Lett., **75**, 2542 (1995).
- [5] S. Guha, A. Madhukar, K.C. Rajkumar. Appl. Phys. Lett., **57**, 2110 (1990).
- [6] G.S. Salamon, J.A. Trezza, A.F. Marshall, J.S. Harris, Jr. Phys. Rev. Lett., **76**, 952 (1996).
- [7] Z.M. Wang, K. Holmes, Yu.I. Mazur, G.I. Salamo. Appl. Phys. Lett., **84**, 1931 (2004).
- [8] H. Wen, Z.M. Wang, and G.I. Salamo. Appl. Phys. Lett., **84**, 1756 (2004).
- [9] H. Li, Q. Zhuang, Z. Wang, T. Daniels–Race. Appl. Phys. Lett., **77** (1), 188 (2000).
- [10] T.P. Persall, R. Carles, J.L. Portal. Appl. Phys. Lett., **62**, 436 (1993).
- [11] Yu.A. Pusep, G. Zanelatto, S.W. Da Silva, J.C. Galzerani, P.P. Gonzalez–Borrero, A.I. Toropov, P. Basmaji. Phys. Rev. B, **58**, R1770 (1998).
- [12] G. Landa, R. Carles, I.B. Runucci. Sol. St. Commun, **86**, 351 (1993).
- [13] В.В. Стрельчук, В.П. Кладько, М.Я. Валах, В.Ф. Мачулин, А.А. Корчевой, Е.Г. Гуле, А.Ф. Коломыс, Ю.И. Мазур, З.М. Ванг, М. Хиао, Дж. Саламо. Наносистемы, наноматериалы, нанотехнологии, **1** (1), 309 (2003).

Редактор Т.А. Полянская

## Resonant raman scattering and atomic-force microscopy of multilayers InGaAs/GaAs nanostructures with quantum dots

*M.Ya. Valakh, V.V. Strelchuk, O.F. Kolomys, Yu.I. Masur\*, Z.M. Wang\*, M. Xiao\*, G.J. Salamo\**

Lashkaryov Institute of Semiconductor Physics,  
National Academy of Sciences of Ukraine,  
03028 Kyiv, Ukraine

\* University of Arkansas,  
Department of Physics, Fayetteville, Arkansas,  
72701 USA

**Abstract** Using the method of atomic-force microscopy, photoluminescence and Raman scattering, we investigated the transition from the coherent 2D to nanoislands 3D growth mode in  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  multilayer heterostructures grown by molecular beam epitaxy. The nominal concentration of In in the  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  varied from 0.20 to 0.35, while the thicknesses of the layers were kept constant and equal to 14 and 70 monolayers for  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  and GaAs, respectively. The 2D–3D transition was realised for  $x \geq 0.27$ . It was shown that the process of the nanoislands (quantum dots) nucleation is not merely the classical Stranski–Krastanov growth mode, but is significantly modified by the vertical segregation of the In atoms and vacancy-assisted interdiffusion of the Ga atoms. As the result  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  may be modelling by 2D-layer with reduced In content ( $x < 0.20$ ) which changes to thin layer nanoislands by In ( $x > 0.60$ ). The lateral chain-type straightening of nanoislands may be realised for multilayer  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  structure with the rise of period number.