

PACS numbers: 61.10.Kw, 68.37.Ps, 68.49.Uv, 68.65.Ac, 68.65.Hb, 78.30.Fs, 78.55.Cr

Дослідження самоіндукованих квантових точок в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ багатошарових наноструктурах

В. В. Стрельчук, В. П. Кладько, М. Я. Валах, В. Ф. Мачулін,
А. А. Корчовий, Є. Г. Гуле, О. Ф. Коломис,
Yu. I. Masur*, Z. M. Wang*, M. Xiao*, and G. J. Salamo*

Інститут фізики напівпровідників ім. В. Є. Лашкарьова НАН України,
просп. Науки, 45,
03028 Київ-28, Україна

*University of Arkansas, Department of Physics,
Fayetteville, Arkansas AR 72701, U.S.A.

Методами атомно-силової мікроскопії (АСМ), фотолюмінесценції (ФЛ), комбінаційного розсіяння світла (КРС) і рентгенівської дифрактометрії високої роздільної здатності досліджено перехід від двовимірного псевдоморфного росту до тривимірного (наноострівцевого) в багатошарових $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ -структурах, одержаних молекулярно-променевою епітаксією. Номінальна концентрація In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ варіювалась від 0,20 до 0,35 при незмінній товщині всіх шарів структури, що становили 14 моношарів і 70 моношарів для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ і GaAs відповідно. В спектрах КРС зареєстровано дві LO фононні лінії, які відповідають 2D-шару $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ з пониженою концентрацією In ($x < 0,20$) і областям, збагаченим In. Використовуючи дані рентгенодифракційних досліджень для симетричних 400 і асиметричних 311 рефлексів, проаналізовано особливості зміни пружних деформацій і розподілу атомів In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарах. Показано, що процес зародження квантових точок (наноострівців) $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ не зводиться до класичного механізму Странського–Крастанова, а суттєво модифікується процесами вертикальної сегрегації атомів In та взаємної дифузії атомів Ga.

Методами атомно-силовой микроскопии (АСМ), фотолюминесценции (ФЛ), комбинационного рассеяния света (КРС) и рентгеновской дифрактометрии высокого разрешения исследован переход от двухмерного псевдоморфного роста к трехмерному (наноостровковому) в многослойных $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структурах, полученных молекулярно-лучевой эпитаксией. Номинальная концентрация In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ варьировалась от 0,20 до 0,35 при неизменной толщине всех слоев структуры, что составило 14 монослоев и 70 монослоев для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и GaAs соответствен-

но. В спектрах КРС зарегистрировано две LO фононные линии, которые отвечают 2D-слою $In_xGa_{1-x}As$ с пониженной концентрацией In ($x < 0,20$) и областям, обогащенным In. Используя данные рентгенодифракционных исследований для симметричных 400 и асимметричных 311 рефлексов, проанализированы особенности изменения упругих деформаций и распределения атомов In в $In_xGa_{1-x}As$ -слоях. Показано, что процесс зарождения квантовых точек (наностроек) $In_xGa_{1-x}As$ не сводится к классическому механизму Странского–Крастанова, а существенно модифицируется процессами вертикальной сегрегации атомов In и взаимодиффузии атомов Ga.

Using the methods of atomic-force microscopy, photoluminescence, Raman scattering, and high-resolution X-ray diffraction, the transition from the 2D (coherent) to 3D (nanoislands) growth mode in $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ multilayered heterostructures grown by molecular beam epitaxy is investigated. The nominal concentration of In within the $In_xGa_{1-x}As$ is varied from 0.20 to 0.35 while the thicknesses of the layers are kept constant and equal to 14 and 70 monolayers for $In_xGa_{1-x}As$ and GaAs, respectively. Two LO phonon peaks observed in the Raman spectra are related to the phonons in 2D- $In_xGa_{1-x}As$ layer with a reduced In content ($x < 20\%$) and to the In-rich nanoisland regions. Using the data of X-ray diffraction measurements for symmetrical and asymmetrical reflections, the peculiarities of the change of the elastic deformations and distribution of atoms within the $In_xGa_{1-x}As$ layers are analysed. As shown, 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.

Ключові слова: $In_xGa_{1-x}As$ квантові точки, атомно-силова мікроскопія, фотолумінесценція, комбінаційне розсіяння світла, дифрактометрія, сегрегація In.

(Отримано 13 листопада 2003 р.)

1. ВСТУП

Напівпровідникові масиви когерентно-напружених наностроеків з густиною 10^{10} – 10^{11} см⁻² (так звані квантові точки (КТ)), сформовані в матриці широкозонного матеріалу, викликають значний науковий і практичний інтерес. Атомно-подібний дискретний енергетичний спектр, δ -подібний характер густини станів і просторове обмеження хвильової функції електрона та дірки в таких КТ дають можливість створювати на їх основі мікро- та оптоелектронні пристрої з унікальною температурною стабільністю і покращеними динамічними характеристиками. На основі $In_xGa_{1-x}As$ КТ уже отримано нові прилади оптоелектроніки, такі, як лазери на КТ [1], оптична пам'ять [2], інфрачервоні фотодетектори [3]. Однак до теперішнього часу не досягнуті теоретично передбачені

значення параметрів цих приладів. Однією з причин цього є досить широкий розкид розмірів КТ ($> 10\%$) та їх залежність від технологічних умов отримання. Залишається багато невирішених питань, які стосуються фізичних механізмів самоорганізації і хімічного складу КТ.

Відомо, що в напружених гетероструктурах при малих швидкостях епітаксії і температурі, достатній для забезпечення інтенсивної поверхневої дифузії осаджуваних атомів, ріст епітаксійного шару може здійснюватись за механізмом Странського–Крастанова (С–К), при якому пружна релаксація напружень призводить до бездислокаційної морфологічної нестабільності плівки [4]. Справа в тому, що хвиляста (шорстка) поверхня напруженого шару (і тим більше острівцева) характеризується меншою сумарною енергією (поверхнева енергія плюс пружна енергія), ніж гладка поверхня. Це обумовлено релаксацією напружень біля вершин поверхневих виступів. Критична товщина осаджуваної речовини, при якій починається $2D$ – $3D$ -перехід, залежить від неузгодження ґраток шарів гетероструктури.

В останні роки найбільш інтенсивно досліджувались InAs КТ, отримані при епітаксійному осадженні InAs на GaAs , для яких постійні ґраток відрізняються на $\sim 7\%$. Тривимірні InAs КТ нанометрових розмірів утворюються після осадження двовимірного «змочуючого» шару InAs товщиною всього в 1–2 моношари (МШ). Недавні дослідження показали, що при описі фізичних механізмів $2D$ – $3D$ -переходу на основі принципу мінімізації сумарної енергії виникає низка ускладнень, зумовлених значною термічною нерівноваженістю процесу молекулярно-променевої епітаксії (МПЕ) та його залежністю від кінетики багатьох конкуруючих процесів. Для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ на GaAs ситуація ще більш ускладнюється, оскільки осаджуваний $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шар містить катіони двох різних типів. Відмічалось, що розміри, поверхнева густина, розподіл і форма КТ залежать від x [5]. Крім того, на процеси зародження КТ можуть впливати процеси сегрегації та інтердифузії [6]. При певних умовах росту спостерігається бімодальний або багатомодальний розподіл КТ [7, 8]. Дослідження просвічувальної електронної мікроскопії (ПЕМ) [9], скануючої тунельної мікроскопії (СТМ) [10] і рентгенівської дифракції [11] InAs КТ, вирощених на $\text{GaAs}(001)$ підкладках при температурах $T > 420^\circ\text{C}$, виявили значне масоперенесення матеріалу із змочуючого шару та підкладки GaAs в КТ. При цьому вміст атомів Ga в КТ може досягати 50–60%. Таке змішування компонентів інтерпретовано в рамках моделі, яка ґрунтується на тому, що під час вирощування бінарного InAs відбувається вертикальна сегрегація атомів In , що призводить до утворення вакансій в металевій підґратці. Вакансії можуть заповнюватися атомами Ga які мігрують вздовж поверхні, або атомами Ga ,

які з'являються внаслідок вакансійного механізму їх дифузії із буфера в шари з КТ. Аналогічна ситуація обговорювалася і для наноструктур на основі сполук A^2B^6 [12–14]. Недоліком цієї моделі є те, що в ній не враховується неоднорідність розподілу деформацій в структурі з КТ. Авторами роботи [15] методом СТМ отримано розподіл атомів In для великих $In_{0,5}Ga_{0,5}As$ КТ у вигляді інвертованих трикутних композиційних профілів. Останнє вказує на те, що кінцевий розподіл атомів In в $In_xGa_{1-x}As$ КТ визначається неоднорідністю розподілу приповерхневих деформаційних полів.

Таким чином, проблема отримання однорідних масивів КТ ще не може вважатись остаточно розв'язаною. Не з'ясованим до кінця є механізм формування $In_xGa_{1-x}As$ КТ та його залежність від умов їх вирощування і компонентного складу.

В даній роботі наведено результати комплексного дослідження процесів формування КТ у 8-періодній $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ структурі з різним вмістом x компонентів.

2. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Зразки $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ вирощувались на комерційній установці молекулярно-променевої епітаксії Riber-32. Температура зразка контролювалася методом високоточної ($\pm 2^\circ C$) оптичної термометрії. Як підкладку використовували пластини напівізолюючого GaAs. Після видалення з їх поверхні окисного шару вирощувався товстий (0,5 мкм) буферний шар GaAs. При цьому температура підкладки була $580^\circ C$, а швидкість росту 1 моношар за секунду (МШ/с). Надалі температура підкладки зменшувалась до $520^\circ C$ і відбувався ріст шарів $In_xGa_{1-x}As$ і GaAs. Вирощено 5 серій зразків, які містили 8 періодів $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ з номінальною концентрацією In 0,2; 0,25; 0,28; 0,30 і 0,35. Для всіх зразків товщина $In_xGa_{1-x}As$ і GaAs шарів дорівнювала 14 МШ і 70 МШ, відповідно. Зміна концентрації In в $In_xGa_{1-x}As$ -шарах забезпечувалася наступним чином: потік In підтримувався постійним, він відповідав швидкості росту 0,2 МШ/с; потік Ga регулювався зміною температури джерела Ga. Перехід від псевдоморфної 2D-моди росту до тривимірної 3D-моди росту контролювався *in situ* методом дифракції електронів високої енергії (RHEED). Структурні дослідження поверхні непокритих $In_xGa_{1-x}As$ КТ (без верхнього захисного шару GaAs) проводили методом атомно-силової мікроскопії (АСМ) в контактній моді.

Виміри кривих дифракційного відбиття (КДВ) у випадку симетричних 400 і асиметричних 311 рефлексів було виконано на двокристальному спектрометрі (кристал-монохроматор GaAs (100), $CuK_{\alpha 1}$ -випромінювання ($\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$), четвертий порядок відбиття). Зразки сканувалися поблизу точного положення Брегга в діа-

пазоні біля 3° , в так званому $\omega/2\theta$ -режимі з кроком $2''$. Аналіз експериментальних даних проводився на основі співставлення експериментальних і розрахованих КДВ шляхом фіттування з використанням так званого χ^2 -методу [16].

Збудження спектрів КРС здійснювалось Nd-YAG лазером ($\lambda = 1,0642$ мкм) неперервного випромінювання. Спектри КРС реєструвалися на фур'є-інтерферометрі WOMEM в геометрії зворотного розсіяння при кімнатній температурі.

Спектри ФЛ збуджувались лінією 488,0 нм випромінювання Ar^+ лазера. Сигнал реєструвався охолодженням Ge фотодіодом. В ФЛ- і КРС-експериментах збуджуюче лазерне випромінювання фокусувалося в точку діаметром 100–250 мкм.

3. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ РЕЗУЛЬТАТИ І ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

А. Атомно-силова мікроскопія і фотолюмінесценція

На рис. 1 наведено АСМ-зображення непокритого верхнього шару з $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ для 8-періодної $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ -структури. Для зразка $x = 0,28$, як показали *in situ* електронно-дифракційні виміри, $2D$ – $3D$ -перехід має місце при осадженні 14-го $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -моношару. В АСМ-зображеннях цього зразка ми бачимо утворення розрідженого масиву $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ двох типів: $3D$ -острівці більших висот (області типу А) і $2D$ -острівці з малим співвідношенням висоти до латерального розміру (області типу В). Для зразків з $x = 0,30$ і $x = 0,35$ критична товщина $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шару, при якій відбувається $2D$ – $3D$ -перехід становить 10,7 МШ і 7,4 МШ, відповідно. Квантові точки $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ в основі мають еліптичну форму. Головна і побічна осі еліпсів орієнтовані вздовж напрямків $[\bar{1}10]$ і $[110]$ відповідно. Цікаво відзначити, що при збільшенні x від 0,30 до 0,35 має місце зменшення середніх величин головної і побічної осей від 42 до 35 нм і від 22 до 15 нм відповідно. При цьому значно збільшується поверхнева густина КТ (рис. 1). Заповнення ними поверхні перевищує 95% і точки перебувають в безпосередньому контакті одна з одною. При цьому розміри КТ і відстань між ними є більш однорідними для зразка з $x = 0,35$ в порівнянні зі зразком з $x = 0,30$.

Ми не спостерігали явища коалесценції точок або утворення великих острівців з краєвими дислокаціями, що часто має місце у випадку InAs КТ. Така незвичайна ситуація може бути зумовлена неоднорідним розподілом атомів In і Ga в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарі внаслідок процесів вертикальної сегрегації атомів In у верхні області $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ. Цей процес понижує бар'єр зародження КТ і може запобігати їх коалесценції. Подібні результати для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ було отримано в роботі [17].

На рис. 2 наведено спектри ФЛ зразків з різною номінальною концентрацією In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шарі, отримані при низькому рівні збудження. Для зразків з $x = 0,20$ і $x = 0,25$ реалізується псевдоморфна $2D$ -мода росту і в спектрі ФЛ присутня одна інтенсивна смуга ФЛ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ квантової ями (КЯ). Незначна напівширина цих смуг ФЛ свідчить про досить високу їх структурну досконалість. Наявність незначної високоенергетичної асиметрії смуги ФЛ при $T = 300$ К та її відсутність при $T = 4,2$ К (не показано), ми

Рис. 1. АСМ-зображення непокритих $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарів з квантовими точками для структур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ з різною номінальною концентрацією In . Для зразка з $x = 0,28$ в збільшеному вигляді показано область, яка містить великі $3D$ -острівці. Область A (див. текст) позначено світлими стрілками ↗, область B (див. текст) — темними ↘.

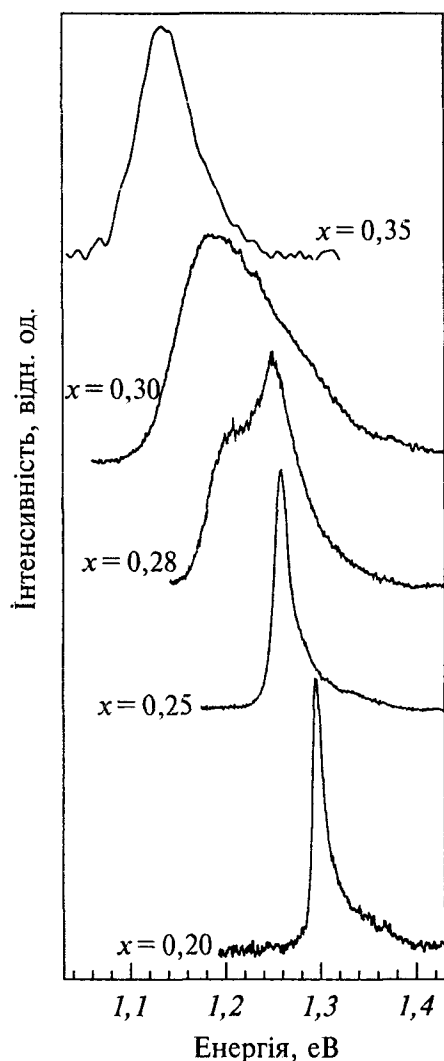


Рис. 2. Нормовані спектри ФЛ багатошарової $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структури з різною концентрацією In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарах. $E_{\text{зудж}} = 2,54$ еВ; $T = 300$ К.

пов'язуємо з термічно-активованими процесами захоплення носіїв областями, які містять меншу концентрацію In або з моношаровими флуктуаціями товщини КЯ. При збільшенні концентрації In в КЯ від $x = 0,20$ до $x = 0,25$ інтегральна інтенсивність смуги ФЛ залишається практично незмінною. При цьому низькоенергетичне зміщення спектрального положення максимуму смуги ФЛ від $\approx 1,295$ еВ до $\approx 1,259$ еВ, при незмінній товщині КЯ, відповідає збільшенню концентрації In в КЯ, а збільшення її напівширини

від ≈ 9 меВ до ≈ 18 меВ зумовлено більшими композиційними або товщинними флуктуаціями КЯ. Отримані для $x = 0,20$ значення енергетичного положення максимуму смуги ФЛ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КЯ, яке визначається компонентним складом, величиною деформації та ефектом просторового обмеження (розмірного квантування), узгоджується з результатами роботи [18].

Для зразків з $x > 0,25$ спостерігається різка зміна спектрального характеру випромінювання. Вже при $x = 0,28$ має місце драматичне збільшення енергетичної ширини спектрального випромінювання, що може свідчити про початок переходу від $2D$ -структури (КЯ) з слабою локалізацією носіїв до сильно локалізованої наноострівцевої структури. Слід відзначити, що для цього зразка в температурному діапазоні 4,2–100 К реєструється одна симетрична смуга ФЛ, яка відповідає низькоенергетичній компоненті спектру ФЛ при $T = 300$ К (рис. 2). Високоенергетичний пік, який домінує в спектрі ФЛ при $T = 300$ К (рис. 2), з'являється лише при $T > 100$ К. В температурному діапазоні 100–300 К відбувається перерозподіл інтенсивності між смугами на користь високоенергетичної смуги. Цікаво відзначити, що енергія активації температурного гасіння низькоенергетичної смуги ФЛ (≈ 47 меВ) практично дорівнює відстані між енергіями максимумів випромінювання цих двох смуг (≈ 49 меВ, $T = 300$ К). Це дало можливість зробити припущення, що зростання інтенсивності високоенергетичної смуги ФЛ при $T > 100$ К зумовлене термічноактивованим переходом носіїв із більших КТ (низькоенергетична компонента смуги ФЛ) в області з меншою концентрацією In. Про наявність для зразка $x = 0,28$ таких двох областей відмічалось вище при аналізі його АСМ-зображення (рис. 1). Слід відзначити, що прояв високоенергетичної смуги ФЛ може бути зумовлений також випромінюванням з участю першого збудженого стану $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ. Але цьому протирічить той факт, що при $T > 100$ К збільшення потужності збуджуючого випромінювання в 30 разів не призводить до зміни співвідношення інтенсивностей між цими смугами. Таким чином, аналіз даних ФЛ і АСМ зразка з $x = 0,28$ дає змогу констатувати, що на початковому етапі $2D$ – $3D$ -переходу формуються квантові структури двох типів: $3D$ -острівці, збагачені індієм, відповідальні за низькоенергетичну смугу випромінювання, та $2D$ -подібні острівці з меншою концентрацією In, що характеризуються малою висотою і порівняно великими латеральними розмірами (можливо у формі $2D$ -пластинок [19]). Останні відповідальні за високоенергетичну смугу ФЛ і їх можна розглядати як прекурсори для зародження великих $3D$ -острівців.

Для зразків з $x = 0,30$ і $x = 0,35$ має місце зменшення інтенсивності смуги ФЛ порівняно зі зразком $x = 0,28$ (зумовлене, очевидно, появою безвипромінювальних каналів рекомбінації), зсув її

максимуму в низькоенергетичний бік і прояв високоенергетичної асиметрії. Така зміна форми смуги випромінювання може бути зумовлена розкидом розмірів, флуктуацією компонентного складу і неоднорідністю розподілу деформацій в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ.

Цікаво відзначити, що в спектрах ФЛ зразків, при збудженні з енергією кванта більшою ширини забороненої зони GaAs випромінювання від 2D $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ «змочуючого» шару не проявляється, а інтенсивність випромінювання бар'єрних (розмежовуючих) шарів GaAs менша в ≈ 300 разів в порівнянні з інтенсивністю смуги випромінювання КТ. Останнє свідчить про високу ефективність захоплення фотозбуджених носіїв $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ. Для зразків без острівців ($x=0,20$ і $x=0,25$) інтенсивність випромінювання бар'єрних шарів GaAs була меншою лише в ≈ 3 рази від інтенсивності смуги ФЛ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КЯ.

Б. Комбінаційне розсіяння світла

На рис. 3 наведено антистоксові спектри КРС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) структур з різною концентрацією In (криві 1–4). Крива 1'

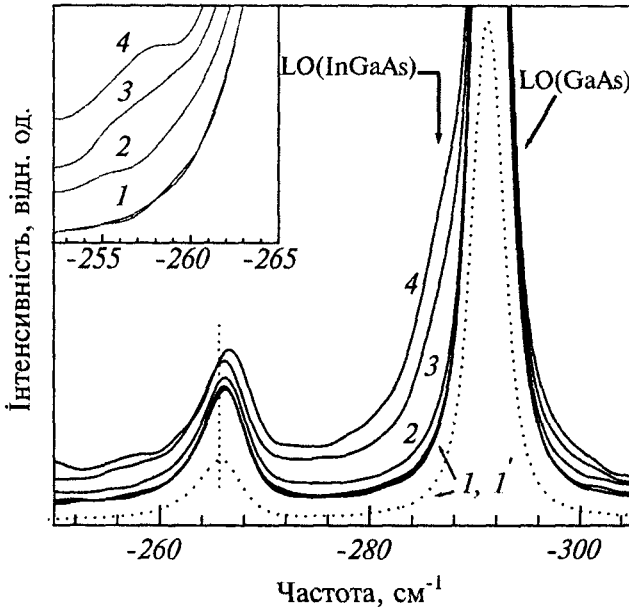


Рис. 3. Спектри КРС в антистоксовій області багатошарових $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ -структур з номінальною концентрацією In: 1 — $x=0,2$; 2 — $x=0,28$; 3 — $x=0,30$; 4 — $x=0,35$. Крива 1' відповідає структурі GaAs/GaAs(100); $E_{\text{збудж}} = 1,165$ eV, $T = 300$ K.

(практично співпадає з кривою I) відповідає спектру КРС GaAs/GaAs (100)-структури, вирощеної при тих же технологічних режимах, що і $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$. Товщина GaAs-епішару дорівнювала сумарній товщині розмежовуючих і захисного GaAs-шарів в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ -структурі.

Для GaAs-шару реалізуються нерезонансні умови збудження спектрів КРС, оскільки енергія кванта збудження ($E_{\text{збудж}} = 1,165$ еВ) значно менша за ширину забороненої зони GaAs (1,429 еВ при $T = 300$ К). Тому в спектрі КРС першого порядку зразка з GaAs-епішаром присутня інтенсивна лінія при $291,7 \text{ см}^{-1}$, яка відповідає розсіянню на повздовжніх оптичних (LO) фононах GaAs і слабка лінія при $266,5 \text{ см}^{-1}$, зумовлена розсіянням на поперечних оптичних (TO) фононах GaAs (рис. 3, крива 1'). Наявність в спектрах КРС TO(GaAs)-моди зумовлене незначним відхиленням напрямку поширення світла всередині зразка від кристалографічного напрямку [001]. Для зразків з $x = 0,20$ частотне положення LO(GaAs)- і TO(GaAs)-мод та їх форма співпадають зі спектром КРС GaAs-епішару. Останнє зумовлене тим, що сумарна товщина GaAs-шарів значно перевищує товщину $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарів. Інша ситуація має місце для зразків з $x \leq 0,28$. Із збільшенням концентрації In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шарах від 0,28 до 0,35 (криві 2–4) спостерігається збільшення асиметрії лінії LO(GaAs) з низькочастотного боку. Це зумовлене зростанням вкладу розсіяння на LO($\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$)-фононах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарів за рахунок збільшення концентрації In і часткової релаксації напружень в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарах (ці ефекти призводять до зменшення частоти LO фонона). Цікаво відзначити, що одночасно в спектрі КРС з'являється і додаткове розсіяння в області частот $255\text{--}260 \text{ см}^{-1}$ (див. вставку на рис. 3), що може відповідати LO($\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$)-фононам від збагачених In областей. Ці факти свідчать про утворення в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарах двох домінуючих областей з різними концентраціями In: областей з малою концентрацією In, якій відповідає більш високочастотна LO мода, і областей збагачених In — низькочастотна LO($\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$)-мода. Додатковим підтвердженням останнього є невелике високочастотне зміщення смуги в області TO(GaAs)-моди. Більш показово ефект двох областей, відмінних за концентрацією індія, проявився в спектрах резонансного двофононного КРС. Найбільш точно резонансні умови виконувались в стоксівському спектрі для зразка з $x = 0,35$ (рис. 4). В цьому випадку збудження спектрів КРС здійснювалося з високоенергетичного боку смуги випромінювання $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ ($E_{\text{збудж}} - E_{\text{макс}} = 30$ меВ) (див. вставку на рис. 4). При резонансних умовах збудження розсіяння на TO-фононах, зумовлене деформаційним потенціалом, є значно слабшим від розсіяння на LO-фононах [20] за фрьоліховським механізмом. В нашому випадку енергія кванта збудження по падаючому або

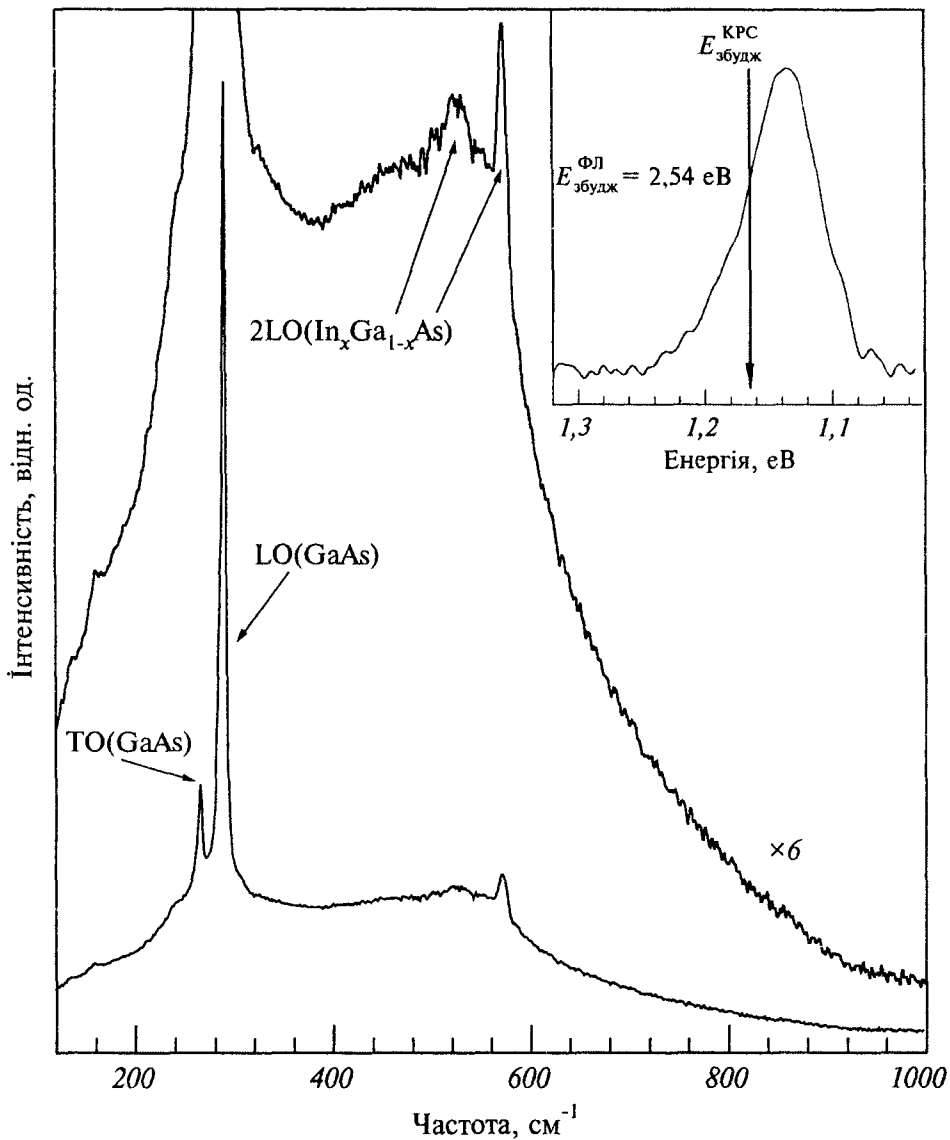


Рис. 4. Спектр резонансного КРС первого и второго порядков многослойной $\text{In}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}/\text{GaAs}$ -структуры. На вставке показано спектр ФЛ этой структуры при $E_{\text{ФЛ}}^{\text{збудж}} = 2.54 \text{ eV}$. Стрелкой показано энергию возбуждения спектру КРС ($E_{\text{KPC}}^{\text{збудж}} = 1.165 \text{ eV}$). $T = 300 \text{ K}$.

розсіяному світлі близька до енергії екситонних переходів $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шарів (тобто реалізуються умови вхідного або вихідного резонансу), внаслідок чого інтенсивність розсіяння на LO - і 2LO -фононах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарів може збільшуватися, що і спостеріга-

ється експериментально. Інтенсивну вузьку двофононну лінію при 573 см^{-1} (71,07 меВ) ми приписуємо розсіянню на $2LO$ -фононах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шару з пониженою концентрацією In, а низькочастотну і уширену лінію при $\approx 528 \text{ см}^{-1}$ (65,46 меВ) — розсіянню в областях, збагачених In. Тобто, низькочастотна лінія відповідає розсіянню в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ, а високочастотна — в $2D\text{-In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарах. Із їх частотного положення можна визначити вміст In в КТ- і $2D$ -шарах. Тверді розчини $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ мають двомодовий характер перебудови фононних спектрів [21, 22]; це передбачає наявність в спектрах фононних ліній в області частот, характерних для «чистих» змішуваних кристалів. Їх частотне положення і співвідношення інтенсивностей визначаються компонентним складом твердого розчину. Частота $LO(\text{GaAs})$ -подібної моди для об'ємного твердого розчину $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ змінюється в залежності від компонентного складу згідно зі співвідношенням $\omega(x) = 292,3 - 34,28x - 16,92x^2$ з точністю $\pm 0,15 \text{ см}^{-1}$ [23]. Використовуючи це співвідношення і отримані експериментальні значення LO -частот, ми оцінили концентрацію In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарах. Для зразка з $x = 0,35$ одержали значення 0,15 і 0,65 що, як буде показано нижче, непогано узгоджується зі значеннями отриманими, із рентгенівських експериментів.

В. Рентгенодифракційні дослідження

Експериментальні спектри рентгенівської дифракції моделювались як для багатошарової системи з квантовими шарами. Кожен із квантових шарів представлявся у вигляді системи однорідних субшарів (ламелів) [24]. Розрахунки кривих дифракційного відбиття (КДВ) проводились за формулами динамічної теорії розсіяння рентгенівських променів. Теоретичні розрахунки амплітуди відбиття від N шарів $R_{h,N}$ здійснювались на основі рекурентних співвідношень, що пов'язують амплітуди відбиття $R_{h,1}$ і проходження $R_{0,1}$ від верхнього шару з відповідними амплітудами $(N - 1)$ наступних шарів [25]:

$$R_{h,N} = [R_{h,1} + R_{h,N-1}(R_{0,1}R_{0,1} - R_{h,1}R_{h,1})](1 - R_{h,N-1}R_{h,1})^{-1}, \quad (1)$$

де кожен із шарів характеризується товщиною t_j , параметром кристалічної ґратки a_j і статичним фактором Дебая–Валлера (ступенем аморфізації) E_j , пов'язаним зі зміщенням атомів із постійної позиції.

Зіставлення кількісних теоретичних розрахунків з експериментом проводилось на основі моделі дефекту кулонівського типу. В цьому випадку вираз для статистичного фактора Дебая–Валлера, згідно з роботою [26], визначається за формулою

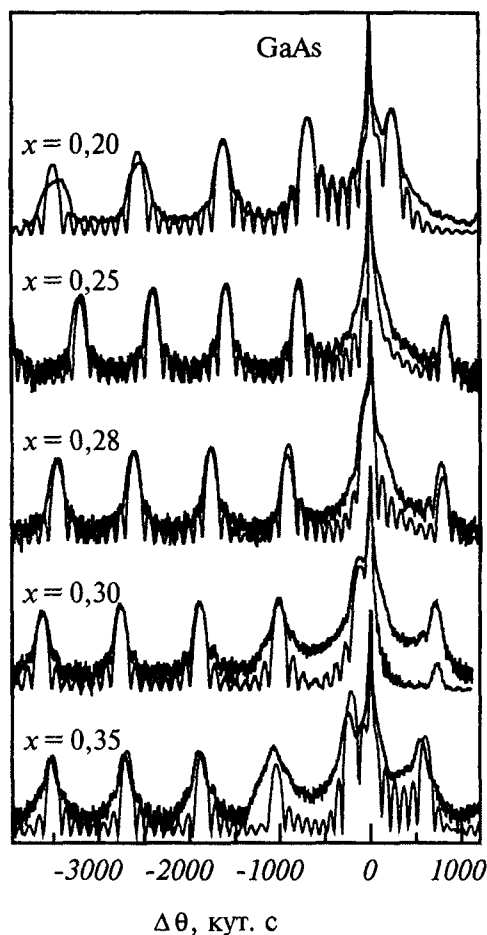


Рис. 5. Криві дифракційного відбиття для симетричного 400 рефлексу $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структур з різною номінальною концентрацією In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шарі. Жирні лінії — експеримент, тонкі — розрахунок.

$$E_{1,2} = \exp(-4\pi r_{1,2}^3 c_{1,2} / 3), \quad (2)$$

де $r_{1,2}$ і $c_{1,2}$ — радіус і концентрація точкових дефектів в шарах періоду ґратки.

На рис. 5 наведено експериментальні КДВ 400 п'яти $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ багатшарових структур для симетричного відбиття (суцільна лінія). КДВ відповідають латерально усередненим параметрам багатшарової структури. Моделювання кожної експериментальної КДВ проводилось на основі динамічної теорії дифракції рентгенівських променів, в якій передбачалось, що багатшарова структура складається лише з $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КЯ або 2D

змочуючих шарів і не враховувалась наявність $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -острівців. В спектрах, крім піка підкладки і головного максимуму, викликаного середньою ґраткою структури (нульового сателіту), на хвостах КДВ спостерігається складна інтерференційна структура, яка відповідає взаємодії хвиль з однаковими періодами коливань, так звана сателітна структура [27]. Наявність такої інтерференційної структури для всіх досліджуваних зразків свідчить про їх високу структурну досконалість. Осциляції з малим періодом відповідають за товщину всієї структури і за наявність на поверхні структури захисного шару з товщиною $t = (\lambda \sin \theta_0) / \Delta \theta \sin 2\theta$. Більш довгохвильові осциляції мають яскраво виражений максимум, що свідчить про формування в приповерхневій області зразків монокристалічних шарів періодичної структури, що відрізняються від підкладки на величину середнього параметра ґратки $\Delta a = -a_0 \cot \theta \Delta \theta$, де a_0 — постійна ґратки GaAs підкладки, $\Delta \theta$ — кутова відстань між піком підкладки і сателітом нульового порядку, θ — бреггівський кут.

Із аналізу КДВ, отриманих в симетричній геометрії 400, для

ТАБЛИЦЯ 1. Параметри багатошарових $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структур, отримані в результаті моделювання КДВ для симетричної геометрії 400*.

Номинальна концентрація In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$, x	Дані, отримані в результаті моделювання КДВ								
	Концентрація In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шарі, x	Товщина $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шару, нм	Товщина GaAs шару, нм	Період $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структури, нм	Деформація в напрямку росту структури		$\Delta a/a$ в релаксованому періоді багатошарової структури	$\langle \varepsilon_0 \rangle$	$\langle \varepsilon_{90} \rangle$
					ε_1 , InGaAs	ε_2 , GaAs			
0,20	0,2	4,5	15,9	20,40	0,023	0,000185	0,0032	0,00529	0,00501
0,25	0,25	5,5	17,91	23,41	0,025	0,000185	0,00419	0,00599	0,00586
0,28	0,62	0,6	17,31	22,31	—	0,000851	0,0045	0,00705	0,00696
	0,22	4,4			0,0285				
0,30	0,52	0,85	16,94	21,69	0,03	0,00185	0,00444	0,00779	0,00754
	0,2	3,9			0,029				
0,35	1	0,7	17,88	22,98	0,045	0,00075	0,00453	0,00834	0,00799
	0,17	4,4			0,0322				

*Похибка при визначенні величини деформації $\varepsilon_{\perp}$ складає $\pm 0,00003$. Дані по концентрації індію отримано з аналізу всіх рефлексів.

структур з $x = 0,20$ і $x = 0,25$ впливає, що в даному випадку реалізується «чиста» $2D$ псевдоморфна мода росту. На основі результатів моделювання КДВ ми оцінили вміст індію в $2D\text{-In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шарах та їх товщину (табл. 1).

З використанням співвідношень (1) і (2) було проведено розрахунки спектрів КДВ структур в залежності від їх структурної досконалості і геометричних параметрів. Як початкові умови для підгонки теоретичних спектрів до експериментальних використовувалися технологічні параметри структур. Кінцевої підгонки добивалися шляхом введення в розрахунки додаткових шарів із різним вмістом індію. В результаті такої процедури отримано товщини шарів в періоді багат шарової структури, розподіл індію в межах квантової ями, а також зміну параметра ґратки в напрямку росту структури. Отримані результати наведено в табл. 1 і 2. Передостання колонка табл. 1 відповідає усередненому значенню параметра деформації по періоду багат шарової структури вздовж напрямку росту, який розраховується за формулою

$$\langle \varepsilon_0 \rangle = \frac{\varepsilon_1 t_1 + \varepsilon_2 t_2}{t_1 + t_2}. \quad (3)$$

В останній колонці цієї таблиці наведено середні значення деформацій $\langle \varepsilon_{50} \rangle$ в періоді багат шарової структури, отримані з кутового положення нульового сателіта. Отримана в результаті моделювання експериментальних КДВ структура $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шару є такою, що верхній і нижній її шари мають менший вміст індію, ніж більш глибокі (по відношенню до інтерфейсу) частини шару. Профілі розподілу атомів In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шарі, отримані в резуль-

ТАБЛИЦЯ 2. Значення деформації, паралельної гетеромежі ($\varepsilon_{||}$), в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структурах, отримані в асиметричній 311 геометрії дифракції рентгенівських променів*.

Номинальна концентрація In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$, x	Деформація в шарі $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$	Деформація в розмежовуючому шарі GaAs	Деформація в захисному шарі GaAs	Положення нульового сателіта, кут. с
0,20	0,00047	0,000185	0,00035	-806
0,25	0,000262	0,000185	0,00023	-952
0,28	0,000908	0,000851	0,00031	-1092
0,30	0,00067	0,00018	0,0050	-1206
0,35	0,00059	0,00013	0,00082	-1285

*Похибка при визначенні величини деформації $\varepsilon_{||}$ складає $\pm 0,00002$.

таті такого моделювання для всіх рефлексів, для кожного із досліджуваних зразків подано на рис. 6. Як бачимо, для зразків з $x = 0,30$ і $x = 0,35$ ці профілі асиметричні і максимальна концентрація індію зміщена в напрямку росту шару.

На рис. 7 наведено КДВ (розраховані та експериментальні) $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ для рефлексу 311 в геометрії ковзаючого падаючого променя. Їх аналіз також свідчить про можливі релаксаційні і дифузійні (індій) процеси у зразках $x = 0,28$; $0,30$; $0,35$. Параметри досліджуваних структур, отримані в процесі підгонки для рефлексів 311, наведені в табл. 2. Уширення піків сателітів для 400 і 311

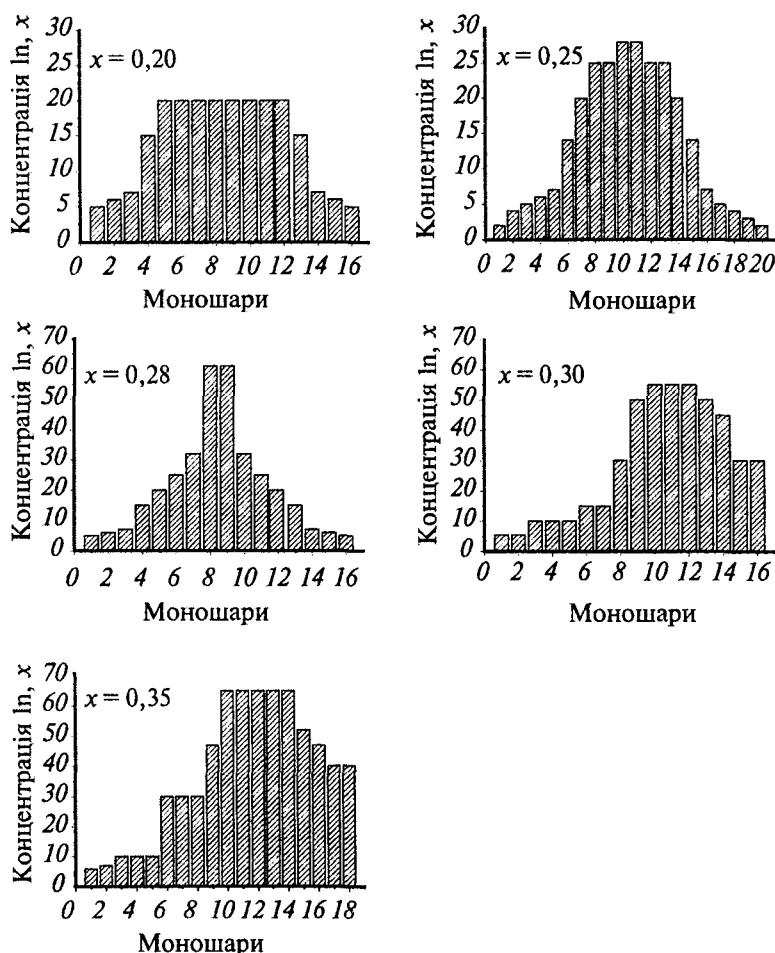


Рис. 6. Концентраційний розподіл атомів In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ -структурах з різною концентрацією In, отриманий в результаті моделювання рентгенівських дифракційних спектрів для симетричних 400 і асиметричних 311 рефлексів.

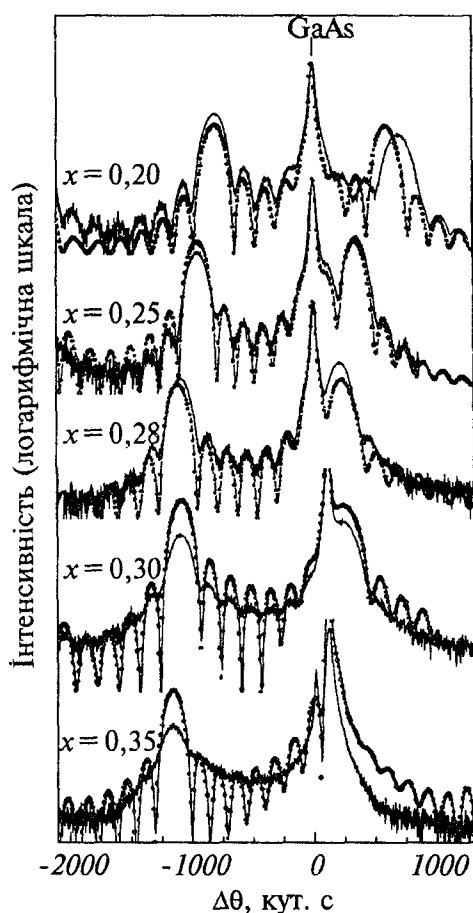


Рис. 7. Криві дифракційного відбиття для асиметричного 311 рефлексу $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структур з різною номінальною концентрацією In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шарі. Суцільні лінії — експеримент, точки — теорія.

рефлексів може бути викликане перерозподілом індію всередині шару.

Отримані значення деформації паралельної гетеромежі для зразків $x = 0,28$; $0,30$; $0,35$ свідчать про значну релаксацію деформації, тобто про часткове порушення $2D$ псевдоморфної моди росту. Це підтверджує, що в даному випадку має місце тривимірний ріст острівцевих структур.

Зауважимо, що особливістю модуляції таких структур є те, що період структури підтримується ґраткою $2D$ інтерфейсних шарів, в той час як висота острівців може змінюватися. Крім того, на профілі симетричного відбиття не буде впливати можливе невпорядковане розташування острівців [28].

В ідеальній ґратці з вертикальною кореляцією розташування острівців можуть проявлятися одночасно модульовані дифракційні піки від острівців і від усередненої ґратки шарів [29]. Флуктуації висоти острівців не гасять модуляцію, оскільки ідеальний надперіод підтримується ґраткою $2D$ -шарів.

Моделювання спектрів для рефлексів 004 і 311 свідчить про те, що при $x \leq 0,28$ основний об'єм $2D$ -шару відрізняється по компонентному складу x від номінального в бік зменшення (близько 0,20), при наявності тонкого шару з більшим вмістом In ($\sim 0,6$), у вигляді острівцевих структур. Зазначимо також, що з утворенням тривимірних острівцевих структур пов'язано і уширення піків сателітів менших порядків (зумовлене перерозподілом In всередині $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -шару), а також зміщення їх огинаючої в бік менших кутів.

ВИСНОВКИ

Таким чином, проведені АСМ, ФЛ, КРС та рентгенодифракційні дослідження багатошарових $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структур дає можливість виявити ряд важливих особливостей процесу формування $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ. Спільним для всіх досліджуваних структур є утворення на межі поділу гетероструктури двовимірного шару з пониженою концентрацією In ($x < 0,2$) в порівнянні з середньою частиною $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шару. Це зумовлено прагненням системи до термодинамічної стабільності між напруженим $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шаром і розмежовуючим GaAs шаром за рахунок зменшення невідповідності їх постійних ґраток. Цей процес реалізується шляхом: 1) збагачення атомами Ga перехідного шару в інтерфейсній області гетероструктури (інтердифузії атомів Ga); 2) вертикальної сегрегації атомів In.

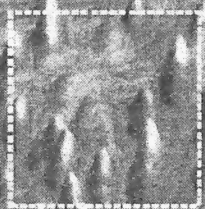
При збільшенні номінальної концентрації In в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ шарі на його поверхні починають формуватися $2D$ -острівці з малим співвідношенням висоти до латерального розміру та більшою концентрацією In, ніж номінальна для всього шару. При певній концентрації In стає енергетично більш вигідним зародження $3D$ -острівців, ніж $2D$ -острівців. Отримані експериментальні дані вказують на істотну роль процесів вертикальної сегрегації атомів In та інтердифузії атомів Ga при зародженні $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КТ.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

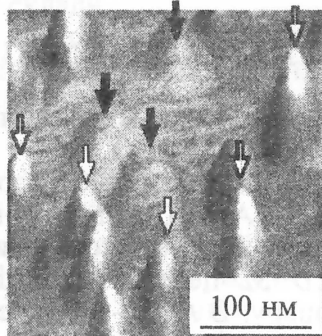
1. Н. Н. Леденцов, В. М. Устинов, В. А. Шукин и др., *Физика и техника полупроводников*, **32**, № 4: 385 (1998).
2. F. Heinrichsdorff, Ch. Ribbat, M. Grundmann, and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.*, **76**, No. 5: 556 (2000).

3. T. Lundstrom, W. Shoenfeld, H. Lee, and P. M. Petroff, *Science*, **286**: 312 (1999).
4. L. Chu, A. Zrenner, G. Böhm, and G. Abstreiter, *Appl. Phys. Lett.*, **76**: 1944 (2000).
5. V. A. Shchukin and D. Bimberg, *Rev. Mod. Phys.*, **71**, No. 4: 1125 (1999).
6. H. Li, Q. Zhuang, Z. Wang, and T. Daniels-Race, *Appl. Phys. Lett.*, **87**, No. 1: 188 (2000).
7. J. Y. Yao, T. G. Anderson, and G. L. Dunlop, *Semicond. Sci. Technol.*, **9**: 1086 (1994).
8. S. Anders, C. S. Kim, B. Klein et al., *Phys. Rev. B*, **66**: 125309 (2002).
9. G. G. Tarasov, Yu. I. Masur, Z. A. Zhuchenko et al., *J. Appl. Phys.*, **88**, No. 12: 7162 (2000).
10. A. Rosenauer, D. Gerthsen, D. Van Dyck et al., *Phys. Rev. B*, **64**: 245534 (2001).
11. P. B. Jouce, T. J. Krzyzewski, C. G. Bell et al., *Phys. Rev. B*, **58**, No. 12: R15 981 (1998).
12. I. Kegel, T. H. Metzger, A. Lorke et al., *Phys. Rev. B*, **63**: 035318 (2001).
13. N. Peranio, A. Rosenauer, D. Gerthsen et al., *Phys. Rev. B*, **61**: 16015 (2000).
14. M. Ya. Valakh, V. V. Strelchuk, A. A. Toropov et al., *Semicond. Sci. Technol.*, **17**: 173 (2002).
15. М. Я. Валах, Н. В. Вуйчик, В. В. Стрельчук и др., *ФТП*, **37**, вып. 6: 724 (2003).
16. N. Liu, J. Ternsoff, O. Baklenov et al., *Phys. Rev. Lett.*, **84**, No. 2: 334 (2000).
17. V. Holy, A. A. Darhuber, J. Stangl et al., *Phys. Rev. B*, **58**, No. 12: 7934 (1998).
18. H. Li, Q. Zhuang, Z. Wang, and T. Daniels-Race, *Appl. Phys. Lett.*, **87**, No. 1: 188 (2000).
19. Yung-Hui Yeh and Joseph Ya-min Lee, *J. Appl. Phys.*, **81**, No. 10: 6921 (1997).
20. C. Priester and M. Lannoo, *Phys. Rev. Lett.*, **75**: 93 (1995).
21. C. S. Kim, M. Kim, J. K. Furdyna et al., *Phys. Rev. Lett.*, **85**: 1124 (2000).
22. *Light Scattering in Solids II. Topics and Applied Physics*, vol. **50** (Eds. M. Cardona and G. Guntherdot) (New York: Springer Verlag: 1982).
23. T. P. Persall, R. Carles, and J. L. Portal, *Appl. Phys. Lett.*, **42**: 436 (1993).
24. G. Landa, R. Carles, and J. B. Renicci, *Solid State Commun.*, **86**: 351 (1993).
25. M. J. L. S. Heines, B. C. Cavenett, and S. T. Davey, *Appl. Phys. Lett.*, **55**: 849 (1989).
26. M. A. G. Halliwell, J. Juler, and A. G. Norman, *Inst. Phys. Conf. Ser.*, **67**: 365 (1983).
27. V. Holy, U. Pietch, and T. Baumbach, *High-Resolution X-Ray Scattering from Thin Films and Multilayers* (Berlin: Springer: 1998), p. 254.
28. В. И. Пунегов, *ФТП*, **37**, № 4: 1134 (1995).
29. I. K. Shuller, *Phys. Rev. Lett.*, **44**, No. 24: 1597 (1980).
30. Yu. N. Drozdov, S. A. Gusev, E. N. Sadova et al., *Surface. X-Rays, Synchrotron, and Neutron Investigations*, **67**: No. 2 (2003).
31. Л. И. Даценко, В. П. Кладько, В. Ф. Мачулин, В. Б. Молодкин, *Динамическое рассеяние рентгеновских лучей реальными кристаллами в области аномальной дисперсии* (Dynamical Scattering of X-Rays by Real Crystals in Region of Anomalous Dispersion) (Київ: Академперіодика: 2002), с. 352 (рос.).

$x = 0,28$

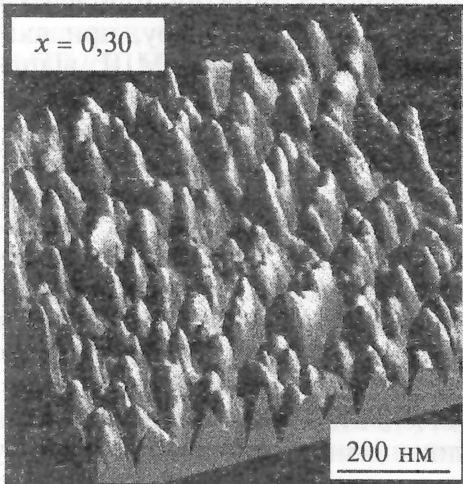


200 HM



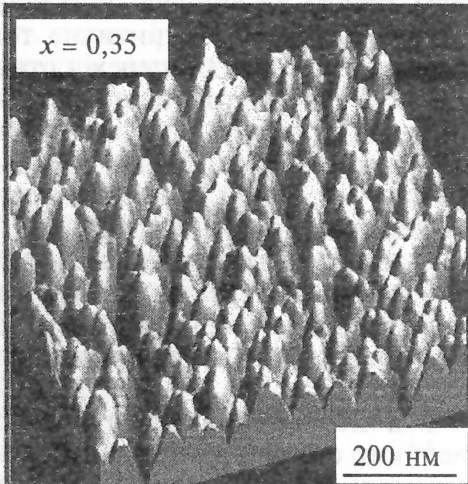
100 HM

$x = 0,30$



200 HM

$x = 0,35$



200 HM