

УДК 535.37

ВЛИЯНИЕ ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА НА ФОРМИРОВАНИЕ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК CdSe/ZnSe ПРИ ВЫРАЩИВАНИИ МЕТОДОМ МОЛЕКУЛЯРНО-ПУЧКОВОЙ ЭПИТАКСИИ

В. И. Козловский, Ю. М. Попов, Ю. Г. Садофьев, Я. К. Скасырский

Были выращены и исследованы структуры, содержащие 15 слоев CdSe толщиной 3.5 монослоя, разделенные барьерами ZnSe толщиной 0.2 и 0.05 мкм. В процессе напыления слоев CdSe часть поверхности облучалась электронным пучком, с помощью которого наблюдалась дифракция электронов. Обнаружено сильное различие в спектрах катодолуминесценции облученного участка и вне его. В результате облучения максимум спектра сдвигался на 40 – 70 нм в длинноволновую сторону и появлялась структура спектра. Наблюдаемые различия связываются с изменением структуры слоев CdSe. Предполагается, что лишь при облучении электронным пучком образуются действительно нульмерные образования – квантовые точки с малым разбросом по форме. Структура спектра связывается с участием излучательных переходов через возбужденные уровни в квантовых точках.

Трехмерный ансамбль квантовых точек является перспективной средой для полупроводниковых лазеров [1], в частности и для лазеров с продольной накачкой электронным пучком [2]. Для видимого диапазона интерес представляет система CdSe/ZnSe. Процесс самосогласованного образования квантовых точек в этой системе существенно зависит от методики выращивания и определяется многими параметрами роста: толщиной слоя CdSe, температурой роста, соотношением потоков компонент, временем

прерывания роста, последующими температурными отжигами, структурой покровного слоя и т.д. [3 – 7]. В этой ситуации актуальным является непрерывный контроль структуры осаждаемого слоя $CdSe$ в процессе формирования квантовых точек. В технологии молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) в качестве такого контроля широко используется методика дифракции отраженных электронов высокой энергии (10 – 30 кэВ). Преобразование вытянутых рефлексов, характеризующих плоскую поверхность роста, в точечные рефлексы может при определенных условиях быть свидетельством формирования структуры мелких островков или пирамид нанометрового размера [8]. Однако эти изменения наблюдаются на поверхности сравнительно малой площади, облучаемой электронным пучком. (Заметим, что при непрерывном контроле картины дифракции подложка не вращается. Вращение обычно используется для увеличения однородности свойств эпитаксиальных пленок.) На остальной поверхности ростовые процессы могут отличаться. Действительно, замечено, что при выращивании относительно толстых пленок $ZnSe$ или структур $ZnCdSe/ZnSe$ на невращающейся подложке при непрерывно включенном электронном пучке остается след (яма), обусловленный изменением средней скорости роста под действием электронного пучка. Возможно, что при облучении изменяется (увеличивается) десорбция селена.

В данной работе было установлено, что облучение поверхности электронным пучком может существенно сказываться на процесс формирования квантовых точек $CdSe/ZnSe$. Это, с одной стороны, может привести к неверному сопоставлению результатов контроля процесса роста методом дифракции электронов и последующих измерений, выполненных на образцах, выколотых из другой области структуры, не подвергавшейся в процессе роста воздействию электронного пучка. С другой стороны, этот эффект может быть целенаправленно использован для получения квантовых точек нужного размера.

Исследуемые структуры выращивались методом МПЭ на подложке $GaAs(100)$ диаметром 40 мм. После очистки поверхности подложки от естественных окислов наращивался буферный слой $ZnSe$ толщиной 0.2 мкм, затем 15 слоев $CdSe$ с расчетной толщиной 3.5 монослоя, разделенных барьерными слоями $ZnSe$. Структуры заканчивались покровным слоем $ZnSe$. В одной структуре (структура N 281) расчетные толщины слоев барьерного и покровного $ZnSe$ были 0.2 мкм и 0.1 мкм, соответственно, а в другой (структура N 284) – 0.05 мкм и 0.05 мкм. Выбор данных структур предполагал в будущем исследовать индуцированное излучение набора квантовых ям под действием электронного пучка.

Рост буферного слоя $ZnSe$ проводился при $T = 280^\circ C$ и эквивалентном соотношении потоков Zn и Se 1:3. Слой $CdSe$ осаждался при пониженной температуре ($T \approx 230^\circ C$). После этого в потоке паров Se мощность нагревателя подложки увеличивали до уровня, обеспечивающего достижение температуры $T \approx 340^\circ C$, а затем структуру охлаждали до температуры $230^\circ C$, при которой выращивали барьерные слои $ZnSe$. Длительности этапов повышения и понижения температуры после каждого цикла осаждения слоя $CdSe$ составляли 4 и 5 минут, соответственно. Электронный пучок для наблюдения дифракции электронов включался перед началом осаждения слоя $CdSe$ и выключался перед началом последующего роста барьерного слоя $ZnSe$. Ток пучка составлял 0.2 мА, энергия электронов была 12 кэВ, угол падения на поверхность не превышал 3 градуса, диаметр пятна электронного пучка вблизи поверхности подложки был примерно 0.5 мм. Перед осаждением $CdSe$ рефлексы дифракции были стержнеобразными, что свидетельствовало о высокой плоскостности поверхности $ZnSe$. В процессе осаждения $CdSe$ контраст дифракционной картины падал, хотя признаки трехмерного роста отсутствовали. При последующем нагреве структуры возникала отчетливая модуляция интенсивности вдоль дифракционных стержней, а в процессе охлаждения до ростовой температуры $ZnSe$ контраст дифракционной картины существенно улучшался. Такое поведение дифракции электронов свидетельствует об образовании островков $CdSe$ [8].

Исследовалась катодолюминесценция выращенных структур в различных точках поверхности. Энергия электронов составляла 10 кэВ, плотность тока была 0.1 – 1 мА/см², диаметр электронного пятна был равен 0.3 – 5 мм. Анализировалось излучение, вышедшее через поверхность, облучаемую электронами.

Однородность суммарной толщины выращенной структуры на поверхности шайбы контролировалась картиной интерференции при диффузном освещении шайбы излучением натриевой лампы.

На рис. 1а представлена фотография пластины (структура N 284) в свете натриевой лампы. Интерференционные полосы свидетельствуют о неоднородности толщины выращенной структуры по поверхности пластины. Полный перепад толщины составил примерно 0.4 мкм, однако основное изменение толщины приходится лишь на малую часть пластины (правый нижний край на рис. 1а). Дополнительные измерения на интерференционном микроскопе (МИИ-4) показали, что в этой области наблюдается увеличение толщины структуры.

На фотографии виден также след от электронного пучка, использовавшегося в процессе роста слоев $CdSe$. По-видимому, это связано с локальным изменением среднего

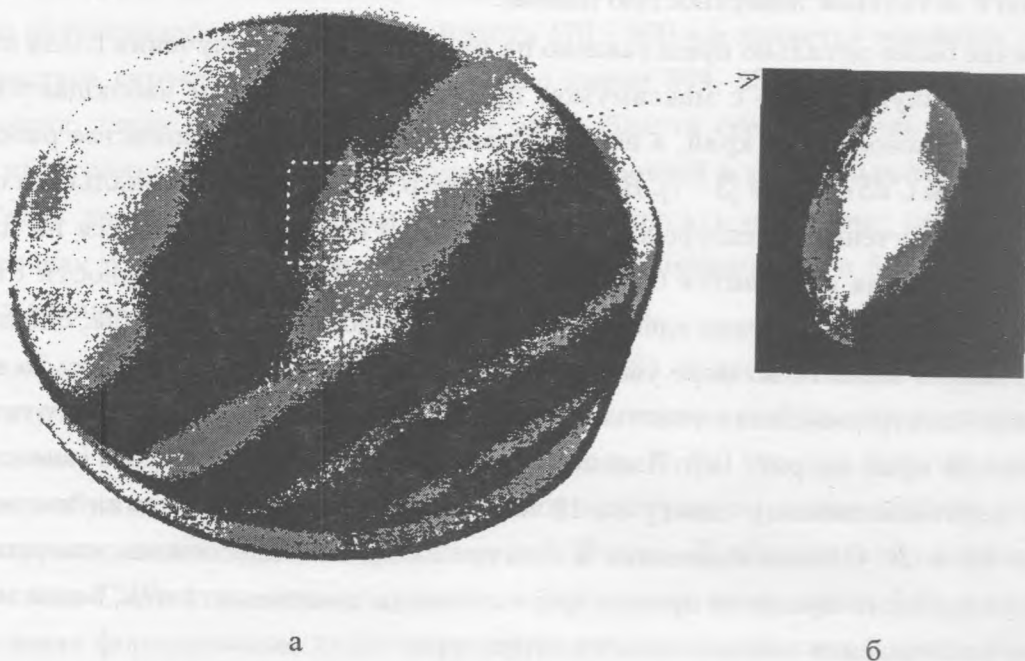


Рис. 1. Фотографии структуры N 284 после роста в свете натриевой лампы (а) и фрагмента этой структуры в свете собственной катодлюминесценции (б). Интерференционные полосы (рис. 1а) обусловлены неоднородностью толщины структуры. На фоне зеленого свечения (более темный фон на рис. 1б) овальной области, возбуждаемой электронным пучком, видно ярко-желтое свечение (более светлый фон) от полоски, где в процессе нанесения слоев $CdSe$ происходило облучение электронным пучком, включавшимся для наблюдения дифракции электронов.

показателя преломления, поскольку в этой области при использовании высокоразрешающего оптического микроскопа (Neofot-30) не наблюдается скольнибудь заметного поверхностного рельефа.

На рис. 1б представлена фотография катодлюминесценции участка пластины, помеченного белым пунктиром на рис. 1а. Овальное пятно на фотографии соответствует пятну электронного пучка возбуждения катодлюминесценции (меньший размер эллипса равен примерно 5 мм). В целом пятно светится в зеленой области спектра. Яркая полоска в середине пятна соответствует излучению следа от электронного луча, который включался в процессе роста. След светится в желтой области спектра. Таким образом, наблюдается существенное отличие катодлюминесценции области, где процесс формирования квантовых точек $CdSe$ проходил под действием электронного пучка,

по сравнению с остальной поверхностью шайбы.

Это отличие более детально представлено на рис. 2а. Спектр излучения следа имеет одну несимметричную линию с максимумом при 590 нм. При этом наблюдается более пологий коротковолновый край, а не длинноволновый, как в большинстве работ по квантовым точкам *CdSe/ZnSe* [3 – 7]. Вне следа спектр изменяется кардинальным образом. Максимум излучения в непосредственной близости от следа сдвигается на длину волны 548 нм, и линия становится более симметричной. Из-за неоднородности структуры положение линии излучения слегка изменяется по поверхности шайбы, сдвигаясь в коротковолновую область по мере увеличения толщины структуры. На рис. 2а представлен также спектр излучения участка шайбы с максимальной толщиной структуры (правый нижний край на рис. 1а). Изменение общей толщины структуры (вне следа) приводит к коротковолновому сдвигу на 18 нм (83 мэВ) и сужению линии излучения с 97 мэВ до 66 мэВ. Однако изменения в спектре катодолюминесценции, связанные с влиянием электронного пучка на процесс формирования квантовых точек, более значительны, чем наблюдаемая неоднородность структуры.

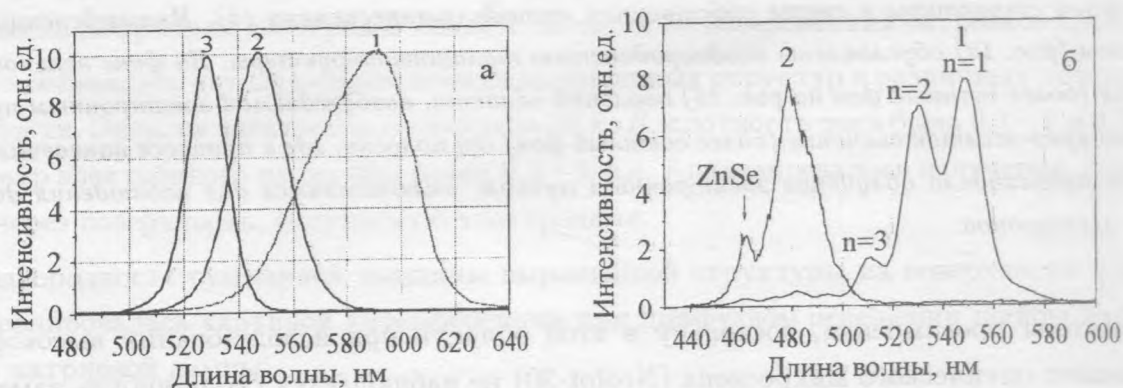


Рис. 2. Спектры катодолюминесценции структуры N 284 (а) и структуры N 281 (б) в полоске, представленной на рис. 1б, (кривая 1) и в непосредственной близости от нее (кривая 2). Для структуры N 284 представлен также спектр участка, расположенного далеко от полоски (нижний правый угол на рис. 1а) (кривая 3).

На рис. 2б представлено аналогичное сравнение спектров для второй структуры (структура N 281). В отличие от первой структуры спектр излучения следа содержит несколько линий с максимумами 549, 531, 510, 495, 482 и 462 нм. Линия с максимумом

462 нм соответствует линии излучения барьерных и покровного слоев $ZnSe$. Более слабое по интенсивности излучение в области 470 – 500 нм является основным излучением от участков структуры вне следа. Однако линии 549, 531 и 510 нм присущи только излучению следа. Структура спектра в этой области спектра очень похожа на структуру интегрального излучения возбужденных уровней в квантовых точках $InAs/GaAs$ [9]. Тогда линию с максимумом 549 можно приписать основному переходу в квантовых точках $n = 1$, в то время как линии с максимумами 531 и 510 нм – переходам с возбужденных уровней соответственно с $n = 2$ и 3.

Возвращаясь к спектру следа в структуре N 284, пологий коротковолновый край линии излучения следа можно также объяснить наличием возбужденных уровней. Плохое разрешение спектра в этом случае можно связать с тем, что при энергии электронов 10 кэВ в возбуждающем катодолюминесценции электронном пучке глубина возбуждения структуры составляет величину примерно 0.25 мкм. В области возбуждения попадают 4 – 5 слоев $CdSe$ (толщина покровного и барьерных слоев равна 0.05 мкм). Возможно, условия формирования квантовых точек изменяются от слоя к слою, как это часто наблюдается в системе $InAs/GaAs$ из-за сегрегации In [10], что и приводит к размыванию структуры спектра. В случае структуры N 281 в область возбуждения попадает лишь один слой $CdSe$ (толщина покровного и барьерного слоев равна 0.1 и 0.2 мкм, соответственно).

Наличие в спектре структуры возбужденных уровней однозначно свидетельствует об нуль-мерности объекта излучения и о трехмерном квантовании. Отметим, что в системе $CdSe/ZnSe$, насколько нам известно, это первое наблюдение возбужденных уровней от квантовых точек. Причем разброс в форме и размерах этих квантовых точек довольно мал. Полуширина основной линии излучения равна 66 мэВ, что сравнимо с полушириной линии излучения в квантовых точках $InAs/GaAs$. Механизм влияния электронного пучка на формирование квантовых точек пока не ясен. По-видимому, быстрые электроны существенно активируют диффузию атомов Cd на ростовой поверхности, что способствует образованию островков $CdSe$ с большей высотой и меньшим диаметром, чем в обычном случае.

Таким образом, в данной работе впервые обнаружено сильное влияние электронного пучка на процесс формирования квантовых точек в системе $CdSe/ZnSe$. Спектр катодолюминесценции квантовых точек, сформированных при облучении электронным пучком, содержит линии излучения основного и возбужденных уровней. Линии излучения основного перехода имеют максимум в области 545 – 590 нм и полуширину на

полувысоте 66 мэВ. Наличие в спектре линий излучения с возбужденных уровней и относительно малая ширина линий свидетельствует о трехмерном квантовании и малом разбросе формы и размеров квантовых точек.

Данная работы была выполнена при поддержке РФФИ (грант N 98-02-16089) и гранта "Ведущие научные школы" N 00-15-96624.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Алферов Ж. И. ФТП, **32**, 3 (1998).
- [2] Basov N. G., Dianov E. M., Kozlovsky V. I., et al. Laser Physics, **6**, 608 (1996).
- [3] Leonardi K., Heinke H., Ohkawa K., et al. Appl. Phys. Lett., **71**, 1510 (1997).
- [4] Kirmse H., Schneider R., Rabe M., et al. Appl. Phys. Lett., **72**, 1329 (1998).
- [5] Kim C. S., Kim M., Lee S., et al. J. Cryst. Growth, **214/215**, 761 (2000).
- [6] Ivanov S. V., Торопов А. А., Shubina T. V., et al. Appl. Phys., **83**, 3168 (1998).
- [7] Trubenko P. A., Kozlovsky V. I., and Roddatis V. V. J. Cryst. Growth, **214/215**, 671 (2000).
- [8] Arai K., Hanada T., and Yao T. J. Cryst. Growth, **214/215**, 703 (2000).
- [9] Dudowski J. J., Allen C. Ni., and Fafard S. Appl. Phys. Lett., **77**, 3583 (2000).
- [10] Wasilewski Z. R., Fafard S., and McCaffrey J. P. J. Cryst. Growth, **201/202**, 1131 (1999).

Поступила в редакцию 10 января 2001 г.