

# Kai Zhang

## Darstellung der Forschungsaktivitäten

Diese Doktorarbeit wurde im Rahmen eines Forschungsprojekts angefertigt, in dem die strukturellen und opto-elektronischen Eigenschaften von sehr kleinen InAs Tröpfchen studiert werden. InAs-Tröpfchen mit einem Durchmesser von wenigen 10 nm, sogenannte Quantenpunkte (QP), bilden sich spontan während des epitaktischen Wachstums von verspanntem InAs auf GaAs Substraten im sogenannten Stranski-Krastanov Modus. Aufgrund ihrer attraktiven Eigenschaften sowohl für die Grundlagenforschung als auch für Anwendungen in der Kommunikationstechnologie werden QP derzeit weltweit außerordentlich intensiv untersucht. [siehe z.B. Beiträge zur 11th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Peking 2000] Die strukturellen Eigenschaften der QP, wie z. B. die Geometrie, die Zusammensetzung sowie die in- und externe Verspannung, sind dabei momentan von zentralem Interesse und werden kontrovers diskutiert. In dieser Arbeit wurden vorwiegend Röntgenstrukturuntersuchungen eingesetzt, um strukturelle Eigenschaften wie Verspannung, Geometrie, Komposition und laterale Ordnung der QP aufzuklären. [1, 2, 3, 4, 5, 6, 7]

Die Bildung der QP kann während des epitaktischen Wachstums anhand von RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) verfolgt werden. Eine charakteristische Änderung des Beugungsbildes (s. Abb. 1) zeigt das Auftreten von dreidimensionalen Tröpfchen an der Oberfläche an und ermöglicht eine sehr genaue Unterbrechung der Indiumdeposition und somit eine gezielte Einstellung der Quantenpunktgröße auf der Oberfläche [6]. Der Übergang vom Wachstum einer planen, zweidimensionalen Schicht zur Bildung von dreidimensionalen Strukturen wird bei den hier verwendeten Substrattemperaturen von 450 °C bzw. 500 °C bei Deposition von 1,5 ML bzw. 1,7 ML Indiumarsenid beobachtet.

Rasterkraftmikroskopie (AFM) und Kleinwinkel-Röntgenstreuung unter streifendem Einfall (GISAXS: grazing incidence small angle x-ray scattering) wurden eingesetzt, um Informationen über Quantenpunktdichte, Größenverteilung und laterale Ordnung zu erhalten. Die Resultate der AFM- und GISAXS-Untersuchungen zeigen insgesamt eine hervorragende Übereinstimmung. Das AFM-Verfahren ist allerdings auf Quantenpunktproben ohne Deckschicht beschränkt und ist - vermutlich wegen der kleineren ausgewerteten Fläche - im Vergleich zu Röntgenstreuexperimenten deutlich unempfindlicher auf Ordnung in der lateralen

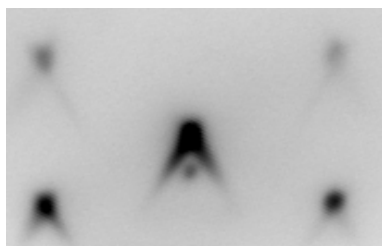


Abbildung 1: *In-situ* Aufnahme des RHEED-Beugungsbildes von InAs-Quantenpunkten nach Deposition von 2,1 ML Indium bei einer Substrattemperatur von 500 °C. Die als Chevrons bezeichneten Intensitätsausläufer neben den Intensitätsmaxima sind charakteristisch für eine Oberfläche mit dreidimensionalen Tröpfchen.

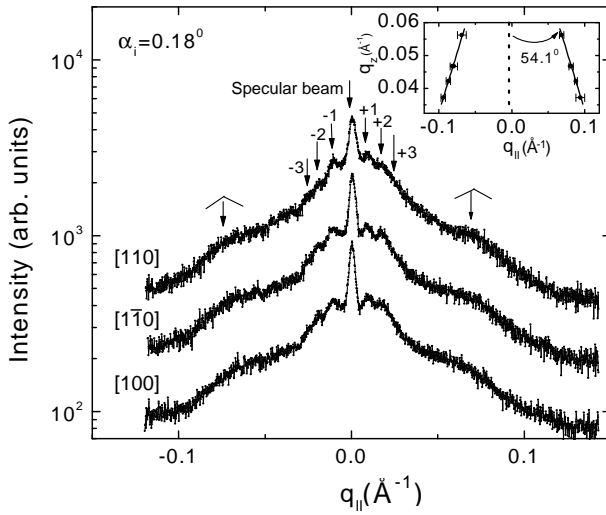


Abbildung 2: Logarithmische GISAXS-Intensitäten einer Probe mit InAs-QD gemessen in verschiedenen Azimuthrichtungen, die neben den Kurven angegeben sind. Der zentrale spekulare Reflex sowie die laterale Ordnung reflektierende Satellitenmaxima ( $\pm 1$ ,  $\pm 2$ ,  $\pm 3$ ) sind durch Pfeile markiert. Intensitätsmaxima, die den Facetten-bezogenen CTR zugeordnet sind  $q_{\parallel} = \pm 0.07 \text{ \AA}^{-1}$  werden durch  $\wedge$ -Zeichen indiziert. Der Einsatz zeigt die Position dieser Facettenreflexe im  $q_{\parallel}$ - $q_z$ -Raum. (aus [5])

Quantenpunktverteilung. In unseren GISAXS-Experimenten ist es uns gelungen, eine Ordnung in der lateralen Tröpfchenverteilung anhand von Satellitenmaxima in der Nähe des Spekularreflexes nachzuweisen (s. Abb. 2). Interessanterweise beobachten wir eine signifikante Anisotropie in der Oberfläche. So ist die Ordnung in [110]-Richtung weit deutlicher ausgeprägt als in den  $[1\bar{1}0]$  und [100]-artigen Richtungen. In unseren GISAXS-Daten werden weiterhin Facettenreflexe [A.J. Steinfeld et al., Phys. Rev. Lett. **77**, 2009 (1996)] beobachtet, deren Auswertung auf die Existenz von  $\{111\}$ - und  $\{101\}$ -artigen Seitenfacetten schließen lassen. Damit ergibt sich aus unseren Resultaten eine QP-Geometrie, die aus einer oben durch eine (001) Facette abgeschnittenen Pyramide mit oktagonaler Basis besteht.[5]

Stranski-Krastanov-Quantenpunkte in Bauelementen sind in der Regel mit einer Deckschicht versehen, welche die AFM Untersuchungen der lateralen QP-Verteilung unmöglich macht. In unseren Experimenten wurde erstmals demonstriert, daß die Bestimmung statistischer Parameter zur Beschreibung der lateralen Verteilung mit GISAXS auch an Quantenpunktschichten möglich ist, die unter 10 nm dicken Deckschichten vergraben sind.[2] Auch hier wird in Übereinstimmung mit den unbedeckten Schichten eine starke Anisotropie in der Ordnung bezüglich der Oberflächenorientierung festgestellt. Die Facetten-bezogenen CTR-Maxima konnten in den Experimenten allerdings bisher nicht aufgelöst werden. Damit bleibt offen, ob auch bedeckte Quantenpunkte eine Facettierung aufweisen.

Hochauflösende Röntgenbeugung unter streifendem Einfall (GIXRD, grazing incidence x-ray diffraction) ermöglicht die Bestimmung von Verspannungszustand und Zusammensetzung der Quantenpunkte. Hier wurde erstmals die Verteilung der Beugungsintensität im reziproken Raum in der Nähe des (202)-GaAs-Substratmaximums untersucht.[4] In Abb. 3 wird die vom InAs stammende Intensität in einer Grauskala dargestellt. Das Substratmaximum befindet sich bei der Position ( $\Delta k_x = 0$ ,  $\Delta k_y = 0$ ). Im Gegensatz zu anderen Arbeiten [I. Kegel et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 1694 (2000)] erlaubt die hier gewählte Geometrie die Unterscheidung zwischen Kompositions- und Verspannungseffekten direkt aus der Reflexposition im reziproken Raum. Die Daten in Abb. 4 weisen auf einen kohärenten Verspannungszustand der QP und die Existenz von kleinen, von den Wachstumsparametern abhängigen Mengen interdiffundierten  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  hin. Die Untersuchungen demonstrieren das große Potential der Methode für die Aufklärung der inneren Struktur von Stranski-Krastanov-QP. Es verbleiben jedoch derzeit diverse offene Frage, wie z.B. warum die Intensität von auf die Substratgitterkonstante verspanntem InAs so gering ist und warum die Position des Beugungsreflexes

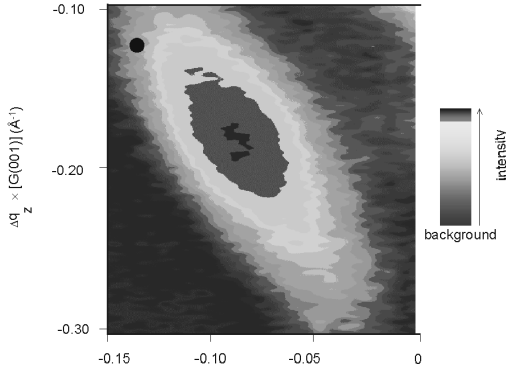


Abbildung 3: Intensitätsverteilung der GIXRD(202) Bragg Beugung eine InAs QP-Probe im reziproken  $\Delta q_x$ - $\Delta q_z$ -Raum. Der schwarze Punkt markiert die für volumenartiges, d. h. unverspanntes InAs erwartete Reflexposition.  $G(100)=2\pi/a_o^{GaAs}$ , wobei  $a_o=5.65 \text{ \AA}$ , die Gitterkonstante von GaAs ist. (aus [4])

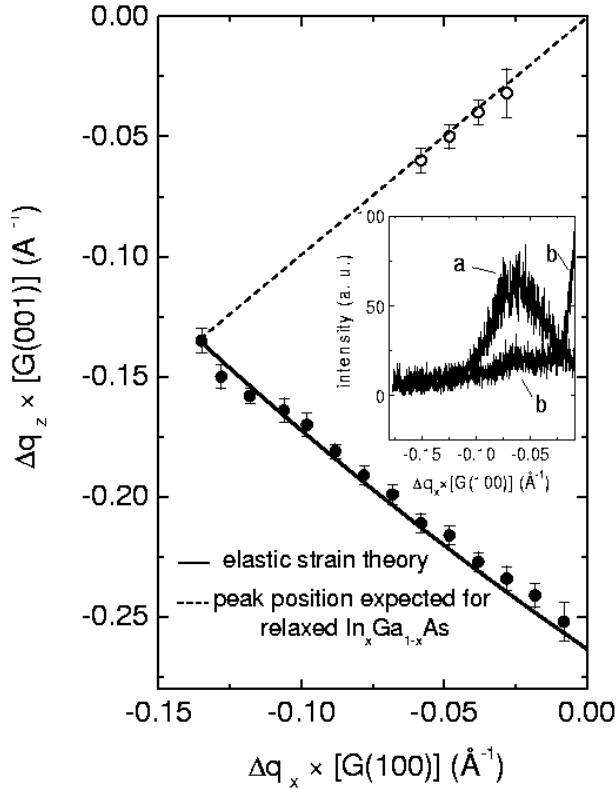


Abbildung 4: Positionen der GIXRD Intensitätsmaxima im  $\Delta q_x$ - $\Delta q_z$  Raum. Ausgefüllte Punkte bezeichnen verspanntes InAs, die offenen Kreise durchmisches  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ . Der Einsatz dokumentiert die unterschiedlichen GIXRD Intensitäten von verspanntem InAs (a) und durchmischem  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  (b) im gleichen  $\Delta q_x$  Bereich, a:  $\Delta q_z = -0.21 \text{ rlu}$ , b:  $\Delta q_z = -0.06 \text{ rlu}$ .  $G(100)=2\pi/a_o^{GaAs}$ . (aus [4])

vom  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  unverspannten Material zu entsprechen scheint.

Weiterhin wurden Grenzflächenstruktur, Schichtaufbau und Zusammensetzung von dünnen, in GaAs eingebetteten InAs-Schichten mit Messungen der Röntgenreflektivität unter streifendem Einfall (GIXR, grazing incidence x-ray reflectivity) sowie mit der sogenannten Crystal-Truncation-Rod (CTR) Methode und mit Experimenten in stehenden Röntgenwellenfeldern (XSW, x-ray standing waves) untersucht. Die InAs-Schichtdicken lagen hierbei zwischen 1,0 ML und 2,1 ML. Die Strukturparameter, die aus den unterschiedlichen Methoden gewonnen werden sind in guter Übereinstimmung und zeigen, daß Durchmischung nach dem Abscheiden der InAs-Schicht und In-Segregation in die Deckschicht bei einer typischen Wachstumstemperatur von  $500 \text{ }^\circ\text{C}$  sehr wichtig sind. Die GIXR und CTR-Ergebnisse zeigen, daß die effektive Indiumkonzentration in der InAs-Schicht mit wachsender Indiumbedeckung steigt. In XSW beobachten wir eine hohe Kristallinität der abgeschiedenen Schicht bei kleiner Indiumbedeckung und stark reduzierte kohärente Fraktion der Atompositionen

bei höheren Bedeckungen, bei denen wir auf Grund unserer RHEED-Ergebnisse Tröpfchenbildung erwarten.[8]

## Zusammenarbeit mit anderen Mitgliedern des Graduiertenkollegs

Im Zusammenhang mit der Molekularstrahlepitaxie gab es intensive Zusammenarbeit und hilfreichen Erfahrungsaustausch mit S. Bargstädt-Franke, W. Naumann und Prof. R. Anton.

In Fragen der AFM-Untersuchungen gab es wertvolle Diskussionen mit Mitgliedern der Arbeitsgruppe von Prof. Wiesendanger, insbesondere mit Dr. H. Hölscher und J. Wiebe.

Langfristig ist geplant, InAs-Quantenpunkte in optische Mikroresonatoren einzubringen. Dadurch soll sehr empfindliche optische Spektroskopie an Quantenpunkten möglich werden. Bei der Planung des Vorgehens, insbesondere des Aufbaus geeigneter Mikroresonatoren, gab es eine sehr intensive Kooperation mit L. Rolf, D. Heitmann und D. Endler. Letzterer ist Mitglied im am Institut für Laserphysik angesiedelten GrK "Felder und lokalisierte Atome - Atome und lokalisierte Felder: Spektroskopie an lokalisierten atomaren Systemen".

In Fragen zur Durchführung und Auswertung von Röntgenstruktorexperimenten gab es sehr hilfreiche Hinweise von vielen Wissenschaftlern des HASYLAB, von denen O. Bunk, M. A. Schröder und R. Johnson Mitglieder des GrK sind.

## Ausblick

Die Resultate dieser Arbeit haben vor allem das Potential von Röntgenstrukturuntersuchungen an Stranski-Krastanov QP aufgezeigt. Sie demonstrieren, daß mit detaillierten Untersuchungen der Einfluß von Wachstumsparametern auf die Form, die Verteilung und die Komposition der QP studiert werden kann. Sie haben weiterhin eine große Anzahl von Fragen aufgeworfen, deren Klärung noch weitgehend offen ist. Unklar ist z.B. die Rolle der Oxidschicht, wenn die Untersuchung unter atmosphärischen Bedingungen stattfindet. Insbesondere die Facettenbezogenen CTR-Maxima sind möglicherweise deutlich ausgeprägter und die Dotverspannung ist stark modifiziert, wenn das Experiment *in-vacuo* durchgeführt wird, d.h. nach der Epitaxie wird die Probe in einen Vakuummkoffer transferiert und bleibt zur Vermessung unter Luftabschluß.

GISAXS-Experimente an Strukturen mit Deckschicht sind hier bereits erfolgreich durchgeführt worden. Diese Untersuchungen sind von besonderem Interesse, weil anwendungsrelevante Schichten immer eine Deckschicht besitzen, die das Oxidieren des InAs verhindert und sie sowohl Verspannung als auch Interdiffusion ganz erheblich modifizieren kann [A. Lorke et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 2223 (2000)]. Daher sind weitere Untersuchungen an Proben mit Deckschicht von außerordentlich großem Interesse.

Die Beugungsexperimente ergeben sehr weitreichenden Aufschluß über den Aufbau der QP. Allerdings ist die Auswertung nicht trivial und wirft eine große Zahl von offenen Fragen auf. Simulationsmodelle könnten zur Klärung beitragen.

Unsere Untersuchungen mit AFM zeigen, daß die Stufenkanten auf fehlorientierten Substraten die Ordnung der QP deutlich beeinflussen. Auch hier stehen noch detaillierte Untersuchungen mit GISAXS aus. In diesem Zusammenhang bietet auch die Deposition von QP auf künstlich strukturierten Substraten eine sehr interessante Perspektive.

## Publikationen

Angehörige und Gäste des Graduiertenkollegs sind unterstrichen

- [1] K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, Th. Schmidt und J. Falta: *Grazing incidence structural characterization of InAs quantum dots on GaAs*, Appl. Surf. Sci. (2000), proceedings of the ICSFS-10 in Princeton, USA (2000), im Druck.
- [2] K. Zhang, J. Falta, Ch. Heyn, Th. Schmidt und W. Hansen, Lateral distribution of buried self-assembled InAs quantum dots on GaAs, In *proceedings of the 25th international conference on "The Physics of Semiconductors" in Osaka, Japan 2000*, im Druck.
- [3] K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, Th. Schmidt und J. Falta: *Structural characterization of self-assembled InAs quantum dots grown by MBE*, J. Crys. Growth (2000), proceedings of the 11th conference on *Molecular Beam Epitaxy* in Beijing, China 2000.
- [4] K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, Th. Schmidt und J. Falta: *Strain status of self-assembled InAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **77**, 1295 (2000).
- [5] K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, Th. Schmidt und J. Falta: *Ordering and shape of self-assembled InAs quantum dots on GaAs (001)*, Appl. Phys. Lett. **76**, 2229 (2000).
- [6] Ch. Heyn, D. Endler, K. Zhang und W. Hansen: *Formation and dissolution of self-assembled InAs quantum dots*, J. Crystal Growth **210**, 421 (2000).
- [7] K. Zhang, J. Falta, Ch. Heyn, Th. Schmidt, G. Materlik und W. Hansen: *Study on distribution and shape of self-assembled InAs quantum dots grown on GaAs (001)*, Pure and Applied Chemistry (IUPAC) **72**, 199 (2000).
- [8] K. Zhang, A. Foede, T. Schmidt, P. Sonntag, Ch. Heyn, G. Materlik, W. Hansen und J. Falta: *X-ray interface characterization of buried InAs layers on GaAs (001)*, Phys. Stat. Sol. (b) **215**, 791 (1999).
- [9] K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, Th. Schmidt und J. Falta: *Structure of MBE grown InAs quantum dots studied by x-ray techniques*, Annual report, synchrotron radiation laboratory (DESY) Seite 439 (1999).
- [10] K. Zhang, A. Foede, J. Falta, P. Sonntag, Ch. Heyn, G. Materlik und W. Hansen: *Interface characterization of MBE growth InAs films on GaAs (001)*, Annual report, synchrotron radiation laboratory (DESY) Seite 481 (1998), online : [http : //www.hASYLAB.desy.de/science/annual\\_reports/1998/](http://www.hASYLAB.desy.de/science/annual_reports/1998/).
- [11] A. Foede, J. Falta, Th. Schmade, P. Sonntag, K. Zhang, W. Hansen und G. Materlik: *Structure of buried InAs films on GaAs (001) by x-ray standing waves and crystal truncation rods*, Annual report, synchrotron radiation laboratory (DESY) Seite 455 (1998), online : [http : //www.hASYLAB.desy.de/science/annual\\_reports/1998/](http://www.hASYLAB.desy.de/science/annual_reports/1998/).

## Teilnahme an Tagungen

- "Structural characterization of self-assembled InAs quantum dots grown by MBE"  
K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, Th. Schmidt und J. Falta

The 11th International Conference on Molecular Beam Epitaxy Growth (MBE-11)  
in Peking (China), September 2000  
Beitragsform: Poster

- The 1st international conference on semiconductor quantum dots  
in München, Juli 2000.
- “Structure Investigation of Self-Assembled InAs Quantum Dots by Grazing Incidence X-ray Techniques“  
K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, Th. Schmidt und J. Falta  
User’s Meeting at the Synchrotron Radiation Laboratory (DESY)  
in Hamburg, Januar 2000  
Beitragsform: Poster
- “X-ray characterization on strained InAs single layer grown by Molecular Beam Epitaxy“  
K. Zhang, J. Falta, Ch. Heyn, Th. Schmidt, G. Materlik und W. Hansen  
International conference on Solid State Spectroscopy (ICSSS)  
in Schwäbisch Gmünd, September 1999  
Beitragsform: Poster
- “Distribution Characterization of Self-Assembled InAs Quantum Dots on GaAs (001)“  
K. Zhang, J. Falta, Ch. Heyn, Th. Schmidt, G. Materlik und W. Hansen  
First Workshop on Advanced Material: Nanostructured Systems, sponsored by International Union for Pure and Applied Chemistry (IUPAC)  
in Hong Kong (China), Juli 1999  
Beitragsform: Poster
- “X-ray Structural Investigation of Strained InAs-films on GaAs (001)“  
K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, A. Foede, J. Falta, P. Sonntag und G. Materlik  
User’s Meeting at the Synchrotron Radiation Laboratory (DESY)  
in Hamburg, Januar 1999  
Beitragsform: Poster
- “X-ray Structural Investigation of Strained InAs-Films buried on GaAs (001)“  
Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (DPG)  
in Münster, März 1999  
Beitragsform: Vortrag

## Forschungsaufenthalte und eingeladene Vorträge

- “Structure of MBE grown InAs quantum dots studied by X-ray techniques“  
Eingeladener Vortrag vor der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. J. Falta am Institut für Festkörperphysik der Universität Bremen, November 23, 1999.

## Tagungsbeiträge als Mitautor

- “Lateral Distribution of Buried Self-assembled InAs Quantum Dots on GaAs“  
K. Zhang, J. Falta, Ch. Heyn, Th. Schmidt und W. Hansen  
The 25th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS25)  
in Osaka (Japan), September 2000  
Beitragsform: Poster
- “Ordering and Strain of InAs Quantum Dots on GaAs (001)“  
J. Falta, K. Zhang, Ch. Heyn, Th. Schmidt und W. Hansen  
International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-10)  
in Princeton University, Princeton (USA), July 2000  
Beitragsform: Vortrag
- “Structure of MBE grown InAs quantum dots studied by X-ray techniques“  
K. Zhang, Ch. Heyn, Th. Schmidt, J. Falta und W. Hansen  
Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik der Deutschen Physikalischen  
Gesellschaft (DPG)  
in Regensburg, März 2000  
Beitragsform: Poster
- “X-ray investigations of InAs quantum dots on GaAs (100)“  
J. Falta, K. Zhang, Ch. Heyn, W. Hansen, Th. Schmidt, P. Sonntag, P. Korecki  
International Workshop on Applications and Morphology of Vicinal Surface  
in Schloß Wohldenberg, Hildesheim (Deutschland), September 1999  
Beitragsform: Poster

## Eigene Vorträge im Rahmen des Graduiertenkollegs

- Workshop des Graduiertenkollegs in Niederkleevitz, 25.-27. May, 1999.  
Vortrag mit dem Thema: Surface and Interface Investigation of Self-assembled InAs  
Quantum Dots on GaAs (001)
- Workshop des GrK in St. Peter Ording, 14.-17. Januar, 1998.  
Vortrag mit dem Thema: X-ray Investigation on Self-Organized InGaAs/GaAs Quan-  
tum Dots .