

Оптические и структурные свойства массивов квантовых точек InAs, осажденных в матрицу $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ на подложке GaAs

© Н.В. Крыжановская[¶], А.Г. Гладышев, С.А. Блохин, Ю.Г. Мусихин, А.Е. Жуков, М.В. Максимов, Н.Д. Захаров*, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов**, Р. Werner*, F. Guffart**, D. Bimberg**

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

* Max-Planck Institut für Mikrostrukturphysik, Halle, Deutschland

** Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Berlin, Deutschland

(Получена 15 января 2004 г. Принята к печати 19 января 2004 г.)

Исследованы структурные и оптические свойства квантовых точек InAs, осажденных на поверхности толстого метаморфного слоя InGaAs, выращенного на подложке GaAs. Показано, что плотность квантовых точек и их латеральный размер увеличиваются по сравнению со случаем роста непосредственно на подложке GaAs. Увеличение концентрации индия в слое InGaAs приводит к сдвигу линии фотолюминесценции в сторону больших длин волн и при концентрации индия в метаморфном слое 30 ат% длина волны максимума линии фотолюминесценции составляет 1.55 мкм. Исследования электронного спектра квантовых точек методом спектроскопии возбуждения фотолюминесценции позволяют сделать вывод об уменьшении разности энергий между подуровнями носителей заряда в квантовых точках при увеличении концентрации индия в матрице InGaAs.

1. Введение

Исследование влияния материала подложки на особенности формирования квантовых точек в режиме роста Странского–Крастанова является в настоящее время одной из наиболее интересных и важных задач в области технологии полупроводников. Несмотря на достигнутый прогресс в экспериментальных [1] и теоретических [2] исследованиях физики формирования точек методом самоорганизации, зависимости плотности, латерального размера, высоты и формы квантовых точек от параметра решетки и поверхностной энергии материала подложки остаются недостаточно изученными. Экспериментальное исследование таких процессов в значительной степени затрудняется наличием только определенных типов подложек. Так, например, использование подложек InGaAs для роста структур в системе InGaAs–InGaAlAs не получило к настоящему времени широкого распространения. Кроме того, для систематических экспериментов подобного рода потребовались бы подложки InGaAs с различным составом по индию.

Недавно нами показана возможность выращивания толстых слоев InGaAs на подложках GaAs, имеющих достаточно высокое кристаллическое и оптическое качество [3–6]. Для перехода от постоянной решетки подложки GaAs к постоянной решетке слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ между ними осаждался метаморфный буферный слой $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. При росте буферного слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ применялась техника уменьшения плотности дислокаций, описанная в работе [7], благодаря которой удалось обеспечить достаточно низкую плотность прорастающих дислокаций в оптически активной области и высокую планарность всех гетероинтерфейсов. Таким образом, ненапряженный слой $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$

играет роль материала подложки, на которой осуществляется дальнейший рост, причем концентрацию индия в таком слое можно варьировать в достаточно широких пределах. Используя указанный метод, в работе [4] была продемонстрирована генерация на длине волны 1.52 мкм в лазере на основе квантовых точек, выращенных на толстом метаморфном слое $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ на подложке GaAs. В данной работе представлены результаты детального исследования влияния состава слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($0 \leq x \leq 0.30$), на котором выращиваются квантовые точки InAs, на их плотность, размер, форму, а также спектр энергетических состояний.

2. Методика эксперимента

Все структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии в установке Riber 32P с твердотельным источником As на подложках $n\text{-GaAs}(100)$. Сначала при температуре 400°C выращивался переходный буферный слой $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0\text{--}0.30$) толщиной 0.5 мкм, предназначенный для перехода от постоянной решетки GaAs к постоянной решетке InGaAs. После этого температура роста повышалась до 500°C и выращивалась активная часть структуры, представляющая собой слой $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ толщиной 0.2 мкм (далее — матрица), ограниченный с двух сторон сверхрешетками $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{In}_{0.2}\text{Al}_{0.8}\text{As}$, служащими для предотвращения утечки носителей заряда на поверхность и в буферный слой. Квантовые точки находились в середине слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и выращивались в следующей ростовой последовательности: сначала путем осаждения 2.6 монослоев (МС) InAs формировались начальные островки, которые затем зарастались слоем $\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ ($y = x + 0.2$) эффективной толщиной 5 нм.

[¶] E-mail: kryj@mail.ioffe.ru

Исследования методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) дифракционного контраста были выполнены с использованием микроскопа Philips CM при ускоряющем напряжении 100 кВ. Изображения структуры были получены в темном поле в отражении типа (200), направленном параллельно ростовой поверхности.

Исследования образцов методом ПЭМ высокого разрешения были выполнены на микроскопе JEM 4010 при ускоряющем напряжении 400 кВ. Анализ полученных изображений был проведен на основе фурье-фильтрации. Для построения изображений использовались отражения типа (200) и прошедший пучок.

Фотолюминесценция (ФЛ) структур возбуждалась Ar^+ -лазером ($W = 1500 \text{ Вт/см}^2$, $\lambda = 514 \text{ нм}$) и исследовалась в температурном диапазоне 10–300 К. Исследования спектров возбуждения люминесценции (СВЛ) проводились при возбуждении светом галогеновой лампы накаливания, пропущенным через монохроматор. Детектирование сигнала производилось с помощью монохроматора и охлаждаемого германиевого диода.

3. Результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлены изображения массивов квантовых точек (КТ), выращенных на поверхности GaAs (рис. 1, *a*) и $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ (рис. 1, *b*), полученные методом просвечивающей электронной микроскопии. Как видно из рисунков, поверхностная плотность точек в случае роста на слое $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ существенно выше, чем в случае осаждения КТ на GaAs. Такой эффект увеличения плотности КТ при сохранении постоянного разброса по размерам является желательным и позволяет достичь большего коэффициента усиления на основном состоянии в лазерах на КТ [8].

Данные ПЭМ высокого разрешения (рис. 2, *a, b*) показали, что выращивание КТ на метаморфном слое $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ приводит также к увеличению латерального размера островков при сохранении их высоты постоянной. Латеральный размер точек составляет в случае матрицы GaAs (рис. 2, *a*) 19 нм, а в случае матрицы $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ — 26 нм (рис. 2, *b*). Необходимо отметить, что, согласно картине дифракции быстрых

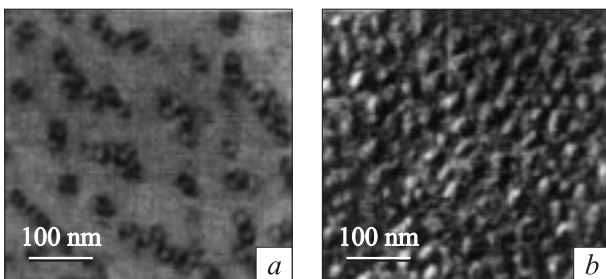


Рис. 1. Изображения квантовых точек, полученные методом ПЭМ в планарной геометрии для структур с матрицами: *a* — GaAs, *b* — $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$.

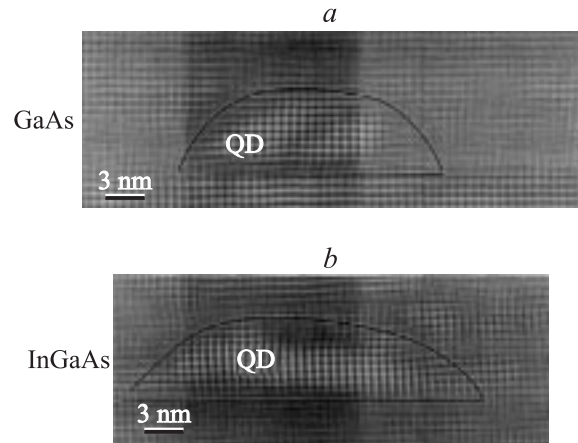


Рис. 2. Изображения ПЭМ высокого разрешения, полученные в геометрии поперечного сечения квантовых точек для структур с матрицами: *a* — GaAs, *b* — $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$.

электронов при отражении, наблюдаемой в процессе роста структуры, начало формирования КТ (переход к трехмерному росту) в случае матрицы GaAs происходит после осаждения InAs эффективной толщиной 1.7 МС, а в случае матрицы $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ — после осаждения 1.5 МС, т.е. на образование КТ в последнем случае уходит больше материала. Можно предположить, что как активированный распад $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с большим содержанием InAs ($x = 0.4$) при зарастивании, так и возможная сегрегация In на поверхности буферного слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ также могут быть ответственны за увеличение плотности КТ и их латерального размера.

При изменении материала матрицы с GaAs на $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ происходит сдвиг максимума линии ФЛ, соответствующей излучению основного состояния КТ (обозначен звездочкой на спектрах) в сторону больших длин волн (рис. 3). При содержании InAs в материале матрицы, равном 30%, максимум спектра ФЛ находится при длине волны 1.55 мкм. Данный сдвиг линии ФЛ КТ в область меньших энергий фотона может быть обусловлен несколькими причинами. Во-первых, уменьшение напряжений сжатия в КТ при изменении материала матрицы понижает энергию дна зоны проводимости. Во-вторых, увеличение латерального размера квантовых точек также приводит к заглаблению уровней размерного квантования. Кроме того, при увеличении содержания InAs в материале матрицы происходит уменьшение ширины ее запрещенной зоны и, как следствие, уменьшение проникновения волновых функций носителей заряда в потенциальный барьер, в результате уровни носителей заряда КТ заглабляются. Наличие при зарастивании КТ напряженного слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с большим значением x (содержащего напряжения растяжения в вертикальном направлении и обладающего пониженной упругостью) также приводит к уменьшению полей напряжений в КТ InAs и заглаблению уровней. Все эти эффекты могут давать вклад в длинноволновый сдвиг линии ФЛ [9].

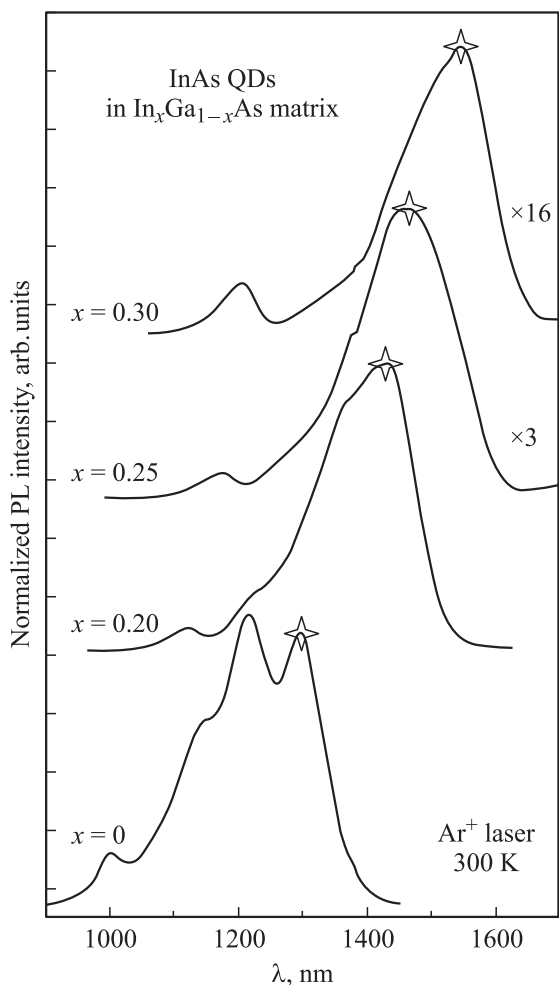


Рис. 3. Нормированные спектры фотолюминесценции от квантовых точек InAs, осажденных на слой $In_xGa_{1-x}As$ с различным содержанием InAs (x).

При содержании InAs в материале матрицы менее 20% нами не наблюдалось падения интегральной эффективности ФЛ вплоть до высоких плотностей возбуждения, что согласуется с локализацией прорастающих дислокаций в буферном слое. При увеличении содержания InAs в материале матрицы выше 25% наблюдается падение интенсивности ФЛ, что связано как с частичным проникновением остаточных дислокаций из буферного слоя в верхние слои, так и с образованием дислоцированных КТ в процессе зарастивания начальных островков слоем InGaAs с достаточно высоким (> 45%) содержанием In [10,11]. Оба эффекта наблюдаются в изображениях структур, полученных просвечивающей электронной микроскопией.

На спектре ФЛ образца с квантовыми точками в матрице $In_{0.2}Ga_{0.8}As$, снятом при большой плотности возбуждения (рис. 4, штриховая линия), можно видеть линии, соответствующие основному и возбужденным состояниям, а также линию ФЛ квантовой ямы, образованной смачивающим слоем и слоем $In_{0.4}Ga_{0.6}As$,

использованным для зарастивания начальных островков. Пик при энергии 1.185 эВ соответствует излучению из матрицы $In_{0.2}Ga_{0.8}As$. Вследствие неоднородного уширения ансамбля квантовых точек точное определение энергий максимумов на спектре ФЛ затруднено. Более детальное определение энергий оптических переходов возможно при помощи спектроскопии возбуждения люминесценции, позволяющей исследовать процессы релаксации и рекомбинации в квантовых точках, имеющих определенную энергию основного состояния (точнее, ансамбля точек, энергии основных состояний которых находятся в пределах спектрального разрешения оптической системы — обычно несколько мэВ). Поскольку при низких температурах латеральный транспорт между КТ отсутствует, спектры возбуждения люминесценции (СВЛ), снятые по контуру линии ФЛ, позволяют определить энергетический спектр КТ с различными энергиями основного состояния, т.е. для точек разного размера.

На рис. 4 представлены СВЛ, снятые при температуре $T = 10$ К и при различных энергиях детектирования $E_{DET} = 0.94, 0.96$ и 0.985 эВ (энергии детектирования обозначены стрелками). На приведенных СВЛ наблюдаются максимумы, соответствующие поглощению в матрице InGaAs, поглощению в квантовой яме, образованной смачивающим слоем и зарастивающим слоем $In_yGa_{1-y}As$ (обозначено WL на рис. 4), и на возбужденных состояниях (обозначено SES и FES на рис. 4). Сложная структура максимумов возбужденных состояний может быть объяснена исходя из следующих соображений. Как было теоретически показано в работе [12], в квантовых точках InAs–GaAs пирамидальной формы достаточно большого размера существуют несколько электронных и дырочных уровней. Также известно, что вырождение уровней в квантовых точках пирамидальной

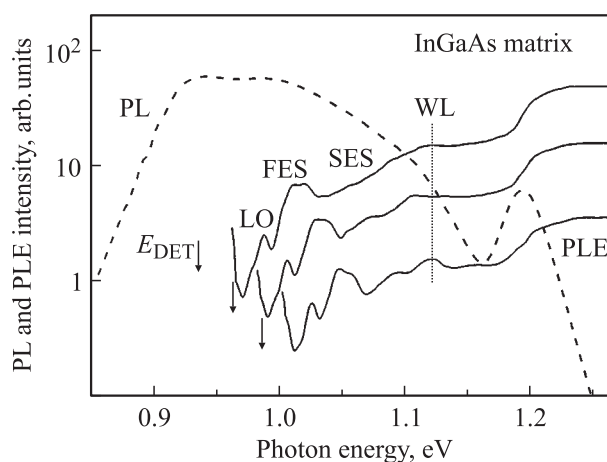


Рис. 4. Спектр фотолюминесценции квантовых точек InAs, осажденных на слой $In_{0.2}Ga_{0.8}As$, полученный при возбуждении Ar-лазером (1.5 кВт/см²) — штриховая линия; спектры возбуждения фотолюминесценции, полученные при энергиях детектирования E_{DET} , эВ: 0.94, 0.96 и 0.985 эВ — сплошные линии.

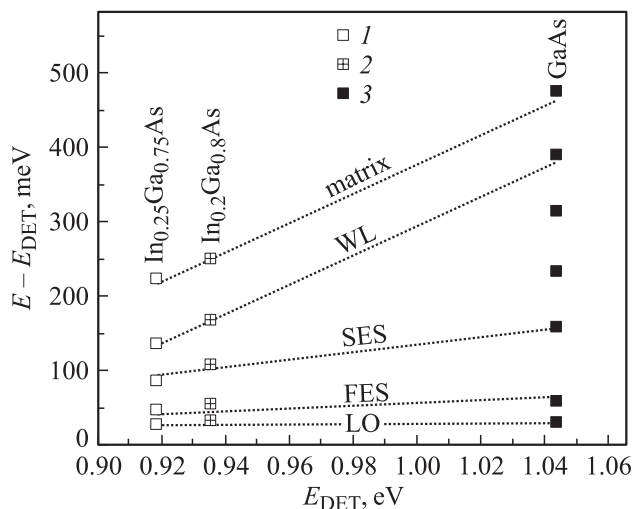


Рис. 5. Энергии положений максимумов спектров возбуждения фотолюминесценции, из которых для удобства восприятия вычтено значение энергии детектирования E_{DET} , для квантовых точек в матрицах: 1 — $In_{0.25}Ga_{0.75}As$, 2 — $In_{0.2}Ga_{0.8}As$, 3 — $GaAs$.

формы с квадратным основанием полностью снимается за счет кулоновского взаимодействия и пьезоэлектрического эффекта [12]. Поэтому в энергетическом спектре точек имеется большое количество уровней, хотя вероятности оптических переходов между некоторыми из них могут быть достаточно малыми (частично запрещенные переходы). В результате при рассмотрении свойств ансамбля квантовых точек оптические переходы в них с близкими энергиями могут вести себя как один „эффективный переход“ и линия поглощения такого „эффективного возбужденного состояния“ будет являться суперпозицией неоднородно уширенных линий переходов с участием возбужденных состояний, имеющих близкие энергии.

Пики отдельных переходов в СВЛ, лежащие в пределах „второго эффективного возбужденного состояния“, разрешаются значительно хуже. Это может быть связано с большим количеством таких близко расположенных переходов, а также их более высоким неоднородным уширением. Кроме того, вследствие возможной флуктуации формы КТ одному основному состоянию могут, вообще говоря, соответствовать несколько возбужденных состояний.

Необходимо отметить, что при интерпретации пиков в СВЛ следует учитывать процессы релаксации носителей заряда [13]. Высокая относительная интенсивность пиков некоторых возбужденных состояний связана с тем, что их энергия отстоит от энергии основного состояния на кратное количество энергии продольных оптических (LO) фононов, тем самым облегчая релаксацию носителей из данного возбужденного состояния [14]. В нашем случае на СВЛ также наблюдается пик, связанный с фоновой релаксацией и отстоящий от энергии

детектирования на 35 мэВ, что соответствует энергии LO-фонона в системе $InAs-GaAs$.

На рис. 5 приведены энергии положений максимумов СВЛ, сдвинутые для удобства восприятия на энергию детектирования, для КТ в матрицах $In_{0.25}Ga_{0.75}As$, $In_{0.2}Ga_{0.8}As$ и $GaAs$. Во всех случаях детектирование СВЛ производилось при энергии максимума спектра ФЛ, соответствующего переходам с основного состояния КТ. Видно, что в случае КТ, осажденных на слой $InGaAs$, при увеличении содержания In происходит уменьшение энергии локализации носителей заряда, определяемой нами как разница ширины запрещенной зоны матрицы и энергии оптического перехода с основного состояния в КТ. Кроме того, происходит уменьшение разности между энергиями возбужденных состояний и основного состояния. Данный факт можно объяснить тем, что при увеличении латерального размера КТ уменьшается разность энергий между подуровнями электронов (дырок) в КТ, а число подуровней, по-видимому, возрастает [15].

4. Заключение

Исследованы структурные и оптические свойства квантовых точек $InAs$ в матрице $In_xGa_{1-x}As$ ($0 \leq x \leq 0.3$). Данные точки формировались на поверхности толстого метаморфного слоя $In_xGa_{1-x}As$, выращенного на подложке $GaAs$. Концентрация квантовых точек и их латеральный размер при росте на метаморфном буферном слое $InGaAs$ выше, чем при росте на $GaAs$. Высота точек остается приблизительно постоянной. В зависимости от состава материала матрицы длину волны максимума спектра излучения квантовых точек можно контролируемым образом изменять от 1.3 мкм ($x = 0$) до 1.55 мкм ($x = 0.3$) при сохранении высокой эффективности люминесценции. Методом спектроскопии возбуждения ФЛ исследован спектр энергетических состояний КТ. При росте содержания $InAs$ в материале матрицы наблюдается уменьшение энергии локализации квантовых точек (разности энергий основного состояния квантовых точек и ширины запрещенной зоны матрицы), а также уменьшение разности энергий основного и возбужденных состояний.

Работа выполнена в рамках совместного проекта ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН и NSC-Nanosemiconductor-GmbH (Германия). Н.В. Крыжановская благодарит программу INTAS „Joung Scientist Fellowship“ за поддержку.

Список литературы

- [1] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum dot heterostructures* (John Wiley and Sons, 1999).
- [2] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, D. Bimberg. *Epitaxy of Nanostructures* (Springer, Berlin, 2003).

- [3] В.А. Одноблюдов, А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш, А.Г. Гладышев, Н.В. Крыжановская, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов. ФТП, в печати.
- [4] А.Е. Жуков, С.С. Михрин, Е.С. Семенова, А.Р. Ковш, Н.А. Малеев, А.П. Васильев, Н.В. Крыжановская, А.Г. Гладышев, Ю.М. Шерняков, Ю.Г. Мусихин, М.В. Максимов, Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов. ФТП, **37** (9), 1143 (2003).
- [5] А.Е. Жуков, А.П. Васильев, А.Р. Ковш, С.С. Михрин, Е.С. Семенова, А.Ю. Егоров, В.А. Одноблюдов, Н.А. Малеев, Е.В. Никитина, Н.В. Крыжановская, А.Г. Гладышев, Ю.М. Шерняков, М.В. Максимов, Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, Ж.И. Алфёров. ФТП, **37** (12), 1461 (2003).
- [6] N.N. Ledentsov, F.R. Kovsh, A.E. Zhukov, N.A. Maleev, S.S. Mikhlin, A.P. Vasil'ev, M.V. Maximov, Yu.M. Shernyakov, N.V. Kryzhanovskaya, V.M. Ustinov, D. Bimberg. *Electron. Lett.*, **39**, 1126 (2003).
- [7] N.N. Ledentsov. USA. Patent № 6653166 „Semiconductor device and method of making same“.
- [8] L.V. Asryan, M. Grundmann, N.N. Ledentsov, O. Stier, R.A. Suris, D. Bimberg. *IEEE J. Quant. Electron.*, **37** (3), 418 (2001).
- [9] F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliwa, O. Stier, N.N. Ledentsov, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, D. Bimberg. *Phys. Rev. B*, **64** (15), 85 305 (2001).
- [10] Б.В. Воловик, А.Ф. Цапульников, Д.А. Бедарев, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, Н.А. Малеев, Ю.Г. Мусихин, А.А. Суворова, В.М. Устинов, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг, П. Вернер. ФТП, **33** (8), 990 (1999).
- [11] M.V. Maximov, A.F. Tsatsul'nikov, B.V. Volovik, D.S. Sizov, Yu.M. Shernyakov, I.N. Kaiander, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, S.S. Mikhlin, V.M. Ustinov, Yu.G. Musikhin, R.Heitz, V.A. Shchukin, W. Neumann, N.N. Ledentsov, Zh.I. Alferov, D. Bimberg. *Phys. Rev. B*, **62** (24), 16 671 (2000).
- [12] O. Stier, M. Grundmann, D. Bimberg. *Phys. Rev. B*, **59** (8), 5688 (1999).
- [13] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Christen, R. Heitz, J. Böhrer, F. Heinrichsdorff, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev and Zh.I. Alferov. *Proc. 22nd Int. Conf. on Phys. of Semicond.* (Vancouver, Canada, 1994), ed by D.J. Lockwood (World Scientific, Singapore, 1995) v. 3, p. 1855.
- [14] R. Heitz, O. Stier, I. Mukhametzhanov, A. Madhukar, D. Bimberg. *Phys. Rev. B*, **62** (16), 11 017 (2000).
- [15] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, O. Schmidt, R. Heitz, J. Böhrer, D. Bimberg, V.M. Ustinov, V.A. Shchukin, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, S.S. Ruvimov, A.O. Kosogov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich. *Proc. 7th Int. Conf. Modulated Semicond. Struct.* (Madrid, July, 1995). [*Sol. St. Electron.*, **40**, 785 (1996)].

Редактор Т.А. Полянская

Optical and structural properties of InAs quantum dot arrays grown in an InGaAs matrix on the GaAs substrate

N.V. Kryzhanovskaya, A.G. Gladyshev, S.A. Blokhin, Yu.G. Musikhin, A.E. Zhukov, M.V. Maximov, N.D. Zakharov*, A.F. Tsatsul'nikov, N.N. Ledentsov**, P. Werner*, F. Guffart**, D. Bimberg**

Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

* Max-Planck Institut für Mikrostrukturphysik,
Halle, Deutschland

** Institut für Festkörperphysik,
Technische Universität Berlin, Deutschland

Abstract Structural and optical properties of InAs quantum dots (QDs) embedded in a thick InGaAs metamorphic layer grown on GaAs substrate have been studied. Both the density and lateral size of such QDs increase as compared to the case of QDs grown on GaAs layer. The increase on In content in the InGaAs layer results in a redshift of the photoluminescence line. The wavelength of QD emission is $1.55 \mu\text{m}$ for the In concentration 30 at% in the InGaAs matrix. The energy spectrum of the quantum dots has been studied by the photoluminescence excitation.