

06;07

Влияние времени экспозиции в потоке мышьяка на оптические свойства ансамблей квантовых точек в системе InAs/GaAs(100)

© В.Г. Дубровский, Н.В. Крыжановская, В.М. Устинов, А.А. Тонких,
В.А. Егоров, Н.К. Поляков, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цырлин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург
Институт аналитического приборостроения РАН, С.-Петербург

Поступило в Редакцию 16 октября 2003 г.

Проведено исследование зависимости оптических свойств ансамблей квантовых точек в системе InAs/GaAs(100) от времени экспозиции структур с эффективной толщиной 1.9 монослоя в потоке As₄ после выключения потока In. Результаты измерения спектров фотолюминесценции эпитаксиально выращенных образцов демонстрируют увеличение длины волны излучения при увеличении времени экспозиции до некоторого момента времени, что находится в соответствии с предсказаниями кинетической модели формирования квантовых точек на начальном этапе роста.

В настоящее время возрастает поток работ, посвященных исследованию зависимости структурных и оптических свойств ансамблей квантовых точек (КТ) от условий гетероэпитаксиального роста. Это объясняется необходимостью создания ансамблей КТ с необходимыми для тех или иных применений свойствами, например, для оптоэлектронных приложений необходимо формировать КТ размера, определяющего рабочую длину волны прибора и увеличивать плотность для повышения усиления в лазерах [1]. Как показано во многих экспериментальных [2,3] и теоретических [4,5] работах, структурными параметрами можно управлять, выбирая соответствующим образом условия роста, такие как температура поверхности, скорость роста, эффективная толщина и время экспозиции в потоке мышьяка. Настоящая работа продолжает цикл исследований, начатый в работах [3–5], посвященный детальному количественному исследованию влияния технологически контролируемых условий эпитаксиального роста на свойства ансамблей квантовых

точек в системе InAs/GaAs(100). Приведены результаты исследования методом фотолюминесценции (ФЛ) InAs КТ, выращенных на сингулярных поверхностях GaAs(100) при фиксированной эффективной толщине осажденного InAs, ростовой температуре и скорости роста InAs и различных временах экспозиции КТ в потоке As₄ до зарастивания структуры.

Как следует из теоретического анализа работы [5], основанного на кинетической модели формирования КТ под действием упругих напряжений [4], на кинетической (начальной) стадии процесса роста КТ зависимость среднего латерального размера от времени определяется следующим уравнением в безразмерных переменных:

$$\frac{t - t_c}{t_R} = \ln \left[\frac{(1 + l + l^2)^{1/2}}{1 - l} \right] - \sqrt{3} \arctan \left(\frac{2l + 1}{\sqrt{3}} \right) + \frac{\pi}{2\sqrt{3}} \equiv U(l). \quad (1)$$

Здесь $t = t_0 + t_{exp}$, $t_0 = H_0/V$ — время нанесения H_0 монослоев (МС) InAs при скорости роста InAs = V МС/с, $t_c = H_c/V$ — время выращивания смачивающего слоя (СС) критической толщины [1] (для рассматриваемой системы $H_c \sim 1.7$ МС) $l = L/L_R$, L — средний латеральный размер, L_R — квазистационарный латеральный размер островков по окончании стадии релаксации по размерам, имеющей продолжительность $\sim 3t_R$, t_R — характерное время релаксации по размерам. Выражения для L_R и t_R приведены в [5]; для дальнейшего важно, что квазистационарный размер и время релаксации по размерам определяются энергетикой системы, рассогласованием решеток, геометрической формой островков, эффективной толщиной H_0 , температурой поверхности T и скоростью роста V . Следовательно, в предположении постоянной формы островков на начальной стадии роста и при постоянных значениях H_0 , T и V величины L_R и t_R можно рассматривать как константы, заданные указанными параметрами. Поскольку правая часть (1) не содержит никаких параметров модели, зависимость $l((t - t_c)/t_R)$ имеет универсальный вид, изображенный на рис. 1, получаемый в результате обращения уравнения (1). При данных значениях эффективной толщины, температуры и скорости роста из рис. 1 следует, что теория предсказывает монотонное увеличение среднего размера островков при увеличении времени экспозиции с выходом на насыщение при больших временах $t \sim t_c + 3t_R$, соответствующих квазистационарному размеру $L = L_R$. В квазистационарном состоянии все вещество из СС,

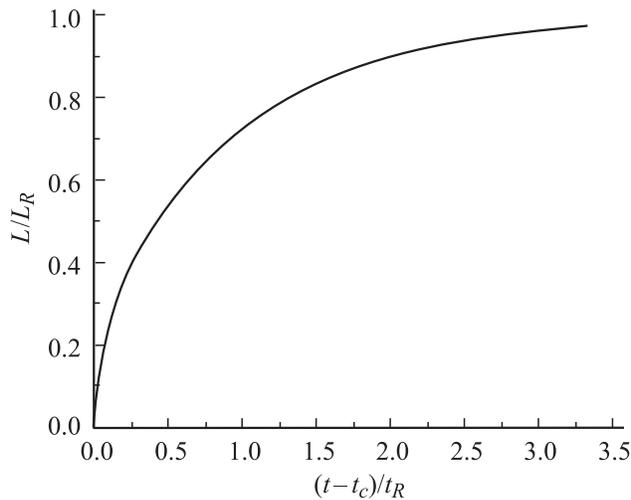


Рис. 1. Универсальная зависимость приведенного среднего размера островков L/L_R от безразмерного времени $(t - t_c)/t_R$ на стадии релаксации островков по размерам.

избыточное по сравнению с равновесной толщиной, определяемой балансом смачивающих и упругих сил в соответствии с критерием Мюллера–Керна [6], оказывается распределенным в островках. Теоретическая модель [4] также предсказывает уменьшение относительной дисперсии распределения островков по латеральным размерам при увеличении времени экспозиции структуры.

Ростовые эксперименты проводились на установке молекулярно-пучковой эпитаксии ЭП1203 на полуизолирующих сингулярных подложках GaAs (100). Была выращена серия, состоящая из 4 образцов. Активная область образцов всей серии формировалась осаждением слоя InAs эффективной толщиной 1.9 нм, выращенного при скорости напыления $V = 0.03$ нм/с, с последующей выдержкой в потоке As₄ в течение времени $t_{exp} = 0; 7.5; 15$ и 22.5 s для различных образцов. Температура подложки при осаждении слоя КТ, их последующей выдержке и зарачивании слоем GaAs толщиной 5 нм для предотвращения испарения индия из осажденных КТ составляла $T = 485^\circ\text{C}$. Наблюдение

за процессом осаждения InAs КТ с помощью метода дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО) показало, что резкий переход от линейчатой картины дифракции к точечной, соответствующей трехмерному росту, происходил после напыления слоя InAs толщиной порядка 1.7 МС для всех образцов. Для предотвращения транспорта неравновесных носителей при проведении оптических исследований в приповерхностную область и в область подложки активная область ограничивалась с обеих сторон короткопериодными сверхрешетками $Al_{0.25}Ga_{0.75}As/GaAs$ (5 пар, 25А/25А). Сверху структура покрывалась слоем GaAs толщиной 5 nm. Для буферной области, сверхрешеток и верхнего слоя GaAs температура роста составляла 600°С. Парциальное давление паров As_4 в камере роста было не выше $1.5 \cdot 10^{-6}$ Pa для всех экспериментов. Фотолюминесценция возбуждалась Ar^+ -лазером ($\lambda = 514.5$ nm, плотность возбуждения ~ 100 W/cm²). Излучение детектировалось охлаждаемым Ge фотодиодом.

На рис. 2 представлены ФЛ-спектры для образцов с используемыми временами выдержки после осаждения слоя КТ с $t_{exp} = 0$, и 7.5 s, снятые при комнатной температуре. На вставке к рис. 2 представлены экспериментально полученные значения длины волны излучения в зависимости от времени экспозиции. Из представленных спектров видно, что при увеличении времени экспозиции спектральная полоса, соответствующая рекомбинации в КТ через основное состояние, сужается с ~ 80 до ~ 33 meV, что свидетельствует об увеличении однородности распределения КТ по размерам. Создание равномерных по размерам ансамбля КТ необходимо для многих практических приложений, например, при формировании так называемых „квантовых молекул“ [7], где требования к однородности размеров КТ являются необходимыми. Положение максимума длины волны излучения при увеличении времени экспозиции до 15 s смещается в длинноволновую часть спектра, дальнейшее увеличение времени экспозиции приводит уже к коротковолновому сдвигу. Длинноволновый сдвиг объясняется увеличением размеров КТ во время экспозиции в потоке мышьяка после их осаждения, происходящий за счет потребления материала из смачивающего слоя. Видно, что теоретические и экспериментальные данные находятся в качественном соответствии вплоть до времен выдержки ~ 15 s. Дальше, поскольку количество материала в смачивающем слое ограничено, размеры КТ и, следовательно, длина волны излучения должны выходить на некоторую асимптотику (рис. 1). Однако при $t_{exp} = 22.5$ s наблюда-

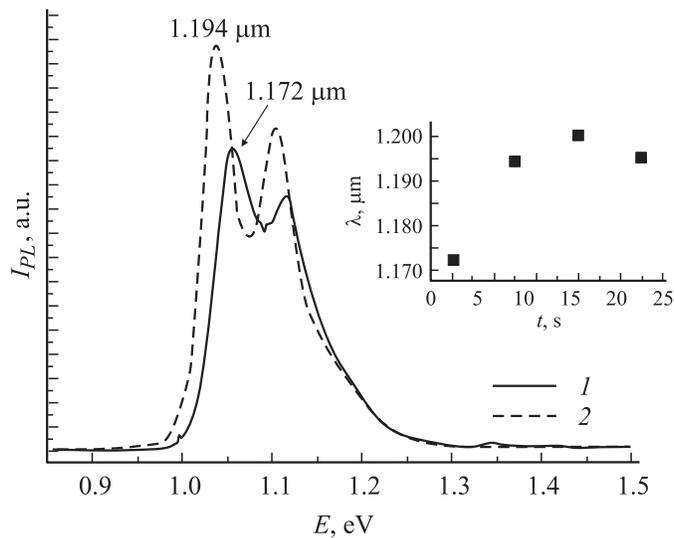


Рис. 2. ФЛ-спектры для структур с 1.9 мкм InAs КТ, снятые при комнатной температуре, время выдержки в потоке мышьяка после осаждения слоя КТ: 1 — 0 с, 2 — 7.5 с. На вставке показана экспериментально полученная зависимость положения максимума пика излучения из КТ от времени выдержки в потоке мышьяка.

ется сдвиг в коротковолновую область, который может быть объяснен следующим: существующий в начальный момент времени разброс по размерам КТ приводит к тому, что во время экспозиции в потоке мышьяка КТ разного размера увеличиваются с различной скоростью, поскольку потребление материала из смачивающего островками идет в основном по периметру островка. В некоторый момент времени КТ больших размеров увеличиваются до таких размеров, что накопленные упругие напряжения в КТ приводят к их дислокации, а это, в свою очередь, ведет к выключению таких КТ из механизма излучательной рекомбинации. Данное объяснение подтверждается и наблюдаемым падением интегральной интенсивности излучения. Использование в наших ростовых экспериментах относительно низкой скорости роста ~ 0.03 МС/с позволяет получать сразу после осаждения КТ большего

размера [3], чем при обычно используемой скорости роста 0.1 МС/с. Длина волны ФЛ излучения из смачивающего слоя уменьшается при увеличении времени экспозиции, что свидетельствует об уменьшении толщины смачивающего слоя. Для более детального изучения структурных свойств таких структур планируется проведение исследований методами просвечивающей электронной микроскопии, в том числе и высокого разрешения.

Таким образом, теоретически предсказаны и экспериментально подтверждены две тенденции при формировании КТ при осаждении InAs КТ с последующей выдержкой в потоке мышьяка: увеличение размеров КТ при увеличении времени экспозиции (в наших экспериментах) до 15 с и увеличение их однородности. Последнее обстоятельство может быть использовано в структурах, где требование по равномерности размеров КТ является необходимым, например, в устройствах с „квантовыми молекулами“.

Данная работа выполнена при частичной финансовой поддержке INTAS, научными программами Минпромнауки и технологии РФ, Российского фонда фундаментальных исследований.

Г.Э. Цырлин выражает признательность Alexander von Humboldt Stiftung. В.М. Устинов благодарен Фонду содействия отечественной науке.

Список литературы

- [1] *Bimberg D., Grundmann M., Ledentsov N.N.* Quantum dot heterostructures. Chichester: Wiley&Sons, 1999.
- [2] *Songmuang R., Kiravittaya S., Sawadsaringkarn M., Panyakeow S., Schmidt O.G.* // J. Cryst. Growth. 2003. V. 251. P. 166.
- [3] *Дубровский В.Г., Егоров В.А., Цырлин Г.Э., Поляков Н.К., Самсоненко Ю.Б., Крыжановская Н.В., Цацульников А.Ф., Устинов В.М.* // ФТП. 2003. Т. 37. С. 883.
- [4] *Dubrovskii V.G., Cirilin G.E., Ustinov V.M.* // Phys. Rev. B. 2003. V. 68. P. 075409.
- [5] *Dubrovskii V.G.* // Phys. Stat. Sol. (b). 2003. V. 238. P. R1.
- [6] *Müller P., Kern R.* // Appl. Surf. Sci. 1996. V. 102. P. 6.
- [7] *Wasilevski Z.R., Fafard S., McCaffrey J.P.* // J. Cryst. Growth. 1999. V. 201/202. P. 1131.