

06

Особенности фотолюминесценции метаморфных квантовых точек InAs, связанные с кооперативными явлениями в системе квантовые точки—матрица

© А.П. Васильев, А.Г. Гладышев, А.Е. Жуков,
Н.В. Крыжановская, В.С. Михрин, Ю.Г. Мусихин,
В.С. Петров, В.В. Ратников, Н.М. Шмидт

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург
E-mail: Natalia.Schmidt@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 14 декабря 2006 г.

Исследована фотолюминесценция (ФЛ) нескольких серий наноструктур с метаморфными квантовыми точками (КТ) InAs в матрице $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ переменного состава от 14 до 30%, а также с введенными 5-nm прослойками твердых растворов (ПТР) $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ или $\text{In}_{0.4}\text{Al}_{0.6}\text{As}$ между КТ и матрицей. Показано, что кооперативные явления в системе КТ—матрица с ростом содержания In в матрице более 20% происходят по разным механизмам в зависимости от того, какая из ПТР введена. Эти явления существенным образом изменяют положение максимума и величину интенсивности ФЛ и играют более важную роль в формировании оптических свойств, чем размер и однородность первоначально введенных точек.

PACS: 78.55.-m, 81.07.Ta

Излучающие полупроводниковые приборы с квантовыми точками — быстро развивающаяся и привлекающая внимание исследователей область физики полупроводников. Несмотря на то что создана теория рабочих характеристик лазеров на идеальных квантовых точках (КТ), однородных по форме и размеру [1], блестяще подтвержденная экспериментально полученными инжекционными лазерами [2], полупроводниковая нанотехнология приборов с самоорганизованными квантовыми точками пока не смогла шагнуть в массовое производство из-за проявляющейся во многих случаях недостаточной воспроизводимости. Результаты многочисленных исследований, проведенных в научных центрах разных стран мира, показали, что причины невоспроизводи-

мости параметров носят фундаментальный характер [3,4]. В процессе наращивания самоорганизованного ансамбля КТ (операции, необходимой для создания приборных структур) практически на всех полупроводниковых материалах наблюдается изменение состава, плотности и размеров первоначально сформированных КТ из-за взаимодействия материала матрицы с ансамблем КТ [4,5]. В случае недостаточной стабильности условий осаждения эти кооперативные явления могут приводить к многообразию форм существования наноматериала с разным уровнем самоорганизации — от структурно-совершенного до материала с высокой плотностью протяженных дефектов, что и может являться причиной невоспроизводимости оптических и электрических свойств приборных структур. Свойства наноструктур с КТ во всем их многообразии мало изучены и отчасти это связано с тем, что до недавнего времени отсутствовали методы, количественно отражающие характер самоорганизации наноматериала с КТ.

В [6] показано, что один из возможных путей выяснения роли кооперативных явлений в формировании электрических и оптических свойств наноструктур с КТ состоит в привлечении, наряду с традиционными методами, системных методов [7], применяемых для изучения сложных систем, позволяющих количественно охарактеризовать уровень самоорганизации и степень упорядоченности системы. Эти параметры несут информацию об особенностях связи частей сложной системы в целом и могут быть определены путем исследования морфологии поверхности методами атомно-силовой микроскопии с последующей компьютерной обработкой числового множества, соответствующего изображению поверхности, методами мультифрактального анализа.

Основной целью работы явилось выяснение вклада кооперативных явлений в системе КТ InAs–матрица InGaAs (активная область) в формирование фотолюминесцентных свойств КТ при изменении состава матрицы InGaAs по InAs и при введении тонких слоев InGaAs или InAlAs в активную область с привлечением методов мультифрактального анализа.

Для проведения исследований было выращено несколько типов наноструктур на подложках GaAs методами молекулярно-лучевой эпитаксии. Температурный режим роста для всех типов структур был одинаковым, так же как и толщины переходного буферного слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и верхних наращивающих слоев толщиной 100 нм. Более подробно режимы, составы и толщины приведены в [8]. Активная область всех наноструктур состояла из матрицы — слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ толщиной 0.2 мкм,

ограниченного 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 на поверхность и в буферный слой. КТ находились в середине слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и формировались путем осаждения 2.8 монослоев (МС) InAs . Были выращены две серии наноструктур с КТ, сформированными в матрице $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с разной концентрацией InAs , она варьировалась от 14 до 30%. Серии отличались между собой только тем, что в одной из них сформированные КТ зарастивались тонким слоем $\text{In}_y\text{Al}_{1-y}\text{As}$ ($y = 0.4$) с эффективной толщиной 5 nm, а в другой серии — тонким слоем $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.4$) такой же толщины. Далее будем именовать эти серии КТ/ $\text{In}_y\text{Al}_{1-y}\text{As}$ и КТ/ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$.

На спектрах фотолюминесценции (ФЛ) всех исследуемых наноструктур при комнатной температуре и плотности мощности оптической накачки 1.5 kW/m^2 наблюдались пики, соответствующие излучению из КТ и матрицы. Линии ФЛ КТ имели малые полуширины, менее 65 meV. На рис. 1 приведена зависимость положения максимума ФЛ КТ при 300 К от состава матрицы для всех исследованных серий наноструктур. Положение линии фотолюминесценции матрицы следует зависимости для ширины запрещенной зоны твердого раствора $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. Для двух серий образцов зависимость длины волны излучения КТ от состава матрицы практически совпадает при изменении содержания арсенида индия в матрице от 14 до 22%, но при дальнейшем увеличении содержания InAs характер зависимости длины волны от состава существенно отличается. Для наноструктур с КТ/ $\text{In}_y\text{Al}_{1-y}\text{As}$ не наблюдается увеличения длины волны с ростом содержания InAs в матрице, в то время как для КТ/ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ длина волны ФЛ продолжает расти. При этом максимальный сдвиг до $1.59 \mu\text{m}$ наблюдается при введении тонкого слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0.4$) в активную область наноструктур с содержанием InAs в матрице около 30%. Представляется, что наблюдаемые особенности могут быть связаны с изменением самоорганизации наноматериала в активной области в результате кооперативных явлений в системе КТ–матрица. Из ранее проведенных исследований известно [6], что в некоторых случаях особенности морфологии поверхности несут информацию о кооперативных явлениях в активной области наноструктур. Исследование морфологии поверхности методами сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) и атомно-силовой микроскопии (АСМ) позволили установить, что типичным для большинства исследованных наноструктур является образование гофра на всей поверхности. Вид такой поверхности, полученный

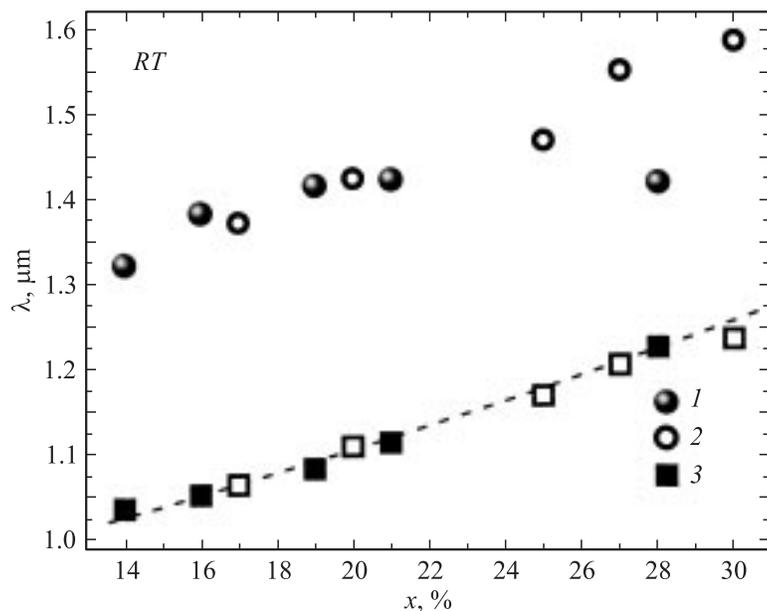


Рис. 1. Зависимость положения максимума фотолюминесценции от содержания InAs в матрице для серии наноструктур с квантовыми точками КТ/InAlAs (1) и КТ/InGaAs (2). Положение линии фотолюминесценции матрицы (3) следует зависимости для ширины запрещенной зоны твердого раствора $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ (показана пунктирной линией).

методами АСМ, приведен на рис. 2, а. Образование гофра — это один из распространенных механизмов частичной релаксации напряжений в тонких слоях и наноструктурах [9]. Данные АСМ позволяют по профилю сечения гофра, пользуясь известным соотношением, количественно оценить величину напряжений, вызывающих образование гофра [9]:

$$\sigma = \frac{2Gh^2}{L_d L_0}, \quad (1)$$

где G — модуль упругости, h — высота рельефа, L_d — ширина гребня рельефа у основания, L_0 — расстояние между гребнями рельефа.

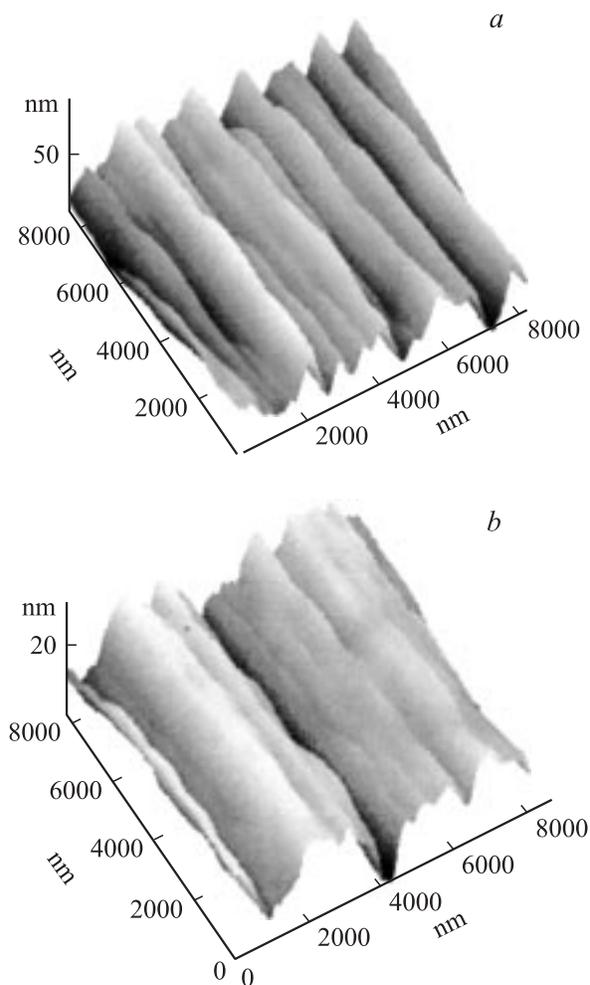


Рис. 2. Эволюция гофра на поверхности наноструктур: содержание InAs в матрице: *a* — 14%, *b* — 20–25%, *c* — 30% (АСМ-изображения).

Для наноструктур с введенными тонкими слоями в активную область по мере увеличения содержания InAs (20%) в матрице наблюдается расплывание гофра (рис. 2, *b*) по сравнению с матрицей с меньшим

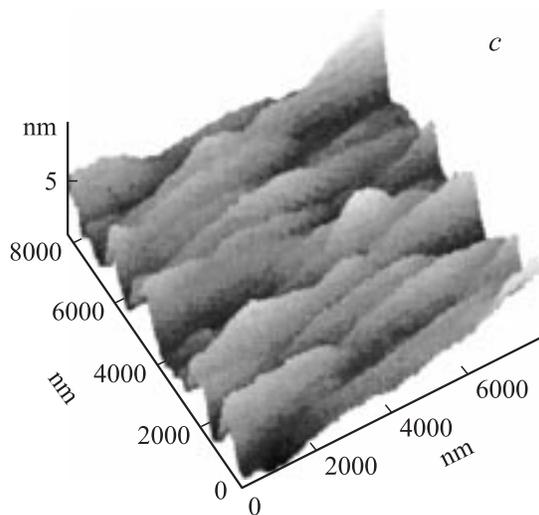


Рис. 2 (продолжение).

(14%) содержанием InAs (рис. 2, *a*), и оценки по формуле (1) показывают, что по этому механизму релаксируют напряжения, в 3 раза меньше по величине, чем для матрицы с 14% InAs. Это позволяет предполагать, по аналогии с ранее проведенными исследованиями [9], что релаксация напряжений частично происходит внутри активной области и приводит к изменениям в системе КВ–матрица в результате интердиффузии компонент твердого раствора. Дальнейшее увеличение содержания арсенида индия в матрице для серии наноструктур с $\text{KT}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ приводит к еще большему расплыванию гофра и, наконец, к практически полному его исчезновению и появлению разупорядоченной структуры рис. 2, *с*. Степень разупорядоченности (Δ), определенная методами мультифрактального анализа, возрастает до значений 0.385 по сравнению с 0.20, типичным для хорошо упорядоченных наноструктур. Наблюдаемые особенности могут быть связаны с распадом тонкого слоя твердого раствора $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, по-видимому, менее равновесного, чем $\text{In}_y\text{Al}_{1-y}\text{As}$, в поле напряжений с последующим переносом In по механизму Киркендалла к ранее сформированным КТ InAs, и можно ожидать увеличение их размеров. Просвечивающая электронная спек-

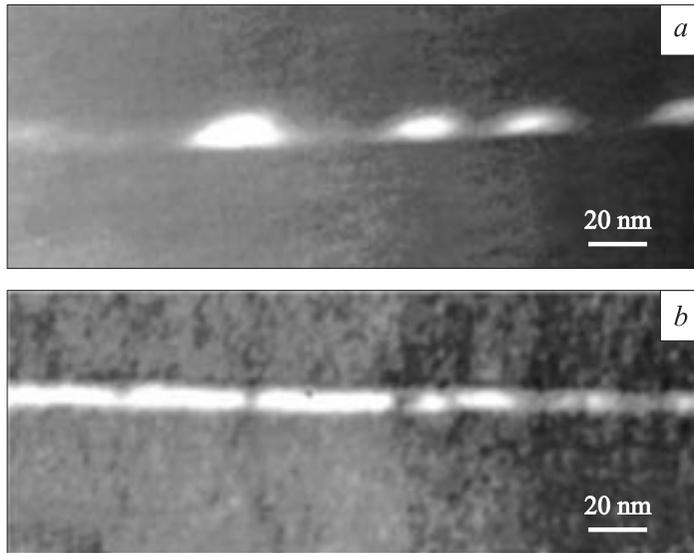


Рис. 3. Изображения просвечивающей электронной микроскопии квантовых точек в матрице с содержанием арсенида индия: *a* — 20% и *b* — 30%.

троскопия (ПЭМ) подтверждает увеличение размеров квантовых точек. ПЭМ-изображения наноструктур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с содержанием арсенида индия в матрице 20 и 30% приведены на рис. 3.

Разупорядоченность наноструктур с высоким содержанием арсенида индия в матрице приводит к падению интенсивности ФЛ почти на порядок по сравнению с хорошо упорядоченными наноструктурами с меньшим содержанием InAs в матрице ($\Delta = 0.234$). Для серии наноструктур с $\text{KT}/\text{In}_y\text{Al}_{1-y}\text{As}$ дальнейшего расплывания рельефа с ростом содержания InAs в матрице не наблюдается, степень упорядоченности наноструктуры практически не изменяется. Значения Δ изменяются незначительно от 0.234 до 0.240, а релаксация напряжений сопровождается образованием протяженных дефектов в виде пустот и дефектов упаковки типа вычитания, что хорошо видно на СЭМ-изображении поверхности наноструктуры с $\text{KT}/\text{In}_y\text{Al}_{1-y}\text{As}$ с содержанием InAs в матрице 28% (рис. 4), полученном с помощью сканирующей электронной микроскопии. Эти особенности позволяют

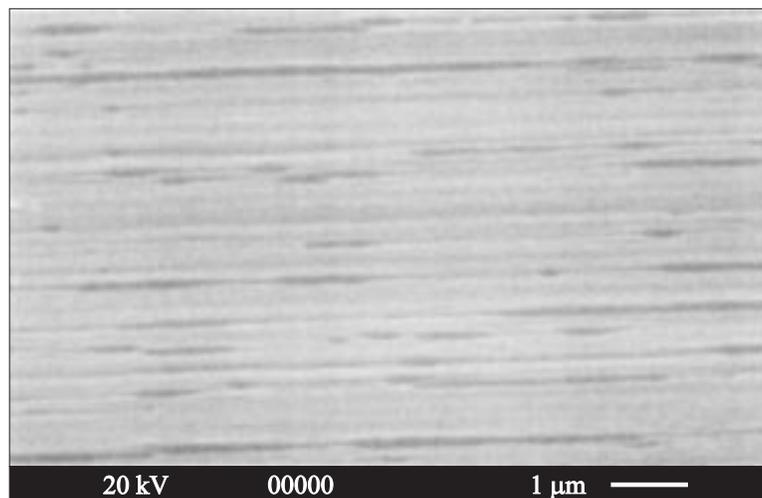


Рис. 4. Изображение в сканирующем электронном микроскопе поверхности наноструктуры с $\text{KT/In}_y\text{Al}_{1-y}\text{As}$ с содержанием InAs в матрице 28%.

предполагать, что для этих наноструктур по мере роста концентрации InAs в твердом растворе матрицы развивается пересыщение твердого раствора активной области вакансиями и при концентрациях выше 20% начинается их коалесценция в поры, ориентированные вдоль гофра, что является типичным проявлением эффекта Френкеля [10]. Падение интенсивности ФЛ для этих структур также наблюдается, но оно существенно меньше, чем для наноструктур с $\text{KT/In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. Результаты анализа морфологии поверхности хорошо согласуются с наблюдаемыми оптическими свойствами и данными просвечивающей электронной микроскопии.

Таким образом, проведенные исследования показали, что кооперативные явления в системе КТ–матрица могут развиваться по разным механизмам. Это существенным образом изменяет положение максимума и величину интенсивности фотолюминесценции, и при концентрациях In больше 20% в твердом растворе матрицы могут играть более важную роль в формировании оптических свойств, чем размер и однородность первоначально введенных точек. Результаты исследования

морфологии поверхности, в том числе и с применением методов мультифрактального анализа, несут информацию о кооперативных явлениях в активной области наноструктур и могут быть использованы для оптимизации технологических процессов.

Работа выполнена при поддержке гранта Н.П.2.1.1.2215 Министерства образования и науки РФ, проекта SANDIE (грант N МР4-СТ-2004-500101) и проекта Санкт-Петербургского научного центра РАН, проекта президиума РАН по программе „Квантовые наноструктуры“ № 3-15.

А.Е. Жуков выражает благодарность „Фонду содействия отечественной науке“.

Список литературы

- [1] *Asryan L.V., Suris R.A.* // *Semicond. Sci. Technol.* 1996. V. 11. P. 554.
- [2] *Maximov M.V., Ledentsov N.N.* // *Dekker Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology.* New York, 2004. P. 3109.
- [3] *Raymond S. et al.* // *Proceeding of 13th International Symposium.* St. Petersburg, 2005. P. 14.
- [4] *Cockayne D.J. et al.* // *Inst. Phys. Conf. Ser.* 2001. N 169. P. 77.
- [5] *Zhi D. et al.* // *Inst. Phys. Conf. Ser.* 2001. N 169. P. 89.
- [6] *Ivanov S.V., Gladyshev A.G., Kamanin A.V., Kolmakov A.G., Kryzhanovskaya N.V., Musikhin Yu.G., Baranov E.E., Petrov V.N., Shmidt N.M.* // *Phys. Stat. Sol. (c).* 2005. V. 2. P. 1912.
- [7] *Kolmakov A.G., Govorkov A.V., Pearton S.J., Shmidt N.M.* // *Solid-State Electronics.* 2003. V. 47. P. 1003.
- [8] *Крыжановская Н.В., Гладышев А.Г., Блохин С.А., Мусихин Ю.Г., Жуков А.Е., Максимов М.В., Захаров Н.Д., Цацульников А.Ф., Леденцов Н.Н., Werner P., Guffart F., Bimberg D.* // *ФТП.* 2004. Т. 38 (7). С. 867. *Kryzhanovskaya N.D., Gladyshev A.G., Blokhin S.A., Musikhin Yu.G., Zhukov A.E., Maksimov M.V., Zakharov N.D., Tsatsul'nikov A.F., Ledentsov N.N., Werner P., Guffart F., Bimberg D.* // *Semiconductors.* 2004. V. 38(7). P. 833
- [9] *Shmidt N.M., Petrov V.N., Ratnikov V.V., Kryzhanovskaya N.V., Gladyshev A.G., Semenova E.S., Zhukov A.E., Ustinov V.M.* // *Proceedings of the 13th International Symposium „Nanostructures: Physics and Technology“.* St. Petersburg, 2005. P. 30.
- [10] *Гегузин Я.Е.* Диффузионная зона. М.: Наука, 1979. С. 343.