

Термическая стабильность массивов вертикально совмещенных квантовых точек InAs–GaAs

© А.Е. Жуков, А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, М.В. Максимов, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов, Н.Ю. Гордеев, С.В. Зайцев, П.С. Копьев, Д. Бимберг[†], Ж.И. Алферов

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

[†] Institut for Festkörperphysik, Technische Universität Berlin,
D-10623 Berlin, Germany

(Получена 22 марта 1996 г. Принята к печати 8 апреля 1996 г.)

Исследуется влияние высокотемпературного отжига на оптические свойства массивов вертикально совмещенных квантовых точек InAs в матрице GaAs, а также на приборные характеристики инжекционного лазера с активной областью на основе массива квантовых точек. Наблюдается сильный коротковолновый сдвиг максимума фотолюминесценции и линии лазерной генерации, изменение интенсивности фотолюминесценции и температурной зависимости пороговой плотности тока. Причиной наблюдаемого поведения, по-видимому, является уменьшение энергии локализации носителей в квантовых точках в результате частичного перемешивания атомов In и Ga, а также повышение структурного упорядочения в слоях Ga(Al)As, выращенных при низкой температуре, в результате высокотемпературного отжига.

Массивы квантовых точек, сформированные в матрице более широкозонного материала, перспективны для использования в качестве активной области инжекционных лазеров. Размерное квантование во всех трех направлениях приводит к модификации плотности состояний, что, как ожидается, позволит значительно улучшить приборные характеристики полупроводниковых лазеров. В частности, предсказано снижение пороговой плотности тока и увеличение характеристической температуры, описывающей его температурную зависимость [1].

В настоящей работе для создания массивов квантовых точек был применен метод, основанный на распаде сильно напряженного слоя InAs, выращиваемого на поверхности GaAs(100), на когерентные островки [2].

Свойства напряженных островков (In,Ga)As могут зависеть не только от условий формирования самой активной области, но также и от режимов роста, прежде всего температуры, использованных для осаждения последующих слоев структуры. В частности, в работе [3] было показано, что в случае, если рост слоя GaAs, непосредственно прикрывающего массив островков, проводился при температурах $\geq 530^{\circ}\text{C}$, наблюдалось практически полное исчезновение уордоченной формы и размеров островков. Было высказано предположение, что подобное поведение обусловлено сильным перемешиванием атомов Ga и In на растущей поверхности при повышенной температуре. С другой стороны, эксперименты по термическому отжигу напряженных квантовых ям InGaAs/(Al)GaAs [4,5] свидетельствуют о том, что подобное перемешивание может наблюдаться и в уже полностью зараженной структуре, затем подвергнутой высокотемпературной обработке.

Важность проблемы термической стабильности обусловлена в частности тем, что улучшение деградационных характеристик инжекционных лазеров требует высоких температур роста для областей, содержащих Al. В лазерах с активной областью на основе напряженных квантовых ям InGaAs, показавших рекордно низкие пороговые токи ($J_{\text{th}} < 1 \text{ mA}$), для формирования областей эмиттеров и градиентных волноводов используется температура подложки 700°C [6]. Кроме того, низкое качество слоя GaAs, выращенного при низкой температуре в непосредственной близости от активной области, может приводить к возникновению дополнительных каналов безызлучательной рекомбинации. В [7] было показано, что осаждение верхнего эмиттера и градиентного волновода при 580°C приводит к увеличению пороговой плотности тока лазера до 1 kA/cm^2 по сравнению с 50 A/cm^2 , полученной при использовании 700°C .

В настоящей работе мы исследуем термическую стабильность массивов квантовых точек InAs–GaAs и влияние высокотемпературного роста на характеристики инжекционных лазеров с активной областью на их основе.

Исследуемые структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) в установке Riber 32P. В середине слоя GaAs толщиной 200 нм, отделенного от поверхности и подложки короткопериодными сверхрешетками AlAs/GaAs, размещалась активная область. Активная область представляет собой массив квантовых точек, сформированный в результате трехкратного осаждения InAs с эффективной толщиной 1.7 монослоя, разделенного спейсерами GaAs толщиной 5 нм.

Как было обнаружено с помощью просвечивающей электронной микроскопии, при повторном осаждении InAs островки нового ряда формируются в точности

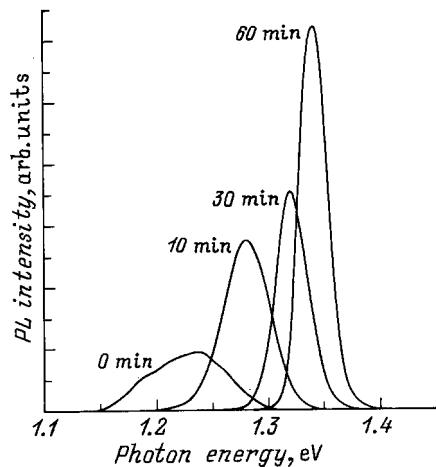


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции (PL) структуры, содержащей массив ВСКТ, при 77 К после отжига при 700 °C различной длительности.

над вершинами островков предыдущего ряда [8]. В случае использования спайсеров GaAs, разделяющих ряды точек, с толщинами, близкими к высоте островков ($\lesssim 5$ нм), происходит формирование нового физического объекта — вертикально совмещенных квантовых точек (ВСКТ), которые характеризуются непирамидальной формой и увеличенным по сравнению со случаем одиночного ряда точек отношением высоты к основанию. Как было показано нами в [9], массивы ВСКТ вследствие увеличения фактора оптического ограничения и большей энергии локализации носителей позволяют улучшить характеристики инфекционных лазеров с активной областью на основе квантовых точек.

Температура подложки составляла 485 °C во время осаждения активной области и прикрывающего слоя GaAs толщиной 10 нм и 600 °C для остальной части структуры. По окончании процесса выращивания пластина была разделена на четыре части, три из которых были подвергнуты отжигу в ростовой камере установки МПЭ в потоке мышьяка при температуре подложки 700 °C в течение 10, 30 или 60 мин.

Спектры фотолюминесценции (ФЛ) исследуемой структуры при 77 К после отжига различной длительности приведены на рис. 1. Как видно, в результате высокотемпературной обработки происходит закономерный сдвиг максимума ФЛ в сторону больших энергий, уменьшение ширины линии ФЛ и увеличение ее интегральной интенсивности.

За изменение энергии перехода при высокотемпературном отжиге может быть ответственно несколько механизмов [5]. Во-первых, эффективная ширина запрещенной зоны напряженного материала уменьшается, если в результате отжига образуются дислокации, снимающие напряжение. Во-вторых, взаимная диффузия (перемешивание) атомов III группы, устра-

няющая исходную резкость гетерограниц, приводит к увеличению энергии перехода.

Наблюдаемый нами сильный коротковолновый сдвиг линии ФЛ, превышающий 100 мэВ после отжига в течение 1 ч, подразумевает, что в случае ВСКТ преобладает механизм перемешивания атомов Ga и In. Сохранение интенсивной ФЛ, как мы полагаем, доказывает отсутствие пластической релаксации напряжения. Более того, наблюдается увеличение интегральной интенсивности ФЛ, вероятно, вследствие залечивания комплексов точечных дефектов, и прежде всего в GaAs, выращенном при низкой температуре. Подобное поведение отмечалось ранее при быстром термическом отжиге напряженных квантовых ям InGaAs [4].

При увеличении температуры наблюдения в спектрах ФЛ наряду с люминесценцией, обусловленной носителями, локализованными в квантовых точках, появляются два дополнительных более коротковолновых пика, связанные с рекомбинацией в барьерах GaAs и через состояния в так называемом "смачивающем слое" (wetting layer) InAs [10]. Спектры ФЛ, записанные при 300 К, показаны на рис. 2. В отличие от сильного сдвига линии ФЛ квантовых точек пик излучения из смачивающего слоя практически не изменяет своего спектрального положения. Такое поведение хорошо согласуется с ожидаемым слабым влиянием размытия профиля квантовой ямы на слабо связанные состояния.

Сильный коротковолновый сдвиг линии ФЛ квантовых точек при увеличении времени отжига означает уменьшение энергии локализации носителей в квантовых точках. Таким образом, уровни энергии электронов (дырок) в квантовых точках становятся

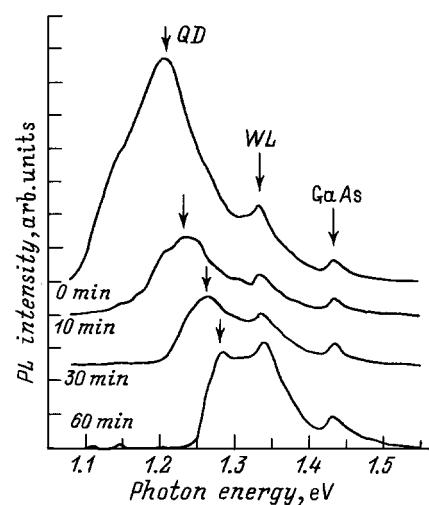


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции (PL) при 300 К после отжига при 700 °C различной длительности. Стрелками показаны линии, обусловленные рекомбинацией носителей в квантовых точках (QD), в смачивающем слое (WL) и в барьере (GaAs).

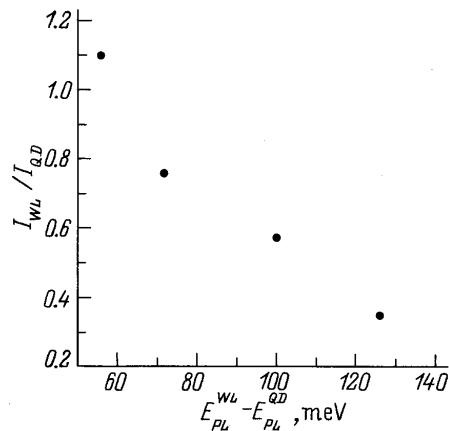


Рис. 3. Зависимость отношения интенсивности ФЛ смачивающего слоя к интенсивности ФЛ квантовых точек (I_{WL}/I_{QD}) от разницы по энергии между положением линий ФЛ из смачивающего слоя и из квантовых точек ($E_{WL}^{WL} - E_{PL}^{QD}$). $T = 300$ К.

ближе к соответствующим уровням в смачивающем слое и к краям зон GaAs. Следовательно, при увеличении температуры наблюдения относительная заселенность состояний смачивающего слоя и барьеров GaAs по отношению к заселенности состояний квантовых точек будет быстрее увеличиваться в образцах, подвергнутых термическому отжигу. Как показано на рис. 3, увеличение интенсивности линии ФЛ смачивающего слоя по отношению к интенсивности линии ФЛ квантовых точек (I_{WL}/I_{QD}) хорошо коррелирует с уменьшением разницы по энергии между положением этих линий ($E_{WL}^{WL} - E_{PL}^{QD}$).

Как было показано нами в [11], термический выброс носителей из квантовых точек является основной причиной резкого увеличения пороговой плотности тока инжекционных лазеров при повышенных температурах наблюдения. Таким образом, можно предположить, что термический отжиг ВСКТ в случае осаждения эмиттеров инжекционного лазера при температуре подложки 700°C будет приводить к ухудшению приборных характеристик вследствие уменьшения энергии локализации носителей. С другой стороны, улучшение качества выращенных при низкой температуре слоев GaAs, непосредственно примыкающих к квантовым точкам, и слоев, содержащих Al, может привести к противоположному эффекту.

Нами было исследовано влияние температуры осаждения эмиттерных слоев на приборные характеристики лазеров на основе ВСКТ. Были выращены структуры гетеролазеров с разделенным ограничением и градиентным волноводом. Активная область представляла собой массив ВСКТ, сформированный как описывалось выше. Температура подложки при выращивании эмиттерных слоев $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ и волноводов $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0 \div 0.4$) составляла 600 или 700°C в структурах, обозначенных QD600

и QD700 соответственно. Длительность осаждения верхнего эмиттерного слоя в QD700 близка к 1 ч. Контакты к лазерным диодам формировались напылением и вплавлением (450°C) металлических слоев AuGe/Ni/Au и AuZn/Ni/Au к подложке n^+ -GaAs и контактному слою p^+ -GaAs соответственно. Для уменьшения потерь на выход излучения для исследований были выбраны лазеры с четырьмя сколотыми гранями. Измерения проводились при температурах 77 \div 300 К в режиме импульсной накачки с частотой 5 кГц, длительность импульсов 100 нс.

Лазерная генерация в структуре QD600 наблюдалась на длинах волн 996.7 и 1052.7 нм при температурах 77 и 300 К соответственно. В структуре QD700 линия лазерной генерации сильно сдвинута в коротковолновую сторону и расположена на 918.1 нм при 77 К и на 950.0 нм при 300 К. Спектральное положение линии генерации во всем исследованном диапазоне температур близко к максимуму линии фотолюминесценции, наблюданной от тестовых структур, обсуждавшихся выше: для лазера QD700 — от образца, подвергнутого отжигу при температуре 700°C в течение часа, для QD600 — от образца без отжига.

Зависимость пороговой плотности тока от температуры измерения для обеих структур показана на рис. 4. Для QD600 в области низких температур величина J_{th} практически постоянна и составляет 40 \div 45 А/см². Температурная зависимость описывается характеристической температурой $T_0 = 430$ К. Низкая температурная чувствительность пороговой плотности тока является следствием нуль-мерного характера ограничения носителей в квантовых точках. При температурах выше критической и равной 180 К наблюдается резкое увеличение J_{th} вследствие термического выброса носителей из состояний в квантовых точках.

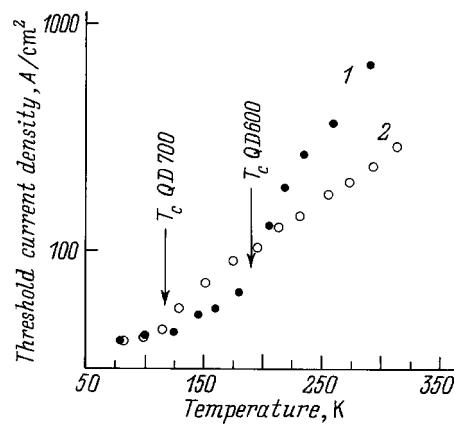


Рис. 4. Зависимость пороговой плотности тока J_{th} от температуры для лазерных структур QD600 (1) и QD700 (2). Стрелками показана критическая температура T_c , отвечающая началу быстрого увеличения J_{th} .

В структуре QD700 значения J_{th} в области низких температур практически совпадают с соответствующей величиной, измеренной в QD600. Однако критическая температура, отвечающая началу быстрого увеличения J_{th} , существенно меньше и составляет 120 К. Мы полагаем, что уменьшение критической температуры в структуре QD700 является прямым следствием уменьшения энергетического расстояния между основным состоянием квантовых точек и состояниями в смачивающем слое и барьере как результат высокотемпературного отжига ВСКТ в течение осаждения верхнего эмиттерного слоя.

При 300 К структура QD700 характеризуется меньшим значением J_{th} по сравнению с QD600 (рис. 4). Мы полагаем, что это обусловлено улучшением качества слоя GaAs, непосредственно примыкающего к активной области, выращенного при низкой температуре. В то же время при 77 К наблюдается совпадение J_{th} в обеих структурах. Это означает, как мы полагаем, что улучшение качества слоев GaAs, выращенных при низкой температуре, и Al-содержащих слоев не оказывает заметного влияния на пороговую плотность тока, когда темп безызлучательной рекомбинации в этих слоях уменьшен снижением температуры наблюдения.

Таким образом, исследовано влияние высокотемпературного отжига на оптические свойства массивов вертикально совмещенных квантовых точек InAs в матрице GaAs, а также влияние температуры осаждения эмиттерных слоев на приборные характеристики инжекционного лазера с активной областью на основе массива квантовых точек. Обнаружено, что в структурах, подвергнутых отжигу, а также в инжекционном лазере в случае осаждения верхнего эмиттера при 700°C наблюдается сильный коротковолновый сдвиг максимума фотолюминесценции и линии лазерной генерации соответственно. Подобное поведение, по-видимому, является следствием уменьшения энергии локализации носителей в квантовых точках в результате частичного перемешивания атомов In и Ga. Осаджение верхнего эмиттерного слоя при 700°C приводит к уменьшению температуры начала быстрого увеличения пороговой плотности тока вследствие уменьшения энергетического расстояния между основным состоянием квантовых точек и состояниями в смачивающем слое и барьере. Улучшение качества слоев GaAs, выращенных при низкой температуре, и слоев, содержащих Al, в результате высокотемпературного отжига приводит к уменьшению пороговой плотности тока при комнатной температуре, тогда как в области низких температур наблюдения его влияние на приборные характеристики незначительно.

Работа выполнялась при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант N 96-02-17824) и программы INTAS (проект 94-1028).

Список литературы

- [1] Y. Arakawa, H. Sakaki. *Appl. Phys. Lett.*, **40**, 939 (1982); E. Kapon, M. Water, J. Christen, M. Grundmann, C. Caneau, D.M. Hwang, E. Colas, R. Bhat, G.H. Song, D. Bimberg. *Superlat. Microstr.*, **12**, 491 (1992).
- [2] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C.M. Reaves, S.P. DenBaars, P.M. Petroff. *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 3203 (1993); А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Коильев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов. ФТП, **28**, 1439 (1994).
- [3] Q. Xie, P. Chen, A. Kalburge, A. Nayfonov, T.R. Ramachandran, A. Konkar, A. Madhukar. *Proc. 8th Int. Conf. on MBE* (Osaka, Japan, 1994) p. 383.
- [4] K. Kaviano, J. Chen, K. Hu, L. Chen, A. Madhukar. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **10**, 793 (1992).
- [5] L.P. Sandwich, D.C. Streit, W.L. Jones, C.W. Kim, R.J. Hwu. *IEEE Trans. Electron. Dev.*, **ED-39**, 50 (1992).
- [6] T.R. Chen, L.E. Eng, B. Zhao, Y.H. Zhuang, A. Yariv. *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 2621 (1993).
- [7] N. Chand, E.E. Becker, J.P. van der Ziel, S.N.G. Chu, N.K. Dutta. *Appl. Phys. Lett.*, **58**, 1704 (1991).
- [8] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Коильев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов, А.Ф. Цапульников, Н.А. Берт, А.О. Косогов, Д. Бимберг, Ж.И. Алферов. ФТП, **30**, 1682 (1996).
- [9] V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, N.N. Ledentsov, M.V. Maksimov, A.F. Tsatsul'nikov, N.A. Bert, A.O. Kosogov, P.S. Kop'ev, D. Bimberg, Zh.I. Alferov. *Proc. Mater. Research Society Fall Meeting* (Boston, 1995) paper EE3.6.
- [10] N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Bohrer, O. Shmidt, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, A.I. Borovkov, A.O. Kosogov, S.S. Ruvimov, U. Gosele, J. Heidenreich. *Phys. Rev. Lett.*, in print.
- [11] D. Bimberg, N.N. Ledentsov, N. Kirstaedter, O. Schmidt, M. Grundmann, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, S.S. Ruvimov, U. Gosele, J. Heydenreich. *Proc. 1995. Int. Conf. on Solid State Devices and Materials* (Osaka, 1995) p. 716.

Редактор Л.В. Шаронова

Thermal stability of vertically coupled InAs–GaAs quantum dot arrays

A.E. Zhukov, A.Yu. Egorov, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, M.V. Maksimov, A.F. Tsatsul'nikov, N.N. Ledentsov, N.Yu. Gordeev, S.V. Zaitsev, P.S. Kop'ev, D. Bimberg[†], Zh.I. Alferov

A.F.Ioffe Physico-technical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St.Petersburg, Russia

[†] Institut fur Festkörperphysik, Technische Universität Berlin, D-10623 Berlin, Germany

Abstract The effect of heat treatment on optical properties of vertically coupled InAs quantum dots in GaAs matrix and on performance of a quantum dot laser has been studied. We have observed a strong blue shift of photoluminescence peak position and lasing line, changes in photoluminescence intensity and temperature dependence of threshold current density. The reason for this behavior is probably the reduction in carrier localization energy due to partial In/Ga intermixing as well as the improvement of Ga(Al)As quality as the result of high temperature annealing.