

Влияние бимодальности массива квантовых точек на оптические свойства и пороговые характеристики лазеров на их основе

© А.М. Надточий^{*+¶}, С.А. Минтаиров^{*}, Н.А. Калюжный^{*}, С.С. Рувимов[♦], Ю.М. Шерняков^{*},
А.С. Паюсов^{*}, М.В. Максимов^{*+*}, А.Е. Жуков^{*+}

* Санкт-Петербургский Академический университет —
научно-образовательный центр нанотехнологий Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

+ ООО „Солар Дотс“,
194021 Санкт-Петербург, Россия

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

♦ University of Notre Dame,
Notre Dame, Indiana 46556 USA

(Получена 29 января 2015 г. Принята к печати 10 февраля 2015 г.)

Синтезированы гетероструктуры с квантовыми точками InGaAs на вицинальных подложках GaAs (001). Исследованы спектры фотолюминесценции и пороговые характеристики полосковых лазеров в диапазоне температур 10–400 К, а также структурные свойства квантовых точек с помощью просвечивающей электронной микроскопии. При анализе спектров фотолюминесценции обнаружена бимодальность массива квантовых точек, приводящая к необычному температурному поведению спектров фотолюминесценции и плотности порогового тока. Рассмотрена модель заполнения бимодального массива квантовых точек носителями заряда, описывающая наблюдаемые явления.

1. Введение

Самоорганизованные квантовые точки (КТ) интенсивно исследовались на протяжении последних 15 лет и продолжают оставаться объектом интереса для многих научных групп благодаря атомо-подобному спектру плотности состояний и большому набору технологических возможностей для управления свойствами массивов КТ [1]. В прикладных областях КТ уже доказали свою перспективность: лазеры на КТ продемонстрировали рекордно низкие плотности порогового тока и слабую температурную чувствительность характеристик [2,3]; подавление латерального транспорта носителей заряда в массиве КТ позволило создать микрорезонаторы сверхмалых размеров на их основе [4]; многослойные массивы КТ позволили реализовать сверхширокий спектр лазерной генерации, востребованный для применений в многоканальной волоконной передаче данных [5]; кроме того, КТ оказались интересны в фотоэлектрических преобразователях, например, для балансирования токов каскадов многопереходного преобразователя [6] или создания промежуточной зоны для двухфотонного поглощения [7].

Характерной особенностью массивов самоорганизованных КТ является вариация формы, размера, состава и, следовательно, энергий переходов КТ в массиве. Зачастую неоднородно уширенный спектр плотности состояний массива КТ хорошо описывается гауссовой кривой (для каждого перехода). Однако в некоторых случаях [8–19] при формировании КТ энергетически выгодными оказывается набор различных форм (ориен-

таций, положений и т.д.) КТ. Тогда возможно образование нескольких характерных типов (мод) КТ. Наиболее эффективным рычагом управления бимодальностью массива КТ является использование так называемых вицинальных подложек, разориентированных относительно плоскости (100) [8,9].

В данной работе мы рассматриваем влияние бимодальности массива КТ на оптические свойства и характеристики лазеров на основе таких КТ.

2. Эксперимент

Структуры были выращены методом газовой фазной эпитаксии из металл-органических соединений (МОГФЭ) при пониженном давлении на подложках GaAs (100) с вицинальной поверхностью. Триметилгаллий, триметилалюминий и триметилиндий использовались в качестве источников атомов III группы, арсин — в качестве источника мышьяка, моносилан и диэтилцинк — в качестве источников атомов легирующей примеси. Квантовые точки формировались осаждением порядка 7 монослоев InGaAs с номинальным содержанием InAs около 40%. Образцы для исследований ФЛ содержали 10 слоев КТ, разделенных 30 нм GaAs и окруженных барьерными слоями Al_{0.3}Ga_{0.7}As для предотвращения утечки носителей заряда к поверхности и в подложку гетероструктуры. Буферные слои выращивались при температуре 700°C, для роста КТ и покрывающих слоев температура понижалась до 500°C.

Лазерная гетероструктура была синтезирована на подложке n⁺-GaAs и содержала легированные эмиттерные слои Al_{0.8}Ga_{0.2}As, окружающие нелегированный вол-

¶ E-mail: al.nadtochy@mail.ioffe.ru

новод толщиной 200 нм с 5 слоями КТ. Кристаллографическая ориентация лазерной подложки и режимы формирования активной области лазерной структуры были такими же, как и в структуре для исследований ФЛ. Далее из гетероструктуры были изготовлены торцевые лазеры в полосковой геометрии с мелкой мезой шириной 100 мкм и длиной резонатора 2 мм. Покрытия на зеркалах не использовались.

Запись спектров ФЛ проводилась с поверхности при нормальном падении излучения второй гармоники (532 нм) лазера YAG: Nd, ослабленного с помощью нейтральных светофильтров. Излучение ФЛ конденсировалось объективом на щелях одинарного монохроматора и регистрировалось с помощью охлаждаемого Ge диода в стандартной схеме синхронного детектирования. Для исследований ФЛ при пониженной температуре образцы монтировались в гелиевый криостат замкнутого цикла. Исследования характеристик лазеров проводились в импульсном режиме при длительности импульсов ~ 300 нс с частотой повторения 1–4 кГц. Для измерения температурных зависимостей порогового тока лазерные диоды помещались в азотный криостат.

Снимки просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) были получены на микроскопе Titan-80-300 с максимальным разрешением в режиме высокоразрешающей ПЭМ до 0.136 нм. Образцы для исследования поперечного сечения структур были приготовлены с помощью ионного травления на установке FEI Dual-BeamTM SEM/FIB Helios Nano-Lab 600.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены спектры ФЛ, записанные при различных температурах и плотностях возбуждения. Во всех спектрах видны два пика, обозначенные QD1 и QD2, которые могут быть хорошо аппроксимированы функциями Гаусса (рис. 1, *a*). Соотношение интенсивностей пиков QD1 и QD2 имеет немонотонную температурную зависимость (рис. 1, *a*, см. также рис. 4, *a*): при температурах ниже 80 К или выше 150 К в спектре ФЛ доминирует коротковолновый пик QD1; при температурах 80–150 К и умеренных или больших накачках интенсивность пиков сопоставима, а при низких уровнях возбуждения в этом диапазоне температур даже доминирует длинноволновый пик QD2. Форма спектра ФЛ не зависит от плотности возбуждения при температурах ниже 80 К (рис. 1, *b*), что позволяет сделать вывод о соответствии наблюдаемых пиков основным оптическим переходам двух различных типов квантовых точек [14].

На рис. 2 представлены ПЭМ фотографии образца, полученные в ориентации (110): *a* — светлопольная, чувствительная как к составу, так и к напряжениям в гетероструктуре; *b* — темнопольная (HAADF STEM), подчеркивающая химический состав. На рис. 2, *a* можно отметить высокое структурное качество структуры:

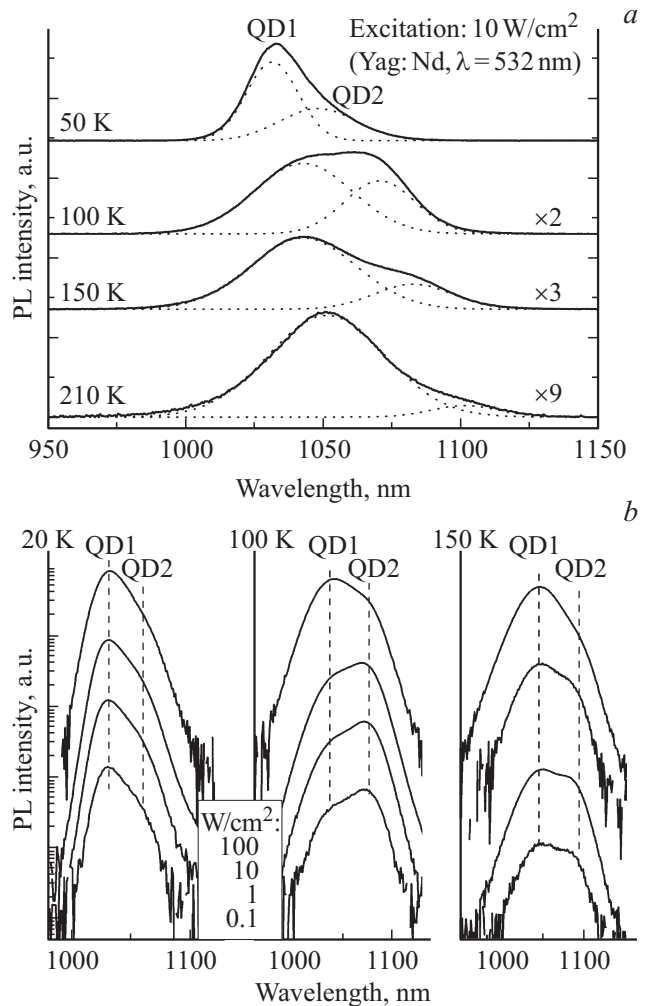


Рис. 1. Спектры ФЛ: *a* — модификация с температурой при умеренной плотности возбуждения (пунктиром показана аппроксимация функцией Гаусса), *b* — в зависимости от плотности возбуждения при нескольких ключевых температурах.

отсутствие дислокаций, а также приблизительную идентичность слоев InGaAs друг другу. Кроме того, на фоне смачивающего слоя отчетливо видны отдельные КТ с поверхностной плотностью около 10^{10} см⁻². Вертикальной корреляции расположения КТ не наблюдается. Также можно отметить заметную модуляцию толщины смачивающего слоя, которая проиллюстрирована на рис. 2, *b*. Разориентация подложки приводит к росту материала в виде наклоненных ступенек, в результате чего толщина смачивающего слоя оказывается модулированной с периодом около 20 нм. Отметим, что выраженной бимодальности размеров КТ в микрофотографиях гетероструктуры не наблюдается. Мы полагаем, что сильная модуляция смачивающего слоя может приводить к соответствующей модуляции энергии перехода и, следовательно, к двух- или трехмерной локализации носителей заряда в локальных минимумах, что равносильно образованию квантовой ямы или точки.

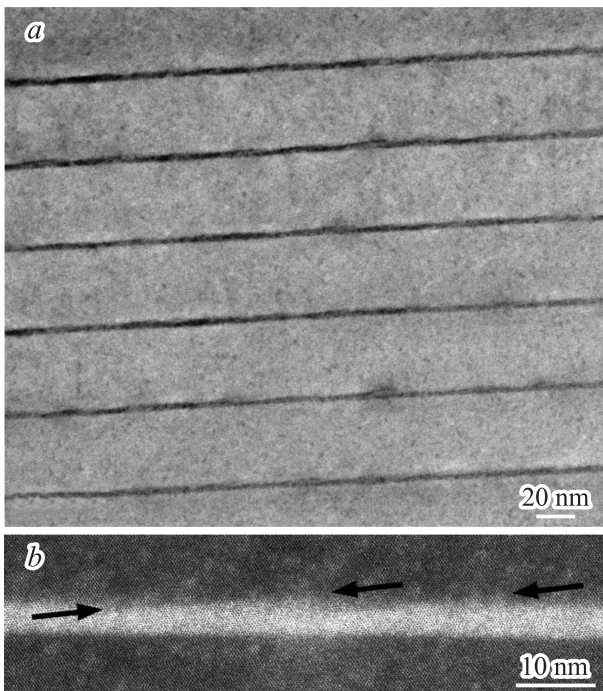


Рис. 2. Микрофотографии ПЭМ: *a* — в светлом поле, *b* — в темном поле и большем увеличении.

Оптические свойства массивов КТ с ярко выраженной бимодальностью уже достаточно хорошо изучены [11–19]. Во всех случаях авторы связывали температурную зависимость формы спектров ФЛ с термически активированным перераспределением носителей заряда между КТ. В некоторых работах зависимость соотношения интенсивности пиков бимодального массива КТ имела аналогичный нашему случаю немонотонный вид [11,12], однако для ее объяснения были использованы различные модели. В работе [13] предложено рассматривать длинноволновые КТ с термически активирующимся каналом безызлучательной рекомбинации, который „включается“ при температурах более высоких, чем температура начала обмена носителями заряда между КТ. В работе [12] авторы предлагают учесть потери носителей заряда в смачивающем слое при транспорте между КТ. И наконец, в работе [14] показано, что немонотонную зависимость даже в отсутствие каналов безызлучательной рекомбинации, возможно получить при детальном рассмотрении перехода распределения носителей заряда в КТ от неравновесного распределения к равновесному случаю.

Простую модель заполнения КТ (аналогично [14]) можно представить следующим образом (рис. 3). При низких температурах (до 80 К, см. рис. 3) реализуется неравновесный режим заполнения состояний КТ, и при низких уровнях возбуждения КТ заполнены пропорционально их плотности. Соотношение интенсивностей пиков в этом режиме измерения позволяет оценить соотношение плотностей самих КТ в бимодальном массиве как $QD1 : QD2 \propto 3 : 1$.

С повышением температуры (80–150 К) начинается постепенный переход к равновесному режиму заполнения КТ: становится возможным выброс носителей из КТ (преимущественно мелких, QD1) в смачивающий слой или матрицу и последующий захват в другие КТ (преимущественно глубокие, QD2). Вследствие различной энергии активации КТ транспорт носителей заряда имеет односторонний характер — от мелких КТ к глубоким.

Дальнейшее увеличение температуры (более 150 К) нивелирует различие в темпах выброса и захвата носителей заряда в КТ разных типов, и заполнение массива принимает характер аналогичный первоначальному — пропорционально плотности КТ.

Такая модель описывает перераспределение носителей заряда между КТ одномодального массива с увеличением температуры, которое также многократно наблюдалось в классических КТ [20]. Особенность бимодального распределения, а именно сильная несимметричность распределения КТ по энергиям, приводит к качественному изменению температурных зависимостей оптиче-

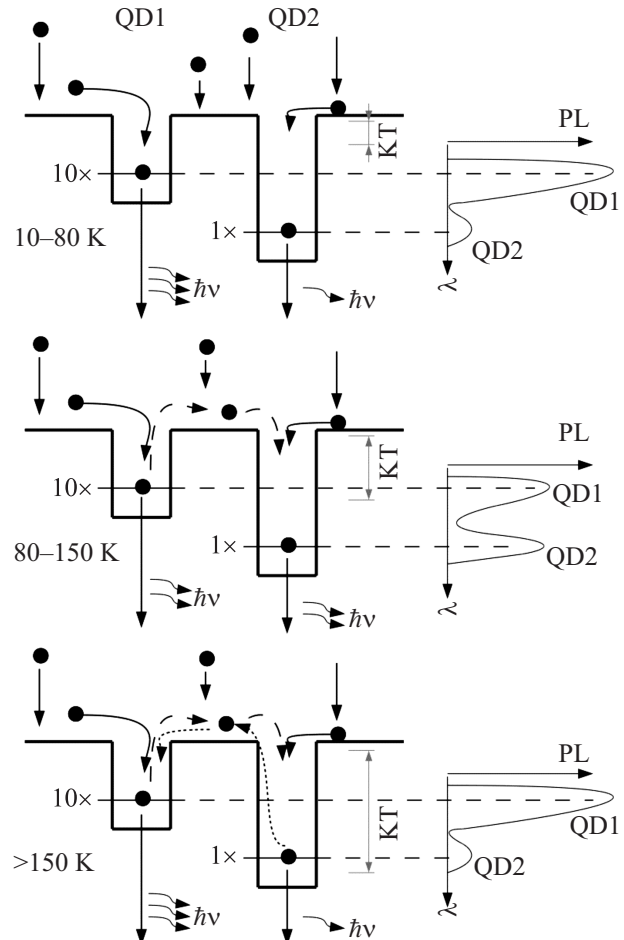


Рис. 3. Модель заполнения носителями заряда массива бимодальных КТ при различных температурах (для наглядности QD1 и QD2 показаны одинакового размера и различного состава).

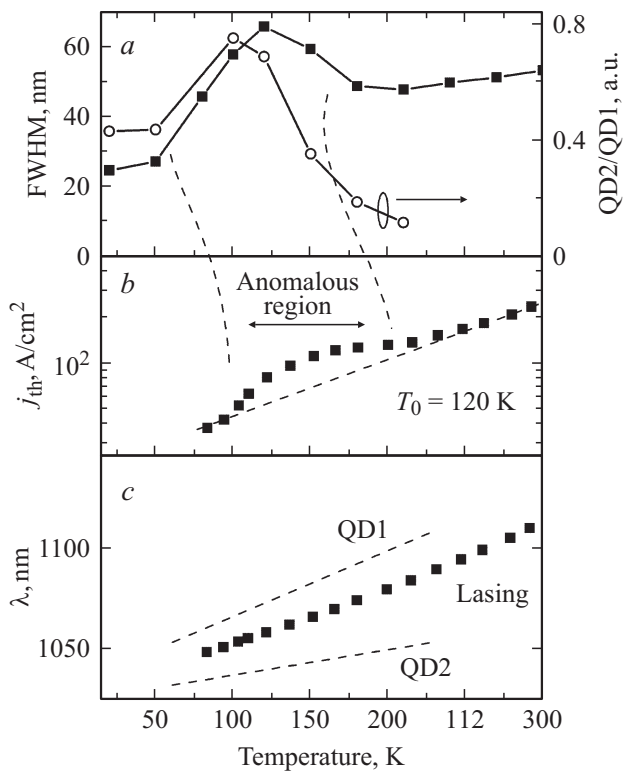


Рис. 4. Температурные зависимости: *a* — ширины спектра ФЛ на полувысоте и отношения интенсивностей излучения КТ разных типов (QD1 и QD2); *b* — плотности порогового тока лазера на основе бимодальных КТ (показана экспоненциальная аппроксимация и полученное значение T_0); *c* — длины волны генерации и положений пиков КТ разных типов (QD1 и QD2).

ских свойств по сравнению с одномодальным массивом. В частности, в одномодальных КТ переход от неравновесного к равновесному распределению сопровождается локальным сужением ширины линии ФЛ.

Отметим, что описанная модель предсказывает при высоких температурах асимптотическое приближение заполнения КТ к низкотемпературному режиму. Для описания дальнейшего спада интенсивности длинноволновых КТ, наблюдаемого в нашем случае (рис. 4), необходимо дополнение модели, например, введением канала потерь для длинноволновых КТ QD2 [13].

Для исследования влияния бимодальности массива КТ на пороговые характеристики полупроводниковых лазеров были созданы и исследованы торцевые лазеры на основе 10-слойного массива описанных КТ.

На рис. 4, *b, c* сопоставлены температурные зависимости пороговых характеристик лазера и спектральных параметров ФЛ. Рис. 4, *a* показывает характеристики спектров ФЛ, подчеркивающие особенности излучения массива бимодальных КТ в соответствии с описанной выше моделью. Выравнивание интенсивностей пиков QD1 и QD2 (в диапазоне 80–150 К) сопровождается увеличением ширины линии на полувысоте. Дальнейшее увеличение температуры приводит к обратному поведению зависимостей: соотношение интенсивностей пиков

QD2/QD1 падает и ширина на полувысоте (рис. 4, *a*) возвращается к низкотемпературным тенденциям.

Плотность порогового тока имеет схожие особенности. Температурная зависимость логарифма плотности порогового тока (рис. 4, *b*) хорошо аппроксимируется прямой линией при низких и высоких температурах, однако демонстрирует почти двукратное увеличение от аппроксимации в диапазоне температур 100–160 К, приводя к *N*-образному виду кривой. Такое поведение является нетипичным для лазеров на квантовых точках, так как обычно переход от неравновесного распределения к равновесному сопровождается локальным снижением плотности порогового тока [21,22]. Как было показано [22], снижение порогового тока происходит за счет дополнительного притока носителей заряда к КТ, участвующим в генерации от более мелких КТ.

Отметим, что длина волны генерации лазера (рис. 4, *c*) во всем температурном диапазоне соответствовала длинноволновому плечу перехода QD1. Этот факт, вероятно, объясняется недостаточной поверхностной плотностью QD2 и соответственно недостаточным усилением перехода QD2 для реализации лазерной генерации на этом переходе.

Таким образом, можно заключить, что бимодальность распределения КТ и невозможность реализации лазерной генерации через одну из мод квантовых точек приводит к кардинальному изменению температурной зависимости порога генерации. Можно рассматривать QD2 как центры безызлучательной рекомбинации (так как они не дают вклада излучения в лазерную моду), оттягивающие на себя некоторую долю инжектируемых носителей, увеличивая тем самым пороговый ток. Влияние центров безызлучательной рекомбинации в массивах КТ на пороговые характеристики было рассмотрено, например в [23], где наблюдалась схожая температурная зависимость плотности порогового тока.

Таким образом, можно констатировать, что форма распределения массива КТ по энергиям может оказывать существенное влияние на оптические свойства КТ и свойства приборов на их основе.

4. Заключение

В работе рассмотрены оптические и структурные свойства гетероструктур с квантовыми точками InGaAs, синтезированными на разориентированных подложках GaAs методом МОГФЭ. Оптические свойства многослойного массива имеют характерные особенности бимодального распределения КТ по энергиям оптических переходов. В результате температурные зависимости спектральных характеристик ФЛ и плотности порогового тока лазера на основе таких КТ имеют качественно иное поведение, чем в случае одномодального распределения КТ.

Авторы выражают благодарность Российскому фонду фундаментальных исследований, проекты № 13-08-12159 и № 13-02-12016.

Список литературы

- [1] N.N. Ledentsov, V.M. Ustinov, V.A. Shchukin, P.S. Kop'ev, Z.I. Alferov, D. Bimberg. *Semiconductors*, **32** (4), 343 (1998).
- [2] S.S. Mikhlin, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, N.A. Maleev, A.P. Vasil'ev, E.S. Semenova, V.M. Ustinov, M.M. Kulagina, E.V. Nikitina, I.P. Soshnikov, Y.M. Shernyakov, D.A. Livshits, N.V. Kryzhanovskaya, D.S. Sizov, M.V. Maksimov, A.F. Tsatsul'nikov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, Z.I. Alferov. *Semiconductors*, **36** (11), 1315 (2002).
- [3] S.S. Mikhlin, A.R. Kovsh, I.L. Krestnikov, A.V. Kozhukhov, D.A. Livshits, N.N. Ledentsov, Yu.M. Shernyakov, I.I. Novikov, M.V. Maximov, V.M. Ustinov, Zh.I. Alferov. *Semicond. Sci. Technol.*, **20**, 340 (2005).
- [4] N.V. Kryzhanovskaya, I.S. Mukhin, E.I. Moiseev, I.I. Shostak, A.A. Bogdanov, A.M. Nadtochiy, M.V. Maximov, A.E. Zhukov, M.M. Kulagina, K.A. Vashanova, Yu.M. Zadiranov, S.I. Troshkov, A.A. Lipovskii, A. Mintairov. *Opt. Express*, **22** (21), 25 782 (2014).
- [5] A. Kovsh, I. Krestnikov, D. Livshits, S. Mikhlin, J. Weimer, A. Zhukov. *Optics. Lett.*, **32**, 793 (2007).
- [6] S.A. Blokhin, A.V. Sakharov, A.M. Nadtochy, A.S. Pauysov, M.V. Maximov, N.N. Ledentsov, A.R. Kovsh, S.S. Mikhlin, V.M. Lantratov, S.A. Mintairov, N.A. Kaluzhnyi, M.Z. Shvarts. *Semiconductors*, **43**, 514 (2009).
- [7] A. Luque, A. Marti. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 5014 (1997).
- [8] Д.Г. Васильев, В.П. Евтихийев, В.Е. Токранов, И.В. Кудряшов, В.П. Кочерешко. *ФТТ*, **40** (5), 855 (1998).
- [9] S. Liang, H.L. Zhu, W. Wang. *J. Appl. Phys.*, **100**, 103 503 (2006).
- [10] T. Yang, S. Tsukamoto, J. Tatebayashi, M. Nishioka, Y. Arakawa. *Appl. Phys. Lett.*, **85** (14), 2753 (2004).
- [11] C.M. Lee, S.H. Choi, J.C. Seo, J.I. Lee, J.Y. Leem, I.K. Han. *J. Korean Phys. Soc.*, **46** (6), 1615 (2004).
- [12] Y.C. Zhang, C.J. Huang, F.Q. Liu, B. Xu, J. Wu, Y.H. Chen, D. Ding, W.H. Jang, X.L. Ye, Z.G. Wang. *J. Appl. Phys.*, **90** (4), 1973 (2001).
- [13] G. Saint-Girons, I. Sagnes. *J. Appl. Phys.*, **91** (12), 10 115 (2002).
- [14] B. Bansal. *J. Appl. Phys.*, **100**, 093 107 (2006).
- [15] H. Kissel, U. Muller, C. Walther, W.T. Masselink. *Phys. Rev. B*, **62** (11), 723 (2000).
- [16] H.L. Wang, D. Ning, S.L. Feng. *J. Cryst. Growth*, **209**, 630 (2000).
- [17] Y.C. Zhang, C.J. Huang, F.Q. Liu, B. Xu, D. Ding, W.H. Jiang, Y.F. Li, X.L. Ye, J. Wu, Y.H. Chen, Z.G. Wang. *J. Cryst. Growth*, **219**, 199 (2000).
- [18] W.H. Jiang, X.L. Ye, B. Xu, H.Z. Xu, D. Ding, J.B. Liang, Z.G. Wang. *J. Appl. Phys.*, **88** (5), 2529 (2000).
- [19] A.A. Emelway, S. Birudavolu, P.S. Wong, Y.-B. Jiang, H. Xu, S. Huang, D.L. Huffaker. *J. Appl. Phys.*, **93** (6), 3529 (2003).
- [20] L.V. Asryan, R.A. Suris. *Semicond. Sci. Technol.*, **11**, 554 (1996).
- [21] I.I. Novikov, M.V. Maksimov, Y.M. Shernyakov, N.Y. Gordeev, A.R. Kovsh, A.E. Zhukov, S.S. Mikhlin, N.A. Maleev, A.P. Vasil'ev, V.M. Ustinov, Z.I. Alferov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg. *Semiconductors*, **37** (10), 1239 (2003).
- [22] A.E. Zhukov, V.M. Ustinov, A.Y. Egorov, A.R. Kovsh, N.N. Ledentsov, M.V. Maksimov, A.F. Tsatsul'nikov, N.Y. Gordeev, S.V. Zaitsev, P.S. Kop'ev. *Semiconductors*, **42**, 93 (1997).
- [23] A. Patane, A. Polimeni, M. Henini, L. Eaves, P.C. Main. *J. Appl. Phys.*, **85** (1), 625 (1999).

Редактор Т.А. Полянская

Impact of bimodality of quantum dot array on optical properties and threshold characteristics of lasers based on them

A.M. Nadtochiy^{*+•}, S.A. Mintairov[•],
N.A. Kalyuzhnyy[•], S.S. Rouvimov[♦],
Yu.M. Shernyakov[•], A.S. Pauysov^{*•},
M.V. Maximov^{*+•}, A.E. Zhukov^{*+}

* St. Petersburg Academic University and
Nanotechnology Research and Education Centre,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia
+ „Solar Dots“ Ltd.,
194021 St. Petersburg, Russia
• Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia
♦ University of Notre Dame, Notre Dame,
Indiana 46556, USA

Abstract Heterostructures with quantum dots (QD) were synthesized on vicinal GaAs (001) substrates. Photoluminescence (PL) spectra and threshold characteristics of QD based edge emitting lasers have been investigated in the temperature range 10-400K. Structural properties of QD array were examined using transmission electron microscopy (TEM). PL spectra and threshold current density showed anomalous behaviour with temperature caused by QD array bimodality. The model of population of bimodal QD array with carriers of charge describing observed phenomena is discussed.