

# Пространственно-контролируемый рост одиночных квантовых точек InP

© А.С. Власов<sup>†</sup>, А.М. Минтаиров<sup>+</sup>, Н.А. Калужный<sup>+</sup>, С.А. Минтаиров<sup>+</sup>, Р.А. Салий<sup>+</sup>,  
А.И. Денисюк<sup>‡</sup>, Р.А. Бабунц<sup>+</sup>

<sup>†</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>\*</sup> Notre Dame University,  
Notre Dame, IN, 46556, US

<sup>‡</sup> НИУ „ИТМО“,  
197101 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 18 ноября 2014 г. Принята к печати 27 ноября 2014 г.)

Исследован процесс МОС-гидридной эпитаксии квантовых точек InP/GaInP на „дефектах“ подложки (GaAs), сформированных сфокусированным пучком ионов Ga<sup>+</sup>. Показано, что в системе InP/GaInP могут быть получены упорядоченные массивы квантовых точек с плотностью 0.25 мкм<sup>-2</sup>. Показано, что эффективная люминесценция может быть получена при использовании двух слоев квантовых точек, разделенных буфером GaAs/GaInP.

## 1. Введение

Исследованиям квантовых точек (КТ) и приборов на их основе уделялось огромное внимание последние 20 лет [1]. Одной из главных проблем при создании приборов, использующих одиночные квантовые точки, является их случайное распределение по поверхности подложки и высокая плотность, за счет чего обеспечивается транспорт носителей между КТ, затрудняющий их использование, так как для целого ряда задач принципиально получение источника одиночных фотонов [2,3]. Особенностью КТ InP, выращенных методом МОС-гидридной эпитаксии (газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений MOVPE), является их низкая начальная плотность и „большие“ размеры КТ вплоть до нескольких сотен нанометров, тогда как при росте в установке молекулярно-пучковой эпитаксии средний размер КТ InP не превышает 80–100 нм [4]. В сочетании с высоким кристаллическим совершенством таких структур и низкой скоростью поверхностной рекомбинации InP это позволяет получать сверхнизкопороговые лазеры на одиночной квантовой точке [5].

С целью получения приборов на одиночной КТ и изучения их оптических свойств в последнее время появилось большое количество работ по разработке мер пространственного контроля за положением квантовой точки и обеспечением сверхнизкой плотности КТ. Здесь можно отметить успехи по применению селективной эпитаксии [6,7], а также предэпитаксиальную подготовку поверхности сфокусированным пучком ионов Ga<sup>+</sup> (FIB) [8,9]. Контроль за положением КТ на поверхности открывает новые возможности и для фундаментальных исследований физических процессов в одиночных КТ, и для создания таких полупроводниковых приборов, как одноэлектронный транзистор, лазер на одиночной КТ и др.

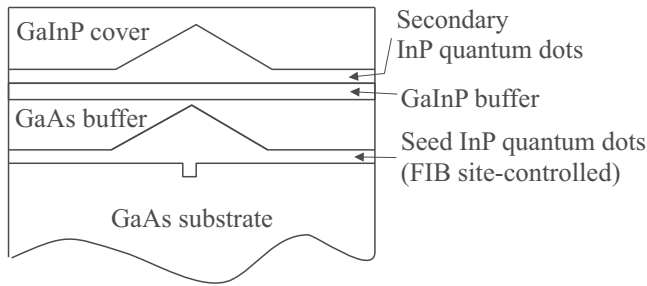
Представленное исследование направлено на разработку метода пространственного контроля за положением квантовой точки при использовании предэпитаксиальной обработки поверхности ионным пучком и получение квантовых точек высокого кристаллического совершенства.

## 2. Эксперимент

В качестве объекта исследования были выбраны квантовые точки InP в матрице GaInP, рост которых проводится на подложках GaAs. Рост проводился на установке МОС-гидридной эпитаксии Aix 200/4 на подложках GaAs(001), разориентированных на 6° в сторону направления [111]<sub>A</sub>, при температуре 720°C. Предэпитаксиальная обработка осуществлялась на установке электронно-ионной литографии Zeiss CrossBeam Neon 40. На подложке было проведено облучение серии прямоугольных матриц сфокусированным пучком ионов Ga<sup>+</sup> (энергия ионов 30 кэВ, ток пучка 5 пА). Расстояние между точками варьировалось от 1 до 5 мкм, а время облучения каждой точки (время задержки луча) от 2 до 64 мс. Для получения изображений созданных структур использовалась та же установка, но в режиме сканирующего электронного микроскопа с регистрацией вторичных электронов.

Стоит отметить, что в большинстве работ, использующих метод предэпитаксиальной обработки ионным пучком, используется безатмосферное (in-vacuo) перемещение образца из ростовой камеры в камеру электронного микроскопа и обратно. В наших экспериментах перемещение образца осуществлялось с экспонированием образца в атмосферу, однако по интенсивности фотолюминесценции слои, выращенные на таких подложках, не отличались от аналогичных структур без предэпитаксиальной обработки. Подобное поведение, вероятно всего, вызвано эффективной дезоксидацией поверхности

<sup>†</sup> E-mail: vlasov@scell.ioffe.ru



**Рис. 1.** Схематическое изображение образца с двумя слоями вертикально связанных квантовых точек.

сти образца в ростовой MOVPE-камере в атмосфере водорода.

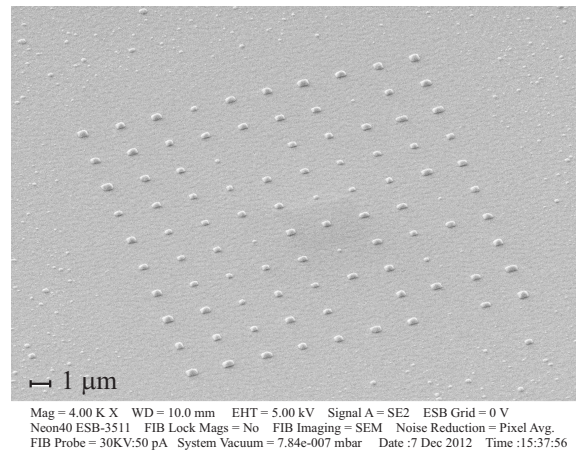
На поверхностях, обработанных ионным пучком, выращивалась структура, состоящая из слоев, показанных на рис. 1. В отличие от большинства подобных исследований [6,10], использующих буферные слои GaInP, в нашем случае ионным пучком обрабатывалась непосредственно поверхность *epi-ready* подложки GaAs. Первый слой InP-точек служит для создания вертикального напряжения в структуре. Необходимость его применения обусловлена тем фактом, что в результате обработки ионным пучком поверхности подложки в местах обработки происходит образование дефектов. Для того чтобы уменьшить их влияние на свойства структуры, эти квантовые точки зарациивались слоем GaAs, и таким образом минимизировался захват носителей в дефектные КТ первого слоя. В то же время слой GaAs является выравнивающим: в процессе эпитаксиального роста происходит более эффективное смачивание поверхности и выравнивание слоя по толщине, что явилось дополнительной причиной сделанного выбора.

### 3. Результаты

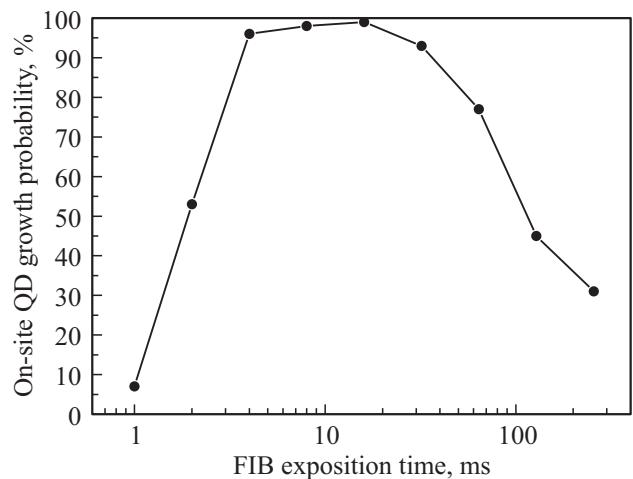
На рис. 2 показано полученное в сканирующем электронном микроскопе (СЭМ) изображение участка образца с одиночным слоем КТ InP после обработки ионным пучком. Обработка проводилась в виде сетки с шагом  $2 \times 2$  мкм, что соответствует плотности  $0.25 \text{ мкм}^{-2}$ . Из рисунка видно, что большая часть кратеров оказалась закрыта КТ InP. На периферийных участках (вдали от сформированных дефектов) можно проследить спонтанное образование КТ преимущественно двух типов: мелкие (10–30 нм в диаметре) и крупные ( $> 100$  нм). Вероятнее всего, такое поведение вызвано эффектом переноса материала от одних КТ к другим. После осаждения InP на поверхность подложки происходит одновременное зарождение КТ по всей поверхности, однако благодаря высокой температуре в ростовой камере МОС-гидридной эпитаксии обеспечивается миграция атомов (в первую очередь атомов In) от одной КТ к другой, приводящая к уменьшению одних и увеличению других КТ. Подобные эффекты наблюдаются также и

при росте КТ InP в процессе молекулярно-пучковой эпитаксии [4]. В результате этого процесса образуются КТ увеличенного размера, которые более эффективно притягивают к себе материал окружающих КТ. В случае создания на поверхности подложки искусственных дефектов ионным пучком они изначально являются „притягивающими“ центрами, на которых начинается рост КТ, фиксируя таким образом положение крупных точек. Вокруг обработанного FIB участка образуется полоса практически без КТ шириной 2–2.5 мкм, которая соответствует средней длине пробега мигрирующего атома по поверхности.

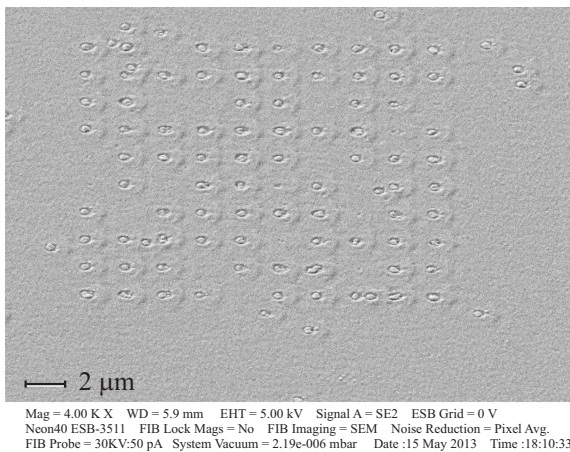
Согласно нашим исследованиям, вероятность успешного роста КТ над обработанным участком поверхности зависит от времени экспозиции пучка. При малых временах экспозиции не происходит существенных изменений на поверхности образца и точки распределяются по поверхности случайным образом. При слишком больших



**Рис. 2.** СЭМ-изображение участка, обработанного ионным пучком (время экспозиции в точке 32 мс, расстояние между точками 2 мкм) и зарациивленного слоем одиночных КТ InP.



**Рис. 3.** Корреляция степени заполнения матрицы квантовыми точками (QD) с временем экспозиции ионного пучка.



**Рис. 4.** СЭМ-изображение участка образца, обработанного ионным пучком (время экспозиции 64 мс) и зарощенного двумя слоями вертикально-связанных квантовых точек (структура на рис. 1).

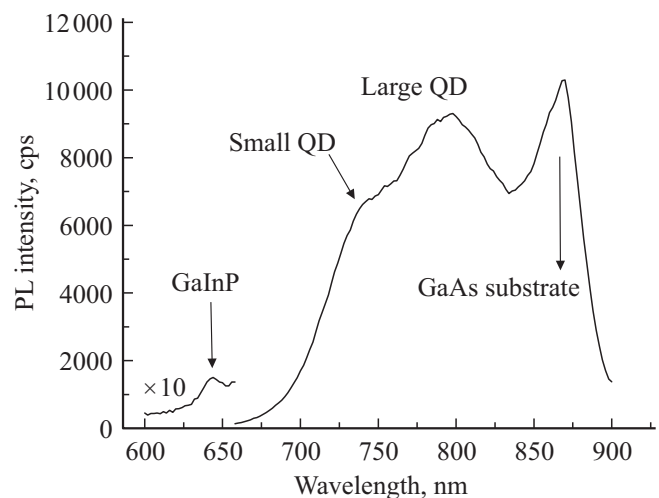
времена экспозиции в месте обработки ионным пучком образуются глубокие кратеры. Рост квантовых точек в этом случае происходит на краю кратера, оставляя сам кратер незарощенным. На рис. 3 представлен результат статистической обработки данных ростовых экспериментов: вероятность обнаружения квантовой точки непосредственно над обработанным участком в зависимости от времени экспозиции ионного пучка. Наилучшие результаты достигались при временах 16–32 мс.

Первый слой КТ зарощивался слоем GaAs толщиной 300 нм и слоем GaInP толщиной 70 нм. Суммарная толщина слоев выбиралась таким образом, чтобы полностью закрыть первый слой КТ, но сохранить вертикальную связь по напряжениям для ориентации второго слоя КТ. Использование буфера слишком большой толщины ведет к потере вертикальной связи и случайному распределению КТ InP по поверхности. При этом можно наблюдать лишь слабую корреляцию в плотности КТ над местом обработки. На рис. 4 приведено СЭМ-изображение структуры, представленной на рис. 1 (время экспозиции 64 мс). Видно, что большая часть позиций, обработанных ионным пучком, оказывается занята КТ. Пропущенные участки образуются, вероятнее всего, из-за потери вертикальной связи, вызванной слишком малыми размерами КТ первичного слоя.

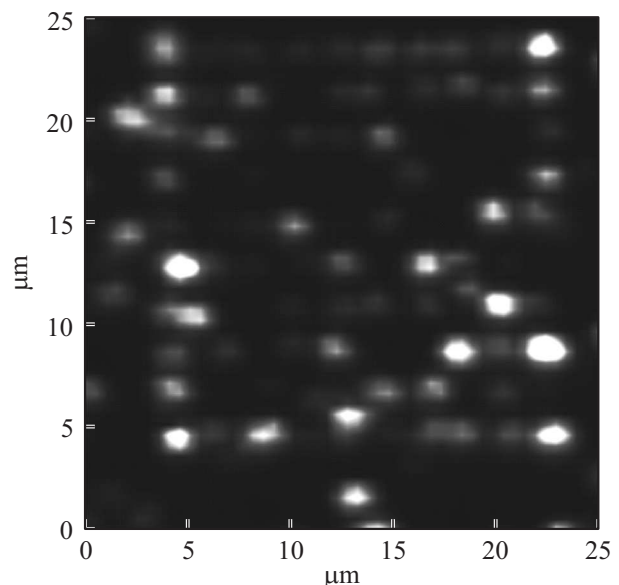
На рис. 5 представлен спектр фотолюминесценции (ФЛ) образца с КТ InP, измеренный при температуре 300 К, область возбуждения составляла  $100 \times 100$  мкм. В спектре прослеживаются 4 основных полосы излучения: буфер GaInP (640–650 нм), мелкие КТ (650–700 нм), крупные КТ (750–850 нм) и подложка GaAs (860 нм). Данный спектр является характерным для КТ InP в матрице GaInP, выращенных в установке МОС-гидридной эпитаксии.

На рис. 6 представлена карта интенсивности ФЛ (микро-ФЛ) в интересующем нас спектральном диапа-

зоне „больших“ КТ 780–800 нм участка образца с обработкой ионным пучком в течение 32 мс. Спектры микро-ФЛ при комнатной температуре измерялись на установке ИНТЕГРА Спектра (NT-MDT), снабженной объективом  $100\times$  и непрерывным (CW) Nd:YAG-лазером (532 нм). Из представленной картины видно, что излучение, соответствующее „большим“ КТ, оказывается локализованным около обработанных участков. Разброс в интенсивности разных КТ вызван в некоторой степени различным спектральным составом излучения. Из рисунка также видно, что часть КТ не излучает. Скорее всего, это вызвано смыканием КТ верхнего и нижнего слоев из-за слишком большого размера точек нижнего слоя



**Рис. 5.** Спектр фотолюминесценции (PL) образца с квантовыми точками (QD) InP при температуре 300 К. Возбуждение излучением CW лазера с длиной волны 532 нм.



**Рис. 6.** Карта интенсивности фотолюминесценции участка образца с двумя слоями квантовых точек InP, с предэпитаксиальной обработкой ионным пучком (время экспозиции 64 мс). Спектральный диапазон 778–803 нм.

и недостаточной для них толщины буферного слоя, в результате чего происходит деградация свойств верхней точки.

#### 4. Заключение

Таким образом, в результате проведенных исследований были получены образцы с контролируемым расположением квантовых точек InP на подложках GaAs. Позиционирование квантовых точек обеспечивалось с помощью предэпитаксиальной обработки сфокусированным ионным пучком. Карта фотolumинесценции участков образцов с обработкой ионным пучком демонстрирует корреляцию в распределении интенсивности в искомым спектральном диапазоне крупных квантовых точек InP, совпадающую с заданным ионным пучком рисунком.

Работа выполнена при поддержке гранта правительства РФ 14B25.31.0020 (мегагрант).

#### Список литературы

- [1] *Single Quantum Dots: Fundamentals, Applications and New Concepts*, ed. by P. Michler (Springer, 2003).
- [2] M. Bommer, W.-M. Schulz, R. Rossbach, M. Jetter, P. Michler, T. Thomay, A. Leitenstorfer, R. Bratschitschl. *J. Appl. Phys.*, **110**, 063 108 (2011).
- [3] V. Zwiller, T. Aichele, W. Seifert, J. Persson, O. Benson. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 1509 (2003).
- [4] R. Rödel, A. Bauer, S. Kremling, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp, L. Worschech, A. Forchel. *Nanotechnology*, **23**, 015 605 (2012).
- [5] Y. Chu, A.M. Mintairov, Y. He, J.L. Merz, N.A. Kalugnyy, V.M. Lantratov, S.A. Mintairov. *Phys. Status Solidi C*, **8** (2), 325 (2011).
- [6] V. Baumann, F. Stumpf, Ch. Schneider, S. Kremling, K.L. Worschech, A. Forchel, S. Höfling, M. Kamp. *Appl. Phys. Lett.*, **100**, 091 109 (2012).
- [7] D. Dalacu, M.E. Reimer, S. Frederick, D. Kim, J. Lapointe, P.J. Poole, G.C. Aers, R.L. Williams, W.R. McKinnon, M. Korkusinski, P. Hawrylak. *Laser Photon. Rev.*, **4** (2), 283 (2010).
- [8] M. Mehta, D. Reuter, A. Melnikov, A.D. Wieck, A. Remföh. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 123 108 (2007).
- [9] A.J. Martin, T.W. Saucer, G.V. Rodriguez, V. Sih, J.M. Millunchick. *Nanotechnology*, **23**, 135 401 (2012).
- [10] V. Baumann, F. Stumpf, T. Steinl, A. Forchel, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp. *Nanotechnology*, **23**, 375 301 (2012).

Редактор Л.В. Шаронова

#### Site-controlled growth of single InP quantum dots

A.S. Vlasov<sup>+</sup>, A.M. Mintairov<sup>+\*</sup>, N.A. Kalyuzhnyy<sup>+</sup>, S.A. Mintairov<sup>+</sup>, R.A. Saliy<sup>+</sup>, A.I. Denisyuk<sup>‡</sup>, R.A. Babunts<sup>+</sup>

<sup>+</sup> Ioffe Institute,  
194021 St. Petersburg, Russia

<sup>\*</sup> Notre Dame University,  
Notre Dame, IN, 46556, US

<sup>‡</sup> NRU „ITMO“,  
197101 St. Petersburg, Russia

**Abstract** MOVPE growth of InP/GaInP quantum dots (QD) on GaAs substrate „defects“ formed by focused Ga<sup>+</sup> ion beam has been investigated. It has been shown, that in InP/GaInP system ordered matrixes of QD's with the density of 0.25 μm<sup>-2</sup> could be obtained. It has been show, that effective photoluminescence signal can be obtained from these dots in the double QD layer structure divided by GaAs/GaInP buffer.