

Исследование структур с множественными квантовыми ямами InAs/GaAs методом спектроскопии электроотражения

© А.С. Большаков^{*†}, В.В. Чалдышев^{*+•††}, А.В. Бабичев^{*+■}, Д.А. Кудряшов⁺,
А.С. Гудовских^{+♦}, И.А. Морозов⁺, М.С. Соболев⁺, Е.В. Никитина⁺

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

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

• Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
195251 Санкт-Петербург, Россия

♦ Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет „ЛЭТИ“,
97376 Санкт-Петербург, Россия

■ ООО „Коннектор Оптик“,
194292 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 22 апреля 2015 г. Принята к печати 12 мая 2015 г.)

Изготовлена и исследована периодическая брэгговская гетероструктура с тремя сверхтонкими квантовыми ямами InAs/GaAs в периоде. Методом спектроскопии электроотражения и путем численного квантово-механического расчета определено расщепление энергий экситонных переходов в квантовых ямах. Обнаружено существенное влияние интерференционных эффектов на величины отдельных пиков в спектре электроотражения.

1. Введение

В периодической структуре с квантовыми ямами (КЯ), в которой период d подобран таким образом, чтобы выполнялось брэгговское условие ($k_z d = \pi$, где k_z — проекция волнового вектора света в направлении, перпендикулярном слоям) на частоте экситонного перехода, должно происходить резонансное усиление отражения [1]. Как следует из теоретического рассмотрения [2] и экспериментальных результатов [3,4], этот эффект может быть усилен в структурах с несколькими КЯ в периоде, расположенными близко друг к другу. В идеальном случае система из N_0 узких КЯ, расположенных вплотную друг к другу, но при этом разделенных туннельно-непрозрачными барьерами, эквивалентна одной КЯ с уменьшенным в N_0 раз излучательным временем жизни. В реальных структурах с КЯ, разделенными тонкими барьерами, происходит расщепление уровней размерного квантования. Естественно, что уменьшение излучательного времени жизни в близко расположенных квантовых ямах должно происходить только в случае, если расщепление энергий экситонных резонансов в КЯ не превысит спектральную ширину экситонной линии. Поэтому представляется важным при изготовлении резонансных брэгговских структур с несколькими квантовыми ямами в периоде исследовать модификацию спектра экситонных состояний в соседствующих КЯ.

Мощным инструментом для исследования энергетического спектра как объемных полупроводников, так и полупроводниковых микро- и наноструктур является модуляционная спектроскопия [5]. Дифференциальный

характер модуляционных методик позволяет выявить особенности, связанные с квантовыми переходами на характерных энергиях, незаметные в обычных оптических спектрах. Особое распространение получили спектроскопия электро- и фотоотражения, при которых электрическое поле в исследуемом образце модулируется либо посредством приложения внешнего смещения, либо свободными носителями, генерация которых происходит под воздействием лазерного луча. Электрооптический эффект может усиливаться и существенно модифицироваться в структурах с множественными квантовыми ямами вследствие интерференции света и коллективных эффектов в системе экситонов.

Представляет интерес исследование резонансных брэгговских систем на основе системы КЯ InAs с барьерами GaAs, поскольку такие структуры обладают малым диэлектрическим контрастом. Малая величина брэгговского отражения, обусловленного пассивным диэлектрическим контрастом, должна обеспечить более отчетливое проявление экситонного резонанса в оптических спектрах. Однако различие в параметрах решетки указанных материалов, наряду с требованием однородности слоев КЯ, вынуждает использовать сверхтонкие слои InAs, толщина которых меньше критической толщины образования квантовых точек.

В настоящей работе спектроскопия электроотражения применялась для исследования экситонных переходов в периодической системе, содержащей по 3 сверхтонкие (номинальной толщиной в 1 монослой) КЯ InAs в каждом периоде, разделенные барьерами GaAs. Период исследованной структуры допускал брэгговскую дифракцию света на частоте одного из экситонных переходов в КЯ, чего можно добиться подстройкой угла

[†] E-mail: bolsh_as@mail.ioffe.ru

^{††} E-mail: chald.gvg@mail.ioffe.ru

падения света или температуры образца. Определенные путем моделирования экспериментального спектра значения энергии экситонных переходов в КЯ сравнивались с результатами квантово-механического расчета расщепления уровней. Кроме того, проводились измерения спектров электроотражения при различных углах падения света и температурах для выяснения влияния брэгговской интерференции на форму и величину пиков электроотражения, что представляет интерес для разработки управляемых брэгговских отражателей.

2. Образец и методика эксперимента

Исследованный образец представлял собой периодическую гетероструктуру, содержащую 60 периодов, каждый из которых содержал по 3 КЯ InAs толщиной в 1 монослой, разделенные барьерами GaAs (рис. 1). Эпитаксиальная структура была изготовлена методом молекулярно-пучковой эпитаксии на *n*-легированной подложке GaAs (001) диаметром 51 мм. Качество выращенной гетероструктуры оценивалось методом рентгеноструктурного анализа. Согласно его результатам, толщина ям составила $\sim 2.3\text{--}2.9 \text{ \AA}$, толщина барьеров $b \approx 9.3 \text{ нм}$, период структуры $d \approx 118 \text{ нм}$, толщина верхнего слоя GaAs составляет 127.5 нм. Для проведения измерений был выполнен ряд простейших операций. Первая стадия состояла в осаждении на поверхность гетероструктуры слоя нитрида кремния (Si_3N_4) толщиной 300 нм на установке плазмохимического осаждения, PECVD, Oxford Plasmalab system 100 (температура во время осаждения составляла 350°C , давление — 600 мторр, поток силана (SiH_4) составлял $2.5 \text{ см}^3/\text{мин}$, азота (N_2) — $950 \text{ см}^3/\text{мин}$, в режиме чередования: RF — 13 с, LF — 7 с, где мощность RF и LF равнялась 40 Вт). Окно в слое нитрида кремния для последующего осаждения индий-оловянного оксида (ITO) толщиной 100 нм на поверхность гетероструктуры было сформировано через фотошаблон за счет жидкостного травления.

Осаждение ITO производилось при комнатной температуре на установке ВЧ-магнетронного осаждения (BOC Edwards Auto 500 RF). В качестве мишени выступал 51-миллиметровый диск из смешанного оксида состава 90% In_2O_3 — 10% SnO_2 от LTS Chemicals. Давление в рабочей камере перед напуском аргона составляло менее $5 \cdot 10^{-6}$ мбар. Аргон марки вч подавался в камеру со скоростью $10 \text{ см}^3/\text{мин}$. Перед осаждением оксидная мишень выдерживалась в плазме аргона в течение 10 мин с целью удаления загрязнений. Мощность ВЧ-магнетрона составляла 50 Вт.

После нанесения слоя ITO через фотошаблон формировался металлический контакт Сг/Au толщиной 20/300 нм соответственно. Металлизация формировалась путем вакуумного термического напыления (вакуум в камере во время напыления составлял $8 \cdot 10^{-6}$ мбар). Схематический вид изготовленной структуры представлен на рис. 1.

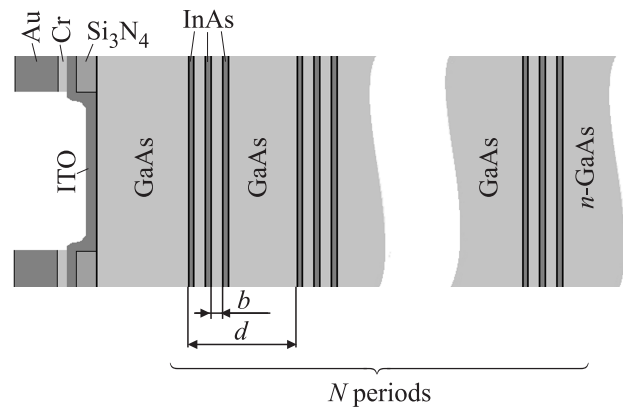


Рис. 1. Эскиз исследованной структуры.

Исследования спектров оптического отражения и электроотражения проводились на установке на основе монохроматора МДР-23 (ЛОМО). Образец помещался в оптический криостат OptCryo 105 (РТИ) на держателе. Температура образца в парах гелия или азота контролировалась с точностью 0.2 К. Источником света служила лампа СИРШ-100. Фотоприемник представлял собой кремниевый фотодиод Hamamatsu с предусилителем. Использовалась схема синхронного детектирования на частоте 232 или 2000 Гц.

Модулирующее напряжение к исследуемому образцу подводилось через металлический держатель, к которому при помощи проводящей серебряной пасты подложкой крепился образец, и контакт, подсоединенный также при помощи проводящей серебряной пасты к золотому контакту на лицевой стороне образца. Отрицательный потенциал прикладывался к подложке, полярность напряжения в процессе модуляции не менялась. Нижний уровень прикладываемого напряжения соответствовал напряжению насыщения коллектор-эмиттер транзистора КТ315Г ($\sim 0.4 \text{ В}$), верхний уровень можно было изменять.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 2 представлен нормированный спектр электроотражения $\Delta R/R$ (R — коэффициент отражения, ΔR — его приращение, вызванное электрическим полем), полученный при $T \approx 297 \text{ К}$, угле падения неполяризованного света $\sim 23^\circ$ и модулирующем напряжении $\sim 2 \text{ В}$; разрешение монохроматора было 1.5 нм. Наиболее сильная особенность соответствует энергии фотонов в 1.42 эВ и, очевидно, связана с краем фундаментального поглощения в барьерных слоях GaAs. Ниже по энергии располагаются отдельные пики, которые мы относим к экситонным переходам в КЯ InAs. Определение энергий, соответствующих наблюдаемым резонансам, в случае модуляционной спектроскопии не является прямой процедурой, в отличие, например, от спектроскопии поглощения. Это связано с интерференционными эффектами,

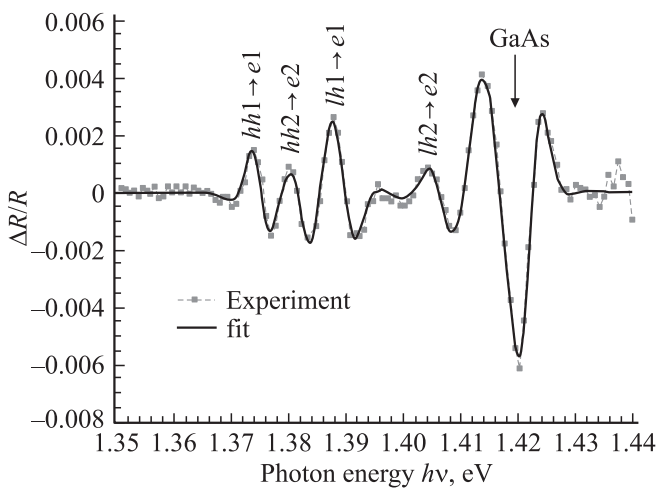


Рис. 2. Спектр электроотражения при комнатной температуре и угле падения света $\sim 23^\circ$.

приводящими к смешиванию вызываемых электрическим полем приращений вещественной и мнимой частей диэлектрической функции [6]. Поэтому для определения значений энергий экситонных переходов была использована аппроксимация по методу наименьших квадратов в предположении гауссовой формы экситонных линий (рис. 2). Предположение о гауссовой форме линии следует из теоретических соображений [7] и подтверждается экспериментально [8] для достаточно высоких температур, в т.ч. комнатной. Значения энергий экситонных резонансов в КЯ, полученные путем аппроксимации, приведены в табл. 1 (строка „Эксперимент“).

Большое число наблюдаемых спектральных линий говорит о значительном расщеплении экситонных состояний, поскольку в невозмущенном случае было бы лишь два резонанса, соответствующих возбуждению экситонов с тяжелой и с легкой дыркой (ямы слишком узкие для возможности существования второго квантового уровня). Для конкретизации происхождения дополнительных переходов был произведен численный квантово-механический расчет расщепления уровней размерного квантования носителей заряда в трех квантовых ямах. Расчет проводился по методу конечных разностей для области шириной 500 нм, примерно посередине которой располагаются три прямоугольные потенциальные ямы шириной 2.5 Å, разделенные барьерами шириной 93 Å. Шаг использованной сетки составлял 0.01 Å. Диагонализация матрицы, получающейся из уравнения Шредингера для огибающих, проводилась при помощи процедуры библиотеки линейной алгебры LAPACK. Расчет проводился в рамках однозонной модели для тяжелых и легких дырок без учета их смешивания.

Поскольку КЯ имеют очень малую ширину, носители заряда преимущественно находятся в барьерных слоях и имеют весьма малую вероятность быть обнаруженными непосредственно в локализирующих их КЯ (это подтверждается расчетами огибающих волновых функций, см.

рис. 3). Поэтому в расчетах использовалась эффективная масса носителей в GaAs и пренебрегалось отличием эффективных масс в GaAs и InAs. Следует отметить, что размер локализации волновых функций как электронов, так и дырок значительно превышает параметр решетки и ширину КЯ, что оправдывает применимость метода эффективной массы. Задаваемая в расчете глубина потенциальных ям соответствовала значению разрыва зон в КЯ InAs/GaAs при комнатной температуре, при этом разрыв зоны проводимости предполагался равным 67% от полного разрыва зон.

Расчитанные огибающие волновых функций носителей заряда показаны на рис. 3. Полученные расчетные значения энергий связи тяжелых дырок (hh), легких дырок (lh) и электронов (e) приведены в табл. 2. Как можно видеть, уровень тяжелых дырок hh расщепляется на три подуровня. Расщепление уровня тяжелых дырок составляет менее 1 мэВ, что значительно меньше ширины наблюдаемых экситонных линий. Для легких дырок и электронов, вследствие их малой эффективной массы, расщепление значительно более сильное, что приводит к тому, что один из трех расщепленных уровней оказывается делокализованным.

Вычисленные на основе данных табл. 2 энергии разрешенных по симметрии экситонных переходов в КЯ (с учетом энергии связи экситона в GaAs 4.5 мэВ) приведены в табл. 1 (строка „Расчет“). Хорошее соответствие расчетных и экспериментальных значений позволяет связать наблюдаемые в эксперименте экситонные линии с экситонными переходами между конкретными подзонами в КЯ (рис. 2). В работе [9] было показано, что вследствие различия эффективных масс электронов и дырок в оптических спектрах гетероструктур могут наблюдаться не только переходы между уровнями с одинаковой симметрией, но и между уровнями с одинаковой четностью. Однако в данном случае это не играет роли, так как переход $hh3-e1$ имеет всего на 0.6 мэВ большую энергию, чем переход $hh1-e1$, что существенно меньше ширины экситонных линий. С другой стороны, этот факт

Таблица 1. Значения энергии экситонных переходов в КЯ (эВ), определенные из подгонки экспериментальных данных и путем квантовомеханического расчета

	$hh1-e1$	$hh2-e2$	$lh1-e1$	$lh2-e2$
Эксперимент	1.3750	1.3825	1.3893	1.4065
Расчет	1.3749	1.3847	1.3905	1.4062

Таблица 2. Значения энергии связи носителей в трех близких КЯ (мэВ)

№ уровня	hh	lh	e
1	24.07	8.44	20.53
2	23.77	2.21	11.08
3	23.45	—	—

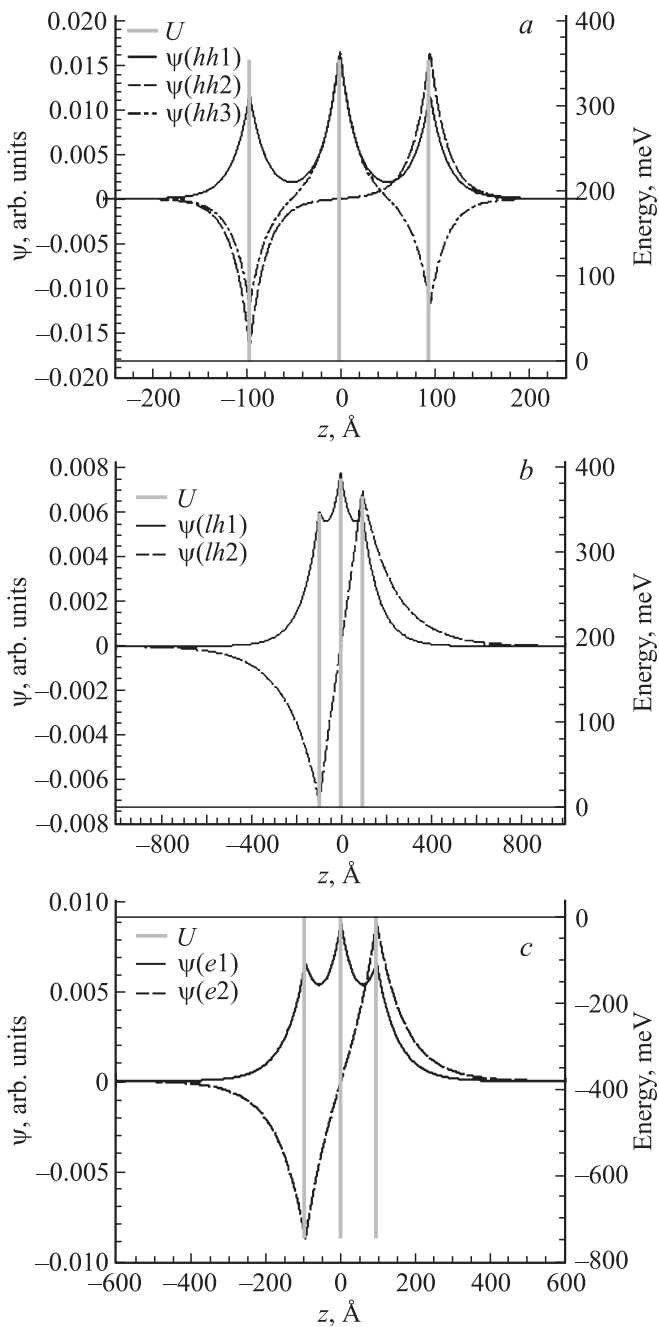


Рис. 3. Рассчитанные огибающие ψ волновых функций тяжелых дырок (a), легких дырок (b) и электронов (c); U — соответствующий профиль потенциала.

должен привести к усилению интенсивности наблюдаемой линии.

О силе осциллятора наблюдаемых переходов нельзя судить напрямую по величине особенностей в спектре электроотражения, поскольку интерференционные эффекты в структурах с множественными квантовыми ямами играют важную роль [10]. В работе [10] утверждается, что увеличение числа КЯ в периодической структуре вследствие деструктивной интерференции не приводит к существенному изменению амплитуды пиков электро-

отражения. Это верно для короткопериодных сверхрешеток, однако вряд ли стоит ожидать подобного эффекта для брэгговских структур, так как при брэгговском условии деструктивная интерференция отсутствует. Вопрос о влиянии интерференционных эффектов на форму и величину особенностей в спектрах электроотражения исследуемой структуры требует детального исследования, однако об их важности можно судить по различию спектров, полученных при разных углах падения света. На рис. 4 приводятся спектры электроотражения, полученные в s -поляризации при $T = 130$ К, и различных углах падения света. Как можно видеть, относительная интенсивность отдельных экситонных пиков значительно меняется с изменением угла падения света, переходя от практически полного угасания к доминированию над остальными пиками. Это происходит вследствие изменения оптической длины пути, проходимой лучом света в отдельных слоях, а значит, и изменения относительных фазовых сдвигов волн, отраженных от отдельных слоев.

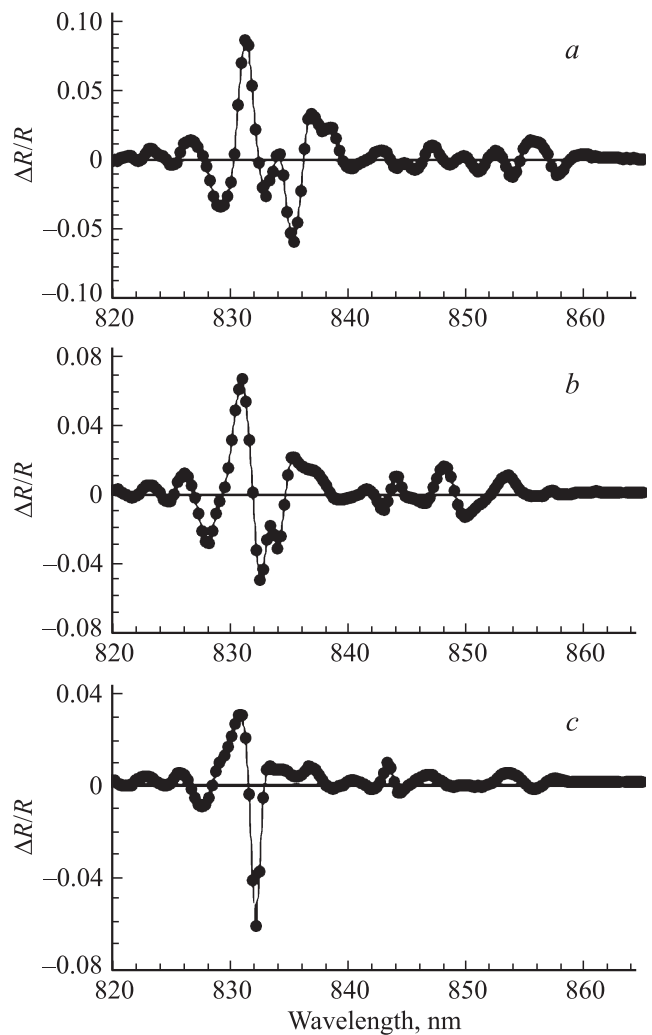


Рис. 4. Спектры электроотражения s -поляризованного света при температуре 130 К для углов падения света $\sim 23^\circ$ (a), $\sim 45^\circ$ (b) и $\sim 67^\circ$ (c).

4. Заключение

В настоящей работе исследовалась периодическая структура с КЯ InAs/GaAs с периодом, обеспечивающим брэгговскую дифракцию света на частоте экситонных резонансов в КЯ, содержащая по 3 КЯ в каждой сверхъячейке. Спектроскопия электроотражения и квантово-механический расчет позволяют заключить, что экситонные резонансы в КЯ испытывают значительное расщепление вследствие близкого расположения КЯ одного периода. Электрон и дырка, образующие экситон, оказываются локализованными сразу на трех КЯ (для антисимметричных двух уровней квантования — на двух крайних КЯ). Расщепление уровней практически не сказывается на тяжелых дырках, но в существенной степени — на легких дырках и электронах. Энергии разрешенных по симметрии экситонных переходов не совпадают, и расщепление экситонных уровней превышает ширину экситонных линий, что отражается на коллективных эффектах взаимодействия экситонов со светом. Кроме того, показано, что величина особенностей в спектрах электроотражения исследуемой брэгговской структуры, в отличие от короткопериодных сверхрешеток, сильно зависит от интерференционных эффектов.

А.С. Большаков благодарен Федеральному агентству научных организаций (ФАНО) за финансирование оптических измерений. В.В. Чалдышев благодарен за финансовую поддержку Российского фонда фундаментальных исследований, РФФИ грант № 14-29-07243 офи_м при разработке и выращивании структур, А.В. Бабичев благодарен РФФИ, гранты № 15-02-08282 А, № 14-02-31485 мол_а, а также стипендии президента РФ молодым ученым и аспирантам (грант № СП-4716.2015.1).

Список литературы

- [1] Е.Л. Ивченко, А.И. Несвижский, С. Йорда. ФТТ, **36**, 2118 (1994).
- [2] E.L. Ivchenko, M.A. Kaliteevski, A.V. Kavokin, A.I. Nesvizhskii. J. Opt. Soc. Am. B, **13**, 1061 (1996).
- [3] В.В. Чалдышев, Е.В. Кунделев, Е.В. Никитина, А.Ю. Егоров, А.А. Горбачевич. ФТП, **46**, 1039 (2012).
- [4] А.С. Большаков, В.В. Чалдышев, Е.Е. Заварин, А.В. Сахаров, В.В. Лундин, А.Ф. Цацульников, М.А. Яговкина. ФТТ, **55**, 1706 (2013).
- [5] F.H. Pollak. In: *Handbook on Semiconductors*, ed. by T.S. Moss, M. Balkanski (Amsterdam, Elsevier, 1994) v. 2, p. 527.
- [6] P.C. Klipstein. N. Apsley. J. Phys. C, **19**, 6461 (1986).
- [7] Y. Toyozawa. Progr. Theor. Phys., **20**, 53 (1958).
- [8] B.V. Shanabrook, O.J. Glembocki, W.T. Beard. Phys. Rev. B, **35**, 2540 (1987).
- [9] Z.M. Fang, A. Persson, R.M. Cohen. Phys. Rev. B, **37**, 4071 (1988).
- [10] A.J. Shields, P.C. Klipstein. Superlatt. Microstr., **7**, 397 (1990).

Редактор А.Н. Смирнов

Study of multiple quantum well InAs/GaAs structures by electroreflectance spectroscopy

A.S. Bolshakov*, V.V. Chaldyshev**•,
A.V. Babichev**■, D.A. Kudryashov+,
A.S. Gudovskiy+♦, I.A. Morozov+,
M.C. Sobolev+, E.V. Nikitina+

* Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia
+ St. Petersburg Academic University —
Nanotechnology Research and Education Centre
of the Russian Academy of Science,
194021 St. Petersburg, Russia
• Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,
195251 St. Petersburg, Russia
♦ St. Petersburg State Electrotechnic University,
197376 St. Petersburg, Russia
■ „Connector Optics“,
194292 St. Petersburg, Russia

Abstract A periodic Bragg structure with triple ultra thin InAs/GaAs quantum wells has been fabricated and investigated. The quantum well exciton energy splitting in the adjacent quantum wells has been determined with the electroreflectance spectroscopy and with the direct quantum-mechanical calculation. The significant influence of interference effects on electroreflection exciton peak magnitudes has been revealed.