

07

Гетероструктуры с квантовыми точками CdTe/ZnTe для излучателей одиночных фотонов, выращенные методом молекулярно-пучковой эпитаксии

© С.В. Сорокин¹, И.В. Седова¹, С.В. Гронин¹, К.Г. Беляев¹,
М.В. Рахлин¹, А.А. Торопов¹, И.С. Мухин^{2,3}, С.В. Иванов¹

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург

² Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет РАН

³ Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики
E-mail: sorokin@beam.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 12 июля 2016 г.

Представлены результаты по молекулярно-пучковой эпитаксии гетероструктур с квантовыми точками (КТ) CdTe/ZnTe с достаточно низкой поверхностной плотностью, позволяющей их использование в качестве однофотонных излучателей. КТ формировались в результате осаждения на поверхность напряженного двумерного (2D) слоя CdTe толщиной 3.1–4.5 монослоев слоя аморфного Te и его последующей быстрой термической десорбции. Показано, что проведение последующего термического отжига поверхности с КТ в отсутствие внешнего потока Te приводит к сильному уширению и смещению в коротковолновую сторону пика фотолуминесценции (ФЛ) КТ. Измерение спектров микро-ФЛ одиночных КТ CdTe/ZnTe в изготовленных мезаструктурах диаметром 200–1000 nm позволило оценить поверхностную плотность КТ как $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

Эмиссия одиночных фотонов в структурах с квантовыми точками (КТ) была продемонстрирована для различных систем соединений A_2B_6 , в том числе для КТ CdSe/Zn(S,Se) [1] и CdTe/ZnTe [2]. В последнем случае при выращивании структур методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) использовался режим термической активации (ТА), когда формирование КТ индуцируется изменением поверхностной энергии напряженного двумерного (2D) слоя CdTe в результате покрытия слоем аморфного Te и его последующей быстрой

десорбции [3,4]. Было показано, что метод ТА позволяет выращивать структуры с КТ CdTe/ZnTe с поверхностной плотностью порядка 10^{10} cm^{-2} . Несмотря на то что метод ТА КТ был предложен более десяти лет назад, выбор оптимальных параметров МПЭ, необходимых для реализации массива КТ низкой плотности в заданном спектральном диапазоне, остается неочевидным, а влияние параметров роста на фотолюминесцентные (ФЛ) свойства структур с КТ выяснено не полностью. В настоящей работе представлены результаты выращивания методом МПЭ структур с КТ CdTe/ZnTe при использовании режима ТА и исследовано влияние на спектр ФЛ КТ наличия (или отсутствия) потока Те в процессе термического отжига поверхности с КТ. Приведены данные микро-ФЛ выращенных структур, позволившие оценить поверхностную плотность одиночных излучающих КТ.

Структуры с КТ CdTe/ZnTe были выращены псевдоморфно на подложках InAs (001) с буферным слоем InAs толщиной $0.2 \mu\text{m}$ при использовании двухкамерной установки МПЭ (SemiTEq, Россия) при температуре подложки $T_S = 295\text{--}300^\circ\text{C}$ в условиях обогащения поверхности элементами VI группы (Те). При росте использовались испарительные ячейки с высокочистыми (чистота 6N5) веществами Zn, Cd, Mg и Те. Для уменьшения плотности дефектов упаковки (ДУ) на гетероинтерфейсе $\text{A}_2\text{B}_6/\text{InAs}$ рост начинался посредством одновременного открытия потоков Zn и Те на поверхность буферного слоя InAs с реконструкцией $(2 \times 4)\text{As}$ [5] с последующим осаждением 5 монослоев (ML) ZnTe. Поверх зародышевого слоя ZnTe структуры содержали 10-нм барьер $\text{Zn}_{0.9}\text{Mg}_{0.1}\text{Te}$ и слой ZnTe толщиной 50 нм, в который на расстоянии 20–30 нм от поверхности вставлялась плоскость КТ CdTe номинальной толщиной $w_{\text{CdTe}} = 3.1\text{--}4.5 \text{ ML}$. Общая толщина структуры выбиралась таким образом, чтобы избежать превышения критической толщины и релаксации упругих напряжений. Процесс роста КТ контролировался *in situ* при помощи метода дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО). Нагрев подложки осуществлялся радиационно-бесконтактным способом.

КТ CdTe/ZnTe формировались в режиме ТА. Напряженный 2D-слой CdTe толщиной 3.1–4.5 ML выращивался на поверхности ZnTe в режиме стандартной МПЭ, т.е. при одновременном осаждении Cd и Те. После этого он покрывался слоем аморфного Те толщиной $\sim 0.1 \mu\text{m}$ при $T_S \sim 50^\circ\text{C}$, способствующего уменьшению поверхностной энергии системы и облегчению перехода в ростовую моду

Странского–Крастанова [4]. После десорбции осажденного аморфного Те при $T_S \sim 220^\circ\text{C}$ (при скорости подъема температуры подложки $\sim 40^\circ\text{C}/\text{min}$) в ДБЭО отчетливо наблюдалась 2D–3D-перестройка морфологии поверхности CdTe. Последующее увеличение температуры до $T_S = 300^\circ\text{C}$ проводилось со значительно меньшей скоростью в течение 30–40 min в условиях выдержки поверхности CdTe как в потоке Те, так и при его отсутствии.

Выращенные структуры с КТ исследовались методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) в геометрии поперечного сечения с использованием микроскопа Philips EM-420 (Нидерланды). Структуры с КТ исследовались также методами спектроскопии ФЛ и микро-ФЛ. Для исследований микро-ФЛ из планарных гетероструктур с КТ CdTe/ZnTe методом электронной литографии были изготовлены цилиндрические мезаструктуры диаметром 200–1000 nm. Измерение спектров микро-ФЛ проводилось в стандартной оптической конфокальной схеме с пространственным ограничением по детектированию и регистрации спектров с помощью CCD-камеры. Для возбуждения ФЛ использовалось лазерное излучение с $\lambda = 404\text{ nm}$. Плотность мощности возбуждения составляла $\sim 10\ \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$.

ПЭМ-изображения структур в геометрии поперечного сечения продемонстрировали значительную ($\geq 10^7\ \text{cm}^{-2}$) плотность ДУ, зарождающихся на интерфейсе КТ CdTe — верхний барьер ZnTe, причем плотность ДУ оказалась практически одинаковой для всех выращенных структур. Образование ДУ на интерфейсе CdTe/ZnTe может быть связано с длительной ($\sim 1.5\text{--}2\text{ h}$) остановкой роста, необходимой для снижения температуры до $T_S < 50^\circ\text{C}$ перед напылением слоя аморфного Те. Ранее было показано, что даже кратковременные остановки роста при МПЭ ZnSe-содержащих соединений могут приводить к формированию ДУ на интерфейсах [6], что, видимо, характерно для всех соединений A_2B_6 .

Несмотря на значительную плотность ДУ в области КТ, структуры демонстрировали интенсивную ФЛ при низких температурах. В структурах с КТ, сформированными методом ТА под потоком Те, в спектрах ФЛ доминирует низкоэнергетичный широкий пик ($E_{\text{max}} \sim 1.7\ \text{eV}$, 77 K) независимо от номинальной толщины осажденного CdTe (по крайней мере, в диапазоне номинальных толщин $w_{\text{CdTe}} = 3.1\text{--}4.5\ \text{ML}$), что указывает на основной вклад в ФЛ преимущественно больших КТ. Отсутствие избыточного давления Те над поверхностью CdTe в процессе ТА при

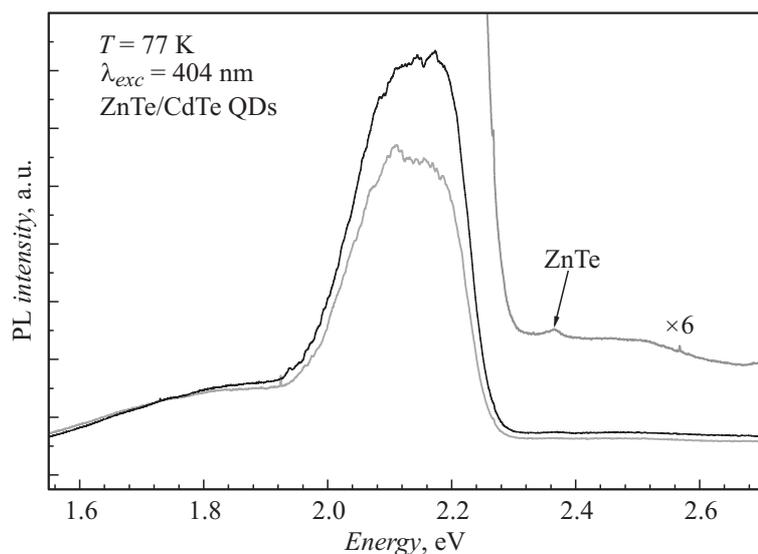


Рис. 1. Спектры низкотемпературной (77 К) ФЛ структур с КТ CdTe/ZnTe, сформированными методом ТА при отсутствии внешнего потока Te.

десорбции аморфного Te и последующем отжиге способствует более высокой поверхностной подвижности атомов Cd и приводит также к переиспарению некоторого количества осажденного материала CdTe. В результате наблюдается коротковолновый сдвиг доминирующего пика ФЛ (до $E_{\max} \sim 2.12$ eV, 77 К) при его одновременном уширении (ширина пика на полувысоте достигает 200 meV), практически независимо от номинальной толщины осажденного слоя CdTe ($w_{\text{CdTe}} = 3.1$ или 4.5 ML) (рис. 1). При этом в спектре ФЛ сохраняется слабое плечо в диапазоне 1.7–1.8 eV. Формирование КТ CdTe/ZnTe обычно происходит вблизи критической толщины пластической релаксации слоя CdTe, которая составляет 3–4 ML в случае осаждения CdTe в режиме МПЭ и ~ 6.5 ML в случае осаждения CdTe в режиме эпитаксии с повышенной миграцией атомов [7]. В настоящей работе нами наблюдалось формирование КТ, осажденных в режиме МПЭ при $w_{\text{CdTe}} = 3.1$ и 4.5 ML. Некоторое снижение интенсивности ФЛ в последнем случае согласуется с возможной частичной пластической релаксацией упругих

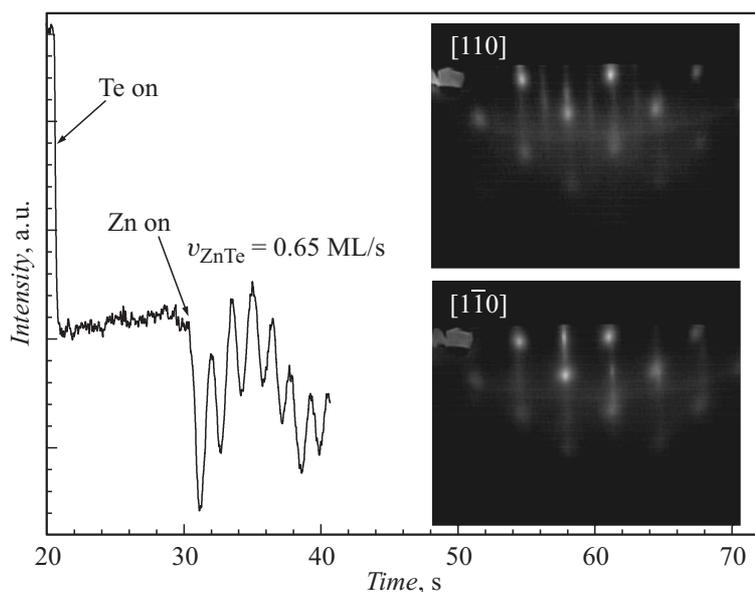


Рис. 2. Интенсивность отраженного рефлекса в ДБЭО в процессе заравнивания КТ CdTe номинальной толщиной 3.1 ML. На вставке показана ДБЭО поверхности CdTe непосредственно перед началом роста верхнего слоя ZnTe.

напряжений в CdTe. Следует отметить, что измеренное положение максимума пика ФЛ КТ достаточно хорошо согласуется с результатами работы [8], где наблюдался коротковолновый сдвиг максимума интегрального пика ФЛ (до $E_{PL}(77\text{ K}) \sim 2\text{ eV}$) в КТ, сформированных в режиме МПЭ, при увеличении температуры роста с 250 до 290°C.

Основное отличие выращенных в данной работе структур с КТ CdTe/ZnTe состоит в значительном уширении пика ФЛ КТ, что предполагает существенное перераспределение материала КТ в процессе отжига поверхности CdTe без внешнего потока Te после десорбции слоя аморфного Te. Данный отжиг приводит также к тому, что отчетливо выраженная точечная электронограмма ДБЭО, образующаяся после слета Te, становится более полосчатой. При этом в отдельных случаях в ДБЭО на фоне 3D-особенностей можно наблюдать появление реконструированной поверхности (2×1) Te, как показано на вставке

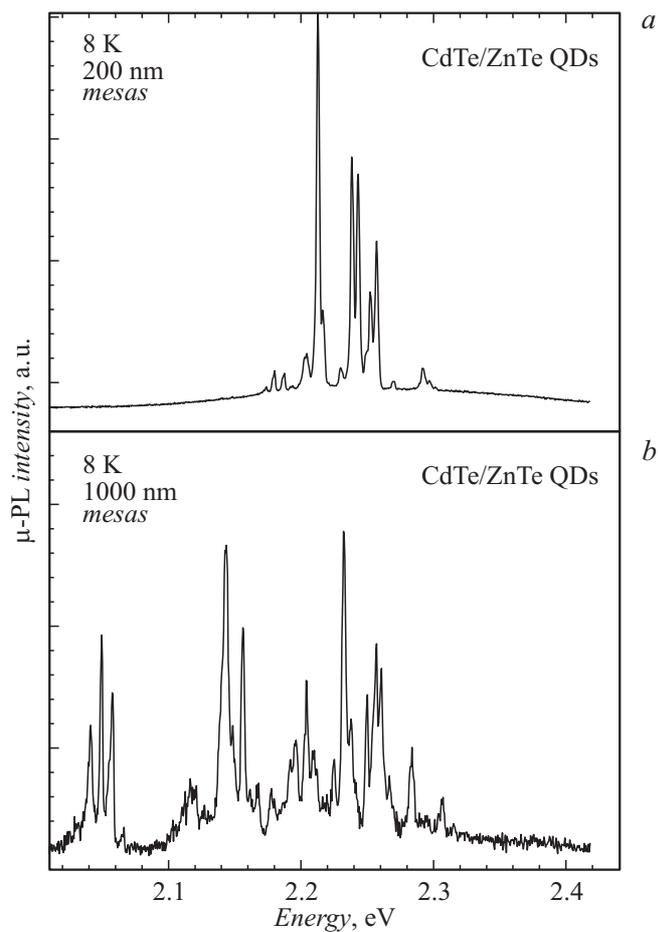


Рис. 3. Спектры низкотемпературной (8 К) микро-ФЛ, измеренные в мезаструктурах диаметром 200 нм (*a*) и 1000 нм (*b*), полученных из гетероструктуры с КТ CdTe/ZnTe. Номинальная толщина CdTe составляет 3.1 ML.

к рис. 2, где приведены картины ДБЭО поверхности КТ CdTe/ZnTe в двух ортогональных направлениях $[110]$ и $[1\bar{1}0]$ непосредственно перед началом роста верхнего слоя ZnTe. В этом случае наблюдение

3D-особенностей на реконструированной поверхности (2×1)Te не мешает проявлению выраженных осцилляций отраженного рефлекса в ДБЭО при выращивании верхнего барьера ZnTe (рис. 2), характерных для планарного послойного механизма роста. Эти результаты могут служить дополнительным указанием на пониженную поверхностную плотность КТ CdTe в выращенных структурах и их малый размер, что хорошо коррелирует с наблюдением широкого и сдвинутого в коротковолновую область спектра пика ФЛКТ.

В спектрах микро-ФЛ структуры с номинальной толщиной слоя CdTe 3.1 ML, регистрируемых при $T = 8$ К при возбуждении отдельных мезаструктур, наблюдаются узкие дискретные линии излучения одиночных КТ (рис. 3). Для мезаструктур диаметром 1000 nm число линий в спектре микро-ФЛ составляет менее 100 на одну мезу, а для мезаструктур диаметром 200 nm это число находится в диапазоне 2–7, что соответствует поверхностной плотности КТ $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

В заключение, используя режим ТА, методом МПЭ выращены структуры с КТ CdTe/ZnTe с поверхностной плотностью $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. В процессе отжига после термической десорбции слоя аморфного теллура, сопровождающегося 2D–3D-перестройкой поверхности CdTe, о чем свидетельствует изменение картины ДБЭО, отсутствие внешнего потока Te на поверхности CdTe способствует более высокой поверхностной подвижности атомов Cd, частичному переиспарению, а также перераспределению материала формирующихся КТ, что приводит к уменьшению их поверхностной плотности. Как результат, в спектрах ФЛ доминирует широкий пик ($\sim 200 \text{ meV}$) с максимумом при 2.12 eV, положение которого практически не зависит от номинальной толщины осажденного слоя CdTe в диапазоне $w_{\text{CdTe}} = 3.1\text{--}4.5 \text{ ML}$. Спектры микро-ФЛ (8 К) структуры с КТ CdTe с $w_{\text{CdTe}} = 3.1 \text{ ML}$ демонстрируют узкие дискретные линии излучения одиночных КТ.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 14-22-00107).

Список литературы

- [1] *Quitsch W., Kümmell T., Gust A. et al. // Phys. Status Solidi C. 2014. V. 11. N 7–8. P. 1256.*
- [2] *Couteau C., Moehl S., Tinjod F. et al. // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 85. N 25. P. 6251.*

- [3] *Tinjod F., Gilles B., Moehl S.* et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2003. V. 82. N 24. P. 4340.
- [4] *Tinjod F., Robin I.-C., André R.* et al. // *J. Alloys Compd.* 2004. V. 371. P. 63.
- [5] *Grabs P., Richter G., Fiederling R.* et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2002. V. 80. N 20. P. 3766.
- [6] *Sedova I.V., Sorokin S.V., Sitnikova A.A.* et al. // *Proc. 7th Int. Symp. „Nanostructures: Physics and Technology“.* St.Petersburg, Russia, 1999. P. 547.
- [7] *Marsal L., Besombes L., Tinjod F.* et al. // *J. Appl. Phys.* 2002. V. 91. N 8. P. 4936.
- [8] *Godo K., Chang J.H., Makino H.* et al. // *J. Appl. Phys.* 2002. V. 92. N 9. P. 5490.