

Оптическая анизотропия квантовых точек InGaAs

© С.А. Блохин[¶], А.М. Надточий, А.А. Красивичев, Л.Я. Карачинский, А.П. Васильев, В.Н. Неведомский, М.В. Максимов, Г.Э. Цырлин, А.Д. Буравлев, Н.А. Малеев, А.Е. Жуков*, Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов

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

(Получена 4 июня 2012 г. Принята к печати 15 июня 2012 г.)

С помощью спектроскопии фотолюминесценции проведены поляризационные исследования InGaAs КТ, синтезированных в режиме субмонослойного осаждения (СМКТ) на сингулярной поверхности GaAs (100). Исследовано влияние эффективного содержания In в InGaAs КТ и широкозонной матрицы AlGaAs на оптическую анизотропию КТ. Максимальная ($> 15\%$) оптическая анизотропия излучения с основного состояния InGaAs СМКТ между направлениями $[011]$ и $[01\bar{1}]$ наблюдается при эффективном содержании In $\sim 40\%$. Применение широкозонной матрицы AlGaAs позволило увеличить оптическую анизотропию InGaAs СМКТ в 1.5 раза. Обнаружено, что вертикальное складирование In(Ga)As/AlGaAs СМКТ в режиме вертикального связывания (разделяющие слои 5–10 нм) ведет к дальнейшему росту степени оптической анизотропии (в среднем до 25%). Согласно данным просвечивающей электронной микроскопии, оптическая анизотропия фотолюминесценции в основном обусловлена анизотропией латеральных размеров КТ по направлениям $[011]$ и $[01\bar{1}]$.

Исследования методов и способов управления процессами формирования массивов квантовых точек (КТ) являются крайне важной задачей как с фундаментальной точки зрения (изучения процессов самоорганизации КТ), так и с практической (контроль спектра электронных состояний КТ). Несмотря на достигнутый прогресс в экспериментальных [1] и теоретических [2] исследованиях, механизмы формирования структурной анизотропии КТ InGaAs и их влияние на оптические свойства массивов КТ (в частности, на поляризацию) остаются недостаточно изученными. Наиболее распространенным подходом создания структурно-анизотропных массивов КТ InGaAs при росте по механизму Странского–Крастанова на сингулярной поверхности GaAs (100) является применение низких скоростей роста (порядка $0.05 \text{ \AA}/\text{с}$) [3,4] и повышенной температуры ($> 540^\circ\text{C}$) [5,6]. Первый подход позволяет управлять структурной анизотропией самих точек — вытягивание формы КТ вдоль одного из кристаллографических направлений. Однако при низкой скорости роста крайне сложно контролировать количество осаждаемого материала, что негативно сказывается на воспроизводимости методики. В рамках второго подхода наблюдается структурная анизотропия массива КТ в целом — образуются латеральные цепочки КТ. Однако при высокой температуре роста контроль критической толщины осаждаемого материала проблематичен, что в свою очередь ведет к резкому повышению дефектности массива КТ. Теоретически структурная анизотропия КТ или массива КТ должна приводить к оптической анизотропии спонтанного излучения, однако оптические свойства такого рода КТ в целом мало исследованы. Ранее нами было показано, что субмонослойный режим роста ведет к появлению оптической анизотропии из-

лучения с состояний КТ InAs [7]. В настоящей работе представлены результаты исследования оптической анизотропии КТ InGaAs, синтезированных в режиме субмонослойного осаждения, в зависимости от эффективного содержания In в КТ, матрицы (Al)GaAs и толщины разделяющих слоев при вертикальном складировании, а также установлен механизм формирования анизотропии.

Все структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии в установке Riber-32P с твердотельным источником мышьяка на подложках GaAs с ориентацией (100). КТ, синтезируемые в режиме субмонослойного осаждения (далее СМКТ), формируются в результате нескольких циклов попеременного осаждения слоев InAs и GaAs [8]. Толщина осажденного InAs составляла менее одного монослоя и соответственно была меньше критической толщины перехода к трехмерному росту. Была изготовлена серия образцов с СМКТ с разным эффективным содержанием In (X_{In}) с разной матрицей (GaAs, AlGaAs) и разной толщиной прослойки между рядами точек. Подробное описание образцов приведено в таблице. Переход к островковому росту контролировался по появлению точечной картины дифракции быстрых электронов. Для предотвращения утечки неравновесных носителей при проведении оптических исследований в приповерхностную область и в область подложки активная область ограничивалась с обеих сторон короткопериодными сверхрешетками AlAs/GaAs. Поляризационные исследования проводились методом спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ). ФЛ возбуждалась YAG:Nd-лазером с энергией кванта $\sim 2.33 \text{ эВ}$ и плотностью мощности возбуждения $0.01\text{--}1 \text{ кВт}/\text{см}^2$. С помощью монохроматора и охлаждаемого Ge-детектора в стандартной схеме синхронного детектирования производилась регистрация сигнала ФЛ в направлении $[100]$. Степень оптической анизотропии

[¶] E-mail: blokh@mail.ioffe.ru

Описание исследованных образцов

Образец	Количество осажденных материалов в цикле роста, эффективное содержание In	Количество циклов	Матрица	Количество рядов СМКТ	Толщина прослойки
A	1.7 Å InAs + 1.7 Å GaAs $X_{In} \approx 50\%$	5	GaAs	1	–
B	1 Å InAs + 1.7 Å GaAs $X_{In} \approx 37\%$	11	GaAs	1	–
C	0.5 Å InAs + 1.7 Å GaAs $X_{In} \approx 23\%$	30	GaAs	1	–
D	1 Å InAs + 1.7 Å GaAs $X_{In} \approx 37\%$	11	Al _{0.15} Ga _{0.85} As	1	–
E	1 Å InAs + 1.7 Å GaAs $X_{In} \approx 37\%$	11	Al _{0.15} Ga _{0.85} As	6	10 нм
F	1 Å InAs + 1.7 Å GaAs $X_{In} \approx 37\%$	11	Al _{0.15} Ga _{0.85} As	6	5 нм
G	1 Å InAs + 1.7 Å GaAs $X_{In} \approx 37\%$	11	Al _{0.15} Ga _{0.85} As	6	3 нм

определялась как отношение разности интенсивностей ФЛ в двух ортогональных направлениях к их сумме. В качестве поляризатора использовался линейный поляризатор Thorlabs LPVIS100 инфракрасного диапазона (550–1500 нм).

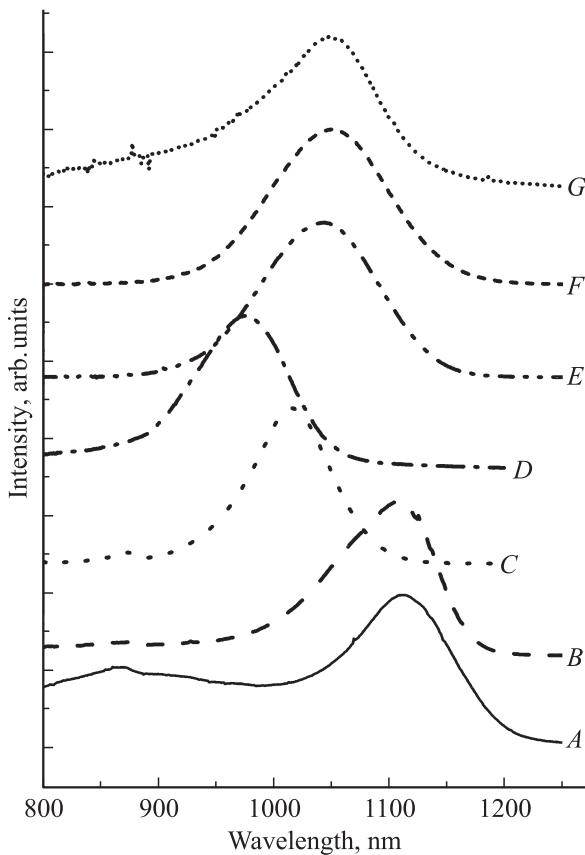


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции InGaAs/(Al)GaAs СМКТ, измеренные при комнатной температуре и максимальной плотности возбуждения.

Исследования методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) проводились на микроскопе JEM-2100F с разрешающей способностью 0.19 нм при ускоряющем напряжении 200 кВ. Образцы были подготовлены в двух взаимно ортогональных поперечных сечениях (011) и (0 $\bar{1}$ 1) стандартным для таких материалов способом. При подготовке образцов использовалась прецизионная шлифовка и ионное распыление до перфорации на конечном этапе.

На рис. 1 представлены спектры ФЛ исследованных образцов, измеренные при комнатной температуре и максимальной плотности возбуждения. Для InGaAs СМКТ в матрице GaAs (см. рис. 1, кривые A, B, C) наблюдается сдвиг пика ФЛ в длинноволновую область с увеличением эффективного содержания In, что может быть объяснено увеличением размера КТ, аналогично случаю InAs КТ, выращенных в режиме непрерывного осаждения (далее НОКТ) [9]. Дополнительно наблюдается насыщение сдвига ФЛ в области 1120 нм при эффективном содержании In более 40%. Учитывая уменьшение интегральной интенсивности ФЛ, данный эффект, по-видимому, можно объяснить увеличением разброса островков по размерам и релаксацией напряжения с образованием дислокаций при превышении критического значения размера островка.

Согласно результатам анализа спектральной зависимости оптической анизотропии ФЛ InGaAs/GaAs СМКТ, максимум оптической анизотропии наблюдается на основном состоянии КТ, в то время как для смачивающего слоя величина оптической анизотропии находится на уровне шумов регистрирующей системы (рис. 2). На рис. 3 показана зависимость степени оптической анизотропии, усредненной по спектру ФЛ, от эффективного содержания In в InGaAs/AlGaAs СМКТ. Данная зависимость обладает четко выраженным максимумом в области эффективного содержания In порядка 40%.

Как видно из рис. 1, рост InGaAs СМКТ в широкозонной матрице AlGaAs (образец D) ведет к корот-

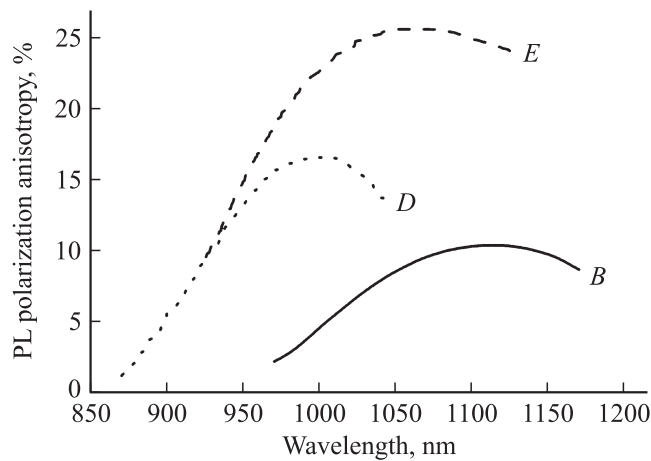


Рис. 2. Спектральная зависимость оптической анизотропии ФЛ InGaAs/(Al)GaAs СМКТ (образцы B, D, E).

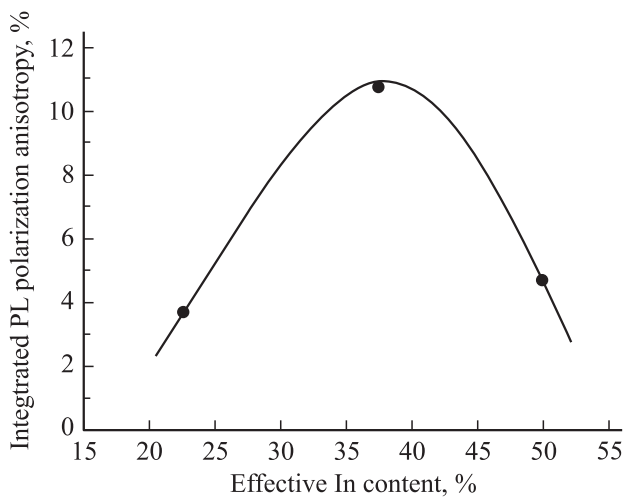


Рис. 3. Зависимости степени оптической анизотропии ФЛ от эффективного содержания In (%) в InGaAs/AlGaAs СМКТ (образцы A, B, C).

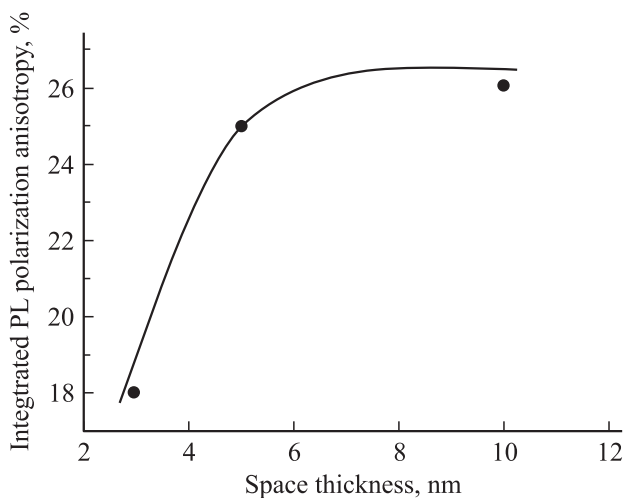


Рис. 4. Зависимости степени оптической анизотропии ФЛ вертикально связанных InGaAs/AlGaAs СМКТ (образцы E, F, G) от толщины разделяющих слоев AlGaAs.

коволновому сдвигу пика фотолюминесценции СМКТ по сравнению с InGaAs СМКТ в матрице GaAs (образец B), что обусловлено увеличением потенциального барьера между состоянием КТ и матрицей аналогично случаю InAs НОКТ [10]. Несмотря на то что постоянная решетки твердых растворов AlGaAs очень близка к постоянной решетке GaAs, InGaAs СМКТ, выращенные в широкозонной матрице, демонстрируют в 1.5 раза большую усредненную степень оптической анизотропии. Для InGaAs/AlGaAs СМКТ (образец D) максимум оптической анизотропии также соответствует основному состоянию КТ аналогично случаю InGaAs/GaAs СМКТ (см. рис. 2). Следует отметить, что только излучение, соответствующее состояниям СМКТ, поляризовано.

Ранее нами было показано [11], что при последовательном осаждении нескольких рядов КТ, разделенных тонкими слоями, поля напряжений нижнего ряда КТ влияют на рост КТ следующего ряда. При этом КТ верхнего ряда формируются над КТ нижнего ряда, т.е. наблюдается их вертикальное выстраивание (связывание) в колонны. Известно, что вертикальное связывание InAs НОКТ ведет к появлению оптической анизотропии [12]. В данной работе нами проанализировано влияние толщины прослойки между рядами точек на степень оптической анизотропии InGaAs/AlGaAs СМКТ. ПЭМ-исследования показали, что вертикальное связывание InGaAs/AlGaAs СМКТ происходит при толщинах разделяющих слоев AlGaAs меньше 15 нм. Согласно рис. 1, рост многослойных массивов InGaAs/AlGaAs СМКТ в режиме вертикального связывания (образцы E, F и G) ведет к сдвигу пика ФЛ в длинноволновую область. Однако максимум длины волны ФЛ слабо зависит от толщины прослойки между рядами InGaAs/AlGaAs СМКТ в отличие от случая InAs НОКТ [7]. Данный эффект может быть связан с увеличением объема КТ или увеличением эффективного содержания In в последующих слоях.

На рис. 4 представлена зависимость усредненной степени оптической анизотропии ФЛ InGaAs/AlGaAs СМКТ от толщины разделяющего слоя AlGaAs. Вертикальное связывание СМКТ ведет к существенному увеличению усредненной степени оптической анизотропии, однако при толщинах прослойки AlGaAs меньше 5 нм наблюдается падение оптической анизотропии.

Обнаруженная зависимость оптической анизотропии в InGaAs СМКТ может быть объяснена двумя разными механизмами. С одной стороны, для полярных полупроводников характерна анизотропия диффузии адатомов: диффузионная длина в направлении $[0\bar{1}1]$ больше, чем в направлении $[011]$. В случае циклического субмонослойного осаждения с относительно длительным прерыванием роста (10 с), когда количество осаждаемого слоя InAs за цикл ниже критических толщин для трехмерного роста, миграция адатомов по поверхности более сильно выражена и может приводить к существенной удлинненности КТ вдоль кристаллографического направления $[0\bar{1}1]$. С другой стороны, для системы с субмонослойным покрытием при длительном прерывании роста

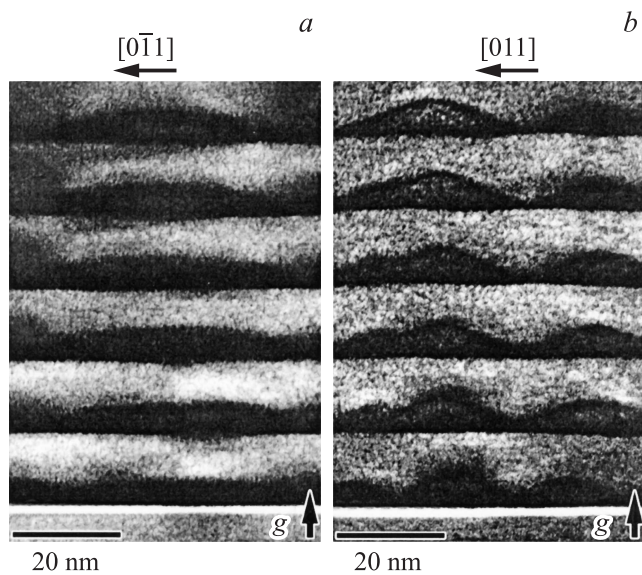


Рис. 5. Темнопольные ПЭМ-изображения поперечных сечений (011) (a) и $(0\bar{1}1)$ (b) вертикально связанных InGaAs/AlGaAs СМКТ, разделенных слоем AlGaAs толщиной 10 нм (образец E), сделанные в химически чувствительном отражении $g = (200)$.

вследствие анизотропии упругих напряжений возможно формирование цепочек КТ [13,14], ориентированных вдоль кристаллографического направления $[0\bar{1}1]$.

С целью установления причины появления оптической анизотропии в плоскости (100) были проведены исследования образцов методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). На рис. 5 представлены результаты ПЭМ-исследований для вертикально совмещенных InGaAs/AlGaAs СМКТ с толщиной разделяющего слоя GaAs 10 нм (образец E). Видно, что в направлении $[011]$ латеральный размер КТ порядка 20 нм, в то время как в направлении $[0\bar{1}1]$ он примерно в 2 раза больше. Следует отметить, что второй механизм оптической анизотропии возможен лишь тогда, когда расстояние между КТ в цепочке меньше или порядка радиуса экситона Бора (около 10 нм), а расстояние между соседними цепочками существенно больше экситонного радиуса. Однако, согласно результатам ПЭМ-исследования, расстояния между соседними КТ в двух ортогональных направлениях сравнимы. Более того, соответствующее смачивающему слою излучение не поляризовано (рис. 2). Таким образом, оптическая анизотропия исследуемых структур обусловлена структурной анизотропией самих квантовых точек.

Причина дополнительного увеличения усредненной степени оптической анизотропии КТ в матрице AlGaAs может быть связана с возникновением рельефа поверхности твердого раствора AlGaAs или с изменением темпов миграции адатомов InGaAs по поверхности AlGaAs-матрицы. Установление истинной причины такого явления требует дополнительных исследований.

Анизотропная миграция адатомов по поверхности основных компонентов гетерофазной системы при росте

напряженных гетероструктур ведет к более сильной релаксации упругих напряжений вдоль направления $[0\bar{1}1]$ и к формированию анизотропного поля упругих напряжений. При вертикальном совмещении КТ данное анизотропное поле упругих напряжений оказывается „замороженным“ в объеме зарощенной гетероструктуры (так как диффузией в объеме можно пренебречь) и влияет на кинетику поверхностной миграции адатомов при росте последующих слоев. В результате происходит вытягивание квантовых точек вдоль направления $[0\bar{1}1]$ и увеличение их размеров с каждым последующим рядом КТ, что в конечном счете и приводит к усилению оптической анизотропии в вертикально совмещенных КТ. Следует отметить, что чем меньше толщина разделяющего слоя GaAs, тем сильнее проявляется данный эффект.

В настоящей работе проведены структурные и оптические исследования серии КТ InGaAs, синтезированных в режиме субмонослойного осаждения с прерыванием роста. Обнаружено, что максимальная степень оптической анизотропии наблюдается для InGaAs СМКТ с эффективным содержанием In порядка 40%. Рост InGaAs СМКТ в широкозонной матрице AlGaAs приводит к увеличению усредненной степени оптической анизотропии в 1.5 раза. Показано, что степень оптической анизотропии InGaAs СМКТ может быть эффективно увеличена при синтезе структур в режиме вертикального связывания. Проведенные ПЭМ-исследования позволили установить, что основным механизмом, ответственным за оптическую анизотропию, является структурная анизотропия самих КТ (точки вытянуты в направлении $[0\bar{1}1]$).

Работа выполнялась при частичной поддержке Министерства образования и науки РФ, Российского фонда фундаментальных исследований, Фонда содействия развитию малых форм предприятий в научно-технической сфере, программы № 27 президиума РАН.

Список литературы

- [1] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum dot heterostructures* (John Wiley and Sons, 1999).
- [2] V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, D. Bimberg. *Epitaxy of Nanostructures* (Springer, Berlin, 2003).
- [3] J. Márquez, L. Geelhaar, K. Jacobi. *Appl. Phys. Lett.*, **78** (16), 2309 (2001).
- [4] M.C. Xu, Y. Temko, T. Suzuki, K. Jacobi. *J. Appl. Phys.*, **98**, 083 525 (2005).
- [5] Z.M. Wang, K. Holmes, Yu.I. Mazur, G.J. Salamo. *Appl. Phys. Lett.*, **84** (11), 1931 (2004).
- [6] M. Schmidbauer, Zh.M. Wang, Yu.I. Mazur, P.M. Lytvyn, G.J. Salamo, D. Grigoriev, P. Schäfer, R. Köhler, M. Hanke. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 093 110 (2007).
- [7] С.А. Блохин, А.М. Надточий, А.А. Красивичев, Л.Я. Карачинский, А.П. Васильев, М.В. Максимов, А.Е. Жуков, Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов. *Письма ЖТФ*, **36** (23), 24 (2010).
- [8] S.S. Mikhlin, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, N.A. Maleev, V.M. Ustinov, Yu.M. Shernyakov, I.P. Soshnikov, D.A. Livshits, I.S. Tarasov, D.A. Bedarev, B.V. Volovik, M.V. Maximov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, Zh.I. Alferov. *Semicond. Sci. Technol.*, **15** (11), 1061 (2000).

- [9] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов, А.Ф. Цацульников, Д.Л. Федоров, Д. Бимберг, Ж.И. Алфёров. ФТП, **30** (8), 1345 (1996).
- [10] Д.С. Сизов, Ю.Б. Самсоненко, Г.Э. Цырлин, Н.К. Поляков, В.А. Егоров, А.А. Тонких, А.Е. Жуков, С.С. Михрин, А.П. Васильев, Ю.Г. Мусихин, А.Ф. Цацульников, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов. ФТП, **37** (5), 578 (2003).
- [11] N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Böhrer, O. Schmidt, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kor'ev, S.V. Zaitsev, N.Yu. Gordeev, Zh.I. Alferov, A.I. Borovkov, A.O. Kosogov, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Gösele, J. Heydenrich. Phys. Rev. B, **54** (24), 8743 (1996).
- [12] P. Yu, W. Langbein, K. Leosson, J.M. Hvam, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, A.F. Tsatsul'nikov, Yu.G. Musikhin. Phys. Rev. B, **60** (24), 16680 (1999).
- [13] А.Ф. Цацульников, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, Б.В. Воловик, А.А. Суворова, Н.А. Берт, П.С. Копьев. ФТП, **31** (7), 851 (1997).
- [14] P.D. Wang, N.N. Ledentsov, C.M. Sotomayor Torres, P.S. Kor'ev, V.M. Ustinov. Appl. Phys. Lett., **64** (12), 1526 (1994).

Редактор Л.В. Беляков

Optical anisotropy of InGaAs quantum dots

S.A. Blokhin, A.M. Nadtochiy, A.A. Krasivichev,
L.Ya. Karachinsky, A.P. Vasil'ev, V.N. Nevedomskiy,
M.V. Maximov, G.E. Cirlin, A.D. Buravlev, N.A. Maleev,
A.E. Zhukov*, N.N. Ledentsov, V.M. Ustinov

loffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

* St. Petersburg Academic University —
Nanotechnology Research and Education Center,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

Abstract Polarization study on submonolayer quantum dots (SML QDs) grown on GaAs (100) singular surface was done by using photoluminescence (PL) spectroscopy. Influence of In content in InGaAs quantum dots (QDs) and composition of (Al)GaAs matrix on optical anisotropy of QDs was investigated. Maximal optical anisotropy of the submonolayer InGaAs QD ground state emission of 15% was observed between directions $[011]$ and $[01\bar{1}]$ at the In content of $\sim 40\%$. Using of broadband AlGaAs matrix allow to achieve optical anisotropy of InGaAs SML QDs increased in 1.5 times. It was observed that using of vertically-coupled In(Ga)As/AlGaAs SML QDs with the spacer width of 5–10 nm leads to further increase of optical anisotropy up to 25%. It was shown by using transmission electron microscopy (TEM) technique that PL optical anisotropy is caused mostly by QD lateral anisotropy by size in the directions $[011]$ and $[01\bar{1}]$.