

08

Исследование оптических и структурных свойств трехмерных островков InGaP(As), сформированных методом замещения элементов пятой группы

© А.Г. Гладышев,¹ А.В. Бабичев,¹ В.В. Андришкин,¹ Д.В. Денисов,² В.Н. Неведомский,³ Е.С. Колодезный,¹ И.И. Новиков,¹ Л.Я. Карачинский,¹ А.Ю. Егоров⁴

¹ Национальный исследовательский университет ИТМО РАН,
197101 Санкт-Петербург, Россия

² Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет „ЛЭТИ“ им. В.И. Ульянова (Ленина),
197376 Санкт-Петербург, Россия

³ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“,
194021 Санкт-Петербург, Россия

⁴ ООО „Коннектор Оптик“,
194292 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: glad@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 13 апреля 2020 г.

В окончательной редакции 12 мая 2020 г.

Принято к публикации 13 мая 2020 г.

Предложен новый метод формирования трехмерных квантово-размерных островков InGaP(As), заключающийся в замещении фосфора на мышьяк в слое InGaP, осажденном на GaAs непосредственно в процессе эпитаксиального роста. Показано, что при замещении фосфора на мышьяк в тонком слое InGaP формируются трехмерные островки, излучающие в спектральном диапазоне 0.95–0.97 μm при комнатной температуре. Оценочная плотность островков составила $1.3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

Ключевые слова: эпитаксия, квантовые точки, арсенид галлия, замещение фосфора, просвечивающая электронная микроскопия.

DOI: 10.21883/JTF.2020.12.50133.129-20

Введение

В настоящее время большой интерес проявляется к созданию приборов для управления одиночными фотонами [1–9] и нейроморфных вычислений, использующих в качестве излучателей полупроводниковые гетероструктуры с пониженной размерностью [10–12]. Наилучшими кандидатами на роль активных областей для излучателей в таких системах являются квантовые точки (КТ). Однако в отличие от традиционных лазерных применений, в которых массивы КТ должны иметь максимально возможную плотность [13–17], к активным областям в указанных выше системам предъявляется противоположное требование — уменьшение плотности КТ ниже значений $1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [18,19]. Для уменьшения плотности КТ используют специальные технологические режимы эпитаксиального роста, позволившие уменьшить плотность КТ InAs с типичных $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ до $\sim 1 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ [20].

В настоящей работе предложен новый метод формирования трехмерных квантово-размерных островков путем замещения фосфора на мышьяк в слое InGaP, осажденном на GaAs непосредственно в процессе эпитаксиального роста. Были проведены ростовые эксперименты с различными технологическими режимами, исследованы оптические и структурные свойства полученных объектов.

1. Эксперимент

Гетероструктуры были изготовлены на полуизолирующих подложках GaAs диаметром 76.2 mm методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) на установке Riber49. Структуры состояли из буфера GaAs толщиной 100 nm, обкладки GaAs толщиной 200 nm, ограниченной со стороны подложки и поверхности барьерами AlGaAs толщиной по 100 nm. Верхний барьер был прикрыт слоем GaAs толщиной 5 nm для предотвращения окисления. В центр обкладки помещался слой InGaP, решеточно-согласованный с подложкой. Все структуры выращивались при температуре 580°C. Слой InGaP, а также прикрывающий его слой GaAs толщиной 5 nm осаждались при температуре 520°C. Трехмерные островки формировались следующим образом. После осаждения слоя InGaP в потоке фосфора происходила остановка роста и замена потока фосфора на поток мышьяка в течение 30 s. Затем происходила выдержка ростовой поверхности исключительно в потоке мышьяка в течение 5–10 min, во время которой происходило замещение атомов фосфора в слое InGaP на атомы мышьяка с последующим формированием трехмерных островков InGaP(As). После этого слой InGaP(As) зарастивался 5 nm GaAs, затем происходила остановка роста и подъем температуры подложки до 580°C в течение

Особенности технологических режимов формирования образцов С1–С4

№ структуры	Толщина слоя InGaP, nm	Время выдержки, min	Температура подложки во время выдержки, °С
С1	2	5	520
С2	2	5 (0.5 + 4.5)	535
С3	3	10 (0.5 + 9.5)	535
С4 (для ПЭМ)	3	10 (0.5 + 9.5)	535

ние 3 min. После этого ростовой процесс возобновлялся. Процесс формирования островков InGaP(As) контролировался по изменению картины дифракции быстрых электронов на ростовой поверхности во время выдержки в потоке мышьяка.

На ростовой поверхности в используемых в настоящей работе режимах роста постоянно происходят процессы адсорбции и десорбции атомов. Это в большей степени относится к элементам пятой группы. Заменяв поток фосфора на поток мышьяка, становится возможным преобразовать слой InGaP в InGaP(As) за счет десорбции атомов фосфора и адсорбции вместо них атомов мышьяка. По мере увеличения концентрации мышьяка в слое InGaP(As) увеличивалась и его постоянная решетки, что приводило к возникновению растущего механического напряжения в преобразуемом слое. После превышения критической величины напряжения происходила его релаксация путем формирования трехмерных островков.

Была изготовлена серия образцов (С1–С4), отличающихся толщиной слоя изначального InGaP, температурой подложки во время выдержки и длительностью выдержки в потоке мышьяка. Особенности технологических режимов формирования образцов представлены в таблице.

Структура С4 была изготовлена специально для исследования методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) и являлась полным аналогом структуры С3, но слой InGaP(As) в ней был прикрыт только слоем GaAs толщиной 25 nm. В образцах С2–С4 после осаждения слоя InGaP в течение 30 s после смены потоков элементов пятой группы происходило повышение температуры подложки на 15°С.

Все структуры были исследованы методом фотолюминесценции (ФЛ) при комнатной температуре на установке RPM2000 Nanometrics. Возбуждение ФЛ производилось YAG:Nd лазером с длиной волны 532 nm и мощностью 45 mW. Для оценки плотности трехмерных островков использовалась ПЭМ. Электронно-микроскопические исследования выполнены с использованием оборудования ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ (ФТИ им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург) на микроскопе JEM-2100F при ускоряющем напряжении 200 kV. Для подготовки проб в планарной геометрии использовалась общепринятая

методика механического утонения с распылением ионами Ar⁺ на финишном этапе.

2. Результаты и их обсуждение

При изготовлении образца С1 до и после осаждения слоя InGaP от ростовой поверхности наблюдалась линейная картина дифракции с рефлексами (4 × 2), характерная для планарного роста в условиях, стабилизированных по элементу пятой группы. После начала выдержки поверхности слоя InGaP в потоке мышьяка картина дифракции начинала изменяться, на линейных рефлексах стали появляться утолщения, свидетельствующие о формировании трехмерных островков. Яркость и четкость наблюдаемых утолщений достигали максимума примерно через 3 min выдержки и затем слабо менялись. После окончания выдержки и осаждения 5 nm низкотемпературного GaAs картина дифракции вновь становилась линейной, что указывало на планаризацию ростовой поверхности. В процессе дальнейшего роста картина дифракции не изменялась. Для стимулирования процесса замещения фосфора на мышьяк в образце С2 была повышена температура подложки во время выдержки. Однако это не привело к принципиальным изменениям в картине дифракции. Для усиления наблюдаемых эффектов за счет возрастания механических напряжений в слое InGaP в образце С3 толщина слоя InGaP была увеличена до 3 nm. Также было увеличено время выдержки до 10 min. Введенные изменения привели к изменению наблюдаемой картины дифракции. Утолщения появились через 30 s и достигли максимальной яркости через 2 min. После осаждения прикрывающего слоя GaAs утолщения сохранились, стали практически неразличимы только после осаждения примерно 10 nm GaAs на стандартной ростовой температуре.

На рис. 1 показаны спектры ФЛ структуры С1, измеренные в трех различных точках: у базового среза подложки (на удалении 30 nm от центра пластины), в центральной точке и у противоположного базовому срезу края (на удалении 30 nm от центра пластины). Видно, что на спектре помимо пиков от GaAs присутствует пик в области 970 nm, соответствующий излучению от трехмерных островков InGaP(As). Положение пика меняется в пределах 968–980 nm. Интенсивность пика ФЛ при смещении от базового края к противоположному краю

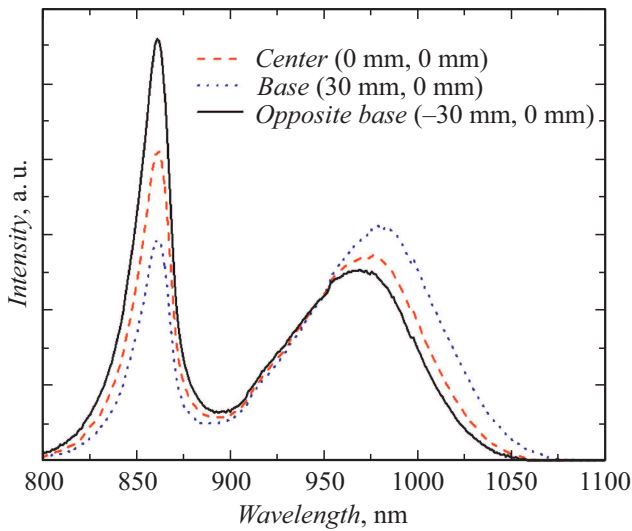


Рис. 1. Спектры ФЛ образца C1, измеренные в различных точках пластины.

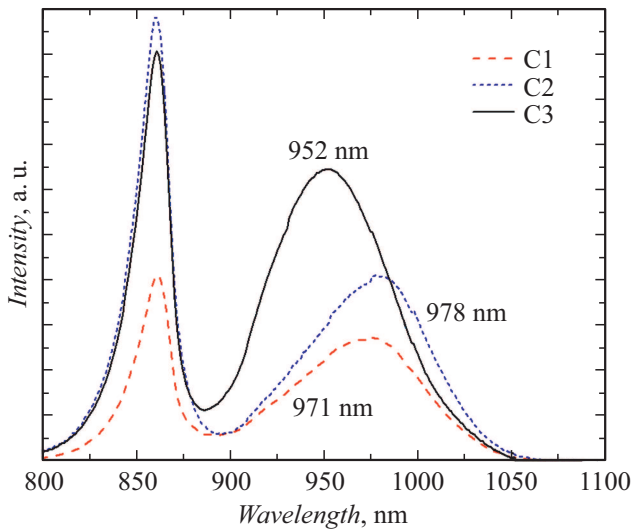


Рис. 2. Спектры ФЛ образцов C1–C3, измеренные в центрах пластин.

пластины уменьшается в 1.25 раза. Ширина пика ФЛ, измеренная на полувысоте (FWHM), составила величину 95 meV, что говорит о большом разбросе трехмерных островков по размерам и/или составам. На рис. 2 показаны спектры ФЛ образцов C1–C3, измеренные в центрах пластин. Спектр структуры C2 продемонстрировал длинноволновый сдвиг пика ФЛ, соответствующего излучению от трехмерных островков InGaP(As), и увеличение интенсивности примерно на 30% по сравнению с данными для образца C1. Таким образом, увеличение температуры выдержки привело к сдвигу длины волны излучения трехмерных островков на 6 nm. Кроме того, улучшилась однородность массива островков, о чем свидетельствует уменьшение полуширины пика ФЛ до 90 meV и разброса положения пика ФЛ, при

измерении по площади пластины на удалении 30 mm от центра пластины, составившего 5 nm для образца C2 (981–986 nm) вместо 12 nm для образца C1 (рис. 1). Изменение технологических режимов формирования для образца C3 привело к коротковолновому сдвигу положения пика ФЛ, соответствующего излучению от трехмерных островков InGaP(As), до 953 nm. При этом интенсивность пика ФЛ оказалась наибольшей, более чем в 2 раза превышающей интенсивность пика ФЛ образца C1. Следует также отметить, что при сравнимой с образцом C2 полушириной пика ФЛ (97 meV) образец C3 продемонстрировал наибольший разброс положения пика ФЛ (в диапазоне 943–976 nm) и интенсивности пика ФЛ (менялась в 2 раза) по площади подложки. Так, интенсивность менялась в 2 раза, а длина волны от 943 до 976 nm от края до края пластины.

На рис. 3 показано планарное (001) ПЭМ изображение образца C4, на котором отчетливо видны трехмерные островки. При последовательном обзоре образца в режиме темного поля в рефлексах $g = (2-20)$, (400), (220), (040) было установлено, что трехмерные островки имеют овальную форму, вытянутую вдоль направления [1–10]. При этом они часто выстраиваются в линию „один-за-другим“ вдоль того же направления. При этом вдоль ортогонального направления [110] таких эффектов не наблюдается, т.е. направления [110] и [1–10] не эквивалентны. Очевидно, это связано с анизотропностью скорости поверхностной диффузии во время выдержки слоя InGaP, которая по всей видимости обусловлена направленностью оборванных связей на ростовой поверхности. Оценочная плотность островков составила величину $1.3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Если предположить, что увеличение интенсивности пика ФЛ островков InGaP(As) в образце C3 связано с увеличением их плотности, то ост-

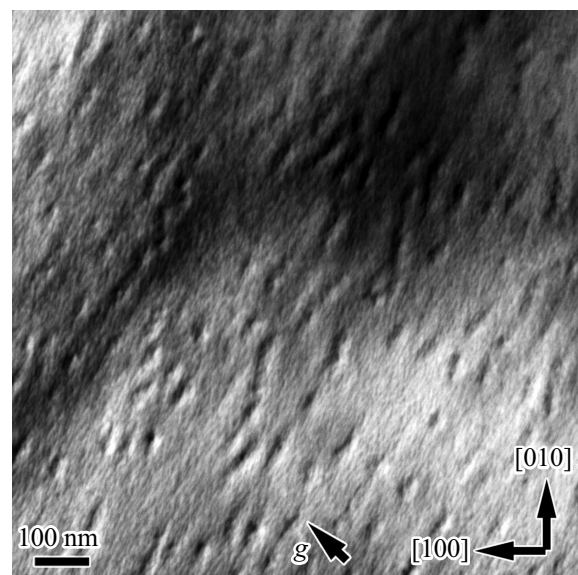


Рис. 3. Темнопольное ПЭМ-изображение планарной поверхности образца (001), полученное в двулучевых условиях в отражении $g = (220)$.

ровки, сформированные на слое InGaP толщиной 2 nm, будут иметь меньшую плотность.

Заключение

Продемонстрирована возможность формирования трехмерных низкоплотных квантово-размерных объектов методом замещения элементов пятой группы непосредственно во время эпитаксиального роста. Показано, что при замещении фосфора в тонком слое InGaP на мышьяк формируются трехмерные островки, излучающие в спектральном диапазоне $\sim 1 \mu\text{m}$ при комнатной температуре.

Оценочная плотность островков составила $1.3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, что перспективно для возможного применения в системах с нейроморфными вычислениями. Как показано ранее [21], использование трехмерных низкоплотных квантово-размерных объектов позволяет увеличить силу осциллятора, что наряду с низкой плотностью свидетельствует о возможности использования данных трехмерных квантово-размерных объектов для создания источников одиночных фотонов и массивов микро-лазеров.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, проект тематики научных исследований № 2019-1442.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] N. Somaschi, V. Giesz, L. De Santis, J.C. Lored, M.P. Almeida, G. Hornecker, S.L. Portalupi, T. Grange, C. Antón, J. Demory, C. Gómez, I. Sagnes, N.D. Lanzillotti-Kimura, A. Lemaitre, A. Auffeves, A.G. White, L. Lanco, P. Senellart. *Nat. Photonics*, **10** (5), 340 (2016). DOI: 10.1038/nphoton.2016.23
- [2] M. Schmidt, M.V. Helvesen, S. Fischbach, A. Kaganskiy, R. Schmidt, A. Schliwa, T. Heindel, S. Rodt, S. Reitzenstein. *Opt. Mater. Express*, **10** (1), 76 (2019). DOI: 10.1364/ome.10.000076
- [3] F. Basso Basset, M.B. Rota, C. Schimpf, D. Tedeschi, K.D. Zeuner, S.F. Covre da Silva, M. Reindl, V. Zwiller, K.D. Jöns, A. Rastelli, R. Trotta. *Phys. Rev. Lett.*, **123** (16), 160501 (2019). DOI: 10.1103/physrevlett.123.160501
- [4] M. Zopf, R. Keil, Y. Chen, J. Yang, D. Chen, F. Ding, O.G. Schmidt. *Phys. Rev. Lett.*, **123** (16), 160502 (2019). DOI: 10.1103/physrevlett.123.160502
- [5] T. Kroh, J. Wolters, A. Ahlrichs, A.W. Schell, A. Thoma, S. Reitzenstein, J.S. Wildmann, E. Zallo, R. Trotta, A. Rastelli, O.G. Schmidt, O. Benson. *Sci. Rep.*, **9** (1), 13728 (2019). DOI: 10.1038/s41598-019-50062-x
- [6] H. Wang, Y.-M. He, T.-H. Chung, H. Hu, Y. Yu, S. Chen, X. Ding, M.-C. Chen, J. Qin, X. Yang, R.-Z. Liu, Z.-C. Duan, J.-P. Li, S. Gerhardt, K. Winkler, J. Jurkat, L.-J. Wang, N. Gregersen, Y.-H. Huo, Q. Dai, S. Yu, S. Höfling, C.-Y. Lu, J.-W. Pan. *Nat. Photonics*, **13** (11), 770–775 (2019). DOI: 10.1038/s41566-019-0494-3
- [7] M. Anderson, T. Müller, J. Huwer, J. Skiba-Szymanska, A.B. Krysa, R.M. Stevenson, J. Heffernan, D.A. Ritchie, A.J. Shields. *Npj Quantum Inf.*, **6** (1), 14 (2020). DOI: 10.1038/s41534-020-0249-5
- [8] S. Kolatschek, S. Hepp, M. Sartison, M. Jetter, P. Michler, S.L. Portalupi. *J. Appl. Phys.*, **125** (4), 045701 (2019). DOI: 10.1063/1.5050344
- [9] M.C. Löbl, S. Scholz, I. Söllner, J. Ritzmann, T. Denneulin, A. Kovács, B.E. Kardynał, A.D. Wieck, A. Ludwig, R.J. Warburton. *Commun. Phys.*, **2** (1), 93 (2019). DOI: 10.1038/s42005-019-0194-9
- [10] T. Heuser, J. Grose, S. Holzinger, M.M. Sommer, S. Reitzenstein. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **26** (1), 1 (2020). DOI: 10.1109/jstqe.2019.2925968
- [11] E.P. Blair, S. Koziol. *Proc.: ICRC*. 2017. DOI: 10.1109/icrc.2017.8123685
- [12] T. Heuser, J. Große, A. Kaganskiy, D. Brunner, S. Reitzenstein. *APL Photonics*, **3** (11), 116103 (2018). DOI: 10.1063/1.5050669
- [13] V.M. Ustinov, N.A. Maleev, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, A.Y. Egorov, A.V. Lunev, B.V. Volovik, I.L. Krestnikov, Y.G. Musikhin, N.A. Bert, P.S. Kop'ev, Z.I. Alferov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg. *Appl. Phys. Lett.*, **74** (19), 2815 (1999). DOI: 10.1063/1.124023
- [14] P. Yu, W. Langbein, K. Leosson, J.M. Hvam, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Y. Egorov, A.E. Zhukov, A.F. Tsatsul'nikov, Y.G. Musikhin. *Phys. Rev. B*, **60** (24), 16680 (1999). DOI: 10.1103/physrevb.60.16680
- [15] A.R. Kovsh, A.E. Zhukov, D.A. Livshits, A.Y. Egorov, V.M. Ustinov, M.V. Maximov, Yu.G. Musikhin, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, D. Bimberg. *Electron. Lett.*, **35** (14), 1161 (1999). DOI: 10.1049/el:19990813
- [16] A.S. Shkolnik, L.Y. Karachinsky, N.Y. Gordeev, G.G. Zegrya, V.P. Evtikhiev, S. Pellegrini, G.S. Buller. *Appl. Phys. Lett.*, **86** (21), 211112 (2005). DOI: 10.1063/1.1938000
- [17] A. Rantamäki, G.S. Sokolovskii, S.A. Blokhin, V.V. Dudelev, K.K. Soboleva, M.A. Bobrov, A.G. Kuzmenkov, A.P. Vasil'ev, A.G. Gladyshev, N.A. Maleev, V.M. Ustinov, O. Okhotnikov. *Opt. Lett.*, **40** (14), 3400 (2015). DOI: 10.1364/ol.40.003400
- [18] *Single Semiconductor Quantum Dots*, ed. by P. Michler (Heidelberg: Springer-Verlag, 2009) 389 p. DOI: 10.1007/978-3-540-87446-1
- [19] E. Schlottmann, D. Schicke, F. Krüger, B. Lingnau, C. Schneider, S. Höfling, K. Lüdge, X. Porte, S. Reitzenstein. *Opt. Express*, **27** (20), 28816 (2019). DOI: 10.1364/oe.27.028816
- [20] G. Trevisi, L. Seravalli, P. Frigeri, S. Franchi. *Nanotechnology*, **20** (41), 415607 (2009). DOI: 10.1088/0957-4484/20/41/415607
- [21] J.P. Reithmaier, G. Sčk, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L.V. Keldysh, V.D. Kulakovskii, T.L. Reinecke, A. Forchel. *Nature*, **432** (7014), 197 (2004). DOI: 10.1038/nature02969