

Оптические свойства трехмерных островков InGaP(As), сформированных методом замещения элементов пятой группы

© Н.В. Крыжановская¹, А.С. Драгунова², С.Д. Комаров^{2,3}, А.М. Надточий², А.Г. Гладышев¹, А.В. Бабичев¹, А.В. Уваров², В.В. Андрюшкин¹, Д.В. Денисов⁴, Е.С. Колодезный¹, И.И. Новиков¹, Л.Я. Карачинский¹, А.Ю. Егоров⁴

¹ Университет ИТМО, Санкт-Петербург, Россия

² Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет им. Ж.И. Алферова РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия

³ Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет „ЛЭТИ“ им. В.И. Ульянова (Ленина), Санкт-Петербург, Россия

⁴ ООО „Коннектор Оптик“, 194292 Санкт-Петербург, Россия

e-mail: nataliakryzh@gmail.com

Поступила в редакцию 14.10.2020 г.

В окончательной редакции 14.10.2020 г.

Принята к публикации 30.10.2020 г.

Методами спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ) выполнено исследование оптических свойств трехмерных квантово-размерных островков InGaPAs, сформированных методом замещения фосфора на мышьяк в слое InGaP, осажденном на GaAs непосредственно в процессе эпитаксиального роста. Линия ФЛ сформированного массива островков лежит в диапазоне 950–1000 nm при комнатной температуре. Исследования ФЛ в диапазоне температур 78–300 K свидетельствуют о существенной неоднородности массива островков, наличии центров безызлучательной рекомбинации и транспорте носителей между островками. На спектрах возбуждения люминесценции наблюдается линия, связанная с поглощением в остаточном двумерном слое InGaPAs. Применение отжига структур позволило увеличить интенсивность ФЛ при комнатной температуре до 300% при незначительном коротковолновом сдвиге линии излучения островков, а также улучшить однородность внутри массива островков.

Ключевые слова: квантовые точки, арсенид галлия, замещение фосфора, фотолюминесценция.

DOI: 10.21883/OS.2021.02.50561.263-20

Введение

В настоящее время усилия многих исследовательских групп направлены на поиск методов формирования полупроводниковых квантовых точек низкой плотности, которые могут эффективно использоваться в качестве активной среды однофотонных излучателей для таких приложений как квантовая криптография [1–3], для различных схем квантовых вычислений [4–5], а также прецизионных измерений [6,7]. Разработаны различные технологические режимы эпитаксиального роста самоорганизующихся КТ или последующего отжига структуры, позволившие уменьшить плотность КТ InAs/InP до $< 10^9 \text{ cm}^{-2}$ [8], КТ InAs/InGaAsP/InP (100) до $1.3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ [9], КТ CdTe до $10^7\text{--}10^8 \text{ cm}^{-2}$ [10]. Также для создания КТ низкой плотности, применяется более сложный метод формирования с использованием ростовой поверхности предустановленной морфологии (site-controlled epitaxy) [11,12].

Недавно в работе [13] был предложен новый способ формирования полупроводниковых трехмерных островков при замещении фосфора на мышьяк в тонком слое InGaP (толщиной менее 3 nm) с использованием подложек GaAs. В этом случае на поверхности GaAs формируются

мируются трехмерные островки InGaPAs/GaAs овальной формы, низкой плотности ($\sim 1.3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$), вытянутые вдоль направления [1–10] и излучающие в спектральном диапазоне вблизи 1 μm при комнатной температуре.

В настоящей работе выполнено детальное исследование оптических свойств полученных новых гетероструктур с трехмерными островками InGaPAs/GaAs. Исследования выполнялись с помощью спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ) в диапазоне температур 78–300 K и при 10 K с помощью спектроскопии возбуждения люминесценции (СВЛ). Также исследовано влияние кратковременного отжига гетероструктур на их оптические свойства.

1. Эксперимент

Гетероструктуры были синтезированы методом молекулярно-пучковой эпитаксии на полуизолирующих подложках GaAs на установке Riber49. Структуры состояли из буферного слоя GaAs толщиной 100 nm, слоя GaAs толщиной 200 nm, ограниченного со стороны подложки и поверхности барьерными слоями AlGaAs толщиной 100 nm. Трехмерные островки формировались

Особенности технологических режимов формирования образцов C1–C3

№ структуры	Толщина слоя InGaP, nm	Время выдержки, min	Температура подложки во время выдержки, °C
C1	2	5	520
C2	2	5 (0.5 + 4.5)	535
C3	3	10 (0.5 + 9.5)	535

путем осаждения исходного слоя InGaP ($\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$, решеточно-согласованного по составу с GaAs) в середине слоя GaAs толщиной 200 nm. При формировании островков поток фосфора заменялся на поток мышьяка в течение 30 с, и затем происходила выдержка ростовой поверхности в потоке мышьяка в течение 5–10 min, во время которой происходило замещение атомов фосфора в слое InGaP на атомы мышьяка с последующим формированием слоя InGaPAs. После этого слой InGaP(As) зарастивался 5 nm GaAs. Вся структура завершалась слоем GaAs толщиной 5 nm для предотвращения окисления.

Была изготовлена серия образцов (C1–C3), отличающихся толщиной исходного слоя InGaP, температурой подложки во время выдержки и длительностью выдержки в потоке мышьяка. Особенности технологических режимов формирования образцов представлены в таблице. В образцах C2–C3 после осаждения слоя InGaP в течение 30 с после смены потоков элементов пятой группы происходило повышение температуры подложки на 15°C.

Для исследований ФЛ структур образец размещался в криостате Janis ST-500, позволяющем контролировать температуру образца в диапазоне 78–300 K. Возбуждение ФЛ производилось YLF:Nd³⁺-лазером, работающим в непрерывном режиме (длина волны 527 nm). Мощность лазера менялась в диапазоне 0.2–2 mW. Детектирование сигнала ФЛ выполнялось с помощью монохроматора DK480 Spectral products и одноканального кремниевое детектора Si с помощью синхронного детектирования (SRS 510 „Stanford Research Systems“). Спектры возбуждения ФЛ были получены с использованием света галогеновой лампы и монохроматора МДР-12. Регистрация спектров производилась при помощи одноканального Ge-детектора и монохроматора МДР-23.

2. Результаты и обсуждение

На спектрах ФЛ, полученных при комнатной температуре (рис. 1, a), наблюдаются 2 спектральные полосы, одна из которых (~ 872 nm) соответствует излучению GaAs, а вторую (950–1000 nm) мы связываем с излучением островков InGaPAs. В структуре C1 длина волны максимума линии излучения InGaPAs островков составляет ~ 960 nm. Увеличение температуры подложки во время выдержки ростовой поверхности в потоке

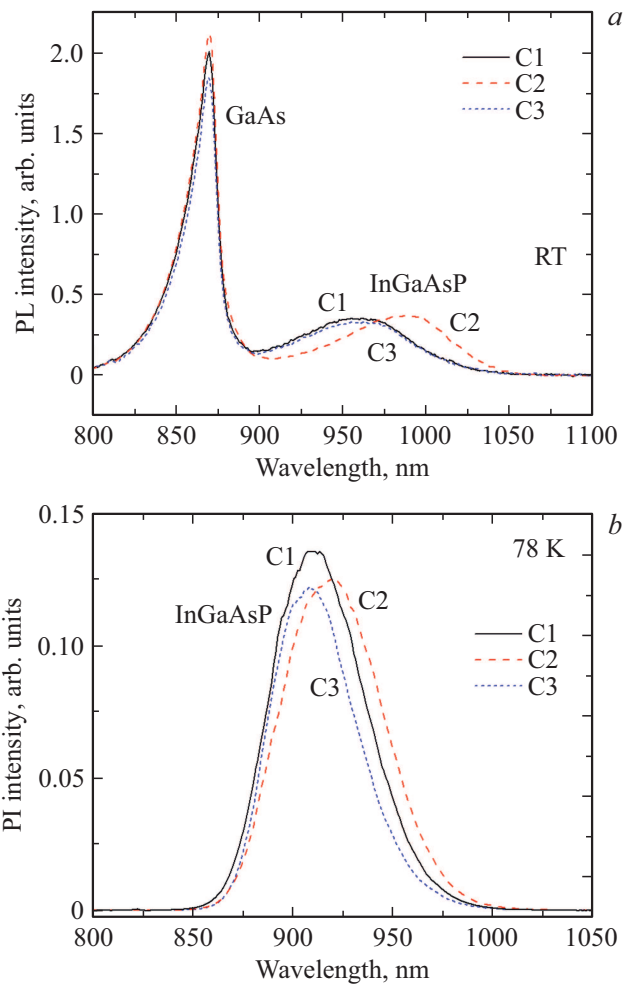


Рис. 1. Спектры ФЛ структур C1–C3, полученные при комнатной температуре (a) и при температуре 78 K (b).

мышьяка привело к длинноволновому сдвигу максимума этой линии на 40 nm до ~ 990 nm (структура C2). Увеличение времени выдержки ростовой поверхности в потоке мышьяка с 5 до 10 min привело к обратному коротковолновому сдвигу максимума ФЛ относительно структуры C2 (структура C3), и, таким образом, структура C3 демонстрирует самое коротковолновое излучение.

При увеличении мощности оптической накачки от ~ 0.15 до 1.4 mW (плотность оптической мощности менялась от 500 W/cm² до 4.6 kW/cm²) наблюдается линейный рост интенсивности линии ФЛ островков (рис. 2), а также происходит коротковолновый сдвиг спектрального положения максимума этой линии, связанный с постепенным заполнением состояний более глубоких (длинноволновых) центров локализации носителей и их насыщением (вставка к рис. 2). Наименьшая величина спектрального сдвига получена для структуры C2 (16 meV), более значительный эффект заполнения состояний выражен в структуре C3 (36 meV). При увеличении оптической мощности происходит существенно более сильное возрастание интенсивности линии GaAs

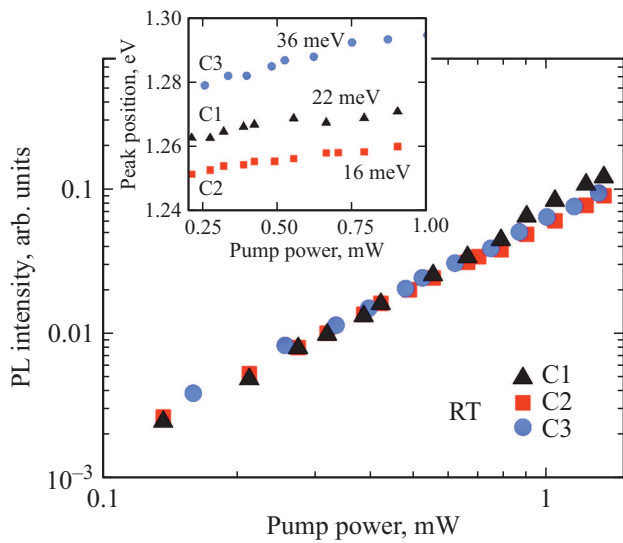


Рис. 2. Зависимость интенсивности ФЛ линии островков InGaPAs структур C1–C3 от мощности оптической накачки при комнатной температуре. Вставка: зависимость длины волны спектрального положения максимума линии островков InGaPAs от мощности оптической накачки.

по сравнению с линией излучения островков, что затрудняет анализ поведения линии излучения островков InGaPAs при более высокой мощности накачки, а также не позволяет наблюдать насыщение ее интенсивности.

При температуре 78 К (рис. 1, *b*) полоса, соответствующая излучению GaAs, практически отсутствует, наблюдается только широкая линия излучения островков InGaPAs. Такая широкая линия излучения островков InGaPAs, очевидно, обусловлена распределением массива островков по размерам или составу. Полуширина линии ФЛ островков InGaPAs составила 79 meV для структуры C1, увеличение температуры подложки (структура C2) приводит к уширению линии преимущественно в сторону больших длин волн до 93 meV, возможно, за счет увеличения разброса островков по размерам за счет формирования более крупных островков или увеличения содержания As в них. Увеличение времени выдержки ростовой поверхности в потоке мышьяка до 10 min (структура C3) приводит к формированию более однородного массива островков по размеру и уменьшению полуширины линии ФЛ до 74 meV.

При увеличении температуры от 78 до 300 К спектры ФЛ всех трех исследованных образцов демонстрируют в целом схожее поведение (рис. 3, *a*): наблюдается падение интегральной интенсивности ФЛ и длинноволновый сдвиг максимума ФЛ. Наименьшее значение падения интегральной интенсивности линии ФЛ островков InGaPAs было получено для наиболее длинноволновой структуры C2 и составило ~ 400 раз. При этом на начальном участке температур (78–120 К) интенсивность меняется слабо, а при температурах выше ~ 120 К зависимость демонстрирует монотонное падение ин-

тенсивности. Зависимость полуширины линии ФЛ от температуры (рис. 3, *b*) также имеет два характерных участка, связанных с температурным перераспределением носителей внутри массива островков InGaPAs с различной глубиной локализации. На начальном участке температур наблюдается уменьшение полуширины линии ФЛ вследствие выброса носителей из слабо локализованных состояний и захвата их на более глубокие уровни. Дальнейшее увеличение температуры приводит к термическому выбросу носителей в островки с менее глубоким потенциалом локализации или в материал матрицы (GaAs), что приводит к уширению линии ФЛ и гашению интенсивности ФЛ вследствие безызлучательной рекомбинации на структурных дефектах. Температура, при которой наблюдается минимальное значение полуширины линии ФЛ, зависит от длины волны излучения структуры и глубины локализации носителей: перегиб наблюдается вблизи 100 К для структуры C3, вблизи 130 К для структуры C1 и вблизи 200 К для структуры C2.

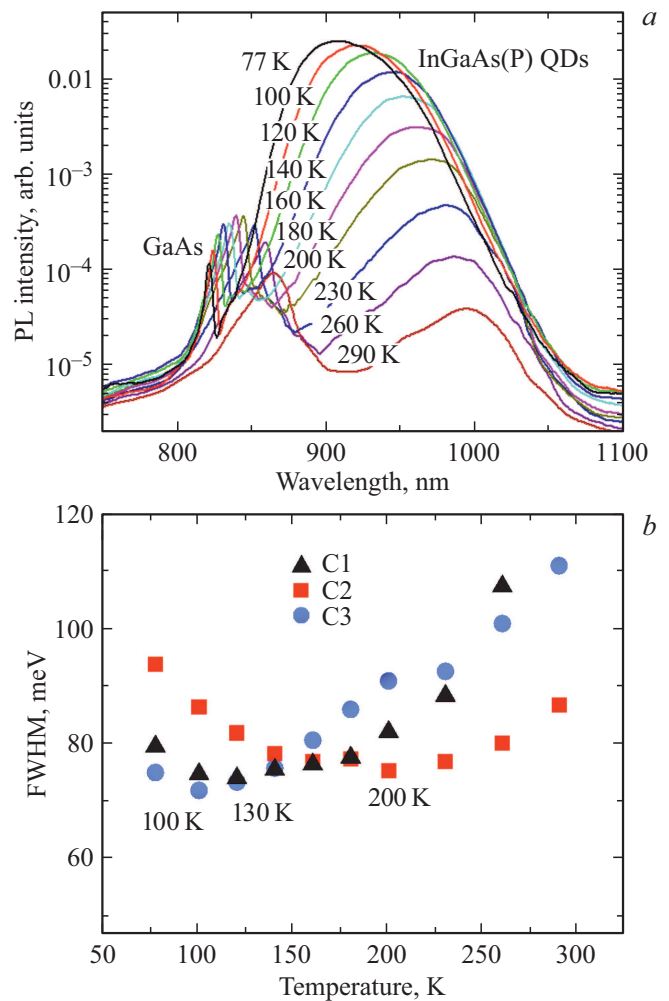


Рис. 3. Спектры ФЛ структуры C2, полученные при температурах 78–290 К (*a*) и зависимость полуширины линии ФЛ структур C1–C3 от температуры наблюдения (*b*).

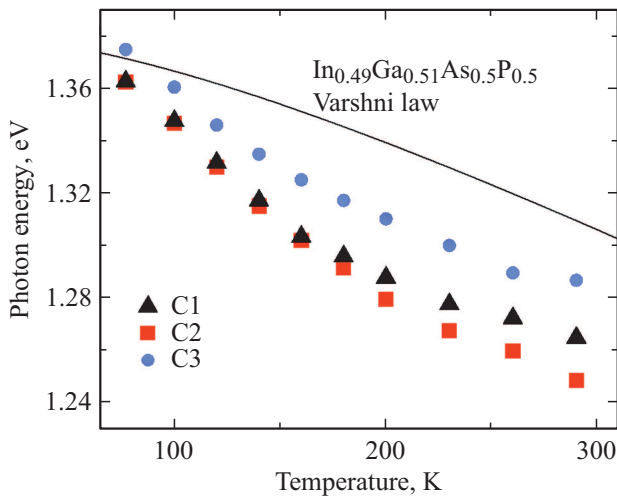


Рис. 4. Зависимость спектрального положения максимума ФЛ островков InGaPAs от температуры (символы) и ход зависимости Варшни для $In_{0.49}Ga_{0.51}P_{0.5}As_{0.5}$ (сплошная линия).

Наличие транспорта носителей между островками подтверждается ходом спектрального положения максимума ФЛ островков InGaPAs при повышении температуры (рис. 4). Полученный сдвиг при увеличении температуры не может быть описан с помощью выражения Варшни, которое используется для анализа температурного изменения ширины запрещенной зоны полупроводника (на рис. 4 для сравнения приведен ход зависимости Варшни для $In_{0.49}Ga_{0.51}P_{0.5}As_{0.5}$). На представленных зависимостях виден начальный участок резкого уменьшения энергии фотона, связанный с отмечавшимся ранее перезахватом носителей на более глубокие уровни. При переходе носителей в термализованное состояние при температурах выше 150 К ход зависимостей становится более плавным.

На спектрах возбуждения люминесценции (СВЛ), полученных при 10 К, наблюдаются две линии поглощения, спектральное положение максимумов которых не зависит от длины волны детектирования (рис. 5). Первая линия соответствует поглощению в материале GaAs (~818 нм), вторую линию с максимумом вблизи 838 нм, мы связываем с поглощением в остаточном двумерном слое InGaPAs. Эти линии поглощения совпадают для всех трех образцов.

Кратковременный отжиг позволяет уменьшить количество точечных дефектов в структуре и тем самым уменьшить вклад безызлучательной рекомбинации. Далее был выполнен кратковременный отжиг образцов при температурах 600 и 650°C в течение 2 min. Отжиг при 600°C привел к незначительному коротковолновому сдвигу максимума ФЛ островков InGaPAs, увеличению интенсивности ФЛ линии островков InGaPAs примерно в 3 раза для всех структур и существенному увеличению интенсивности линии GaAs (рис. 6, a, b). Кроме того, для всех структур после отжига наблюдается уменьшение

полуширины линии ФЛ во всем диапазоне температур наблюдения 78–300 К, что говорит о формировании более однородного массива островков. Температура, при которой наблюдается переход к термализованному распределению носителей после отжига, составляет около 130 К, значение полуширины линии ФЛ при комнатной температуре не превышает 75 meV для всех трех структур. Увеличение температуры отжига до 650°C привело к исчезновению линии излучения островков InGaPAs/GaAs. При этом на спектрах возникает новая линия вблизи 930 нм, которую мы связываем с остаточным двумерным слоем InGaPAs, ранее наблюдавшимся на спектрах возбуждения люминесценции (рис. 5), что, по всей видимости, означает, что при этой температуре происходит разложение материала островков.

Таким образом, в работе выполнены исследования спектров ФЛ трехмерных островков InGaPAs/GaAs, синтезированных при замещении фосфора на мышьяк в тонком слое InGaP (толщиной менее 3 нм) с использованием подложек GaAs. При комнатной температуре массив островков InGaPAs/GaAs излучает в спектральном диапазоне 950–1000 нм. Несмотря на низкую поверхностную плотность островков, увеличение мощности оптической накачки вплоть до уровня, при котором существенную роль начинает играть излучение с состояний в GaAs, не приводит к насыщению роста интенсивности ФЛ островков. Исследования в диапазоне температур от 78–300 К свидетельствуют о неоднородности и высокой безызлучательной рекомбинации в структурах и необходимости применения методов, направленных на уменьшение структурных дефектов. Применение отжига структур позволило увеличить интенсивность ФЛ при комнатной температуре до 300% при незначительном коротковолновом сдвиге максимума ФЛ, а также улучшить однородность внутри массива островков. Полу-

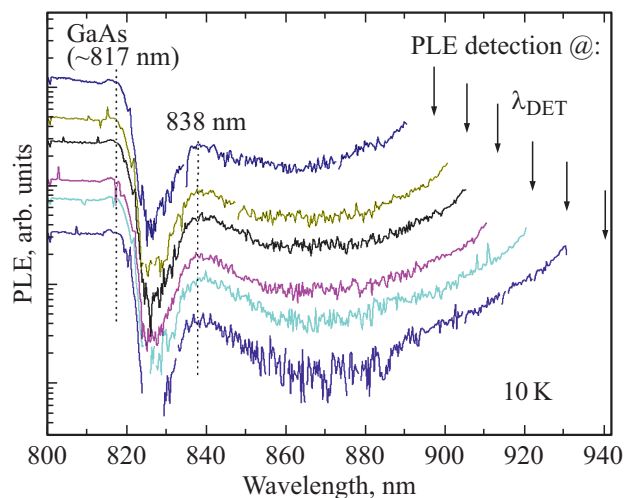


Рис. 5. Спектры возбуждения люминесценции, полученные при температуре 10 К структуры с островками InGaPAs. Спектры смещены по вертикали для удобства восприятия, длина волны детектирования указана стрелкой.

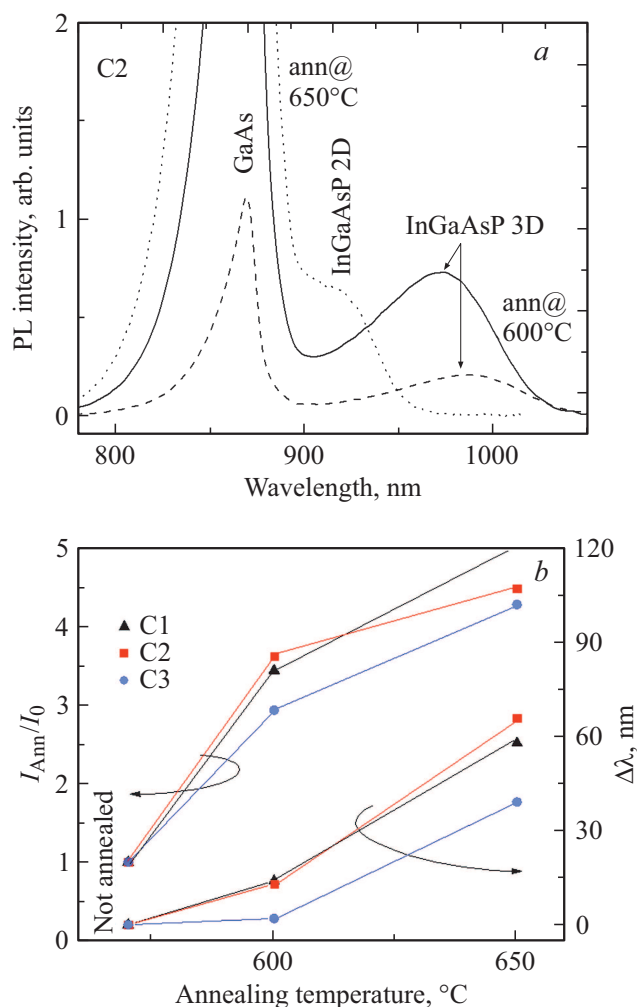


Рис. 6. Спектры ФЛ структуры C2, полученные при комнатной температуре до и после отжига при температурах 600 и 650 °C (a). Относительное изменение интенсивности ФЛ и относительный сдвиг длины волны максимума излучения для линии островков InGaPAs (b).

ченные результаты исследований массивов островков InGaPAs/GaAs свидетельствуют о возможности их использования для создания эффективных однофотонных излучателей.

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] Michler P., Kiraz A., Becher C., Schoenfeld W.V., Petroff P.M., Zhang Lidong, Hu E., Imamoglu A. // *Science*. 2000. V. 290. Iss. 5500. P. 2282-2285.
- [2] Ward M.B., Karimov O.Z., Unitt D., Yuan Z.L., See P., Gevaux D.G., Shields A.J., Atkinson P., Ritchie D. // *Appl. Phys. Lett.* 2005. V. 86. P. 201111.
- [3] Zinoni C., Alloing B., Monat C., Zwiller V., Li L.H., Fiore A., Lunghi L., Gerardino A., de Riedmatten H., Zbinden H., Gisin N. // *Appl. Phys. Lett.* 2006. V. 88. P. 131102.
- [4] Kok P., Munro W.J., Nemoto K., Ralph T.C., Dowling J.P., Milburn G.J. // *Rev. Mod. Phys.* 2007. V. 79. P. 135–174.
- [5] Aspuru-Guzik A., Walther P. // *Nat. Phys.* 2012. V. 8. P. 285–291.
- [6] Giovannetti V., Lloyd S., Maccone L. // *Nat. Photon.* 2011. V. 5. P. 222–229.
- [7] Cheung J.Y., Chunnillal C.J., Porrovecchio G., Smid M., Theocharous E. // *J. Mod. Opt.* 2007. V. 54. P. 373–396.
- [8] Holewa P., Gawetczyk M., Ciostek C., Wyborski P., Kadkhodazadeh S., Semenova E., Syperek M. // *Phys. Rev. B*. 2020. V. 101. P. 195304.
- [9] van Veldhoven P.J., Chauvin N., Fiore A., Nötzel R. // *Appl. Phys. Lett.* 2009. V. 95. P. 113110.
- [10] Kobak J., Rousset J.-G., Rudniewski R., Janik E., Slupinski T., Kossacki P., Golnik A., Pacuski W. // *J. Crystal Growth*. 2013. V. 378. P. 274–277.
- [11] Zhanguo Li, Yong Wang, Xin Gao, Guojun Liu, Yi Qu, Xiaohui Ma, Minghui You // *IEEE. 2015 International Conference on Optoelectronics and Microelectronics (ICOM)*. 2015. P. 404–406.
- [12] Koukourinkova S.D., Benamara M., Ware M.E., Wang Z.M., Salamo G.J. // *Appl. Phys. Lett.* 2016. V. 109. P. 123102.
- [13] Гладышев А.Г., Бабичев А.В., Андрюшкин В.В., Денисов Д.В., Неведомский В.Н., Колодезный Е.С., Новиков И.И., Карачинский Л.Я., Егоров А.Ю. // *ЖТФ*. 2020. T. 90. С. 2139–2142.