

# Формирование InGaAs-квантовых точек в теле AlGaAs-нитевидных нанокристаллов при молекулярно-пучковой эпитаксии

© Р.Р. Резник<sup>1</sup>, В.О. Гридчин<sup>1,2,3</sup>, К.П. Котляр<sup>1,2,3</sup>, А.И. Хребтов<sup>2</sup>, Е.В. Убыйвовк<sup>1</sup>, С.В. Микушев<sup>1</sup>,  
D. Li<sup>4</sup>, R. Radhakrishnan<sup>4</sup>, J.F. Neto<sup>4</sup>, N. Akopian<sup>4</sup>, Г.Э. Цырлин<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> Санкт-Петербургский государственный университет,  
190034 Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Санкт-Петербургский национально-исследовательский Академический университет им. Ж.И. Алфёрова  
Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>3</sup> Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,  
190103 Санкт-Петербург, Россия

<sup>4</sup> DTU Fotonik,  
2800 Kongens Lyngby, Denmark

E-mail: moment92@mail.ru

Поступила в Редакцию 2 марта 2022 г.

В окончательной редакции 25 марта 2022 г.

Принята к публикации 25 марта 2022 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований синтеза методом молекулярно-пучковой эпитаксии AlGaAs-нитевидных нанокристаллов с InGaAs-квантовыми точками. Показано, что, как и в случае системы материалов InP/InAsP, в теле нитевидного нанокристалла наблюдается формирование преимущественно двух объектов: InGaAs-квантовой точки вследствие аксиального роста и InGaAs-квантовой ямы вследствие радиального роста. Важно отметить, что выращенные наноструктуры сформировались преимущественно в вюрцитной кристаллографической фазе. Результаты исследований физических свойств выращенных наноструктур указывают на их перспективность для продвижения однофотонных источников в длинноволновую область. Предлагаемая технология открывает новые возможности для интеграции прямозонных III–V материалов с кремниевой платформой для различных приложений в области фотоники и квантовой связи.

**Ключевые слова:** полупроводники, нитевидные нанокристаллы, квантовые точки, соединения III–V, кремний, молекулярно-пучковая эпитаксия.

DOI: 10.21883/FTP.2022.07.52761.16

## 1. Введение

В настоящее время полупроводниковые наноструктуры на основе соединений III–V привлекают повышенный интерес исследователей благодаря своим уникальным свойствам и развитию современных методов синтеза [1–3]. Особый интерес для создания оптоэлектронных приложений представляют наноструктуры комбинированной размерности, такие как квантовые точки (КТ) в теле нитевидных нанокристаллов (ННК) [4–8]. В отличие от самоорганизованных КТ на рассогласованных поверхностях [9], диаметр, высота и плотность таких КТ определяются диаметром ННК, временем роста и плотностью ННК соответственно. Важно отметить, что благодаря эффективной релаксации механических напряжений на боковых гранях ННК подобные гибридные наноструктуры могут быть синтезированы на поверхности кремния. В предыдущих работах нами была продемонстрирована возможность роста методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) AlGaAs ННК с GaAs КТ [10–12]. Исследования физических свойств выращенных наноструктур показали, что они являются эффективными и направленными источниками одиночных фотонов диапазоне длин волн 750–800 нм, что

указывает на перспективность их применения для квантовой криптографии и интеграции III–V материалов с кремниевой платформой [13–15]. Тем не менее для увеличения числа приложений на основе ННК с КТ необходимо расширять диапазон материалов, составляющих КТ и ННК. Это приведет к продвижению однофотонных источников в длинноволновую область.

В данной работе приведены результаты экспериментальных исследований синтеза методом МПЭ и физических свойств AlGaAs ННК с InGaAs КТ на поверхности кремния. В отличие от наиболее исследованных наноструктур в системе материалов InGaAs/GaAs [16–19], локализация носителей заряда в InGaAs КТ в теле AlGaAs ННК имеет более высокое значение, так как ширина запрещенной зоны AlGaAs превышает аналогичный параметр GaAs. Это может привести к повышению температуры, при которой могут наблюдаться однофотонные свойства КТ.

## 2. Экспериментальные методы

Эксперименты по синтезу AlGaAs ННК с InGaAs КТ были выполнены с помощью установки МПЭ Riber

Сотраст 21, оснащенной эффузионными источниками индия (In), галлия (Ga), алюминия (Al), мышьяка (As) и дополнительной камерой металлизации. На подготовительном этапе полированные пластины Si(111) подвергались процедуре очистки в водном растворе HF(1:10). Затем подложки загружались в камеру металлизации, нагревались до 950°C и выдерживались при этой температуре в течение 20 мин для удаления остаточного окисла. На следующем этапе температура подложки понижалась до 550°C, и на поверхность подложки напылялся тонкий слой золота (1–2 нм) с последующей минутной выдержкой при той же температуре для формирования капель-катализаторов для последующего роста ННК. После охлаждения до комнатной температуры подложки переносились в ростовую камеру без нарушений условий сверхвысокого вакуума. Затем температура подложки повышалась до ростовой (510°C). Температура подложек во время всего ростового процесса не изменялась. После стабилизации температуры подложек одновременно открывались заслонки источников Al, Ga и As на 13 мин для формирования AlGaAs ННК. Для последующего формирования InGaAs КТ закрывалась заслонка источника Al и одновременно с этим открывалась заслонка источника In на 5 с. На завершающем этапе роста снова открывалась заслонка источника Al для формирования верхней части AlGaAs ННК. Согласно предварительным калибровкам, потоки из источников Al и Ga соответствовали скорости роста слоя AlGaAs — 1 монослой в секунду (МС/с), номинальные составы твердых растворов AlGaAs и InGaAs составляли 0.3 по Al и 0.5 по In соответственно.

Исследования морфологических свойств синтезированных наноструктур проводились методом растровой электронной микроскопии (РЭМ). Исследования структурных свойств синтезированных наноструктур проводились методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) с возможностью энергодисперсионного рентгеновского анализа (EDX). Исследования оптических свойств выращенных образцов проводились с помощью метода микрофотолюминесценции (микро-ФЛ) при температуре 4 К. Для сравнения излучения из выращенных наноструктур в разных направлениях часть стоящих на подложке ННК была удалена с поверхности и уложена на поверхность чистой пластины Si/SiO<sub>x</sub>.

### 3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведено типичное РЭМ-изображение выращенных AlGaAs ННК с InGaAs КТ на поверхности кремния. Из рисунка видно, что ННК имеют коническую форму со средней высотой 1.4 мкм. Диаметр ННК составил 150 нм у основания и 30 нм у вершины при средней поверхностной плотности ННК  $\sim 9 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$ . Следует отметить, что ННК сформировались преимущественно в направлении (111), что указывает на их эпитаксиальный рост на подложке Si(111). Это было достигнуто благодаря уникальной процедуре нанесения золота в отдельной

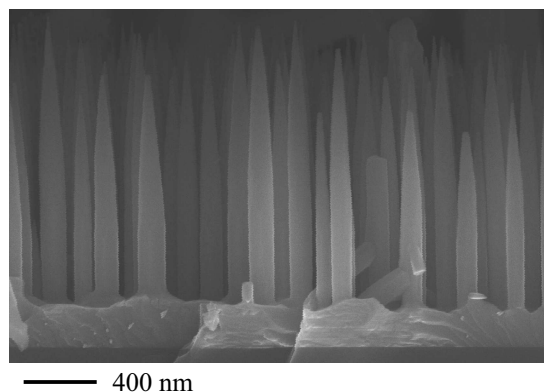


Рис. 1. Типичное РЭМ-изображение выращенных AlGaAs ННК с InGaAs КТ на поверхности кремния.

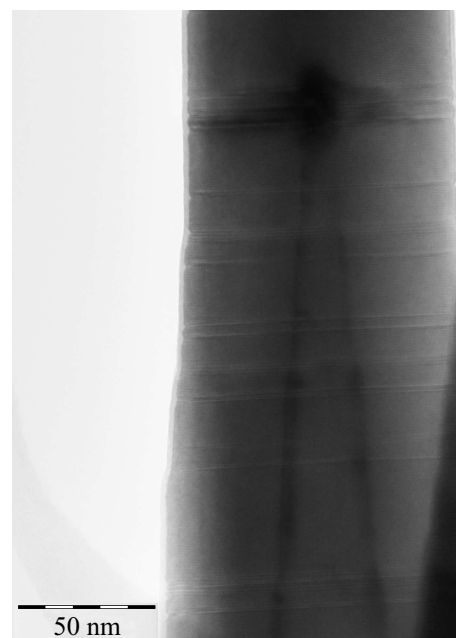
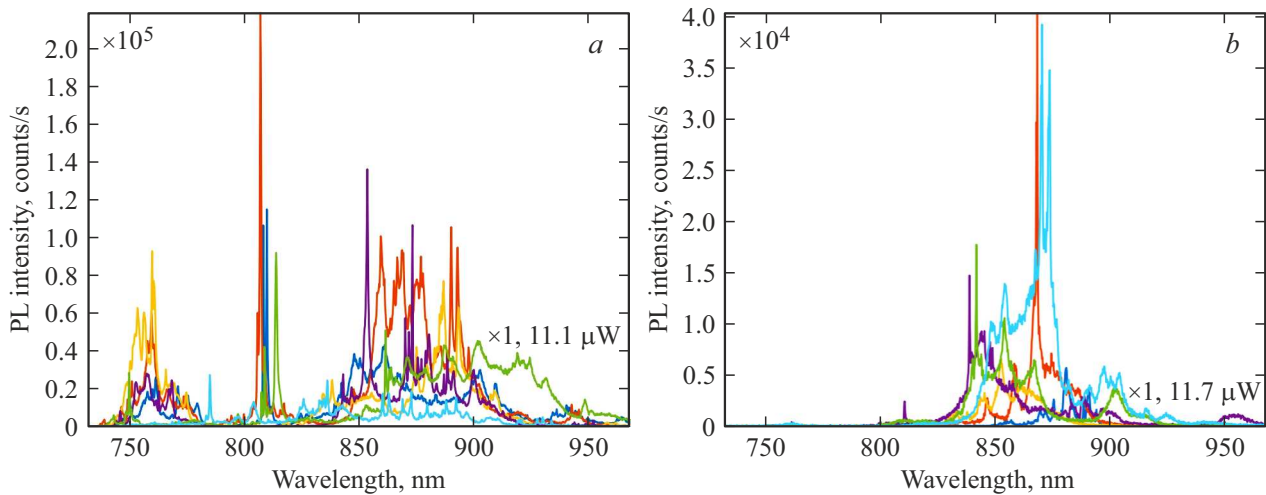


Рис. 2. Типичное ПЭМ-изображение диспергированного на углеродную сетку одиночного AlGaAs ННК с InGaAs КТ.

камере металлизации и переноса подложки в ростовую камеру без нарушений условий сверхвысокого вакуума. В противном случае из-за быстрого образования на поверхности подложки слоя естественного окисла, необходимо его дополнительное удаление в ростовой камере при достаточно высокой температуре подложки ( $\sim 950^\circ\text{C}$ ), что может привести к неконтролируемому травлению на границе капля–подложка и нарушению эпитаксиальной связи с подложкой.

Типичное ПЭМ-изображение диспергированного на углеродную сетку одиночного AlGaAs ННК с InGaAs КТ представлено на рис. 2. Из рисунка видно, что, как и в случае системы материалов InP/InAsP [8], в теле ННК наблюдается формирование преимущественно двух объектов: InGaAs КТ вследствие аксиального роста и



**Рис. 3.** Наборы типичных спектров микро-ФЛ при температуре 4 К от AlGaAs ННК с InGaAs КТ: *a* — стоящих на поверхности Si; *b* — лежащих на поверхности Si/SiO<sub>x</sub>. (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

InGaAs КЯ вследствие радиального роста. При времени формирования КТ, равном 5 с, ее размеры составляют в среднем  $\sim 21$  нм в высоту и  $\sim 11$  нм в диаметре. Исследования составов InGaAs нанобъектов методом EDX показали, что мольная доля индия в твердом растворе одинакова как для КТ, так и для КЯ и составляет  $\sim 20\%$ . Важно отметить, что синтезированные наноструктуры имеют преимущественно вюрцитную кристаллографическую фазу [10]. Наноструктуры, обладающие вюрцитной кристаллографической фазой, могут быть перспективны для ряда приложений, например пьезогенераторов [20–22]. Тем не менее в вюрцитных структурах как ННК, так и КТ присутствуют редкие включения кубической фазы материала, которые не должны оказывать существенного влияния на оптические свойства КТ. Более подробные теоретические и экспериментальные исследования процессов формирования перекидок кристаллографических фаз вблизи КТ будут проведены в последующих работах.

На рис. 3, *a* и *b* представлены наборы типичных спектров микро-ФЛ, измеренные в разных местах образца при температуре 4 К, полученные от стоящих на подложке Si (рис. 3, *a*) и лежащих на подложке Si/SiO<sub>x</sub> (рис. 3, *b*) AlGaAs ННК с InGaAs КТ. Стоит отметить, что при фокусировке пятна лазера до размеров  $\sim 1$  мкм и высокой поверхностной плотности выращенных наноструктур одновременно возбуждалось около 10–20 ННК с КТ. Как видно из рис. 3, на спектрах микро-ФЛ четко видны три основные полосы: (1) в районе 750 нм, соответствующая излучению из AlGaAs ННК [11,12], (2) в районе 820 нм, соответствующая излучению из InGaAs КЯ, и (3) в диапазоне от 850 до 900 нм, соответствующая излучению из InGaAs КТ. Тем не менее спектры, полученные от стоящих и лежащих ННК, существенно отличаются друг от друга. В случае лежащих на поверхности ННК преобладает излучение

от КТ, но значительного сигнала от AlGaAs ННК или InGaAs КЯ не наблюдается. Это хорошо коррелирует с теоретическими предсказаниями, описанными в [23,24], согласно которым для излучателей с большей длиной волны анизотропия в излучении подавляется, поэтому для излучения от InGaAs КТ, излучающих в диапазоне 850–900 нм, анизотропия менее выражена.

#### 4. Заключение

В работе продемонстрирована возможность роста методом МПЭ AlGaAs ННК с InGaAs КТ на поверхности кремния. Результаты исследований структурных и оптических свойств выращенных наноструктур показали, что, как и в случае системы материалов InP/InAsP, в теле ННК наблюдается формирование преимущественно двух объектов: InGaAs КТ вследствие аксиального роста и InGaAs КЯ вследствие радиального роста. Важно отметить, что выращенные наноструктуры сформировались преимущественно в вюрцитной кристаллографической фазе. Результаты исследований физических свойств выращенных наноструктур указывают на их перспективность для продвижения однофотонных источников в длинноволновую область. Таким образом, данная работа открывает новые перспективы для интеграции прямозонных III–V полупроводников с кремниевой платформой для различных приложений в области фотоники и технологий квантовой связи.

#### Финансирование работы

Синтез экспериментальных образцов выполнен при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования в части государственного задания № 0791-2020-0003. Исследования оптических свойств

выращенных наноструктур проведены при финансовой поддержке the European Research Council (ERC) under the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme (grant agreement № 101003378). Исследования структурных свойств экспериментальных образцов выполнены при финансовой поддержке Санкт-Петербургского государственного университета в рамках исследовательского гранта № 92591131.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] M. Karimi, V. Jain, M. Heurlin, A. Nowzari, L. Hussain, D. Lindgren, J.E. Stehr, I.A. Buyanova, A. Gustafsson, L. Samuelson. *Nano Lett.*, **17** (6), 3356 (2017).
- [2] J.K. Hyun, S. Zhang, L.J. Lauhon. *Ann. Rev. Mater. Sci.*, **43**, 451 (2013).
- [3] K.W. Ng, W.S. Ko, T.-T.D. Tran, R. Chen, M.V. Nazarenko, F. Lu, V.G. Dubrovskii, M. Kamp, A. Forchel, C.J. Chang-Hasnain. *ACS Nano*, **7** (1), 100 (2013).
- [4] M. Heiss, Y. Fontana, A. Gustafsson, G. Wüst, C. Magen, D.D. O'regan, J.W. Luo, B. Ketterer, S. Conesa-Boj, A.V. Kuhlmann, J. Houel, E. Russo-Averchi, J.R. Morante, M. Cantoni, N. Marzari, J. Arbiol, A. Zunger, R.J. Warburton, A. Fontcuberta I Morral. *Nature Materials*, **12** (5), 439 (2013).
- [5] K.S. Leschkies, R. Divakar, J. Basu, E. Enache-Pommer, J.E. Boercker, C.B. Carter, U.R. Kortshagen, D.J. Norris, E.S. Aydil. *Nano Lett.*, **7** (6), 1793 (2007).
- [6] A.V. Akimov, A. Mukherjee, C.L. Yu, D.E. Chang, A.S. Zibrov, P.R. Hemmer, H. Park, M.D. Lukin. *Nature*, **450** (7168), 402 (2007).
- [7] M.T. Borgström, V. Zwiller, E. Müller, A. Imamoglu. *Nano Lett.*, **5** (7), 1439 (2005).
- [8] R.R. Reznik, G.E. Cirlin, I.V. Shtrom, A.I. Khrebtov, I.P. Soshnikov, N.V. Kryzhanovskaya, E.I. Moiseev, A.E. Zhukov. *Techn. Phys. Lett.*, **44** (2), 112 (2018).
- [9] V.G. Dubrovskii, G.E. Cirlin, V.M. Ustinov. *Phys. Rev. B*, **68** (7), 075409 (2003).
- [10] L. Leandro, R. Reznik, J.D. Clement, J. Repán, M. Reynolds, E.V. Ubyivovk, I.V. Shtrom, G. Cirlin, N. Akopian. *Sci. Rep.*, **10** (1), 1 (2020).
- [11] G.E. Cirlin, I.V. Shtrom, R.R. Reznik, Y.B. Samsonenko, A.I. Khrebtov, A.D. Bouravleuv, I.P. Soshnikov. *Semiconductors*, **50** (11), 1421 (2016).
- [12] G.E. Cirlin, R.R. Reznik, I.V. Shtrom, A.I. Khrebtov, I.P. Soshnikov, S.A. Kukushkin, L. Leandro, T. Kasama, N. Akopian. *J. Phys. D*, **50** (48), 484003 (2017).
- [13] L. Leandro, C.P. Gunnarsson, R. Reznik, K.D. Jöns, I. Shtrom, A. Khrebtov, T. Kasama, V. Zwiller, G. Cirlin, N. Akopian. *Nano Lett.*, **18** (11), 7217 (2018).
- [14] L. Leandro, J. Hastrup, R. Reznik, G. Cirlin, N. Akopian. *NPJ Quant. Inf.*, **6** (1), 1 (2020).
- [15] R.R. Reznik, K.M. Morozov, I.L. Krestnikov, K.P. Kotlyar, I.P. Soshnikov, L. Leandro, N. Akopian, G.E. Cirlin. *Techn. Phys. Lett.*, **1** (2021).
- [16] M. Heiss, B. Ketterer, E. Uccelli, J.R. Morante, J. Arbiol, A.F. i Morral. *Nanotechnology*, **22** (19), 195601 (2011).
- [17] J. Tatebayashi, S. Kako, J. Ho, Y. Ota, S. Iwamoto, Y. Arakawa. *J. Cryst. Growth*, **468**, 144 (2017).
- [18] J. Tatebayashi, Y. Ota, S. Ishida, M. Nishioka, S. Iwamoto, Y. Arakawa. *Appl. Phys. Lett.*, **105** (10), 103104 (2014).
- [19] M.N. Makhonin, A.P. Foster, A.B. Krysa, P.W. Fry, D.G. Davies, T. Grange, T. Walther, M.S. Skolnick, L.R. Wilson. *Nano Lett.*, **13** (3), 861 (2013).
- [20] C.T. Huang, J.H. Song, C.M. Tsai, W.F. Lee, D.H. Lien, Z.Y. Gao, Y. Hao, L.J. Chen, Z.L. Wang. *Adv. Mater.*, **36**, 4008 (2010).
- [21] N. Gogneau, N. Jamond, P. Chretien, F. Houze, E. Lefeuvre, M. Tchernycheva. *Semicond. Sci. Technol.*, **31** (10), 103002 (2016).
- [22] P.A. Alekseev, V.A. Sharov, P. Geydt, M.S. Dunaevskiy, V.V. Lysak, G.E. Cirlin, R.R. Reznik, A.I. Khrebtov, I.P. Soshnikov, E. Lähderanta. *Phys. Status Solidi: Rapid Res Lett.*, **12** (1), 1700358 (2018).
- [23] A. Kuznetsov, P. Roy, V.M. Kondratev, V.V. Fedorov, K.P. Kotlyar, R.R. Reznik, A.V. Vorobyev, I.S. Mukhin, G.E. Cirlin, A.D. Bolshakov. *Nanomaterials*, **12** (2), 241 (2022).
- [24] R.R. Reznik, G.E. Cirlin, K.P. Kotlyar, I.V. Ilkiv, N. Akopian, L. Leandro, V.V. Nikolaev, A.V. Belonovski, M.A. Kaliteevski. *Nanomaterials*, **11** (11), 2894 (2021).

Редактор А.Н. Смирнов

### Formation of InGaAs quantum dots in the body of AlGaAs nanowires via molecular-beam epitaxy

R.R. Reznik<sup>1</sup>, V.O. Gridchin<sup>1,2,3</sup>, K.P. Kotlyar<sup>1,2,3</sup>, A.I. Khrebtov<sup>2</sup>, E.V. Ubyivovk<sup>1</sup>, S.V. Mikushev<sup>1</sup>, D. Li<sup>4</sup>, R. Radhakrishnan<sup>4</sup>, J.F. Neto<sup>4</sup>, N. Akopian<sup>4</sup>, G.E. Cirlin<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> St. Petersburg State University, 199034 St. Petersburg, Russia

<sup>2</sup> Alferov University, 194021 St. Petersburg, Russia

<sup>3</sup> Institute for Analytical Instrumentation of the Russian Academy of Sciences, 190103 St. Petersburg, Russia

<sup>4</sup> DTU Fotonik, 2800 Kongens Lyngby, Denmark

**Abstract** The results of experimental studies on the synthesis by molecular-beam epitaxy of AlGaAs nanowires with InGaAs quantum dots are presented. It was shown that, as in the case of the InP/InAsP material system, the formation of predominantly two objects is observed in the body of AlGaAs nanowire: InGaAs quantum dot due to axial growth and InGaAs quantum well due to radial growth. It is important to note that the grown nanostructures were formed predominantly in the wurtzite crystallographic phase. The results of the grown nanostructures physical properties studies indicate that they are promising for moving single-photon sources to the long-wavelength region. The proposed technology opens up new possibilities for integration direct-gap III–V materials with a silicon platform for various applications in photonics and quantum communications.