

Анализ механизмов эмиссии носителей в $p-i-n$ -структурах с квантовыми точками In(Ga)As

© Е.С. Шаталина*[¶], С.А. Блохин*⁺, А.М. Надточий*⁺, А.С. Паюсов*, А.В. Савельев*, М.В. Максимов*⁺,
А.Е. Жуков*, Н.Н. Леденцов⁺, А.Р. Ковш[×], С.С. Михрин[×], В.М. Устинов⁺

* Санкт-Петербургский академический университет — Научно-образовательный центр нанотехнологий Российской академии наук, 195220 Санкт-Петербург, Россия

⁺ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

[×] Innolume GmbH, 44263 Dortmund, Deutschland

(Получена 23 марта 2010 г. Принята к печати 30 марта 2010 г.)

С помощью спектроскопии фототока исследованы механизмы эмиссии носителей заряда с энергетических уровней квантовых точек (In,Ga)As/(Al,Ga)As различной конструкции. Показано, что для изолированных слоев квантовых точек, разделенных широкими спейсерными слоями (Al,Ga)As, основным механизмом эмиссии носителей из квантовых точек является термическая активация. При малой ширине спейсерного слоя (Al,Ga)As, когда происходит электронное связывание отдельных слоев квантовых точек в вертикальном направлении, возрастает роль туннельного механизма эмиссии носителей между вертикально связанными квантовыми точками.

1. Введение

Самоорганизующиеся квантовые точки (КТ) перспективны для создания нового поколения оптоэлектронных приборов, например, полупроводниковых лазеров [1] и фотоэлектрических преобразователей [2,3]. Анализ потенциальных возможностей использования квантовых точек в таких направлениях подразумевает необходимость исследования спектра энергетических состояний, а также кинетики носителей в КТ. Наиболее прямой и эффективной методикой анализа спектров и процесса межзонного поглощения КТ является спектроскопия фототока. В опубликованных к настоящему времени работах по этой тематике основное внимание уделялось изолированным квантовым точкам InAs/GaAs [4–7]. Цель данной работы состояла в определении доминирующего механизма эмиссии носителей в зависимости от структурно-оптических параметров (In,Ga)As/(Al,Ga)As КТ. Кроме структур с изолированными КТ, впервые методом спектроскопии фототока исследованы структуры с электронно-связанными КТ.

2. Эксперимент

Исследуемые $p-i-n$ -структуры были получены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на установке RIBER 49, на легированных Si подложках GaAs (001) n -типа. Массивы КТ были сформированы в режиме роста Странского–Крастанова. Эпитаксиальная структура состояла из n -легированного буферного слоя GaAs, n -легированного нижнего слоя AlGaAs, нелегированного слоя (Al)GaAs толщиной ~ 350 нм, содержащего 5 рядов КТ, p -легированного (10^{18} см $^{-3}$) верхнего слоя AlGaAs и

p^+ -легированного (10^{20} см $^{-3}$) контактного слоя GaAs (рис. 1). Были исследованы структуры, содержавшие в i -области массивы КТ следующих типов (см. также таблицу):

- структура А: массив InAs-КТ, зарощенных InGaAs, в матрице GaAs;
- структура В: массив InAs-КТ, зарощенных InGaAs, в матрице AlGaAs;
- структура С: массив InGaAs-КТ в матрице GaAs, имеющих меньшую энергию локализации основного состояния по сравнению со структурами А и В;
- структура D: массив InGaAs-КТ в матрице GaAs с уменьшенной относительно остальных структур толщиной спейсерного слоя.

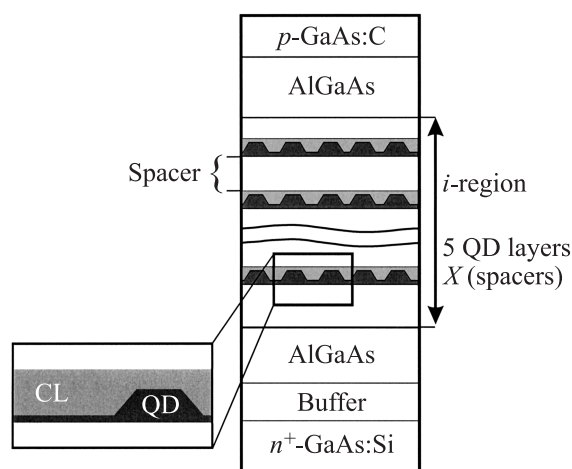


Рис. 1. Схематическое изображение $p-i-n$ -структуры, содержащей в i -области 5 слоев квантовых точек, разделенных спейсерными слоями (spacer) толщиной X . QD — материал квантовых точек, CL — материал покрывающего слоя (если он присутствует).

[¶] E-mail: Shatalina@mail.ioffe.ru

Характеристики исследуемых структур. Энергия связи экситона определена из оптических измерений

Структура	Материал матрицы (M)	Материал квантовых точек (QD)	Материал покрывающего слоя (CL)	Толщина спейсерного слоя X, нм	Энергия связи экситона, мэВ
A	GaAs	InAs	$In_{0.15}Ga_{0.85}As$	38	444
B	$Al_{0.25}Ga_{0.75}As$	InAs	$In_{0.15}Ga_{0.85}As$	38	765
C	GaAs	InGaAs	—	33	327
D	GaAs	InGaAs	—	10	356

С помощью фотолитографии, химического травления и напыления металлов были изготовлены экспериментальные образцы в геометрии мез размером 2×2 мм с сетчатым верхним контактом (для более эффективного сбора носителей) и рабочей площадью 2 мм^2 . Омические контакты к n - и p -областям формировались напылением и вжиганием слоев металлизации AuGe/Ni/Au и Cr/Au. При этом токоотводящие шины верхнего контакта утолщались электрохимическим осаждением золота до толщины порядка 2 мкм. Антиотражающие покрытия не использовались. На финальном этапе структуры раскалывались на отдельные чипы и напайвались на медные теплоотводы n -контактом вниз. Верхний p -контакт посредством золотой проволоки выводился на изолированную металлическую площадку для облегчения монтажа образцов в криостат.

Для изучения температурных зависимостей спектров фототока образец помещался в гелиевый криостат замкнутого цикла с возможностью поддержания температуры в диапазоне от 20 до 300 К. Все измерения проводились по стандартной методике синхронного детектирования. В качестве перестраиваемого источника излучения использовалась галогеновая лампа накаливания (100 Вт), свет которой диспергировался монохроматором МДР-41 и фокусировался на поверхности образца с помощью собирающей линзы. Для исключения паразитного вклада в возбуждающий сигнал от 2-го порядка дифракционной решетки монохроматора на выходе монохроматора помещались соответствующие фильтры (КС19, ЖС10).

3. Результаты и обсуждение

На рис. 2 представлены результаты спектроскопии фототока в широком диапазоне температур для $InAs/InGaAs$ -КТ в матрице GaAs (образец А). На спектрах четко выражены пики, соответствующие основному состоянию КТ (GS), первому и второму возбужденным состояниям КТ (ES1, ES2), смачивающему слою (WL) и GaAs-матрице. Уменьшение температуры приводит не только к сдвигу спектров поглощения, но и к трансформации формы — последовательному исчезновению вклада от основного состояния, возбужденных состояний и смачивающего слоя КТ. В то же время приложение обратного электрического смещения (рис. 3) при температуре 20 К приводит к появлению в спектре фототока

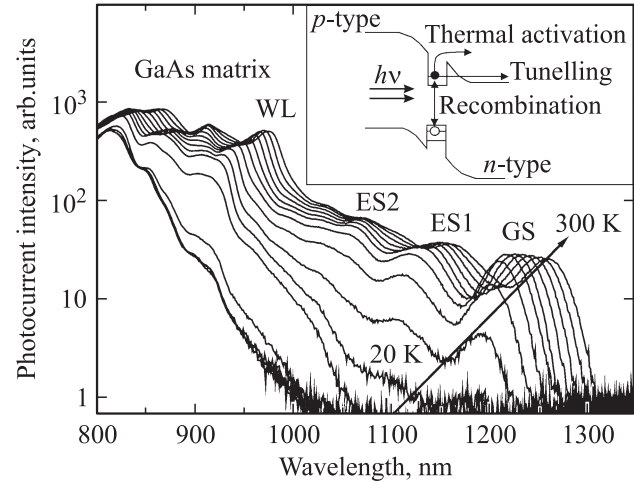


Рис. 2. Спектры фототока для структуры А в диапазоне температур 20–300 К. Обозначения: GS — основное состояние КТ, ES1 и ES2 — первое и второе возбужденное состояние КТ, WL — смачивающий слой КТ. На вставке — упрощенная зонная диаграмма для $p-i-n$ -структуры с одним слоем квантовых точек. Показаны основные процессы, рассматриваемые в предложенной модели, — термическая активация (thermal activation), туннелирование (tunelling) и рекомбинация (recombination).

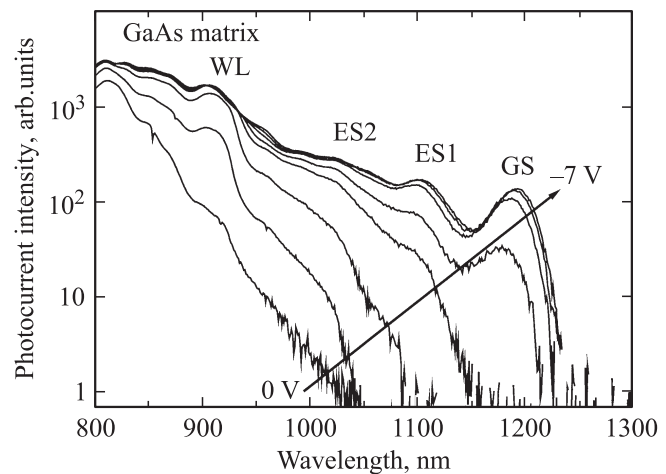


Рис. 3. Спектры фототока для структуры А при температуре 20 К при приложении обратного смещения в диапазоне 0–7 В. Обозначения: GS — основное состояние КТ, ES1 и ES2 — первое и второе возбужденное состояние КТ, WL — смачивающий слой КТ.

пиков, обусловленных квантовыми точками. Аналогичным образом изменяются от температуры и обратного смещения спектры фототока для InAs/InGaAs-КТ в матрице AlGaAs (образец В) и для InGaAs-КТ в матрице GaAs (образец С).

Такое поведение коррелирует с результатами спектроскопии фототока для InAs-КТ в матрице GaAs [8,5] и может быть объяснено в рамках следующей феноменологической модели $p-i-n$ -структуры с одним слоем КТ (см. вставку на рис. 2). Электронно-дырочные пары, рождаемые со скоростью g при межзонном поглощении, имеют всего две возможности: либо быть выброшенными из КТ в матрицу за время τ_{esc} , либо рекомбинировать (излучательно или безызлучательно) непосредственно в КТ за время τ_{rec} . Вклад в фототок дает только процесс эмиссии носителей из КТ, поэтому конкуренция между двумя этими процессами определяет общий фототок от массива КТ [9]:

$$I_{PC} \approx \frac{g}{(1 + \tau_{rec}/\tau_{esc})}. \quad (1)$$

Рассмотрим два основных механизма выброса носителей из КТ: термическую активацию и туннелирование сквозь потенциальный барьер [8]. В первом случае носитель заряда получает дополнительную энергию активации ΔE , необходимую для преодоления потенциального барьера КТ, за счет тепловых колебаний кристаллической решетки полупроводника, и скорость эмиссии носителей в результате термической активации описывается следующим выражением [10]:

$$\tau_a^{-1} \propto \exp(-\Delta E/k_B T). \quad (2)$$

где T — температура, k_B — постоянная Больцмана. Очевидно, что с увеличением температуры скорость термического выброса носителей растет. При низких температурах вероятность термической активации носителей, локализованных в КТ, крайне мала. Единственным возможным механизмом эмиссии носителей становится туннелирование сквозь потенциальный барьер, а скорость эмиссии зависит не только от высоты потенциального барьера E_b , но и величины электрического поля F , и эффективной массы носителей m^* [11]:

$$\tau_{tun}^{-1} \approx \exp(-\sqrt{m^* E_b^3}/F)/m^*. \quad (3)$$

Приложение внешнего электрического поля к такой структуре меняет изгиб зон на границе p - и n -областей с активной областью и соответственно изменяет прозрачность барьера для носителей. Так, приложение обратного смещения к $p-n$ -переходу делает барьер более тонким и приводит к повышению эффективности туннелирования.

Таким образом, при нулевом смещении основным механизмом эмиссии носителей для образцов А, В, С является термическая активация, а при температурах ниже некоторых характеристических значений происходит

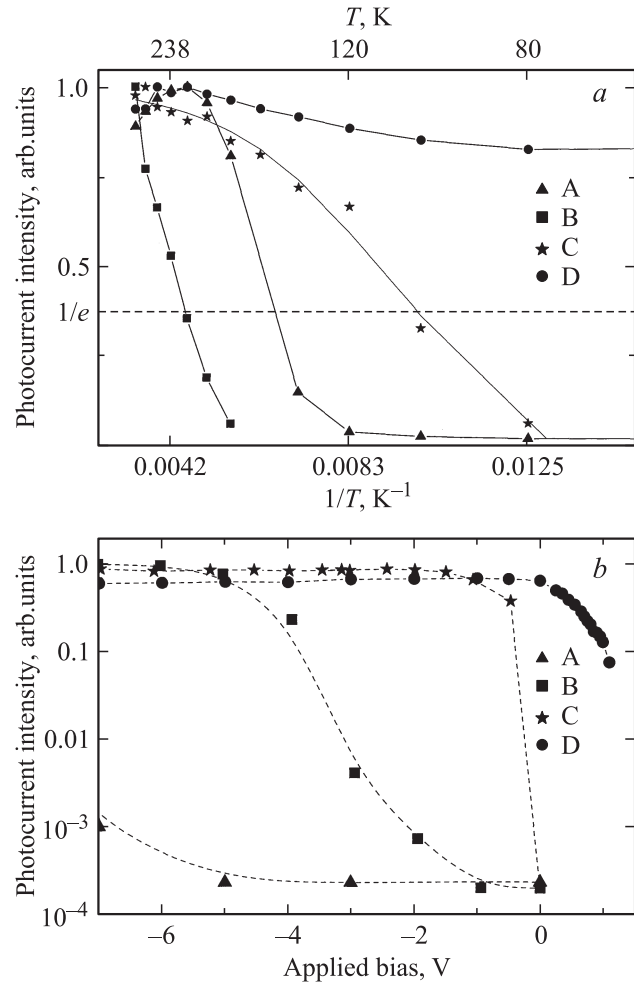


Рис. 4. Зависимости амплитуды (нормированной на максимальное значение) фототока, обусловленного опустошением основного состояния КТ, от температуры при нулевом смещении (а) и от обратного смещения при температуре 20 К (б) для всех исследуемых структур. Точками изображены экспериментальные данные. Линии иллюстрируют характер изменений.

полное подавление термического выброса носителей из КТ и исчезновение вклада КТ в фототок. На рис. 4,а показаны температурные зависимости интенсивности пика основного состояния КТ в спектре фототока для всех исследуемых образцов, нормированной на максимальное значение. Для дальнейшего анализа удобно ввести понятие характеристической температуры T_g , значение которой соответствует падению интенсивности пика основного состояния в e раз по сравнению с его интенсивностью при комнатной температуре. Для образца А величина T_g составляет примерно 150 К. В случае структуры В, обладающей большей энергией локализации носителей в КТ, температура T_g достигает величины 220 К, тогда как для образца С с меньшей энергией локализации экситона температура T_g падает до 110 К. Полученные значения характеристической температуры коррелируют со значениями температур,

соответствующих моменту перехода носителей заряда из равновесного состояния в неравновесное [1,12,13]. Более того, согласно формулам (1) и (2), из температурных зависимостей амплитуд фототока, обусловленных опустошением основного и возбужденных состояний КТ и смачивающего слоя, можно оценить характерную энергию активации носителей. Поскольку выброс электронов и дырок из КТ происходит независимо, данная энергия активации соответствует носителям, для которых скорость эмиссии из КТ максимальна [14]. На базе зависимостей энергии активации носителей от глубины залегания энергетических уровней (GS, ES1, ES2 и WL) относительно матрицы можно предположить, что носители сначала выбрасываются в смачивающий слой и уже с него эффективно туннелируют (или термически активируются) в матрицу.

Согласно рис. 4, *b*, при низких температурах, когда фототок, обусловленный опустошением основного состояния КТ, практически отсутствует, приложение обратного электрического смещения к $p-i-n$ -структуре приводит к активизации другого механизма эмиссии носителей — туннелированию сквозь потенциальный барьер и восстановлению фототока от КТ. При этом насыщение фототока основного состояния для образца С происходит при обратных напряжениях более -1 В, для образца А это значение напряжения составляет -5 В, тогда как для образца В наблюдается монотонный рост фототока во всем диапазоне рассматриваемых напряжений. Таким образом, в полном соответствии с приведенными выше формулами (1) и (3), чем больше энергия локализации носителей в $In(Ga)As$ -КТ, тем более высокое электрическое поле необходимо приложить для того, чтобы время выброса носителей из КТ стало меньше времени излучательной рекомбинации.

В случае вертикально связанных $InGaAs$ -КТ в матрице $GaAs$ (образце D) обнаружено принципиально иное поведение спектров фототока с температурой (рис. 5). Вклад в фототок как от возбужденных состояний, так и от основного состояния КТ сохраняется при температурах вплоть до 20 К, а падение интенсивности пика основного состояния КТ при уменьшении температуры незначительно (рис. 4, *a*). В этой связи термическая активация не может рассматриваться как доминирующий механизм эмиссии носителей из вертикально связанных $InGaAs$ -КТ в отличие от образцов А, В, С. Более того, приложение обратного смещения не приводит к заметному изменению формы спектра фототока образца D, а фототок, обусловленный опустошением основного состояния КТ, отличен от нуля и не зависит от величины обратного смещения (рис. 4, *b*). Для объяснения обнаруженного аномального поведения спектров фототока образца D необходимо рассмотреть эффект вертикального связывания КТ. При вертикальном складировании рядов КТ поля деформаций нижнего слоя КТ распространяются в спейсерный слой $GaAs$ и при толщинах слоя менее 20 нм начинают оказывать существенное влияние на процесс формирования верхнего

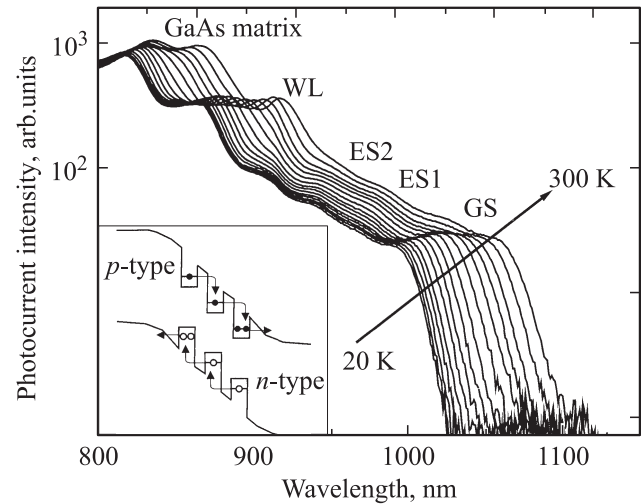


Рис. 5. Спектры фототока для структуры D в диапазоне температур 20–300 К. Обозначения: GS — основное состояние КТ, ES1 и ES2 — первое и второе возбужденное состояние КТ, WL — смачивающий слой КТ. На вставке — нерезонансное туннелирование носителей в связанных точках, приводящее к пространственному разделению носителей.

слоя КТ, что в конечном счете приводит к вертикальному выстраиванию (связыванию) рядов КТ в колонны. Согласно теоретическим расчетам [15], при толщинах спейсерного слоя порядка высоты КТ (менее 5 нм) происходит гибридизация электронных уровней, ведущая к образованию мини-зон (так называемое электронное связывание), которые обеспечивают эффективное резонансное туннелирование носителей из массива КТ к эмиттерам. Следовательно, можно предположить, что при спейсерных слоях порядка 10 нм возможно нерезонансное туннелирование между соседними вертикально связанными КТ в пределах одной колонны (см. вставку к рис. 5). Если темп такого процесса окажется выше, чем у конкурирующего — рекомбинации носителей в КТ, то фотогенерированные носители могут быть пространственно разделены внутри одной колонны вертикально связанных КТ. При этом возможность пространственного перемещения носителей по вертикальной колонне КТ и воздействие встроенного в $p-n$ -переход электрического поля приведут к тому, что носители разных знаков окажутся в разных концах колонны: электроны — ближе к n -эмиттеру, дырки — к p -эмиттеру. Уменьшение перекрытия волновых функций электронов и дырок приведет к еще большему подавлению рекомбинации носителей. В конечном счете это приводит к повышению вероятности выброса носителей с состояний КТ в матрице и более эффективному сбору фотогенерированных носителей с состояний КТ. В результате фототок, обусловленный опустошением состояний вертикально связанных КТ, оказывается независимым от температуры и обратного смещения.

4. Заключение

В данной работе проведен сравнительный анализ вклада механизмов эмиссии носителей из КТ для набора структур, отличающихся энергией локализации носителей в КТ и толщиной спейсерного слоя. Показано, что, для образцов с изолированными InGa/InGaAs-квантовыми точками, осажденными в матрицу GaAs (структура А) или в матрицу AlGaAs (структура В), а также для InGaAs-квантовых точек в матрице GaAs (структура С) в случае достаточно большой (33 нм) толщины спейсерного слоя основным механизмом эмиссии носителей из КТ является термическая активация.

Для структуры с InGaAs-КТ в матрице GaAs с тонким (10 нм) спейсерным слоем экспериментально продемонстрирован эффект электронного связывания КТ в вертикальном направлении. Показано, что для такой структуры преобладающим механизмом эмиссии носителей из КТ является туннелирование между точками в пределах одной колонны вертикально связанных КТ.

Авторы выражают благодарность В.В. Николаеву и А.В. Сахарову за помощь в обсуждении результатов, а также А.В. Чунаревой и М.М. Кулагиной за подготовку экспериментальных образцов.

Работа выполнена при поддержке Научной программы СПбНЦ РАН, Российского фонда фундаментальных исследований и Федерального агентства по образованию (ФЦП „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России“).

Список литературы

- [1] V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, A.Y. Egorov, N.A. Maleev. *Quantum Dot Lasers* (Oxford, U.K., Oxford Univ. Press, 2003).
- [2] V. Aroutiounian, S. Petrosyan, A. Khachatryan, K. Touryan. *J. Appl. Phys.*, **89**, 2268 (2001).
- [3] С.А. Блохин, А.В. Сахаров, А.М. Надточий, А.С. Паюсов, М.В. Максимов, Н.Н. Леденцов, А.Р. Ковш, С.С. Михрин, В.М. Лантратов, С.А. Минтаиров, Н.А. Калужный, М.З. Шварц. *ФТП*, **43**, 537 (2009).
- [4] P.W. Fry, I.E. Itskevich, S.R. Parnell, J.J. Finley, L.R. Wilson, K.L. Schumacher, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, M. Al-Khafaji, A.G. Cullis, M. Hopkinson, J.C. Clark, G. Hill. *Phys. Rev. B*, **62**, 16 784 (2000).
- [5] W.-H. Chang, T.M. Hsu, C.C. Huang, S.L. Hsu, C.Y. Lai, N.T. Yeh, T.E. Nee, J.-I. Chyi. *Phys. Rev. B*, **62**, 6959 (2000).
- [6] А.В. Савельев, М.В. Максимов, В.М. Устинов, Р.П. Сейсян. *ФТП*, **40**, 88 (2006).
- [7] P.N. Brunkov, A. Patané, A. Levin, L. Eaves, P.C. Main, Yu.G. Musikhin, B.V. Volovik, A.E. Zhukov, V.M. Ustinov, S.G. Konnikov. *Phys. Rev. B*, **65**, 085 326 (2002).
- [8] P.W. Fry, J.J. Finley, L.R. Wilson, A. Lemaitre, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, M. Hopkinson, G. Hill, J.C. Chark. *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 4344 (2000).
- [9] S.C. McFarlane, J. Barnes, K.W.J. Barham, E.S.M. Tsui, C. Button, J.S. Roberts. *J. Appl. Phys.*, **86**, 5109 (1999).
- [10] D.V. Lang. *J. Appl. Phys.*, **45**, 3023 (1974).

- [11] G. Vincent, A. Chantre, D. Bois. *J. Appl. Phys.*, **50**, 5484 (1979).
- [12] Н.В. Крыжановская, А.Г. Гладышев, С.А. Блохин, М.В. Максимов, Е.С. Семенова, А.П. Васильев, А.Е. Жуков, Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, Д. Бимберг, *ФТП*, **39**, 1230 (2005).
- [13] 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**, 578 (2003).
- [14] E.C. Le Ru, J. Fack, R. Murray. *Phys. Rev. B*, **67**, 245 318 (2003).
- [15] N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, M. Grundmann, N. Kirstaedtler, J. Bohrer, O. Schmidt, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, S.V. Zaitsev, N.Yu. Gordeev, Zh.I. Alferov. *Phys. Rev. B*, **54**, 8743 (1996).

Редактор Т.А. Полянская

Carrier emission mechanism analysis in $p-i-n$ structures with In(Ga)As quantum dots

E.S. Shatalina*, S.A. Blokhin*+, A.M. Nadtochy*+, A.S. Payusov*, A.V. Savelyev*, M.V. Maximov*+, A.E. Zhukov*, N.N. Ledentsov+, A.R. Kovsh×, S.S. Mikhrin×, V.M. Ustinov+

* St. Petersburg Academic University —
Nanotechnology Research and Education Centre,
195220 St. Petersburg, Russia
+ Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia
× Innolume GmbH,
44263 Dortmund, Deutschland

Abstract Carrier emission mechanisms for different types of (In,Ga)As/(Al,Ga)As quantum dots were studied by using photocurrent spectroscopy. Thermal emission is shown to be dominant mechanism for isolated quantum dot layers separated by thick (Al,Ga)As spacers. Tunneling emission becomes more important when the (Al,Ga)As spacers are thin and the electronic coupling of separate quantum dot layers in the vertical direction takes place.