

УДК 621.315.592

ОПТИЧЕСКИЙ ДИАПАЗОН ИЗЛУЧЕНИЯ СТРУКТУР С НАПРЯЖЕННЫМИ КВАНТОВЫМИ ТОЧКАМИ InAs В GaAs

© А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов,
М.В. Максимов, В.М. Устинов, А.Ф. Пацульнников,
Д.Л. Федоров*, Д.Бимберг[†], Ж.И. Алферов

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

*Балтийский государственный технический университет,
198005 Санкт-Петербург, Россия

[†]Institute für Festkörperfphysik, Technische Universität Berlin,
D-10623 Berlin, Germany

(Получена 16 июня 1995 г. Принята к печати 5 июля 1995 г.)

Исследована фотолюминесценция напряженных квантовых точек InAs, созданых *in situ* в матрице GaAs методом молекуларно-пучковой эпитаксии. Обнаружено, что положение линий люминесценции сдвигается в сторону меньших энергий с увеличением эффективной толщины InAs от 1.7 до примерно 2.7 монослоя и остается практически неизменным при дальнейшем осаждении InAs. Несмотря на эффект насыщения зависимости длины волны излучения от количества осажденного InAs, при комнатной температуре достигнуто излучение с длиной волны 1.24 мкм в кванто-размерных гетероструктурах на подложках GaAs. Интегральная интенсивность фотолюминесценции закономерно возрастает в диапазоне толщин 1.7–3 монослоя InAs, после чего наблюдается участок спада интенсивности. Полученные зависимости объясняются в рамках предложенной модели, согласно которой оптический диапазон излучения напряженных квантовых точек с длинноволновой стороны ограничен излучением из точек, размеры которых близки к критическим.

Интерес к расширению диапазона длин волн излучения, достигнутого в приборах на основе (In, Ga)As на подложках GaAs, обусловлен стремлением избежать использование подложек InP и фосфора в активных слоях, а также интегрировать оптические приборы длинноволнового диапазона с хорошо развитой технологией транзисторов на основе GaAs. Так, в будущем для использования в интегральных схемах на кремнии потребуется длина волны излучения больше чем 1.1 мкм, чтобы оптический луч проходил без поглощения через Si-подложку. Достижение диапазона 1.3 мкм, соответствующего окну прозрачности оптического волокна, отвечает требованиям волоконной оптической связи.

Насколько нам известно, наибольшая длина волны лазерного излучения, достигнутая при комнатной температуре в приборах на основе напряженных квантовых ям GaAs/InGaAs, составляет 1.1 мкм [1]. Учитывая ограничения на ширину квантовой ямы, налагаемые критической толщиной, эта величина, как нам представляется, близка к предельной для данного подхода. В работе [2] с помощью использования напряженных короткопериодных сверхрешеток $(\text{InAs})_m(\text{GaAs})_n$ на GaAs при 300 К было получено фотолюминесцентное излучение на 1.16 мкм в бездислокационном материале. Было высказано предположение, что применение низкотемпературного роста позволит продвинуться до 1.23 мкм.

В работе [3] использовался рост толстых (более 1 мкм) слоев $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ (после их полной релаксации) на сложном многоступенчатом буфере, препятствующем прорастанию дислокаций в верхние слои. При 13 К достигнуто излучение на длине волн 1304 нм. Не сообщалось, имеет ли место люминесценция при комнатной температуре. Кроме того, ясно, что подобный метод не пригоден для создания квантово-размерных активных слоев и в лучшем случае позволяет надеяться на создание лазеров на основе двойных гетероструктур.

В последние годы в физику полупроводниковых гетероструктур вошли новые объекты — квантовые проволоки и квантовые точки. Была разработана технология создания *in situ* напряженных островков $(\text{In}, \text{Ga})\text{As}$ в матрице объемного GaAs [4,5]. Переход от двумерного (слоевого) роста $(\text{In}, \text{Ga})\text{As}$ к трехмерному (островковому) росту — при одинаковом количестве осажденного материала — приводит к значительному уменьшению энергии основного состояния. Это позволяет надеяться на возможность продвижения в диапазон длин волн, недоступный для напряженных квантовых ям, вплоть до 1.3 мкм [6].

Наряду с этим оптические приборы на основе напряженных островков $(\text{In}, \text{Ga})\text{As}$, возможно, позволят в полной мере реализовать теоретически предсказанные преимущества систем с размерным квантованием в трех направлениях, связанные с особенностями плотности состояний в 0-мерных системах [7]. Уже сегодня лазеры, созданные на основе напряженных квантовых точек $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x \approx 0.5$), обладают заметно большей характеристической температурой и показывают уникально узкий спектр усиления, что приводит к достижению генерации на одной продольной mode в приборах с широким полоском [8].

В настоящей работе мы исследуем оптический диапазон и особенности фотолюминесценции напряженных квантовых точек InAs в GaAs при 77 и 300 К. Имеется мало сообщений об оптических свойствах подобных структур при большом количестве осажденного InAs (до 6 монослоев) [9], а о фотолюминесценции при комнатной температуре, насколько известно, сообщается впервые.

Структуры выращивались методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) с твердотельными источниками на полуизолирующих подложках GaAs(100). В середину слоя GaAs толщиной 200 нм, ограниченного со стороны подложки и поверхности короткопериодными сверхрешетками AlAs/GaAs (с толщинами слоев AlAs и GaAs — 2 нм), помещался исследуемый слой (массив островков) InAs. Температура осаждения InAs составляла 490 °C, а время роста — приблизительно 6 с на монослой. Эффективная толщина осажденного слоя арсенида ин-

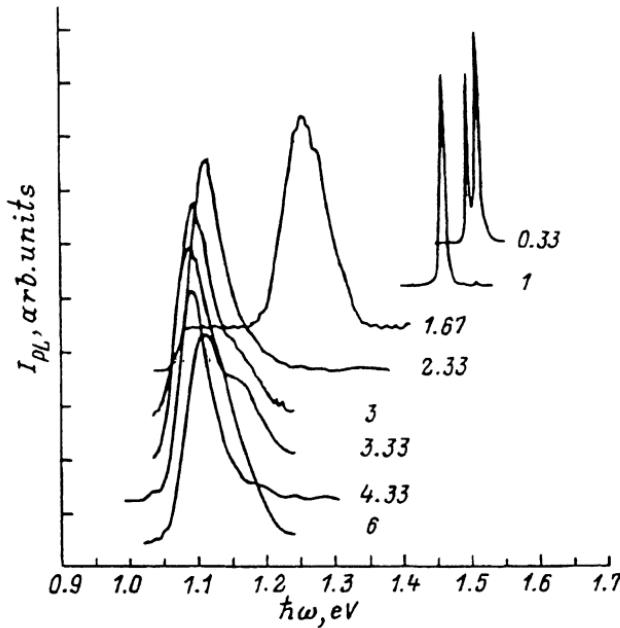


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции при 77 К гетероструктур GaAs/InAs/GaAs с различным количеством осажденного InAs. Толщина слоя Q_{InAs} в долях монослоя указана цифрами у кривых.

дия Q_{InAs} варьировалась от 1/12 до 6 монослоев. Переход от двумерного к трехмерному режиму роста InAs определялся по изменениям в наблюдаемой картине дифракции быстрых электронов на отражение. Согласно нашим данным, он имеет место при Q_{InAs} , равном 1.7 монослоя, что превосходно согласуется с наблюдениями [4,9,10,11].

Фотолюминесценция структур исследовалась при 77 и 300 К, возбуждалась Не-Не-лазером (энергия возбуждающего кванта 1.954 эВ) и регистрировалась охлажденным Ge фотодиодом. На рис. 1 приведены спектры фотолюминесценции (ФЛ) структур с различной эффективной толщиной осажденного арсенида индия Q_{InAs} , записанные при 77 К. В случае, если $Q_{\text{InAs}} < 1$ монослоя, в спектре фотолюминесценции наблюдается узкая линия, расположенная близко к излучению из объемного GaAs [12]. Начиная с Q_{InAs} равного 1.7 монослоя (МС) наблюдается только интенсивная широкая полоса, сильно сдвинутая в длинноволновую область спектра. Типичная ширина (FWHM) составляет 50–60 мэВ.

Энергетическое положение максимума линии ФЛ при 77 К как функция Q_{InAs} приведено на рис. 2. Экспериментальные данные сравниваются со значениями энергии оптического перехода между основными состояниями электронов и тяжелых дырок, рассчитанными в предположении двумерного распределения того же количества материала Q_{InAs} (квантовая яма GaAs/InAs/GaAs). Отчетливо видно, что, как только имеет место формирование трехмерных островков InAs, энергия пика становится значительно меньше расчетной. Энергетическая разница превышает 100 мэВ уже для начальной стадии формирования островков ($Q_{\text{InAs}} = 1.7$ МС) достигая почти 200 мэВ для точек в слое толщиной 2.3 МС.

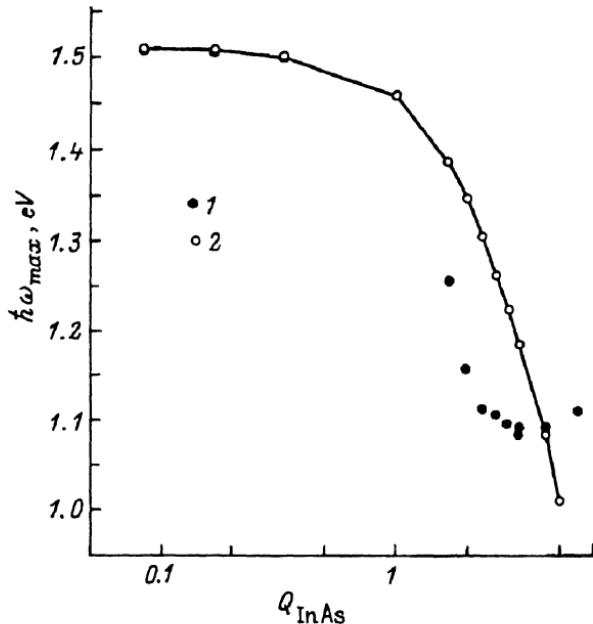


Рис. 2. Спектральное положение максимума линии фотолюминесценции (77 K) в зависимости от количества осажденного InAs, измеренное экспериментально (1) и вычисленное в предположении двумерного распределения InAs (2) и сплошная линия). Значения Q_{InAs} приведены в долях монослоя.

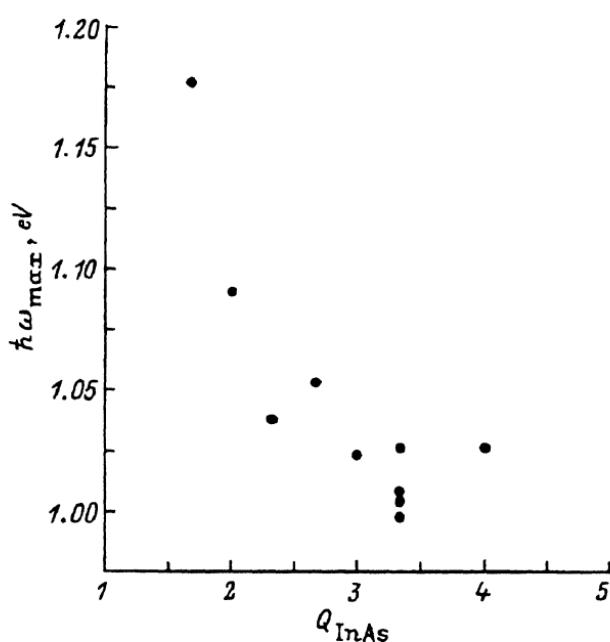


Рис. 3. Спектральное положение максимума линии фотолюминесценции (300 K) в зависимости от количества осажденного InAs. Значения Q_{InAs} приведены в долях монослоя.

Следует отметить, что спектральное положение пика ФЛ от точек в начальной стадии формирования (при $Q_{InAs} = 1.27 \text{ эВ}$) хорошо согласуется с соответствующей величиной, сообщенной в [4, 10]. Хорошее соответствие данных разных авторов, использовавших, очевидно, несколько отличающиеся условия осаждения, подразумевает, что размеры, форма и состояние напряжения начальных островков InAs, по-видимому, мало зависят от условий роста и скорее всего являются свойством, внутренне присущим системе материалов InAs/GaAs. Это подтверждается, например, тем фактом [13], что количество In, необходимое для возникновения трехмерных островков, не зависит от отношения потоков атомов V и III групп (во всяком случае при не слишком высоких температурах осаждения).

Последующее увеличение эффективной толщины осажденного InAs более 2.7 мкм, как видно из рис. 2, не приводит к дальнейшему сдвигу максимума излучения к энергиям, меньшим чем примерно 1.1 эВ. Подобный эффект наблюдается и при комнатной температуре (рис. 3), где энергия излучения не опускалась ниже 1 эВ, что соответствует длине волны в 1.24 мкм. Несмотря на насыщение зависимости длины волн в максимуме ФЛ от Q_{InAs} , нами достигнуто, насколько нам известно, рекордно длинноволновое излучение при 300 К в квантово-размерных гетероструктурах на подложках GaAs, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии.

На рис. 4 приведены типичные спектры ФЛ структур со сформированными квантовыми точками при комнатной температуре. Интенсивность излучения остается достаточно высокой. Сдвиг положения максимума ФЛ при увеличении температуры измерения от 77 до 300 К не показывает систематической зависимости от количества InAs и составляет в среднем 81 мэВ, что близко к изменению ширины запрещенной

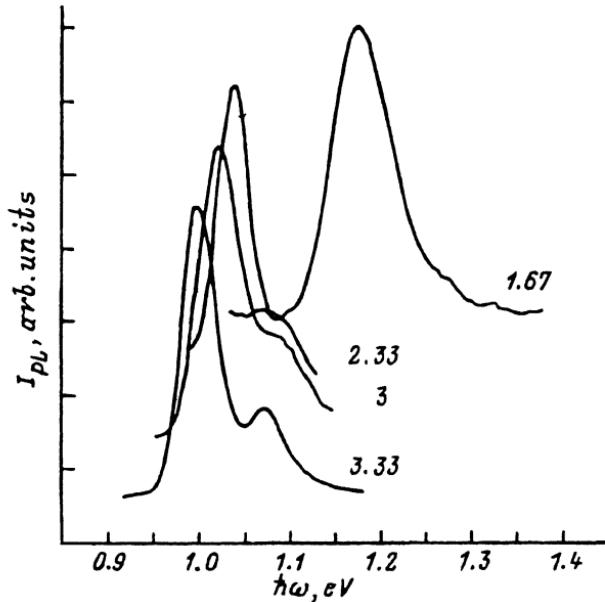


Рис. 4. Спектры фотолюминесценции при $T = 300 \text{ К}$ структур с квантовыми точками InAs в GaAs. Значения Q_{InAs} в долях монослоя указаны цифрами у кривых.

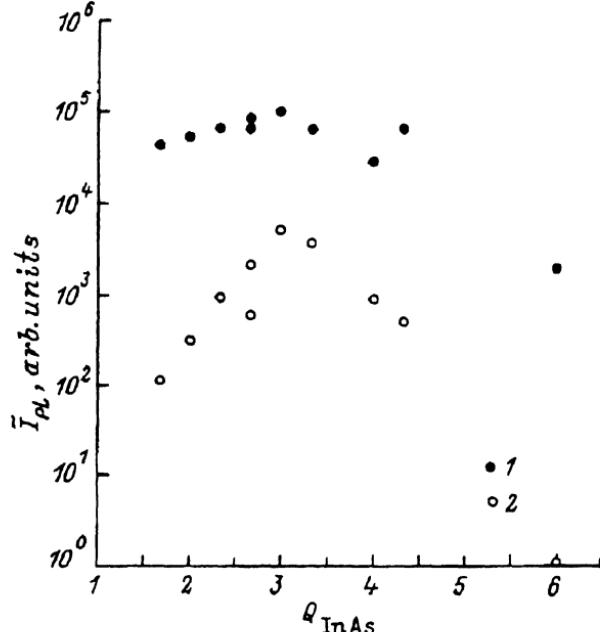


Рис. 5. Зависимость интегральной интенсивности фотолюминесценции от количества осажденного InAs при 77 К (1) и 300 К (2).

зоны GaAs и заметно превышает соответствующую величину для InAs (порядка 63 мэВ) [14].

Зависимость интегральной интенсивности фотолюминесценции I_{PL} при 77 и 300 К от эффективной толщины осажденного InAs представлена на рис. 5. Интенсивность закономерно возрастает при увеличении Q_{InAs} в диапазоне 1.7–3 МС, после чего наблюдается участок спада интенсивности. Значение эффективной толщины осажденного InAs, отвечающей максимуму интенсивности ФЛ (3 МС), совпадает с величиной Q_{InAs} , соответствующей выходу на насыщение зависимости длины волны излучения от Q_{InAs} (2.7–3 МС).

Полученные данные, описывающие зависимость спектрального положения и интегральной интенсивности линии ФЛ в исследованных структурах с массивами квантовых точек InAs от количества осажденного материала, могут быть, как нам представляется, удовлетворительно объяснены в рамках следующей модели. При увеличении эффективной толщины осажденного арсенида индия имеет место увеличение среднего размера островков InAs [11]. Это приводит к смещению максимума совокупной плотности состояний (СПС) массива квантовых точек в сторону меньших энергий. При умеренных уровнях возбуждения вклад в люминесценцию вносят в основном островки большого размера, энергетические состояния которых расположены на низкоэнергетическом краю СПС. Сдвиг максимума СПС с увеличением размеров квантовых точек приводит к соответствующему сдвигу линии ФЛ, что наблюдается при небольших количествах осажденного материала (1.7–2.7 МС).

В то же время островки, размеры которых превышают или близки к размеру, критическому для образования дислокаций, не участвуют

в излучательной рекомбинации из-за большого числа дефектов. Поэтому энергия максимума линии ФЛ не может располагаться ниже, чем энергия оптического перехода в островках критического размера. Этим, как нам кажется, можно объяснить неизменность положения пика ФЛ, обусловленного массивом квантовых точек при больших значениях Q_{InAs} (более 2.7 МС). Если предложенная модель верна, то можно заключить, что существенная часть островков InAs достигает критического размера уже при эффективной толщине осажденного материала, равного 2.7 МС.

Дальнейшее увеличение количества осажденного InAs приводит к тому, что все большая доля островков превышает критический размер. Как результат, наблюдается снижение интегральной интенсивности люминесценции (рис. 5). Следует отметить, что благодаря достаточно большой энергии локализации, термический выброс носителей из квантовых точек не играет существенной роли при низких температурах. Относительно большие расстояния между соседними точками затрудняют туннелирование. Таким образом, практически отсутствует перенос носителей, захваченных бездислокационными точками меньшего размера, в более крупные дислокационные точки, где они могут рекомбинировать безызлучательно. Вследствие этого спад интенсивности люминесценции при 77 К при больших значениях Q_{InAs} не столь значителен, как это наблюдается при комнатной температуре (рис. 5).

Островки InAs могут увеличиваться не только за счет роста размеров отдельных островков, но также в результате объединения (коалесценции) с ближайшими соседями. В работе [11] было найдено, что коалесценция начинает оказывать заметное влияние при эффективных толщинах, превышающих 3 МС. Вероятно, при увеличении объема островка в результате коалесценции его размеры оказываются выше критических. Этот процесс также может быть ответственным за наблюдавшееся поведение люминесценции.

В заключение следует отметить, что напряженные квантовые точки InAs позволяют расширить диапазон длин волн, достижимый в структурах, изготовленных на подложках GaAs, обладая одновременно потенциальными возможностями 0-мерных систем. Несмотря на эффект насыщения зависимости длины волны излучения от количества осажденного InAs, достигнутое излучение 1.24 мкм в квантово-размерных гетероструктурах на арсениде галлия. Можно надеяться, что применение специальных технологий и условий выращивания позволит увеличить критический размер и тем самым продвинуться в сторону больших длин волн, вплоть до 1.3 мкм.

Работа выполнялась при частичной финансовой поддержке программы Министерства науки России «Физика твердотельных наноструктур» (проект 2-001), фонда Volkswagen и программы INTAS (проект 94-1028).

Список литературы

- [1] S.L. Yellen, R.G. Waters, P.K. York, K.J. Beernink, J.J. Coleman. Electron. Lett., **27**, 552 (1991).
- [2] D. Saito, H. Yonezu, T. Kawai, M. Yokozeki, K. Pak. Japan. J. Appl. Phys., **33**, L1205 (1994).
- [3] P. Ribas, V. Krishnamoorthy, R.M. Park. Appl. Phys. Lett., **57**, 1040 (1990).

- [4] P.M. Petroff, S.P. Den Baars. *Superlat. Microstruct.*, **15**, 15 (1994).
- [5] A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, N.N. Ledentsov, M.V. Maksimov, V.M. Ustinov. *Workbook of 8th Int. Conf. on MBE*, Aug.29–Sept. 2, 1994 (Osaka, Japan, 1994) p. 385.
- [6] K. Mukai, N. Ohtsuka, M. Sugawara, S Yamazaki. *J. Appl. Phys.*, **33**, L1710 (1994).
- [7] Y. Arakawa, H. Sakaki *Appl. Phys Lett.*, **40**, 939 (1982).
- [8] N. Kirstaedter, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, S.S. Ruvimov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zn.I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich. *Electron. Lett.*, **30**, 1416 (1994).
- [9] Q. Xie, P. Chen, A. Kalburge, A Nayfonov, T.R. Ramachandran, A. Konkar, A Madhukar. *Workbook of 8th Int. Conf. on MBE*, Aug.29–Sept.2, 1994 (Osaka, Japan, 1994) p. 383.
- [10] J.-M Gerard, J.-B. Jean, J. Lefebvre, J.M. Moison, N. Lebouche, F. Barthe. *Workbook of 8th Int. Conf. on MBE*, Aug.29–Sept.2, 1994 (Osaka, Japan, 1994) p. 381.
- [11] J.M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, O. Vatel. *Appl Phys. Lett.*, **64**, 196 (1994).
- [12] A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, N.N. Ledentsov, M.V. Maksimov, V.M. Ustinov. *Semicond.*, **28**, 363 (1994).
- [13] H. Kitabayashi, T. Waho. *Workbook of 8th Int. Conf. on MBE*, Aug.29–Sept.2, 1994 (Osaka, Japan, 1994) p. 415.
- [14] D.J. Arent, K. Denefle, C. Van Hoof, J. De Boeck, G. Borghs. *J. Appl. Phys.*, **66**, 1739 (1989).

Редактор Т.А. Полянская

Optical emission range for strained InAs quantum dots in GaAs matrix

A.Yu.Egorov, A.E.Zhukov, P.S.Kop'ev, N.N.Ledentsov, M.V.Maximov, V.M.Ustinov, A.F.Tsatsul'nikov, D.L.Fedorov, D.Bimberg†, Zh.I.Alferov*

A.F.Ioffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences,
194021 St.Petersburg, Russia

*Baltic State Engineering University, 198005 St.Petersburg, Russia

†Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Berlin, D-10623 Berlin, Germany

Photoluminescence of heterostructures with strained InAs dots *in situ* formed in GaAs matrix by molecular beam epitaxy has been studied. We have found that photoluminescence peak position shifts to lower energies when InAs effective thickness mounts from 1.7 to ~ 2.7 monolayers then remaining constant regardless of further InAs deposition. Despite the saturation of emission wavelength, the wavelength as high as $1.24 \mu\text{m}$ has been achieved at room temperature in quantum-size heterostructures grown on GaAs substrates. Integrated photoluminescence intensity smoothly increases within the 1.7–3 monolayer range of InAs thickness, passes through a maximum, and then declines. According to our model, the optical emission range for quantum dots is limited by the emission from dots, of which the size is close to a critical one.