

ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ МАССИВОВ ВЕРТИКАЛЬНО СВЯЗАННЫХ НАПРЯЖЕННЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК InAs В МАТРИЦЕ GaAs(100)

© А.Ф. Пацульников, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.Ю. Егоров,
А.Е. Жук, В.М. Устинов, Б.В. Волович, И.Л. Крестников, А.Р. Ковш,
А.В. Сазаров, Н.А. Берт, П.С. Копьев, Д.Бимберг*, Ж.И. Алферов

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

*Institute für Festkörperphysik, Technische Universität Berlin,

D-10623 Berlin, Germany

(Получена 6 декабря 1995 г. Принята к печати 7 декабря 1995 г.)

Исследована фотолюминесценция массивов вертикально связанных напряженных квантовых точек InAs, создаваемых *in situ* в матрице GaAs методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Изучена зависимость положения линии квантовых точек и смачивающего слоя InAs в спектрах фотолюминесценции и спектрах возбуждения фотолюминесценции от числа циклов осаждения InAs и средней толщины прослойки GaAs. Полученная зависимость описывается в рамках феноменологической модели, предполагающей, что сдвиг полосы фотолюминесценции обусловлен изменением энергии основного состояния, вызванным слабым взаимодействием между носителями, локализованными в туннельно-связанных точках.

В последние годы большой интерес в физике полупроводников связан с созданием и изучением свойств гетероструктур с квантовыми точками (КТ) в матрице широкозонного материала. Одним из методов создания в процессе эпитаксии *in situ* таких массивов является спонтанная морфологическая трансформация напряженного слоя (In, Ga)As, выращенного на поверхности GaAs(100), в когерентные островки, выращиваемые затем GaAs [1]. В результате трансформации на тонком слое InAs («смачивающем» слое) образуются квантовые точки, имеющие небольшие латеральные размеры $\sim 140 \text{ \AA}$ и высоту $\sim 50 \text{ \AA}$. Для ряда применений в оптоэлектронике необходимо иметь возможность получать массивы туннельно-связанных КТ, например для возможности транспорта носителей или для увеличения силы осциллятора экситонных переходов. Такие массивы позволяют повысить перекрытие световой волны с активной областью лазера, что приводит к возрастанию усиления и снижению порогового тока. В предыдущей работе [2] мы предложили способ, позволяющий управляемо изменять форму и

размеры КТ путем мультиплицирования плоскостей с квантовыми точками в вертикальном направлении. Из анализа результатов исследований таких структур с помощью просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) следует, что при выращивании нескольких рядов КТ, разделенных достаточно широкими (более 100 \AA) слоями GaAs, образование новых островков происходит на участках, где уже имеются сформированные КТ предыдущего ряда [3,4]. При таком подходе, однако, основные характеристики фотолюминесценции (ФЛ), такие как время жизни излучательной рекомбинации, время захвата и релаксации неравновесных носителей, не изменяются [5]. Мы предложили способ получать туннельно-связанные КТ, производя новый цикл осаждения InAs до того, как КТ первого слоя полностью заросли GaAs. В изображениях, полученных с помощью ПЭМ, структур, выращенных путем трехкратного осаждения InAs средней толщиной 1.7 монослоя (МС), разделенных прослойками GaAs толщиной 25 \AA , видно образование новых объектов — последовательности туннельно-связанных островков InAs, расположенных друг над другом (см. вставку на рис. 1). Типичные размеры такого объекта составляют $\sim 170 \text{ \AA}$ в основании и $\sim 115 \text{ \AA}$ в высоту [2].

В этой работе мы исследовали особенности ФЛ таких структур, связанные с изменением числа циклов осаждения InAs и толщины промежуточного слоя GaAs. Предложено феноменологическое описание смещения линии ФЛ КТ и смачивающего слоя при увеличении числа осажденных слоев InAs.

Исследованные структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках GaAs(100). Технологические режимы описаны в работах [2]. Фотолюминесценция исследовалась при температуре 77 К, возбуждалась He-Ne-лазером (энергия возбуждения 1.954 эВ , мощность $\sim 20 \text{ Вт/см}^2$) и импульсным лазером на парах азота (длина волны излучения $\lambda = 337 \text{ нм}$, мощность в импульсе $\sim 300 \text{ кВт/см}^2$, длительностью импульса $\sim 8 \text{ нс}$). Спектры возбуждения снимались с помощью лампы накаливания с плотностью накачки $\sim 10^{-6} \text{ Вт/см}^2$, свет которых был пропущен через монохроматор. ФЛ регистрировалась фотоэлектронным умножителем и охлаждаемым Ge-фотодиодом.

На рис. 1, а приведены спектры ФЛ структур, содержащих один (QD1), два (QD2), три (QD3) и четыре (QD4) слоя InAs толщиной 1.7 МС, разделенных прослойками GaAs толщиной 25 \AA . Как было показано в работе [6], осаждение второй плоскости InAs, отделенной от предыдущей прослойкой GaAs, ширина которой не превышает высоту КТ, приводит к вертикальному массопереносу InAs. Это вызывает расщепление КТ и формирование двух КТ InAs, расположенных друг над другом (см. вставку на рис. 1). Электронные и дырочные состояния в соседних островках являются связанными, что приводит к длинноволновому сдвигу ФЛ КТ после осаждения нескольких слоев InAs.

Увеличение толщины слоя GaAs приводит к смещению линии ФЛ в коротковолновую область (рис. 1, б). Это связано с уменьшением взаимодействия между носителями, локализованными в соседних КТ. При изменении толщины слоя GaAs от ~ 10 до $\sim 25 \text{ \AA}$ смещение линии ФЛ не слишком существенно, однако увеличение толщины GaAs

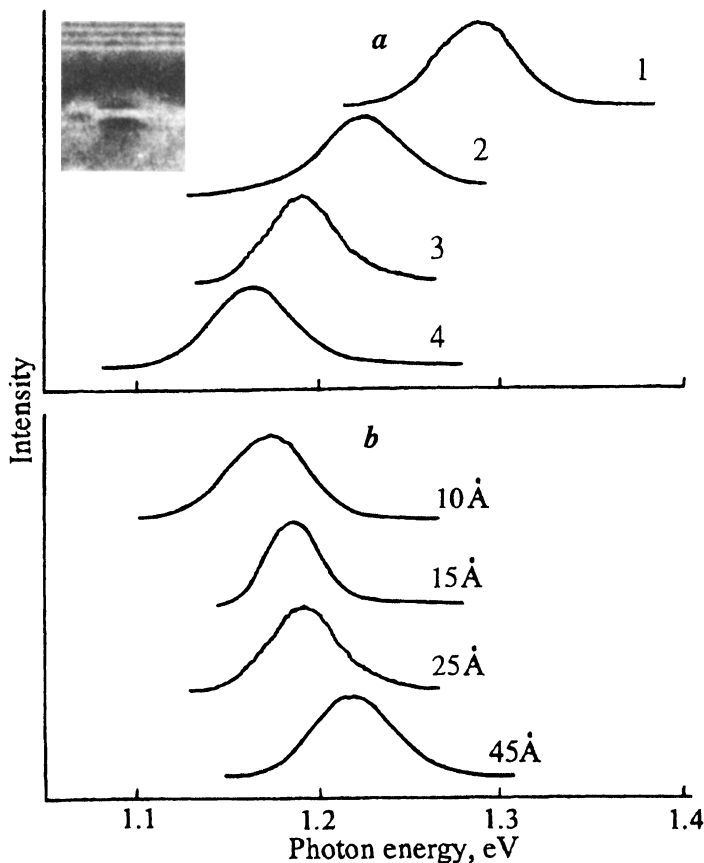


Рис. 1. ФЛ исследованных структур при $T = 77$ K и возбуждении He-Ne-лазером. *a* — спектры ФЛ структур QD1 (1), QD2 (2), QD3 (3), QD4 (4); толщина прослойки GaAs — 25 Å; на вставке — изображение поперечного сечения КТ при зарастании ее тонким слоем GaAs, полученное методом просвечивающей электронной микроскопии. *b* — положение линии ФЛ для структуры QD3 при разных (указанных) значениях ширины слоя GaAs.

до ~ 45 Å вызывает значительный сдвиг (~ 40 мэВ) в область больших энергий. Однако положение максимума линии не достигает положения, характерного для одного цикла осаждения InAs.

Увеличение количества рядов КТ приводит к изменениям в характерных особенностях спектров возбуждения ФЛ, связанных со смачивающим слоем. На рис. 2 показаны спектры возбуждения линии ФЛ исследованных образцов. В спектре наблюдаются две линии, WL_1 и WL_2 , связанные с генерацией электронно-дырочных пар в смачивающем слое [7]. Увеличение числа рядов КТ (рис. 2, *a*), так же как и уменьшение ширины слоя GaAs (рис. 2, *b*), приводит к смещению этих линий в длинноволновую сторону. Такое поведение аналогично поведению полос ФЛ КТ (рис. 1) и может быть вызвано туннельным взаимодействием между уровнями размерного квантования в квантовых ямах, обусловленных соседними слоями InAs. Две линии в спектрах возбуждения могут быть связаны с возбуждением тяжелого и легкого экситона. С другой стороны, эти полосы могут быть обусловле-

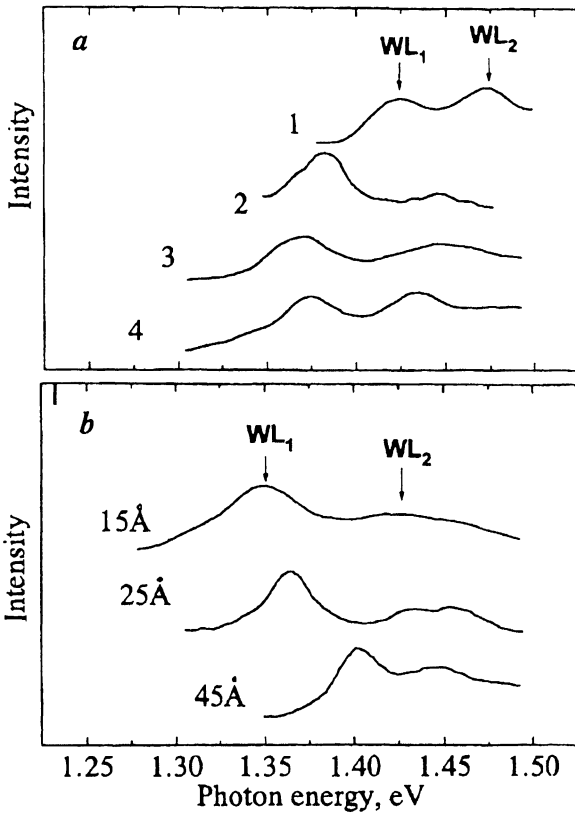


Рис. 2. Спектры возбуждения ФЛ при $T = 77$ K: *a* — спектры возбуждения структур QD1 (1), QD2 (2), QD3 (3), QD4 (4). *b* — спектры возбуждения структуры QD3 при разных (указанных) значениях толщины прослойки GaAs.

ны сложной структурой смачивающего слоя [8,9]. На рис. 3 приведены спектры возбуждения структуры QD3, снятые при разных энергиях регистрации. Как видно из этого рисунка, основной вклад в возбуждение коротковолновой части линии ФЛ вносит полоса WL_2 , а в возбуждение длинноволновой части спектра — полоса WL_1 . Смещение линий WL_1 и WL_2 в длинноволновую сторону при увеличении энергии кванта регистрируемой ФЛ может быть связано с увеличением эффективной толщины слоя InAs. Транспорт неравновесных носителей по смачивающему слою частично затруднен неоднородностью по толщине [9], поэтому рекомбинация превосходит преимущественно через КТ, находящиеся вблизи места рождения электронно-дырочной пары. Таким образом, согласно данным ФЛ можно сделать вывод, что КТ большего размера расположены на участках с более тонким покрытием InAs, а КТ меньшего размера — на участках с более толстым слоем InAs. Это в свою очередь вызвано разным количеством InAs, перешедшим из смачивающего слоя в КТ после начала процесс трансформации слоя InAs в островки.

При возбуждении светом с энергией кванта выше запрещенной зоны GaAs увеличение интенсивности возбуждения приводит к появлению полос ФЛ, связанных с рекомбинацией носителей в смачивающем

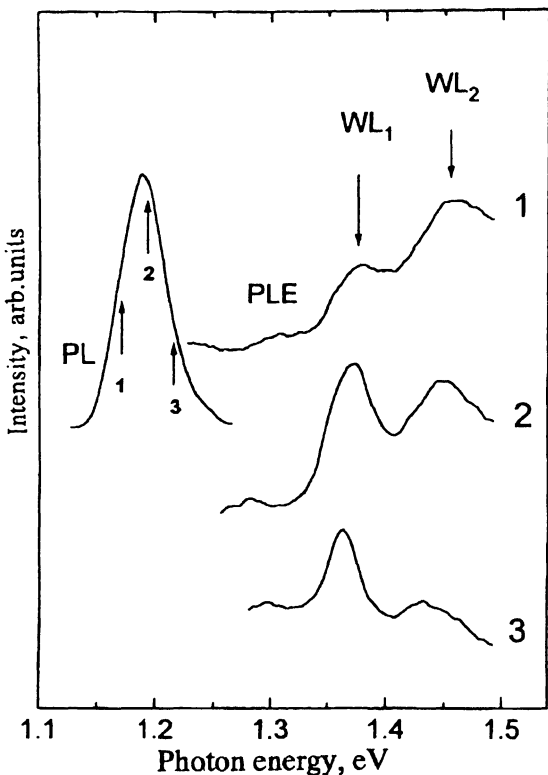


Рис. 3. Спектр ФЛ (PL) и спектры возбуждения ФЛ (PLE, 1-3) структуры QD3, снятые соответственно в точках 1-3 по контуру линии ФЛ при $T = 77$ К.

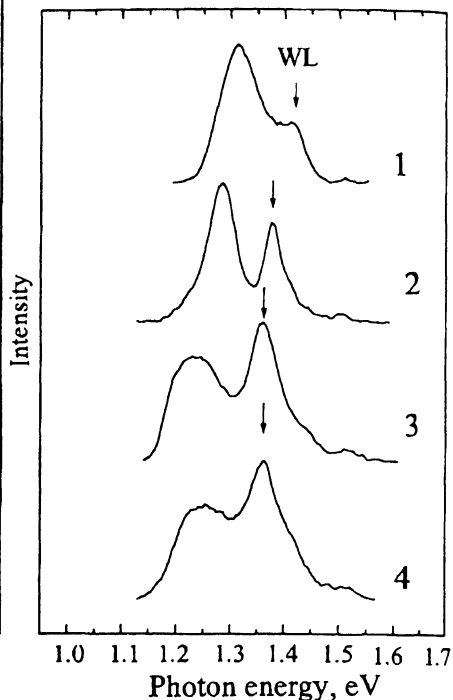


Рис. 4. Спектры ФЛ структур QD1 (1), QD2 (2), QD3 (3), QD4 (4) при возбуждении импульсным лазером на парах азота. $T = 77$ К. Плотность мощности возбуждения, kBt/cm^2 : 1 — 300, (2-4) — 160.

слое. На рис. 4 показаны спектры ФЛ структур QD1-QD4 при накачке импульсным лазером на парах азота. При одинаковых плотностях возбуждения полоса WL, обусловленная смачивающим слоем, слабо выражена в спектре образца QD1 и интенсивна для образцов QD2-QD4. С увеличением числа циклов осаждения InAs линия WL смещается в длинноволновую сторону, что свидетельствует об увеличении энергии локализации электронов и дырок в смачивающем слое.

Для лазерных применений важно максимально разделить энергетические уровни в КТ и в двумерном (2D) и трехмерном (3D) континууме (GaAs и смачивающий слой), для того чтобы предотвратить термический выброс носителей из КТ. Нами было проведено исследование влияния на положение энергетических уровней в КТ и смачивающем слое тонкого слоя AlAs толщиной ~ 1 МС, выращенного перед осаждением слоя КТ, и зарощенного затем одним монослоем GaAs (см. вставку на рис. 5). Это приводит к появлению сильной несимметричности узкой квантовой ямы и, соответственно, к резкому уменьшению энергии локализации носителей.

На рис. 5 показаны спектры ФЛ и спектры возбуждения ФЛ структур с одной и тремя плоскостями КТ. Как видно, осаждение слоя

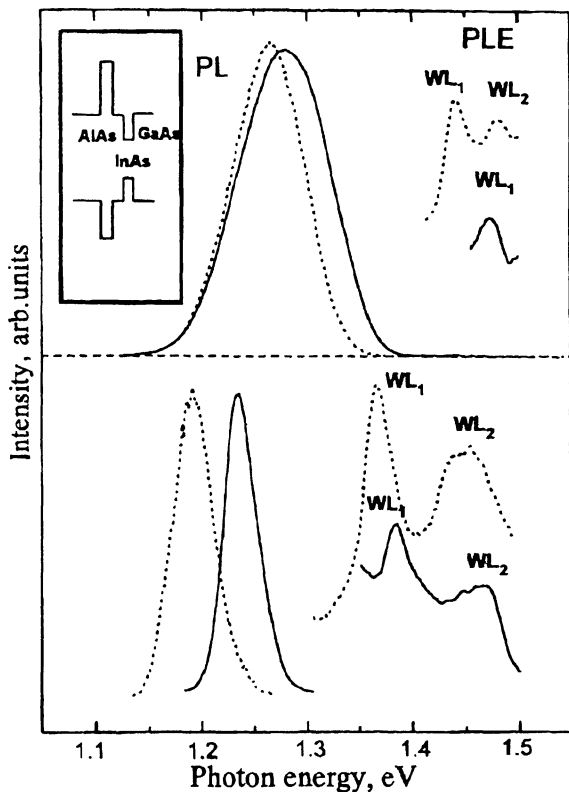


Рис. 5. Спектры ФЛ (PL) и спектры возбуждения ФЛ (PLE) образца с эффективной толщиной InAs 5 \AA без подслоя AlAs (штриховая линия) и с подслоем AlAs (сплошная линия). Вверху — образец с одним слоем точек, внизу — с тремя слоями точек. Возбуждение ФЛ He-Ne-лазером.

AlAs приводит для обеих структур к смещению линий, связанных с КТ и смачивающим слоем, в коротковолновую сторону. При этом линия WL_2 в спектре образца с эффективной толщиной слоя InAs 5 \AA отсутствует, что свидетельствует об исчезновении связанных состояний. Нами была проведена оценка толщины смачивающего слоя в модели эффективной массы на основании результатов оптических исследований. Для этого смачивающий слой аппроксимировался прямоугольной ямой. Эффективные массы электронов и дырок в яме считались равными эффективным массам в GaAs [10]. В результате проведенных расчетов было получено, что линия WL_1 вызвана рекомбинацией в слое с эффективной толщиной $\sim 4.5 \text{ \AA}$. Энергия связи электронов и дырок составляют ~ 40 и ~ 35 мэВ соответственно. Влияние барьера на положение уровней носителей в смачивающем слое было оценено с помощью аналитической зависимости для уровня в δ -яме в присутствии потенциального барьера. Проведенные расчеты свидетельствуют об исчезновении связанных состояний электронов и дырок, обуславливающих линию ФЛ WL_2 . Для слоя с эффективной толщиной $\sim 1.5 \text{ МС}$ сдвиг уровней размерного квантования приводит к увеличению энергии оптического перехода на ~ 50 мэВ. Полученные результаты со-

гласуются с экспериментальными данными, дающими для данного перехода сдвиг ~ 35 мэВ. Таким образом, осаждение слоя AlAs перед формированием КТ позволяет непосредственно изменять энергетический спектр носителей в смачивающем слое.

Рассмотрим смещение полосы ФЛ КТ с увеличением числа плоскостей КТ, связанное с взаимодействием между состояниями носителей, локализованных в разных совмещенных КТ. Предположим, что носители сильно локализованы в области КТ и протяженность их волновых функций в направлении оси роста меньше толщины GaAs, т.е. взаимодействие между энергетическими состояниями соседних островков мало. Это согласуется с результатами теоретических исследований [11, 12], в которых показано, что волновые функции электронов и, особенно, дырок сильно локализованы внутри КТ. Тогда в рамках теории возмущений [13], считая, что существует только взаимодействие между носителями, локализованными в КТ соседних слоев, для структуры с n плоскостями КТ положение основного уровня энергии электронов и дырок можно получить из равенства нулю следующего определителя n -ого порядка:

$$\begin{vmatrix} E_{1,e(h)} - E_{n,e(h)} & \Delta & 0 & 0 & 0 & \dots \\ \Delta & E_{1,e(h)} - E_{n,e(h)} & \Delta & 0 & 0 & \dots \\ 0 & \Delta & E_{1,e(h)} - E_{n,e(h)} & \Delta & 0 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{vmatrix} = 0, \quad (1)$$

где $E_{1,e(h)}$ — энергия нижнего уровня электрона (дырки) в одном слое КТ, Δ — матричный элемент, описывающий взаимодействие носителей, локализованных в соседних КТ. Для $n \leq 4$ энергия нижнего уровня описывается выражением

$$E_{n,e(h)} \simeq E_{1,e(h)} - \sqrt{n-1} \Delta_{e(h)}, \quad (2)$$

и смещение основного уровня энергии при осаждении нескольких слоев КТ

$$\Delta E_n = E_{n,e(h)} - E_{1,e(h)} \simeq -\Delta_{e(h)} \sqrt{n-1}, \quad (3)$$

где Δ_e, Δ_h — матричные элементы для электронов и дырок.

Аппроксимируем экспериментальную зависимость сдвига максимума линии ФЛ КТ и смачивающего слоя от числа осажденных слоев InAs ($\Delta \hbar \omega_m(n)$), считая, что сдвиг обусловлен изменением энергии основного состояния электронов и дырок.

Тогда

$$\Delta \hbar \omega_m \simeq -(\Delta_e + \Delta_h) \sqrt{n-1}. \quad (4)$$

На рис. 6 показаны примеры аппроксимации экспериментальных зависимостей $\Delta \hbar \omega_m(n)$ с помощью выражения (4) при $(\Delta_e + \Delta_h) \simeq 35$ мэВ. Как видно из этого рисунка, расчетная кривая хорошо описывает смещение как пиков ФЛ КТ и смачивающего слоя, так и длинноволновой линии в спектре возбуждения. Как следует из выражения (7), $\Delta E_2 = \Delta_e + \Delta_h$. Из зависимости $\Delta \hbar \omega_m(n)$ для спектров возбуждения следует $\Delta E_2 \simeq 42$ мэВ, а из смещения линии ФЛ КТ — $\Delta E_2 \simeq 30$ мэВ,

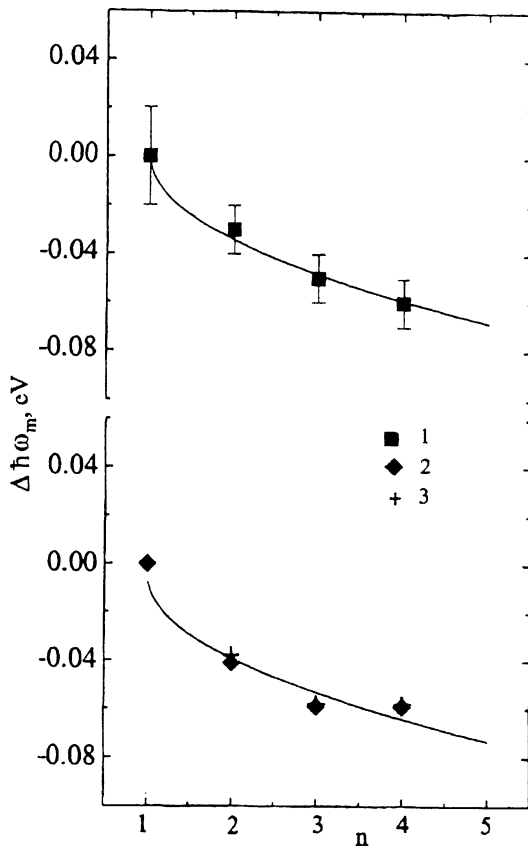


Рис. 6. Экспериментальные (точки) и расчетные согласно (4) (линии) зависимости $\Delta \hbar \omega_m(n)$. 1 — максимум линии ФЛ КТ, 2 — положение линии WL_1 в спектре возбуждения ФЛ КТ, 3 — максимум линии ФЛ смачивающего слоя WL.

что хорошо согласуется с величиной, полученной в результате аппроксимации. Следовательно, сдвиг линии ФЛ КТ с увеличением количества осажденных слоев InAs, разделенных тонкими слоями GaAs ($\sim 25 \text{ \AA}$), можно описать, предположив, что он обусловлен изменениями энергии локализации, вызванным слабым взаимодействием между носителями, локализованными в совмещенных КТ.

Таким образом, в данной работе приведены результаты исследования ФЛ массивов вертикально связанных КТ InAs в матрице GaAs (100). Показано, что изменение числа слоев КТ и расстояния между ними приводит к значительным изменениям в положении линии ФЛ и в спектрах возбуждения. Из анализа спектров возбуждения ФЛ следует, что КТ меньшего размера расположены на участках смачивающего слоя большей толщины. Предложена феноменологическая модель, описывающая смещение полосы ФЛ с ростом числа слоев КТ.

Работа в разных частях поддерживалась Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 93-02-02370), Международным научным фондом и грантом INTAS-94-1028.

- [1] P.M. Petroff, S.P. Den Baars. Superlatt. Microstr., **15**, 15 (1994).
- [2] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов, А.Ф. Цацульников, Н.А. Берг, А.О. Косогов, Д. Бимберг, Ж.И. Алферов. ФТП, **30**, 1682 (1996).
- [3] L. Goldstein, F. Glass, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G.Le. Roux. Appl. Phys. Lett., **47**, 1099 (1985).
- [4] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, N.P. Kobayashi. Phys. Rev. B, **75**, 2542 (1995).
- [5] D. Bimberg, N.N. Ledentsov, N. Kirstaedter, O. Schmidt, M. Grundmann, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, A.O. Kosogov, U. Gosele, J. Heydenreich. Proc. Int. Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM'95) (Osaka, Aug., 1995) (1996) p. 716.
- [6] N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Bohrer, O. Schmidt, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, A.I. Borovkov, A.O. Kosogov, S.S. Ruvimov, U. Gosele, J. Heydenreich. Phys. Rev. B (to be published).
- [7] R. Heitz, M. Grundmann, N.N. Ledentsov, L. Eckey, M. Veit, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Appl. Phys. Lett., **68**, 361 (1996).
- [8] N.N. Ledentsov, P.D. Wang, C.M. Sotomayor-Torres, A.Yu. Egorov, M.V. Maximov, V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev. Phys. Rev. B, **50**, 12 171 (1994).
- [9] А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, С.С. Рувимов, В.М. Устинов, В.В. Комин, И.В. Кочнев, П.С. Копьев, Д. Бимберг, Ж.И. Алферов. ФТП, **30**, 1793 (1996).
- [10] M.P.C.M. Krijn. Semicond. Sci. Technol., **6**, 27 (1991).
- [11] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, O. Schmidt, R. Heitz, J. Bohrer, D. Bimberg, V.M. Ustinov, V.A. Shchukin, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, S. Zaitsev, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich. 7th Int. Conf. Modulated Semiconductor Structures (MSS-7) (Madrid, Spain, 1995) [Sol. St. Electron. (to be published)].
- [12] M. Grundmann, O. Stier, D. Bimberg. Phys. Rev. B, **52**, 11 969 (1995).
- [13] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Квантовая механика (1989) т. 3, с. 167.

Редактор Л.В. Шаронова

Photoluminescence of arrays of vertically-coupled strained quantum dots InAs in GaAs(100) matrix

*A.F. Tsatsul'nikov, N.N. Ledentsov, M.V. Maximov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, V.M. Ustinov, B.V. Volovik, I.L. Krestnikov, A.R. Kovsh, A.V. Sakharov, N.A. Bert, P.S. Kop'ev, D. Bimberg**, Zh.I. Alferov

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

*Institute für Festkörperphysik, Technische Universität Berlin, D-10623 Berlin, Germany

We studied photoluminescence of arrays of vertically-coupled strained InAs quantum dots, formed *in situ* in GaAs matrix using a molecular-beam epitaxy. We found a strong dependence of photoluminescence peak and photoluminescence excitation peak energies characteristic to quantum dots and wetting layer states on the number of InAs deposition cycles and on the average thickness of the GaAs separating layer. The dependence is described by the phenomenological model suggesting that the shift of the photoluminescence line is caused by the change of the ground state energy in quantum dots due to the tunnelling-induced weak interaction of carriers.