

Анализ процессов термической эмиссии электронов из массивов InAs квантовых точек в слое объемного заряда GaAs-матрицы

© А.В. Бакланов*[¶], А.А. Гуткин*, П.Н. Брунков*[•], А.Ю. Егоров*[•], С.Г. Конников*

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

[†] Институт физики, нанотехнологий и телекоммуникаций,
Санкт-Петербургский государственный политехнический университет,
195251 Санкт-Петербург, Россия

[•] Санкт-Петербургский физико-технологический научно-образовательный центр Российской академии наук,
195220 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 27 января 2014 г. Принята к печати 3 февраля 2014 г.)

Проведен детальный анализ полученных методом адмиттанс-спектроскопии экспериментальных данных по температурной зависимости скорости эмиссии электронов с основного состояния InAs квантовых точек в слое объемного заряда барьера Шоттки на матрице *n*-GaAs. Эти экспериментальные результаты описываются в одномерной модели термически активированного туннелирования с участием виртуальных состояний. При этом вид потенциального барьера, который должны преодолевать эмитируемые электроны, подбирается с помощью введения эффективной концентрации мелких доноров так, чтобы величины энергии связи электронов в квантовых точках были близки к найденным из результатов измерений вольт-фарадных характеристик исследованных структур. Полученные таким образом сечения захвата электронов растут с увеличением энергии связи основного состояния (размера квантовых точек). Для InAs квантовых точек со средним латеральным размером 9 и 20 нм значения сечений захвата лежат соответственно в диапазонах $1 \cdot 10^{-14} - 2 \cdot 10^{-13}$ и $4 \cdot 10^{-12} - 2 \cdot 10^{-11}$ см².

1. Введение

Полупроводниковые гетероструктуры с самоорганизованными квантовыми точками (КТ) могут быть использованы в качестве активных элементов эффективных источников света, лазеров, фотоэлектрических преобразователей энергии излучения, элементов памяти [1–4]. Термическая эмиссия носителей заряда, захваченных на КТ, в разрешенные зоны полупроводниковой матрицы существенно влияет на параметры таких гетероструктур. Исследование механизмов этой эмиссии, определение ее скоростей и различных факторов, влияющих на их величину, является необходимым условием совершенствования полупроводниковых приборов с КТ.

Для самоорганизованных InAs КТ, сформированных в матрице GaAs, термическая эмиссия носителей заряда изучалась в работах [5–13]. Было показано, что в слое объемного заряда полупроводниковой структуры с потенциальным барьером этот процесс происходит путем термически активированного туннелирования через потенциальный барьер, разделяющий захваченный КТ носитель заряда и разрешенную зону матрицы. При этом предполагалось, что в качестве промежуточного состояния в этом процессе выступают возбужденные состояния КТ [5,9,11,12], состояния в смачивающем слое [13] или виртуальные состояния [6,10]. Однако из анализа экспериментальных зависимостей скорости термической эмиссии от температуры в этих моделях вычислялись только положение энергетического уровня носителя тока в КТ и энергия активации эмиссии, а величина эффективного сечения захвата носителей

и ее зависимость от энергии связи (размера КТ) не определялись.

В данной работе проведен детальный анализ полученных методом адмиттанс-спектроскопии экспериментальных данных по температурной зависимости скорости эмиссии электронов с основного состояния InAs КТ в зону проводимости *n*-GaAs матрицы в слое объемного заряда барьера Шоттки, сформированного на поверхности структуры. Экспериментальные данные анализируются на основе одномерной модели термически активированного туннелирования с участием виртуальных состояний, которая позволяет оценить значения сечений захвата электронов на КТ.

2. Образцы и методика измерений

Исследованные структуры представляли собой барьеры Шоттки на эпитаксиальных слоях *n*-GaAs ($n \approx 2 \cdot 10^{16}$ см⁻³), выращенных на плоскости (100) и содержащих один слой InAs КТ. Для экспериментов использовались два типа образцов (А и В) с разными размерами самоорганизованных КТ, сформированных при эффективной толщине InAs-слоя, равной 4 и 1.8 монослоя. Плотность КТ в образце А составляла $(3.5 \pm 0.5) \cdot 10^{10}$ см⁻², и средний латеральный размер КТ равнялся 20 нм. В образце В плотность КТ составляла $(5 \pm 2) \cdot 10^{10}$ см⁻², а средний латеральный размер был 9 нм. Высота КТ InAs лежала в диапазоне 3–5 нм.

Массив КТ был вставлен в матрицу GaAs так, чтобы с увеличением обратного напряжения V_{rev} на барьере Шоттки слой объемного заряда барьера мог захватить этот массив. После этого в некотором диапазоне напряжений V_{ver} расширения области объемного заряда

[¶] E-mail: baklanov@mail.ioffe.ru

с увеличением обратного смещения практически не происходило, так как изменение заряда в ней осуществлялось за счет опустошения КТ от захваченных носителей заряда [8]. При этом слой КТ по-прежнему находился вблизи границы области объемного заряда, а квазиуровень Ферми, определяющий заполнение КТ, совпадал с уровнем Ферми в квазинейтральной части матрицы и мог сдвигаться по энергетическому спектру КТ за счет изменения напряжения смещения V_{rev} на барьере Шоттки. Анализ вольт-фарадных характеристик такой системы показал, что средняя энергия связи основного состояния КТ в образце А приблизительно составляла 140 мэВ [8], а в образце В — 80 мэВ. Из-за разброса параметров КТ дискретные уровни этих состояний были распределены в некотором диапазоне энергий, описываемом гауссианом со стандартным отклонением 20 и 35 мэВ соответственно для образцов А и В.

Скорость эмиссии носителей заряда из КТ была определена методом адмиттанс-спектроскопии [14] при различных напряжениях обратного смещения и характеризовала электронные состояния массива КТ, с энергией вблизи квазиуровня Ферми, т.е. состояния КТ, характеризующихся определенными размерами и набором других параметров. Частота зондирующего переменного напряжения (f) изменялась в диапазоне $10^4 - 10^6$ Гц, при этом его амплитуда составляла 10 мВ.

3. Модель для анализа экспериментальных температурных зависимостей скорости эмиссии электронов

Полная высота энергетического барьера для термически активированной туннельной эмиссии электронов из КТ, находящейся в слое объемного заряда барьера Шоттки, при различных напряжениях смещения равна энергии связи этого носителя (E_0), т.е. энергетическому расстоянию зондируемых энергетических уровней до дна зоны проводимости матрицы на внешней границе массива КТ, а его форма $E(x)$ для ненапряженной КТ, захватившей только один носитель, соответствует слою истощения. Тогда для однородно легированного в этом слое полупроводника в одномерной модели в приближении полного истощения

$$E(x) = \frac{2\rho q}{\epsilon}(w-x)^2 + E_F, \quad (1)$$

где q — заряд электрона, ϵ — диэлектрическая постоянная матрицы (GaAs), $\rho = qN_d$ — плотность заряда ионизированных мелких доноров, N_d — концентрация мелких доноров, E_F — энергия уровня Ферми в нейтральной матрице, отсчитываемая от дна зоны проводимости, w — толщина слоя объемного заряда от квантовых точек до границы нейтральной матрицы, x — текущая координата, отсчитываемая от плоскости квантовых точек (рис. 1).

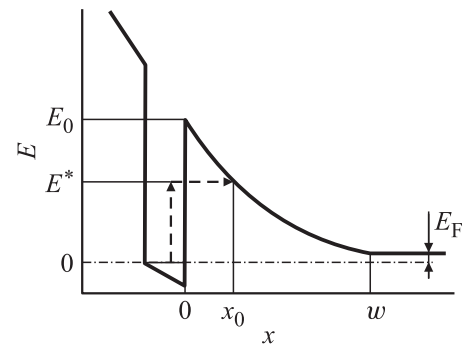


Рис. 1. Модель энергетического барьера и процесс эмиссии электрона из КТ.

При термически активированной туннельной эмиссии вероятность вылета электрона e_n через виртуальное состояние, лежащее на величину E^* выше его основного состояния, определяется произведением вероятностей термической активации и туннелирования (в ВКБ-приближении). Поэтому скорость эмиссии e_n может быть представлена в виде

$$e_n = A(T) \exp\left(-\frac{E^*}{k_B T}\right) \times \exp\left(-\frac{2}{\hbar} \int_0^{x_0(E^*)} \sqrt{2m_n^*[E(x) - E^*]} dx\right). \quad (2)$$

Здесь, как и в случае эмиссии с глубоких центров,

$$A(T) = \langle V_n \rangle \sigma_n^\infty N_c; \quad \langle V_n \rangle = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m_n^*}},$$

$$N_c = 2 \left(\frac{m_n^* k_B T}{2\pi \hbar^2}\right)^{3/2}, \quad (3)$$

где $x_0(E^*)$ — длина пути туннелирования, k_B — постоянная Больцмана, \hbar — постоянная Планка, m_n^* — эффективная масса электрона в матрице, $\langle V_n \rangle$ — тепловая скорость свободных электронов, σ_n^∞ — сечение захвата при бесконечно высокой температуре, N_c — эффективная плотность состояний в зоне проводимости.

Величина e_n имеет максимум при некотором значении E^* , которое равно энергии активации E_a , характеризующей процесс термически активированного туннелирования. Определяя энергию активации E_a из этого условия, можно получить уравнение, связывающее высоту барьера E_0 и энергию активации E_a :

$$\ln\left(\sqrt{\frac{E_0 - E_F}{E_a - E_F}} \left(1 + \sqrt{1 - \frac{E_a - E_F}{E_0 - E_F}}\right)\right) = \frac{q\hbar}{k_B T} \sqrt{\frac{\pi N_d}{\epsilon m_n^*}}, \quad (4)$$

откуда энергия активации E_a :

$$E_a(T) = 4 \frac{\exp\left(\frac{2\beta}{T}\right)}{\left(1 + \exp\left(\frac{2\beta}{T}\right)\right)^2} (E_0 - E_F) + E_F,$$

$$\beta = \frac{q\hbar}{k_B} \sqrt{\frac{\pi N_d}{\epsilon m_n^*}}. \quad (5)$$

Выражения (1), (2) и (5) могут быть использованы для вычисления скорости термически активированного туннелирования электрона из ненапряженной КТ, захватившей только один электрон. Однако их применение при аппроксимации экспериментальных данных для исследуемых нами образцов А и В при $N_d = 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ приводит к величинам энергии связи основного состояния, которые оказывались в 1.5 и более раз меньше величин, полученных из анализа вольт-фарадных характеристик этих структур [8].

Такое различие связывается нами с сильным отличием формы потенциального барьера, описываемой выражением (1) при $N_d \approx 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$, от реально существующей в исследованных структурах даже в случае, когда КТ связывает в исходном состоянии перед эмиссией один электрон, что, по-видимому, имеет место при самых больших напряжениях смещения, когда сигнал адмиттанс-спектроскопии мал, т.е. заселение КТ электронами мало.

Его причиной являются механические напряжения КТ и вблизи ее, вызывающие изменения положения границ разрешенных зон и появление пьезоэлектрических зарядов [14–17]. Как показывают расчеты [17], изменение потенциала, обусловленное этими эффектами на гетерогранице (КТ — матрица), создает дополнительный потенциальный барьер для туннелирующих электронов, величина которого может достигать нескольких десятков мэВ. Поскольку эти напряжения локализованы в КТ и вблизи ее, высота этого барьера вблизи гетерограницы убывает с расстоянием от КТ быстрее, чем в случае барьера, обусловленного заряженной плоскостью (выражение (1)).

Качественно такой же дополнительный потенциальный барьер для эмиссии электрона существует и в том случае, когда в основном состоянии испускающей электрон КТ находятся два электрона.

Таким образом, вблизи вершины потенциального барьера ширина его оказывается меньше, чем предсказывается выражением (1) при N_d , соответствующем уровню легирования матрицы. Это приводит к увеличению высоты барьера, под которым туннелируют электроны в оптимальном случае, и соответственно увеличивает энергию связи электронов, которую можно получить из аппроксимации экспериментальных зависимостей при учете реальной формы барьера.

К сожалению, вид и величина потенциального барьера, связанного с механическими напряжениями и дополнительным зарядом, сильно зависят от формы КТ, и для реальной структуры достаточно точно определить их невозможно. Однако качественно уменьшение ширины потенциального барьера можно воспроизвести,

если при расчете скорости эмиссии, согласно выражениям (1)–(5), N_d заменить величиной N_{def} , которая больше, чем $N_d = 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$.

Мы использовали этот прием при аппроксимации экспериментальных данных по зависимости скорости эмиссии электронов от температуры. При этом величина N_{def} подбиралась так, чтобы величины энергии связи электронов были близки к полученным из измерений вольт-фарадных характеристик исследованных структур.

4. Результаты анализа температурных зависимостей скорости эмиссии электронов

На рис. 2, *a* и *b* представлены для образцов А и В соответственно зависимости дифференциальной активной

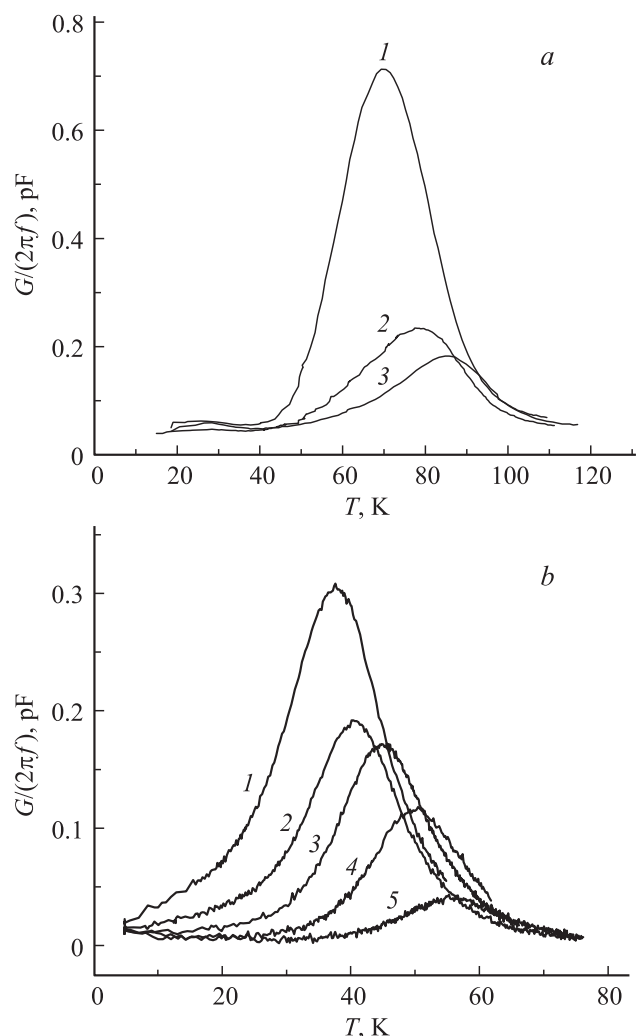


Рис. 2. Зависимости дифференциальной активной проводимости G барьеров Шоттки на частоте 0.1 МГц от температуры T при различных напряжениях обратного смещения V_{rev} : *a* — образец А, V_{rev} : -2.50 В (кривая 1), -2.70 В (кривая 2), -2.90 В (кривая 3). *b* — образец В, V_{rev} : -3.00 В (кривая 1), -3.50 В (кривая 2), -3.87 В (кривая 3), -4.25 В (кривая 4), -4.62 В (кривая 5).

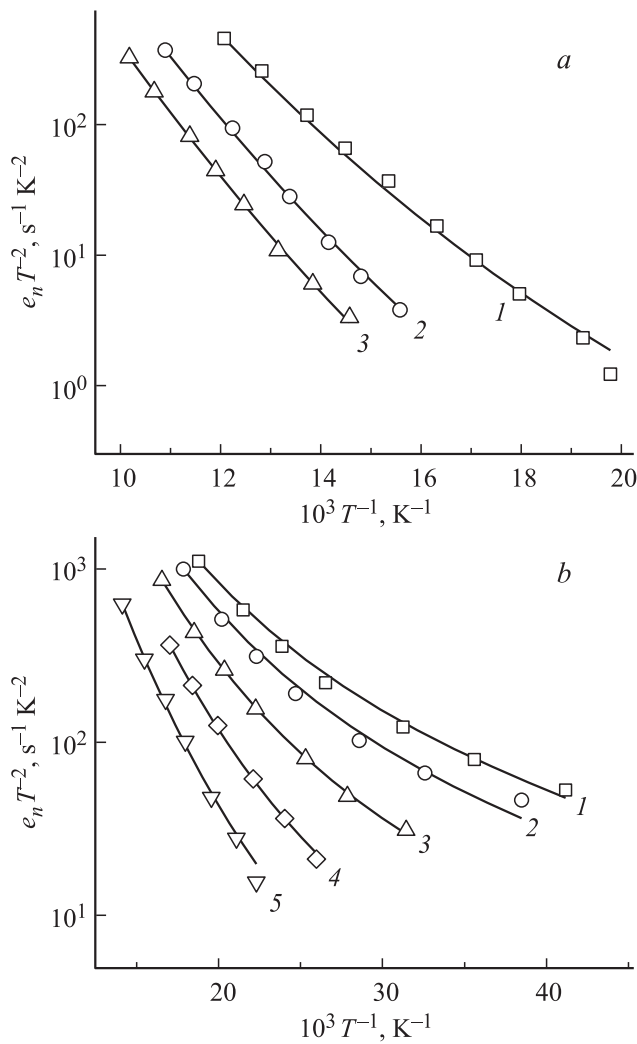


Рис. 3. Зависимости скорости эмиссии электронов с основного состояния КТ от температуры при различных напряжениях обратного смещения V_{rev} . Точки — эксперимент, сплошные линии — результат аппроксимации. *a* — образец А, V_{rev} : -2.50 В (кривая 1), -2.70 В (кривая 2), -2.90 В (кривая 3). *b* — образец В, V_{rev} : -3.00 В (кривая 1), -3.50 В (кривая 2), -3.87 В (кривая 3), -4.25 В (кривая 4), -4.62 В (кривая 5).

проводимости G барьеров Шоттки на частоте 0.1 МГц от температуры T при различных напряжениях обратного смещения V_{rev} , соответствующих заполнению электронами только основного состояния КТ. Температурная зависимость дифференциальной активной проводимости $G(T)$ имеет максимум, когда скорость эмиссии электронов (e_n) с зондируемых энергетических уровней массива КТ приблизительно равна πf [8,10]. На рис. 3, *a* и *b* приведены температурные зависимости скоростей эмиссии электронов из массива КТ, полученные из зависимостей $G(T)$, измеренных на разных частотах.

Экспериментальные зависимости скорости эмиссии электронов с основного состояния КТ от температуры аппроксимировались выражением (2) при $E(x)$, описываемым соотношением (1), и $E^* = E_a$. При этом ве-

личина E_a выражалась через не зависящую от температуры величину E_0 с помощью соотношения (5). Таким образом аппроксимация экспериментальных данных сводилась к подбору сечения захвата σ_n^∞ в предэкспоненциальном множителе и энергии связи E_0 . Эта процедура повторялась при различных значениях N_{def} и было установлено, что получаемые в результате аппроксимации величины E_0 оказываются близкими к полученным из анализа вольт-фарадных характеристик при $N_{def} = 6 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$.

Результаты этой аппроксимации для двух образцов показаны на рис. 3, *a* и *b* и демонстрируют хорошее согласие расчетных кривых и эксперимента. При расчетах использовались следующие значения: $\epsilon = 13.2$, $E_F = 6 \text{ мэВ}$, $m_n^* = 0.067m_e$, где m_e — масса свободного электрона.

Значения E_0 , полученные при этом, для разных напряжений смещения показаны на рис. 4, *a* и *b*. Как и

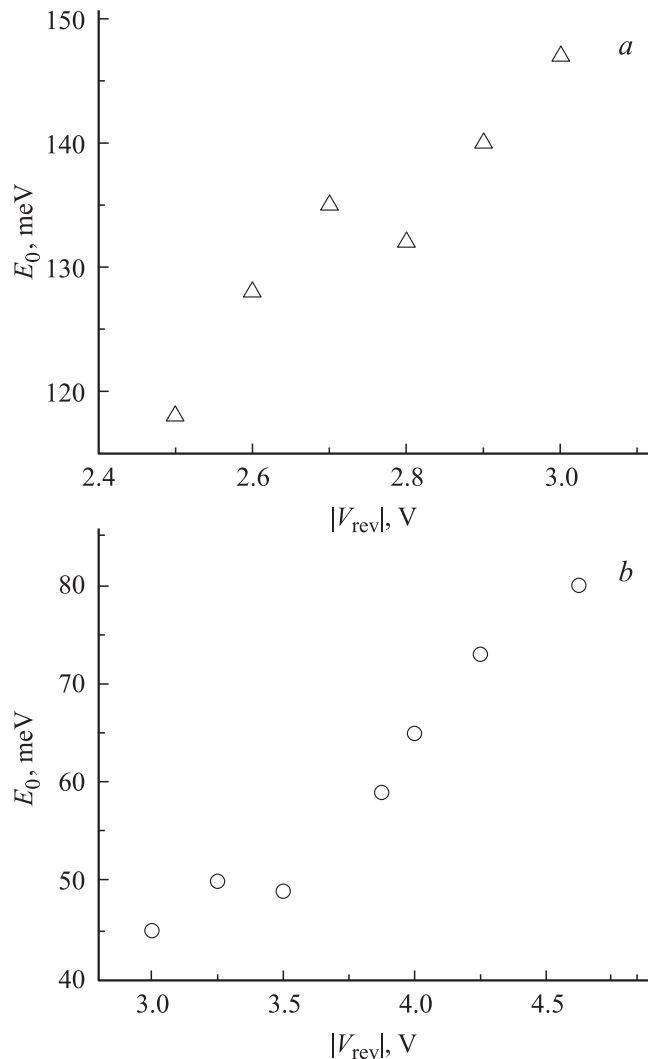


Рис. 4. Зависимости энергии связи основного состояния КТ E_0 , зондируемых при различных напряжениях обратного смещения V_{rev} , от величины этого смещения. *a* — образец А, *b* — образец В.

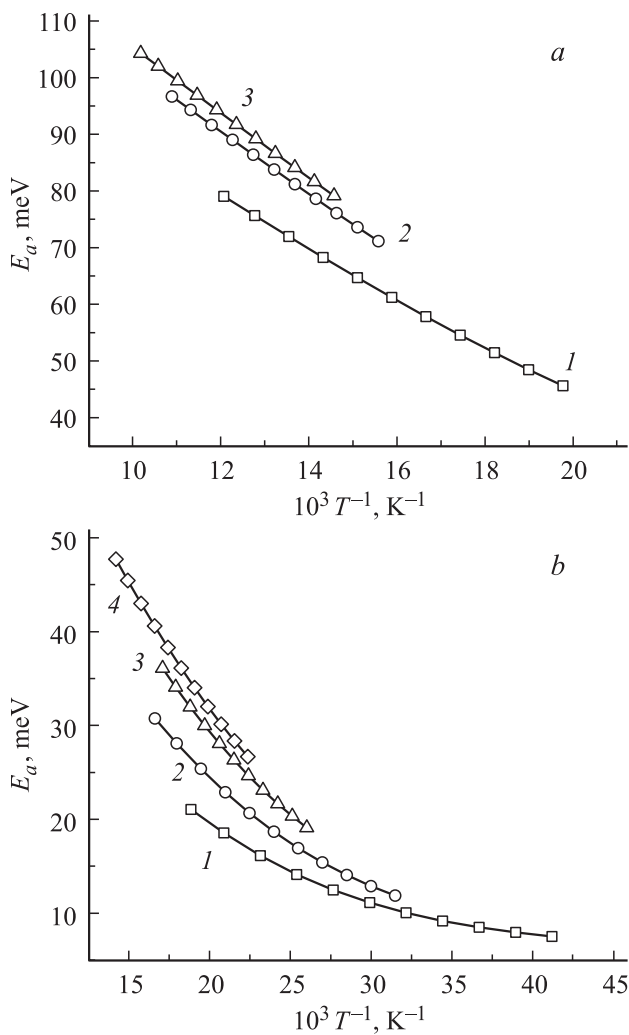


Рис. 5. Зависимости энергии активации термически активируемой туннельной эмиссии электронов с основного состояния КТ E_a от температуры при различных напряжениях обратного смещения V_{rev} . *a* — образец А, V_{rev} : -2.50 В (кривая 1), -2.70 В (кривая 2), -2.90 В (кривая 3). Энергия связи основного состояния зондируемой КТ E_0 (мэВ): 1 — 118, 2 — 135, 3 — 140. *b* — образец В, V_{rev} : -3.00 В (кривая 1), -3.87 В (кривая 2), -4.25 В (кривая 3), -4.62 В (кривая 4). Энергия связи основного состояния зондируемой КТ E_0 (мэВ): 1 — 45, 2 — 59, 3 — 73, 4 — 80.

следовало ожидать, с увеличением напряжения обратного смещения энергия связи зондируемых при адмиттанс-спектроскопии КТ увеличивается на величину, которая меньше изменения приложенного смещения, так как значительная часть этого изменения смещения падает на слое объемного заряда, расположенном между слоем КТ и металлом, создающим барьер Шоттки.

Зависимости вычисленных из соотношения (5) величин энергии активации E_a от температуры представлены на рис. 5, *a* и *b*. Эти величины заметно ниже энергии связи, при этом, как и следовало ожидать для термически активированного туннелирования, разница $E_0 - E_a$ уменьшается с увеличением температуры.

Зависимость введенного в выражения (2) и (3) сечения захвата электрона σ_n^∞ от энергии связи основного состояния E_0 , полученная из анализа экспериментальных данных, показана на рис. 6. Значения сечений захвата σ_n^∞ растут с ростом энергии связи (размером КТ) и для больших КТ несколько превышают площадь основания КТ. Однако с уменьшением размера КТ отношение сечения захвата к этой площади уменьшается и для небольших КТ с энергией связи основного состояния менее 80 мэВ становится значительно меньше единицы. В рамках классических представлений такое уменьшение может быть объяснено заметным уменьшением вероятности потери энергии электрона при его пролете через КТ вследствие уменьшения длины его пути.

Следует также отметить, что величина средней энергии связи основного состояния больших КТ (~ 140 мэВ) согласуется с данными по спектрам люминесценции, измеренным для этого образца в работе [8]. Согласно [8], излучательная рекомбинация электрона и дырки при температуре 10 К, находящихся в основных состояниях КТ, дает пик люминесценции при энергии фотонов 1.15 эВ. Поскольку, как показали измерения [19], в подобных квантовых точках основное состояние дырки лежит на 0.2–0.23 эВ выше потолка валентной зоны GaAs, энергия связи основного состояния электрона в такой КТ должна быть близка к 0.14 эВ.

Таким образом, в работе проанализированы данные по температурной зависимости скорости эмиссии электронов из самоорганизованных КТ InAs в матрицу GaAs, полученные методом адмиттанс-спектроскопии. Для этой цели использовалась одномерная модель термически активированного туннелирования, в которой форма потенциального барьера для туннелирующих электронов поддается так, чтобы величины энергии связи электронов были близки к найденным из результатов вольт-фарадных характеристик исследуемых структур. Полученные таким образом сечения захвата электронов

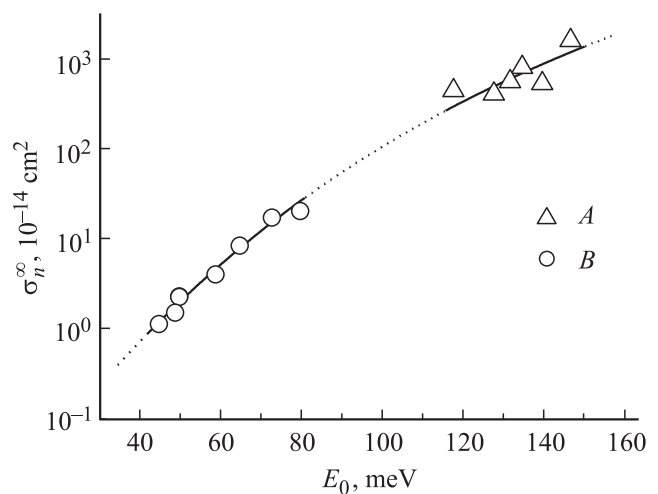


Рис. 6. Зависимость эффективного сечения захвата электрона σ_n^∞ от энергии связи основного состояния КТ E_0 для образца А и образца В.

растут с увеличением энергии связи основного состояния (размера КТ). Для КТ InAs в матрице GaAs со средним латеральным размером 9 и 20 нм значения сечений захвата лежат соответственно в диапазонах $1 \cdot 10^{-14}$ – $2 \cdot 10^{-13}$ и $4 \cdot 10^{-12}$ – $2 \cdot 10^{-11}$ см².

Работа выполнена с использованием оборудования регионального ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ (ФТИ им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург).

Список литературы

- [1] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (John Wiley & Sons Ltd., Chichester, 1998).
- [2] D. Bimberg. *Semiconductor Nanostructures*. Springer (2008).
- [3] Zhiming M. Wang. *Self-Assembled Quantum Dots*. Springer (2008).
- [4] Zhiming M. Wang. *Quantum Dot Devices*. Springer (2012).
- [5] M. Geller, E. Stock, C. Kapteyn, R.L. Selin, D. Bimberg. *Phys. Rev. B*, **73**, 205 331 (2006).
- [6] S. Schulz, S. Schnull, C. Heyn, W. Hansen. *Phys. Rev. B*, **69**, 195 317 (2004).
- [7] P.W. Fry, J.J. Finley, L.R. Wilson, A. Lemaitre, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, M. Hopkinson, G. Hill, J.C. Clark. *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 4344 (2000).
- [8] P.N. Brunkov, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, Yu.G. Musikhin, N.N. Ledentsov, S.G. Konnikov, A. Polimeni, A. Patane, P.C. Main, L. Eaves, C.M.A. Kapteyn. *J. Electron. Mater.*, **28**, 486 (1999).
- [9] C.M.A. Kapteyn, F. Heinrichsdorff, O. Stier, R. Heitz, M. Grundmann, N.D. Zakharov, D. Bimberg, P. Werner. *Phys. Rev. B*, **60**, 14 265 (1995).
- [10] А.А. Гуткин, П.Н. Брунков, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, С.Г. Конников. *ФТП*, **42**, 1122 (2008).
- [11] C.M.A. Kapteyn, M. Lion, R. Heitz, D. Bimberg, P. Brunkov, V.B. Volovik, S.G. Konnikov, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov. *Appl. Phys. Lett.*, **76**, 1573 (2000).
- [12] W.-H. Chang, W.Y. Chen, M.C. Cheng, C.Y. lai, T.M. Hsu., N.-T. Yeh, J.-I. Chyi. *Phys. Rev. B*, **64**, 125 315 (2001).
- [13] W.-H. Chang, W.Y. Chen, T.M. Hsu, N.-T. Yeh, J.-I. Chyi. *Phys. Rev. B*, **66**, 195 337 (2002).
- [14] D.L. Losee, *J. Appl. Phys.*, **46**, 2204 (1975).
- [15] Graig Prior. *Phys. Rev. B*, **57**, 7160 (1998).
- [16] M. Grundmann, O. Stier, D. Bimberg. *Phys. Rev. B*, **52**, 11 969 (1995).
- [17] O. Stier, M. Grundmann, D. Bimberg. *Phys. Rev. B*, **59**, 5888 (1999).
- [18] Qiuji Zhao, Ting Mei. *J. Appl. Phys.*, **109**, 063 101 (2011).
- [19] P.N. Brunkov, E.V. Monakhov, A.Yu. Kuznetsov, A.A. Gutkin, A.V. Bobyl, Yu.G. Musikhin, A.E. Zhukov, V.M. Ustinov, S.G. Konnikov. *Physics of Semiconductors: 27th Int. Conf. on Physics of Semiconductors*, eds J. Menendez, C.G. Van de Walle (American Inst. of Physics, 2005) p. 789.

Редактор Т.А. Полянская

Analysis of thermal emission processes of electrons from arrays of InAs quantum dots in the space charge region of GaAs matrix

A.V. Baklanov^{*,+}, A.A. Gutkin^{*}, P.N. Brunkov^{*,+},
A.Yu. Egorov^{*,}, S.G. Konnikov^{*}

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

+ Institute of Physics,
Nanotechnology and Telecommunications,
St.-Petersburg State Polytechnical University,
195251 St. Petersburg, Russia

•St. Petersburg Academic University—Nanotechnology
Research and Education Centre,
Russian Academy of Sciences,
195220 St. Petersburg, Russia

Abstract The detailed analysis of admittance spectroscopy data on temperature dependence of electron emission from ground state of InAs quantum dots (QDs) in space charge region of the Schottky barrier on GaAs matrix was carried out. The experimental data was described using one dimensional model of thermally activated tunneling through virtual states. The shape of the potential barrier which mounted by emitted electrons is selected using effective concentration of shallow donor impurities so that energy levels of electrons in QDs were close to the parameters determined from capacitance-voltage characteristics of structures under investigation. The obtained values of the cross-sections of electrons go up with increasing of bound energy of electrons i.e. size of the QDs. For InAs QDs with average lateral size of 9 and 20 nm the value of the cross-section falls into regions 10^{-14} – $2 \cdot 10^{-13}$ and $4 \cdot 10^{-12}$ – $2 \cdot 10^{-11}$ cm², respectively.