

Фотолюминесценция при комнатной температуре в диапазоне 1.5–1.6 мкм от наногетероструктур InGaAs/GaAs, выращенных при низкой температуре подложки

© А.А. Тонких^{+,*} ¶, Г.Э. Цырлин^{+,*}, В.Г. Талалаев^{†,*}, Б.В. Новиков[†], В.А. Егоров^{+,*},
Н.К. Поляков^{+,*}, Ю.Б. Самсоненко^{+,*}, В.М. Устинов[†], N.D. Zakharov[‡], P. Werner[‡]

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

^{*} Институт аналитического приборостроения Российской академии наук,
190103 Санкт-Петербург, Россия

[†] Институт физики, Санкт-Петербургский государственный университет,
198504 Санкт-Петербург, Россия

[‡] Max Planck Institute of Microstructure Physics,
Halle Weinberg 2, D-06120 Halle, Germany

(Получена 23 мая 2003 г. Принята к печати 2 июня 2003 г.)

Методами дифракции быстрых электронов на отражение, просвечивающей электронной микроскопии и фотолюминесценции исследовались гетероструктуры с квантовыми точками и квантовыми ямами In(Ga)As/GaAs, выращенные при низкой температуре подложки. Показано, что осажденный при низкой температуре на поверхность GaAs (100) арсенид индия формирует двумерные кластеры, состоящие из отдельных квантовых точек. В оптических спектрах структур, содержащих подобные кластеры, возникает излучение в диапазоне длин волн 1.5–1.6 мкм.

1. Введение

Создание лазерных диодов с длиной волны генерации 1.55 мкм для глобальных волоконно-оптических линий связи является актуальной задачей современной оптоэлектроники [1]. На сегодняшний день по существу реализован лишь один подход к решению этой задачи: использование лазерных диодов с активной областью на основе полупроводниковых гетероструктур с квантовыми ямами InGaAsP/InP. Однако такая система имеет два принципиальных недостатка: плохие температурные характеристики лазерных диодов из-за слабого ограничения электронов в активной области и низкие параметры брэгговских зеркал из-за малого различия коэффициентов преломления слоев InGaAsP/InP и малой теплопроводности InGaAsP [2]. Эти недостатки стимулируют исследования по созданию лазерных диодов с длиной волны излучения вблизи 1.55 мкм в других системах. На сегодняшний день существует ряд направлений, в рамках которых проводятся подобные исследования. Например, предложено выращивание квантовых точек (QDs) InAs на подложках InP [3], выращивание квантовых ям в системе GaAsSbN/GaAs [4], а также легирование полупроводникового материала (например, GaN) эрбием [5]. Наиболее перспективным нам представляются подходы, в которых используются подложки GaAs, вследствие более высокой температурной стабильности получаемых лазерных структур и возможности выращивания брэгговских зеркал Al(Ga)As/GaAs за один эпитаксиальный цикл. Однако работы в системах Ga(In)As/GaAs и Ga(In)As(N)/GaAs до недавнего времени были в основном нацелены на создание лазерных диодов с длиной

волны генерации вблизи 1.3 мкм с активной областью на основе массивов квантовых точек InAs/GaAs [6] или квантовых ям InGaAsN [7]. В последнее время появились публикации, посвященные исследованию излучения гетероструктур на основе этих систем вблизи длины волны 1.55 мкм. В работе [8] авторы достигли интенсивной фотолюминесценции (ФЛ) гетероструктур с квантовыми ямами в системе InGaAsN/GaAs вблизи 1.55 мкм. В той же системе InGaAsN/GaAs получена ФЛ гетероструктур с квантовыми точками на длинах волн 1.3 и 1.55 мкм [9]. Добавление Sb в активную область лазера на основе квантовых ям GaInNAs/GaAs позволило авторам [10] создать полосковый лазер, излучающий на длине волны 1.5 мкм при комнатной температуре с пороговой плотностью тока 3.5 кА/см² и мощностью излучения на выходе 22 мВт. В работе [11] авторы показали возможность получения длинноволнового излучения (~1.7 мкм) от структур с латерально совмещенными квантовыми точками (AQDs) InAs/GaAs, полученными при низкой температуре подложки (~320–350°C). В работе [12] впервые сообщалось о наблюдении электролюминесценции с длиной волны излучения в диапазоне 1.55–1.6 мкм при температурах вплоть до 260 К от структур с AQDs. В нашей работе применялась модификация последнего метода, которая включает несколько положений. Мы осаждали InAs на подложку GaAs при низкой температуре и с низкой скоростью роста, исследовали влияние разориентации поверхности подложки при низкотемпературном осаждении InAs/GaAs, а также использовали осаждение при низкой температуре твердого раствора In_{0.5}Ga_{0.5}As в металл-стабилизированных условиях.

¶ E-mail: alex234@newmail.ru

2. Эксперимент

Ростовые эксперименты проводились на установке молекулярно-пучковой эпитаксии ЭП1203 с использованием полуизолирующих подложек GaAs(100). Исследуемые образцы состояли из буферного слоя GaAs, низкотемпературной активной области, а также двух короткопериодных сверхрешеток (SL) GaAs/AlGaAs, препятствующих безызлучательной рекомбинации носителей на интерфейсе с подложкой и в приповерхностной области. Температура роста структуры, за исключением низкотемпературной активной области, составляла 580°C. Исследуемые образцы различались методикой формирования активной области. Нами предложено несколько принципиальных нововведений по сравнению с предыдущими работами [11–13], которые можно условно разделить на три типа. К первому типу мы относим осаждение InAs на поверхность GaAs при низкой температуре подложки (350–410°C) и низкой скорости роста ($\sim 0.03 \text{ \AA}/\text{с}$); ко второму — осаждение твердого раствора $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ при низкой температуре подложки; к третьему — выращивание InAs на vicинальной поверхности подложки с низкой скоростью роста при температурах ниже 300°C. Эффективная толщина слоя InAs для всех образцов, за исключением образцов с твердым раствором InGaAs, составляла 3 монослоя (МС). Толщины твердого раствора InGaAs в исследуемых образцах второго типа варьировались от 2 до 5 нм.

В процессе роста всей структуры поток As_4 поддерживался постоянным так, что соотношение потоков In/As при скорости роста InAs $0.03 \text{ \AA}/\text{с}$ составляло $\sim 1/100$, а соотношение потоков Ga/As при росте GaAs $\sim 1/2$. Для низкотемпературных слоев в образцах второго типа рост твердого раствора InGaAs происходил в металл-стабилизированных условиях (без прямого потока As_4 к подложке). После осаждения слоя, содержащего In, следовало выращивание низкотемпературного слоя GaAs толщиной 5 нм для предотвращения испарения InAs при последующем подъеме температуры и росте высокотемпературной части структуры. При выращивании образцов третьего типа нами использовались vicинальные подложки GaAs(100), поверхность которых была разориентирована в направлении [011] на угол 7° . Температура подложки определялась с помощью экстраполяции данных пирометра и по показаниям термопары нагревателя образца. Процесс осаждения In(Ga)As контролировался с помощью дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО).

Фотолуминесценция возбуждалась излучением Ar^+ -лазера с длиной волны 488 нм и плотностью мощности $2 \text{ Вт}/\text{см}^2$. Детектирование сигнала ФЛ осуществлялось с помощью охлаждаемого Ge-фотодетектора (Edinburgh Instruments) на выходе из монохроматора. Измерения методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) проводились на электронном микроскопе JEM 4010.

3. Результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлено ПЭМ-изображение поперечного сечения образца первого типа с эффективной толщиной слоя InAs 3 МС, покрытого слоем GaAs толщиной 5 нм при той же температуре подложки 350°C. Анализ изображения показывает, что InAs сосредоточен в наноструктурах. Изображение позволяет оценить размеры островков. Латеральные размеры составляют величину $\sim 7 \text{ нм}$, а высота $\sim 3 \text{ нм}$. Следует отметить, что оценки характерных размеров квантовых точек InAs, полученных при температурах осаждения 450–500°C, таковы: 12–14 нм для латеральных размеров и 4–6 нм для высоты [14,15]. Таким образом, в нашем случае характерные размеры островков InAs меньше. Снижение размеров островков InAs/GaAs при понижении температуры подложки (в диапазоне 420–500°C) было отмечено также в работе [16]. Сравнение спектров ФЛ (рис. 2) образцов, выращенных при низкой (спектр 1) и высокой (спектр 2) температурах подложки, подтверждают этот факт. На рис. 2 в спектре 1 наблюдаются две особенности. Коротковолновый пик (1.15 эВ) соответствует излучательной рекомбинации носителей с основных

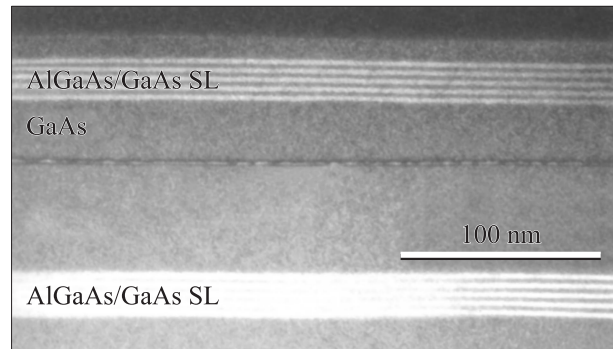


Рис. 1. ПЭМ-изображение поперечного сечения образца с 3 МС InAs, осажденными при температуре подложки 350°C.

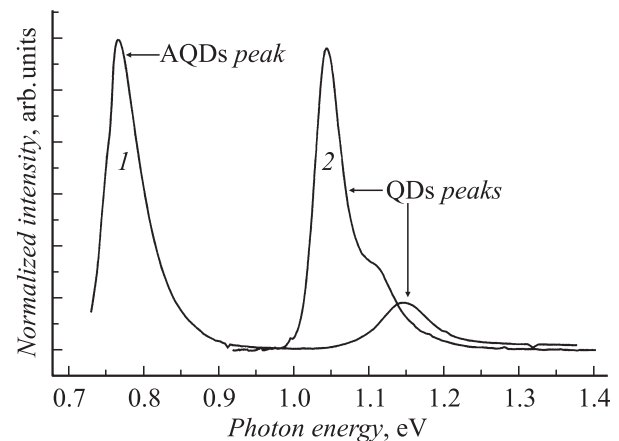


Рис. 2. Спектры фотолуминесценции структур, содержащих 3 МС InAs, выращенных при температурах 350 (1) и 480°C (2). Температура измерения 300 К.

уровней отдельно стоящих квантовых точек (QDs). Из сравнения положения этого пика с энергией максимума спектра 2 для образца, в котором 3 МС InAs осаждены при температуре подложки 480°C, мы заключили, что экситонный уровень в низкотемпературных квантовых точках лежит выше на 100 мэВ по сравнению с таковым в высокотемпературных квантовых точках. Это свидетельствует о меньших размерах квантовых точек, что также подтверждается данными ПЭМ (рис. 1). Второй особенностью спектра 1 является новая полоса на длине волны 1.6 мкм (~ 0.78 эВ). В работе [11] сделано предположение, что причиной возникновения такой полосы ФЛ является наличие AQDs. ПЭМ-изображение (рис. 1) подтверждает наличие AQDs в нашем образце. Видно, что островки InAs образуют конгломераты, что не характерно для массива квантовых точек InAs, выращенного при высокой температуре подложки [16]. Однако из данного ПЭМ-изображения поперечного сечения (рис. 1) нельзя заключить, формируют ли островки InAs цепочки, или распределены в виде двумерных кластеров по поверхности GaAs. Данный вопрос будет обсуждаться нами далее на основании ПЭМ-изображения в планарной геометрии.

Вторым типом исследуемых структур были образцы, в которых активная область формировалась осаждением 50%-го твердого раствора InGaAs при низкой температуре подложки. Методами дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО) и ФЛ нами было установлено, что свойства структур InGaAs/GaAs, выращенных при низкой температуре подложки ($\sim 350^\circ\text{C}$), существенно зависят от соотношения потоков элементов III группы (Ga + In) и As₄. Предварительные эксперименты показали, что в условиях избытка молекулярного мышьяка (соотношение потоков (In + Ga)/As₄ $\sim 1/40$) после осаждения 23 Å твердого раствора In_{0.5}Ga_{0.5}As на поверхности образца происходит формирование островков InGaAs, наблюдаемое по характерному изменению картины ДБЭО. При уменьшении потока As₄ в 2 раза (соотношение (In + Ga)/As₄ $\sim 1/20$) формирование островков InGaAs происходило после осаждения 34 Å твердого раствора InGaAs. В то же время осаждение In + Ga при закрытой заслонке потока As₄ (фоновое давление в ростовой камере при этом составляло $\sim 1 \cdot 10^{-6}$ Па) не приводило к образованию островков InGaAs вплоть до толщины растущей пленки ~ 100 Å. Кроме того, было отмечено, что даже при последующем низкотемпературном росте GaAs избыточный поток мышьяка приводит к формированию островков InGaAs на стадии зарывания. При попытках осадить слой In_{0.5}Ga_{0.5}As толщиной, превышающей указанные выше критические толщины перехода к островковому росту, происходило образование дислокаций несоответствия, ухудшающих оптические характеристики структур. Таким образом, нами установлено, что выращивание твердого раствора InGaAs при низких температурах подложки происходит планарно лишь в металл-стабилизированных условиях при отсутствии прямого потока мышьяка на поверхность

подложки. Наиболее характерные оптические и структурные свойства для образцов данного типа представлены на рис. 3 и 4.

На рис. 3 приведены спектры ФЛ структур второго типа, которые, по аналогии со структурами первого типа, содержат длинноволновый пик в области 1.6 мкм. Однако в отличие от спектров образцов первого типа, в данном случае нам удалось различить длинноволновые пики лишь при низких температурах (77 К). Причина

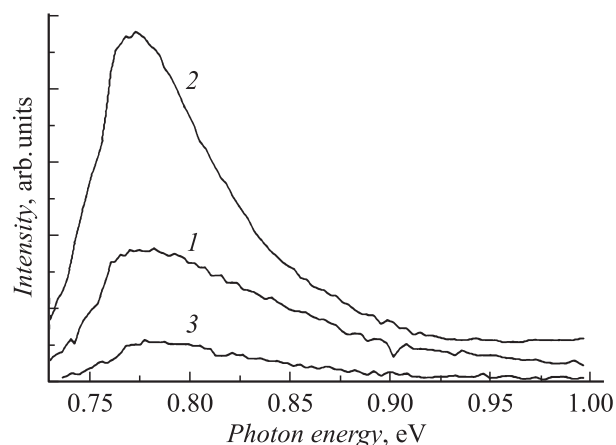


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции структур, содержащих твердый раствор In_{0.5}Ga_{0.5}As, осажденный на подложку GaAs при температуре 350°C. Толщина слоя In_{0.5}Ga_{0.5}As, нм: 1 — 2, 2 — 3, 3 — 5. Температура измерения 77 К.

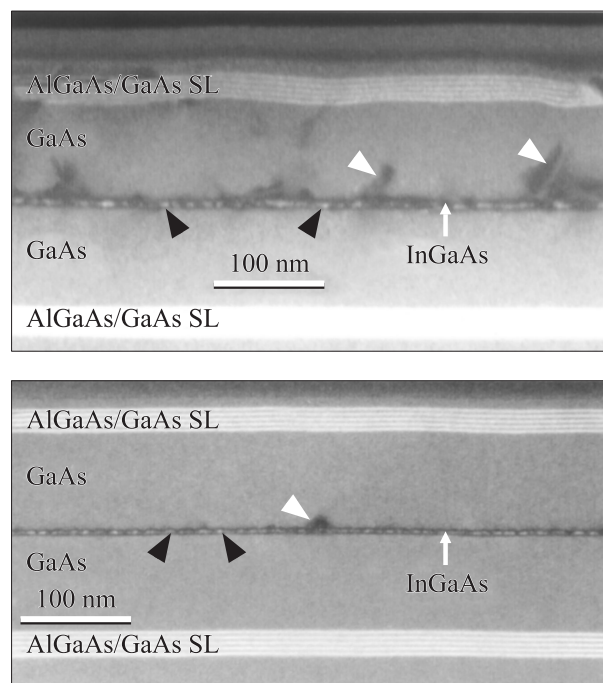


Рис. 4. ПЭМ-изображение поперечного сечения образца с твердым раствором In_{0.5}Ga_{0.5}As толщиной 5 нм (верхнее изображение) и 3 нм (нижнее изображение), осажденным при температуре 350°C.

ухудшения оптических характеристик данного типа образцов при повышении температуры измерений становится понятна из анализа рис. 4. На рисунке представлены ПЭМ-изображения поперечного сечения структур с 5 и 3 нм $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$. Белыми стрелками отмечены дислокации несоответствия, за счет которых частично снимаются упругие напряжения в структуре. Заметим, что количество дислокаций несоответствия значительно меньше в образце с 3 нм InGaAs . Этот факт является следствием снижения общего количества InAs , внедренного в структуру данного образца, по сравнению с образцом, содержащим 5 нм InGaAs . Сопоставление данных рис. 3 и 4 позволяет сделать заключение о том, что в структурах второго типа интенсивность ФЛ в основном определяется плотностью дислокаций несоответствия. Помимо наблюдаемых дислокаций несоответствия характерной особенностью данных изображений является то, что слой InGaAs не представляется цельным, а состоит из набора мелких объектов (отмечены черными стрелками). Эти объекты (островки) обогащены InAs , а их латеральные размеры составляют величину ~ 7 нм. Таким образом, из рис. 4 следует, что даже при эпитаксии в условиях двумерного роста (переход от двумерного к трехмерному росту не наблюдался на картинах ДБЭО) в исследуемых структурах образуются близко расположенные островки InAs , что характерно для образцов первого типа, в которых островки InAs формировались в процессе осаждения.

В работе [11] было сделано предположение о том, что осаждение InAs на подложку GaAs при температурах подложки ниже 300°C не приводит к появлению латерально связанных квантовых точек InAs/GaAs вследствие слишком малой поверхностной миграции атомов In на поверхности GaAs . Нами проведен эксперимент по осаждению InAs на подложку GaAs при температуре 250°C , причем было выращено 2 образца с одинаковым количеством InAs , которые отличались друг от друга углом разориентации поверхности GaAs (третий тип). Эффективная толщина слоя InAs (3 МС), а также другие основные ростовые параметры, за исключением температуры подложки, были такими же, как и в образцах первого типа. Фотолюминесцентные измерения показали (рис. 5), что, действительно, в случае сингулярной поверхности GaAs в спектре ФЛ (спектр 2) пик от отдельно стоящих квантовых точек пропадает полностью, а пик от AQDs становится менее интенсивным. С другой стороны, спектр ФЛ вицинального образца (спектр 1) содержит интенсивную линию в диапазоне 1.6 мкм, а также пик на длине волны 1.1 мкм от отдельно стоящих островков. Для вицинального образца нами было получено ПЭМ-изображение поверхности (рис. 6). Из анализа рис. 6 следует, что на поверхности GaAs образуются кластеры (отмечены стрелками), состоящие из островков InAs . Характерные латеральные размеры островков InAs , входящих в кластеры, составляют 7.2 нм, в то время как размеры самих кластеров изменяются в широких пределах. Анализ ПЭМ-изображения высокого

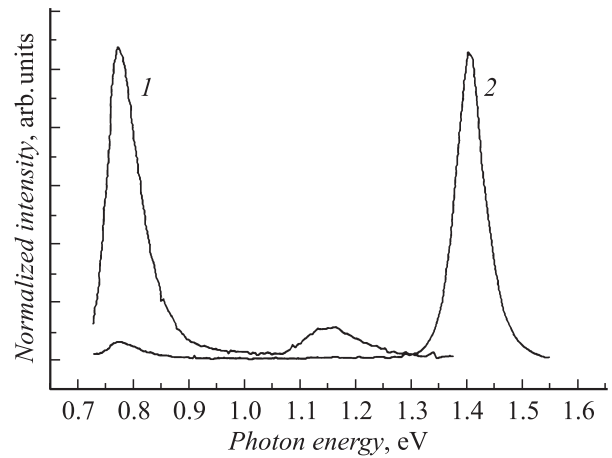


Рис. 5. Спектры фотолюминесценции структур, содержащих 3 МС InAs , выращенных при температуре 250°C на подложках GaAs : 1 — разориентация поверхности GaAs 7° в направлении $[011]$; 2 — сингулярная поверхность GaAs . Температура измерения 300 К.

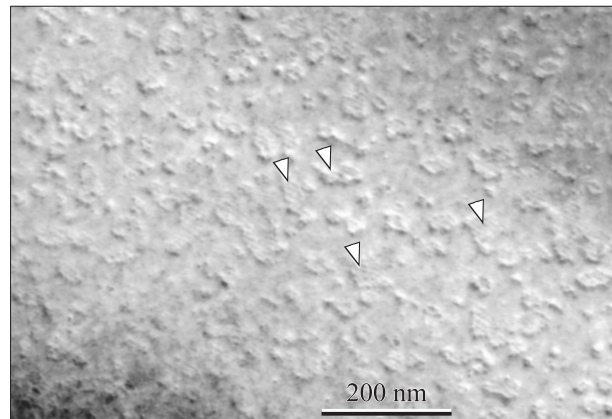


Рис. 6. ПЭМ-изображение в планарной геометрии образца с 3 МС InAs , осажденными при температуре 250°C на вицинальную поверхность GaAs , разориентированную на 7° в направлении $[011]$.



Рис. 7. ПЭМ-изображение высокого разрешения поперечного сечения вицинального образца. Светлые области — обогащенные In , темные — матрица GaAs .

разрешения поперечного сечения вицинального образца (рис. 7) позволяет сделать заключение о том, что высота островков InAs составляет 3.3 нм. Можно заметить (рис. 6), что кластеры InAs , как правило, состоят из 3–5 рядов островков InAs , причем количество островков в каждом ряду, так же как и размеры кластеров, варьируются в широких пределах. Ряды квантовых точек InAs ориентированы в направлении, перпендикулярном

направлению разориентации поверхности, т. е. в направлении [011]. Данное ПЭМ-изображение свидетельствует о наличии латерально-связанных квантовых точек InAs, наличие которых в структуре отвечает за возникновение длинноволнового пика в спектрах ФЛ.

4. Заключение

Таким образом, мы показали, что получение полосы 1.5–1.6 мкм в спектрах ФЛ In(Ga)As/GaAs возможно несколькими путями. Наиболее совершенные структуры получаются при осаждении чистого InAs на поверхности GaAs, однако при соответствующей оптимизации ростовых условий осаждение твердого раствора InGaAs приводит к подобному результату. Также показано, что в исследуемых структурах образуются конгломераты островков InAs (латерально-связанные квантовые точки). Установлено, что для оптимизированных структур в спектрах ФЛ при комнатной температуре доминирует пик с длиной волны излучения 1.6 мкм. Присутствие ступеней на вицинальной поверхности GaAs стимулирует образование конгломератов квантовых точек при температурах подложки менее 300°C.

Данная работа была частично поддержана Министерством промышленности, науки и технологии Российской Федерации.

Г.Э. Цырлин выражает признательность Alexander von Humboldt Foundation.

Список литературы

- [1] N.M. Margalit, Sh.Z. Zhang, J.E. Bowers. *IEEE Topics in Lightwave*, **5**, 164 (1997).
- [2] Н.А. Малеев, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, А.Ю. Егоров, В.М. Устинов, И.Л. Крестников, А.В. Лунев, А.В. Сахаров, Б.В. Воловик, Н.Н. Леденцов, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. *ФТП*, **33** (5), 629 (1999).
- [3] Y.F. Li, X.L. Ye, B. Xu, F.Q. Liu, D. Ding, W.H. Jiang, Z.Z. Sun, Y.C. Zhang, H.Y. Liu, Z.G. Wang. *J. Cryst. Growth*, **218**, 451 (2000).
- [4] J.C. Harmand, G. Ungaro, J. Ramos, E.V.K. Rao, Saint-Girons, R. Teissier, Le Roux, L. Largeau, G. Patriarche. *J. Cryst. Growth*, **227–228**, 553 (2001).
- [5] H. Shen, J. Pamulapati, M. Taysing, M.C. Wood, R.T. Lareau, M.H. Ervin, J.D. Mackenzie, C.R. Abernathy, S.J. Pearton, F. Ren, J.M. Zavada. *Sol. St. Electron.*, **43**, 1231 (1999).
- [6] С.С. Михрин, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, Н.А. Малеев, А.П. Васильев, Е.С. Семенова, В.М. Устинов, М.М. Кулагина, Е.В. Никитина, И.П. Сошников, Ю.М. Шерняков, Д.А. Лившиц, Н.В. Крыжановская, Д.С. Сизов, М.В. Максимов, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов, Д. Бимберг, Ж.И. Алфёров. *ФТП*, **36** (11), 1400 (2002).
- [7] В.А. Одноблюдов, А.Ю. Егоров, А.Р. Ковш, В.В. Мамутин, Е.В. Никитина, Ю.М. Шерняков, М.В. Максимов, В.М. Устинов. *Письма ЖТФ*, **29** (10), 77 (2003).
- [8] В.А. Одноблюдов, А.Ю. Егоров, Н.В. Крыжановская, А.Г. Гладышев, В.В. Мамутин, А.Ф. Цацульников, В.М. Устинов. *Письма ЖТФ*, **28** (22), 82 (2002).

- [9] M. Sopanen, H.P. Xin, C.W. Tu. *Appl. Phys. Lett.*, **76** (8), 994 (2000).
- [10] L.H. Li, V. Sallet, G. Patriarche, L. Largeau, S. Bouchoule, K. Merghem, L. Travers, J.C. Harmand. In: *Proc. Int. Workshop on GaAs Based Lasers for 1.3–1.5 μm Wavelength Range* (2003) p. 49.
- [11] M.V. Maximov, A.F. Tsatsul'nikov, B.V. Volovik, D.A. Bedarev, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, N.A. Bert, V.M. Ustinov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, I.P. Soshnikov, P. Werner. *Appl. Phys. Lett.*, **75** (16), 2347 (1999).
- [12] А.Е. Жуков, Б.В. Воловик, С.С. Михрин, Н.А. Малеев, А.Ф. Цацульников, Е.В. Никитина, И.Н. Каяндер, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов. *Письма ЖТФ*, **27** (17), 51 (2001).
- [13] А.А. Тонких, В.А. Егоров, Н.К. Поляков, Г.Э. Цырлин, Н.В. Крыжановская, Д.С. Сизов, В.М. Устинов. *Письма ЖТФ*, **28** (10), 72 (2002).
- [14] M. Grundmann, J. Christen, N.N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, Y.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 4043 (1995).
- [15] I. Napke-Wurst, U. Zeitler, H.W. Schumacher, R.J. Haug, K. Pierz, F.J. Ahlers. *Semicond. Sci. Technol.*, **14**, L41 (1999).
- [16] Н.А. Черкашин, М.В. Максимов, А.Г. Макаров, В.А. Шуккин, В.М. Устинов, Н.В. Луковская, Ю.Г. Мусухин, Ж.Е. Цырлин, Н.А. Берг, Ж.И. Алфёров, Н.Н. Леденцов, Д. Бимберг. *ФТП*, **37** (7), 120 (2003).

Редактор Л.В. Шаронова

Room temperature photoluminescence in the 1.5–1.6 μm region from InGaAs/GaAs nanoheterostructures grown at low substrate temperature

A.A. Tonkikh^{+,*}, G.E. Cirilin^{+,*}, V.G. Talalaev^{†,*}, B.V. Novikov[†], V.A. Egorov^{+,*}, N.K. Polyakov^{+,*}, Yu.B. Samsonenko^{+,*}, V.M. Ustinov[†], N.D. Zakharov[‡], P. Werner[‡]

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

^{*} Institute for Analytical Instrumentation, Russian Academy of Sciences, 190103 St. Petersburg, Russia

[†] Institute of Physics, Saint-Petersburg State University, 198504 St. Petersburg, Russia

[‡] Max Planck Institute of Microstructure Physics, Halle Weinberg 2, D-06120 Halle, Germany

Abstract In(Ga)As/GaAs quantum dot and quantum well heterostructures grown at low substrate temperatures are studied by the reflection high-energy electron diffraction, transmission electron microscopy and photoluminescence methods. It is shown that two-dimensional clusters formed by the conglomerates of nanoislands appear when InAs is deposited on GaAs (100) surface at low temperature. The structures containing such conglomerates show luminescence within the 1.5–1.6 μm wavelengths range.