

# Особенности фотолюминесценции структур InAs/GaAs с квантовыми точками при различной мощности накачки

© В.А. Кульбачинский<sup>¶</sup>, В.А. Рогозин, Р.А. Лунин, А.А. Белов, А.Л. Карузский, А.В. Пересторонин, А.В. Здоровейщев

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
119992 Москва, Россия

(Получена 22 февраля 2005 г. Принята к печати 9 марта 2005 г.)

Исследованы спектры фотолюминесценции структур InAs/GaAs с квантовыми точками при различных мощностях накачки и температурах. На начальном участке роста мощности накачки обнаруживается сдвиг одной из линий спектра фотолюминесценции в легированном образце. При повышении температуры интенсивность высокоэнергетической части спектра уменьшается, а низкоэнергетическая смещается в область еще более низких энергий. Показано наличие в структурах квантовых точек двух характерных размеров.

## 1. Введение

Структуры, содержащие самоорганизующиеся квантовые точки, представляют интерес с точки зрения возможности создания принципиально новых приборов на основе квантовых точек, например, лазеров или элементов памяти, с параметрами, лучшими, чем у существующих в настоящее время [1,2]. Особое место занимает изучение фотолюминесценции (ФЛ) таких структур [3,4], так как ФЛ представляет собой наиболее простой способ получения информации о наличии в образце квантовых точек, оценки их размеров и наблюдения размерного квантования [5–7]. Активное изучение систем, содержащих квантовые точки, и широкое распространение эффективных способов получения квантово-размерных структур делает актуальной проблему разработки методов оценки качества таких структур путем диагностики их электронных энергетических состояний с помощью низкотемпературной люминесценции. Системы коррелированных квантовых точек представляют также фундаментальный интерес как модельный объект для изучения эффектов многочастичного взаимодействия в сильно коррелированных системах типа Мотта–Хаббарда [8].

Форма спектров ФЛ в основном определяется внутренними особенностями изучаемых образцов (энергетической структурой образца, распределением концентрации свободных носителей, возможностью образования фононов). Однако такие внешние факторы, как температура, при которой снимаются спектры ФЛ, частота и мощность возбуждающего ФЛ излучения, серьезно влияют на получаемые результаты.

Влияние мощности излучения на спектры ФЛ изучалось в ряде работ [9–13]. В этих работах квантовые точки имеют небольшой разброс по размерам, в то время как в процессе роста самоорганизующихся квантовых точек зачастую они образуются разных размеров [14,15]. Еще одной особенностью известных на данный момент работ является то, что основной акцент в них сделан

на изучение спектров фотолюминесценции структур при высоких мощностях накачки, в то время как влияние низкой мощности накачки на форму спектров ФЛ пока мало изучено. Также мало исследовано влияние легирования на спектры ФЛ легированных структур.

В работе [9], например, показано, что при увеличении мощности накачки с 0.5 до 32 Вт/см<sup>2</sup> наблюдается смещение положения пика ФЛ от квантовых точек InAs на величину 18 мэВ в сторону больших энергий, а также наблюдается уширение этого пика. Такое поведение авторы объяснили тем, что при низкой мощности накачки только часть квантовых точек оказывается в возбужденных состояниях, причем в первую очередь возбуждаются более крупные квантовые точки [10]. С увеличением мощности все большее число квантовых точек меньшего размера дает свой вклад в спектр ФЛ. Из работы [10] также следует, что в легированных образцах изначальное положение пика ФЛ должно быть более высокоэнергетическим, так как у части более крупных квантовых точек их энергетические уровни уже заполнены, и даже при самых низких мощностях засветки в ФЛ будут принимать участие точки меньших размеров.

Дальнейший рост интенсивности засветки (от 45 до 4500 Вт/см<sup>2</sup>) практически не влияет на положение пика спектра ФЛ, так как при таких мощностях в ФЛ принимают участие все точки. Однако это приводит к появлению новых, более высокоэнергетических пиков, связанных с возбуждением следующих энергетических уровней в квантовых точках [11].

Проведенные в работе [12] измерения спектров ФЛ при мощностях оптического возбуждения от 1 до 1100 Вт/см<sup>2</sup> показали, что в области до 100 Вт/см<sup>2</sup> происходит лишь увеличение амплитуды спектра, при этом его форма остается практически неизменной. Дальнейшее увеличение мощности, как и в работе [11], приводит к появлению новых линий в спектре.

Изучение спектров ФЛ при очень высоких мощностях оптического возбуждения (до 20 кВт/см<sup>2</sup>) было проведено в работе [13]. Большое количество экситонов, сконцентрированных в квантовых точках, и взаимодействие

<sup>¶</sup> E-mail: kulb@mig.phys.msu.ru

между ними приводит к тому, что энергия переходов из основных состояний уменьшается, в то время как пики ФЛ, связанные с переходами из возбужденных состояний, сдвигаются в более высокоэнергетическую область.

Таким образом, зависимость формы спектров фотолюминесценции в структурах с квантовыми точками от мощности оптического возбуждения разделяется на четыре участка. При низких мощностях происходит сдвиг пиков, связанный с включением в процесс новых квантовых точек. Далее идет участок линейного роста амплитуды без изменения формы спектра. Затем при достаточно высоких мощностях оптического возбуждения в спектрах ФЛ начинают появляться новые линии. И наконец, при очень высокой мощности возбуждения наблюдается смещение линий, связанное с взаимодействием между экситонами.

Появление дополнительных пиков ФЛ в структурах с квантовыми точками может быть связано не только с возбуждением очередных энергетических уровней. Так, например, в работах [14,15] наблюдающиеся два пика ФЛ связаны с тем, что в изучаемых структурах образуются квантовые точки двух различных размеров. В работе [15] также рассматривается температурная зависимость спектров ФЛ таких структур. При низкой температуре нерезонансное фотовозбуждение заселяет все квантовые точки равномерно. С повышением температуры растет вероятность туннелирования носителей между квантовыми точками, в результате чего преимущественно заселяются все более глубокие квантовые точки, в которых и будет происходить излучательная рекомбинация. Таким образом, с ростом температуры линия ФЛ будет смещаться в длинноволновую сторону в большей степени, чем это можно было бы объяснить уменьшением ширины запрещенной зоны.

В данной работе проведены исследования спектров фотолюминесценции как для легированных, так и для нелегированных образцов, содержащих квантовые точки двух различных размеров, полученные при относительно невысоких (в диапазоне от  $10 \text{ мВт/см}^2$  до  $9 \text{ Вт/см}^2$ ) мощностях оптического возбуждения в интервале температур от  $+4.2 \text{ К}$  до комнатной.

## 2. Образцы и методика измерений

Исследованные структуры были выращены при атмосферном давлении МОС-гидридной эпитаксией при температуре  $630^\circ\text{C}$ . Образец 1 представляет собой равномерно легированную кремнием матрицу GaAs толщиной  $1.3 \text{ мкм}$ , выращенную на полуизолирующей (001) GaAs-подложке, в середину которой встроены слои квантовых точек InAs, сформированный осаждением  $4.5 \text{ монослоя InAs}$ , окруженный с обеих сторон нелегированным спейсером из GaAs толщиной  $15 \text{ нм}$ . Образец 2 был выращен на вицинальной полуизолирующей (001) GaAs-подложке, разориентированной на  $2^\circ$  в направлении [110]. Он состоял из нелегированной

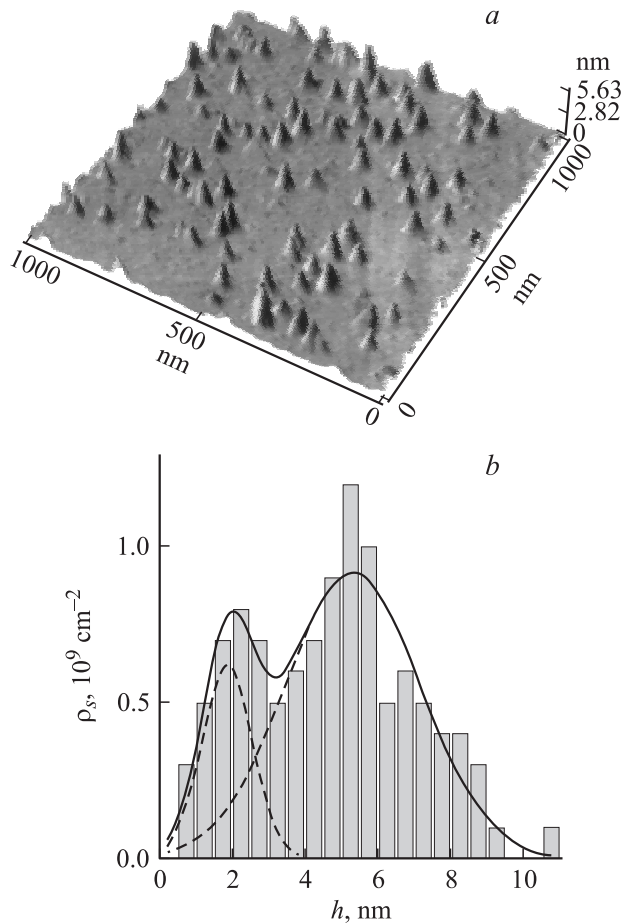
матрицы GaAs и слоя InAs-квантовых точек, сформированного при осаждении  $3.3 \text{ монослоя InAs}$ , находящегося вблизи поверхности структуры. Образец 3 выращивался на подложке с углом разориентации  $0.14^\circ$ , толщина слоя InAs в образце составляла  $1.4 \text{ монослоя}$ , что недостаточно для образования квантовых точек. Образец легирован двумя  $\delta$ -слоями Si, отделенными от слоя квантовых точек спейсерами из GaAs толщиной  $20 \text{ нм}$ . Общая толщина образца составляла  $0.8 \text{ мкм}$ . Таким образом, фотолюминесценция была исследована в образцах с легированными квантовыми точками (образец 1), нелегированными квантовыми точками (образец 2) и со смачивающим слоем InAs (образец 3).

Морфология поверхности с квантовыми точками изучалась на атомном силовом микроскопе Accurex TМХ-2100 в контактном режиме при атмосферном давлении.

Измерения спектров ФЛ проводились при температурах жидкого гелия, жидкого азота и комнатной с использованием спектрометра МДР-3, фотоэлектронного умножителя ФЭУ-62, работающего в режиме счета фотонов, при оптическом возбуждении излучением непрерывного АИГ-лазера с диодной накачкой типа LСМ-Т-111 (длина волны  $532 \text{ нм}$ , мощность излучения  $20 \text{ мВт}$ , расходимость лазерного пучка  $\theta = 1.4 \text{ мрад}$ ). Для фокусировки лазерного пучка использовалась сферическая линза с фокусным расстоянием  $f = 33.5 \text{ см}$ . Диаметр светового пятна  $d$  в фокальной плоскости линзы определялся по формуле  $d = \theta f$  [16, с. 525] и составлял  $0.47 \text{ мм}$ . С учетом отражения от стекол оптического криостата, выполненных из плавленого кварца, определяется мощность оптического излучения. При измерении спектров в области температур  $\sim 4.2 \text{ К}$  мощность оптического возбуждения изменялась в диапазоне от  $10 \text{ мВт/см}^2$  до  $9 \text{ Вт/см}^2$ .

## 3. Результаты измерений и их обсуждение

На рис. 1 приведено АСМ изображение легированного слоя квантовых точек после стравливания покровного слоя толщиной  $15 \text{ нм}$ . Для стравливания использовался избирательный травитель [17]. Несмотря на возможное подтравливание кластеров, по такому изображению можно судить о размерах и поверхностной плотности квантовых точек. Видно наличие двух типов квантовых точек. Характерные размеры более крупных, имеющих поверхностную плотность  $\sim 3 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$ , среднюю высоту  $\sim 5 \text{ нм}$  и латеральный размер  $\sim 40 \text{ нм}$ , близки к данным, полученным на слоях квантовых точек без их зарастивания. Мелкие квантовые точки, концентрация которых такого же порядка, менее однородны по размерам, возможно, из-за более сильного влияния подтравливания. Их средний латеральный размер  $\sim 30 \text{ нм}$  и высота  $\sim 2 \text{ нм}$ . Заметим, что на поверхностных слоях квантовых точек, полученных без зарастивания, подобные квантовые точки не наблюдаются. В связи с этим

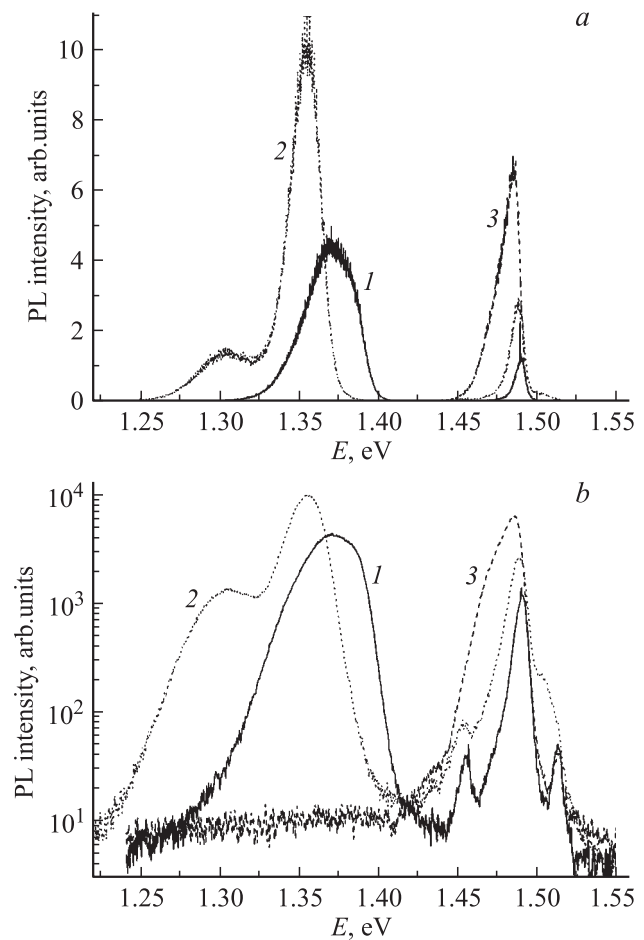


**Рис. 1.** *a* — АСМ-изображение поверхности образца с квантовыми точками, выявленными с помощью избирательного химического травления покровного слоя, *b* — гистограмма распределения поверхностной плотности квантовых точек по высоте для данной поверхности.

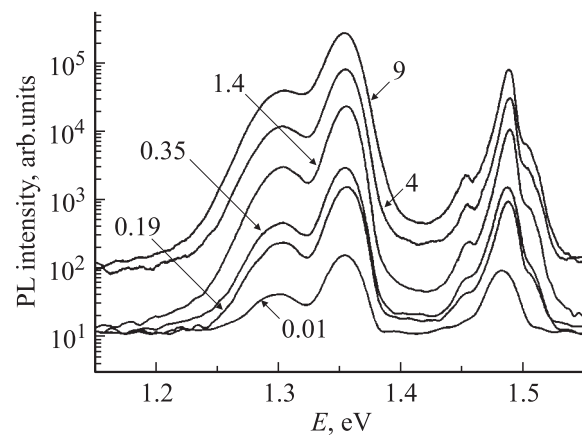
можно предположить, что они либо исчезают на свободной поверхности в результате коалесценции, либо образуются уже после нанесения покровного слоя в результате реконструкции смачивающего слоя. Последнюю может вызывать повышение упругих напряжений в относительно толстом смачивающем слое, вырастающем на свободной поверхности. Простой расчет показывает, что для образования квантовых точек указанных выше размеров и плотности достаточно изменения толщины смачивающего слоя на один монослой.

На рис. 2, *a* представлены спектры фотолюминесценции трех образцов при температуре  $T = 4.2$  К. Для большей наглядности на рис. 2, *b* спектры представлены в логарифмическом масштабе. Полученные спектры ФЛ можно условно разделить на низкоэнергетическую и высокоэнергетическую части, разделение происходит в области примерно 1.42 эВ. В спектрах образца 3 пики в низкоэнергетической области могут быть представлены суммой двух пиков, которые, скорее всего, соответствуют двум типам квантовых точек с разными размерами. На рис. 3 в качестве примера приведены

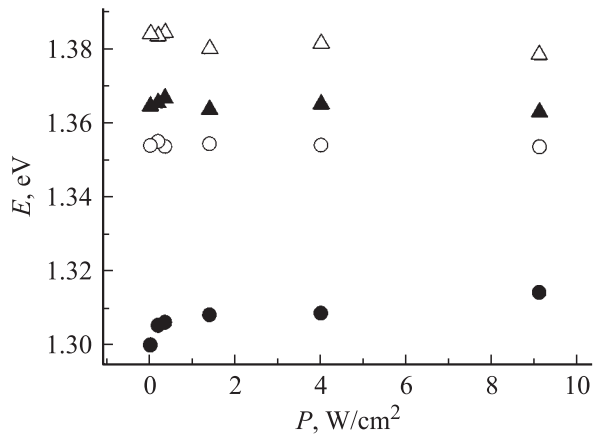
спектры фотолюминесценции образца 2, снятые при температуре 4.2 К при различных мощностях накачки. Как можно видеть из рис. 4, представляющего собой зависимости положения пиков спектров ФЛ, связанных с излучательными переходами в InAs-квантовых точках,



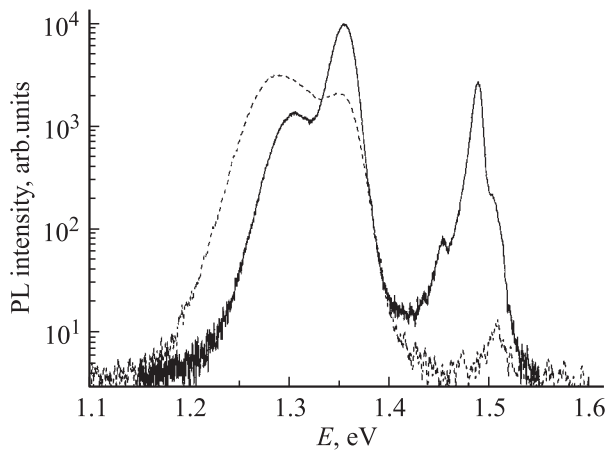
**Рис. 2.** *a* — спектры ФЛ образцов 1 (сплошная линия), 2 (точки) и 3 (пунктир) при температуре  $T = 4.2$  К; *b* — для наглядности приведены спектры в логарифмическом масштабе.



**Рис. 3.** Спектры ФЛ образца 2 при различных мощностях накачки  $P$  ( $\text{Вт}/\text{см}^2$ ) возбуждающего излучения при температуре  $T = 4.2$  К. Шум на хвостах кривых усреднен.



**Рис. 4.** Зависимость энергетического положения  $E$  двух пиков низкочастотной части спектров ФЛ от мощности накачки  $P$  возбуждающего излучения для образцов 1 (треугольники) и 2 (круги).



**Рис. 5.** Спектры ФЛ образца 2, полученные при температурах  $T = 4.2$  К (сплошная линия) и  $T = 77$  К (пунктирная линия).

от мощности накачки, положение низкоэнергетического пика в нелегированном образце 2 с ростом мощности накачки несколько сдвигается в сторону больших энергий на участке  $P < 0.4$  Вт/см<sup>2</sup>. Положение второго пика при этом остается практически неизменным. При этом амплитуда второго пика оказывается выше. Такое поведение можно объяснить тем, что в образце имеется большое количество квантовых точек меньшего размера (см. рис. 1), заселение которых происходит достаточно равномерно. Среди квантовых точек большего размера происходит сначала заселение самых крупных, и лишь при увеличении мощности заселяются все точки, что должно быть связано с высокой вероятностью туннелирования между квантовыми точками больших размеров. Наличие легирующей примеси в образце 1 приводит к тому, что в квантовых точках уже имеются носители, и, начиная с самых малых энергий накачки, сдвиг положений пиков практически не наблюдается.

Рассмотрим высокоэнергетическую область спектров. Как видно из рис. 2, эта область состоит из трех пиков. Самый высокоэнергетический пик находится в области  $E \approx 1.51 - 1.52$  эВ и соответствует переходам в матрице GaAs. Центральный пик большой амплитуды, вероятно, является переходом в смачивающем слое InAs (см., например, [18]), а пик, отстоящий от него на  $\sim 0.35$  эВ в сторону меньших энергий, можно приписать излучательным переходам в смачивающем слое, сопровождаемым испусканием продольных оптических фононов в матрице GaAs [19]. Различия в положении пиков от смачивающего слоя в различных образцах связаны с различиями в толщине этого слоя. Так, при номинальной толщине слоя InAs 1.4 монослоя, весь высаженный InAs составляет смачивающий слой. При увеличении количества InAs до 3.3 монослоя, он становится тоньше, в связи с тем что часть InAs перераспределяется в островки квантовых точек. Дальнейшее увеличение количества InAs приводит к дальнейшему истончению смачивающего слоя.

Большой размер квантовых точек в образце 2 может быть связан с разориентацией подложки, приводящей к тому, что InAs становится энергетически более выгодно скапливаться на границах террас, образуя крупные квантовые точки [15], чем собираться в множество мелких островков, равномерно распределенных по всей поверхности.

На рис. 5 представлены спектры фотолюминесценции образца 2, полученные при различных температурах. При переходе от  $T = 4.2$  К к  $T = 77$  К в спектре значительно ослабляется высокочастотная часть, что характерно для объемного GaAs, а низкочастотные пики от квантовых точек сдвигаются в область еще более низких энергий. Это поведение может быть объяснено увеличением подвижности носителей тока в структуре, что приводит к попаданию носителей в области с наиболее глубокими энергетическими уровнями, в которых и происходит излучательная рекомбинация. Сдвиг низкочастотной части для легированного образца 1 оказывается меньше, что связано с заполнением энергетически наиболее глубоких областей свободными носителями тока. При комнатной температуре получить спектры фотолюминесценции, поддающиеся адекватной интерпретации, не удастся в связи с большой величиной температурного размытия и малой амплитудой линий.

## 4. Заключение

Проведены исследования спектров фотолюминесценции структур InAs/GaAs с квантовыми точками при различных мощностях возбуждающего фотолюминесценцию излучения и температурах. Спектры состоят из низкоэнергетической части, связанной с рекомбинацией электронов и дырок внутри квантовых точек, и высокоэнергетической, обусловленной переходами в GaAs-матрице и смачивающем слое InAs. Из анализа низкоэнергетической части спектров показано, что в

исследованных структурах имеются квантовые точки двух характерных размеров. При увеличении мощности накачки на начальном участке обнаруживается сдвиг одной из линий спектра ФЛ в нелегированном образце, связанный с включением в процесс ФЛ большего числа квантовых точек. С ростом температуры интенсивность высокоэнергетической части спектра уменьшается, а низкоэнергетическая смещается в область еще более низких энергий, что связано с увеличением подвижности носителей тока в структуре и их перераспределением между квантовыми точками разных размеров.

Работа поддержана грантами: РФФИ № 05.02.17029а, НШ № 2043.2003.2 и МНТП ФТНС № 97-1048.

## Список литературы

- [1] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Щукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП, **32**, 385 (1998).
- [2] A.D. Yoffe. Adv. Phys., **50**, 1 (2001).
- [3] M. Crassi Alessi, M. Capizzi, A.S. Bhatti, A. Frova, F. Martelli, P. Frigeri, A. Bosacchi, S. Franchi. Phys. Rev. B, **59**, 7620 (1999).
- [4] D. Bimberg, M. Grundman, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures*, J. Willey & Sons Ltd. (1999).
- [5] V.A. Kulbachinskii, R.A. Lunin, V.A. Rogozin, Yu.V. Fedorov, Yu.V. Khabarov, A. de Visser. Semicond. Sci. Technol., **17**, 947 (2002).
- [6] M. Bissiri, G. Baldassarri Hoger von Hogersthall, A.S. Bhatti, M. Capizzi, A. Frova, P. Frigeri, S. Franchi. Phys. Rev. B, **62**, 4642 (2000).
- [7] S. Fafard, Z.R. Wasilewski, C.Ni. Allen, D. Picard, M. Spanner, J.P. McCaffrey, P.G. Piva. Phys. Rev. B, **59**, 15 368 (1999).
- [8] M. Chiba, V.A. Fradkov, A.L. Karuzskii, A.V. Perestoronin, B.G. Zhurkin. Physica B, **302/303**, 408 (2001).
- [9] J.Z. Wang, Z.M. Wang, Z.G. Wang, Y.H. Chen, Z. Yang. Phys. Rev. B, **61**, 15 614 (2000).
- [10] A.W.E. Minnaert, A.Yu. Silov, W. van der Vleuten, J.E.M. Haverkort, J.H. Wolter. Phys. Rev. B, **63**, 075 303 (2001).
- [11] M.J. Steer, D.J. Mowbray, W.R. Tribe, M.S. Skolnick, M.D. Sturge, M. Hopkinson, A.G. Cullis, C.R. Whitehouse, R. Murray. Phys. Rev. B, **54**, 17 738 (1996).
- [12] M. Henini, S. Sanguinetti, S.C. Fortina, E. Grilli, M. Guzzi, G. Panzarini, L.C. Andreani, M.D. Upward, P. Moriarty, P.H. Beton, L. Eaves. Phys. Rev. B, **57**, R6815 (1998).
- [13] R. Heitz, F. Giffarth, I. Mukhametzhanov, M. Grundman, A. Madhukar, D. Bimberg. Phys. Rev. B, **62**, 16 881 (2000).
- [14] H. Kissel, U. Muller, C. Walther, W.T. Masselink, Yu.I. Mazur, G.G. Tarasov, M.P. Lisitsa. Phys. Rev. B, **62**, 7213 (2000).
- [15] Д.Г. Васильев, В.П. Евтихийев, В.Е. Токранов, И.В. Кудряшов, В.П. Кочерешко. ФТТ, **40**, 855 (1998).
- [16] Ф. Качмарек. *Введение в физику лазеров* (М., Мир, 1981).
- [17] I.A. Karpovich, A.V. Zdoroveishev, A.P. Gorshkov, D.O. Filatov, R.N. Skvortsov. Phys. Low-Dim. Struct. **1/2**, 143 (2003).
- [18] K.H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P.M. Petroff, G.H. Dohler. Phys. Rev. B, **54**, 11 346 (1996).
- [19] R. Heitz, I. Mukhametzhanov, O. Steir, A. Madhukar, D. Bimberg. Phys. Rev. Lett., **83**, 4654 (1999).

Редактор Л.В. Беляков

## Peculiarities of the photoluminescence of InAs/GaAs structures with quantum dots unger different pumping power

V.A. Kulbachinskii, V.A. Rogozin, R.A. Lunin, A.A. Belov, A.L. Karuzskii, A.V. Perestoronin, A.V. Zdoroveishev

M. Lomonosov Moscow State University, 119992, GSP-2 Moscow, Russia

**Abstract** Photoluminescence spectra of InAs/GaAs structures with quantum dots have been investigated under different pumping power at various temperatures. Data show the presence of quantum dots of two characteristic dimensions. Under the pumping power increase one of the spectrum line shifts. At higher temperatures the intensity of the high energy part of the spectrum decreases while the low energy part shifts to lower energies.