

Длинноволновое излучение в структурах с квантовыми точками, полученными при стимулированном распаде твердого раствора на напряженных островках

© Б.В. Воловик, А.Ф. Цацульников, Д.А. Бедарев, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, Н.А. Малеев, Ю.Г. Мусихин, А.А. Суворова, В.М. Устинов, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг*, П. Вернер†

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

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

† Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik, 06120 Halle, Germany

(Получена 15 февраля 1999 г. Принята к печати 18 февраля 1999 г.)

При заращивании массива напряженных наностроек InAs, сформированных на поверхности GaAs, тонким (1–10 нм) слоем индийсодержащего твердого раствора обнаружен эффект стимулированного распада твердого раствора, приводящий к образованию областей с повышенной концентрацией In вблизи наностроек. В результате этого эффекта объем сформированной InAs квантовой точки увеличивается, что приводит к значительному длинноволновому смещению линии фотолюминесценции. Данный эффект усиливается с уменьшением температуры подложки и слабо зависит от средней ширины запрещенной зоны твердого раствора. Указанный подход позволил получить излучение на длине волны 1.3 мкм при комнатной температуре.

1. Введение

Эффекты самоорганизации, приводящие к получению полупроводниковых гетероструктур с квантовыми точками (КТ) и квантовыми проволоками [1], вызывают большой интерес как с точки зрения выявления фундаментальных аспектов эпитаксиального роста, так и для создания опто- и микроэлектронных приборов нового поколения. Наибольший прогресс в области приборных применений достигнут при использовании эффекта спонтанной трансформации тонкого напряженного слоя на массив когерентных островков [2–4]. В настоящее время созданы инжекционные лазеры на основе КТ, демонстрирующие сверхвысокую температурную стабильность пороговой плотности тока J_{th} , низкое значение J_{th} [4–6] и генерацию в непрерывном режиме при комнатной температуре с выходной мощностью более 3 Вт [7].

Одним из преимуществ использования структур с КТ является возможность расширения оптического диапазона излучения по сравнению со структурами на основе квантовых ям. Так, структуры с In(Ga)As/(Al)GaAs КТ позволяют получить излучение в диапазоне 1–1.6 мкм [4,8–10]. В частности, структуры с КТ являются перспективными для создания приборов, излучающих на длине волны 1.3 мкм [9,10]. В настоящее время созданы лазеры на основе InGaAs КТ с длиной волны излучения 1.3 мкм [10]. Тем не менее вследствие быстрого насыщения усиления генерация через основное состояние КТ была получена только при больших длинах резонатора и с нанесением высокоотражающих покрытий. Во многом проблемы достижения диапазона 1.3 мкм для структур с InGaAs/GaAs КТ связаны с тем, что

средняя толщина InAs в активной области достаточно велика, и велика вероятность образования дислокаций несоответствия. Таким образом, актуальным представляется поиск новых подходов для создания приборов на основе КТ, излучающих на 1.3 мкм, при этом необходимо минимизировать количество In в активной области. В работе [10] для получения излучения с длиной волны 1.3 мкм осаждалось 5.5 монослоев InAs. В настоящей работе это количество уменьшено до 4 монослоев.

Мы исследовали структурные и оптические свойства массивов КТ, заращенных слоем твердого раствора (In, Ga, Al)As. Сформированные КТ стимулируют распад твердого раствора, что приводит к увеличению концентрации In вблизи КТ и к длинноволновому сдвигу линии излучения. Данный подход позволяет получить излучение от InAs КТ на длине волны вплоть до 1.32 мкм, при этом значительно снизив общее содержание In в активной области.

2. Эксперимент

Исследуемые структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на установке Riber 32P на полупроводящих подложках GaAs (100). Активная область помещалась в матрицу GaAs и состояла из массива квантовых точек, формирующихся при осаждении тонкого слоя InAs. Для различных структур эффективная толщина слоя InAs в КТ (d_{QD}) изменялась от 2 до 3 монослоев (МС). КТ заращивались твердым раствором InGaAs или InGaAlAs. Толщина слоя (In, Ga, Al)As (L) варьировалась от 2.5 до 8 нм, концентрация In в твердом растворе (x) изменялась от 0.1

до 0.4. Для предотвращения транспорта неравновесных носителей при проведении оптических исследований в приповерхностную область и в область подложки активная область ограничивалась с обеих сторон короткопериодными сверхрешетками AlAs/GaAs. Температура роста составляла 485°C для активной области и 600°C для остальной части структуры. Формирование КТ контролировалось по картине дифракции быстрых электронов на отражение.

Исследования методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) проводились на электронном микроскопе Philips EM 420 при ускоряющем напряжении 100 кВ. Фотолюминесценция (ФЛ) возбуждалась Ar⁺-лазером ($\lambda = 514.5$ нм, плотность возбуждения ~ 100 мВ/см²). При измерении спектров возбуждения люминесценции свет галогеновой лампы пропускался через монохроматор. Люминесценция детектировалась охлаждаемым Ge фотодиодом.

3. Результаты и их обсуждение

В настоящее время наибольший прогресс в создании лазеров на основе (In,Ga)As/GaAs КТ достигнут при использовании КТ на начальном этапе их формирования [6,7], которые характеризуются высокой плотностью, отсутствием дислокаций и малыми временами захвата и релаксации носителей. Для реализации длинноволнового излучения в структурах с InAs КТ на начальном этапе формирования ($d_{QD} \sim 2$ МС) массивы КТ зарощивались слоем твердого раствора In_xGa_{1-x}As.

На рис. 1, *a* приведены спектры ФЛ структур с InAs КТ, полученными в результате осаждения ~ 2 МС InAs и зарощенными слоем твердого раствора In_xGa_{1-x}As с различной концентрацией In (x). Толщина слоя In_xGa_{1-x}As для всех структур составляла 4 нм. Помимо линии *QD*, связанной с рекомбинацией носителей в образовавшихся КТ, в спектре ФЛ проявляется линия, обозначенная на рис. 1 как *QW*. Для исследования природы этой линии мы исследовали спектры возбуждения люминесценции (СВЛ) (рис. 1, *b*). В спектрах возбуждения линии *QD* можно различить пики *P1*, *P2* и *P3*, которые отстоят от энергии детектирования на энергии 35, 74 и 102 мэВ соответственно. Такой вид СВЛ является типичным для структур с КТ [11] и связан с многофононным механизмом релаксации носителей из возбужденных состояний КТ. В СВЛ проявляется также линия *QW*, положение которой совпадает с положением линии *QW* в спектрах ФЛ и не зависит от энергии детектирования. Данный результат показывает, что линия *QW* связана с возбуждением носителей в континуум твердого раствора InGaAs.

Из спектров ФЛ (рис. 1) видно, что линия *QW* демонстрирует длинноволновый сдвиг при увеличении концентрации In в твердом растворе InGaAs и существенно сдвинута в длинноволновую сторону относительно линии смачивающего слоя, наблюдающейся в спектре обычных

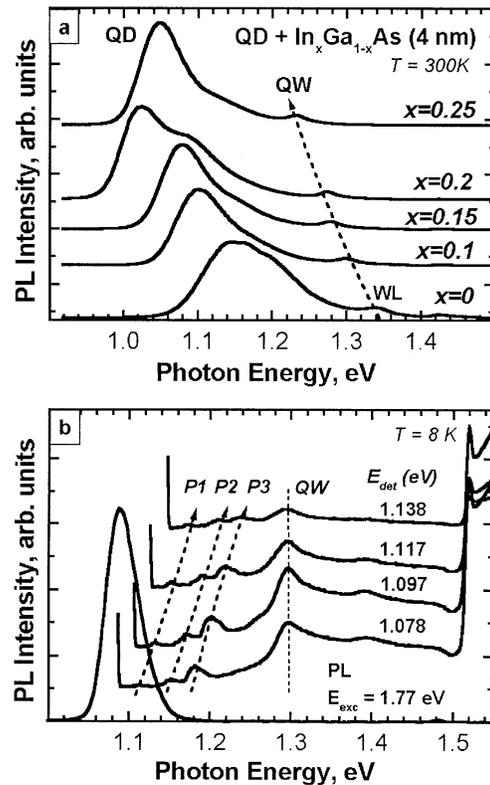


Рис. 1. *a* — спектры ФЛ для структур с InAs КТ ($d_{QD} = 2$ МС), зарощенными слоем In_xGa_{1-x}As, $L = 4$ нм. *b* — спектр ФЛ и спектры возбуждения люминесценции для структур с InAs КТ ($d_{QD} = 2$ МС), зарощенными слоем InGaAs. Энергии возбуждения и детектирования приведены около спектров.

InAs/GaAs КТ (линия *WL* на рис. 1, *a*). Таким образом, КТ находятся в более узкозонной по сравнению с GaAs матрице InGaAs.

Отметим, что, несмотря на зарощивание КТ более узкозонным по сравнению с GaAs материалом, энергетическое расстояние между максимумом ФЛ КТ (линия *QD*) и пиком *QW* составляет около 200 мэВ, что сравнимо со значениями, полученными для обычных КТ в матрице GaAs [4], и свидетельствует об эффективной локализации носителей в КТ.

Из спектров ФЛ (рис. 1, *a*) видно, что при увеличении x в диапазоне от 0 до 0.2 наблюдается смещение линии ФЛ *QD* в область меньших энергий фотона. Однако дальнейшее повышение x до 0.25 характеризуется сдвигом линии *QD* в коротковолновую сторону. С другой стороны, при увеличении толщины слоя InGaAs от 4 до 8 нм при постоянном значении x (0.15 или 0.2) мы также наблюдали коротковолновое смещение пика *QD*. Энергетическое положение линий *QD* и *QW* в спектрах ФЛ в зависимости от параметров слоя In_xGa_{1-x}As показано на рис. 2, *a*. Дальнейшее увеличение концентрации In до 0.35–0.4 при $L = 4$ нм позволило тем не менее получить излучение на длине волны 1.3 мкм, но, как

Образец	d_{QD} (МС)	x	L , нм	Латеральный размер КТ, нм	Плотность КТ, см^{-2}	Плотность дислокаций несоответствия, см^{-1}
A	~ 2.2	0.18	2.6	15	$3.4 \cdot 10^{10}$	$2.3 \cdot 10^4$
B	~ 2.7	0.18	2.6	18	$4.3 \cdot 10^{10}$	$2.7 \cdot 10^4$
C	~ 2.7	0.18	3	18	$4.5 \cdot 10^{10}$	$3.2 \cdot 10^4$
D	~ 2.7	0.21	2.6	17	$4.6 \cdot 10^{10}$	$6.5 \cdot 10^4$

показали исследования ПЭМ, при этом резко возрастает плотность проникающих дислокаций.

На рис. 2, *b* приведена зависимость интегральной интенсивности ФЛ от эффективной толщины InAs в активной области ($d_{\text{eff}} = d_{QD} + L \times x$), которая для данных образцов возрастает за счет увеличения концентрации In в твердом растворе. Видно, что при значениях x , превышающих 0.3 (что при $d_{QD} = 2$ МС и $L = 4$ нм соответствует $d_{\text{eff}} = 18 \text{ \AA}$), интенсивность ФЛ значительно уменьшается.

Из проведенных исследований видно, что для структур с 2 МС InAs КТ при зарачивании КТ твердым раствором InGaAs удается получить длинноволновое излучение, однако при некоторой критической концентрации In в слое InGaAs (в данном случае при $x \sim 0.25$) появляется эффект, ведущий к коротковолновому сдвигу линии ФЛ КТ. В этом случае для получения длинноволнового излучения необходимо значительно увеличивать концентрацию In в слое InGaAs, что ведет к образованию дислокаций и в конечном счете к ухудшению оптических свойств структур (рис. 2, *b*).

Альтернативная возможность получения излучения на длине волны 1.3 мкм заключается в увеличении эффективной толщины слоя InAs (d_{eff}) без повышения концентрации In в твердом растворе. Нами была выращена серия образцов, в которой эффективная толщина слоя InAs варьировалась за счет изменения количества InAs при осаждении КТ (d_{QD}) и за счет изменения толщины слоя InGaAs (L), при этом значение x не превышало 21%. Параметры активной области этих структур и данные ПЭМ (плотность и размеры КТ, а также плотность дислокаций несоответствия, образующихся на интерфейсе в плоскости КТ) приведены в таблице. На рис. 3 показаны спектры ФЛ данных образцов. Из сопоставления результатов ПЭМ и ФЛ можно сделать следующие выводы. Во-первых, увеличение общего количества In при последовательном осаждении КТ и слоя InGaAs приводит к увеличению размеров островков и к длинноволновому сдвигу линии ФЛ КТ. Однако при некотором критическом значении концентрации атомов In (в данном случае для $d_{QD} = 2.7$ МС и $L = 25 \text{ \AA}$, $x = 21\%$) происходит увеличение плотности дислокаций несоответствия, что сопровождается сдвигом линии ФЛ КТ в сторону больших энергий фотона на 25 мэВ. Этот эффект аналогичен эффекту, наблюдавшемуся для 2 МС КТ.

Мы предполагаем, что при зарачивании массива КТ слоем InGaAs атомы In распределяются в плоскости роста неравномерно за счет напряжений, вызванных КТ.

В результате вблизи сформировавшихся КТ образуются области с повышенной концентрацией In, что приводит к эффективному увеличению размеров КТ. Эффект распада квантовой ямы вследствие влияния массива КТ описан в работах [12,13] для различных материалов. При содержании In свыше определенного значения концентрация In вблизи точек с наибольшим размером может превысить критическое значение и образуются дислокации несоответствия, лежащие в плоскости КТ. Так как при этом излучательной рекомбинации в этих точках не происходит, интенсивность длинноволновой части спектра ФЛ уменьшается, и линия ФЛ сдвигается в коротковолновую сторону. Другой причиной коротко-

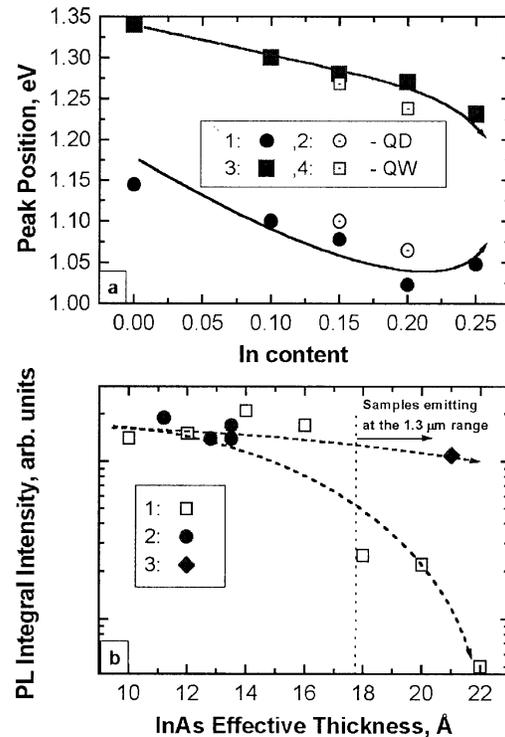


Рис. 2. *a* — положение пиков ФЛ КТ (линия QD) и слоя InGaAs (линия QW) в зависимости от концентрации In в слое InGaAs. L , нм: 1, 3 — 4; 2, 4 — 8. *b* — зависимость интегральной интенсивности ФЛ от эффективной толщины слоя InAs. 1 — структуры с $d_{QD} = 2$ МС, $L = 4$ нм и с различной концентрацией In в твердом растворе (x); 2 — структуры с различной эффективной толщиной InAs в активной области. Параметры структур приведены в таблице; 3 — структура с InAs КТ ($d_{QD} = 3$ МС), осажденными в середину слоя $\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{As}$.

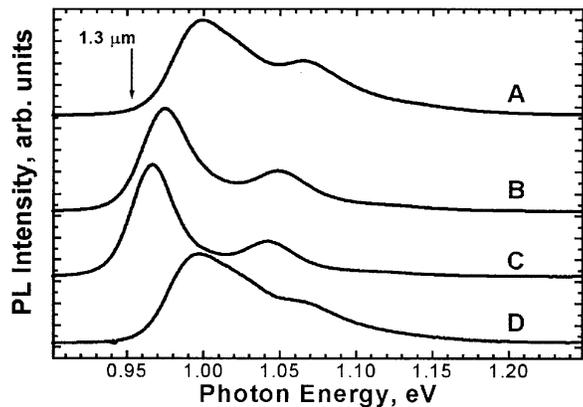


Рис. 3. Спектры ФЛ для структур с различной эффективной толщиной InAs в активной области. Параметры структур A–D приведены в таблице.

волнового смещения линии ФЛ КТ при одновременном длинноволновом сдвиге линии ФЛ слоя InGaAs может быть изменение кинетики роста при заравнивании островков твердым раствором InGaAs с большим содержанием In. При этом доля атомов In, осаждающаяся вблизи КТ, уменьшается, что приводит к возрастанию среднего содержания In.

Поскольку увеличение размера КТ при повышении количества InAs в КТ от 2.2 до 2.7 МС не приводит к повышению плотности дислокаций несоответствия, для реализации дальнейшего длинноволнового сдвига нами была выращена структура с 3 МС InAs КТ, осажденными в середину широкого (10 нм) слоя $\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{As}$. На рис. 4 показаны изображения ПЭМ в плоскости роста и в поперечном сечении для указанной структуры. Из изображения поперечного сечения видно, что высота образовавшихся островков сравнима с толщиной слоя InGaAs, что свидетельствует о практически полном заравнивании КТ слоем InGaAs. Таким образом, сформированные КТ находятся в узкозонной матрице InGaAs. Кроме этого, из сравнения ПЭМ изображений в плоскости роста для структур с 3 МС InAs со слоем твердого раствора InGaAs и без него [4] видно, что осаждение InGaAs приводит к увеличению латеральных размеров КТ от ~ 15 до ~ 20 нм.

Указанная структура демонстрирует излучение на длине волны 1.3 мкм при комнатной температуре (рис. 5). Отметим также, что при повышении эффективной толщины слоя InAs за счет увеличения d_{QD} и L и одновременном снижении концентрации In в твердом растворе интегральная интенсивность ФЛ практически не изменя-

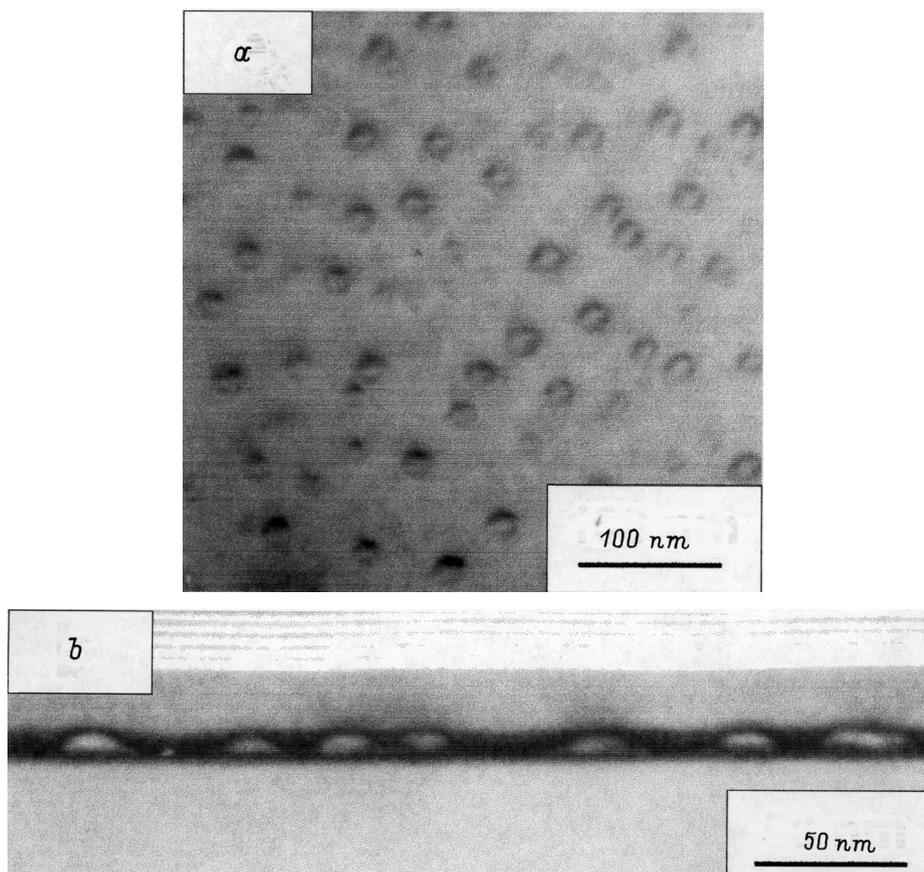


Рис. 4. ПЭМ изображения в плоскости роста (a) и в поперечном сечении (b) структуры с InAs КТ ($d_{QD} = 3$ МС), осажденными в середину слоя $\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{As}$.

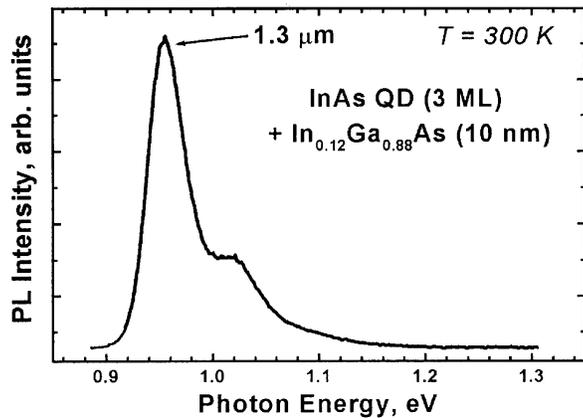


Рис. 5. Спектр ФЛ для структуры с InAs КТ ($d_{QD} = 3$ ML), осажденными в середине слоя $\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{As}$.

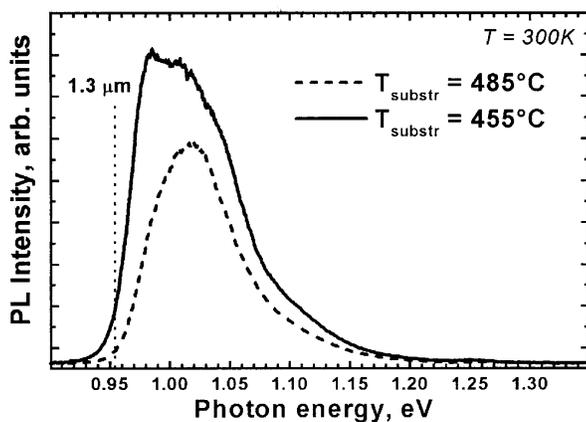


Рис. 6. Спектры ФЛ для с InAs КТ ($d_{QD} = 2.2$ ML), выращенными слоем $\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{As}$ при различных температурах. Температуры выращивания приведены около спектров.

ется (рис. 2, *b*). Таким образом, данный подход позволяет получить излучение на длине волны 1.3 мкм и при этом избежать ухудшения оптических свойств структур.

В дальнейшем мы предприняли попытку снизить суммарное количество In в активной области, при этом сохраняя длинноволновое излучение на длине волны около 1.3 мкм. Для этого мы исследовали влияние температуры роста при выращивании КТ слоем InGaAs на оптические свойства структур. На рис. 6 показаны спектры ФЛ образцов, температура роста слоя InGaAs для которых составляла 485 и 455°C соответственно. Видно, что уменьшение температуры роста приводит к длинноволновому сдвигу излучения. Это может быть связано с влиянием температуры на кинетику распада слоя InGaAs. Полученный результат показывает возможность реализации дальнейшего длинноволнового сдвига линии ФЛ при выборе соответствующих температурных режимов.

Кроме этого, было предложено использовать эффект распада твердого раствора InGaAlAs/GaAs, ранее наблюдавшийся нами для спонтанно распадающихся сло-

ев [1,14]. Были выращены структуры с InAs КТ, выращенными твердым раствором InGaAlAs. Исследования показали, что внедрение Al в твердый раствор приводит к значительному длинноволновому сдвигу линии излучения КТ, несмотря на существенное увеличение ширины запрещенной зоны матрицы. Этот эффект может быть объяснен в предположении, что внедрение Al приводит к значительному усилению эффекта распада твердого раствора и к увеличению концентрации In вблизи КТ. Необходимо отметить, что суммарное количество In в активной области для указанной структуры соответствует 12.5 Å InAs, что значительно меньше значения 16.5 Å, приведенного в работе [10], в которой сообщалось о лазерной генерации на длине волны 1.3 мкм. Таким образом, нам удалось заметно снизить суммарное количество In в активной области, при этом достигнуть излучения на длине волны более 1.3 мкм при комнатной температуре.

4. Заключение

В результате проведенных исследований показано, что наращивание массива InAs КТ тонким слоем твердого раствора (In, Ga, Al)As приводит к распаду твердого раствора и образованию локальных областей вблизи КТ, имеющих повышенную концентрацию атомов In. Это приводит к эффективному увеличению размеров КТ и к значительному длинноволновому сдвигу излучения фотолуминесценции вплоть до 1.3 мкм при комнатной температуре. Исследована зависимость оптических свойств таких структур от условий выращивания и показана возможность реализации длинноволнового сдвига излучения без ухудшения оптических свойств структур. Показано, что добавление небольших концентраций Al в твердый раствор позволяет значительно снизить общее количество InAs в активной области, при этом сохраняя длину волны излучения более 1.3 мкм. Полученный результат показывает возможность создания лазеров на основе InAs КТ на подложках GaAs, излучающих на длине волны 1.3 мкм.

Работа выполнялась при поддержке РФФИ, INTAS (гранты 96-0467 и 94-1028-YSF-41), программы Министерства науки "Физика твердотельных наноструктур" и Volkswaden Foundation.

Список литературы

- [1] N.N. Ledentsov. Prog. Cryst. Growth and Charact., **35**, 289 (1997).
- [2] L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. Le Roux. Appl. Phys. Lett., **47**, 1099 (1985).
- [3] P.M. Petroff, S.P. DenBaars. Superlat. Microstruct., **15**, 15 (1994).
- [4] N.N. Ledentsov, M. Grundmann, N. Kirstaedter, O. Schmidt, R. Heitz, J. Bohrer, D. Bimberg, V.M. Ustinov, V.A. Shchukin, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, S.S. Ruvimov, A.O. Kosogov, P. Werner, U. Richter, U. Gosele, J. Heydenreich. Sol. St. Electron., **40**, 785 (1996).

- [5] N. Kirstaedter, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, S.S. Ruvimov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich. *Electron. Lett.*, **30**, 1416 (1994).
- [6] М.В. Максимов, Н.Ю. Гордеев, С.В. Зайцев, П.С. Копьев, И.В. Кочнев, Н.Н. Леденцов, А.В. Лунев, С.С. Рувимов, А.В. Сахаров, А.Ф. Цацульников, Ю.М. Шерняков. *Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП*, **31**, 162 (1997).
- [7] A.R. Kovsh, D.A. Livshits, A.E. Zhukov, A.Yu. Egorov, M.V. Maximov, V.M. Ustinov, N.N. Ledentsov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, D. Bimberg. *Proc. 7th Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology"* (St. Petersburg, Russia, 1999) (to be published).
- [8] 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. *Proc. ICPS24*, Jerusalem, 1998 (World Scientific, 1998).
- [9] R.P. Mirin, J.P. Ibbetson, K. Nishi, A.C. Gossard, J.E. Bowers. *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 3795 (1995).
- [10] D.L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O.B. Shchekin, D.G. Deppe. *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 2564 (1998).
- [11] R. Heitz, M. Grundmann, N.N. Ledentsov, L. Eeckey, 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).
- [12] А.Ф. Цацульников, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.В. Сахаров, А.А. Суворова, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. *ФТП*, **31**, 109 (1997).
- [13] M. Sopanen, H. Lispanen, J. Ahopelto. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 2364 (1995).
- [14] I.L. Krestnikov, A.V. Sakharov, N.N. Ledentsov, I.P. Soshnikov, Yu.G. Musikhin, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, I.V. Kochnev, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, D. Bimberg. *Proc. 6th Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology"* (St. Petersburg, Russia, 1998) p. 257.

Редактор В.В. Чалдышев

Long wavelength emission in the structures with quantum dots obtained by stimulated alloy decomposition on the strained islands

B.V. Volovik, A.F. Tsatsul'nikov, D.A. Bedarev, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, N.N. Ledentsov, M.V. Maximov, N.A. Maleev, Yu.G. Musikhin, A.A. Suvorova, V.M. Ustinov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, D. Bimberg*, P. Werner⁺

A.F. Ioffe Physicotechnical Institute,
194021 St.Petersburg, Russia

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

⁺ Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik,
06120 Halle, Germany

Abstract The overgrowth of array of the InAs stained nanoislands by thin (1–10 nm) layer of In-containing alloy is shown to lead in stimulated alloy decomposition. This leads to a formation of the In-rich areas near InAs islands. Thus, the effective volume of the InAs quantum dots increases, leading to a long wavelength shift of the photoluminescence line. This phenomena is more pronounced at low substrate temperatures, and it exhibits weak dependence on the alloy bandgap width. This approach allows us to obtain 1.3 μm emission at room temperature.