

Механизмы распада твердого раствора InGaAlAs, стимулированного квантовыми точками InAs

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

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

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

(Получена 21 сентября 1999 г. Принята к печати 23 сентября 1999 г.)

Проведено исследование механизмов распада твердого раствора InGaAlAs, стимулированного преднамеренным осаждением слоя квантовых точек InAs. Распад твердого раствора вызывает увеличение эффективного размера квантовых точек и смещение линии фотолюминесценции вплоть до 1.3 мкм. При введении в твердый раствор атомов Al наблюдается эффект "консервации" атомов In внутри квантовых точек, также приводящий к эффективному увеличению их размера.

В настоящее время значительный интерес прикован к структурам с квантовыми точками (КТ) (In,Ga)As в матрице GaAs [1–4]. Это связано с возможностью расширения оптического диапазона излучения структур, выращенных на подложках GaAs, вплоть до длин волн порядка 1.3 мкм. Недавно было сообщено о создании инжекционного лазера с длиной волны генерации 1.3 мкм с активной областью, созданной на основе таких КТ [5]. Однако возникает проблема уменьшения плотности дислокаций, появляющихся из-за необходимости осаждения слоя InGaAs большой эффективной толщины. В работах [6,7] было показано, что излучение структур может достигать длины волны $\lambda = 1.3$ мкм при заращивании КТ InAs также и тонким слоем InGaAs. Возникающий при этом стимулированный распад твердого раствора приводит к формированию локальных областей с увеличенной концентрацией атомов In вблизи КТ, обуславливающих длинноволновое смещение линии фотолюминесценции (ФЛ). Такой метод позволяет уменьшить эффективную толщину слоя InGaAs, при которой достигается излучение с длиной волны 1.3 мкм. В данной работе детально исследованы механизмы распада твердого раствора InGaAlAs, стимулированного преднамеренным осаждением слоя КТ InAs.

Исследуемые структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на установке Riber 32P на полуизолирующих подложках GaAs(100). Эффективная толщина осажденного слоя InAs d_{QD} , так же как толщина слоя InGaAlAs W и его состав, приведены в таблице. Исследования методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) проводились на электронном микроскопе Philips EM-420 при ускоряющем напряжении 100 кВ. ФЛ возбуждалась Ar^+ -лазером ($\lambda = 514.5$ нм, плотность возбуждения $P_{\text{ex}} \approx 100$ Вт/см²) и детектировалась охлаждаемым Ge-фотодиодом.

Электронно-микроскопические исследования в геометрии поперечного сечения были проведены в режиме темного поля с использованием отражения (200), имеющего сильную чувствительность к химическому составу материалов $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$. На рис. 1,а приведено изображе-

ние структуры 1, где видно, что при осаждении слоя InGaAlAs, обеспечивающего создание квантовой ямы (КЯ) в плоскости гетероструктуры (в дальнейшем называемого слоем КЯ), не наблюдается каких-либо особенностей контраста, что свидетельствует о том, что образования КТ не происходит. В случае последовательного осаждения КТ InAs и КЯ InGaAlAs на участках структуры над КТ наблюдается темный контраст (рис. 1, б), отличающийся от обычного деформационного контраста, обусловленного несопадением периодов решеток КТ и матрицы. Простой анализ интенсивности отражения (200) для четверного твердого раствора InGaAlAs показывает, что ее уменьшение (или появление темного контраста) может происходить за счет снижения концентрации Al и(или) повышения концентрации In. Можно предположить, что локальные напряжения, создаваемые КТ в матрице, стимулируют перераспределение In и(или) Al в слое КЯ таким образом, что область возле и над КТ оказывается обогащенной In и(или) обедненной Al. Такое перераспределение должно приводить к увеличению эффективного размера КТ. Кроме того, анализ ПЭМ изображений образцов в планарной геометрии показал, что при увеличении толщины слоя КЯ заметно уменьшается разброс по размерам КТ. Мы полагаем, что этот эффект

Образец	d_{QD} , нм	Состав слоев	W , нм	L_{QD} , нм	ρ_{QD} , 10^{10} см ⁻²
1	–	$\text{In}_{0.15}\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.70}\text{As}$	8	–	–
2	0.65	$\text{In}_{0.15}\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.70}\text{As}$	8	19	2.8
3	0.65	GaAs			
4	0.65	$\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{As}$	2.5	15	3.4
5	0.8	$\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{As}$	2.5	18	4.3
6	0.8	$\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{As}$	3.0	28	4.5
7	0.65	$\text{In}_{0.20}\text{Ga}_{0.80}\text{As}$	4.0		
8	0.65	$\text{In}_{0.05}\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$	4.0		
9	0.65	$\text{In}_{0.10}\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.70}\text{As}$	4.0		
10	0.65	$\text{In}_{0.15}\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.70}\text{As}$	4.0	17	1.8

Примечание. L_{QD} — латеральный размер квантовой точки, ρ_{QD} — поверхностная плотность квантовых точек.

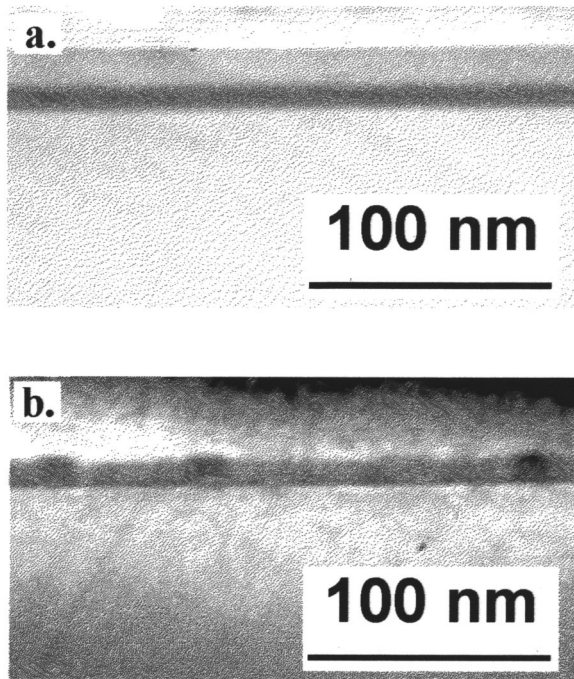


Рис. 1. Изображения структур 1 (a) и 2 (b), полученные методом просвечивающей электронной микроскопии, в геометрии поперечного сечения.

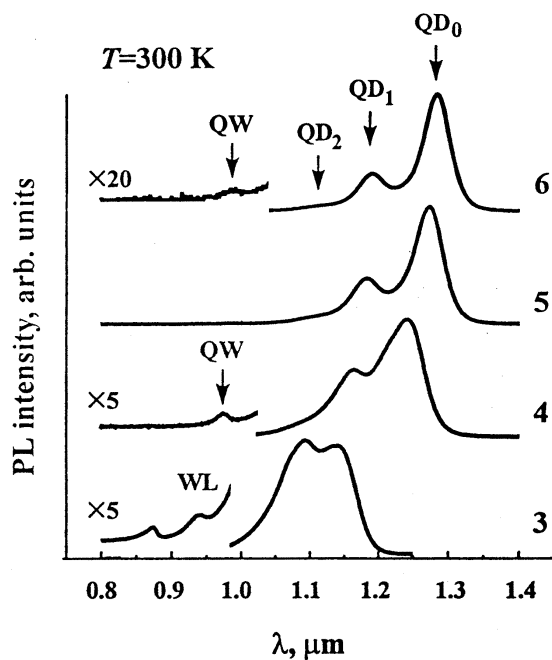


Рис. 2. Спектры фотолуминесценции структур 3–6 при $T = 300$ К. Линия WL связана с рекомбинацией носителей через состояния смачивающего слоя.

также является следствием перераспределения In (или) Al в слое КЯ в окрестности КТ и, по всей видимости, приводит к увеличению эффективного размера КТ и уменьшению дисперсии по их размерам.

На рис. 2 приведены спектры ФЛ структур 3–6 с различной эффективной толщиной слоев InAs и $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. В спектрах образцов со слоем КЯ помимо линий QD_0 – QD_2 , связанных с рекомбинацией через КТ, наблюдается коротковолновая полоса QW, обусловленная рекомбинационными процессами в слое $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. Увеличение размеров КТ сопровождается резким длинноволновым смещением линии ФЛ и ее сужением. Предыдущие исследования зависимости положения пика ФЛ квантовых точек InAs в матрице GaAs [8] показали, что максимальная длина волны излучения таких КТ составляет (при средних толщинах осаждения около и более 4-х монослоев и (или) длительных превышениях роста) ~ 1.24 мкм. Заращивание КТ, полученных при осаждении существенно меньшего количества InAs тонким слоем InGaAs низкого состава по индию (15–20%), приводит к сдвигу максимума ФЛ вплоть до $\lambda \simeq 1.28$ мкм. Рассмотрим причины такого сильного изменения энергии оптического перехода.

При заращивании КТ слоем InGaAs уменьшается эффективная ширина запрещенной зоны материала, окружающего КТ, что может приводить к уменьшению энергии оптического перехода. Однако, как будет показано далее, заращивание КТ слоем InAlGaAs, имеющим ширину запрещенной зоны больше, чем GaAs, не приводит к увеличению энергии оптического перехода. Кроме того, энергия оптического перехода даже уменьшается в случае КТ, полученных при субмонослойном осаждении.

Другой причиной указанного эффекта длинноволнового сдвига линии люминесценции, как следует из данных ПЭМ, является увеличение концентрации атомов In вблизи КТ при заращивании их слоем твердого раствора, обусловленное напряжением, возникающим около КТ. Положение линии QW в спектре образца 6 соответствует расчетному для рекомбинации в квантовой яме $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ шириной 3.3 нм. Это согласуется с геометрией активной области, в которой происходит рекомбинация, состоящей из 0.3 нм смачивающего слоя InAs, образующегося при осаждении КТ [3,4], и 3 нм слоя $\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{As}$. Следовательно, увеличение концентрации In вблизи КТ происходит только за счет атомов, осажденных в непосредственной близости от КТ. Таким образом, эффективная толщина слоя InAs вблизи КТ может увеличиться примерно на 0.5 нм и для структуры 6 составляет ~ 1.3 нм, что, исходя из результатов [8] для КТ, заращённых GaAs и имеющих пирамидальную форму [9], является недостаточным для объяснения наблюдаемого смещения линии ФЛ. Это согласуется с данными ПЭМ, свидетельствующими о том, что в случае последовательного осаждения КТ и слоя КЯ изменяется форма КТ, что приводит к более сильному изменению энергии оптического перехода по сравнению со случаем КТ в матрице GaAs.

Для исследования влияния состава твердого раствора в слое КЯ на размеры КТ и их оптические свойства были исследованы образцы 7–9, в которых КТ были заращены слоем $\text{In}_x\text{Al}_y\text{Ga}_{1-x-y}\text{As}$ с разными величина-

ми x и y . Из рис. 3 видно, что осаждение широкозонного слоя $\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.80}\text{As}$ также вызывает сильный длинноволновый сдвиг линии ФЛ. Такое нетривиальное поведение ФЛ (увеличение ширины запрещенной зоны материала, окружающего КТ, должно было бы привести к увеличению размерного квантования и уменьшению энергии локализации носителей в КТ) может быть обусловлено уменьшением диффузии атомов In из КТ при их зарощивании AlGaAs (эффект "консервации"). Это приводит к увеличению размеров КТ, что и обуславливает длинноволновое смещение линии ФЛ. Увеличение мольной доли InAs x в слое $\text{In}_x\text{Al}_y\text{Ga}_{1-x-y}\text{As}$ вызывает дальнейший длинноволновый сдвиг линии ФЛ, что может быть связано как с появлением эффекта распада, приводящего к увеличению концентрации атомов In вблизи КТ, так и с уменьшением ширины запрещенной зоны $\text{In}_x\text{Al}_y\text{Ga}_{1-x-y}\text{As}$.

Для всех исследованных структур помимо линии, связанной с рекомбинацией через основное состояние (QD_0) в спектрах ФЛ, наблюдаются коротковолновые полосы QD_1 и QD_2 . Необходимо отметить, что для структур с твердым раствором InGaAlAs в отличие от случая зарощивания слоем InGaAs увеличение мольной доли InAs приводит к возрастанию интенсивности линии QD_0 по сравнению с высокоэнергетичными полосами. Для исследования природы данных линий были проведены исследования зависимости интенсивностей линий QD_0 – QD_2 от температуры и интенсивности возбуждающего света. Для структуры 10 суммарная интенсивность линий QD_1 и QD_2 падает относительно интенсивности полосы QD_0 с ростом температуры (рис. 4), что не является типичным для рекомбинации через возбужденные состояния КТ. Кроме того, увеличение интенсивности возбуждения при $T = 15\text{ K}$ в 200 раз приводит к незначительному (примерно в 1.5 раза) возрастанию интенсивностей линий QD_1 и QD_2 относительно QD_0

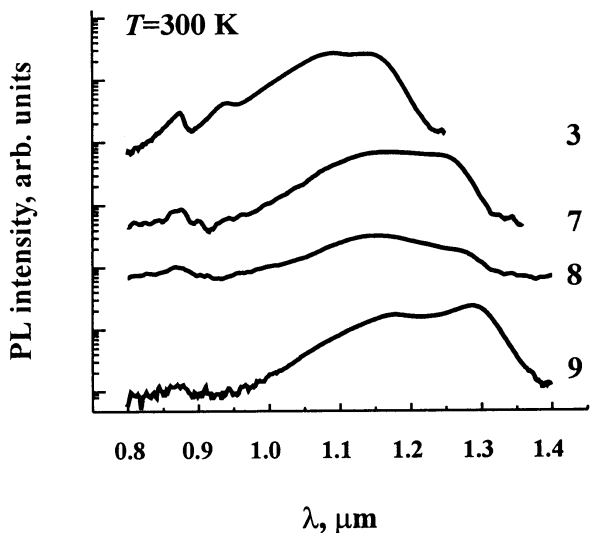


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции структур 3, 7–9 при $T = 300\text{ K}$.

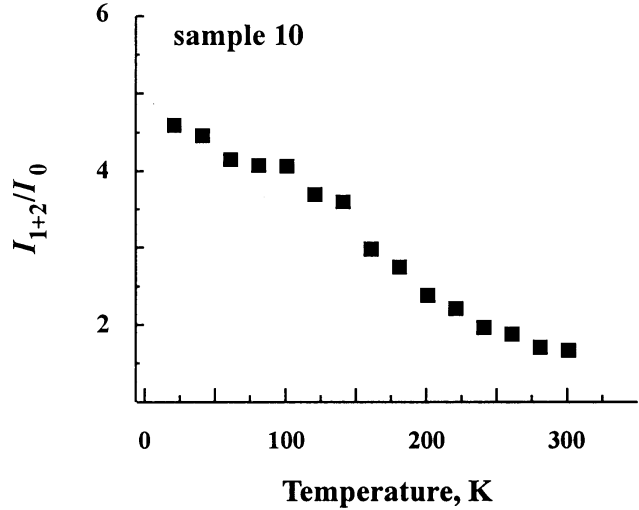


Рис. 4. Зависимость отношения интегральных интенсивностей полос QD_1 и QD_2 (I_{1+2}) относительно интенсивности полосы QD_0 (I_0) от температуры для образца 10.

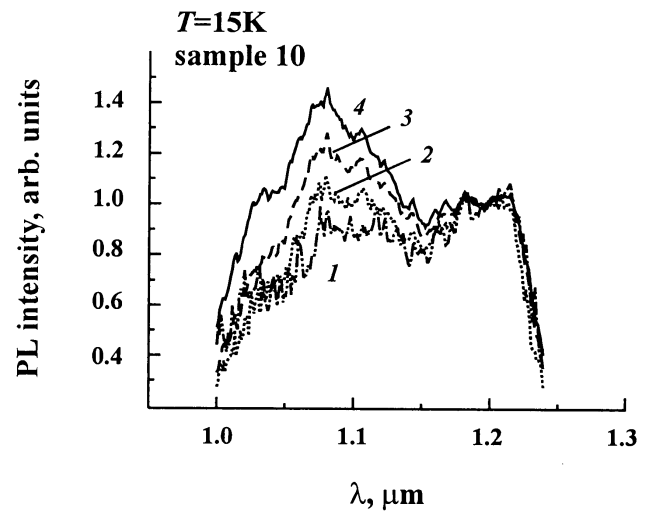


Рис. 5. Спектры фотолюминесценции структуры 10, измеренные при интенсивности возбуждающего света P_{ex} , $\text{Вт}/\text{см}^2$: 1 — 1, 2 — 4, 3 — 30, 4 — 100. Спектры нормированы на спектр фотолюминесценции при $P_{\text{ex}} = 0.5\text{ Вт}/\text{см}^2$.

(рис. 5). Такое поведение ФЛ свидетельствует о том, что линии QD_1 и QD_2 могут быть суперпозицией полос ФЛ, обусловленных рекомбинацией через возбужденные состояния и через группы КТ, различающиеся размерами. На рис. 6 приведены спектры ФЛ структуры 10 и образцов, которые содержат ту же последовательность слоев, но выращенных на подложках, разориентированных по направлению $[100]$ на 3° и 5° . Как видно, при угле разориентации 3° происходит падение интенсивности линии QD_0 , в то время как интенсивности полос QD_1 и QD_2 остаются постоянными. Увеличение угла разориентации до 5° приводит к тому, что вместо линий QD_1 и QD_2 в спектре наблюдается одна широкая полоса. Поскольку,

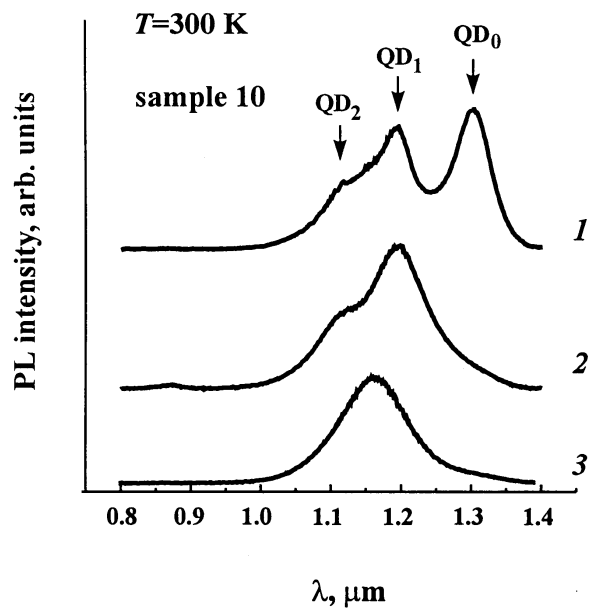


Рис. 6. Спектры фотолуминесценции структуры 10 (1) и структур, содержащих аналогичную последовательность слоев, но выращенных на подложках, разориентированных на 3° (спектр 2) и 5° (спектр 3).

как было показано в [10–12], разориентация подложки приводит к подавлению формирования КТ большого размера, полученные результаты подтверждают вывод о существовании групп КТ различного размера. Образование различных групп КТ может быть связано с сильной зависимостью степени распада твердого раствора от размеров осажденных InAs-КТ. Такой вывод подтверждает тот факт, что при возрастании размеров КТ при увеличении эффективной толщины осажденного слоя InAs наблюдается сужение линии ФЛ, и интенсивность полос QD₁ и QD₂ становится меньше по сравнению с интенсивностью линии QD₀ (рис. 2). Это может быть связано с тем, что увеличение толщины слоя InAs приводит к формированию равновесных КТ, характеризующихся высокой однородностью по форме и размерам.

Таким образом, в результате проведенных исследований было показано, что при зарастивании квантовых точек InAs (КТ) тонким слоем InGaAlAs сильное длинноволновое смещение линии фотолуминесценции (ФЛ) обусловлено распадом твердого раствора с образованием локальных областей вблизи КТ с повышенным содержанием In и эффектом "консервации" атомов In в КТ. В зависимости от толщины осажденного слоя InAs возможно образование КТ различного размера, приводящее к существованию нескольких линий ФЛ.

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

Список литературы

- [1] L. Goldstein, F. Glass, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. Le Roux. *Appl. Phys. Lett.*, **47**, 1099 (1985).
- [2] S. Guha, A. Madhukar, K.C. Rajkumar. *Appl. Phys. Lett.*, **57**, 2110 (1990).
- [3] M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, O. Vatel. *Appl. Phys. Lett.*, **64**, 196 (1994).
- [4] P.M. Petroff, S.P. DenBaars. *Superlat. a. Microstr.*, **15**, 15 (1994).
- [5] D.L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O.B. Shchekin, D.G. Deppe. *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 2564 (1998).
- [6] А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, А.Ю. Егоров, Н.А. Малеев, В.М. Устинов, Б.В. Воловик, М.В. Максимов, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов, Ю.М. Шерняков, А.В. Лунев, Ю.Г. Мусихин, Н.А. Берг, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров. *ФТП*, **33**, 180 (1999).
- [7] K. Nishi, H. Saito, S. Sugou, J.-S. Lee. *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 1111 (1999).
- [8] А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, П.С. Копьев, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, В.М. Устинов, А.Ф. Цацульников, Ж.И. Алфёров, Ф.Л. Федоров, Д. Бимберг. *ФТП*, **30**(6), 1345 (1996).
- [9] S.S. Ruvimov, P. Werner, K. Scheerschmidt, U. Gösele, J. Heydenreich, U. Richter, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V.M. Estiniv, A.Yu. Egorov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. *Phys. Rev. B*, **51**, 14 766 (1995).
- [10] A. Saaki. *Thin Sol. Films*, **267**, 24 (1995).
- [11] А.Ф. Цацульников, Б.В. Воловик, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, Чжао Чжень, В.Н. Петров, Г.Э. Цырлин, Д. Бимберг, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров. *ФТП*, **32**, 95 (1998).
- [12] В.П. Евтихийев, В.Е. Токранов, А.К. Крыжановский, А.М. Бойко, Р.А. Суриц, А.Н. Титков, А. Накамура, М. Ичида. *ФТП*, **32**, 860 (1998).

Редактор Т.А. Полянская

Mechanisms of an InGaAlAs quantum well decay stimulated by InAs quantum dots

A.F. Tsatsulnikov, B.V. Volovik, D.A. Bedarev, A.E. Zhukov, A.P. Kovsh, N.N. Ledentsov, M.V. Maximov, N.A. Maleev, Yu.G. Musikhin, V.M. Ustinov, N.A. Bert, P.S. Kop'ev, D. Bimberg*, Zh.I. Alferov

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

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