

Фотолюминесценция массивов квантовых колец GaAs/AlGaAs

© Ю.Д. Сибирмовский[¶], И.С. Васильевский, А.Н. Виниченко, И.С. Еремин, Д.М. Жигунов*,
Н.И. Каргин, О.С. Коленцова, П.А. Мартюк, М.Н. Стриханов

Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“,
115409 Москва, Россия

* Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова (физический факультет),
119991 Москва, Россия

(Получена 16 октября 2014 г. Принята к печати 24 октября 2014 г.)

Методом капельной эпитаксии выращены образцы эпитаксиальных структур с квантовыми кольцами GaAs/AlGaAs различной морфологии. Измерены спектры фотолюминесценции образцов при температурах 20–90 и 300 К, обнаружены интенсивные пики в оптическом диапазоне, связанные с размерным квантованием энергии носителей в квантовых кольцах. Принадлежность пиков установлена оценочным расчетом энергии основного состояния электронов и дырок в квантовых кольцах GaAs, а также измерением спектров образцов после стравливания слоев с квантовыми кольцами. Средние размеры квантовых колец определены методами атомно-силовой и растровой электронной микроскопии. Сделаны выводы о факторах, влияющих на спектр и интенсивность излучения эпитаксиальных структур с квантовыми кольцами.

1. Введение

Одним из перспективных путей развития современной оптоэлектроники и вычислительной электроники является переход к нуль-мерным (0D) наноструктурам, таким как квантовые точки и квантовые кольца. Приборы оптоэлектроники на квантовых точках обладают рядом преимуществ: температурная стабильность, широкий спектральный диапазон, меньший темновой ток, большее отношение сигнал/шум, возможность внутрizonного поглощения нормально падающего света и мультиэкситонного поглощения [1,2]. Квантовые кольца проявляют уникальные свойства в магнитном поле (незатухающие токи, электронный и оптический эффект Ааронова–Бома [3,4]).

Капельная молекулярно-лучевая эпитаксия (КЭ) — это способ получения массивов полупроводниковых наноструктур на поверхности монокристаллов, основанный на самоорганизации капель металла III группы и последующего отжига капель в потоке материала V группы для кристаллизации соединения $A^{III}B^V$ [5]. В отличие от традиционного метода Странски–Крастанова, КЭ позволяет получать ансамбли квантовых точек и квантовых колец с широкими возможностями управления их размерами, поверхностной плотностью, формой и составом. КЭ допускает использование различных систем материалов, как с несопадающими (InGaAs/GaAs, GaSb/GaAs), так и с совпадающими постоянными решетки (GaAs/AlGaAs, InGaAs/InP, InSb/CdTe). В решеточно-согласованных структурах отсутствуют механические напряжения, пьезопотенциал и дислокации несоответствия, что обуславливает их перспективность для оптоэлектроники. Управление размерами и формой квантовых колец при КЭ дает возможность тонкой настройки спектров излучения и поглощения гетероструктуры, не требуя введения новых материалов.

Фотолюминесценция (ФЛ) в образцах с квантовыми кольцами GaAs изучалась в ряде работ [6–9]. Во всех указанных работах приведены спектры при двух значениях температур — температуре, близкой к точке кипения жидкого гелия (4–10 К), а также при комнатной температуре. Каждой группой были зарегистрированы пики от слоев квантовых колец, при этом наблюдалась зависимость положения максимумов пиков от размеров колец [6,7], а также зависимость числа и интенсивности пиков от мощности лазерного излучения [8,9]. Однако нет уверенности в правильном определении принадлежности всех пиков, так в работе [8] утверждается, что пик в районе 1.84 эВ вызван излучением смачивающего слоя GaAs, тогда как в работе [6] аналогичные пики приписываются излучению барьера $Al_xGa_{1-x}As$. Кроме того, отсутствуют данные по температурной зависимости положения максимумов, полуширины и интенсивности пиков, которые могут дать информацию о преобладающих механизмах рассеяния фотовозбужденных носителей заряда при различных температурах, а также других эффектах, которые могут влиять на оптические свойства эпитаксиальных структур с квантовыми кольцами. Поэтому целью данной работы являлось изучение спектральных особенностей фотолюминесценции гетероструктур с квантовыми кольцами GaAs/ $Al_xGa_{1-x}As$ в широком интервале температур.

2. Эксперимент

Методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) на установке Riber Compact 21T были выращены образцы наногетероструктур с квантовыми кольцами GaAs/ $Al_{0.28}Ga_{0.72}As$ (образцы A1, A2). Рост проводился на полуизолирующих двусторонне полированных подложках GaAs с ориентацией (001). Калибровки состава и скорости осаждения слоев GaAs и $Al_xGa_{1-x}As$ были проведены заранее на основе данных рентгеновской

[¶] E-mail: YDSibirnovsky@mephi.ru

дифракции тестовых образцов с однородными слоями различного состава. Подробнее процедура роста была изложена в работе [10]. Образцы отличались температурой роста и потоком As₄ (табл. 1). Слойная структура выращенных образцов приведена на рис. 1.

Для образца A2 поверх массива квантовых колец выращивался покровный слой *i*-Al_{0,28}Ga_{0,72}As. Во избежание диффузионного размывания сформировавшегося ансамбля начальная стадия роста данного слоя проводилась при температуре роста колец (280°C). Дальнейшее выращивание *i*-Al_{0,28}Ga_{0,72}As происходило при обычной температуре роста (550°C). Массив колец был воспро-

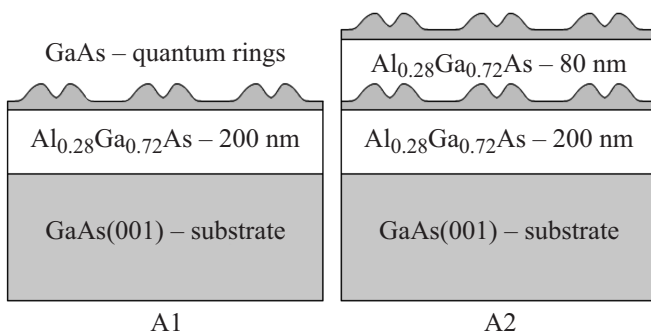


Рис. 1. Схемы слоевой структуры образцов A1 и A2.

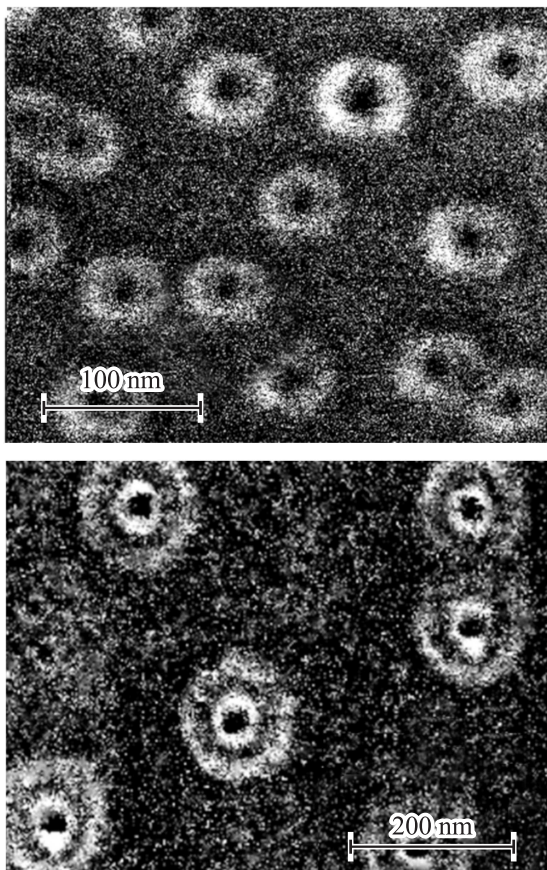


Рис. 2. РЭМ сканы участка поверхности образцов A1 и A2.

Таблица 1. Условия роста и средние размеры квантовых колец для образцов A1 и A2

Образец	<i>T</i> , °C	<i>P</i> _{As₄} , μTorr	2 <i>R</i> , нм	2 <i>r</i> , нм	<i>d</i> , нм
A1	220	13	53 ± 12	22 ± 6	4.5 ± 0.5
A2 внутреннее кольцо	280	5.5	56 ± 9	28 ± 3	4.3 ± 0.2
A2 внешнее кольцо			140 ± 24	100 ± 23	

изведен на открытой поверхности при тех же условиях для изучения морфологии ансамбля.

Морфология поверхности ансамблей изучалась методами растровой электронной микроскопии (РЭМ) высокого разрешения (рис. 2) на установке Raith 150 TWO (ускоряющее напряжение 17 кВ, увеличение 1.5 · 10⁵ для образца A1 и 1 · 10⁵ для образца A2) и атомно-силовой микроскопии (АСМ) на установке NT-MDT Solver Next.

Как показали РЭМ и АСМ сканы поверхности образцов, в образце A1 сформировался ансамбль одиночных квантовых колец, а в A2 — концентрических квантовых колец. Условия роста, средние размеры колец и их дисперсия указаны в табл. 1. (*R* — внешний радиус кольца, *r* — внутренний, *d* — высота).

Были измерены спектры фотолюминесценции образцов. Возбуждение производилось Ar⁺-лазером (488 нм) со средней интенсивностью излучения 100 мВт/см². Были также измерены спектры опорных образцов с удаленными слоями квантовых колец.

При низких температурах (рис. 3) наблюдались интенсивные пики, по-видимому, соответствующие переходам между уровнями размерного квантования в слоях с квантовыми кольцами. Эти пики отсутствовали на спектрах опорных образцов. При *T* = 20 К положение максимума пика размерного квантования образца A1 — 1.735 эВ (715 нм), для образца A2 — 1.738 эВ (714 нм). Образец A2 содержит также дополнительный пик, энергия которого 1.620 эВ. Ширина запрещенной зоны GaAs при *T* = 20 К составляет 1.518 эВ [11]. Энергетический сдвиг и полуширина этих пиков:

$$\Delta E_{\text{exp}}(\text{A1}) = 0.217 \text{ эВ}, \quad \text{полуширина } 0.028 \text{ эВ},$$

$$\Delta E_{\text{exp}}(\text{A2}) = 0.220 \text{ эВ}, \quad \text{полуширина } 0.018 \text{ эВ},$$

$$\Delta E_{\text{exp}}^*(\text{A2}) = 0.102 \text{ эВ}, \quad \text{полуширина } 0.041 \text{ эВ}.$$

При *T* < 50 К возникали пики, соответствующие энергии 1.86 эВ при *T* = 20 К. Эти пики вызваны межзонными переходами в барьерном слое Al_{0,28}Ga_{0,72}As. Это подтверждается расчетом энергии запрещенной зоны Al_{*x*}Ga_{1-*x*}As при температуре 20 К и мольной доле AlAs 28% (1.87 эВ [11]), а также сравнением со спектрами опорных образцов (рис. 3).

Следует заметить, что интенсивность пика барьерного слоя падает с ростом температуры значительно быстрее, чем интенсивность пиков квантовых колец, и при $T \geq 50$ К этот пик полностью исчезает (рис. 4).

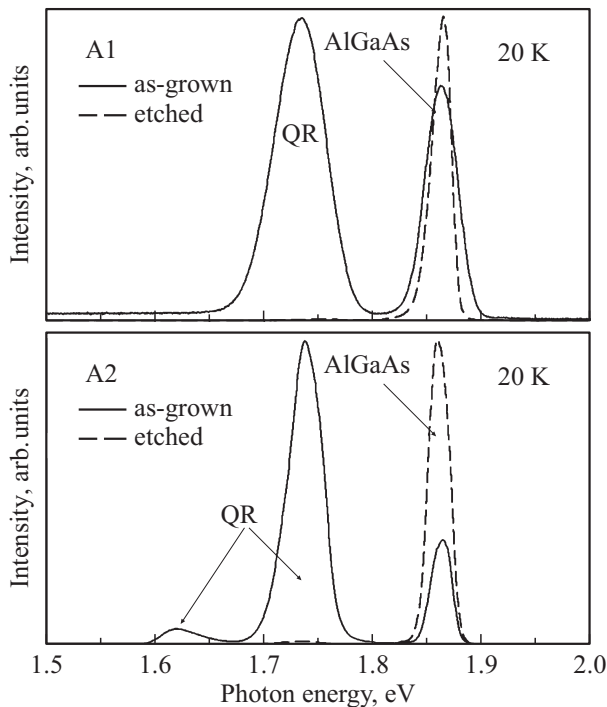


Рис. 3. Нормализованные спектры фотолюминесценции образцов A1 и A2 при температуре 20 К до и после удаления слоев с квантовыми кольцами.

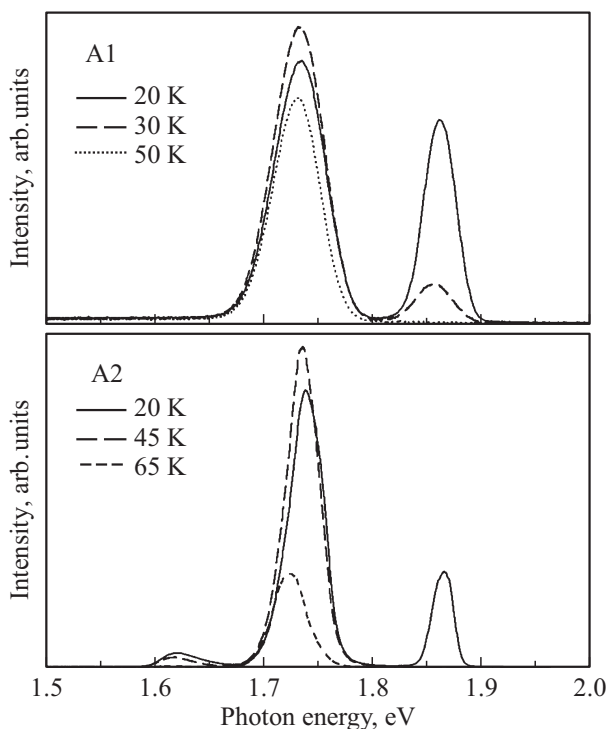


Рис. 4. Спектры фотолюминесценции образцов A1 и A2 при различных температурах.

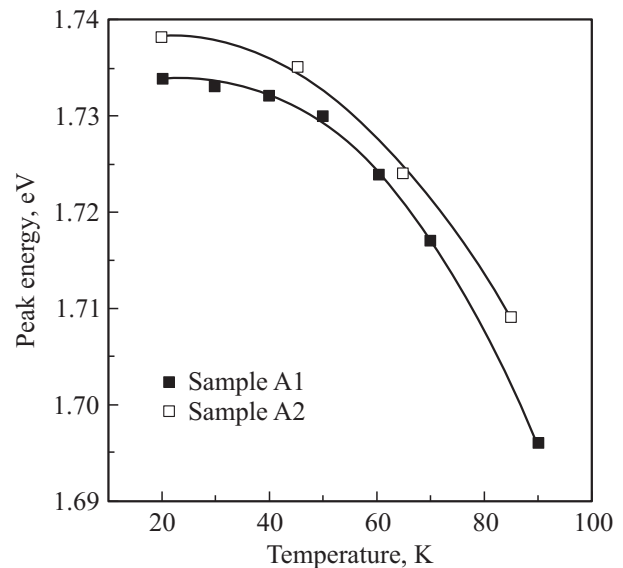


Рис. 5. Зависимости положения максимума пика ФЛ квантовых колец для образцов A1 и A2 от температуры.

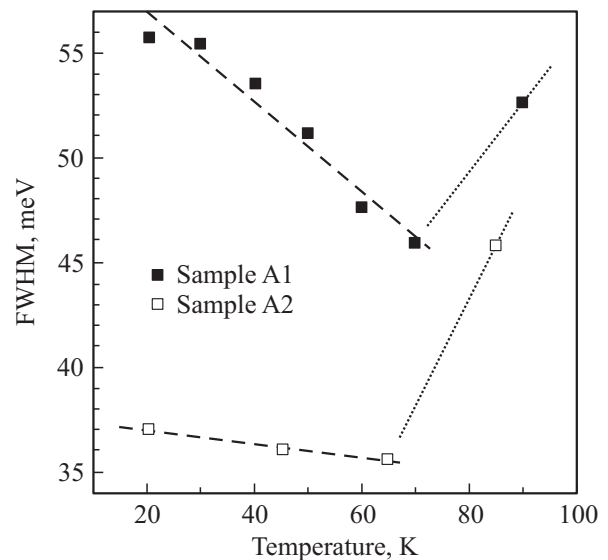


Рис. 6. Зависимости полуширины пика ФЛ квантовых колец для образцов A1 и A2 от температуры.

При росте температуры наблюдается красное смещение пиков ФЛ от квантовых колец (рис. 5), что находится в качественном согласии с эмпирической зависимостью Варшны для ширины запрещенной зоны GaAs [11].

Полуширина (ширина на половине высоты) пиков ФЛ от квантовых колец падает с ростом температуры вплоть до 70 К, особенно это заметно для образца A1 (рис. 6). Такое поведение не характерно для объемных полупроводников, где причиной температурного уширения является рассеяние носителей на фононах. Мы связываем уширение в основном с дисперсией квантовых колец по размерам, поэтому температурная зависимость полуширины может иметь более сложный

характер. Такой эффект наблюдался и для узких (5 нм) квантовых ям GaAs [12].

Были также проведены измерения сигнала фотолюминесценции при комнатной температуре в режиме накопления. При этом на спектрах образцов наблюдался пик подложки/буферного слоя GaAs, соответствующий межзонному переходу (1.42 эВ [11]), а также пики размерного квантования, отсутствовавшие на спектре подложки (рис. 7). Для образца A1 наблюдается слабый пик от квантовых колец, смещенный на $\Delta E \sim 0.23$ эВ относительно пика GaAs. Аналогичный слабый пик наблюдается для образца A2, однако главный пик этого образца при комнатной температуре смещен на $\Delta E = 0.16$ и принадлежит, по-видимому, внутреннему слою квантовых колец.

Следует заметить, что интенсивность пика квантовых колец для образца A2 заметно выше, чем для образца A1 (в сравнении с пиком барьерного слоя при низких температурах и пиком подложки при комнатной температуре). Это может быть вызвано высокотемпературной обработкой слоя колец образца A2 при росте покровного слоя (550°C). При повышенных температурах во время роста покровного слоя происходит отжиг дефектов в КК, поэтому возрастает вклад излучательной рекомбинации и снижается рассеяние носителей тока, локализованных в КК.

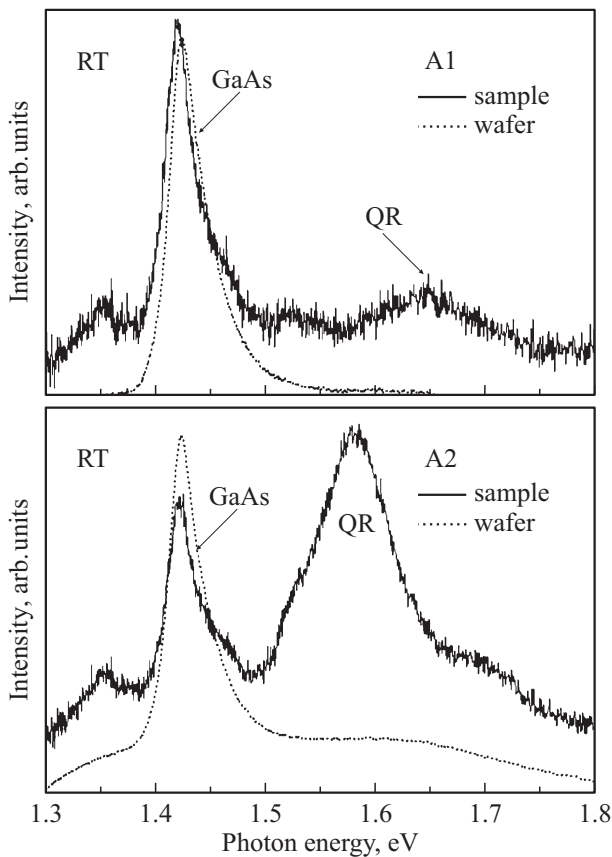


Рис. 7. Нормализованные спектры фотолюминесценции образцов A1 и A2 при комнатной температуре в сравнении со спектрами подложки.

Таблица 2. Значения параметров носителей, используемые в расчетах*

Носитель	m_{GaAs}^*	$m_{\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}}^*$	U_0
Электрон e	$0.063m_0$	$0.086m_0$	0.22 эВ
Тяжелая дырка hh	$0.51m_0$	$0.58m_0$	0.13 эВ

Примечание. * работа [11].

3. Анализ

Для анализа положения пиков ФЛ массивов квантовых колец оценим вклад размерного квантования в слое квантовых колец GaAs в энергию основного состояния электронов и дырок. В приближении бесконечной потенциальной ямы (по крайней мере по двум пространственным осям) трехмерное уравнение Шредингера допускает разделение переменных, поэтому представим энергию размерного квантования как сумму вкладов в направлении роста и в плоскости кольца. Из табл. 1 видно, что высота колец много меньше их диаметра. Это означает, что основной вклад в энергию размерного квантования вносит именно локализация носителей тока в направлении роста. Величина этого вклада должна быть одного порядка с энергией квантования в узкой квантовой яме GaAs соответствующей толщины.

Радиус тяжелого экситона в GaAs составляет около 12.2 нм. Учитывая, что высота колец значительно меньше (4–5 нм), воспользуемся для оценок приближением несвязанных электрона и дырки. Мы также не будем рассматривать поверхностные состояния. В этом случае потенциал в направлении роста для слоя квантовых колец GaAs на поверхности можно аппроксимировать асимметричной прямоугольной потенциальной ямой. Один из барьеров для электронов (дырок) определяется разрывом зоны проводимости (валентной зоны) GaAs/Al_{0.28}Ga_{0.72}As, а второй считается бесконечным, так как энергия кванта используемого излучения (2.54 эВ) значительно меньше работы выхода электрона из GaAs (4–5 эВ). Для внутреннего слоя квантовых колец, окруженного Al_{0.28}Ga_{0.72}As (образец A2), можно использовать модель симметричной прямоугольной ямы.

Используемые значения параметров [11] представлены в табл. 2. Уровни энергии для асимметричной (1) и симметричной (2) ямы можно найти из уравнений:

$$\frac{\eta}{m_{\text{GaAs}}^*} \text{ctg}(\eta d) = -\frac{1}{m_{\text{AlGaAs}}^*} \sqrt{\frac{2m_{\text{AlGaAs}}^* U_0}{\hbar^2} - \eta^2}, \quad (1)$$

$$\frac{\eta}{m_{\text{GaAs}}^*} \text{tg}\left(\frac{\eta d}{2}\right) = \frac{1}{m_{\text{AlGaAs}}^*} \sqrt{\frac{2m_{\text{AlGaAs}}^* U_0}{\hbar^2} - \eta^2}, \quad (2)$$

где

$$\eta^2 = \frac{2m_{\text{GaAs}}^* E}{\hbar^2}.$$

Пользуясь измеренными значениями средней высоты колец (табл. 1), получаем энергию размерного квантования в направлении роста для поверхностного слоя квантовых колец GaAs:

$$\Delta E_{\text{theor}}(A1) = 0.18 \pm 0.03 \text{ эВ},$$

$$\Delta E_{\text{theor}}(A2) = 0.19 \pm 0.01 \text{ эВ}.$$

Оценим энергию размерного квантования носителей в плоскости колец, воспользовавшись моделью цилиндрического кольца с прямоугольным профилем. Так как кольца находятся на поверхности, высоту энергетического барьера в плоскости можно считать бесконечной. В таком случае для концентрических колец можно не учитывать туннельную связь, рассчитывая их по отдельности.

Энергию основного состояния носителя в квантовом кольце в этом случае можно найти из соотношения

$$J_0(\sqrt{k^2 - \eta^2 R}) Y_0(\sqrt{k^2 - \eta^2 r}) = J_0(\sqrt{k^2 - \eta^2 r}) Y_0(\sqrt{k^2 - \eta^2 R}), \quad (4)$$

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\text{GaAs}}^*}, \quad (5)$$

где R, r — внешний и внутренний радиусы, J_0, Y_0 — функции Бесселя. Параметр η^2 отвечает энергии размерного квантования в направлении роста, оцененной выше.

Используя измеренные значения внешнего и внутреннего радиуса колец (табл. 1), получаем окончательно для энергий переходов $e1-hh1$ в квантовых кольцах:

$$\Delta E_{\text{theor}}(A1) = 0.20 \pm 0.03 \text{ эВ},$$

$$\Delta E_{\text{theor}}(A2) = 0.22 \pm 0.01 \text{ эВ (внутреннее кольцо)},$$

$$\Delta E_{\text{theor}}(A2) = 0.20 \pm 0.01 \text{ эВ (внешнее кольцо)}.$$

Экспериментальные значения составляют (при $T = 20 \text{ К}$):

$$\Delta E_{\text{exp}}(A1) = 0.217 \text{ эВ, полуширина } 0.028 \text{ эВ},$$

$$\Delta E_{\text{exp}}(A2) = 0.220 \text{ эВ, полуширина } 0.018 \text{ эВ}.$$

Экспериментальные значения находятся в хорошем согласии с расчетными, причем по асимметричной форме пика от верхнего слоя квантовых колец образца A2 (рис. 3) можно предположить, что он образован наложением пиков от внешних и внутренних колец, с расстоянием между максимумами, примерно равным 0.02 эВ .

Для внутреннего слоя GaAs в образце A2 получаем

$$\Delta E_{\text{theor}}^*(A2) = 0.12 \pm 0.02 \text{ эВ}.$$

Для дополнительного пика на спектре образца A2 экспериментальное значение:

$$\Delta E_{\text{exp}}^*(A2) = 0.10 \text{ эВ}.$$

Таким образом, источником этого пика может являться излучательная рекомбинация во внутреннем слое квантовых колец. Расхождение расчетного и экспериментального значения можно объяснить размытием гетерограниц и диффузией алюминия в слой GaAs при росте покровного слоя. Это могло стать причиной понижения энергии основного состояния для электронов и дырок.

4. Заключение

В данной работе исследованы особенности спектров фотолуминесценции полупроводниковых гетероструктур с квантовыми кольцами в диапазоне температур $20-90 \text{ К}$ и при комнатной температуре. Показано, что спектры содержат пики размерного квантования, вызванные рекомбинацией электронно-дырочных пар в квантовых кольцах, а также пики от подложки/буфера GaAs (комнатная температура) и от барьерного слоя AlGaAs (низкие температуры).

Принадлежность пиков установлена как сравнением с опорными образцами без квантовых колец, так и теоретической оценкой энергии размерного квантования носителей в квантовых кольцах соответствующих размеров. Высота колец много меньше их радиуса, поэтому локализация в направлении роста вносит основной вклад в энергию носителей. Энергия размерного квантования для электронов сравнима с разрывом зон проводимости $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и GaAs, поэтому при анализе необходимо учитывать конечность потенциальной ямы и влияние барьерного слоя на состояния в яме. В частности, энергия размерного квантования для квантовых колец, зарощенных слоем $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, заметно меньше, чем для квантовых колец, находящихся на поверхности.

Уширение пиков квантовых колец вызвано в основном их дисперсией по размерам и уменьшается с ростом температуры в диапазоне $20-70 \text{ К}$, что не характерно для объемного материала. Интенсивность пиков квантовых колец достаточно велика при низких температурах, вызывая различимое глазом свечение, и может быть повышена высокотемпературным отжигом структур.

Работа выполнена в рамках комплексного проекта, шифр „2013-218-04-050“; постановление правительства РФ № 218. Работа выполнена с использованием оборудования ЦКП „Гетероструктурная СВЧ-электроника и физика широкозонных полупроводников“ НИЯУ МИФИ и Центра коллективного пользования физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова.

Список литературы

- [1] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Шукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. ФТП, **32** (4), 385 (1998).
- [2] J.H. Dai, Y. Lin, S.C. Lee. IEEE Photon. Tech. Lett., **19** (19), 1511 (2007).
- [3] R.A. Romer, M.E. Raikh. Phys. Rev. B **62** (11), 7045 (2000).

- [4] F. Ding, N. Akopian, B. Li, U. Perinetti, A. Govorov, F.M. Peeters, C.C. Bof Bufon, C. Deneke, Y.H. Chen, A. Rastelli, O.G. Schmidt, V. Zwiller. *Phys. Rev. B* **82** (7), 075 309 (2010).
- [5] N. Koguchi, S. Takahashi, T. Chikyow. *J. Cryst. Growth*, **111** (3), 688 (1991).
- [6] T. T. Kuroda, T. Mano, T. Ochiai, S. Sanguinetti, K. Sakoda, G. Kido, N. Koguchi. *Phys. Rev. B* **72** (20), 205 301 (2005).
- [7] Z.Y. AbuWaar, Y.I. Mazur, J.H. Lee. *J. Appl. Phys.*, **101** (2), 024 311 (2007).
- [8] J.S. Kim. *J. Korean Phys. Soc.*, **53** (4), 2138 (2008).
- [9] T. Mano, N. Koguchi. *J. Cryst. Growth*, **278** (1), 108 (2005).
- [10] И.С. Васильевский, А.Н. Виниченко, И.С. Еремин, Д.М. Жигунов, Н.И. Каргин, Ю.Д. Сибирмовский, М.Н. Стриханов. *Вестн. НИЯУ МИФИ*, **2** (3), 267 (2013).
- [11] M. Levinshtein, S. Rumyantsev, M. Shur. *Handbook Series on Semiconductor Parameters* (Singapore, World Scientific, 1996).
- [12] Y. Chen, R. Cingolani, L.G. Andreani, F. Bassani. *Il Nuovo Cimento*, **10 D** (7), 847 (1988).

Редактор Т.А. Полянская

Photoluminescence of GaAs/AlGaAs quantum ring arrays

Y.D. Sibirnovsky, I.S. Vasil'evskii, A.N. Vinichenko, I.S. Eremin, D.M. Zhigunov, N.I. Kargin, O.S. Kolentsova, P.A. Mart'uk, M.N. Strikhanov*

National research nuclear university „MEPhI“,
115409 Moscow, Russia

* Lomonosov Moscow State University
(Faculty of Physics),
119991 Moscow, Russia

Abstract Epitaxial samples with GaAs/AlGaAs quantum rings of different shapes were grown by molecular beam epitaxy. Photoluminescence spectra of the samples were measured at 20–90 K and 300 K, intense optical emission peaks were discovered, caused by size quantization of carriers' energy in quantum rings. The peaks were identified by evaluating the ground state energy for electrons and holes in GaAs quantum rings and also by measuring spectra of the samples without quantum ring layers, which were removed by etching. Mean sizes of the quantum rings were determined by atomic force microscopy and scanning electron microscopy. Conclusions were made about factors which affect the emission spectra and intensity of quantum ring structures.