

Экситонное излучение тонких кристаллических пленок Zn(S)Se, размещенных в полости микрорезонаторов на основе аморфных диэлектрических покрытий

© В.И. Козловский^{*+}, В.С. Кривобок^{*+}, П.И. Кузнецов^{*}, С.Н. Николаев^{*}, Е.Е. Онищенко^{*},
А.А. Пручкина^{*}, А.Г. Тимирязев^{*}, С.И. Ченцов^{*}

^{*} Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук,
119991 Москва, Россия

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

^{*} Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова Российской академии наук,
141120 Фрязино, Россия

E-mail: vikoz@sci.lebedev.ru

(Получена 14 апреля 2015 г. Принята к печати 20 апреля 2015 г.)

Предложена технология создания полностью гибридных микрорезонаторов на основе пленок Zn(S)Se и аморфных диэлектрических покрытий SiO₂/Ta₂O₅. Продемонстрировано влияние всех ступеней технологического цикла на структуру экситонных состояний в пленках Zn(S)Se. Данное влияние сводится к четырем основным эффектам: появление тонкой структуры у линий излучения свободных экситонов; уменьшение относительного вклада в спектр излучения экситонов, связанных на нейтральных акцепторах; низкочастотный сдвиг линий излучения экситонно-примесных комплексов и свободных экситонов; уменьшение расщепления между линиями излучения легких и тяжелых экситонов. Созданы образцы полностью гибридных микрорезонаторов, в которых удастся сохранить высокое структурное и оптическое качество пленок Zn(S)Se.

1. Введение

Последнее время активно обсуждается возможность создания так называемого бозонного лазера, когерентность излучения в котором достигается за счет бозе-эйнштейновской конденсации поляритонов [1,2,3–13]. Для этой цели предлагается использовать экситонные поляритоны в микрорезонаторах (МР) с активной средой из полупроводниковых квантовых ям [14,15] и проволок [3], углеродных нанотрубок [4], а также органических материалов [5,6]. Отметим, что пока наибольший прогресс достигнут для монокристаллических полупроводниковых микрорезонаторов, в которых режим „бозонного лазера“ уверенно продемонстрирован при комнатной температуре [14].

Наряду с монокристаллическими МР, которые выращиваются с помощью молекулярно-пучковой эпитаксии, развиваются и другие полупроводниковые технологии. В частности, начинают появляться сообщения о достижении режима сильной связи в МР, у которых одно зеркало является эпитаксиальным брэгговским, а другое представляет собой многослойное диэлектрическое покрытие (см., например [16,17]). Уже сейчас можно утверждать, что использование одного диэлектрического зеркала, при прочих равных, позволяет увеличить расщепление Раби за счет уменьшения эффективной длины резонатора. При таком подходе частично разделяются технологические процедуры создания активной среды и зеркал. Отметим, что в некоторых работах сообщается о наблюдении бозе-конденсации фотонов в МР с использованием диэлектрических зеркал [18]. Такая возможность

обеспечивается высокой добротностью МР, в том числе за счет большого коэффициента отражения (~ 99.99%), достижимого при использовании многослойных диэлектрических покрытий.

Разработка и использование полностью гибридных МР (с двумя диэлектрическими зеркалами) позволяют преодолеть целый ряд проблем, возникающих при создании монокристаллических структур: избежать сложности получения высокого коэффициента отражения для монокристаллических брэгговских зеркал, исключить взаимное влияние технологических процессов роста зеркал и активной среды, преодолеть изменение свойств нижних слоев в структуре из-за их длительного нахождения при относительно высокой температуре роста, исключить решеточную несовместимость материалов и др. Кроме того, за счет разделения технологических процессов появляется возможность более гибкого управления свойствами активной среды.

Технологическая реализация полностью гибридного МР на основе широкозонных соединений группы II–VI обеспечивается благодаря хорошо отработанной технологии роста пленок II–VI на подложках III–V, в частности GaAs. Также отработана технология удаления подложки сравнительно простыми химическими методами, что позволяет наносить диэлектрическое покрытие на внутреннюю поверхность эпитаксиальной пленки. Данный подход успешно применялся, в частности, для создания вертикально-излучающих лазеров [19,20]. Отметим, что в этом случае толщина резонатора составляла несколько микрон, что много больше длины волны, на которой излучает лазер.

В данной работе обсуждается технология создания полностью гибридных МР на основе тонких (~ 200 нм) эпитаксиальных пленок Zn(S)Se и аморфных диэлектрических покрытий $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$. В отличие от упомянутых выше вертикально излучающих лазеров, толщина таких МР сопоставима с рабочей длиной волны. Ввиду значительного расщепления Раби для экситонных поляритонов в Zn(S)Se и большого контраста показателя преломления $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ ожидается, что разрабатываемые гибридные МР будут перспективны для создания нового типа структур, в которых режим сильной связи экситонов с фотонами достигается при температурах, близких к комнатной. В работе особое внимание уделяется исследованию свойств тонких (~ 200 – 250 нм) слоев Zn(S)Se при их размещении в полости гибридного МР с диэлектрическими зеркалами $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$.

2. Описание эксперимента

Пленки Zn(S)Se были выращены парофазной эпитаксией из металлоорганических соединений на подложках GaAs с отклонением базовой плоскости (100) на 10 градусов к плоскости (111) А. Процесс роста проводили в горизонтальном кварцевом реакторе проточного типа с оптическим окном для *in situ* рефлектометрии, позволяющей контролировать толщину эпитаксиального слоя и качество его поверхности. В качестве исходных реагентов использовали соединения ZnEt_2 , Et_2Se и Et_2S , испарители с которыми находились при температурах 10, 25 и -10°C соответственно. В качестве газоносителя использовался тщательно осушенный с помощью абсорбционного и палладиевого фильтров водород, суммарный расход которого через реактор составлял 1 л/мин. Соотношение элементов шестой и второй групп VI:II в газовой фазе поддерживалось равным 2:1. Температура роста эпитаксиальных слоев составляла 410– 490°C . При этих же температурах проводилась дезоксидация поверхности подложки GaAs в течение 5 мин. Процесс осаждения начинали с подачи в реактор ZnEt_2 , опережающей на 20 с процесс эпитаксиального роста Zn(S)Se. По окончании процесса роста с целью улучшения качества ростовой поверхности гетероструктур проводился их отжиг при температурах 260– 320°C в атмосфере водорода.

Изготовление многослойных брэгговских зеркал, необходимых для создания МР, производилось с помощью электронно-лучевого напыления диэлектрических материалов с ионным assisteрованием при температуре 200°C . Каждое зеркало представляло собой интерференционное покрытие, состоящее из 10 пар чередующихся слоев $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$, что соответствует коэффициенту отражения ~ 0.999 . Изготовление зеркал производилось в следующей последовательности. Первое диэлектрическое зеркало напылялось на ростовую поверхность гетероструктуры Zn(S)Se/GaAs. Затем с помощью оптического клея структура монтировалась на сапфировую

пластину с базисной ориентацией. На следующем шаге шлифовкой и последующим травлением удалялась подложка GaAs. В качестве селективного травителя, практически не действующего на слой Zn(S)Se, использовался раствор $\text{KOH}-\text{H}_2\text{O}_2-\text{H}_2\text{O}$. После травления на освобожденную поверхность наносилось второе зеркало МР, также состоящее из 10 пар слоев $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$. В данной работе исследовались МР, у которых мода $3\lambda/2$ была сдвинута в высокочастотную область по отношению к экситонной люминесценции. Это позволило избежать значительных искажений спектров фотолюминесценции (ФЛ) активной среды в МР.

Измерения спектров низкотемпературной ФЛ проводились в парах гелия при температурах 5– 40K . В качестве источника возбуждения использовались полупроводниковый непрерывный ($\lambda = 405$ нм) и твердотельный импульсный ($\lambda = 355$ нм) лазеры, излучение которых фокусировалось в пятно диаметром 3–5 мм. Лазер, работающий на длине волны 405 нм, использовался преимущественно для возбуждения ФЛ исходных пленок (без диэлектрических зеркал). За счет того, что энергия квантов, соответствующих излучению с длиной волны 355 нм, расположена заметно выше области максимального отражения диэлектрических зеркал, импульсный лазер применялся для возбуждения ФЛ активной среды, размещенной в МР. Увеличенное в 2.5 раза изображение пятна люминесценции фокусировалось на входную щель решеточного монохроматора с линейной дисперсией 3.2 нм/мм. Для регистрации излучения использовалась ПЗС матрица Spec-10 (Princeton Instruments), охлаждаемая жидким азотом. В подавляющем большинстве экспериментов ширина щели спектрографа составляла 20 мкм, что в сочетании с размером пикселя 20 мкм соответствует спектральному разрешению не хуже 0.07 нм.

3. Результаты и обсуждение

Исследование топографии поверхности гетероструктур проводилось методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) с помощью микроскопа SmartSPM (АИСТ-НТ), работающего в режиме вертикальной моды [21]. Метод АСМ на ростовых поверхностях выращенных гетероструктур обнаружены холмики высотой до 40 нм, диаметром до 80 нм, их плотность составляла $\sim 10^8$ см² (рис. 1, а). Похожие холмики наблюдались ранее в работах [22–25]. В работе [25] экспериментально показано, что холмики образованы селеновыми преципитатами. Естественно, что холмики резко ухудшают качество поверхности и, следовательно, влияют на добротность МР. В частности, для образца, изображенного на рис. 1, а, шероховатость поверхности на площади 4.9×4.9 мкм характеризуется $\text{rms} = 1.88$ нм. Это слишком большая величина для получения высокодобротного диэлектрического зеркала. После отжига в атмосфере водорода при температуре 320°C в течение 1.5 ч холмики исчезли, а

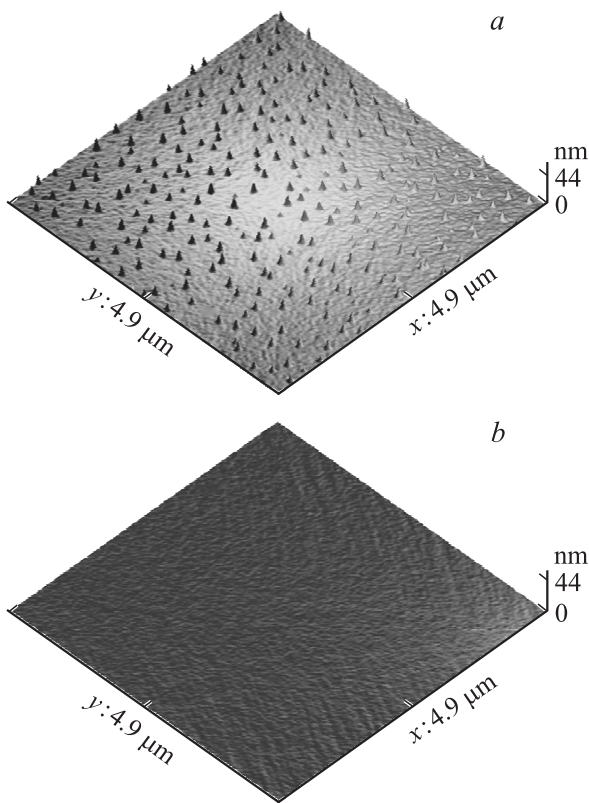


Рис. 1. 3D АСМ-изображения поверхности пленки после роста (а) и после отжига в водороде при температуре 320°С в течение 1.5 ч (b).

значение rms уменьшилось до 0.344 нм (рис. 1, b). Этот прием использовался в дальнейшем перед нанесением первого диэлектрического зеркала. Перед нанесением второго зеркала применялся отжиг в вакууме при температуре 200°С в течение 1 ч. Результаты, касающиеся влияния подобных отжигов на различные свойства пленок, будут опубликованы отдельно.

На рис. 2, а представлен спектр ФЛ одной из исходных пленок (PL123) ZnSe/GaAs толщиной 210 нм, записанный вблизи дна экситонной зоны при температуре 5 К (кривая 1). Две наиболее коротковолновые линии в данном спектре, обозначенные X_{hh} (2.8062 эВ) и X_{lh} (2.8181 эВ), представляют собой излучение свободных экситонов. Линия X_{hh} соответствует дну зоны экситонных состояний, сформированных с участием тяжелых дырок, линия X_{lh} — дну зоны экситонов, образованных с участием легких дырок. Эта интерпретация подтверждается наличием интенсивных резонансов в спектре отражения (кривая 2 на рис. 2, а), положение которых соответствует экситонным пикам в люминесценции. Дополнительные особенности в спектре отражения, расположенные по обе стороны от основных резонансов, связаны с интерференционными эффектами. Природа этих эффектов связана с тем, что по мере приближения к экситонному резонансу, происходит сильное изменение

показателя преломления, которое способствует появлению минимумов и максимумов, за счет соответственно деструктивной и конструктивной интерференции. Спектральное положение экситонных резонансов указывает на отсутствие пластической релаксации в исследуемой пленке [26].

Излучение в спектральном диапазоне 2.798–2.805 эВ вызвано наличием в пленке водородоподобных доноров. Две линии в данном диапазоне, обозначенные D^0X и D^0X^* , представляют собой ФЛ экситонно-примесных комплексов (ЭПК) на нейтральных донорных примесях. D^0X (2.8009 эВ) отвечает основному состоянию ЭПК, D^0X^* — возбужденному. Полоса в районе 2.799 эВ

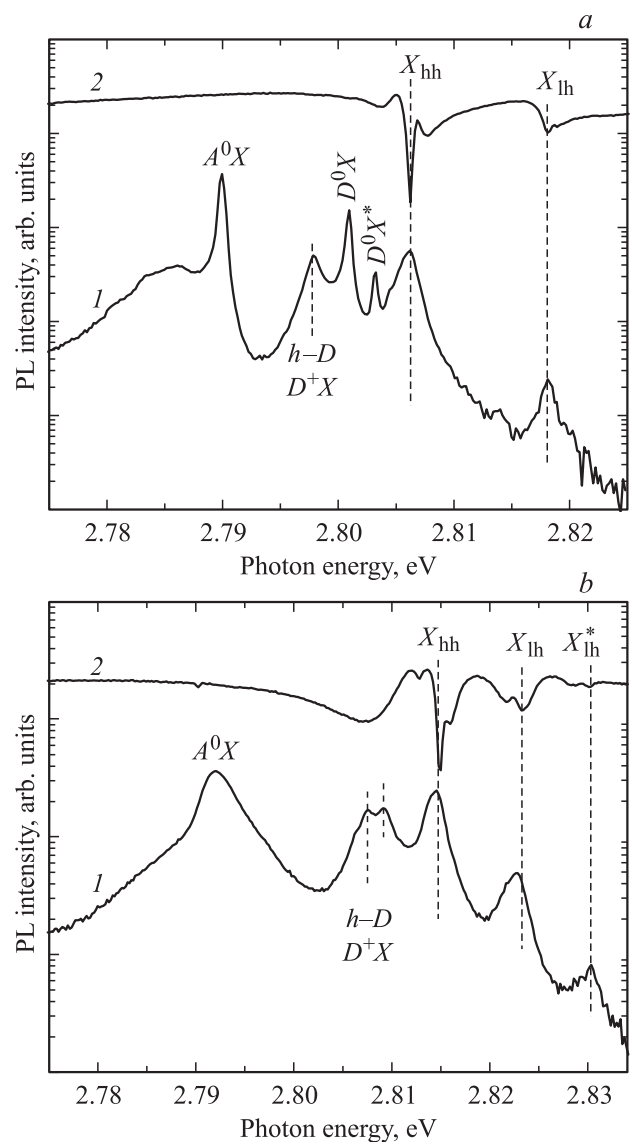


Рис. 2. Спектры ФЛ (1) и фотоотражения (2) вблизи дна экситонной зоны для исходных пленок ZnSe/GaAs (а) и ZnSSe/GaAs (b) с толщиной 210 нм. Температура 5 К. ФЛ возбуждается непрерывным лазером, работающим на длине 405 нм. Плотность мощности возбуждения ~ 0.25 Вт/см². X_{lh}^* — обозначает возбужденное состояние экситона с участием легкой дырки.

возникает в результате наложения излучения ЭПК на заряженном доноре (D^+X) и излучения, вызванного рекомбинацией свободной дырки с электроном, связанным на нейтральном доноре ($h-D$). Наиболее длинноволновая линия в спектре на рис. 2, *a* (A^0X , 2.7899 эВ) представляет собой ФЛ экситонов, связанных на нейтральных акцепторах [27].

Представленная на рис. 2, *a* структура излучения ЭПК хорошо воспроизводится для нескольких серий пленок ZnSe/GaAs и, таким образом, не может быть связана со случайным вхождением фоновых примесей. Ввиду относительно малой толщины эпитаксиальной пленки, а также значительной температуры роста следует ожидать, что основные донорные и акцепторные центры возникают за счет диффузии в ZnSe атомов Ga и As из подложки. Таким образом, основным кандидатом на роль водородоподобного донора является примесь Ga в цинковой подрешетке. Данный вывод согласуется с имеющимися литературными данными [28,29] о спектральном положении линий излучения ЭПК на Ga_{Zn} . В отличие от доноров, доминирующий в спектре ФЛ акцепторный центр не является водородоподобным [30]. Учитывая, что в состав соответствующего дефекта, по-видимому, входят примеси Ga или As, следует связать ЭПК в районе 2.7899 эВ с одним из двух типов акцепторных центров — примесью замещения As_{Se} или комплексом ($V_{Zn}-Ga$) с участием вакансии цинка и донора. Данный вывод подтверждается спектральным положением линии A^0X , которое согласуется с имеющимися представлениями об излучении ЭПК на As_{Se} в ZnSe [27]. Другим вероятным кандидатом на роль доминирующего акцептора является комплекс ($V_{Zn}-Ga$) [31].

На рис. 2, *a* справа представлены спектры ФЛ (кривая 1) и фотоотражения (кривая 2) для пленки ZnSSe/GaAs толщиной 210 нм (PL141), записанные при температуре 5 К. Как видно из рис. 2, добавление серы смещает линии излучения ЭПК и свободных экситонов в коротковолновую область. Также уменьшается энергетический сдвиг между экситонными резонансами X_{lh} и X_{hh} , что вызвано уменьшением величины упругих напряжений в пленке. Отметим, что в спектрах фотоотражения и ФЛ на рис. 2, *b* отчетливо регистрируется дополнительная коротковолновая особенность, расположенная в районе 2.83 эВ. Данная особенность связана, предположительно, с возбужденным состоянием легкого экситона. Как и в случае пленки ZnSe/GaAs, вблизи экситонных резонансов присутствуют особенности, вызванные интерференционными эффектами.

Спектры отражения и ФЛ, аналогичные приведенным на рис. 2, были записаны для нескольких серий пленок ZnSe/GaAs и Zn(S)Se/GaAs. С использованием полученных данных построена зависимость величины расщепления между линиями X_{lh} и X_{hh} от спектрального положения линии X_{hh} (см. рис. 3). Из рис. 3 следует, что расщепление между экситонными резонансами в пленках Zn(S)Se, согласованных по постоянной решетки с

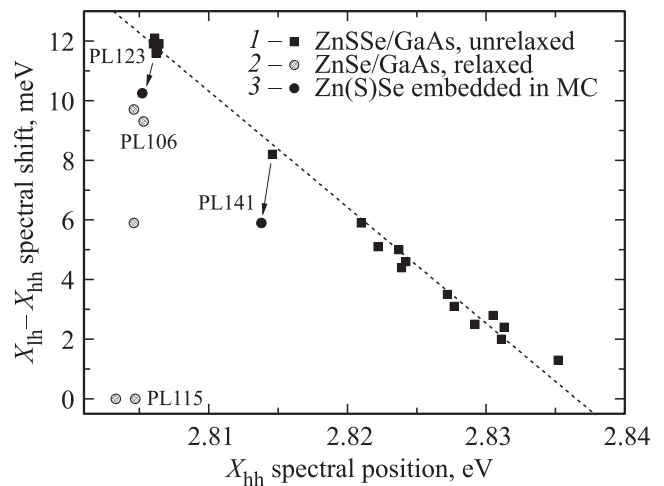


Рис. 3. Спектральный сдвиг между экситонными линиями X_{lh} и X_{hh} в зависимости от спектрального положения X_{hh} для нерелаксированных пленок ZnSSe/GaAs (1), релаксированных пленок ZnSe/GaAs (2) и пленок Zn(S)Se, размещенных в гибридном МР (3). Стрелки иллюстрируют изменения, произошедшие в результате размещения пленки в МР. Все экспериментальные данные получены при температуре 5 К. Пунктирная линия — аппроксимация экспериментальных данных для нерелаксированных пленок линейной зависимостью (см. текст).

подложкой GaAs, хорошо описывается линейной зависимостью $\hbar\omega(X_{lh}) - \hbar\omega(X_{hh}) = (2.8365 - \hbar\omega(X_{hh})) \cdot 0.3894$ (энергии квантов $\hbar\omega(X_{lh})$, $\hbar\omega(X_{hh})$ выражены в эВ). Данная зависимость подразумевает малые концентрации серы $\hbar\omega(X_{hh}) < 2.8365$ эВ. Пленки, в которых наблюдается изменение постоянной решетки за счет пластической релаксации, располагаются ниже указанной линейной зависимости, причем степень релаксации возрастает по мере удаления от нее. Помимо изменения среднего значения постоянной решетки, пластическая релаксация приводит к появлению в спектрах ФЛ характерного дислокационного излучения (см. кривые 2, 3 на рис. 4). Данное свойство релаксированных пленок согласуется с результатами ряда аналогичных исследований [32,33].

Сравнительно простой способ контроля пластической релаксации напряжений в выращенных пленках позволил отдельно оценить влияние концентрации серы и степени пластической релаксации на излучение ЭПК. В нерелаксированных пленках Zn(S)Se/GaAs увеличение концентрации серы слабо влияет на энергию связи ЭПК на нейтральных донорах. В то же время для ЭПК на нейтральных акцепторах наблюдается монотонное увеличение энергии связи, которое демонстрирует линейную зависимость от спектрального положения линии $\hbar\omega(X_{hh})$. Данная зависимость хорошо воспроизводит энергию связи (17.3 мэВ), соответствующую линии A^0X в исследованных пленках без серы. Таким образом, можно утверждать, что доминирующие ЭПК в нерелаксированных пленках ZnSe/GaAs и ZnSSe/GaAs соответствуют одним

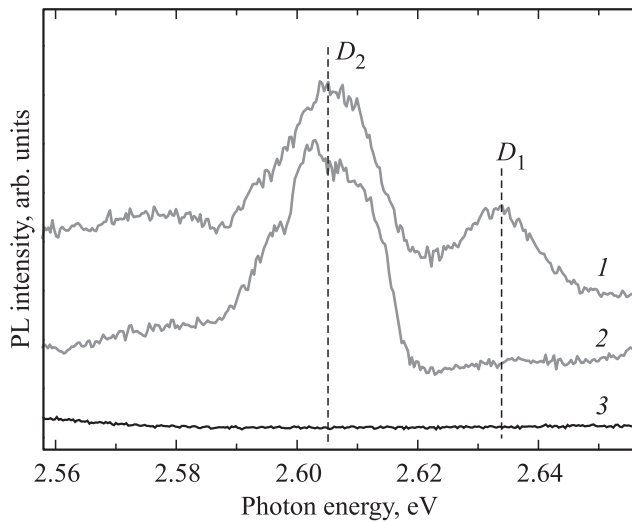


Рис. 4. Спектры ФЛ частично релаксированных пленок ZnSe/GaAs PL115 (1) и PL106 (2) в области дислокационного излучения. Расщепление между пиками X_{lh} и X_{hh} для данных пленок показано на рис. 3, а. Внизу приведен спектр ФЛ пленки ZnSe (PL123) после удаления подложки GaAs и размещения между двух многослойных диэлектрических зеркал. Температура 5 К. Принадлежность линии D к дислокационному излучению подтверждается рядом работ (см., например [31,32]).

и тем же типам доноров (Ga_{Zn}) и акцепторов (As_{Se} и/или комплекс ($V_{Zn}-Ga$)). При наличии пластической релаксации напряжений возможность количественного анализа излучения ЭПК существенно усложняется ввиду плохой воспроизводимости спектров ФЛ и уширения линий излучения. Тем не менее можно утверждать, что увеличение постоянной решетки в плоскости пленки приводит к красному сдвигу линий излучения свободных экситонов и ЭПК, причем величина сдвига монотонно возрастает с повышением степени релаксации. Более детально результаты анализа примесно-дефектного излучения в исследованных пленках будут опубликованы отдельно.

Рис. 5, а иллюстрирует изменения спектров ФЛ в результате удаления подложки GaAs и размещения пленки ZnSe в гибридном МР (после всего технологического цикла, описанного в разд. 2). На данном рисунке представлены спектр исходной пленки (кривая 1), соответствующий данным на рис. 2, а, и спектры ФЛ пленки в МР, записанные через верхнее диэлектрическое зеркало в двух разных областях (кривые 2, 3). Ввиду того что диэлектрическое зеркало пропускает приблизительно 0.1% излучения, сигнал ФЛ от пленки в МР ослаблен в ~ 1000 раз, что объясняет зашумленность кривых 2 и 3. Тем не менее качество сигнала ФЛ, соответствующего экспериментальным данным на рис. 5, достаточно, чтобы зарегистрировать изменения экситонного излучения пленки, возникающие при ее размещении в гибридном МР. Модификация экситонного спектра в пленке ZnSe, представленная на рис. 5,

позволяет выявить четыре эффекта: 1) появление дублетной структуры у линии излучения тяжелого экситона; 2) уменьшение относительного вклада в спектр ЭПК; 3) низкочастотный сдвиг линий ЭПК и свободных экситонов; 4) уменьшение расщепления между линиями излучения легких (X_{lh}) и тяжелых экситонов (X_{hh}). Для пленок, содержащих серу, наблюдается качественно схожая картина изменений экситонного спектра (см. рис. 5, б). Основное отличие состоит в том, что не регистрируется уменьшение относительной интенсивности линии D^0X . Отметим, что размещение пленок ZnSe и ZnSSe в МР приводит лишь к незначительному уширению линий излучения, относящихся к свободным экситонам. В частности, спектральная ширина линии X_{hh} для верхних кривых 2 и 3 на рис. 5 не превышает 3–4 мэВ. Данная величина существенно меньше характерного расщепления Раби в ZnSe ~ 10 –20 мэВ [34] и, таким образом, достаточна для достижения режима сильной связи экситонов с фотонами в гибридном МР.

Рассмотрим основные причины изменений спектров ФЛ, представленных на рис. 5. Первый эффект — появление тонкой структуры вблизи линии X_{hh} — связан с возрастанием роли перепоглощения при размещении пленки в МР [35]. Такое перепоглощение возникает по мере приближения энергии испущенных квантов к энергии экситонных состояний с нулевым квазиимпульсом. В результате вблизи дна экситонной зоны формируется область, для которой наблюдается уменьшение интенсивности излучения, вышедшего из МР, что и определяет тонкую структуру линии X_{hh} на рис. 5. Второй эффект — изменение относительной интенсивности ЭПК при размещении пленки в МР — определяется, вероятно, ее отжигом при температуре 200°C до и во время нанесения диэлектрических покрытий. Перестройка спектра излучения ЭПК, аналогичная описанной выше, наблюдается и в пленке, содержащей серу (см. рис. 5, б). Причем как для пленки ZnSe (рис. 5, а), так и для пленки ZnSSe (рис. 5, б) изменение относительной интенсивности линии A^0X заметно сильнее, чем для линии D^0X .

Из данного наблюдения следует, что в исследуемых пленках акцепторные центры в большей степени подвержены отжигу, чем водородоподобные доноры Ga_{Zn} . При температурах порядка 200°C заметной может быть только диффузия V_{Zn} . Ранее [36] было показано, что во время эпитаксии ZnSe на подложках GaAs в пленку эффективно проникает только Ga, в то время как диффузия и/или сегрегация As незначительна. Кроме того, в работе [31] указывается, что основным акцептором, компенсирующим n-тип проводимости, является комплекс ($V_{Zn}-Ga_{Zn}$). На основании этих данных мы полагаем, что в качестве доминирующего акцептора выступает комплекс ($V_{Zn}-Ga_{Zn}$), а не As_{Se} .

Отметим также, что дополнительной причиной модификации экситонных спектров, представленных на рис. 5, могут быть изменения условий поверхностной рекомбинации, уменьшающей время жизни экситонов и вероятность их захвата на ЭПК. Этот эффект может

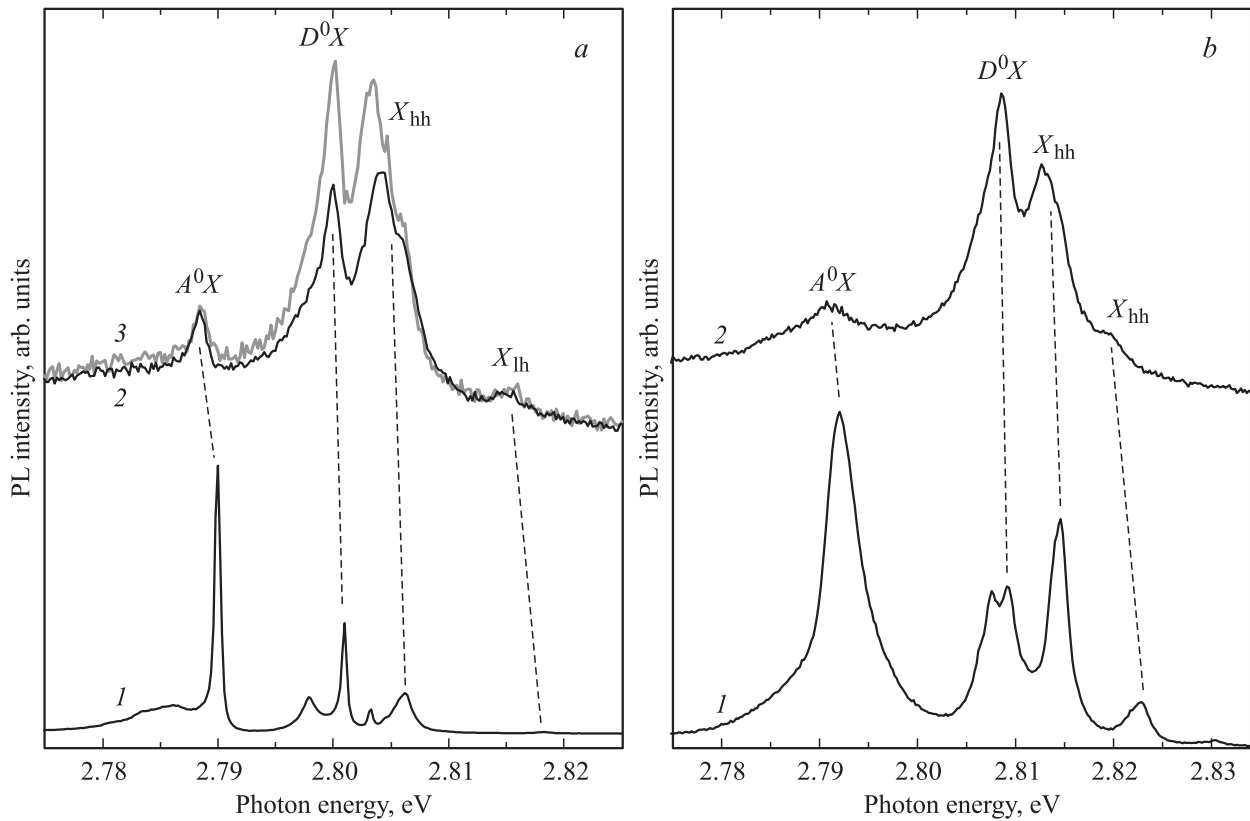


Рис. 5. Спектры ФЛ пленок ZnSe (a) и ZnSse (b). Кривая 1 — спектры исходных пленок, соответствующие данным на рис. 2. Кривые 2 и 3 — спектры пленок после удаления подложки GaAs и их размещения между двух многослойных диэлектрических зеркал. Для пленки ZnSe (a) эти спектры записаны в двух разных точках (2, 3). Спектры ФЛ пленок в МР записаны через диэлектрическое покрытие. Для возбуждения спектра ФЛ пленок в МР использовался импульсный (5 нс) лазер, работающий на длине волны 355 нм. Температура 5 К.

быть в значительной мере подавлен путем использования приповерхностных тонких барьеров ZnSse с повышенной концентрацией S.

С технологической точки зрения, наиболее значимыми изменениями экситонных состояний в пленках при их размещении в МР следует считать эффекты 3) и 4) — низкочастотный сдвиг всех экситонных пиков и уменьшение расщепления между линиями свободных экситонов X_{lh} , X_{hh} . Два данных эффекта независимо указывают на увеличение постоянной решетки ZnSe в латеральном направлении. На основе изменения величины расщепления $\hbar\omega(X_{lh}) - \hbar\omega(X_{hh})$ несложно получить оценку относительного изменения постоянной решетки, которая составляет $\Delta a/a \sim 10^{-4}$. Отметим, что низкочастотный сдвиг экситонных пиков и уменьшение расщепления между X_{lh} , X_{hh} , вызванные увеличением постоянной решетки на $\sim 0.01\%$, наблюдаются и для напряженной пленки, содержащей серу (рис. 5, b).

Обнаруженные изменения постоянной решетки, по видимому, связаны с небольшим латеральным расширением пленки при удалении GaAs подложки и/или в процессе нанесения второго диэлектрического зеркала (как отмечалось выше, в процессе нанесения зеркал вся структура нагревается до температуры 200°C).

Расширение пленки может быть вызвано релаксацией внутренних упругих напряжений, заложенных при эпитаксии, путем введения дислокаций в пленку во время процесса изготовления МР. Чтобы оценить наличие дислокаций в пленках, размещенных внутри гибридного МР, были проведены измерения спектров ФЛ в области дислокационного излучения Zn(S)Se. Пример такого спектра, записанного для МР на основе пленки ZnSe (PL123), иллюстрирует кривая 3 на рис. 4. Как видно из рис. 4, каких-либо признаков дислокационного излучения в пленке не наблюдается. Отметим, что в отличие от экситонного излучения ФЛ, связанная с дислокациями (2.58–2.64 эВ), находится в спектре вне области сильного отражения диэлектрических зеркал, т.е. ослабление люминесценции, выходящей через зеркало, оказывается незначительным. Таким образом, отсутствие заметного сигнала ФЛ в районе 2.58–2.64 эВ указывает на отсутствие заметной концентрации дислокаций. Данный вывод подтверждается исследованиями ФЛ других гибридных МР, в том числе на основе пленок Zn(S)Se.

В образце МР размером 5–10 мм при отсутствии дислокаций относительное изменение постоянной решетки $\Delta a/a \sim 10^{-4}$ в плоскости роста соответствует латеральному расширению пленки Zn(S)Se на величину

порядка 1 микрона (упругая релаксация). Данная величина более чем на порядок меньше суммарной толщины нижнего диэлектрического зеркала и слоя оптического клея, отделяющего пленку ZnSe от сапфировой подложки. Поэтому заключение о том, что в процессе расширения не происходит заметного формирования дислокаций, не противоречит сохранению монолитности структуры. Кроме того, уменьшение напряжений в пленке может сопровождаться пластической деформацией аморфного диэлектрического зеркала и (или) клеевого слоя.

4. Заключение

Предложена технология создания полностью гибридных микрорезонаторов, состоящих из полупроводниковых пленок и аморфных диэлектрических покрытий. Основу данной технологии составляет перенос тонкого (200–250 нм) эпитаксиального слоя с ростовой подложки на другую подложку; при этом на обе поверхности эпитаксиального слоя наносятся высокоотражающие многослойные покрытия, которые и формируют зеркала МР. Предложенное технологическое решение апробировано с использованием эпитаксиальных пленок Zn(S)Se в качестве активной среды резонатора и многослойных покрытий SiO₂/Ta₂O₅ — в качестве зеркал.

Для оценки применимости описанного подхода исследованы экситонные состояния в исходных пленках Zn(S)Se/GaAs и в пленках Zn(S)Se, помещенных между двух диэлектрических зеркал. Данная задача решалась в основном с помощью анализа спектров низкотемпературной ФЛ (5К). В исходных пленках Zn(S)Se/GaAs спектр краевого излучения определяется свободными экситонами, а также экситонами, связанными на нейтральных донорах (Ga_{Zn}) и акцепторах (предположительно комплекс вакансия-донор). Ввиду наличия напряжений, для свободных экситонов наблюдается расщепление на состояния с участием легкой и тяжелой дырок. Для нерелаксированных упругонапряженных пленок, содержащих серу, величина расщепления линейно зависит от положения дна зоны тяжелых экситонов.

В пленках Zn(S)Se, помещенных между двух диэлектрических зеркал, структура экситонных состояний в целом сохраняется, но наблюдается низкочастотный сдвиг на 0.5–1 мэВ линий излучения связанных экситонов и свободного экситона с участием тяжелой дырки. Также уменьшается величина расщепления между состояниями легкого и тяжелого экситонов. Два данных фактора независимо указывают на увеличение постоянной решетки в латеральном направлении для пленок, размещенных в микрорезонаторе. Изменение постоянной решетки составляет ~ 0.01% и не приводит к появлению дислокационного излучения, которое характерно для частично релаксированных пленок Zn(S)Se/GaAs. Повидимому, обнаруженное изменение постоянной решетки вызвано небольшим (порядка нескольких микрон) макроскопическим расширением пленки при удалении

GaAs подложки и (или) в процессе нанесения второго зеркала резонатора.

В целом полученные данные указывают на то, что оптическое и структурное качество пленок Zn(S)Se в многослойной системе (SiO₂–Ta₂O₅)/Zn(S)Se(SiO₂–Ta₂O₅)/сапфир достаточно для создания полностью гибридных микрорезонаторов, для которых реализуема сильная связь выделенной моды с экситонным возбуждением полупроводниковой активной среды.

Работа Н.С.Н. (измерения и анализ спектров отражения) выполнена при финансовой поддержке РФФ (14-22-00273); остальная часть работы выполнена при финансовой поддержке РФФИ (14-02-01074, 15-32-21036) и Гранта президента РФ (МК-5417.2015.2).

Список литературы

- [1] R. Balili, V. Hartwell, D. Snoko, L. Pfeiffer, K. West. *Science*, **316**, 1007 (2007).
- [2] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann et al. *Nature*, **443**, 409 (2006).
- [3] D. Xu, W. Xie, W. Liu, J. Wang et al. *Appl. Phys. Lett.*, **104**, 082101 (2014).
- [4] O. Kyriienko, T.C.H. Liew, I.A. Shelykh. *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 076402 (2014).
- [5] C. Khripkov, C. Piermarocchi, A. Vardi. *Phys. Rev. B*, **88**, 235305 (2013).
- [6] M.M. Glazov, M.A. Semina, E.Y. Sherman, A.V. Kavokin. *Phys. Rev. B*, **88**, 041309 (2013).
- [7] J. Restrepo, C. Ciuti, I. Favero. *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 013601 (2014).
- [8] F. Li, L. Orosz, O. Kamoun, S. Bouchoule et al. *Appl. Phys. Lett.*, **102**, 191118 (2013).
- [9] K.S. Daskalakis, P.S. Eldridge, G. Christmann et al. *Appl. Phys. Lett.*, **102**, 101113 (2013).
- [10] S.V. Poltavtsev, I.I. Ryzhov, M.M. Glazov. *Phys. Rev. B*, **89**, 081304 (2014).
- [11] S. Koghee, M. Wouters. *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 036406 (2014).
- [12] D. Xu, W. Xie, W. Liu, J. Wang, L. Zhang. *Appl. Phys. Lett.*, **104**, 082101 (2014).
- [13] T. Espinosa-Ortega, T.C.H. Liew. *Phys. Rev. B*, **87**, 195305 (2013).
- [14] P. Bhattacharya, T. Frost, S. Deshpande et al. *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 236802 (2014).
- [15] V.V. Belykh, N.N. Sibeldin, V.D. Kulakovskii et al. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 137402 (2013).
- [16] A. Curran, J.K. Morrod, K.A. Prior, A.K. Kar, R.J. Warburton. *Semicond. Sci. Technol.*, **22**, 1189 (2007).
- [17] A. Pawlis, A. Khartchenko, O. Husberg et al. *Sol. St. Commun.*, **123**, 235 (2002).
- [18] J. Klaers, J. Schmitt, F. Vewinger, M. Weitz. *Nature*, **468**, 546 (2010).
- [19] V.Yu. Bondarev, V.I. Kozlovsky, A.B. Krysa, J.S. Roberts, Ya.K. Skasyrsky. *International J. Nanoscience*, **3** (1–2), 193 (2004).
- [20] В.И. Козловский, П.И. Кузнецов, Д.Е. Свиридов, Г.Г. Якущева. *Квант. электрон.*, **42** (7), 583 (2012).
- [21] А.Г. Темиряев, В.И. Борисов, С.А. Саунин. *Поверхность*, **7**, 93 (2014).

- [22] X.B. Zhang, S.K. Hark. Appl. Phys. Lett., **74**, 3857 (1999).
- [23] M. Lopez-Lopez, A. Guillen-Cervantes et al. J. Cryst. Growth, **193**, 528 (1998).
- [24] J.B. Smathers, E. Kneeder. Appl. Phys. Lett., **72**, 1238 (1998).
- [25] X.B. Zhang, K.L. Ha, S.K. Hark. J. Cryst. Growth, **223**, 528, (2001).
- [26] R.J. Thomas, B. Rockwell, H.R. Chandrasekhar, M. Chandrasekhar, A.K. Ramdas, M. Kobayashi, R.L. Gunshor. J. Appl. Phys., **78**, 6569 (1995).
- [27] Y. Zhang, B.J. Skromme, S.M. Shibli, M.C. Tamargo. Phys. Rev. B, **48**, 10885 (1993).
- [28] P.J. Dean, D.C. Herbert, C.J. Werkhoven, B.J. Fitzpatrick, R.N. Bhargava. Phys. Rev. B, **23**, 4888 (1981).
- [29] X. Wang, D. Huang, C. Sheng, G. Yu. J. Appl. Phys., **90**, 6114 (2001).
- [30] P.J. Dean. Phys. Status Solidi *a*, **81**, 625 (1984).
- [31] G. Gleitsmann, N. Ammann, J. Hermans, A. Schneider, J. Geurts, P. Karduck, M. Heuken. J. Cryst. Growth, **138**, 324 (1994).
- [32] J. Schreiber, U. Hilpert, L. Höring, L. Worschech, B. König, W. Ossau, A. Waag, G. Landwehr. Phys. Status Solidi B, **222**, 169 (2000).
- [33] I.S. Hauksson, S.Y. Wang, J. Simpson, K.A. Prior, B.C. Cavennett. Phys. Rev. B, **52**, 17184 (1995).
- [34] K. Sebald, A. Trichet, M. Richard et al. Eur. Phys. J. B, **84**, 381 (2011).
- [35] B. Sermage, M. Voos. Phys. Rev. B, **15**, 3935 (1977).
- [36] M. Yoneta, H. Saito, M. Ohishi. J. Cryst. Growth, **138**, 110 (1994).

Редактор А.Н. Смирнов

Esxitonic emission of fin crystalline Zn(S)Se films embedded in the hybrid SiO₂/Ta₂O₅ microcavity

V.I. Kozlovskiy^{*+}, V.S. Krivobok^{*+}, P.I. Kuznetsov[•], S.N. Nikolaev^{*}, E.E. Onistchenko^{*}, A.A. Pruchkina^{*}, A.G. Timiryazev[•], S.I. Chentsov^{*}

* Lebedev Physical Institute
of the Russian Academy of Sciences,
119991 Moscow, Russia

+ National Research Nuclear University MEPhI
(Moscow Engineering Physics Institute),
115409 Moscow, Russia

• Institute of Radio-engineering and Electronics
of the Russian Academy of Science,
141120 Fryazino, Russia

Abstract New technique allowing a fabrication of fully-hybrid microcavities using Zn(S)Se/GaAs epilayers and amorphous SiO₂/Ta₂O₅ distributed Bragg reflectors is presented. The influence of the all technological stages on the structure and excitonic spectrum of Zn(S)Se epilayers is demonstrated. This influence includes four main effects: splitting of the emission band related to the heavy-hole excitons, reduction of the relative contribution to a photoluminescence spectrum from excitons bound at neutral acceptors, low-frequency shift of the emission bands related to the heavy-hole excitons and exciton-impurity complexes, reduction of the heavy hole-light hole splitting. The fully hybrid microcavity samples with the high structural and optical quality of Zn(S)Se epilayers are created.