

# Локализация дырок в квантовой молекуле InAs/GaAs

© М.М. Соболев, Г.Э. Цырлин, Ю.Б. Самсоненко, Н.К. Поляков, А.А. Тонких, Ю.Г. Мусихин

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

(Получена 1 июня 2004 г. Принята к печати 16 июня 2004 г.)

Методом нестационарной спектроскопии глубоких уровней исследована эмиссия дырок из состояний в системе вертикально сопряженных квантовых точек InAs, в  $p$ - $n$ -гетероструктурах InAs/GaAs в зависимости от толщины прослойки GaAs между двумя слоями квантовых точек InAs и от величины напряжения обратного смещения  $U_r$ . Было установлено, что для квантовой молекулы, состоящей из двух вертикально сопряженных самоорганизующихся квантовых точек в гетероструктуре InAs/GaAs при толщинах прослойки GaAs 20 и 40 Å между двумя слоями квантовых точек InAs, реализуется эффект локализации дырок в одной из квантовых точек. При толщинах прослойки GaAs 100 Å было обнаружено неполное связывание двух слоев квантовых точек, что приводило к перераспределению локализации дырок между верхними и нижними квантовыми точками при изменении напряжения  $U_r$ , прикладываемого к структуре. Исследуемые структуры с вертикально сопряженными квантовыми точками выращивались методом молекулярно-пучковой эпитаксии за счет эффектов самоорганизации.

## 1. Введение

В настоящее время одной из самых интересных тем в современной физике полупроводников являются исследования эффектов сопряжения и гибридизации квантовых состояний самоорганизующихся точек. Вертикально сопряженные структуры являются перспективными при создании лазеров с квантовыми точками [1], элементов оптической памяти [2] и для их возможного применения в качестве квантовых компьютеров [3]. Предполагается, что вертикально сопряженная система, состоящая из двух массивов квантовых точек (КТ), разделенных прослойкой между рядами КТ, может представлять собой одиночный кубит [4]. Необходимым условием для реализации одиночного кубита является квантово-механическое связывание волновых функций двух КТ, аналогичное тому, что реализуется в молекулах. Формирование молекулярных состояний вертикально сопряженных квантовых точек (ВСКТ) привлекает пристальное внимание как теоретиков [3–7], так и экспериментаторов [7–11]. В теоретической работе [5] было показано, что две КТ в зависимости от расстояния между ними могут находиться либо в фазе атомной единичной точки, либо молекулы. При малом расстоянии между точками должно реализоваться условие сильной связи и пара поведет себя как единичная точка. При большом расстоянии они поведут себя как несвязанные точки. Как показано в работе [5], при промежуточном расстоянии они должны вести себя уже как новый тип молекулы. При сопряжении квантовых точек должно происходить расщепление уровней на связанные и антисвязанные состояния, положение этих уровней будет зависеть от расстояния между точками [3–6]. Из результатов теоретической работы [2] следовало, что образование связанных и антисвязанных состояний может происходить лишь для электронных состояний квантовой молекулы, для квантовых же состояний дырок, по мнению авторов статьи [8], из-за большой эффективной массы дырок образования связанных и антисвязанных состояний происходить не будет, а должна возникать локализация

дырок в КТ. На возможность образования связанных и антисвязанных состояний для дырочных состояний квантовых молекул в зависимости от расстояния между точками было указано в работах [3,6,7]. Когерентная двухуровневая система может контролироваться с помощью коротких оптических импульсов [7] или приложенного к гетероструктуре электрического поля, приводя к изменению локализации дырок в квантовой молекуле [8,9]. Такие исследования проводили, используя эффект резонансного туннелирования [11] и измерения с помощью микрофотолюминесценции [7,9]. В работах [9,10], кроме того, исследовали усиление эффекта гибридизации электронных состояний двух квантовых точек в зависимости от толщины барьера между ними.

Ранее мы уже сообщали о наблюдении в гетероструктурах InAs/GaAs с ВСКТ эффектов:

1) кулоновского взаимодействия носителей, локализованных в КТ, с ионизованными дефектами решетки, расположенными в ближайших окрестностях КТ;

2) квантово-размерного эффекта Штарка [12,13].

Проявление каждого из них связано со смещением положения пика DLTS (нестационарная спектроскопия глубоких уровней). В эффекте кулоновского взаимодействия смещение пика зависит от условий предварительного изохронного отжига (наличия или отсутствия при отжиге приложенного обратного напряжения) и определяется образованием диполя, встроенное электростатическое поле которого изменяет высоту барьера для эмиссии носителей. В эффекте Штарка оно определяется сильной зависимостью положения уровней энергии состояний ВСКТ от величины приложенного внешнего электрического поля. Проявление этих двух эффектов позволяет сопоставить наблюдаемые пики DLTS с квантовыми состояниями в гетероструктурах InAs/GaAs с ВСКТ, а также определить, являются ли они уровнями локализованных, связанных и антисвязанных  $s$ - и  $p$ -состояний ВСКТ. Применение этого подхода для структуры ВСКТ, состоящей из 6 рядов квантовых точек InAs, разделенных прослойкой GaAs толщиной

$d_{\text{GaAs}} = 40 \text{ \AA}$ , позволило нам установить, что для такого рода системы сопряженных точек происходит образование связанных и антисвязанных  $s$ - и  $p$ -состояний дырок [12,13].

В данной работе представлены результаты вольт-фарадных и DLTS-исследований квантовых состояний InAs/GaAs-гетероструктур с двумя рядами вертикально сопряженных точек в зависимости от толщины прослойки GaAs и от величины напряжения обратного смещения  $U_r$ . Исследуемые InAs/GaAs-гетероструктуры с вертикально сопряженными квантовыми точками выращивались методом молекулярно-пучковой эпитаксии за счет эффектов самоорганизации.

## 2. Образцы и методы исследования

Исследуемые в работе InAs/GaAs-гетероструктуры с ВСКТ были получены методами молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках  $n^+$ -GaAs с ориентацией (100). Массив КТ был сформирован в результате двухкратного осаждения 2 монослоев InAs, разделенных прослойкой GaAs толщиной 20, 40 и 100 Å. ВСКТ были помещены в середину  $p^0$ -GaAs толщиной 0.90 мкм. Сверху слой  $p^0$ -GaAs был покрыт  $p^+$ -GaAs. DLTS-исследования глубоких ловушек в гетероструктурах производились с помощью спектрометра DL4600 фирмы BIO-RAD, работающего в режиме двухстробного интегрирования. Для проведения DLTS-измерений на подложку  $n^+$ -GaAs и слой  $p^+$ -GaAs были термически осаждены омические контакты. Перед каждым DLTS-измерением образец изохронно отжигался в течение 1 мин при фиксированной температуре и при одном из условий: приложенном ( $U_{\text{га}} < 0$ ) или нулевом ( $U_{\text{га}} = 0$ ) напряжении обратного смещения. Предварительно образец нагревался до 450 К и выдерживался в течение 1 мин с напряжением обратного смещения  $U_{\text{га}} = 0$ , если отжиг проводился при  $U_{\text{га}} < 0$ , а затем охлаждался до температуры отжига. При отжиге с  $U_{\text{га}} = 0$  образец выдерживался предварительно с  $U_{\text{га}} < 0$ . Температура отжига варьировалась в пределах 80–450 К. После этого образец охлаждался до  $T = 80 \text{ К}$  при одном из 2 условий:  $U_{\text{га}} < 0$ ,  $U_{\text{га}} = 0$ . Далее начинался процесс DLTS-измерений в темноте, если это не оговаривалось предварительно, или при освещении белым светом. Для определения профиля распределения носителей в гетероструктурах были проведены вольт-фарадные ( $C-V$ ) измерения. Энергия термической активации  $E_a$  и сечения захвата носителей заряда ловушками  $\sigma_{n,p}$  определялись с применением вариации окна темпов в стандартных DLTS-измерениях.

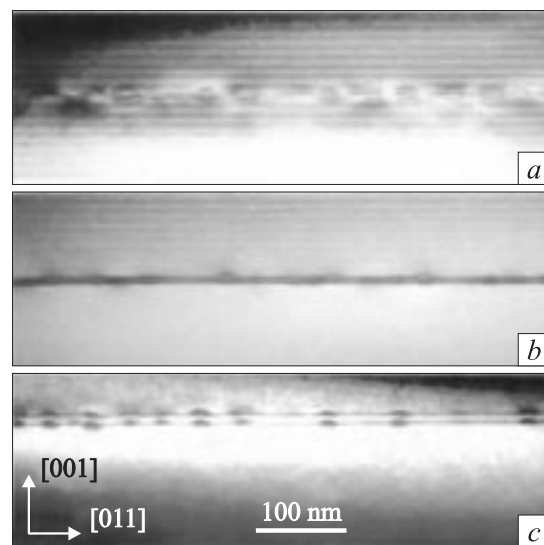
## 3. Результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлены микрофотографии образцов с 2 слоями КТ InAs, разделенных прослойкой GaAs толщиной  $d_{\text{GaAs}} = 20, 40$  и  $100 \text{ \AA}$ , полученные методом просвечивающей электронной микроскопии. Механизм образования ВСКТ InAs/GaAs был подробно исследован

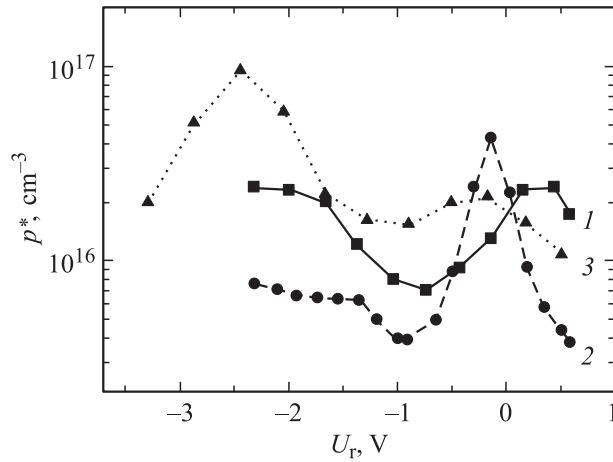
в работе [14]. Было показано, что ВСКТ формируются благодаря эффекту самоорганизации, включающему в себя перенос InAs от нижних точек к верхним и заменой его на GaAs [14]. Как видно из рис. 1, латеральные размеры нижних островков в системе ВСКТ InAs с  $d_{\text{GaAs}} = 20, 40 \text{ \AA}$  не превышают  $170 \text{ \AA}$ . Латеральные размеры верхних островков увеличиваются до  $210-220 \text{ \AA}$ . Для структуры с толщиной прослойки  $d_{\text{GaAs}} = 100 \text{ \AA}$  латеральные размеры нижних и верхних островков в системе ВСКТ InAs равны и имеют размеры  $200-230 \text{ \AA}$ .

Были проведены измерения  $C-V$ -характеристик  $p-n$ -гетероструктур InAs/GaAs с ВСКТ при температуре  $T = 82 \text{ К}$ . Изменения емкости при варьировании напряжением смещения  $U_r$  для всех структур демонстрировали типичное для локализованных состояний поведение [12]. В профилях распределения концентрации свободных дырок  $p^*(U_r)$  для структур с  $d_{\text{GaAs}} = 20, 40 \text{ \AA}$  (рис. 2, кривые 1 и 2), рассчитанных с использованием этих данных при  $T = 82 \text{ К}$ , наблюдалось по одному пику, проявление которых связано с опустошением носителей, аккумулированных на квантовых состояниях точек. В профилях дырок  $p^*(U_r)$  для структур с  $d_{\text{GaAs}} = 100 \text{ \AA}$  (рис. 2, кривая 3) наблюдалось 2 пика.

Из  $C-V$ -измерений были определены диапазоны напряжений смещения, при которых в спектрах DLTS должны наблюдаться сигналы, связанные с эмиссией носителей из состояний ВСКТ. Для определения пространственной локализации DLTS-сигналов и природы уровней, связанных с этими сигналами, были проведены измерения спектров при постоянной величине напряжения импульса заполнения  $U_f$  и при варьировании величины напряжения, при которой регистрировался DLTS-сигнал  $U_r$ . Результаты, полученные с помощью просвечивающей электронной микроскопии,



**Рис. 1.** Микрофотографии поперечного сечения образцов с 2 слоями квантовых точек InAs и толщиной прослойки GaAs между ними  $d_{\text{GaAs}}$ , Å:  $a - 20$ ,  $b - 40$ ,  $c - 100$ . Изображения получены методом просвечивающей электронной микроскопии.

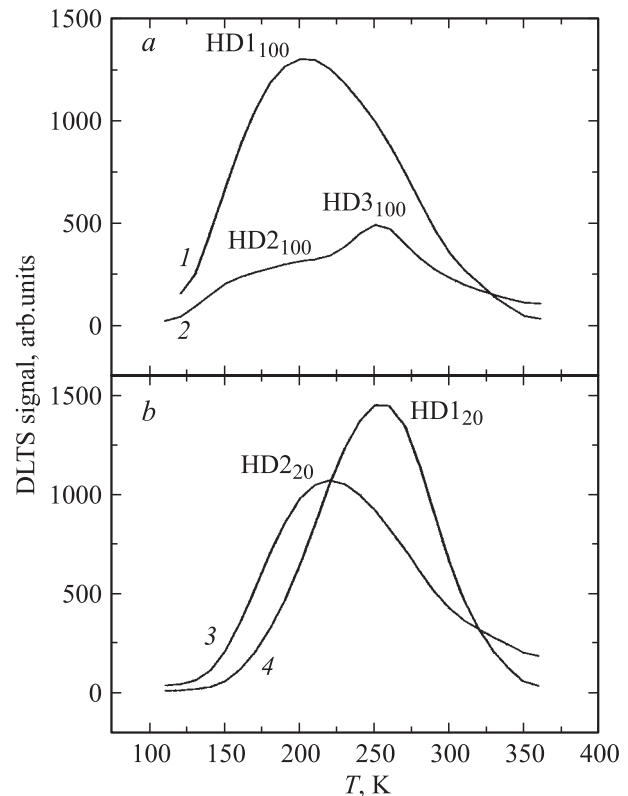


**Рис. 2.** Концентрационные профили  $p^*(U_T)$  для гетероструктур  $p-n$ -InAs/GaAs с 2 слоями квантовых точек InAs в матрице GaAs с различными толщинами прослойки  $d_{\text{GaAs}}$ , Å: 1 — 20, 2 — 40, 3 — 100. Профили определены из  $C-V$ -измерений при  $T = 82$  К после предварительного изохронного отжига при  $U_{\text{га}} < 0$ .

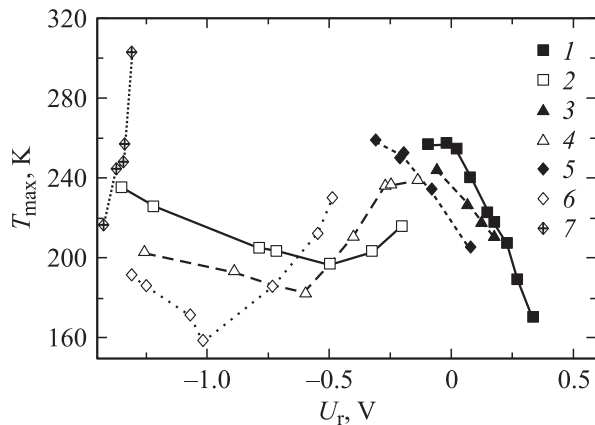
демонстрируют для структур с толщиной прослойки  $d_{\text{GaAs}} = 20$  и  $40$  Å между слоями InAs наличие двухслойной системы КТ, электронно-сопряженных в вертикальном направлении. Волновые функции островков перекрываются, и электронные свойства ВСКТ представляют собой единый объект. Для структур с толщиной прослойки  $d_{\text{GaAs}} = 100$  Å также наблюдается образование двухслойной системы КТ, но без их сопряжения в вертикальном направлении. Верхние и нижние КТ имеют приблизительно равные латеральные размеры и для этого случая наблюдается два ряда изолированных КТ.  $C-V$ -исследования показывают наличие в профилях  $p^*(U_T)$  исследуемых структур пиков, связанных с аккумуляцией носителей на квантовых состояниях ВСКТ, каждому из которых, как показали результаты наших DLTS-исследований, соответствуют пики спектров DLTS (рис. 3, *a, b*). Для структур с двумя слоями КТ, имеющих прослойки толщиной  $d_{\text{GaAs}} = 20$  (40) Å, имелось два DLTS-пика: HD1<sub>20(40)</sub> и HD2<sub>20(40)</sub>, наблюдаемых при изменении  $U_T$  в диапазонах: от  $-1.25$  до  $-0.25$  и от  $-0.25$  до  $0.25$  В (рис. 3, *b*). DLTS-спектр структуры с прослойкой GaAs толщиной  $d_{\text{GaAs}} = 40$  Å не показан, его вид — такой же, как для структуры с  $d_{\text{GaAs}} = 20$  Å. Структуры с  $d_{\text{GaAs}} = 100$  Å в том же диапазоне изменения  $U_T$  имели также два DLTS-пика (HD1<sub>100</sub> и HD2<sub>100</sub>), а при достижении величины  $U_T \approx 1.35$  В появляется еще один DLTS-пик (HD3<sub>100</sub>) (рис. 3, *a*).

Для определения природы этих уровней были проведены исследования зависимости спектров DLTS от условий предварительного изохронного отжига ( $U_{\text{га}} < 0$  или  $U_{\text{га}} = 0$ ) при тех значениях  $U_T$  при которых наблюдались характерные изменения в поведении спектров DLTS [12]. Для отмеченных нами DLTS-пиков всех структур мы наблюдали смещения их положения по температуре при изменении условий изохронного отжига. Смеще-

ния определяются электростатическими бистабильными диполями, образуемыми носителями, локализованными в КТ, и ионизованными глубокими дефектами, что является характерным признаком, служащим для идентификации пиков DLTS с состояниями КТ [12]. Это позволило сопоставлять пики с квантовыми состояниями ВСКТ. Для пиков DLTS, атрибутируемых таким образом, была обнаружена также зависимость их положения от величины  $U_T$ . Как было отмечено выше, для структуры с толщиной прослойки GaAs  $100$  Å наблюдалось три пика HD1<sub>100</sub>, HD2<sub>100</sub> и HD3<sub>100</sub> (рис. 3, *a*). Были построены зависимости температурного положения их максимумов от величины  $U_T$  (рис. 4, кривые 5–7). Для максимума пика HD1<sub>100</sub> (кривая 5) наблюдалось смещение в область высоких температур с ростом абсолютной величины  $U_T$ . Максимум пика HD2<sub>100</sub> при изменении  $U_T$  от  $-0.5$  до  $-1.0$  В (кривая 6) смещается в область низких температур, а затем (от  $-1.0$  до  $-1.5$  В) в сторону высоких температур, что соответствует изменению энергии термической активации от 395 до 267 мэВ, а затем до 285 мэВ. Для пика HD3<sub>100</sub> (кривая 7) удалось наблюдать только смещение положения пика в область низких температур при изменении  $U_T$  от  $-1.25$  до  $-1.5$  В, что соответствовало изменению  $E_a$  от 486 до



**Рис. 3.** Спектры DLTS для  $p-n$ -гетероструктур с 2 слоями квантовых точек InAs в матрице GaAs с толщинами прослойки  $d_{\text{GaAs}}$ , Å: *a* — 100, *b* — 20, при напряжениях импульса обратного смещения  $U_T$ , В: 1 — 0.08, 2 —  $(-1.35)$ , 3 —  $(-0.27)$ , 4 — 0.02. Все спектры получены для окна темпов эмиссии  $200 \text{ с}^{-1}$ , напряжении импульса заполнения  $U_T = 0.5$  В и его длительности 25 мкс.



**Рис. 4.** Зависимости температурного положения пиков DLTS от величины импульса напряжения  $U_r$ : HD1<sub>20</sub> (1), HD2<sub>20</sub> (2), HD1<sub>40</sub> (3), HD2<sub>40</sub> (4), HD1<sub>100</sub> (5), HD2<sub>100</sub> (6) и HD3<sub>100</sub> (7).

431 мэВ. Наблюдаемые зависимости могут быть связаны с проявлением двух эффектов:

- 1) понижение барьера для термоэмиссии в результате проявления полевого эффекта [15];
- 2) смещение Штарка уровня энергии квантового состояния [16].

Независимое поведение пиков HD2<sub>100</sub> и HD3<sub>100</sub> позволяет сделать заключение, что эти два пика принадлежат состояниям двух КТ, разделенных прослойкой GaAs, для которых имеется слабое сопряжение. В пользу этого предположения свидетельствует и наличие двух пиков в профиле  $p^*(U_r)$  для этих структур. Что касается принадлежности пика HD1<sub>100</sub>, то имеется два предположения: это либо состояние первой КТ, либо, что более вероятно, интерфейсное состояние на границе (смачивающий слой)–(первая КТ).

Для пиков HD1<sub>20</sub>, HD2<sub>20</sub> и HD1<sub>40</sub>, HD2<sub>40</sub>, принадлежащих структурам с двумя рядами КТ и  $d_{\text{GaAs}} = 20$  и  $40 \text{ \AA}$ , наблюдались аналогичные зависимости от величины  $U_r$  (рис. 4, кривые 1–4). Энергия термической активации уровня HD2<sub>20</sub> (кривая 2) для структуры с  $d_{\text{GaAs}} = 20 \text{ \AA}$  при росте величины  $U_r$  вначале уменьшалась от 322 до 195 мэВ, а затем происходил рост  $E_a$  до 241 мэВ. При этом для структур с  $d_{\text{GaAs}} = 20$  и  $40 \text{ \AA}$  мы не наблюдали пика, связанного со второй КТ. Полученные результаты дают основание предположить, что для этих структур реализуются условия, когда гибридизации дырочных состояний квантовых точек не происходит, а наблюдается эффект локализации дырок в одной из точек молекулы, происходящий в результате квантово-механического туннелирования без формирования связанных и антисвязанных состояний, предсказанный в работе [7,17]. Это отличается от случая гибридизации квантовых состояний, наблюдаемого для структур с 6 рядами КТ. Кроме того, как это видно из рис. 4, уменьшение толщины прослойки GaAs приводит к увеличению энергии состояний дырок КТ-молекул, что согласуется с результатами, полученными в теоретических работах [7,17].

## 4. Заключение

Таким образом, установлено, что для квантовой молекулы, состоящей из двух вертикально сопряженных самоорганизующихся КТ в гетероструктурах InAs/GaAs при толщинах прослойки GaAs 20 и 40 Å между двумя слоями КТ InAs реализуется эффект локализации дырок в одной из КТ. При толщинах прослойки GaAs 100 Å было обнаружено неполное связывание двух слоев КТ, что приводит к перераспределению локализации дырок между верхними и нижними КТ при изменении напряжения обратного смещения, прикладываемого к структуре.

Работа выполнена при поддержке научной программы „Физика твердотельных наноструктур“ и РФФИ (проект № 00-02-16848).

## Список литературы

- [1] M.V. Maximov, Yu.M. Shernyakov, A.F. Tsatsul'nikov, A.V. Lunev, A.V. Sakharov, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, P.S. Kop'ev, L.V. Asryan, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, A.O. Kosogov, P. Werner. *J. Appl. Phys.*, **83**, 556 (1998).
- [2] T. Lundstrom, W. Schoenfeld, H. Lee, P.M. Petroff. *Science*, **286**, 2312 (1999).
- [3] M. Korkusinski, P. Hawrylak. *Phys. Rev. B*, **63**, 195311 (2001).
- [4] X.Q. Li, Y. Arakawa. *Phys. Rev. A*, **61**, 06230 (2000).
- [5] B. Partoens, F.M. Peeters. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 4433 (2000).
- [6] F. Troiani, U. Hohenester, E. Molinari. *Phys. Rev. B*, **65**, 161301 (2002).
- [7] M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z.R. Wasilewski, O. Stern, A. Forchel. *Science*, **291**, 451 (2001).
- [8] W. Sheng, J-P. Leburton. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 16, 167401 (2002).
- [9] I. Shtrichman, C. Metzner, B.D. Gerardot, W.V. Schoenfeld, P.M. Petroff. *Phys. Rev. B*, **65**, 081303 (2002).
- [10] H.J. Krenner, A. Zrenner, G. Abstreiter. In: *Abstract 26th Int. Conf. on the Physics of Semicond.* (Edinburgh, Scotland, UK, 29 July–2 August 2002) pt. 1, p. 204.
- [11] T. Bryllet, M. Borgstrom, T. Sass, B. Gustafson, L-E. Wernersson, W. Seifert, L. Samuelson. In: *Abstract 26th Int. Conf. on the Physics of Semicond.* (Edinburgh, Scotland, UK, 29 July–2 August 2002) pt. 3, p. 2.
- [12] М.М. Соболев, В.М. Устинов, А.Е. Жуков, Ю.Г. Мусихин, Н.Н. Леденцов. *ФТП*, **36**, 1089 (2002).
- [13] M.M. Sobolev, V.M. Ustinov, G.E. Cirilin. *Physica B*, **340–342**, 1103 (2003).
- [14] N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Böhrer, O. Schmidt, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, S.V. Zaitsev, N.Yu. Gordeev, Zh.I. Alferov, A.I. Borovkov, A.O. Kosogov, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Gösele, J. Heydenreich. *Phys. Rev. B*, **54**, 8743 (1996).
- [15] S. Anand, N. Carlsson, M.-E. Pistol, L. Samuelson, W. Seifert. *J. Appl. Phys.*, **84**, 3747 (1998).
- [16] A. Patané, A. Levin, A. Polimény, F. Schindler, P.C. Main, L. Eaves, M. Henini. *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 2979 (2000).
- [17] W. Sheng, J-P. Leburton. *J. Appl. Phys.*, **81**, 4449 (2002).

Редактор Т.А. Полянская

## Hole localization in InAs/GaAs quantum-dot molecules

*M.M. Sobolev, G.E. Cirlin, Yu.B. Samsonenko,  
N.K. Polyakov, A.A. Tonkikh, Yu.G. Musikhin*

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

**Abstract** Results on studies of hole emission from vertically coupled quantum dots in a series of InAs/GaAs  $p-n$  heterostructures variable interdot barrier thickness  $d_{\text{GaAs}}$  depending on applied reverse bias by deep level transient spectroscopy and capacitance-voltage are reported. We have found that the hole localization in self-assembled quantum-dot molecules consisting of two layers of vertically stacked InAs/GaAs QDs occurs regardless of GaAs interdot barrier thickness.