

Сэндвич-структура InGaAs/GaAs с квантовыми точками для инфракрасных фотоприемников

© Л.Д. Молдавская[¶], Н.В. Востоков, Д.М. Гапонова, В.М. Данильцев,
М.Н. Дроздов, Ю.Н. Дроздов, В.И. Шашкин

Институт физики микроструктур Российской академии наук,
603950 Нижний Новгород, Россия

(Получена 11 апреля 2007 г. Принята к печати 19 апреля 2007 г.)

Обсуждается новый вариант формирования гетероструктур InAs/GaAs с квантовыми точками для фотоприемников инфракрасного диапазона методом металлорганической газофазной эпитаксии. Особенности процесса являются использование повышенного времени роста квантовых точек и чередование низко- и высокотемпературного режимов зарастивания квантовых точек барьерными слоями GaAs. В процессе зарастивания происходит частичное растворение крупных квантовых точек и формирование вторичной квантовой ямы InGaAs из материала растворенных больших островков. При этом образуется сэндвич-структура, в которой квантовые точки расположены между двумя тонкими слоями с повышенным содержанием индия — смачивающим слоем InAs и вторичным слоем InGaAs. Высота квантовых точек определяется толщиной слоя низкотемпературного GaAs. Для полученных структур характерна внутризонная фотопроводимость в области 4.5 мкм вплоть до 200 К. При 90 К фоточувствительность составляет 0.5 А/Вт, обнаружительная способность $3 \cdot 10^9 \text{ см} \cdot \text{Гц}^{1/2} \text{Вт}^{-1}$.

PACS: 68.65.Hb, 73.50.Pz, 73.63.Kv, 78.55.Cr, 78.67.Hc, 81.15.Gh

1. Введение

В последнее время предложены новые методы инженерии гетероструктур с квантовыми точками (КТ) в системе InGaAs для инфракрасных фотоприемников (ИК ФП) — квантовые точки в квантовой яме, сверхрешетки из слоев КТ, структуры с дополнительными барьерами и туннельно-связанными квантовыми ямами (КЯ) [1–7]. Эти работы направлены на расширение температурного диапазона, повышение чувствительности ИК ФП, снижение темновых токов и расширение возможностей вариации спектральных областей. Перечисленные методы используют отработанные процессы формирования КТ и модифицируют области, окружающие КТ. В данной работе обсуждается новый подход к формированию структур с КТ для ИК ФП, основанный на модификации непосредственно массивов КТ. В нем используются техника зарастивания с чередованием температуры роста барьерных слоев GaAs и повышенная эквивалентная толщина слоя InAs (d^*) для формирования КТ. В работе [8] мы наблюдали значительное (более 30 раз) усиление линии продольной внутризонной фотопроводимости в области 4.5 мкм при увеличении эквивалентной толщины слоя InAs в 2 раза. При дальнейшем увеличении d^* наблюдалась двухцветная фотопроводимость на длинах волн 4.5 и 3 мкм. Мы связываем эти результаты с увеличением плотности КТ и формированием массива более крупных наноструктур при увеличении d^* . В то же время нам не известны работы, в которых такие структуры используются для изготовления ИК ФП. Как показано в работах [9–13], при увеличении d^* одновременно с ростом плотности КТ возрастают разброс размеров КТ и число крупных дефектных релаксированных кластеров InAs.

Это приводит к уширению линии фотолуминесценции (ФЛ) КТ и значительному снижению ее интенсивности. Поэтому такой подход считается бесперспективным для формирования лазерных структур. Однако, как отмечалось в работах [8,14], критерии качества лазерных структур, прежде всего интенсивная ФЛ, не могут быть использованы для ИК ФП — интенсивная внутризонная фотопроводимость может наблюдаться при слабой межзонной ФЛ. В данной работе была изготовлена серия структур, отличающихся условиями формирования КТ и их зарастивания низкотемпературным GaAs. Проведены исследование их структурных и оптических свойств и абсолютная калибровка фоточувствительности в вертикальной геометрии электронного транспорта.

2. Структуры с квантовыми точками: изготовление и характеристика

Многослойные гетероструктуры InGaAs/GaAs с квантовыми точками выращивались методом металлорганической газофазной эпитаксии (МОГФЭ) пониженного давления на установке EPIQUIP VP-502RP. Использовались подложки GaAs(100) с отклонением среза на 2° в направлении $[1\bar{1}0]$. Структуры состоят из 10 слоев селективно легированных КТ InAs, разделенных барьерными слоями GaAs толщиной 60–90 нм. Легирующие слои δ -Si формировали на расстоянии 2.5 нм под каждым слоем КТ. Рост КТ InAs проводился при пониженной температуре, 480°C , после чего следовали продувка реактора и зарастивание КТ тонким слоем GaAs при той же температуре роста. После повторной продувки реактора температура поднималась до 600°C и проводился рост барьерных слоев GaAs. Наиболее критическими параметрами здесь являлись время роста КТ или эквивалентная

[¶] E-mail: lmd@ipm.sci-nnov.ru

Параметры роста структур

№ образца	Время роста КТ t^* , с	Время роста низкотемпературного слоя GaAs, с
1060	12	20
1064	15	20
1061	18	20
1062	12	10
1063	12	30

толщина слоя InAs d^* , а также выбор момента времени подъема температуры. Низкотемпературный слой GaAs служит для консервации КТ при дальнейшем подъеме температуры. В то же время данная техника роста включает стадию растворения крупных дефектных кластеров, недавно предложенную при изготовлении лазерных структур [15–18]. Для анализа методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) квантовые точки формировались также на поверхности каждой структуры, они зарациивались слоем низкотемпературного GaAs при тех же условиях, что и в объеме. Ростовые параметры структур приведены в таблице.

Для исследования использовался комплекс методов, включающий АСМ, рентгеновскую дифракцию (РД) и фотолюминесценцию. Инфракрасная фотопроводимость исследовалась с помощью фурье-спектрометра „ИНФРАЛЮМ ФТ-801“. В качестве источника ИК излучения использовался глобар с температурой 1000°С. Для абсолютной калибровки фоточувствительности использовался источник „абсолютно черное тело“ с температурой 600°С.

3. Рентгенодифракционный анализ

На рис. 1 приведены кривые качания РД для структур 1060 и 1061. В структуре 1060 время роста КТ InAs составляло $t^* = 12$ с, в структуре 1061 — 18 с

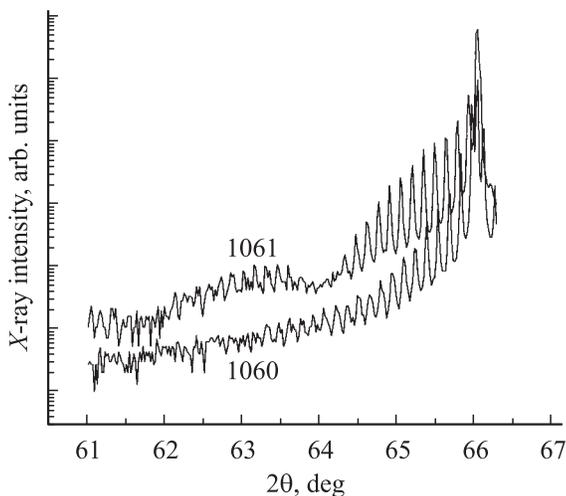


Рис. 1. Рентгенодифракционные кривые структур 1060 и 1061.

при сохранении потока In в реакторе. Время роста слоя низкотемпературного GaAs в обеих структурах составляло 20 с. В структуре 1061 наблюдается дополнительный пик, что свидетельствует о возникновении вторичного слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ поверх слоя низкотемпературного GaAs и КТ. Численное моделирование данных РД позволяет оценить толщину d_2 этого вторичного слоя и содержание в нем In x_2 : $d_2 = 3.5$ нм, $x_2 = 9\%$. Толщина низкотемпературного слоя GaAs, согласно РД, составляет 6 нм. Таким образом, в структуре 1061 КТ расположены между двумя тонкими слоями с повышенным содержанием индия — смачивающим слоем InAs и вторичным слоем $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, что образует сэндвич-структуру. Отметим, что ранее о наблюдении вторичного слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ методом просвечивающей электронной микроскопии сообщалось в работе [18], а методом высоковакуумной сканирующей туннельной микроскопии сколов — в работе [19]. Данный механизм роста в методе МОГФЭ еще мало изучен [20], он может представлять большой интерес для формирования КТ большой плотности.

4. Атомно-силовая микроскопия

На рис. 2, а дано изображение поверхности образца 1060, полученное методом АСМ. Присутствуют зарацииванные КТ большой плотности со слабым контрастом и небольшое число крупных кластеров. Среди КТ присутствует небольшое число вытянутых в направлении $[1\bar{1}0]$ образований с углублениями посередине. Плотность объектов такого типа резко возрастает в структуре 1062, где толщина слоя низкотемпературного GaAs была уменьшена в 2 раза (рис. 2, б). Из этого рисунка также видно, что КТ упорядочены вдоль атомных ступеней вицинальной поверхности. Изображения такого вида получили в литературе название „eye-like“, их образование свидетельствует, что процесс зарациивания КТ происходит благодаря миграции атомов вдоль атомных ступеней на поверхности слоя GaAs [21–23]. Поэтому процесс зарациивания на ранних стадиях носит анизотропный характер. В отличие от режимов зарациивания, обсуждавшихся в работе [22], в использованном режиме роста КТ не происходит их растворения на стадии зарациивания низкотемпературным GaAs. На рис. 2, с приведено АСМ-изображение поверхности образца 1060 после дополнительного отжига при 600°С. Как видим, на месте крупных кластеров возникают пустоты — происходит растворение незарацииванных крупных кластеров InAs. Этот процесс получил название „отжиг дефектов“ и недавно начал использоваться для формирования лазерных структур методами молекулярно-пучковой эпитаксии и МОГФЭ (см., например, [15–18]). В структуре 1064 число крупных кластеров на поверхности больше, чем в 1060, однако и в этой структуре после отжига они исчезают. Таким образом, использование процедуры отжига дефектов позволяет снизить количество дефек-

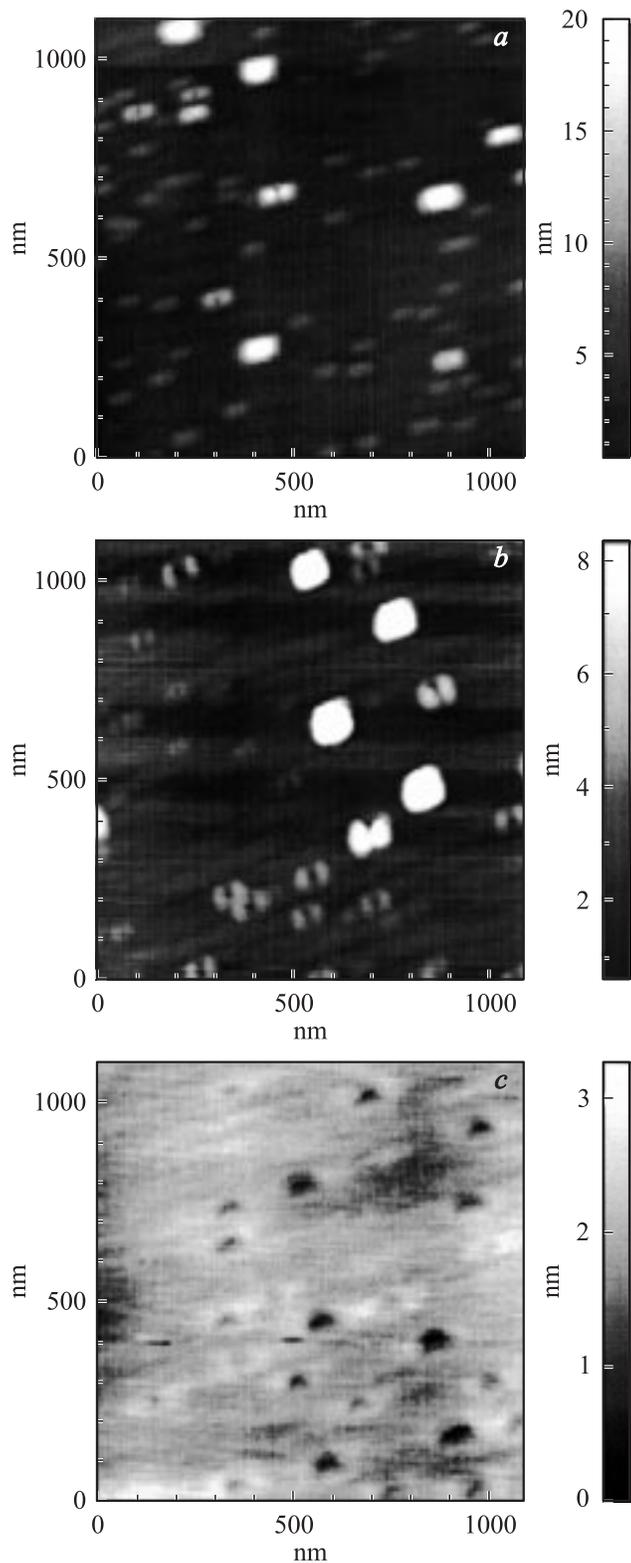


Рис. 2. АСМ-изображения поверхности структур 1060 (a), 1062 (b), 1060 после отжига (c).

тов также и в структурах с увеличенной толщиной слоя InAs d^* . Атомы In из растворенных кластеров диффундируют вдоль поверхности GaAs. При дальнейшем

росте барьерного слоя из них формируется вторичный слой InGaAs.

5. Фотолюминесценция квантовых точек

На рис. 3 показаны спектры фотолюминесценции структур 1060 и 1064 при 300 К. В структуре 1060 длина волны основного перехода в КТ составляет $\lambda_0 = 1.2$ мкм. В структуре 1064 ($t^* = 15$ с) появляется дополнительная линия ФЛ при 1.55 мкм, свидетельствующая о появлении более крупных КТ, при этом интенсивность ФЛ мелких КТ резко снижается. Отметим, что линия 1.55 мкм сохраняется при химическом травлении верхнего слоя GaAs толщиной 0.2 мкм (при этом травлены как поверхностный слой, так и два нижележащих слоя КТ в объеме структуры). Это доказывает, что она связана с крупными объемными КТ, а не с поверхностными, как это наблюдалось, например, в работах [13,24]. Именно такие КТ обуславливают фотопроводимость в диапазоне 3 мкм, наблюдавшуюся в нашей работе [8].

При изменении времени зарастивания КТ слоем низкотемпературного GaAs линия ФЛ КТ смещается. Длина волны основного перехода в КТ снижается для более тонкого слоя GaAs до $\lambda_0 = 1.15$ мкм и возрастает при его увеличении до $\lambda_0 = 1.27$ мкм при незначительном изменении интенсивности и ширины линии ФЛ. Это доказывает, что высота КТ находится в прямой зависимости от толщины низкотемпературного слоя GaAs. Таким образом, при использованных режимах роста могут растворяться не только крупные дефектные кластеры, возможно растворение также и вершин отдельных более крупных когерентных КТ, благодаря чему происходит выравнивание массива КТ по высоте. Ранее такая роль

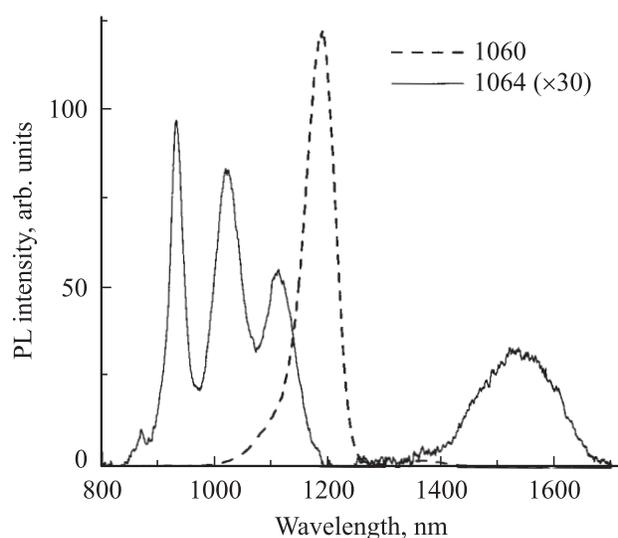


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции (PL) структур 1060 и 1064 при 300 К. Длина волны возбуждающего излучения 514.5 нм, мощность 100 мВт.

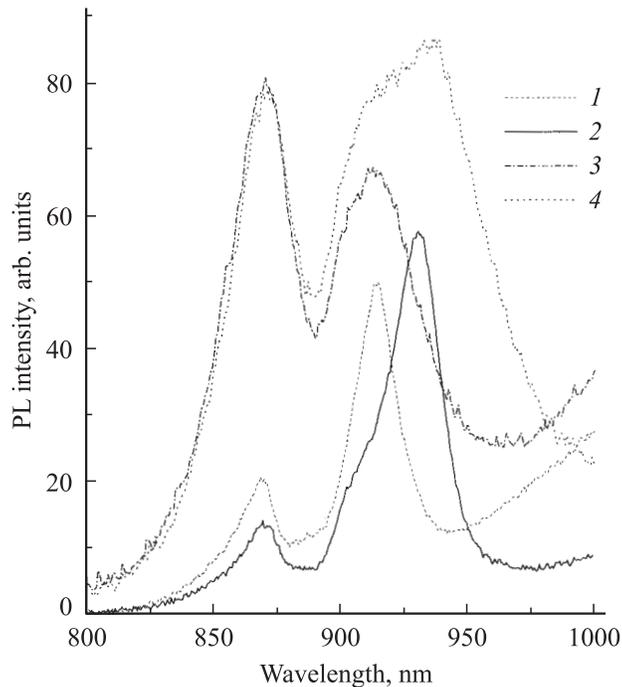


Рис. 4. Спектры фотолуминесценции (PL) структур 1060 (1,3) и 1064 (2,4). 1,2 — возбуждение Ar-лазером (514.5 нм), 3,4 — возбуждение лазером на ИАГ: Nd³⁺ (532 нм).

процесса зарастивания для КТ на поверхности отмечалась в работе [25]. Это дает возможность дополнительного управления длиной волны ФЛ и ИК ФП. Кроме того, при этом может происходить увеличение значения отношения высоты КТ к латеральному размеру (aspect ratio), что играет важную роль в увеличении фоточувствительности и снижении темнового тока ИК фотоприемников [26].

На рис. 4 показана ФЛ от смачивающего слоя в структурах 1060 и 1064 при разных условиях возбуждения. При возбуждении непрерывным Ar-лазером и при импульсном возбуждении лазером на ИАГ: Nd³⁺ большей мощности в структуре 1060 присутствует одна линия от квантовой ямы (КЯ) вблизи 914 нм (кривые 1 и 3 соответственно). В структуре 1064 при возбуждении Ar-лазером (кривая 2) наблюдается линия от КЯ при 930 нм, а также слабое коротковолновое плечо вблизи 911 нм. Интенсивность коротковолновой линии 911 нм значительно возрастает при импульсном возбуждении лазером на ИАГ: Nd³⁺ (кривая 4), что связано с большим заселением верхних уровней. На наш взгляд, этот результат является дополнительным свидетельством возникновения в структуре с увеличенным d^* вторичного слоя InGaAs. Наблюдаемые в структуре 1064 линии ФЛ определяются уровнями в двух КЯ — смачивающем слое InAs и дополнительном слое InGaAs. Следует отметить, что интенсивности линий КЯ в структурах 1060 и 1064 близки, что свидетельствует о слабом влиянии возможных дефектов в структуре 1064.

6. Абсолютная калибровка инфракрасной фотопроводимости

Для исследования вертикальной фотопроводимости было изготовлено несколько структур с КТ на проводящих подложках, отличающихся толщиной эквивалентного слоя InAs d^* . Мы наблюдали ту же закономерность эволюции вертикальной фотопроводимости с ростом d^* , которая уже отмечалась в нашей работе [8] при анализе продольной фотопроводимости. При увеличенном значении d^* интенсивность фотопроводимости повышается при значительном возрастании отношения сигнала к шуму. Для структуры, аналогичной 1064, вольт-ваттная чувствительность в полосе длин волн 3–6 мкм при температуре 90 К составила $2 \cdot 10^4$ В/Вт (ампер-ваттная чувствительность 0.5 А/Вт), удельная обнаружительная способность — $3 \cdot 10^9$ см · Гц^{1/2} · Вт⁻¹ (при напряжении 0.8 В). Этот результат не уступает лучшим данным, полученным на структурах с КТ, выращенных методом МОГФЭ [27].

7. Заключение

По аналогии с известным названием „КТ в КЯ“ данные структуры можно назвать „КТ в сэндвиче“. Обсуждаемая техника роста позволяет формировать массивы КТ повышенной плотности, однородно упорядоченные по высоте, с большим значением „aspect ratio“, с возможностью перестройки основного перехода в КТ путем вариации толщины зарастивающего слоя. Слой низкотемпературного GaAs, по-видимому p -типа проводимости, играет роль дополнительного барьера, снижающего темновой ток при вертикальном транспорте. Исследования фоточувствительности и обнаружительной способности показали, что такие структуры являются перспективными для использования в качестве детекторов излучения ИК диапазона.

Работа поддерживалась РФФИ, проекты № 06-02-16519 и 07-02-00163.

Список литературы

- [1] W. Zhang, H. Lim, M. Taguchi, S. Tsao, B. Movaghar, M. Razeghi. Appl. Phys. Lett., **86**, 191 103 (2005).
- [2] D. Pal, E. Towe. Appl. Phys. Lett., **88**, 153 109 (2006).
- [3] S. Chakrabarti, A.D. Stiff-Roberts, X.H. Su, P. Bhattacharya, G. Ariyawansa, A.G.U. Perera. J. Phys. D: Appl. Phys., **38**, 2135 (2005).
- [4] S. Krishna. J. Phys. D: Appl. Phys., **38**, 2142 (2005).
- [5] S. Raghavan, D. Forman, P. Hill, N.R. Weisse-Bernstein, G. von Winkel, P. Rotalla, S. Krishna, S.W. Kennerly, J.W. Little. J. Appl. Phys., **96** (2), 1036 (2004).
- [6] E.-T. Kim, A. Madhukar, Z. Ye, J.C. Campbell. Appl. Phys. Lett., **84**, 3277 (2004).
- [7] P. Bhattacharya, X.H. Su, S. Chakrabarti, G. Ariyawansa, A.G.U. Perera. Appl. Phys. Lett., **86**, 191 106 (2005).

- [8] L.D. Moldavskaya, V.M. Daniltsev, M.N. Drozdov, V.R. Zakamov, V.I. Shashkin. *Narrow Gap Semiconductors 2005*, ed. by Kono & Léotin [Inst. Phys. Conf. Series, N 187 (Taylor & Francis, 2005) p. 360].
- [9] D.Fekete, H. Dery, A. Rudra, E. Kapon. *J. Appl. Phys.*, **99** (3), 034 304 (2006).
- [10] J.F. Chen, R.S. Hsiao, Y.P. Chen, J.S. Wang, J.Y. Chi. *Appl. Phys. Lett.*, **87** (14), 141 911 (2005).
- [11] A. Passaseo, R. Rinaldi, M. Longo, S. Antonaci, A.L. Convertino, R. Cingolani, A. Taurino, M. Catalano. *J. Appl. Phys.*, **89** (8), 4341 (2001).
- [12] В.М. Устинов. *ФТП*, **38** (8), 963 (2004).
- [13] A.A. El-Emawy, S. Birudavolu, P.S. Wong, Y.-B. Jiang, H. Xu, S. Huang, D.L. Huffaker. *J. Appl. Phys.*, **93** (9), 3529 (2003).
- [14] S.J. Lee, S.K. Noh, K.-S. Lee, J.W. Choe. *Sol. St. Commun.*, **132**, 115 (2004).
- [15] Д.С. Сизов, М.В. Максимов, А.Ф. Цацульников, Н.А. Черкашин, Н.В. Крыжановская, А.Б. Жуков, Н.А. Малеев, С.С. Михрин, А.П. Васильев, Р. Селин, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов, Д. Бимберг, Ж.И. Алфёров. *ФТП*, **36** (9), 1097 (2002).
- [16] N. Nuntawong, S. Huang, Y.B. Jiang, C.P. Hains, D.L. Huffaker. *Appl. Phys. Lett.*, **87** (11), 113 105 (2005).
- [17] I.N. Kaiander, R.L. Sellin, T. Kettler, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, N.D. Zakharov, P. Werner. *Appl. Phys. Lett.*, **84** (16), 2992 (2004).
- [18] G. Saint-Girons, G. Patriarche, L. Largeau, J. Coelho, A. Me-reuta, J.M. Gerard, I. Sagnes. *J. Cryst. Growth*, **235**, 89 (2002).
- [19] A. Lenz, H. Eisele, R. Timm, S.K. Becker, R.L. Sellin, U.W. Pohl, D. Bimberg, M. Dahne. *Appl. Phys. Lett.*, **85** (17), 3848 (2004).
- [20] В.И. Пашкин, В.М. Данильцев, М.Н. Дроздов, Ю.Н. Дроздов, Д.М. Гапонова, О.И. Хрыкин, А.В. Мурель, Н.В. Вос-токов, Taek Kim, Yong-Jo Park. *ФТП*, **40** (4), 455 (2006).
- [21] V.I. Shashkin, V.M. Daniltsev, Yu.N. Drozdov, O.I. Khrykin, A.V. Murel, N.V. Vostokov. *Proc. EW MOVPE VIII* (Prague, 1999) p. 159.
- [22] G. Costantini, A. Rastelli, C. Manzano, P. Acosta-Diaz, R. Songmuang, G. Katsaros, O.G. Schmidt, K. Kern. *Phys. Rev. Lett.*, **96** (22), 226 106 (2006).
- [23] S.J. Lee, J.O. Kim, S.K. Noh, J.W. Choe, K.-S. Lee. *J. Cryst. Growth*, **284**, 39 (2005).
- [24] I.A. Karpovich, N.V. Baidus, B.N. Zvonkov, S.V. Morozov, D.O. Filatov, A.V. Zdoroveishev. *Nanotechnology*, **12**, 425 (2001).
- [25] H. Zhu, Z. Wang, H. Wang, I. Cui, S. Feng. *J. Cryst. Growth*, **197**, 372 (1999).
- [26] H. Lim, W. Zhang, S. Tsao, T. Sills, J. Szafraniec, K. Mi, B. Movaghar, M. Razeghi. *Phys. Rev. B*, **72**, 085 332 (2005).
- [27] K. Drozdowicz-Tomsiaa, E.M. Goldys, Lan Fu, C. Jagadish. *Appl. Phys. Lett.*, **89** (11), 113 510 (2006).

Редактор Л.В. Шаронова

InGaAs sandwich structure with quantum dots for infrared photodetectors

L.D. Moldavskaya, N.V. Vostokov, D.M. Gaponova,
V.M. Daniltsev, M.N. Drozdov, Yu.N. Drozdov,
V.I. Shashkin

Institute for Physics of Microstructures,
Russian Academy of Sciences,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

Abstract A new variant of fabricating of heterostructures with InAs quantum dots (QDs) for infrared photodetectors by metalorganic chemical vapour deposition is discussed. The main features of the growth process are increased time of QD growth and alternation of low and high temperature during QD overgrowing by GaAs layers. Large dots dissolve partially during the cap layer growth. As a result, secondary InGaAs quantum well appears above QDs. Thus the QDs are sandwiched between two thin layers with increased In content: the wetting layer and the secondary InGaAs layer. The QD height is determined by thickness of the low-temperature GaAs layer. The structures demonstrate the infrared photoconductivity near to $4.5\ \mu\text{m}$ up to 200 K originated from intraband transitions „bound–continuum“. The responsivity is $0.5\ \text{A/W}$, the detectivity is $3 \cdot 10^9\ \text{cm} \cdot \text{Hz}^{1/2} \cdot \text{W}^{-1}$ at the temperature 90 K.