

САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

Физический факультет

Кафедра Фотоники



Дерибина Екатерина Игоревна

Выпускная квалификационная работа

Эпитаксиальный рост и оптические свойства низкоразмерных структур на основе соединений АЗВ5

Уровень образования: магистратура

Направление 03.04.02 «Физика»

Основная образовательная программа: ВМ.5511.2021 «Физика»

Научный руководитель:

доцент кафедры фотоники СПбГУ

к.ф. - м.н. Капитонов Юрий Владимирович

Рецензент:

лаборант, СПБАУ РАН им. Ж.И. Алфёрова

асп. 2-го года обучения Федина Сергей Викторович

Санкт-Петербург

2023

Содержание

1 Введение	3
2 Литературный обзор	4
2.1 Молекулярно - пучковая эпитаксия	4
2.2 Эпитаксия квантовых точек	4
2.3 Квантовые точки	8
3 Экспериментальное исследование	11
3.1 Эпитаксиальный рост	11
3.2 Микроскопия	15
3.3 Оптическая характеристика	17
3.4 Моделирование квантовой ямы	22
4 Заключение	24
Благодарности	25

1 Введение

Полупроводниковые структуры на основе соединений A_3B_5 , выращенные методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ), обладают высочайшим качеством, по сравнению со структурами, полученными другими методами роста. Основным преимуществом МПЭ является возможность контроля роста вплоть до монослоя. Также этот метод позволяет отслеживать состояние поверхности в режиме реального времени путем наблюдения за картиной дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭ).

Исследования низкоразмерных структур является актуальными уже несколько десятилетий. Большое количество устройств информационной фотоники могут быть созданы на их основе. Например, с помощью высококачественных квантовых ям (КЯ) можно получить волноводы с распространяющимися экситон-поляритонами [1, 2], экситонно-дифракционные решетки [3, 4], элементы контроля оптической когерентности [5]. Структуры с квантовыми точками (КТ) могут служить в первую очередь для лазеров. Существует возможность создавать лазеры в широком диапазоне за счет изменения размеров КТ, плотности и т. д. Помимо этого они могут быть использованы в однофотонных излучателях [6], детекторах и солнечных элементах [7], а также для долговременной оптической памяти [8].

В данной работе путем заполнения отверстий, полученных методом капельной эпитаксии, синтезированы ненапряженные КТ GaAs/AlGaAs, а также изучены их микроскопия и оптические свойства.

Автор стал победителем олимпиады "Petropolitan Science (Re)Search 2023" , представив данную работу.

Результаты работы также были представлены на "Международной научной студенческой конференции " , конференции "SPbOpen 2023" и отмечены лучшими на конкурсе работ "65-ой конференции МФТИ".

2 Литературный обзор

2.1 Молекулярно - пучковая эпитаксия

Молекулярно - пучковая эпитаксия — технология выращивания монокристаллических слоев с контролем толщины вплоть до монослоя, в основе которой лежит осаждение испаренного в молекулярном источнике вещества на подложку. Данный метод позволяет получать размерно - ограниченные полупроводниковые структуры. В МПЭ существует несколько режимов роста: послойная эпитаксия или метод Франка-ван дер Мерве (FM), островковый эпитаксиальный рост или метод Вольмера - Вебера (VW), послойно-островковый рост или метод Странского - Крастанова (SK).

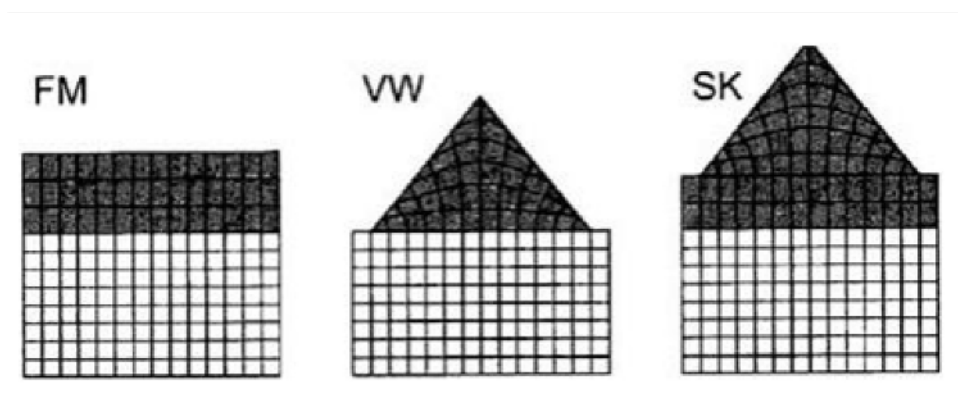


Рис. 1: Режимы эпитаксиального роста. FM — метод Франка-ван дер Мерве, VW — метод Вольмера - Вебера, SK — метод Странского - Крастанова.

В методе FM рост нового слоя не начнется, пока не закончится формирование предыдущего слоя. В случае метода VW, из-за рассогласования постоянных решеток подложки и осаждаемого вещества, на поверхности подложки образуются трехмерные островки. Метод SK совмещает оба этих метода: рост начинается как двумерный (послойный), однако более толстый слой осаждаемого материала имеет большую упругую энергию, поэтому рост меняется на островковый, что уменьшает упругую энергию [10].

2.2 Эпитаксия квантовых точек

Классические самоорганизованные КТ растут по методу SK, в этом случае в качестве подложки используется $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_y\text{P}_{1-y}$, а в качестве материала КТ - InAs , который имеет большую постоянную решетки. Арсенид индия собирается в островки на поверхности подложки, выступающей в качестве энергетического барьера [11, 12, 13] (Рис. 2). Затем вновь покрывается барьером, с меньшей постоянной решетки.

Главный недостаток таких КТ — механические напряжения в решетке, возникающие из-за рассогласования постоянных решеток барьера и точки.

В начале 1990-х Когучи открыл новый механизм роста, а именно, капельную эпитаксию [14]. Осаждаемый галлий собирается на поверхности подложки, покрытой тройным раствором $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$, в капли по механизму VW. Затем в присутствии мышьяка

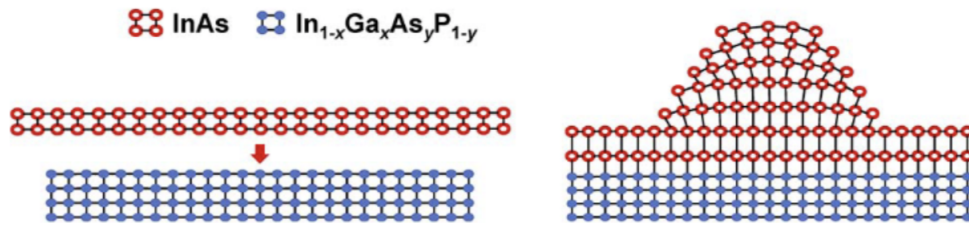


Рис. 2: Формирование островка InAs при методе SK [13].

происходит конверсия вещества в арсенид галлия. Важнейшим преимуществом этого метода является постоянство постоянной решетки по всей структуре, благодаря этому образцы имеют меньшее количество дефектов. Поскольку эпитаксия происходит при температуре ниже оптимальной для роста бездефектного GaAs, такую капельную эпитаксию можно назвать низкотемпературной.

С начала 2000-х основным направлением исследований было изменение форм объектов. Были получены точки, кольца, двойные кольца, парные точки [15, 16, 17, 18, 19] (Рис 3). В зависимости от потока мышьяка, осаждаемого для травления, можно увидеть отличие в получаемых формах объектов.

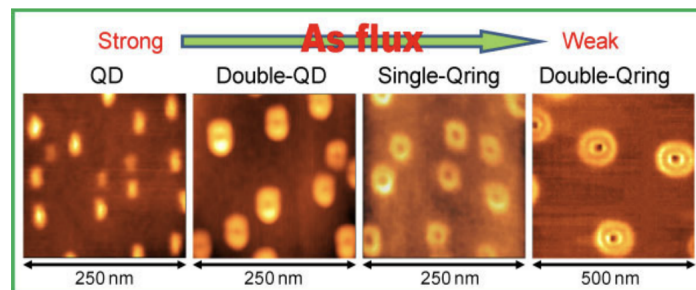


Рис. 3: Различные формы структур, полученных с помощью капельной МПЭ [20].

Низкая температура при формировании таких нанобъектов приводит к дефектности КТ и необходимости послеростового отжига, что увеличивает разброс форм и размеров точек. Для борьбы с этой проблемой, необходимо чтобы конверсия капель Ga в GaAs происходила при высокой температуре. Так, при увеличении температуры был найден другой режим роста, при котором происходит травление объектов [21].

В работе [22] сравниваются два варианта конверсии капель в арсенид галлия. На следующем этапе после осаждения галлия в зависимости от температуры подложки возможны:

1. Низкотемпературная капельная эпитаксия. Если капли образовывались при $T_s \leq 400^\circ\text{C}$. В литературе Droplet Epitaxy (DE).
2. Высокотемпературная капельная эпитаксия. При которой происходит травление при температуре подложки $400^\circ\text{C} \leq T_s \leq 600^\circ\text{C}$ с образованием отверстий. Или Local Droplet Etching (LDE).

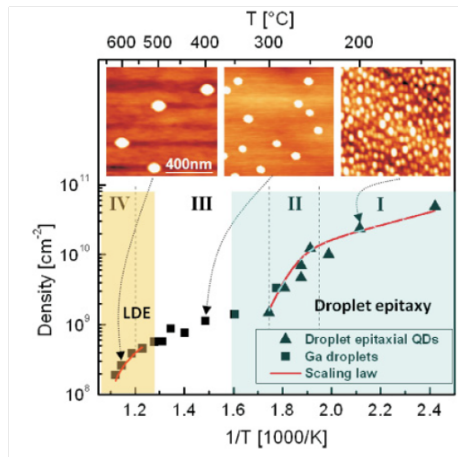


Рис. 4: Режимы капельной эпитаксии при различных температурах подложки [22].

В первом случае жидкие капли кристаллизуются после открытия заслонки мышьяка, образуя различные формы объектов на всей поверхности образца (Рис. 4). Во втором случае после осаждения галлия образец нагревают, и при температуре порядка 600°C капли начинают травить образец (Рис. 5). При этом плотность точек падает, поскольку галлию легче мигрировать по поверхности при высоких температурах. Такой механизм используют в случаях, когда необходимо добиться максимальной изолированности КТ, например, для однофотонных излучателей.

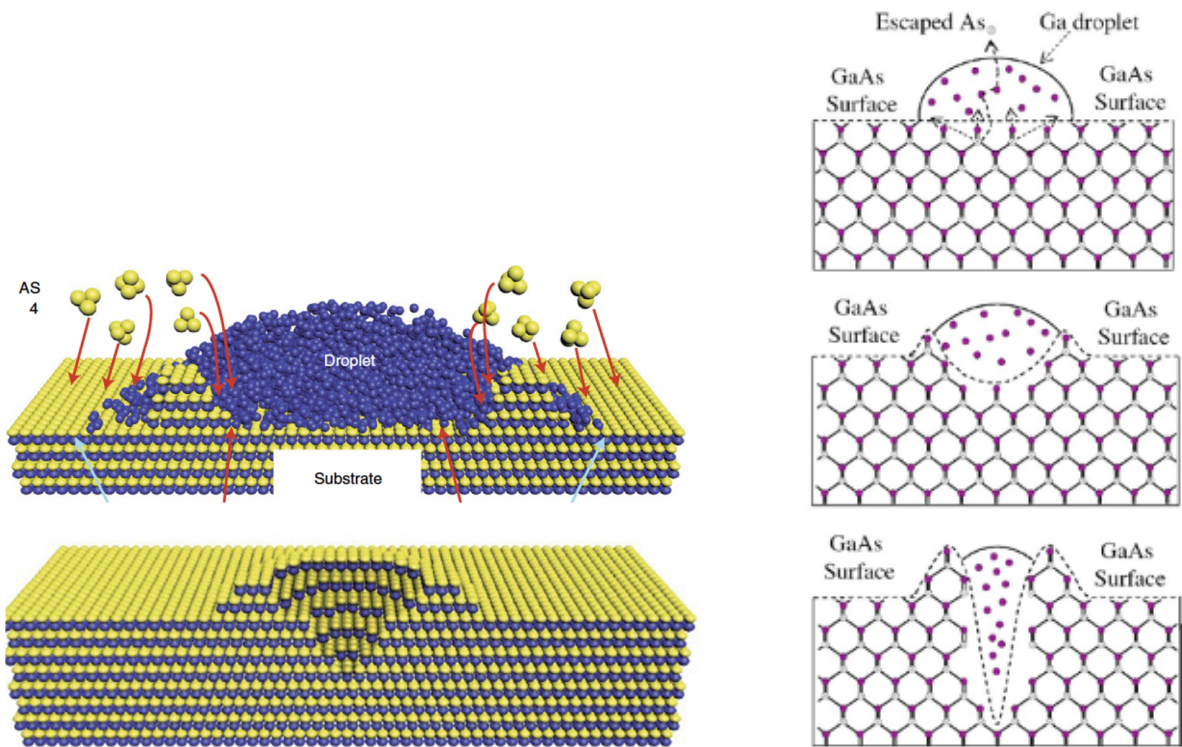
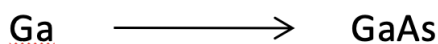
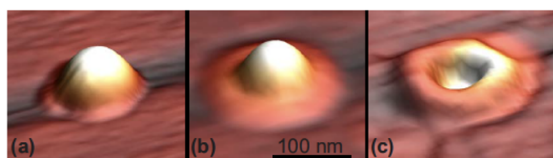


Рис. 5: Образование отверстий при высокотемпературной капельной эпитаксии (LDE) [7],[21].

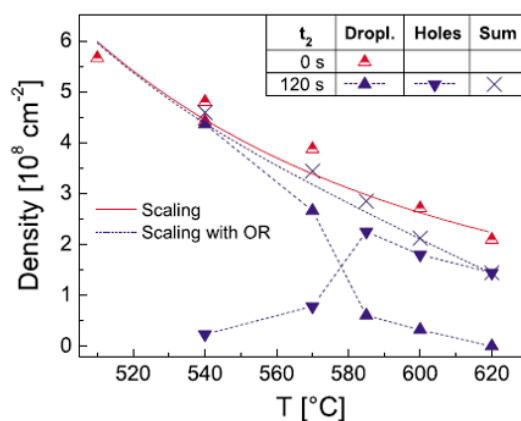
В работе [23] изучалась высокотемпературная капельная эпитаксия (LDE) (Рис. 6а). Галлий осаждался при разной температуре подложки T . На рисунке 6б продемонстри-

рована зависимость плотности капель галлия на поверхности от температуры подложки T в начальный момент времени (красные треугольники).

Далее в течение двух минут поддерживали ту же температуру T для травления. Наблюдалось различие в плотности двух видов объектов на поверхности (отверстий и капель). Это связано с тем, что, во-первых, капли слипаются из-за миграции галлия по поверхности. Благодаря этому, суммарная плотность объектов уменьшается (синие крестики). Во-вторых, при больших температурах увеличивается число протравленных отверстий. Резкий скачок их количества заметен при температуре $\sim 580^\circ\text{C}$, а при 620°C на образце полностью отсутствуют капли.



(a) Конверсия капли в арсенид галлия.

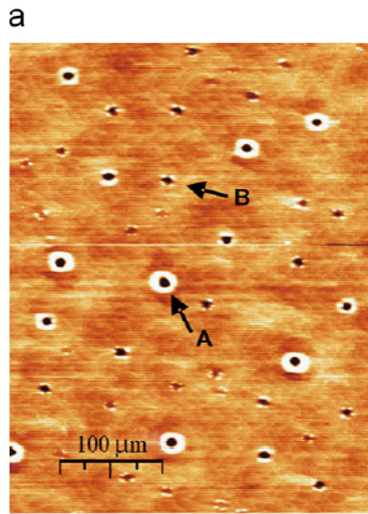


(b) Плотность отверстий и капель до и после прогрева в течение 120 секунд при LDE.

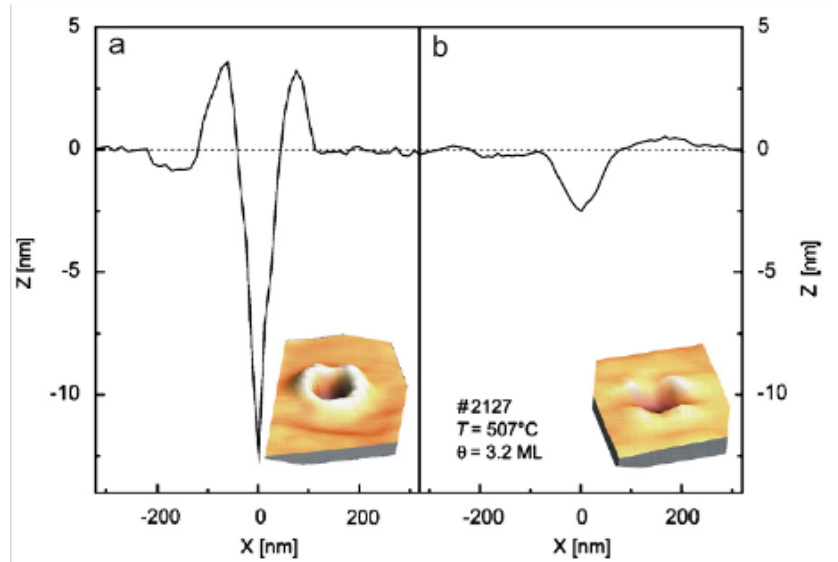
Рис. 6: Преобразование поверхности при LDE [23].

В работе [24] отмечалось, что при использовании метода LDE на поверхности образуется два вида отверстий. Здесь Ga осаждался на поверхности тройного раствора $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$, после чего образец сохраняли при $\sim 580^\circ\text{C}$ на некоторое время для травления при закрытых молекулярных источниках. При этом помимо глубоких ямок с возвышениями вокруг, на выращенных структурах также имелись ямки относительно небольшой глубины, с гладкой окружающей поверхностью (Рис. 7а).

На рисунке 8 изображена зависимость количества двух видов отверстий от температуры подложки во время травления [24]. Отверстий с маленькой глубиной становится меньше с увеличением температуры. Это важно для их дальнейшего заполнения при росте КТ. Иначе при эпитаксии КТ неглубокие отверстия могут быть уже переполнены, в отличие от еще не заполненных глубоких. Таким образом, при использовании метода LDE для эпитаксии КТ, оптимально поддерживать температуру не менее 550°C для одинаковой глубины отверстий.



(a) АСМ изображение поверхности.



(b) АСМ профиль двух видов отверстий.

Рис. 7: Виды отверстий при LDE [24].

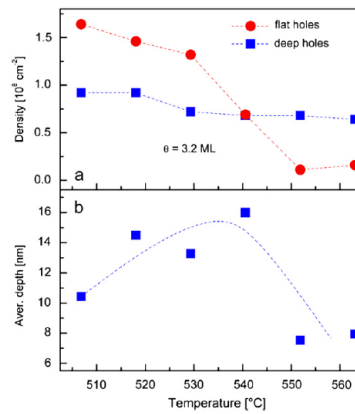


Рис. 8: Зависимость плотности разных отверстий и их средней глубины от температуры подложки [24].

2.3 Квантовые точки

Квантовая точка представляет собой фрагмент полупроводника, движение носителей заряда которого ограничено в пространстве по всем трем направлениям. За счет уменьшения размеров КТ увеличивается ширина запрещённой зоны, поэтому физические свойства кристаллов сверхмалых размеров могут принципиально отличаться от массивных кристаллов. Таким образом, существует возможность варьировать длину волны эмиссии КТ путем изменения размера КТ.

При капельной эпитаксии (LDE) квантовых точек, отверстия, получившиеся в результате травления подложки, покрываются тройным раствором барьера $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, затем GaAs и вновь $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. В литературе для такого способа формирования КТ существует несколько названий, наиболее распространенный из них — Nanohole-filled droplet epitaxy (NFDE).

Для изменения ширины запрещенной зоны КТ необходимо менять толщину слоя GaAs. На рисунке 9а представлены спектры фотолюминесценции образцов с различной толщиной арсенида галлия. Видно, что с уменьшением толщины GaAs, КТ люминесцируют с большей энергией.

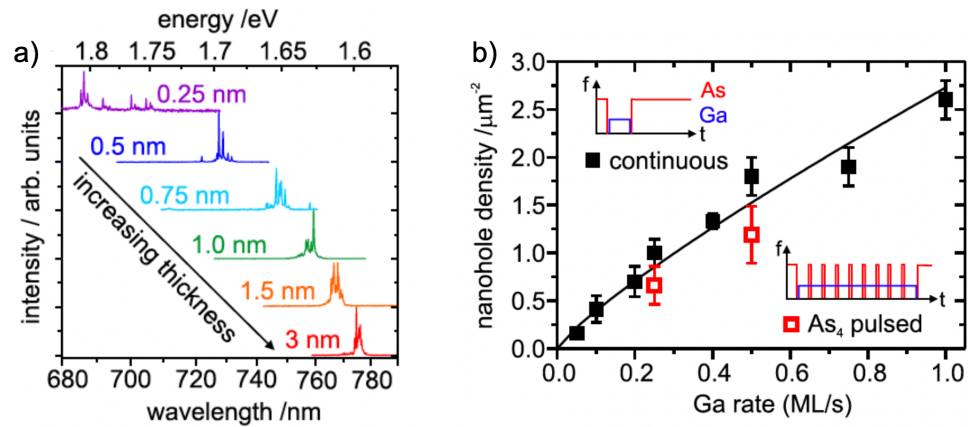


Рис. 9: (а) Фотолюминесценция КТ с разной толщиной слоя GaAs, (б) Зависимость плотности КТ от скорости осаждения галлия [9].

Различные применения требуют разные плотности формирования КТ на поверхности. Существует два способа их изменения: либо с помощью изменения температуры подложки, либо с помощью изменения потока галлия. В работе [9] была изучена зависимость плотности распределения КТ на поверхности от скорости напыления галлия (Рис. 9b). Видно, что плотность увеличивается в несколько раз с увеличением скорости потока галлия [9]. Рисунок 4 также демонстрирует, что плотность тем выше, чем ниже температура подложки.

На рисунке 10а продемонстрирован спектр фотолюминесценции от образца с КТ, выращенными с помощью NFDE. Ансамбли пиков А, В авторы связывают с двумя областями локализации: внутри КТ и вокруг нее (Рис.10b). В спектре 9а такого разделения нет.

Таким образом, с помощью высокотемпературной капельной эпитаксии удается добиться качественных КТ с небольшой плотностью, а с помощью низкотемпературной - с большой плотностью, но с плохими оптическими характеристиками. Для лучших оптических свойств с сохранением высокой плотности в работе предлагается получить плотное распределение КТ высокотемпературной капельной эпитаксией.

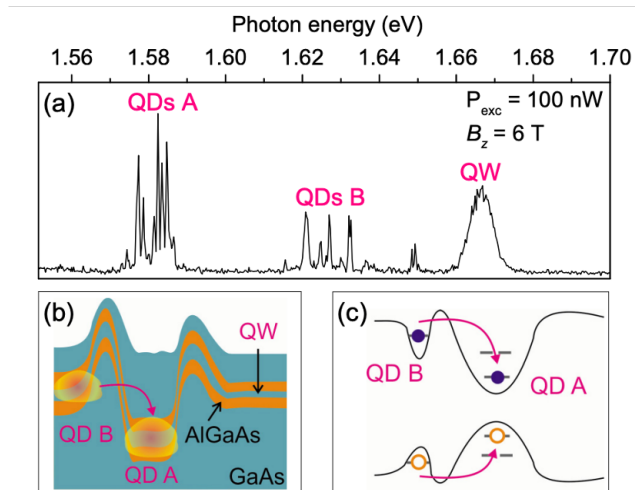


Рис. 10: (a) Фотолюминесценция КТ, (b) Области локализации, (c) Туннелирование через энергетический барьер [25].

Цель данной работы - создание плотных массивов ненапряженных квантовых точек GaAs/AlGaAs. Для ее достижения необходимо решить следующие задачи:

- Вырастить образец с КТ с помощью капельной молекулярно-пучковой эпитаксии (NFDE), сравнить плотность распределения КТ на поверхности с данными работы, на основе которой был выращен первый образец [9].
- Характеризовать выращенные образцы микроскопически.
- Исследовать полученные структуры оптически с помощью спектроскопии фотолюминесценции и отражения.
- Эпитаксиально синтезировать образец с увеличенной плотностью КТ.

3 Экспериментальное исследование

3.1 Эпитаксиальный рост

В основе молекулярно-пучковой эпитаксии лежит вакуумное осаждение атомов или молекул, испаренных из молекулярных источников на кристаллическую подложку. Отличительной особенностью этого метода является условие сверхвысокого вакуума во время роста, давление при этом не превышает 10^{-7} Па. Так, длина свободного пробега молекул имеет порядок 10 м, что превышает размеры ростовой камеры. Подложка нагревается до температуры 400 – 700°C, при которой происходит адсорбция и эффективная диффузия атомов.

Для выращивания исследуемых структур использовалась установка МПЭ SVTA MBE-35-3, которая состоит из трех камер: загрузочной, предростовой и ростовой. Также в нее входит вакуумная система и автоматизированная система управления установкой.

Первая камера представляет собой шлюз между атмосферой и ростовой камерой — здесь проходит загрузка подложек и выгрузка готовых образцов. Во второй — подложки подготавливаются к последней камере, в которой происходит эпитаксиальный рост.

Вакуумная система обеспечивает достижение рабочего давления и включает в себя несколько этапов откачки. Сперва в загрузочной камере удаляется большая часть атмосферного давления с помощью спирального форвакуумного насоса, затем включается турбомолекулярный насос. После этого подложка передается в предростовую камеру, где прогревается до температуры 400°C в течение 4 часов для дегазации, что позволяет значительно уменьшить количество загрязнений, вносимых в ростовой модуль. После охлаждения подложка передается в камеру роста, в которой помимо магниторазрядного насоса, поддерживающего вакуум, присутствуют криопанели, адсорбирующие остаточные частицы за счет протекающего внутри них жидкого азота.

На рисунке 11 представлена схема камеры роста. Подложка расположена на манипуляторе, который служит для крепления и прецизионного перемещения, а также для нагрева подложки до рабочей температуры. Молекулярный источник (МИ) представляет собой заполняемый чистым материалом (99,99999%) тигель и нагревательную цилиндрическую спираль, которая охватывает наружную поверхность тигля. Помимо этого каждый МИ снабжен заслонкой, которая обеспечивает их открытие и закрытие и управляется с компьютера. Вокруг источников расположена криопанель с жидким азотом, вымораживающая материал, испаренный не в сторону образца.

Для наблюдения кристаллической структуры образца и скорости роста монослоев во время эпитаксии используется дифракция быстрых электронов на отражение (ДБЭ). Электронный пучок с энергией ~ 10 кэВ, сформированный электронной пушкой, падает на поверхность под малым углом $\sim 1^\circ$. Электроны дифрагируют на нескольких приповерхностных слоях. В результате на экране ДБЭ мы видим картину дифракции, определяемую поверхностной реконструкцией кристалла. В зависимости от температуры образца может меняться тип поверхностной реконструкции, поэтому картины ди-

фракции помогают также при градуировке пирометра.

Автоматическая система управления установкой предназначена для задания и контроля основных параметров роста, вращения образца, регистрации масс-спектров и спектров осцилляции интенсивности зеркального рефлекса дифракционной картины ДБЭ, а также для накопления всех данных о процессе роста структуры. Эпитаксиальный рост в большинстве случаев осуществляется по заранее подготовленному рецепту, где задается время роста, моменты открытия и закрытия заслонок, температуры МИ и подложки и др.

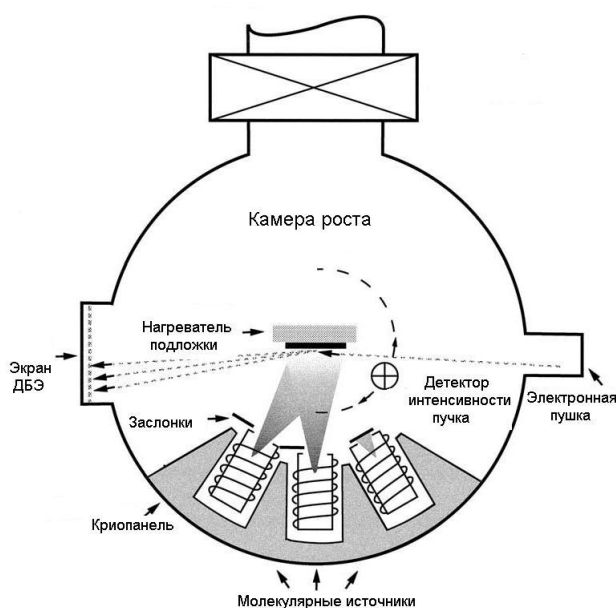


Рис. 11: Схема камеры роста МПЭ.

Все образцы выращивались на *epi-ready* подложках GaAs (001), которые готовы к эпитаксиальному росту. После прогрева в предростовой камере образец передавался в камеру роста. Здесь он был нагрет до $\sim 580^\circ\text{C}$ для сгона окисла, а затем еще на $20-30^\circ\text{C}$ и выдерживался при этой температуре для достоверности сгона 15 минут. После чего образец был охлажден до $\sim 580^\circ\text{C}$ на некоторое время. Далее выращивался буферный слой GaAs толщиной $0.5-1.0$ мкм со скоростью 0.5 монослоя/сек при соотношении потоков $\text{As}_4/\text{Ga} = 2$. После выбора окончательных значений скоростей роста для всех МИ и давления As, составлялся рецепт выращивания образца.

Первой парой были образцы T873 и T874, выращенные на основе данных работы [9].

Образец T873 синтезировался следующим образом: температура подложки была равной 510°C все время роста. Температура МИ галлия соответствовала скорости роста 0.3 монослоя/сек. Все заслонки были закрыты на 30 секунд для выравнивания поверхности и уменьшения потока мышьяка. Далее был открыт Ga на время равное росту 2.8 нм GaAs, после чего на подложку подавался As. Это соответствовало капельной эпитаксии с образованием отверстий (Рис. 12).

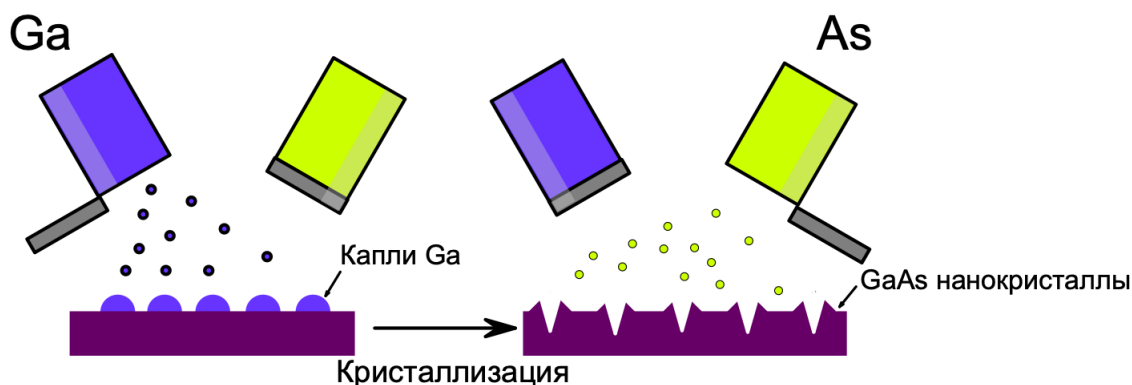


Рис. 12: Образование и травление капель при LDE.

В дополнение к T873 был выращен образец T874 с КТ. Начало рецепта полностью совпадает с рецептом для T873, однако ограничено время травления капель в присутствии мышьяка — 300 секунд. После этого образец с отверстиями был покрыт барьером 7.3 нм $\text{Al}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{As}$, затем 3.4 нм GaAs, и вновь барьером 84 нм $\text{Al}_{0.38}\text{Ga}_{0.62}\text{As}$. В завершении был выращен слой 20 нм GaAs для предотвращения ухудшения свойств и образования окислов на поверхности.

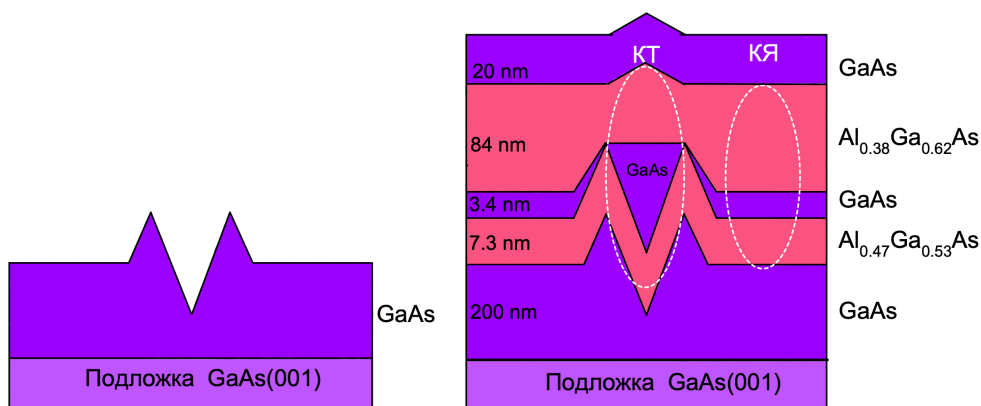


Рис. 13: Схема роста образцов с отверстиями (T873) и квантовыми точками (T874).

Существует два метода изменения плотности распределения КТ на поверхности. Первый - варьировать скорость напыления галлия, второй - изменить температуру подложки. Согласно работам [9], [22], второй способ может изменять плотность на порядки, по сравнению с первым.

За счет уменьшения температуры подложки были выращены образцы с повышенной плотностью нанотверстий (T885) и КТ (T893). Поскольку при увеличении плотности размер капель уменьшается, было принято решение увеличить количество галлия, для того, чтобы воспроизвести размер капель. Перед осаждением капель, температура образца была снижена до 400°C , после этого открыт МИ галлия на время равное росту 28 нм GaAs. Затем, увеличив температуру до начальной 510°C , был открыт мышьяк для травления капель. На этом этапе был окончен рост T885.

Для T893 рост начинался как и для T885. Но в рецепте была допущена ошибка и время напыления галлия вместо эквивалентного 28 нм GaAs, оказалось равным 40 нм, что могло привести к увеличению размера капель. После нагрева образца до рабочей температуры 510°C был открыт МИ мышьяка на 300 секунд для травления. Рост продолжился с 7.3 нм тройного раствора $\text{Al}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{As}$, затем 3.4 нм GaAs. Далее, как и для образца T874, были закрыты все заслонки МИ на 120 секунд для выравнивания поверхности и равномерного заполнения отверстий. В завершении образец был покрыт барьером 84 нм $\text{Al}_{0.38}\text{Ga}_{0.62}\text{As}$ и слоем 20 нм GaAs.

Схемы роста для пары T885, T893 совпадают с представленными на рисунке 13.

3.2 Микроскопия

Для исследования рельефа поверхности образцов был выбран метод атомно-силовой микроскопии (АСМ). На рисунке 14 представлена схема атомно-силового микроскопа. Принцип его работы состоит в регистрации силового взаимодействия между зондом и исследуемой поверхностью. На малых расстояниях между ними действуют силы отталкивания, а на больших – силы притяжения.

В качестве зонда используется наноразмерное острие, закрепленное на кантилевере, который проходит над поверхностью, получая 3D-изображение рельефа поверхности. Верхняя часть кантилевера зеркальная. Лазерный луч, попадая на нее, отражается на фотодатчик. Возвышенности и впадины рельефа влияют на расстояние между зондом и поверхностью, а следовательно, и на силы взаимодействия между ними. При этом изменяется изгиб кантилевера, а вследствие этого и положение отраженного луча. Таким образом, регистрируя отклонения кантилевера фотодатчиком, можно получить изображение объёмного рельефа поверхности.

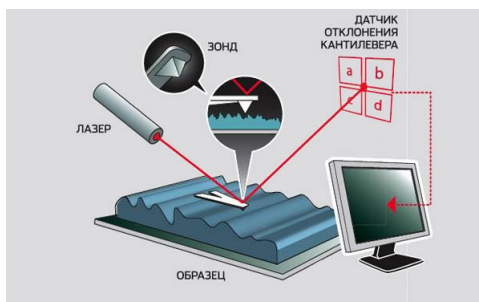


Рис. 14: Принципиальная схема работы АСМ.

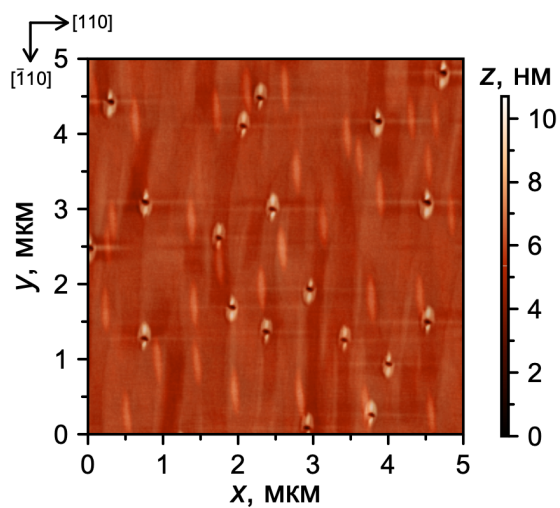
На рисунке 15 представлены снимки АСМ выращенных образцов. Т873, Т885 были вспомогательными для дальнейшего роста образцов с КТ. Анализ изображений 15а, 15б показывает, что отверстия протравлены, а их размеры имеют одномодальное распределение, что подтверждает правильность роста.

Плотности распределения отверстий $\rho_{T873} = 0.7 \text{ мкм}^{-2}$, $\rho_{T885} = 3.2 \text{ мкм}^{-2}$.

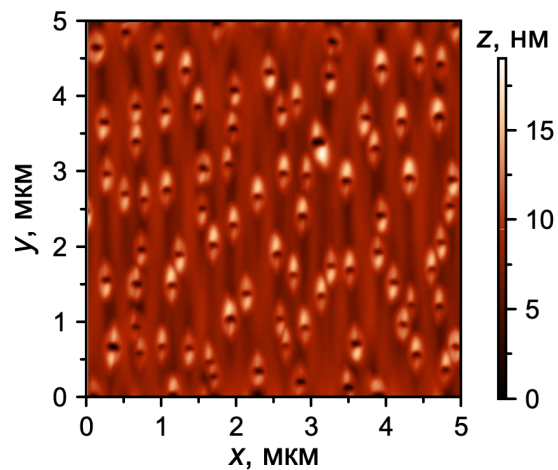
На снимках образцов с КТ 15с, 15d имеются возвышенности, которые связаны с трехмерным ростом. Это говорит о том, что в данных местах располагаются КТ. Плотности точек при этом равны $\rho_{T874} = 1.0 \text{ мкм}^{-2}$, $\rho_{T893} = 3.6 \text{ мкм}^{-2}$.

Полученные плотности для образцов Т873, Т874 совпадают с представленными в работе [9] (Рис. 9b). Скорость по галлию в данной работе 0.3 монослоя/сек. (Сравнивать образцы Т885, Т893 с данной зависимостью нельзя, поскольку температура подложки отличалась).

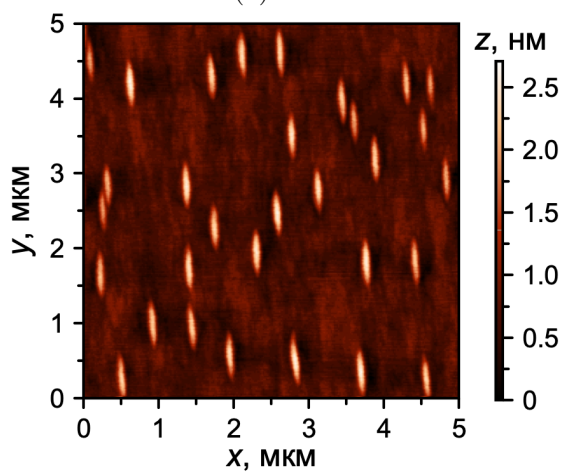
На рисунке 16 представлены срезы вдоль направлений $[\bar{1}10]$ и $[110]$ для нанотверстий и точек. В образцах с большей плотностью латеральные размеры точек и отверстий увеличились. Следовательно, при попытке сохранить размеры точек, было осаждено слишком много галлия при формировании капель.



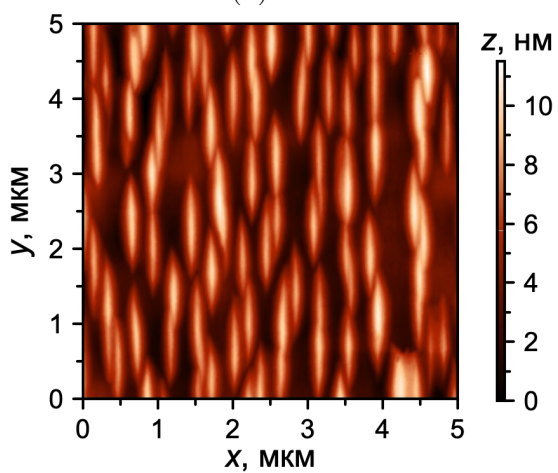
(a) T873.



(b) T885.



(c) T874.



(d) T893.

Рис. 15: АСМ изображения 5×5 мкм.

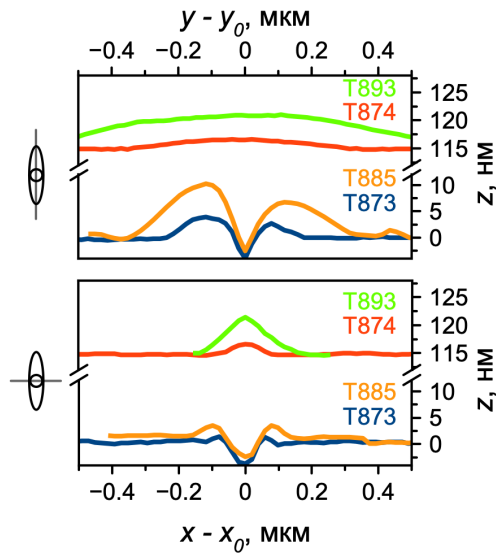


Рис. 16: АСМ профили всех образцов.

3.3 Оптическая характеристика

Для оптической характеристики исследуемых образцов использовались спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ), микрофотолюминесценции (μ ФЛ), отражения.

Фотолюминесценция — это процесс, при котором электронно-дырочные пары, образованные при оптическом возбуждении, рекомбинируют, испуская фотоны. Тепловые колебания кристаллической решетки увеличивает вероятность безызлучательной рекомбинации, поэтому ФЛ полупроводников при криогенной температуре становится более яркой.

Спектры ФЛ и μ ФЛ всех образцов были получены при температуре 4 К с использованием нерезонансного оптического возбуждения зеленым лазером 532 нм. Отражение снималось с помощью галогенной лампы, в геометрии близкой к углу Брюстера для GaAs (74°) при 10 К.

Ниже представлена оптическая схема экспериментальной установки:

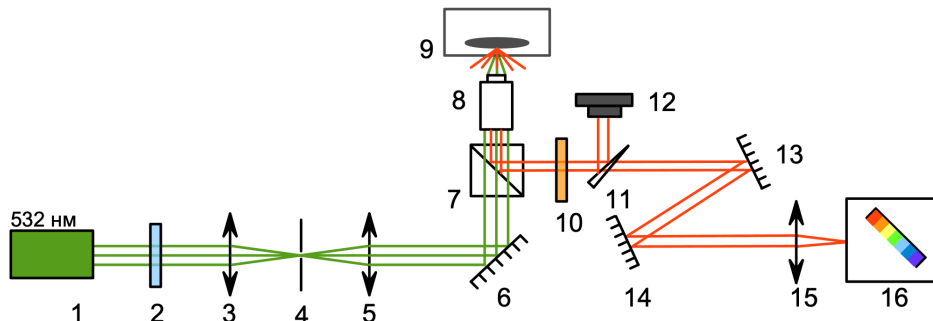


Рис. 17: Схема экспериментальной установки для измерения ФЛ.

Лазер (1) испускает непрерывное монохроматическое излучение с длиной волны 532 нм. Свет проходит через фильтр СЗС-23 (2), который отсекает излучение 1064 нм. Далее фокусируется линзой (3) на микроапертуре (4), вырезающей часть излучения.

После этого свет собирается линзой (5) в параллельный пучок и отражается зеркалом (6) на светоделительный куб 50/50 (7). Половина света попадает в микрообъектив (8) с увеличением 10x (в случае ФЛ) или 50x (μ ФЛ). И фокусируется на образце, который находится в криостате замкнутого цикла (9). ФЛ собирается микрообъективом (8) и отражается светоделительным кубиком (7). Сигнал проходит через фильтр ОС-14 (10), отрезающий рассеянное образцом отражение лазера. Затем попадает на полупрозрачный клин (11), который отводит малую часть света в камеру (12). Основная часть света, пройдя через систему зеркал (13, 14), фокусируется линзой (15) на входной щели монохроматора (16).

Спектр на рисунке 18 иллюстрирует зависимость интенсивности ФЛ от энергии.

Полоса 1.52 эВ характерна для объемного GaAs. Полоса 1.70 эВ связана с КЯ GaAs/AlGaAs, появляющейся в результате роста на всей поверхности образца (Рис. 13). Сигналы А, В в диапазоне 1.55 - 1.65 эВ будут объяснены ниже.

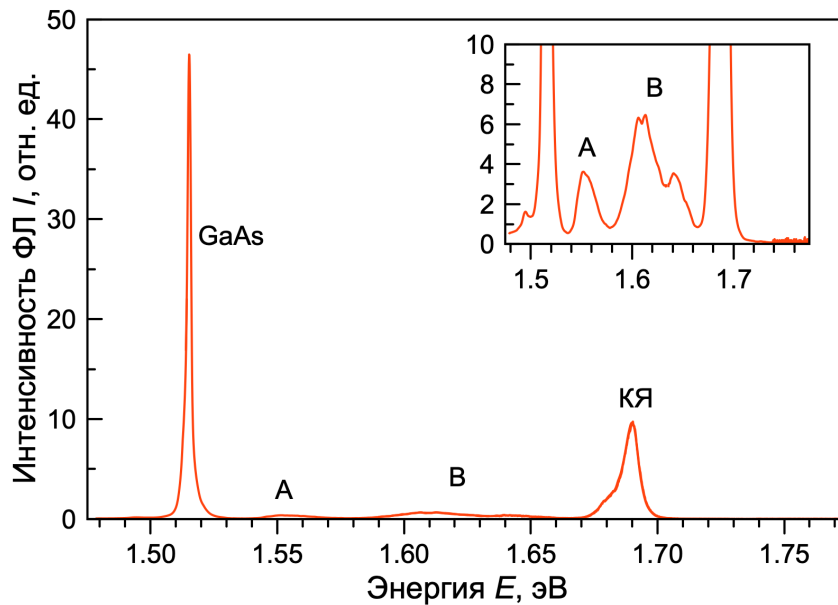


Рис. 18: ФЛ образца T874 при 4 К.

На спектре μ ФЛ с микрообъективом 50x (Рис. 19) видно, что сигналы А и В распадаются на более узкие пики, что говорит о том, что это полосы, связанные с КТ. Полоса А соответствует квантованию в самой точке, В мы связываем с квантованием вокруг точки, поскольку из микроскопии известно, что размер точек одномодален, а области вокруг них имеют больший разброс по размерам. Сравнивая положение пика А с рисунком 9а, можно отметить, что он расположен близко по энергиям с КТ на спектре ФЛ от образца с максимальной представленной в работе толщиной слоя GaAs - 3 нм [9].

Зачастую при измерении спектра отражения, ставится вопрос о том, на какой спектр нормировать. Из-за того, что спектр лампы отличается в разных точках нити накала, было принято решение нормировать спектр, полученный при освещении светом с р - поляризацией, на спектр с s - поляризацией. Здесь представлен спектр, полученный при

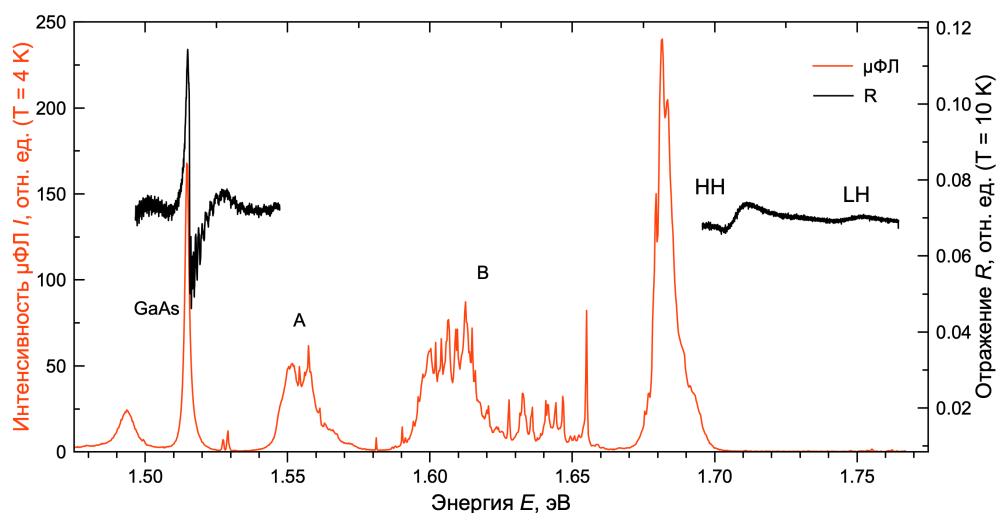


Рис. 19: μ ФЛ (50x) и отражение образца T874.

10 K (Рис. 19). Пик от трехмерного GaAs виден ярко. В диапазоне 1.55 - 1.70 эВ сигнал не имел особенностей, поэтому не представлен на спектре. Однако впервые видно, что помимо тяжелодырочного (HH) экситона в КЯ (1.71 эВ), есть полоса, соответствующая легкодырочному (LH) экситону (1.75 эВ), что не отмечалось в упомянутых ранее работах .

На рисунке 20 представлены зависимости ФЛ в одинаковом диапазоне длин волн. Сравнить их можно только качественно, поскольку верхний спектр соответствует толщине слоя GaAs 0.5 нм [9], а нижний - 3.4 нм. Для ФЛ T874 ярко выражено большее количество полос, связанных с КТ.

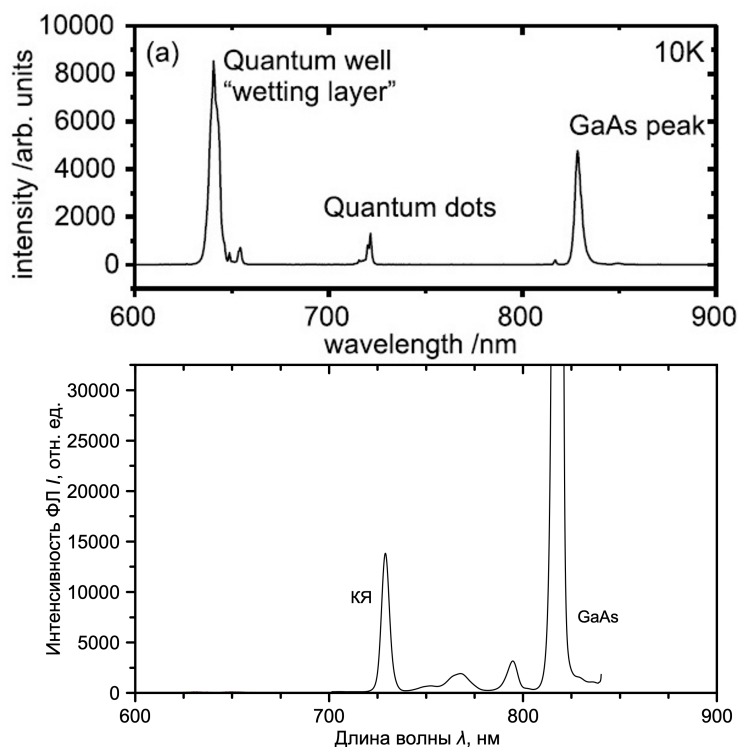


Рис. 20: ФЛ образца из работы [9] и ФЛ T874.

Различные полосы могли свидетельствовать о том, что в образцах присутствуют КТ разных размеров. Но из данных микроскопии известно, что распределение размеров одномодально. Следовательно, в одном полученном нанобъекте (ранее называемом КТ) существует несколько мест квантования. Ранее не указанные места продемонстрированы на рисунке 21. Такой же АСМ профиль отверстий представлен на рисунке 16. В работе [25] (Рис. 10) также отмечаются разные области локализации носителей заряда и два ансамбля полос в ФЛ.

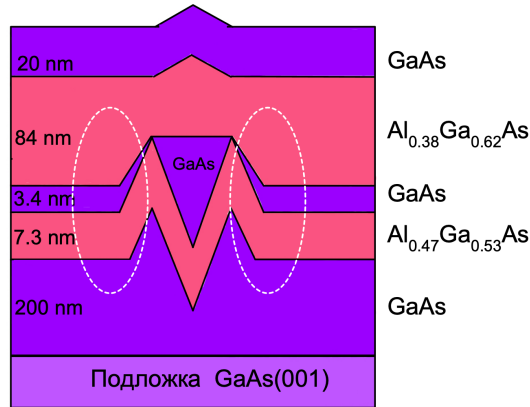


Рис. 21: Схема роста образца с КТ и ранее не отмеченные области локализации.

Переходя к ФЛ образца с плотными точками Т893 (Рис. 22), также выделяются полосы КЯ и КТ. В диапазоне 1.54 - 1.65 эВ ФЛ имеет большую интенсивность, по сравнению с сигналом от ямы. Это является следствием того, что в данном образце увеличилась плотность нанобъектов.

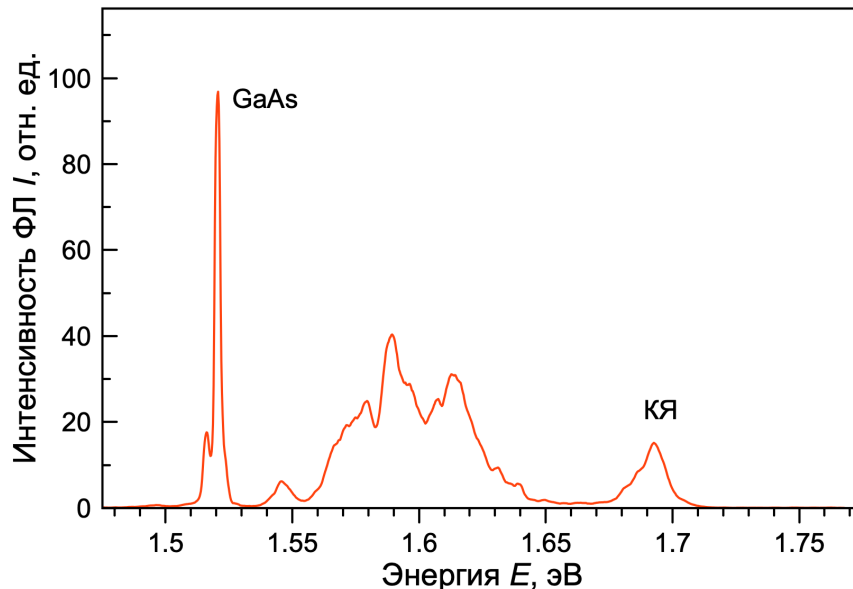


Рис. 22: ФЛ образца Т893 при 4 К.

Как и для Т874, полосы с энергией фотона 1.54 - 1.65 эВ образца Т893 распадаются на более узкие пики в спектре μ ФЛ (Рис. 23). Такое поведение подтверждает предположение о том, что это сигналы от КТ и областей вокруг них. Анализируя спектр

отражения, невозможно точно соотнести полосы, кроме полосы трехмерного арсенида галлия.

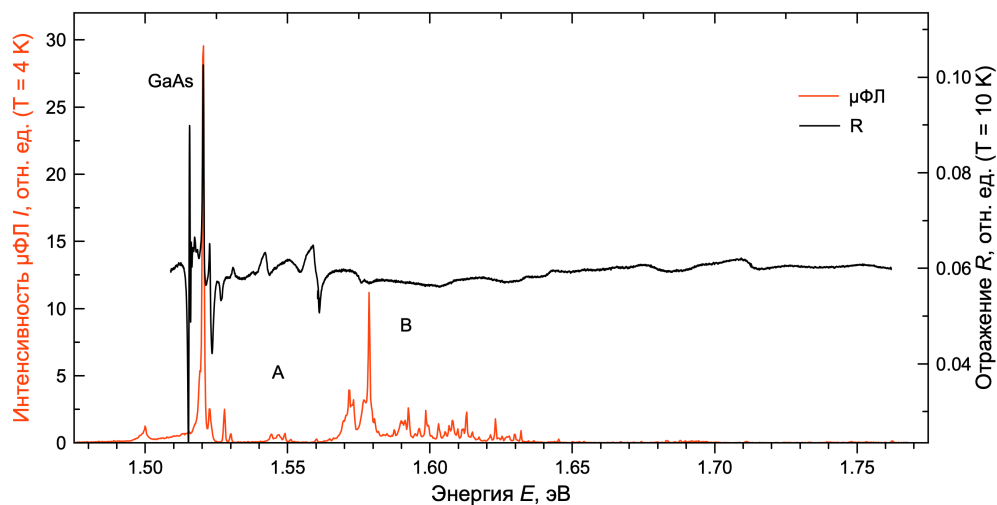


Рис. 23: μ ФЛ (50x) и отражение образца Т893 при 4 К.

Сравнивая ФЛ двух образцов (Рис. 24), полученных при одинаковых условиях, можно отметить, что положение полос КТ сдвинулось в область с меньшей энергией. Это связано с увеличением глубины отверстий при травлении. При этом интенсивность ФЛ КТ Т893 выше, вследствие увеличения плотности полученных нанобъектов.

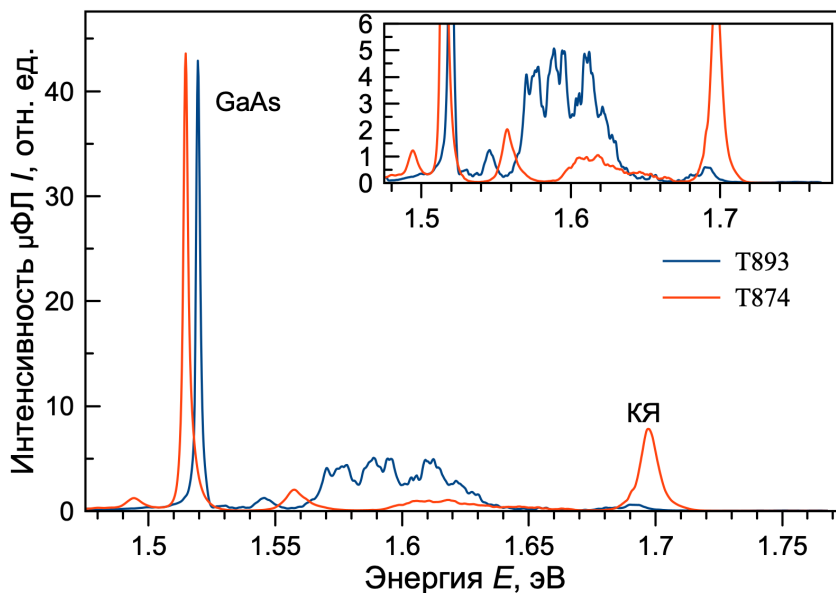


Рис. 24: ФЛ образцов Т874, Т893 при 4 К.

Фотолюминесценции исследуемых материалов при комнатной температуре не наблюдается.

3.4 Моделирование квантовой ямы

Для правильного соотношения полос люминесценции, было выполнено моделирование квантовой ямы с помощью программы Nextnano.

Nextnano - программное обеспечение для моделирования и проектирования наноразмерных полупроводниковых структур и устройств.

Конструируемая модель квантовой ямы повторяет состав ямы, которая получилась бы без квантовых точек. Имеется два барьера $\text{Al}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{As}$, $\text{Al}_{0.38}\text{Ga}_{0.62}\text{As}$, между которыми располагается слой 3.4 нм GaAs. На рисунке 25 представлена энергетическая диаграмма смоделированной КЯ при температуре 4 К. Квадрат волновой функции электрона убывает на длине меньшей, чем толщина первого слоя $\text{Al}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{As}$ (Рис. 26). Это означает, что туннелирование через барьер 7.4 нм невозможно. Поэтому для удобства яма располагается в центре моделируемого слоя 100 нм, что не повлияет на расположение энергетических уровней электронов и дырок.

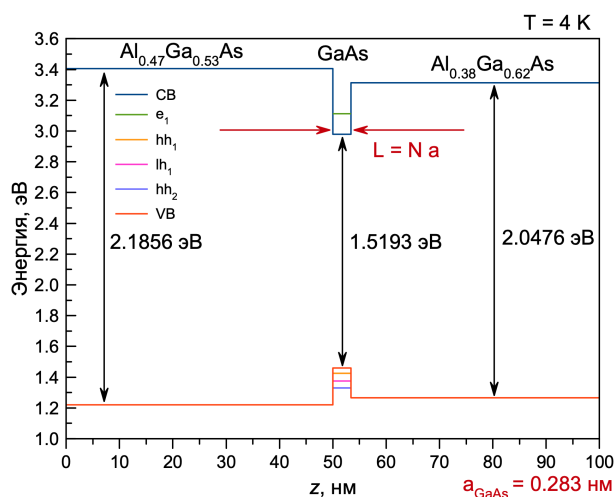


Рис. 25: Энергетическая диаграмма моделируемой квантовой ямы GaAs/AlGaAs при температуре 4 К.

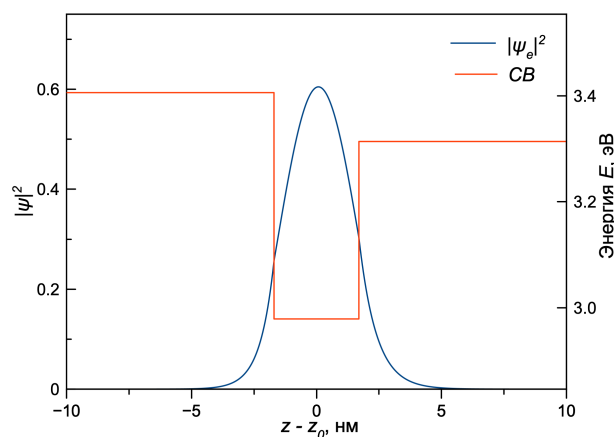


Рис. 26: Квадрат волновой функции электрона в яме с центром в точке z_0 и положение зоны проводимости.

Nextnano позволяет рассчитывать волновые функции, энергетические уровни для электронов и дырок, решая уравнение Шредингера. С помощью программы были рассчитаны энергии тяжелодырочного (HH) и легкодырочного (LH) экситонов, без учета энергии связи экситона. Результаты представлены на рисунке 27.

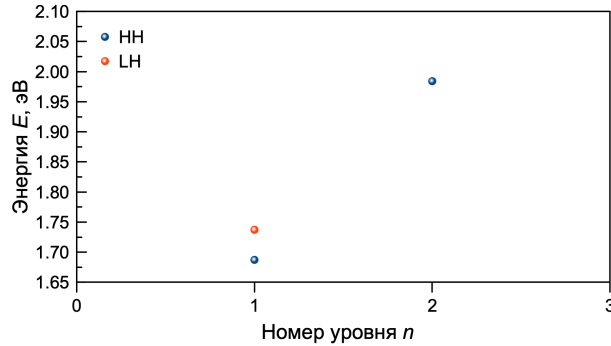


Рис. 27: Расчет энергий HH и LH экситонов в 3.4 нм КЯ GaAs/AlGaAs.

Из расчетов ясно, что для HH экситона в КЯ имеется два локализованных состояния (1.69 эВ, 1.99 эВ), а для LH - один (1.74 эВ). Сравнивая их энергии с положениями на спектре отражения для образца Т874 (19), видно, что они близки друг к другу .

Также были произведены расчеты монослойных флуктуаций энергий экситонов в КЯ, связанных с возможным изменением толщины КЯ вдоль всей поверхности (обозначенной L на рисунке 25). L кратна одному монослою $a_{GaAs} = 0.283$ нм. Результаты представлены на рисунке 28. В образцах Т874 и Т893 закладываемая в рецепт яма состояла из

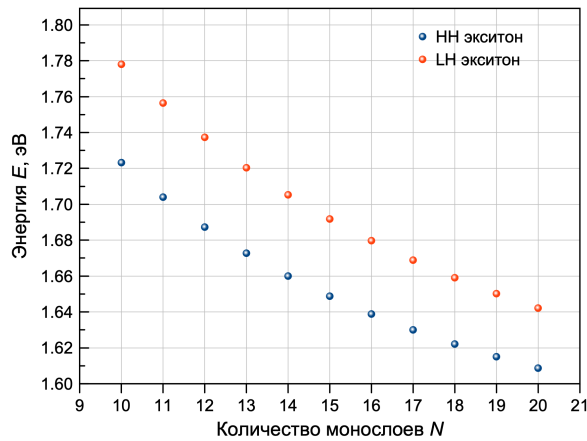


Рис. 28: Расчет энергий HH и LH экситонов в КЯ GaAs/AlGaAs толщины $L = N a_{GaAs}$.

12 монослоев. Если бы в структурах имелись монослойные флуктуации, то, согласно рисунку 28, в ФЛ имелись бы пики, отличающиеся на 20 мэВ. Таких полос не наблюдалось, следовательно, толщина КЯ одинакова по всему образцу.

4 Заключение

В ходе работы методом капельной эпитаксии было выращено два образца с правильной структурой отверстий (Т873, Т885). Также, методом заполнения нанотверстий (NFDE) получено два образца с квантовыми точками (Т874, Т893).

Рост первой пары Т873, Т874 протекал при неизменной температуре 510°C. С помощью уменьшения температуры подложки до 400°C во время осаждения галлия были получены образцы Т885, Т893 с увеличенной в ~ 4 раза плотностью объектов (отверстий и КТ).

Образец с КТ GaAs/AlGaAs Т874 выращен на основе образца из работы [9]. Т874 хорошо соотносится с ним по данными микроскопии (плотности КТ совпадают) и оптическим характеристикам (ФЛ).

Оптические исследования позволяют говорить о нескольких областях квантования в выращенных образцах. Так, в спектрах ФЛ для Т874, Т893 полосы КТ разделились на два ансамбля. При этом повышение плотности КТ в образце Т893 привело к увеличению интенсивности ФЛ КТ. Это позволит увеличить эффективность устройств фотоники на основе точек GaAs/AlGaAs.

На спектре отражения для Т874 продемонстрированы различимые сигналы от тяжелодырочных и легкодырочных экситонов в КЯ.

В программе Nextnano рассчитаны энергии тяжелодырочного и легкодырочного экситонов для разных толщин КЯ, подобных тем, что получаются в результате роста образцов с КТ. Квантовые расчеты позволили убедиться, что в образцах с КТ нет монослойных флуктуаций толщины КЯ. Также положения полос НН и ЛН экситонов КЯ в спектре отражения образца Т874 оказались близки к расчетным.

В дальнейшем планируется вырастить образцы с несколькими слоями квантовых точек, а также точки, помещенные в микрорезонатор. Это способствует росту сигнала фотолюминесценции, а следовательно и увеличению эффективности устройств на основе КТ.

Благодарности

Работа поддержана Министерством науки и высшего образования РФ (Мегагрант № 075-15-2022-1112) и Российским фондом фундаментальных исследований (RFBR 19-52-12046). И выполнена на оборудовании Ресурсного центра «Наноконструирование фото-активных материалов».

Выражаю личную благодарность Сергею Алексеевичу Елисееву, Юрию Петровичу Ефимову и Вячеславу Альгердовичу Ловцюсу за помощь при эпитаксии образцов. Также хочу поблагодарить Максима Сергеевича Ложкина за помощь с экспериментом по атомно-силовой микроскопии.

Список литературы

- [1] Shapochkin, P. Y., Lozhkin, M. S., Solovev, I. A. et al. *Appl. Phys. Lett.* **116** 081102 (2020)
- [2] Walker, P. M., Tinkler, L., Durska, M. et al. *Appl. Phys. Lett.* **102(1)** 012109 (2013)
- [3] Kapitonov, Y. V., Kozhaev, M. A., Dolgikh, Y. K. et al. *Phys. Status Solidi B* **250(10)** 2180 (2013)
- [4] Shapochkin, P. Y., Petrov, Y. V., Eliseev, S. A. et al. *JOSA A* **36(9)** 1505 (2019)
- [5] Solovev, I. A., Yanibekov, I. I., Efimov, Y. P. et al. *Phys. Rev. B* **103** 235312 (2019)
- [6] Zhai, L., Löbl, M.C., Nguyen, G.N. et al. *Nat. Commun.* **11**, 4745 (2020)
- [7] Gurioli, M., Wang, Z., Rastelli, A. et al. *Nat. Mater.* **18**, 799–810 (2019)
- [8] Langer, L., Poltavtsev, S. V., Yugova, I. A. et al. *Nature Photonics*, **8(11)**, 851–857 (2014)
- [9] Atkinson, P., Zallo, E., Schmidt, O. G. *J. Appl. Phys.*, **12**, 054303 (2012)
- [10] Леденцов Н.Н. , Устинов В.М., Щукин В.А., Копьев П.С., Алфёров Ж.И., Бимберг Д. *Физика и техника полупроводников*, **4**, 385 (1998)
- [11] Leonard, D., Krishnamurthy, M., Reaves, C. M., et al. *Appl. Phys. Lett.* , **63(23)**, 3203-3205 (1993)
- [12] Wang, G., Fafard, S., Leonard, D., Bowers, J. E. et al. *Appl. Phys. Lett.* , **64(21)**, 2815-2817 (1994)
- [13] Xiong, Y. and Zhang, X. *IEEE J. Quantum Electron.* , **53(6)**, 1-11 (2017)
- [14] Koguchi, N. and Ishige, K. *Jpn. J. Appl. Phys.* , **32(1)**, 2052-2058 (1993)
- [15] Watanabe, K., Koguchi, N. and Gotoh, Y. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39(2)**, L79–L81 (2000)
- [16] Watanabe, K., Tsukamoto, S., Gotoh, Y. and Koguchi, N. *J. Cryst. Growth*, **227-228**, 1073-1077 (2001)
- [17] Yamagiwa, M., Mano, T., Kuroda, T. et al. *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 113115 (2006)
- [18] Mano, T. and Koguchi, N. *J. Cryst. Growth*, **278**, 108-112 (2005)
- [19] Mano, T., Kuroda, T., Sanguinetti, S. et al. *Nano Lett.*, **5**, 425-428 (2005)
- [20] Mano, T., Kuroda, T., Kuroda, K., Sakoda, K. *Journal of Nanophotonics*, **3**, 031605 (2009)

- [21] Wang, Z. M., Liang, B. L., Sablon, K. A. and Salamo, G. J. *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 113120 (2007)
- [22] Heyn, C. *Phys. Rev. B*, **83**, 165302 (2011)
- [23] Heyn, C., Stemmann, A. and Hansen, W. *Appl. Phys. Lett.* , **95**, 173110 (2009)
- [24] Heyn, C., Stemmann, A., Köppen, T. et al. *Nanoscale Res. Lett.*, **5**, 576 (2010)
- [25] Ulhaq, A., Duan, Q., Zallo, E. et al. *Phys. Rev. B*, **93**, 165306 (2016)