Письма в ЖЭТФ, том 97, вып. 5, с. 313 – 318

Тонкая структура экситонных состояний InAs квантовых точек

А. В. Гайслер[*1)], *А. С. Ярошевич*[*], *И. А. Деребезов*[*], *А. К. Калагин*[*], *А. К. Бакаров*[*], *А. И. Торопов*[*], *Д. В. Щеглов*[*×], *В. А. Гайслер*[*+], *А. В. Латышев*[*×], *А. Л. Асеев*[*]

[*] *Институт физики полупроводников им. Ржанова СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия*

[+] *Новосибирский государственный технический университет, 630092 Новосибирск, Россия*

[×] *Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 5 февраля 2013 г.

Методом криогенной микрофотолюминесценции исследована тонкая структура экситонных состояний InAs квантовых точек, выращенных по механизму Странского–Крастанова с малым временем прерывания роста. Продемонстрировано монотонное увеличение расщепления экситонных состояний с увеличением размера квантовых точек до значений $\sim 10^2$ мкэВ. Показано, что в интервале энергий экситонов 1.3–1.4 эВ величина расщепления экситонных состояний сравнима с естественной шириной экситонных линий. Это представляет большой интерес для разработки излучателей пар запутанных фотонов на основе InAs квантовых точек.

DOI: 10.7868/S0370274X1305007X

Самоорганизованные полупроводниковые квантовые точки (КТ) [1–5] являются одним из важнейших ресурсов в разработке сверхминиатюрных излучателей для квантовых информационных систем [6–8]. На основе полупроводниковых КТ разрабатываются эффективные и быстродействующие полностью твердотельные излучатели одиночных фотонов (ИОФ) [5, 9–11]. Они представляют большой интерес и для создания излучателей пар запутанных фотонов (ИПЗФ) [5, 10, 12–15]. Пары запутанных фотонов могут излучаться полупроводниковыми КТ в процессе каскадной рекомбинации биэкситона и экситона в случае, если экситонные состояния вырождены по энергии или же их расщепление ΔE_{FS} не превышает естественной ширины экситонных уровней $\Gamma_X = \hbar/\tau_X$, где τ_X – время жизни экситона. В этом случае излучается пара фотонов, запутанных по поляризации [5]. В реальных КТ расщепление экситонных состояний ΔE_{FS}, как правило, многократно превышает естественную ширину экситонных уровней Γ_X. Это обусловлено отклонением формы КТ от идеальной, наличием пьезопотенциала, индуцированного встроенными механическими напряжениями, образованием твердых растворов в интерфейсных областях [5, 16, 17]. Исследование факторов, задающих величину ΔE_{FS}, а также условий, при которых расщепление экситонных состояний подавляется до уровня Γ_X, актуально для разработки ИПЗФ на базе полупроводниковых КТ.

В данной работе представлены результаты исследования тонкой структуры экситонных состояний InAs квантовых точек, выращенных методом молекулярно- лучевой эпитаксии (МЛЭ) по механизму Странского–Крастанова с малым временем прерывания роста. Показано, что для субансамбля КТ с энергией экситонов в интервале 1.3–1.4 эВ выполняется условие $\Delta E_{FS} \approx \Gamma_X$, необходимое для генерации пар запутанных фотонов.

Исследованные образцы выращивались на установке МЛЭ Riber C21 на подложках GaAs с ориентацией (001). На поверхности подложки выращивался буферный GaAs слой толщиной 0.3 мкм. Структура содержала два 50-нанометровых слоя $Al_{0.6}Ga_{0.4}As$, препятствующих диффузии фотовозбужденных носителей заряда, и 160-нанометровый слой GaAs, находящийся между ними. В середине 160-нанометрового GaAs слоя, поглощающего большую часть мощности возбуждающего лазера, находился слой InAs КТ. На верхнем $Al_{0.6}Ga_{0.4}As$ слое выращивался 10-нанометровый защитный слой GaAs. Слой InAs КТ выращивался по механизму Странского–Крастанова [1–5] при температуре $T = 430\,^\circ$C. На поверхности GaAs выращивался слой InAs критической толщины (~ 1.8 монослоя (МС)), по достижении которой начинает формироваться массив самоорганизованных InAs КТ. Скорость роста InAs слоя составляла 0.02 МС/с. Соотношение

[1)] e-mail: alex729@mail.ru

потоков элементов As/In поддерживалось на уровне 10^2. Момент перехода от двумерного механизма роста к трехмерному контролировался методом дифракции быстрых электронов. По достижении критической толщины процесс роста InAs прекращался. Потом в течение времени τ_{GI} формировался массив InAs КТ по механизму Оствальда [18–21]. После этого слой InAs КТ заращивался GaAs. Время ростовой паузы τ_{GI} варьировалось от единиц до сотен секунд. Продолжительность ростовой паузы τ_{GI} в значительной степени определяет параметры массива InAs КТ. С увеличением τ_{GI} до 10^1–10^2 с формируются массивы КТ высокой плотности (до 10^{10} см$^{-2}$), возрастает средний размер КТ, а также дисперсия их размеров. Использование же в ростовом эксперименте малых τ_{GI} (единицы секунд) является эффективным способом получения массива КТ сверхмалой плотности (до 10^6 см$^{-2}$). При этом формируются КТ минимального размера с малой дисперсией размера.

Структуры InAs КТ исследовались методами макро- и микрофотолюминесценции. Площадь пятна возбуждающего лазера на поверхности структуры составляла 3000 и 3 мкм^2 соответственно. Для возбуждения люминесценции использовалось излучение Nd:YAG лазера с длиной волны 532 нм, работающего в непрерывном режиме. Плотность мощности излучения на поверхности структуры варьировалась в интервале 10^{-2}–10^2 Вт/см^2. Структуры размещались в He-криостатах, задающих температуру $T = 10$ K. Люминесценция регистрировалась с помощью однократного монохроматора, оснащенного охлаждаемым Ge-*pin* фотодиодом (макролюминесценция), или тройного монохроматора TriVista-555 с охлаждаемой матрицей Si фотоприемников (микролюминесценция).

На рис. 1 представлены спектры макро- и микролюминесценции (на вставках) двух структур с InAs КТ. При выращивании первой структуры (рис. 1a) ростовая пауза составляла $\tau_{GI} = 120$ с. При этом формировался массив КТ с высокой плотностью ($\sim 10^{10}$ см$^{-2}$). Вторая структура (рис. 1b) выращивалась с прерыванием роста $\tau_{GI} = 3$ с, что позволило получить очень низкую плотность КТ (на уровне $\sim 10^6$ см$^{-2}$). Спектры макролюминесценции содержат пики экситон-примесных комплексов GaAs (DX), пики люминесценции InAs смачивающего слоя толщиной ~ 1.8 МС, образующего квантовую яму (WL), и широкие спектральные полосы, соответствующие люминесценции КТ (QDs). Для первого образца интенсивная полоса люминесценции КТ проявляется в интервале энергий 0.9–1.4 эВ. В ее формирование вносит вклад излучение $\sim 10^6$ КТ, что задает непрерывный спектр свечения. Пики люминесценции, обозначенные на рис. 1a как S1, S2, ..., отвечают мультимодальному распределению КТ по размерам. Размеры КТ, образующих субансамбли S1, S2, ..., отличаются на один монослой [3]. Для второго образца люминесценция КТ проявляется в виде низкочастотного и низкоинтенсивного крыла пика смачивающего слоя WL в интервале энергий 1.1–1.4 эВ. Снижение интенсивности и интервала энергий люминесценции соответствует значительному уменьшению плотности КТ и уменьшению дисперсии их размеров.

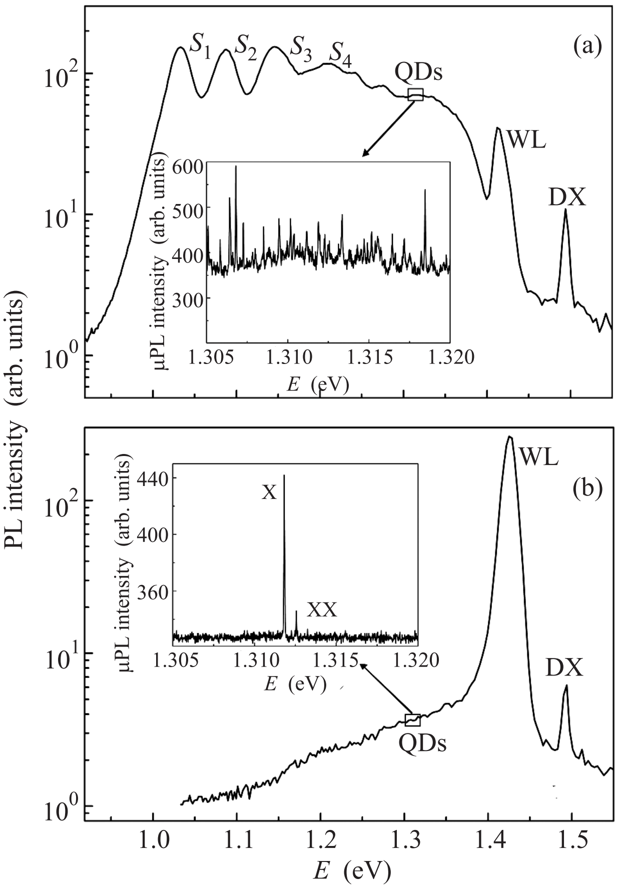

Рис. 1. Спектры макро- и микролюминесценции (на вставках) двух структур с InAs КТ ($T = 10$ K). Для первой структуры $\tau_{GI} = 120$ с (рис. 1a). Для второй структуры $\tau_{GI} = 3$ с (рис. 1b)

На вставках к рис. 1 приведены спектры микролюминесценции двух исследуемых образцов для интервалов энергий, отмеченных прямоугольными рамками на спектрах макролюминесценции. Отчетливо видны узкие пики, соответствующие люминесценции одиночных КТ. Спектр люминесценции первого образца содержит десятки пиков от различных КТ, образующих континуум. Это затрудняет интерпретацию этих пиков и анализ их характеристик. Для второго образца с низкой плотностью КТ ($\sim 10^6\,\text{см}^{-2}$) среднее расстояние между КТ составляет около 10 мкм (диаметр лазерного пятна на поверхности образца ~ 2 мкм). Это позволяет уверенно возбуждать и анализировать люминесценцию одиночных InAs квантовых точек, не прибегая к дополнительным нанотехнологическим операциям, таким, как формирование субмикронных мез или субмикронных апертур в слоях металла, нанесенного на поверхность структуры [16, 17, 22]. Спектр микролюминесценции второго образца (вставка к рис. 1b) содержит два узких пика, отвечающих люминесценции экситона (X) и биэкситона (XX) одиночной InAs квантовой точки. Интерпретация пиков люминесценции одиночных КТ проводилась с использованием зависимостей интенсивностей пиков от плотности мощности излучения возбуждающего лазера. При наименьших плотностях мощности в спектрах люминесценции в первую очередь проявляются пики экситонов X. Зависимость же их интенсивности от плотности мощности линейна. При больших плотностях мощности в спектрах появляются пики биэкситонов XX, интенсивность которых возрастает с плотностью мощности лазера по квадратичному закону [23]. На рис. 2 представлены зависимости интенсивностей пиков экситонов и биэкситонов от плотности мощности возбуждающего лазера.

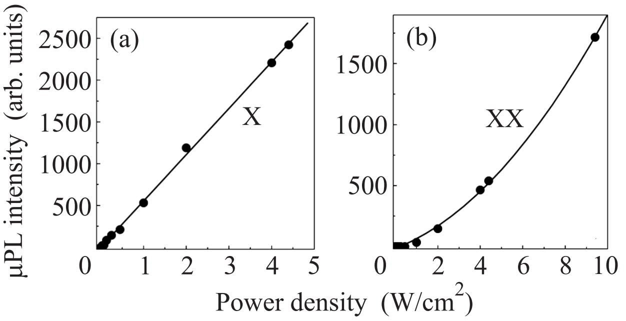

Рис. 2. Зависимость интенсивности экситонных (X, рис. 2a) и биэкситонных (XX, рис.2b) пиков одиночной InAs квантовой точки от плотности мощности возбуждающего лазерного излучения ($T = 10\,\text{K}$). Точки – экспериментальные данные, сплошные линии – линейная и квадратичная аппроксимации

В InAs КТ малого размера, исследуемых в данной работе, электронные и дырочные уровни содержат лишь основные состояния. Проекция спина электронов на ось роста z составляет $\pm 1/2$. В валентной зоне локализуются только тяжелые дырки (проекция моментов на ось роста $\pm 3/2$) [5]. Соответственно существуют четыре различных экситонных состояния с полным моментом $M = 2,\ 1,\ -1,\ -2$. Все они вырождены по энергии. Четырехкратное вырождение снимается за счет электрон-дырочного обменного взаимодействия. Оно приводит к образованию двух пар экситонных состояний с полным моментом $M = 2,\ -2$ (оптически неактивные экситоны) и $M = 1,\ -1$ (оптически активные экситоны). Последняя пара экситонных состояний двукратно вырождена по энергии. В реальных КТ снимается и двукратное вырождение по энергии оптически активных экситонов за счет отклонения КТ от идеальной формы, а также влияния пьезопотенциала, индуцированного встроенными механическими напряжениями [16, 17]. Величина расщепления экситонных уровней ΔE_{FS} определяется набором факторов, таких, как степень отклонения формы КТ от идеальной и влияние пьезопотенциала, значение которого возрастает с увеличением размера КТ [5, 16, 17]. На величину ΔE_{FS} оказывают влияние электрические и магнитные поля, а также постростовые воздействия, например высокотемпературный отжиг [5, 24]. При ΔE_{FS}, значительно превосходящих Γ_X, излучение экситона и биэкситона линейно поляризовано вдоль кристаллографических направлений [110] и [1$\bar{1}$0] [5, 16, 17]. На рис. 3 приведена энергетическая диаграмма экситонных состояний InAs КТ и проиллюстрированы излучательные процессы рекомбинации экситона и биэкситона для случая $\Delta E_{FS} \gg \Gamma_X$.

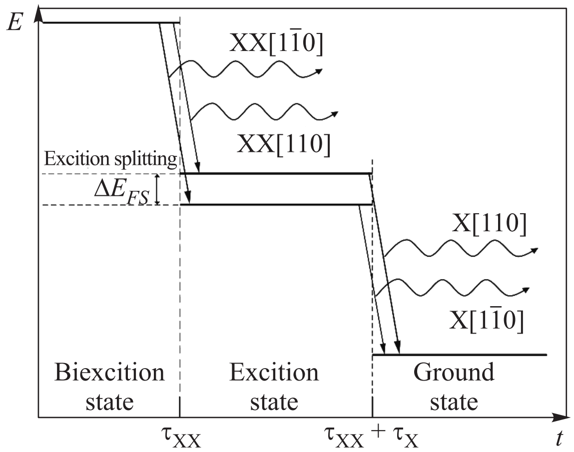

Рис. 3. Энергетическая диаграмма экситонных состояний InAs КТ и иллюстрация излучательных процессов рекомбинации экситона и биэкситона для случая $\Delta E_{FS} \gg \Gamma_X$

В КТ, содержащей два электрона и две дырки (биэкситонное состояние), за время τ_{XX} рекомбинирует первая электронно-дырочная пара с образо-

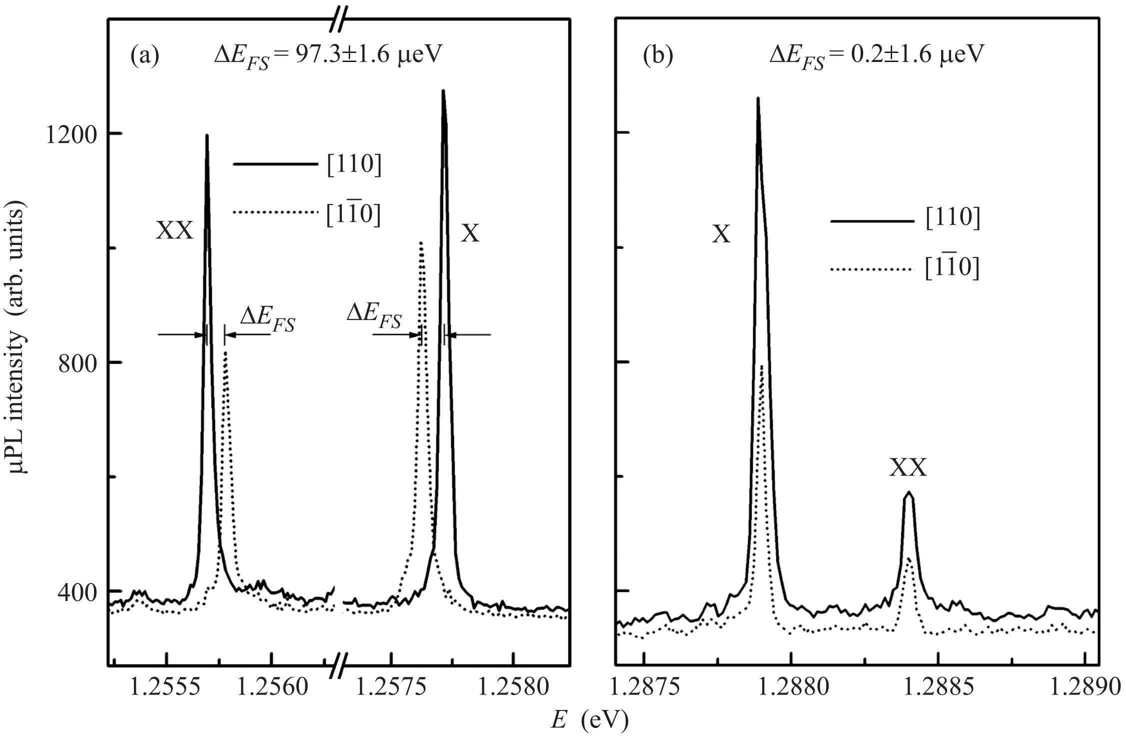

Рис. 4. Спектры микролюминесценции для двух InAs КТ ($T = 10$ K). (a) – Спектр одиночной КТ с $\Delta E_{FS} = 97$ мкэВ. (b) – Спектр одиночной КТ, для которой расщепление экситонных состояний не превышает погрешности измерений (±1.6 мкэВ)

ванием фотонов, поляризованных вдоль кристаллографических направлений [110] или [1$\bar{1}$0] (XX[110] и XX[1$\bar{1}$0] на рис. 3). После этого квантовая точка переходит в экситонное состояние и содержит одну электронно-дырочную пару, которая рекомбинирует по прошествии времени τ_X. При этом образуются фотоны с той же поляризацией вдоль направлений [110] или [1$\bar{1}$0] (на рис. 3 фотоны, отвечающие рекомбинации экситонов, обозначены как X[110] и X[1$\bar{1}$0]). Как видно из диаграммы рис. 3, энергии фотонов XX[110] и XX[1$\bar{1}$0], а также фотонов X[110] и X[1$\bar{1}$0] отличаются на величину ΔE_{FS}. Соответственно спектры люминесценции, записанные для поляризаций вдоль направлений [110] и [1$\bar{1}$0], будут содержать пики экситонов X[110] и X[1$\bar{1}$0] и пики биэкситонов XX[110] и XX[1$\bar{1}$0], смещенные друг относительно друга на величину ΔE_{FS}. Это позволяет непосредственно из спектров излучения определять параметр расщепления экситонных состояний ΔE_{FS} (рис. 4). В данной работе величина ΔE_{FS} определялась как разница энергий фотонов X[110] и X[1$\bar{1}$0], отвечающих экситонной рекомбинации в КТ.

Как уже отмечалось, идеальные КТ с вырожденными по энергии экситонными состояниями ($\Delta E_{FS} = 0$) и КТ с малым расщеплением экситонных состояний ($\Delta E_{FS} \approx \Gamma_X$) могут служить источниками пар запутанных фотонов [5]. При выполнении этих условий в процессе каскадной рекомбинации биэкситона и экситона излучаются пары фотонов, запутанных по поляризации. Согласно литературным данным время жизни экситона τ_X для InAs КТ при криогенных температурах составляет около 10^{-9} с [4, 23, 25]. Это задает ширину экситонного пика X на уровне 10^{-6} эВ. Таким образом, для разработки ИПЗФ представляют интерес InAs КТ, в которых величина ΔE_{FS} не превышает нескольких мкэВ. Для поиска КТ, отвечающих данному требованию, погрешность определения ΔE_{FS} должна находиться также на уровне единиц мкэВ.

В данной работе для увеличения точности определения параметра ΔE_{FS} экспериментальные контуры пиков люминесценции аппроксимировались контурами Лоренца. Максимум контура Лоренца принимался за максимум пика. С использованием данной процедуры погрешность в определении параметра ΔE_{FS} составляла $\sigma_{FS} = \pm 1.6$ мкэВ, что сравнимо с естественной шириной экситонных пиков Γ_X.

Параметр ΔE_{FS} был определен для 135 одиночных КТ (рис. 4 и 5). На рис. 5 приведены получен-

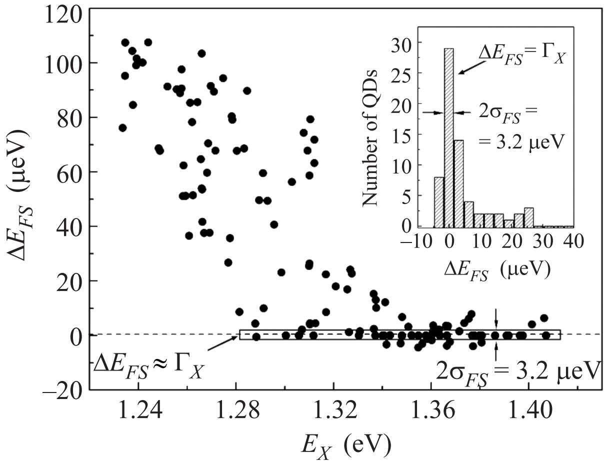

Рис. 5. Расщепление экситонных состояний ΔE_{FS} для 135 InAs КТ. Прямоугольной рамкой выделены экспериментальные точки, для которых ΔE_{FS} сравнимо с естественной шириной экситонных состояний. На вставке приведена гистограмма распределения числа КТ по ΔE_{FS} для интервала ΔE_{FS} от -10 до 40 мкэВ. Ширина столбца равна удвоенной погрешности измерений (3.2 мкэВ), сравнимой с естественной шириной экситонных уровней Γ_X

ные экспериментальные результаты для ΔE_{FS}. По горизонтальной оси отложена энергия экситона КТ. Отметим основные закономерности полученной зависимости. С уменьшением энергии экситона (с ростом размера КТ) наблюдается монотонный рост ΔE_{FS} от малых значений до значений ~ 100 мкэВ при энергиях экситона ~ 1.22 эВ. Прослеживается большой разброс значений ΔE_{FS} при заданной энергии экситона. Эти закономерности отмечались ранее [5, 16, 17]. Рост ΔE_{FS} связан с увеличением пьезопотенциала с ростом размеров КТ. Значительные флуктуации параметра ΔE_{FS} обусловлены отклонением формы КТ от идеальной: снижением симметрии КТ с C_{4v} до C_{2v}, флуктуациями аспектного отношения вертикальных и латеральных размеров КТ.

Наиболее важной особенностью полученной зависимости является наличие группы КТ с энергией экситонов в интервале 1.3–1.4 эВ, для которых ΔE_{FS} близка к нулю в пределах точности измерений (± 1.6 мкэВ). К этой группе относятся КТ наименьшего размера, в случае которых пьезопотенциал не приводит к заметному расщеплению экситонных состояний. На рис. 5 эта группа выделена прямоугольной рамкой. На вставке к рис. 5 приведена гистограмма распределения числа КТ по ΔE_{FS} для интервала ΔE_{FS} от -10 до 40 мкэВ. Ширина столбца равна удвоенной погрешности измерений (3.2 мкэВ), сравнимой с естественной шириной экситонных уровней Γ_X. Как видно из гистограммы, максимум распределения приходится на КТ с $\Delta E_{FS} = 0 \pm 1.6$ мкэВ. Очевидно, что данная выборка КТ представляет большой интерес для создания ИПЗФ.

Таким образом, в данной работе показано, что структуры с InAs КТ, выращенными по механизму Странского–Крастанова с малым временем прерывания роста содержат субансамбли КТ с $\Delta E_{FS} \approx \Gamma_X$, пригодных для создания излучателей пар запутанных фотонов.

Работа поддержана программой фундаментальных исследований президиума РАН # 24 “Основы фундаментальных исследований нанотехнологий и наноматериалов”. Ряд экспериментов в данной работе проведен на оборудовании Центра коллективного пользования “Наноструктуры”.

1. D. Bimberg, M. Grundmann, and N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, John Wiley Sons, Chichester, 1999.
2. *Single Quantum Dots, Fundamentals, Applications and New Concepts* (ed. by P. Michler), Springer-Verlag, Berlin, 2003.
3. *Semiconductor Nanostructures* (ed. by D. Bimberg), Springer-Verlag, Berlin, 2008.
4. *Self-Assembled Quantum Dots* (ed. by Z. M. Wang), Springer Science+Business Media, LLC, N.Y., 2008.
5. *Single Semiconductor Quantum Dots* (ed. by P. Michler), Springer-Verlag, Berlin, 2009.
6. D. Bouwmeester, A. K. Ekert, and A. Zeilinger, *The Physics of Quantum Information*, Springer, Berlin, 2000.
7. N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden, Rev. Mod. Phys. **74**, 145 (2002).
8. D. F. Walls and G. J. Milburn, *Quantum Optics*, Springer-Verlag, Berlin, 2008.
9. A. Lochmann, E. Stock, J. A. Toefflinger et al., Electr. Lett. **45**, 566 (2009).
10. D. Bimberg, E. Stock, A. Lochmann et al., IEEE Phot. Journ. **1**, 58 (2009).
11. T. Heindel, C. A. Kessler, M. Rau et al., New Journ. Phys. **14**, 083001 (2012).
12. O. Benson, C. Santori, M. Pelton, and Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. **84**, 2513 (2000).
13. R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson et al., Nature **439**, 179 (2006).
14. A. Mohan, M. Felici, P. Gallo et al., Nature Phot. **4**, 302 (2010).
15. R. M. Stevenson, C. L. Salter, J. Nilsson et al., Phys. Rev. Lett. **108**, 040503 (2012).
16. R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 257402 (2005).
17. R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt et al., Physica E **32**, 101 (2006).

18. L. H. Li, N. Chauvin, G. Patriarche et al., J. Appl. Phys. **104**, 083508 (2008).
19. T. J. Krzyzewski and T. S. Jones, J. Appl. Phys. **96**, 668 (2004).
20. L. Muller-Kirsch, R. Heitz, U. W. Pohl et al., Appl. Phys. Lett. **79**, 1027 (2001).
21. U. W. Pohl, K. Potschke, A. Schliwa et al., Phys. Rev. B **72**, 245332 (2005).
22. E. Moreau, I. Robert, J. M. Gerard et al., Appl. Phys. Lett. **79**, 2865 (2001).
23. R. M. Thompson, R. M. Stevenson, A. J. Shields et al., Phys. Rev. B **64**, 201302(R) (2001).
24. T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda et al., Appl. Phys. Express **3**, 065203 (2010).
25. J. W. Tomm, T. Elsaesser, Yu. I. Mazur et al., Phys. Rev. B **67**, 045326 (2003).