

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук

на правах рукописи

Косарев Александр Николаевич

Электронно-дырочные пары, локализованные в системах квантовых точек InGaAs

1.3.8 - физика конденсированного состояния

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2023

Работа выполнена в Санкт-Петербургском политехническом университете Петра Великого

Научный руководитель: **Чалдышев Владимир Викторович,**
доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки «Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук»

Официальные оппоненты: **Шамирзаев Тимур Сезгирович,**
доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки «Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова» СО РАН г. Новосибирск,

Родина Анна Валерьевна,

доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки «Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук», профессор РАН.

Ведущая организация: **СПбАУ РАН им. Ж.И. Алфёрова;**

Защита состоится _____ в _____ на заседании диссертационного совета ФТИ 34.01.01 Федерального государственного бюджетного учреждения науки Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук по адресу Санкт-Петербург, Политехническая ул., д. 26.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, www.ioffe.ru.

Автореферат разослан _____

Отзывы и замечания по автореферату в двух экземплярах, заверенных печатью, просьба высылать по вышеуказанному адресу на имя ученого секретаря диссертационного совета.

Ученый секретарь
диссертационного совета
ФТИ 34.01.01

Калашникова А. М., PhD

Общая характеристика работы

Актуальность темы

Квантовые точки (КТ) обладают способностью локализовать носители заряда во всех трех направлениях, и, за эту способность, их иногда называют «искусственными атомами» [Alferov, 2001; Ashoori, 1996]. Высококачественные КТ могут быть получены путем самоорганизации в рамках широко распространенных технологических методов молекулярно-лучевой (МЛЭ) или газофазной эпитаксии (ГФЭ). Такие методы разработаны для создания КТ в самых разных системах материалов, включая InAs-GaAs-InP-GaSb [Sautter, 2020], Ge-Si [Brunner, 2002], InN-GaN-AlN [Adelmann, 2000] и т. д. За счёт хорошо отработанного процесса производства и совместимости технологий само-организации КТ с другими технологиями роста полупроводников, КТ могут быть использованы во многих электронных, оптических и оптоэлектронных приборах, таких как лазеры, солнечные элементы или одноэлектронные запоминающие устройства [Bayer, 2019; Sautter, 2020].

Наиболее распространены КТ на основе InGaAs, сформированные на поверхности GaAs, а затем выращенные слоем этого материала или более широкозонным AlGaAs. Лазеры с такими КТ в активной области демонстрируют низкие пороговые токи и высокую температурную стабильность [Arakawa, 1982], а также большую энергоэффективность и быстродействие. В электронике такие КТ могут быть использованы для хранения информации путем пространственной локализации одиночных электронов или дырок. Локализованные в КТ носители заряда могут достаточно долго сохранять спиновую когерентность [Kosarev, 2022]. Важным свойством КТ является излучение одиночных фотонов при рекомбинации электрон-дырочной пары. Основанные на КТ источники света создают поток фотонов со специфической статистикой, требуемой для различных задач квантовых технологий [Eisaman, 2011], включая квантовое шифрование [Ekert, 1991] и генерацию случайных чисел, а также для метрологии и измерений за пределами дробового шума [Motes, 2015].

Интенсивные исследования КТ привели к значительному прогрессу в технологии их формирования и пониманию физики происходящих в них процессов. Тем не менее количество посвященных КТ публикаций в ведущих международных научных журналах остается очень высоким, что показывает существование открытых вопросов в физике и технологиях производства КТ, требующих дальнейшего углубленного исследования. Одной из важнейших научных задач, связанных с КТ, является выяснение факторов, влияющих на локализацию носителей заряда в них, и изучение возможностей управления этим явлением. Другой важнейшей задачей является управление временем жизни носителей заряда и экситонных возбуждений, локализованных в КТ.

Глубина локализации носителей в КТ является определяющей для длины волны их излучения, а также для противодействия тепловому выбросу носителей из КТ. Энергия электрона и дырок в КТ сильно отличается от их энергии в объемном материале, из которого сделана КТ, в первую очередь за счёт существенной деформации, а также за счёт размерного квантования. Углубление локализации носителей позволит добиться смещения частот оптических резонансов в сторону длинных волн. Это важно, например, для использования КТ InGaAs в приборах оптоволоконных линий связи в полосе длин волн 1.55 мкм.

Несмотря на то, что КТ является хорошим источником фотонов с квантовым выходом близким к единице, дипольный момент КТ, определяющий их взаимодействие со светом, не слишком велик. Время излучательной рекомбинации экситонов, локализованных в КТ, велико и может достигать 1 нс [Salewski, 2017], что является лимитирующим фактором для использования КТ в качестве эффективного источника фотонов.

Усиление интенсивности излучения из КТ может быть обеспечено за счёт её помещения в резонаторы, усиливающие электрическое поле, и, вместе с тем, увеличивающие плотность фотонных состояний. Наиболее популярным вариантом является планарный резонатор, который технологически хорошо совместим с процессами роста КТ и может быть произведён в рамках единого технологического процесса МЛЭ либо ГФЭ. Такой же эффект может быть достигнут путем помещения КТ в двух или трёхмерные периодические структуры, в пучность галереи шепчущих мод, либо путем формирования резонаторов Ми [Vahala, 2003].

Альтернативным подходом является использование плазмонного резонанса в металлических наночастицах, который может концентрировать электрическое поле в области локализации экситона. Такой подход был продемонстрирован для коллоидных КТ [Govorov, 2006], но мало изучался в системах эпитаксиальных КТ [Lyamkina, 2014].

Таким образом, несмотря на появление приборов на основе КТ, существует ряд проблем, решение которых позволит улучшить существующие приборы на их основе и откроет путь для создания новых. Одними из наиболее важных направлений исследований являются изучение физических механизмов и способов управления глубиной локализацией и временем жизни носителей заряда, локализованных в КТ. Модельным и практически важным объектом исследования являются самоорганизованные КТ InGaAs, окруженные барьерным слоем GaAs.

Цели работы

Исходя из вышесказанного были сформулированы две цели, достижению которых посвящены вторая и третья главы, соответственно:

- изучение механизмов, ограничивающих глубину локализации носителей в КТ InGaAs, самоорганизованных на подложках GaAs и выращенных в объеме этого материала, а также изучение возможностей усиления локализации за счет изменения размера, формы и окружения таких КТ.
- изучение возможностей управления временем жизни носителей заряда в КТ InGaAs путем создания гибридных структур, в которых КТ InGaAs расположены в непосредственной близости от системы металлических наночастиц.

Для достижения целей были решены следующие задачи:

- Задача теории упругости для определения локальных значений тензора деформации и тензора напряжений в самоорганизованных КТ InGaAs, сформированных на подложках GaAs и окруженных барьерным слоем.
- Создание численной модели электронов и дырок в КТ с локализирующим потенциалом учитывающим пространственное распределение In и упругих деформаций.
- Изучение влияния формы пирамидальной КТ на глубину локализации носителей заряда.
- Анализ механизмов, увеличивающих локализацию носителей в структурах типа точка в яме (dot in a well -- DWELL), в которых КТ InAs помещена в квантовую яму InGaAs.
- Создание модели КТ InGaAs на основе экспериментально-определенных формы, размера и пространственного распределения химического состава. Верификация такой модели путем сравнения результатов модельных расчетов с результатами экспериментальных исследований спектров фотолюминесценции из этих КТ.
- Исследование изменения оптических свойств КТ InGaAs в матрице GaAs при выращивании её слоем GaAs, выращенным при пониженной температуре, в котором формируется система плазмонных наночастиц As.
- Исследование изменения оптических свойств КТ InGaAs в матрице AlGaAs при формировании массива плазмонных наночастиц Ag на поверхности в непосредственной близости от КТ.

Научная новизна

1. Впервые показано, что для самоорганизованной пирамидальной КТ InAs существует оптимальное отношение высоты пирамиды к ее основанию, обеспечивающее наибольшую глубину локализации носителей заряда и наиболее сильный красный сдвиг излучения экситонов из КТ.
2. Впервые показано, что усиление локализации носителей заряда в DWELL InGaAs происходит в результате совместного действия *трех* механизмов. Этими механизмами являются увеличение объема КТ, изменение ее формы и перераспределение компонент тензора деформаций. Получены предельные параметры локализации носителей заряда в таких DWELL, при которых обеспечивается когерентность эпитаксиальных интерфейсов.
3. Впервые проведено моделирование КТ InGaAs для которой, размер, форма и пространственное распределение индия определены экспериментально с высоким разрешением. Продемонстрировано хорошее согласие результатов расчета с экспериментальными спектрами фотолюминесценции из таких КТ. Показано, что основное состояние дырок в такой КТ имеет необычную пространственную симметрию.
4. Впервые проведены исследования оптических свойств гибридных структур, в которых КТ InGaAs отделены туннельно-тонким барьером от эпитаксиального слоя нестехиометрического GaAs, содержащего плазмонные наночастицы As.
5. Впервые проведены исследования оптических свойств гибридных структур, в которых КТ InGaAs находятся вблизи поверхности, на которой сформирован слой плазмонных наночастиц Ag.

Практическая значимость

Квантовые точки InGaAs, получаемые с помощью самоорганизации по механизму Странского-Крастанова методом МЛЭ, являются важной составной частью современных электронных, оптоэлектронных и фотонных приборов, как выпускаемых промышленностью, так и находящихся на стадии разработки. Результаты исследований, приведенные в диссертации, показывают возможности управления электронной структурой и свойствами КТ InGaAs. Возможности управления глубиной локализации носителей и их временем жизни в КТ имеют ключевое значение как для совершенствования существующих приборов, так и для разработки новых.

Методы исследования

Экспериментальные исследования стационарной фотолюминесценции и других оптических свойств были проведены при помощи стандартных современных методик на оптических установках при комнатной температуре, температуре

жидкого азота либо жидкого гелия. Измерения спектров фотолюминесценции с временным разрешением проводились при помощи стрик-камеры.

Задачи линейной теории упругости и квантовой механики были решены численно, методом конечных разностей с использованием наиболее надежно установленных параметров материалов.

Положения, выносимые на защиту

1. В пирамидальных квантовых точках зависимость глубины локализации носителей заряда от отношения высоты к основанию имеет экстремум, обусловленный влиянием на локализирующий потенциал гидростатической, девиаторной и сдвиговой компоненты тензора упругой деформации, а также эффектом размерного квантования. В системе пирамидальных квантовых точек InAs в GaAs минимальная энергия электронно-дырочных пар достигается при отношении высоты к основанию ≈ 0.2 .
2. Квантовые точки InAs, помещённые в квантовую яму InGaAs, обладают большей глубиной локализации носителей по сравнению с аналогичными квантовыми точками в объеме GaAs благодаря совместному действию трёх механизмов: увеличению объема квантовой точки, перераспределению упругих деформаций, и изменению отношения длины основания пирамидальной квантовой точки к её высоте. Требование когерентности интерфейсов ограничивает предельную глубину локализации.
3. В гибридных структурах, содержащих квантовые точки InGaAs и металлические наночастицы, время жизни локализованных в квантовой точке электронов и дырок определяется структурой разделительного барьера и разностью потенциалов между элементами структуры. В структурах с разделительным барьером GaAs толщиной около 5 нм основным механизмом передачи энергии между квантовыми точками и наночастицами является туннелирование.

Достоверность

Экспериментальные результаты, представленные в работе, были получены с помощью современных методик и оборудования. Результаты исследований обладают воспроизводимостью. Сравнение с литературными данными других авторов показало хорошее согласие. Анализ экспериментальных данных проведен на основе численного моделирования с учетом реальной структуры и параметров материалов. Результаты модельных расчетов электронной структуры основного состояния КТ InGaAs сравнивались как с экспериментальными данными, так и с расчетными данными других авторов. Во всех случаях установлено хорошее

качественное и количественное согласие. Для разработки моделей использовались данные об атомной структуре самих КТ и микроструктуре содержащих их образцов.

Апробация работы

Основные результаты работы были доложены на 26 российских и международных конференциях:

ФизикаА (Санкт-Петербург, 2015); Симпозиум “Наука и инновации в технических университетах” (Санкт-Петербург, 2015); Неделя науки СПбПУ (Санкт-Петербург, 2015); XX симпозиум «Нанопластика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 2016); Materials Research Society Fall Meeting (Boston, Massachusetts, USA, 2016); 4th International Symposium «Optics & its Applications» (Yerevan-Ashtarak, Armenia, 2016); ФизикаА (Санкт-Петербург, 2016); 3th International School and Conference "Saint-Petersburg OPEN 2016" (Санкт-Петербург, 2016); Неделя науки СПбПУ (Санкт-Петербург, 2016); Международная зимняя школа по физике полупроводников (Санкт-Петербург, 2017); 4th International School and Conference "Saint-Petersburg OPEN 2017" (Санкт-Петербург, 2017); XIII Российская конференция по физике полупроводников (Екатеринбург, 2017); Всероссийский форум студентов, аспирантов и молодых ученых «Наука и инновации в технических университетах» (Санкт-Петербург, 2017); Неделя науки СПбПУ (Санкт-Петербург, 2017); Зимняя школа по физике полупроводников (Санкт-Петербург, 2017); The 38th PIERS in St Petersburg (Санкт-Петербург, 2017); MRS Fall Meeting & Exhibit (Boston, Massachusetts, USA, 2017); SPIE Photonics West (San Francisco, USA, 2018); Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors – NOEKS 14 (Berlin, Germany, 2018); Фундаментальные проблемы оптики (Санкт-Петербург, 2018); Наука и инновации в технических университетах (Санкт-Петербург, 2018); Неделя науки СПбПУ (Санкт-Петербург, 2018); Deutsche Physikalische Gesellschaft 2019 (Regensburg, Germany, 2019); The 11th International Conference on Quantum Dots (Munich, Germany, 2020); Симпозиум «Нанопластика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 2021); Низкоразмерный семинар, ФТИ им. А.Ф.Иоффе (Санкт-Петербург, 2021).

Личный вклад автора

Вклад соискателя в экспериментальную часть работы состоял в проведении оптических измерений, дизайне и сборке соответствующих оптических установок и анализе полученных данных. Разработка математических модели для проведения численного эксперимента проводилась автором самостоятельно с использованием наработок коллег. Постановка задач и интерпретация полученных данных проводилась совместно с научным руководителем.

Публикации автора по теме диссертации

Основные результаты работы изложены в 10 статьях, опубликованных в научных изданиях, индексируемых Scopus, Web of Science и РИНЦ.

- A1. Experimentally-Verified Modeling of InGaAs Quantum Dots / A. Kosarev, V. V. Chaldyshev, N. Cherkashin //Nanomaterials. – 2022. – Т. 12. – №. 12. – С. 1967. DOI: 10.3390/nano12121967
- A2. Carrier Localization by a Quantum Dot in a Quantum Well / A.N. Kosarev, V.V. Chaldyshev //Physical Review Applied. – 2021. – Т. 16. – №. 4. – С. 044046. DOI: 10.1103/PhysRevApplied.16.044046
- A3. Charge carrier localization in InAs self-organized quantum dots /A. N. Kosarev, V.V. Chaldyshev //Pisma v Zhurnal Tekhnicheskoi Fiziki. – 2021. – Т. 47. – №. 23. – С. 51-54. DOI: 10.21883/PJTF.2021.23.51786.19006
- A4. Carrier localization in self-organized quantum dots: An interplay between quantum and solid mechanics / A. Kosarev, V.V. Chaldyshev//Applied Physics Letters. – 2020. – Т. 117. – №. 20. – С. 202103. DOI: 10.1063/5.0032110
- A5. Accurate photon echo timing by optical freezing of exciton dephasing and rephasing in quantum dots / A.N. Kosarev, H. Rose, S.V. Poltavtsev, M. Reichelt, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, M. Bayer, T. Meier & I. A. Akimov //Communications Physics. – 2020. – Т. 3. – №. 1. – С. 1-9. DOI: 10.1038/s42005-020-00491-2
- A6. Photoluminescence from InAs Quantum Dots Buried Under Low-Temperature-Grown GaAs /A. Kosarev, N. Bert, V. Nevedomskii, V. Chaldyshev, V. Preobrazhenskii, M. Putyato, B. Semyagin //Physica Status Solidi (b). – 2019. – Т. 256. – №. 5. – С. 1800479. DOI: 10.1002/pssb.201800479
- A7. Fabrication and characterization of coupled ensembles of epitaxial quantum dots and metal nanoparticles supporting localized surface plasmons /A. Kosarev, V. Chaldyshev, N. Toropov, I. Gladskikh, P. Gladskikh, K.Baryshnikova, V. Preobrazhenskiy, M. Putyato, B. Semyagin, T. Vartanyan //Plasmonics: Design, Materials, Fabrication, Characterization, and Applications XV. – SPIE, 2017. – Т. 10346. – С. 48-53. DOI: 10.1117/12.2272994
- A8. Absorption and photoluminescence of epitaxial quantum dots in the near field of silver nanostructures/ N. A. Toropov, I. A. Gladskikh, P. V. Gladskikh, A. N. Kosarev, V. V. Preobrazhenskii, M. A. Putyato, B. R. Semyagin, V. V. Chaldyshev, and T. A. Vartanyan //Journal of Optical Technology. – 2017. – Т. 84. – №. 7. – С. 459-461. DOI: 10.1364/JOT.84.000459
- A9. Effect of silver nanoparticles on excitons in InAs epitaxial quantum dots/ Toropov N.A., Gladskikh P.V., Gladskikh I.A., Preobrazhenskiy V.V., Putyato M.A., Semyagin B.R., Kosarev A., Kondikov A.A., Chaldyshev V.V., Vartanyan T.A. //Журнал прикладной спектроскопии. – 2016. – Т. 83. – №. 6-16. – С. 170-171.

- A10. Effect of a low-temperature-grown GaAs layer on InAs quantum-dot photoluminescence / A.N. Kosarev, V. V. Chaldyshev, V. V. Preobrazhenskii, M. A. Putyato & B. R. Semyagin //Semiconductors. – 2016. – Т. 50. – №. 11. – С. 1499-1505. DOI: 10.1134/S1063782616110154

Содержание работы

Во **введении** обосновывается актуальность темы и указываются основные проблемы в исследуемой области, исходя из этого формулируются цели работы и задачи, необходимые для достижения целей. Излагается научная новизна исследуемой темы и её практическая значимость, методы исследования и положения, выносимые на защиту. В завершении введения обосновывается достоверность результатов, приводится список конференций и семинаров, где работа была апробирована и описывается личный вклад автора в представленную работу. В заключение приводится список публикаций автора по теме диссертации.

Первая глава посвящена обзору литературы. Объясняется актуальность полупроводниковых группы A_3B_5 и преимущества использования структур пониженной размерности, что приводит нас к КТ на основе соединений A_3B_5 . После короткого экскурса в историю исследований эпитаксиально выращенных КТ на основе системы InGaAs, описываются перспективные методы применения таких систем, в частности в качестве активных сред для таких приборов как лазеры, детекторы или солнечные панели. Помимо этого, описывается и потенциальное применение КТ для квантовых технологий, такое как генерация запутанных фотонов.

Затем излагаются методы формирования наноструктур, в частности способы самоорганизации КТ в режимах Фольмера-Вэбера и Странского-Крастанова. Приводятся данные о кристаллической структуре и огранке КТ, полученных последним методом.

В следующем подразделе обсуждается локализация носителей внутри КТ, основные вклады в локализуемый потенциал, а также описываются наиболее известные работы, посвященные моделированию состояний электронов и дырок, локализованных в КТ.

В заключительном разделе повествуется о гибридизации экситонов и плазмонных возбуждений за счёт их взаимодействия в ближнем поле. Приводятся примеры таких структур на примере близкорасположенных КТ InGaAs и наночастиц As, полученных в рамках единого процесса МЛЭ.

Исходя из вышеизложенного формулируются актуальные нерешённые проблемы, которым посвящается эта работа.

Во второй главе представлены результаты моделирования квантовых состояний, локализованных в КТ InGaAs электронов и дырок в одночастичном приближении. Определяющим фактором здесь является форма локализующего потенциала. Для электронов и дырок, он определяется геометрией, химическим составом и встроенным полем механических напряжений-деформаций.

Работа проводилась на основе численной модели, которая использовалась во всех трёх подразделах этой главы. Описание модели и использовавшихся параметров материалов находится в разделе Методы. На основе заданного пространственного распределения индия в $\text{In}_c\text{Ga}_{1-c}\text{As}$ методом конечных разностей была решена система уравнений равновесия и уравнений обобщённого закона Гука в тензорной форме, учитывающая анизотропию кристаллического материала. Таким образом было определено распределение упругих полей внутри ячейки, для которой проводился расчёт. Исходя из пространственного распределения состава и полей упругих деформаций были определены локализующие потенциалы для электронов и тяжелых дырок, которые были использованы для решения стационарного уравнения Шрёдингера. Мы не рассматривали лёгкие дырки, так как из-за меньшего локализующего потенциала и меньшей эффективной массы они слабо локализованы.

В первом разделе главы показано, что изменение соотношения высоты к длине основания КТ, помещённой в объем полупроводника, приводит к существенному перераспределению компонент механического поля, что, в свою очередь, создает некоторые нетривиальные условия для максимально сильной локализации носителей в любом заданном объеме квантовой точки. Мы варьировали отношение высоты H и к длине основания L при фиксированном объеме КТ и определяли энергию носителей в зависимости от отношения сторон H/L .

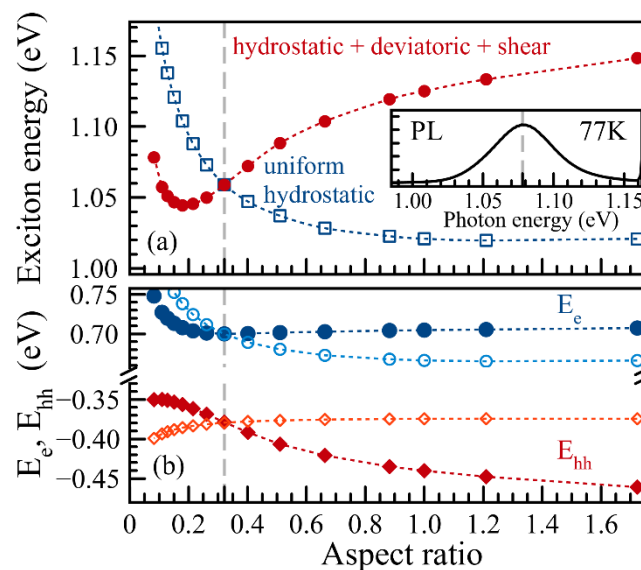


Рис. 1. (а) энергия экситона в зависимости от соотношения сторон КТ H/L . Красные точки соответствуют представленной модели, синие квадраты – изотропной

гидростатической деформации. На вставке спектр ФЛ, записанный при температуре 77К; (b) энергии основных состояний электронов (синие точки) и дырок (красные ромбы), рассчитанные при помощи рассматриваемой модели. Для сравнения незаполненные значки показывают аналогичные зависимости в приближении изотропной гидростатической деформации.

Результаты расчётов представлены на рис. 1 (b), где показано изменение энергий электронов (синие закрашенные точки) и дырок (красные закрашенные ромбы) в зависимости от отношения сторон H/L . Основное состояние электрона имеет хорошо выраженный энергетический минимум, когда $H/L \approx 0.2$. Его энергия быстро растёт при меньших значениях соотношения сторон из-за более сильного квантования в направлении z . Относительно медленное увеличение энергии при увеличении H/L происходит из-за роста гидростатической компоненты деформации. Влияние размерного квантования на энергию основного состояния тяжелых дырок намного слабее, чем на энергию электронов, т.к. у первых значительно большая эффективная масса. Энергия основного состояния тяжелых дырок увеличивается с уменьшением H/L в результате перераспределения упругой энергии из гидростатической в девиаторную за счёт увеличения расщепления тяжелых и лёгких дырок.

Энергию экситона можно увидеть на рис. 1 (a), где она изображена красными ромбами. Она соответствует наблюдаемому оптическому переходу и состоит из энергии электрона, энергии дырки (показаны на рис. 1 (b)) и энергии их связи, которую мы полагаем равной 20 мэВ и в первом приближении не зависящей от формы КТ. Энергия экситона имеет ярко выраженный минимум вблизи $H/L \approx 0.2$, что соответствует максимально возможной локализации как электронов, так и тяжелых дырок. Дополнительная энергия локализации, которую можно получить, варьируя форму КТ, превышает 0.1 эВ.

Серая вертикальная пунктирная линия на рис. 1 отмечает $H/L \approx 0.32$, соответствующему форме референтной КТ InGaAs, экспериментально исследованной в [Cherkashin, 2013]. На вставке рис. 1 (a) показан экспериментальный спектр фотолюминесценции (ФЛ), измеренный при 77 К. Таким образом, результаты модельных расчетов хорошо согласуются с данными просвечивающей электронной микроскопии и экспериментальных оптических исследований.

Для лучшего понимания обнаруженного явления были проведены дополнительные модельные расчеты виртуальных КТ с использованием только однородного поля гидростатической деформации. Величина деформации была скорректирована для получения той же энергии экситона, что и для эталонной КТ при $H/L \approx 0.32$. Рассчитанные энергии основных состояний электрона и тяжелой дырки показаны на рис. 1 не закрашенными кружками и ромбами. В этой модели

ни электроны, ни дырки не имеют минимума энергии при какой-либо предпочтительной форме. Сравнение результатов двух модельных расчетов показывает, что подходящее соотношение сторон пирамидальной КТ InGaAs может обеспечить дополнительную энергию локализации носителей заряда за счет создания поля внутренних деформаций с оптимальным распределением энергии между девиаторной и гидростатической компонентами. По сравнению с действием только однородного поля гидростатической деформации, которое может быть реализовано в сферическом нановключении, пирамидальная КТ того же объема с соотношением сторон 0.18 обеспечивает более глубокую локализацию более чем на 0.1 эВ. Уплотнение референтной КТ с сохранением объема до соотношения сторон 0.18 должно дополнительно усилить локализацию на 15 мэВ.

Во втором разделе второй главы исследовалась структура DWELL (dot in a well). Работа была проведена на основе численной модели, аналогичной описанной выше, изменения касались только пространственного распределения индия в КТ и квантовой яме (КЯ) In_cGa_{1-c}As. Здесь мы показали, что самоорганизованная КТ, встроенная в КЯ, может обеспечить более глубокую локализацию носителей относительно обычной КТ благодаря комплексному действию *трех* процессов: увеличения объема КТ, изменения соотношения ширины и высоты КТ и перераспределения деформации, из-за наличия КЯ. Для квантовой точки InAs и квантовой ямы InGaAs мы рассчитали величину усиления локализации за счёт этих трех вкладов и определяем оптимальную конфигурацию точки в яме, сохраняющую когерентность интерфейсов.

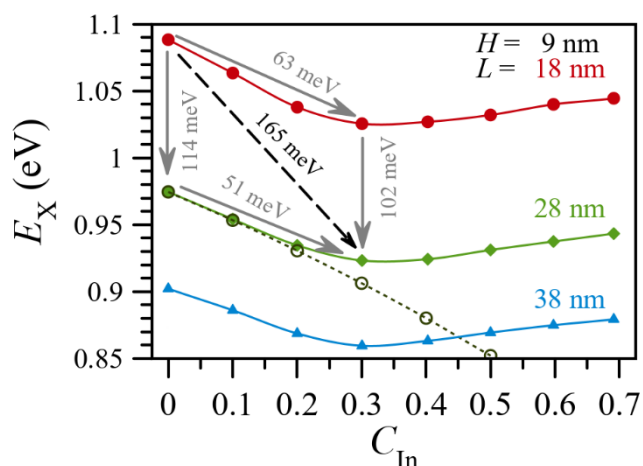


Рис. 2. Энергия экситона, локализованного в КТ InGaAs в зависимости от концентрации In в КЯ. При этом высота КТ всегда составляла 9 нм, в то время как длина основания была 18, 28 или 38 нм, что соответствует красным кружкам, зелёным ромбам или синим треугольникам. Серые кружки соответствуют КЯ с высотой 9 нм, в то время как высота других КЯ варьировалась в зависимости от состава, чтобы сохранять бездислокационную структуру.

На рис. 2 представлены результаты квантово-механических расчетов энергий основного состояния экситона, локализованного в DWELL, имеющих следующие параметры. Высота КТ InAs 9 нм, основание 18 (красные кружки), 28 (зеленые ромбы) или 38 нм (синие треугольники). Концентрация индия в КЯ изменяется по горизонтальной оси от 0 (случай КТ в объеме GaAs) до 0.7. Толщина КЯ h для каждого C_{In} принимается равной критическому значению, ограничивающему когерентность интерфейса, согласно формуле Мэтьюза-Блейкли [Matthews, 1974]. Для большей наглядности мы также проводим расчеты для КТ InAs с основанием 28 нм и высотой 9 нм, которая полностью покрыта КЯ, так что термодинамический предел когерентности интерфейса не учитывается. Результаты таких расчетов нанесены серыми кружками, соединенными пунктирными линиями.

Из рис. 2 следует, что локализация как электронов, так и дырок в КТ становится глубже с ростом C_{In} в КЯ за счет большей модификации поля деформаций. Однако требование когерентности интерфейса КЯ ограничивает толщину её при больших концентрациях индия C_{In} , так что такие КЯ должны быть тонкими и КТ находится в основном вне слоя, где поле деформации модифицируется при помощи КЯ. Исходя из графиков на рис. 2 мы видим, что наибольшая локализация достигается при формировании КЯ с параметрами $C_{In} = 0.3$, $h = 3.85$ нм вне зависимости от длины основания. Стоит отметить, что этот набор параметров КЯ был экспериментально найден как наиболее эффективная конфигурация DWELL в работах [Ustinov, 1999; Nishi, 1999; Niu, 2001; Liu, 2000; Tatebayashi, 2001].

Требования когерентности интерфейса накладывают сильное ограничение на состав и геометрию КТ и КЯ. Он устанавливает предел улучшения локализации носителей в DWELL по сравнению с обычной КТ. Наибольшее красное смещение экситонного излучения пирамидальной КТ InGaAs высотой $H = 9$ нм без нарушения когерентности интерфейса показано на рис. 2 штриховой стрелкой и составляет 165 мэВ. Видно, что модификация деформаций в КТ упругим полем КЯ может приводить к увеличению локализации на $(51 \div 63)$ мэВ. Мы разделили вклады в изменение энергии экситона от изменения объема КТ и изменения отношения высоты к основанию пирамиды, варьируя отношение высоты к основанию при постоянном объеме. При их общем вкладе в энергию локализации ≈ 114 мэВ, вклады за счет изменения объема и формы оказываются равными ≈ 78 и 36 мэВ, соответственно, при увеличении длины основания L с 18 до 28 нм в процессе осаждения КЯ InGaAs. Наличие КЯ добавляет в энергию локализации ≈ 51 мэВ из-за перераспределения поля деформаций, а общее усиление локализации экситона достигает 165 мэВ. Это значение находится в очень хорошем количественном соответствии с лучшими экспериментальными достижениями [Ustinov, 1999; Nishi, 1999].

В третьем разделе второй главы описывается модель эпитаксиальной самоорганизованной КТ InGaAs в объеме GaAs, которая учитывает

экспериментально определенное распределение индия внутри КТ, ее геометрию и кристаллографию. Для определения поля напряжений и деформаций решалась задача упругой механики на основе экспериментально определённого пространственного распределения состава КТ [Cherkashin, 2013]. На той же конечно-разностной сетке решалась задача квантовой механики, которая определяла параметры основного состояния электрона и дырки. Результаты моделирования хорошо согласуются с экспериментально полученными спектрами оптического излучения КТ, того же образца на котором проводились микроскопические исследования.

На основе полей упругой деформации, полученных решением задачи упругой механики были определены локализирующие потенциалы, изображенные на рис. 3 в сечении плоскостью, проходящей через ось симметрии КТ. Для электронов наиболее глубокий потенциал находится вблизи граней в их середине и в верхней части объема КТ. Для дырок локализирующий потенциал еще больше сконцентрирован вблизи граней КТ.

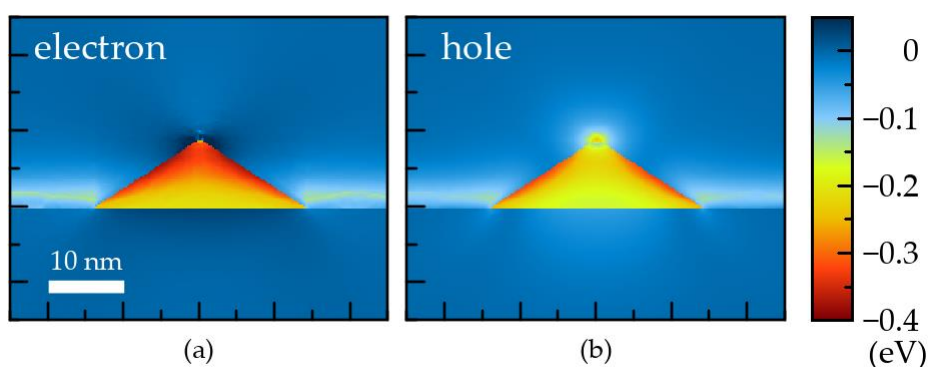


Рис. 3. Локализирующие потенциалы для (a) электронов и (b) дырок. Сечение референтной КТ InGaAs сделано плоскостью ZY, проходящей через ось симметрии пирамиды.

Полученные в результате моделирования эпитаксиальных самоорганизованных КТ InGaAs энергии оптического излучения хорошо согласуются с экспериментальными спектрами для того же образца. Используемая модель, будучи количественно точной в расчетах энергии основного состояния электрона и дырки, предсказывает необычную бубликоподобную форму волновой функции дырки. Это должно приводить к уменьшению электронно-дырочного интеграла и изменению оптических и магнитных свойств таких КТ.

В третьей главе изучалось изменение оптических свойств КТ InGaAs, при формировании в непосредственной близости от них системы металлических наночастиц.

Первый раздел посвящен КТ InGaAs, выращенным слоем GaAs при пониженной температуре (LT – low temperature). При дальнейшем отжиге такой материал позволяет сформировать массив наночастиц As, находящихся в ближнем поле КТ.

Было проведено оптическое и структурное исследование системы КТ InGaAs, выращенных слоем LT-GaAs, с различными буферными слоями между ними. Было показано, что наличие и состав буфера очень важны как для когерентности атомной структуры, так и для электронных процессов и оптических свойств КТ. Прямое заращивание при низкой температуре вызывает образование дислокаций несоответствия и связанное с этим падение интенсивности ФЛ из КТ InGaAs. Формирование дефектов устраняется при использовании либо буферного слоя GaAs толщиной 5 нм, либо комбинированного буфера AlAs/GaAs. В случае тонкого GaAs-буфера экспериментально обнаружены сильные изменения интенсивности и формы линии ФЛ из КТ. Эти изменения количественно описываются при учете туннелирования электронов, локализованных в КТ InGaAs, через барьер GaAs в континуум состояний в LT-GaAs.

Когда часть буфера GaAs толщиной 2.5 нм заменяется на AlAs, барьер становится непрозрачным для туннелирования электронов из основных состояний электронов КТ InGaAs. В результате ФЛ КТ становится значительно сильнее, а форма линии становится похожей на форму линии от референтного образца, содержащего только КТ InGaAs.

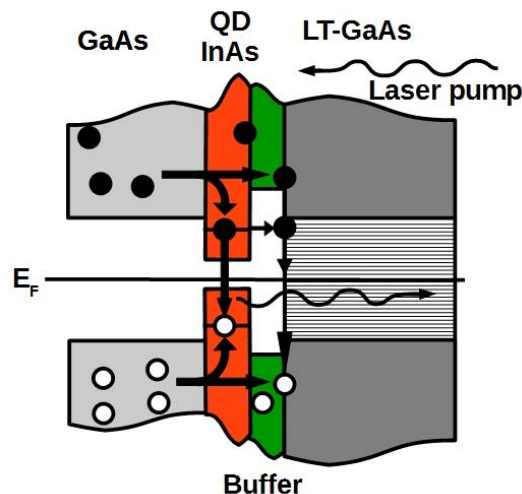


Рис. 4. Схематическая иллюстрация процессов, связанных с ФЛ в изучаемых образцах;

Для анализа изменения оптических свойств была разработана модель, описывающая процессы, протекающие при возбуждении ФЛ из изучаемых образцов. Зависимость времени туннелирования от глубины локализации носителей в КТ была определена как произведение полуклассического периода электрона в КТ и обратной туннельной прозрачности барьера:

$$\tau_t(E_{e,h}) = T \exp \left[2 \frac{a}{\hbar} \sqrt{2m_{e,h}(U_{e,h} - E_{e,h})} \right] \quad (1)$$

где $E_{e,h}$ и $m_{e,h}$ — энергия и эффективная масса электрона (дырки), а $U_{e,h}$ — ширина и высота барьера.

На рис. 5 показан результат деления спектров ФЛ для образцов (BP2251/BP2252), в первом образце туннелирование возможно, а во втором слой AlAs делает его невозможным. Это позволяет определить функцию, которая модулирует спектр КТ, где туннелирование не происходит. Аналогично, отношение спектров ФЛ (BP2251/BP1857) показывает изменение спектра ФЛ относительно образца, где КТ InGaAs выращены GaAs при нормальной температуре и туннелирования из них не происходит. Полученные отношения хорошо аппроксимируются аналитической моделью, полученные подгоночные параметры хорошо согласуются с параметрами системы. Вставка рис. 5 показывает, спектры из образца, где туннелирование отсутствует (синяя линия), а также образца, где туннелирование существенно изменяет форму спектра ФЛ (черная линия). Модификация спектра образца, где туннелирование не происходит, с использованием формулы (1) продемонстрирована при помощи красной линии, которая хорошо совпадает со спектром ФЛ из образца, в котором наблюдается туннелирование.

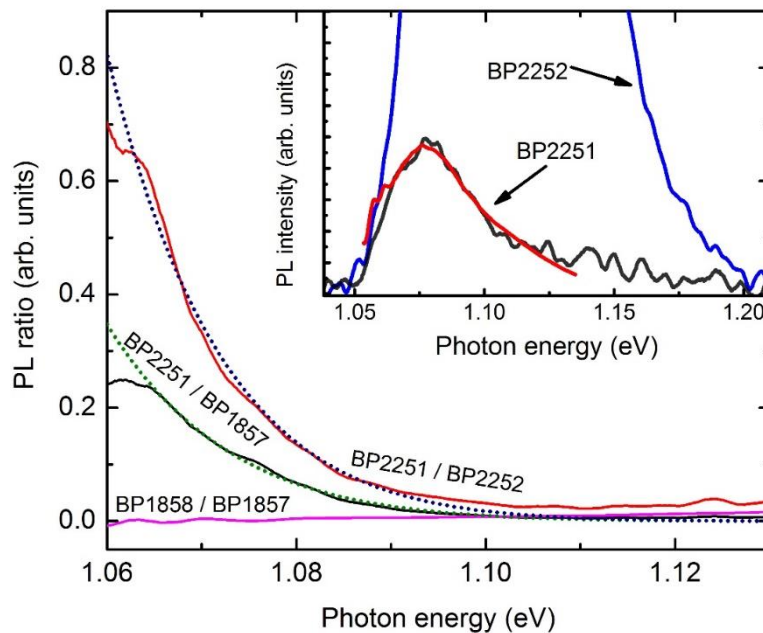


Рис. 5. Соотношения спектров ФЛ образцов с различным буферным слоем между КТ и LT-GaAs. Сплошные линии — экспериментальные; пунктирные линии — модельные расчеты. На вставке показаны экспериментальные спектры ФЛ для образца, где туннелирование не происходит (синяя кривая) и для образца, где туннелирование происходит. Красная кривая предсказывает спектр ФЛ в структуре, где туннелирование происходит.

Таким образом, прямое заращивание при низкой температуре вызвало образование дислокаций несоответствия и связанное с этим падение интенсивности ФЛ из КТ InGaAs. Генерация дефектов подавлялась за счет использования тонких буферных слоев между массивами КТ InGaAs и слоем LT-GaAs. В случае буферного слоя GaAs толщиной 5 нм ФЛ от КТ InGaAs на два порядка слабее, чем в референтном образце и отличается по спектральному

распределению. Когда часть буфера GaAs толщиной 2.5 нм была заменена на AlAs, барьер стал непрозрачным для туннелирования электронов из основных состояний в КТ InGaAs, в результате чего ФЛ КТ стала значительно сильнее, а форма линии близка к форме эталонного образца.

Мы показали, что время жизни неравновесных носителей в КТ InGaAs может быть изменено на два порядка и контролироваться инженерией ширины запрещенной зоны буферного слоя толщиной всего 5 нм.

Во втором разделе третьей главы мы рассматриваем КТ InGaAs, закрытые слоем AlGaAs толщиной 10 либо 20 нм. На поверхности образцов были сформированы наночастицы Ag путем напыления тонкой пленки этого материала и последующего отжига. Толщина напылённого слоя Ag приблизительно равна толщине закрывающего слоя. Структуры изучались при помощи ФЛ при стационарном и импульсном возбуждении. Изучено влияние плазмонных наночастиц Ag на спектры и кинетику изучаемых КТ. Максимумы экстинкции, связанные с плазмонным резонансом в системе наночастиц Ag, и с экситонным резонансом в КТ InGaAs, спектрально совпадают.

В образце с более толстым закрывающим слоем и слоем Ag, было проведено два различных отжига – при температуре 220 °C, либо 250 °C в течение 40 минут. В обоих случаях формирование наночастиц Ag приводило к спектрально-однородному изменению интенсивности ФЛ за счёт экстинкции как оптического возбуждения, так и излучения из КТ. Отжиг при температуре 220 °C не привёл к изменению времени затухания ФЛ, в то время как отжиг при температуре 250 °C привёл к уменьшению времени затухания ФЛ. Это хорошо коррелирует с тем, что более сильный отжиг увеличивает размер наночастиц металла, а также может приводить к его более глубокой диффузии в закрывающий слой.

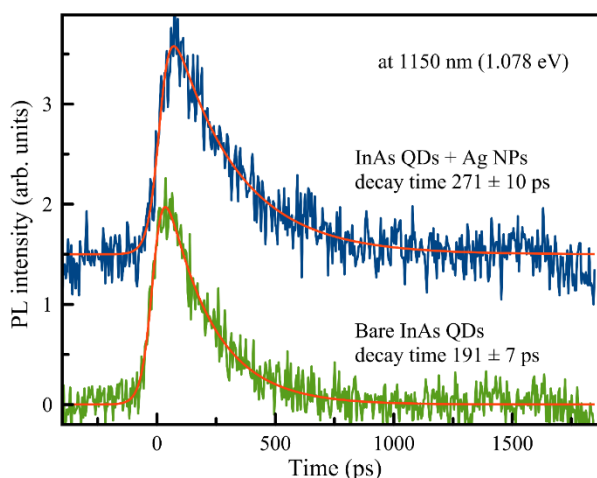


Рис. 6. Фотолуминесценция с временным разрешением, полученная с двух частей образца ВР 2748, покрытых наночастицами Ag и свободным от них.

Напротив, в образце с более тонким закрывающим слоем формирование наночастиц усиливает интенсивность ФЛ, это усиление спектрально неоднородно и при энергии фотона 1.05 эВ интенсивность ФЛ увеличивается в 1.5 раза по сравнению с частью образца, где наночастицы Ag не формировались. На рис. 6 показана динамика интенсивности ФЛ для образца с закрывающим слоем AlGaAs толщиной 10 нм. Так как и времена затухания ФЛ и интегральное количество испущенного света увеличивается при формировании наночастиц Ag, мы не можем связывать это явление с эффектом Парселла. Такое явление возможно за счёт подавления канала безызлучательной рекомбинации экситонов. Основным механизмом рекомбинации в этом случае мы полагаем туннелирование локализованных в КТ электронов на поверхностные состояния, находящиеся в достаточной близости. Формирование на поверхности наночастиц Ag приводит к смещению уровня Ферми [Waddill, 1989], приводящего к уменьшению туннельной прозрачности барьера. Туннельная прозрачность обладает экспоненциальной чувствительностью к величине туннельного барьера, поэтому даже небольшое изменение поверхностного потенциала оказывает значительное влияние на время жизни носителей заряда.

Таким образом, оптические свойства КТ в гибридных структурах, полученных путем совмещения массивов полупроводниковых квантовых точек InGaAs, расположенных в приповерхностном слое, и наночастиц Ag, сформированных на поверхности путём отжига тонкой плёнки, крайне чувствительна к толщине барьера и поверхностному потенциалу. В зависимости от геометрии и туннельной прозрачности разделяющих материалов формирование наночастиц Ag может как усиливать, так и ослаблять безызлучательную рекомбинацию в таких квантовых точках.

В заключении приводятся основные результаты работы:

1. Полная упругая энергия пирамидальной квантовой точки InAs, сформированной на подложке GaAs по механизму Странского-Крастанова, уменьшается, когда она становится более плоской при неизменном объёме. Это означает, что существует термодинамическая движущая сила, которая вызывает соответствующее изменение формы поверхностных квантовых точек в процессе их эпитаксиального зарастивания.
2. Изменение отношения высоты к длине основания пирамидальной квантовой точки InGaAs приводит к перераспределению компонент тензора упругих деформаций. Более плоские квантовые точки обладают меньшей энергией гидростатических деформаций, но большей энергией девиаторных деформаций.
3. Зависимость энергии оптического излучения пирамидальной квантовой точки от соотношения высоты (H) к длине основания (L) при постоянном объёме

обладает минимумом. Наименьшая энергия излучаемых квантовой точкой InGaAs фотонов достигается при $L/H \approx 0.2$.

4. Глубина локализации носителей в квантовой точке InAs при заращивании квантовой ямой InGaAs увеличивается по сравнению с такой же квантовой точкой в объеме GaAs за счёт совместного действия *трёх* механизмов: (1) перераспределение упругих полей, вызванное квантовой ямой; (2) увеличение объема квантовой точки и (3) изменение формы квантовой точки. Получены численные значения этих вкладов. Показано хорошее согласие результатов расчетов с известными экспериментальными данными.
5. Когда объем квантовой точки и толщина квантовой ямы строго ограничены требованиями когерентности интерфейсов, существует предел улучшения локализации экситонов для системы DWELL InAs-GaAs по сравнению с квантовой точкой InGaAs в объеме GaAs. Согласно нашим расчетам, для этой системы он составляет 176 мЭВ.
6. Создана модель квантовой точки InGaAs на основе пространственного распределения In, определённого из электронной микроскопии. Проведены расчеты упругих полей, а также энергий и волновых функций основных состояний электронов и дырок, локализованных в такой квантовой точке. Результаты расчетов в рамках этой модели энергий локализованных электронов и дырок хорошо количественно согласуются с измеренными спектрами фотолюминесценции.
7. Модель, основанная на экспериментально определенном распределении индия внутри квантовой точки InGaAs, предсказывает необычную бубликоподобную форму волновой функции для основного состояния локализованной тяжелой дырки. При этом волновая функция основного состояния локализованного электрона имеет форму колокола.
8. В системе, где квантовые точки находятся в непосредственной близости к GaAs, выращенному при пониженной температуре, разделительный слой между ними имеет решающее значение для интенсивности и формы фотолюминесценции из квантовых точек.
9. Непосредственное заращивание квантовых точек InGaAs слоем GaAs при пониженной температуре роста приводит к формированию дислокаций, приводящему к падению интенсивности фотолюминесценции из квантовых точек. Для предотвращения формирования дислокаций достаточно использовать разделительный слой GaAs толщиной 5 нм, либо комбинацию GaAs и AlAs такой же толщины.
10. Использование тонких разделительных слоёв между квантовыми точками InGaAs и слоем GaAs, выращенным при пониженной температуре, может приводить к туннелированию электронов через такие слои, что приводит к ослаблению интенсивности фотолюминесценции из таких квантовых точек.

11. Туннелированием носителей заряда из квантовых точек InGaAs в близкорасположенный слой GaAs, выращенный при пониженной температуре и обладающий сверхкороткими временами жизни носителей, можно управлять, конструируя разделительный слой между ними. В частности, использование комбинации разделительных слоев GaAs и AlAs суммарной толщиной 5 нм позволяет остановить туннелирование электронов из основного состояния, оставляя возможность туннелирования из возбуждённых состояний в КТ.
12. Оптические свойства КТ в гибридных структурах, полученных путем совмещения массивов полупроводниковых квантовых точек InGaAs, расположенных в приповерхностном слое, и наночастиц Ag, сформированных на поверхности путём отжига тонкой плёнки, крайне чувствительна к толщине и форме барьера, а также поверхностному потенциалу. В зависимости от геометрии и туннельной прозрачности разделяющих материалов формирование наночастиц Ag может как усиливать, так и ослаблять безызлучательную рекомбинацию в таких квантовых точках.

Список литературы

- [Adelmann, 2000] Adelmann C. et al. Self-assembled InGaN quantum dots grown by molecular-beam epitaxy //Applied Physics Letters. – 2000. – Т. 76. – №. 12. – С. 1570-1572.
- [Alferov, 2001] Alferov Z. I. / Nobel Lecture: The double heterostructure concept and its applications in physics, electronics, and technology //Reviews of Modern Physics. – 2001. – Т. 73. – №. 3. – С. 767.
- [Ashoori, 1996] Ashoori R. C. / Electrons in artificial atoms //Nature. – 1996. – Т. 379. – №. 6564. – С. 413-419.
- [Bayer, 2019] Bayer M. Bridging two worlds: colloidal versus epitaxial quantum dots //Annalen der Physik. – 2019. – Т. 531. – №. 6. – С. 1900039.
- [Brunner, 2001] Brunner K. Si/Ge nanostructures //Reports on Progress in Physics. – 2001. – Т. 65. – №. 1. – С. 27.
- [Cherkashin, 2013] Cherkashin N. et al. Determination of stress, strain, and elemental distribution within In (Ga) As quantum dots embedded in GaAs using advanced transmission electron microscopy //Applied Physics Letters. – 2013. – Т. 102. – №. 17. – С. 173115.
- [Eisaman, 2011] Eisaman M. D. et al. / Invited review article: Single-photon sources and detectors //Review of Scientific Instruments. – 2011. – Т. 82. – №. 7. – С. 071101.
- [Ekert, 1992] Ekert A. K. / Quantum Cryptography and Bell's Theorem //Quantum Measurements in Optics. – Springer, Boston, MA, 1992. – С. 413-418.
- [Govorov, 2006] Govorov A. O. et al. Exciton– plasmon interaction and hybrid excitons in semiconductor– metal nanoparticle assemblies //Nano Letters. – 2006. – Т. 6. – №. 5. – С. 984-994.
- [Liu, 2000] Liu H. Y. et al. Structural and optical properties of self-assembled InAs/GaAs quantum dots covered by In_xGa_{1-x}As (0 ≤ x ≤ 0.3) //Journal of Applied Physics. – 2000. – Т. 88. – №. 6. – С. 3392-3395.
- [Lyamkina, 2014] Lyamkina A. A. et al. Exciton-plasmon interaction in hybrid quantum dot/metal cluster structures fabricated by molecular-beam epitaxy //JETP letters. – 2014. – Т. 99. – №. 4. – С. 219-223.
- [Matthews, 1974] Matthews J. W., Blakeslee A. E. Defects in epitaxial multilayers: I. Misfit dislocations //Journal of Crystal growth. – 1974. – Т. 27. – С. 118-125.
- [Motes, 2015] Motes K. R. et al. Linear optical quantum metrology with single photons: exploiting spontaneously generated entanglement to beat the shot-noise limit //Physical Review Letters. – 2015. – Т. 114. – №. 17. – С. 170802.
- [Nishi, 1999] Nishi K. et al. A narrow photoluminescence linewidth of 21 meV at 1.35 μm from strain-reduced InAs quantum dots covered by In_{0.2}Ga_{0.8}As grown on GaAs substrates //Applied Physics Letters. – 1999. – Т. 74. – №. 8. – С. 1111-1113.

- [Niu, 2001] Niu Z. et al. Modification of emission wavelength of self-assembled In (Ga) As/GaAs quantum dots covered by $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($0 \leq x \leq 0.3$) layer //Journal of Crystal Growth. – 2001. – T. 227. – C. 1062-1068.
- [Salewski, 2017] Salewski M. et al. Photon echoes from (In, Ga) As quantum dots embedded in a Tamm-plasmon microcavity //Physical Review B. – 2017. – T. 95. – №. 3. – C. 035312.
- [Sautter, 2020] Sautter K. E., Vallejo K. D., Simmonds P. J. / Strain-driven quantum dot self-assembly by molecular beam epitaxy //Journal of Applied Physics. – 2020. – T. 128. – №. 3. – C. 031101.
- [Tatebayashi, 2001] Tatebayashi J., Nishioka M., Arakawa Y. Over 1.5 μm light emission from InAs quantum dots embedded in InGaAs strain-reducing layer grown by metalorganic chemical vapor deposition //Applied Physics Letters. – 2001. – T. 78. – №. 22. – C. 3469-3471.
- [Ustinov, 1999] Ustinov V. M. et al. InAs/InGaAs quantum dot structures on GaAs substrates emitting at 1.3 μm //Applied Physics Letters. – 1999. – T. 74. – №. 19. – C. 2815-2817.
- [Vahala, 2003] Vahala K. J. Optical microcavities //Nature. – 2003. – T. 424. – №. 6950. – C. 839-846.
- [Waddill, 1989] Waddill G. D. et al. Ag and Co cluster deposition on GaAs (110): Fermi level pinning in the absence of metal-induced gap states and defects //Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics Processing and Phenomena. – 1989. – T. 7. – №. 4. – C. 950-957.