

Сибирмовский Юрий Дмитриевич

**МЕХАНИЗМЫ ФОРМИРОВАНИЯ, ОПТИЧЕСКИЕ И ЭЛЕКТРОННЫЕ
ТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА АНСАМБЛЕЙ КВАНТОВЫХ КОЛЕЦ
GaAs/AlGaAs**

05.27.01 Твёрдотельная электроника, радиоэлектронные компоненты, микро- и
наноэлектроника, приборы на квантовых эффектах

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Автор:



Москва, 2018

Работа выполнена в Федеральном государственном автономном
образовательном учреждении высшего образования
«Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»

Научный руководитель:

Васильевский Иван Сергеевич

кандидат физико-математических наук,
доцент НИЯУ МИФИ

Официальные оппоненты:

Константинова Елизавета Александровна

доктор физико-математических наук,
профессор МГУ им. М.В.Ломоносова

Соловьев Виктор Васильевич

кандидат физико-математических наук,
старший научный сотрудник ИФТТ РАН

Ведущая организация:

**Физический институт им. П.Н. Лебедева
Российской академии наук, г. Москва**

Защита диссертации состоится **11 октября 2017** года в 17 час. 00 мин. на заседа-
нии диссертационного совета Д 212.130.13 при Национальном исследователь-
ском ядерном университете «МИФИ» по адресу:

115409, г. Москва, Каширское шоссе, д.31.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ и на сайте:

<http://ods.mephi.ru>

Автореферат разослан _____.

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв в двух
экземплярах, заверенных печатью организации, по адресу НИЯУ МИФИ.

Ученый секретарь диссертационного совета,



К.Т.Н., доцент

Д.С. Веселов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы

Одним из направлений развития современной электроники является переход к квази-нульмерным (0D) наноструктурам, таким как квантовые точки и квантовые кольца – нанокристаллы, локализующие носители заряда во всех направлениях.

Возможность управления спектральными характеристиками (за счет изменения размеров наноструктур) и стабильность электронных и оптических свойств при увеличении температуры обеспечивают перспективность применения слоев квантовых точек и колец в качестве активной зоны лазеров и фотодетекторов.

Фотодетекторы на квантовых точках обладают рядом преимуществ (по сравнению с фотодетекторами на квантовых ямах и другими типами): широкий спектральный диапазон, меньший темновой ток, большее отношение сигнал/шум, возможность внутризонного поглощения нормально падающего света. Все это позволяет добиться большего КПД таких устройств.

Квантовые точки могут использоваться для создания однопереходных солнечных батарей с промежуточной зоной с теоретическим КПД до 63%, которые способны конкурировать с более сложными многокаскадными батареями. Также в квантовых точках наблюдается мультискитонное поглощение, способное обеспечить внешнюю квантовую эффективность более 100%.

Кроме того, упорядоченные массивы квантовых точек, квантовых колец и других нанокристаллов сложной формы могут стать основой для квантовых компьютеров.

Чувствительность квантовых колец к магнитному полю (в частности, эффект Ааронова-Бома) дают возможность создавать устройства спинтроники на обычных полупроводниках, без использования специальных магнитных материалов и магнитных примесей. А проявление в квантовых кольцах так называемого оптического эффекта Ааронова-Бома позволяет также комбинировать магнитные и оптические принципы функционирования прибора. Тем не менее, низкоразмерные системы с массивами квантовых колец являются еще мало изученными, в частности, отсутствуют аналитические модели, описывающие взаимосвязь параметров получаемого ансамбля и условий формирования, не исследованы транспортные свойства таких систем, что важно как с фундаментальной, так и с практической точек зрения.

Наиболее перспективные методы получения ансамблей квантовых колец связаны с явлением самоорганизации, приводящим к одновременному возникновению на поверхности массива наноструктур. При этом, метод капельной эпитаксии, используемый в данной работе, предоставляет наиболее широкие возможности по выбору материалов и управлению параметрами ансамбля.

В качестве подложки и основного материала квантовых колец выбран арсенид галлия, как наиболее широко используемый полупроводник $A^{III}B^V$ в области оптоэлектроники и СВЧ-электроники, который, как будет показано далее, позволяет реализовать все преимущества метода капельной эпитаксии.

Для обеспечения надежности приборов опто- и наноэлектроники на основе квантовых колец, необходимо выявить физические процессы и основные закономерности влияния условий эпитаксиального роста на морфологию ансамблей КК, а также влияние формы на их оптические и электронные транспортные свойства.

Цель и задачи работы

Цель работы: экспериментальное и теоретическое исследование механизмов формирования массивов квантовых колец в процессе капельной молекулярно-лучевой эпитаксии, а также особенностей оптических и электронных транспортных свойств структур на их основе.

Для достижения поставленной цели поставлены следующие задачи.

1. Исследование влияния параметров ростового процесса и состава на форму, размеры, поверхностную плотность ансамбля наноструктур.
2. Разработка физической модели формирования ансамблей квантовых колец методом капельной эпитаксии с учетом диффузионных процессов.
3. Аналитическое и численное моделирование энергетического спектра и оптических переходов в квантовых кольцах различной формы, в т.ч. с учетом размытия границ и анизотропии формы.
4. Экспериментальное исследование особенностей спектра фотолюминесценции массивов квантовых колец различной формы и размеров.
5. Исследование электронных транспортных свойств гибридных наноструктур со слоями квантовых колец и квантовой ямой.

Научная новизна работы

1. Предложена аналитическая диффузионная модель процесса капельной эпитаксии, единым образом объясняющая формирование одиночных и двойных квантовых колец, нанодисков и нанократеров в зависимости от термодинамических параметров роста.
2. Впервые получен ансамбль асимметричных парных квантовых точек GaAs/AlGaAs в процессе миграционно-усиленной эпитаксии и обоснован механизм их формирования.
3. Впервые показано, что In выступает как катализатор поверхностной диффузии адатомов Ga при формировании ансамбля КК: добавление всего 5% In резко усиливает поверхностную диффузию всей системы адатомов In_xGa_{1-x} , что выражается в резком уменьшении поверхностной плотности КК.

4. Обнаружена и объяснена аномальная зависимость интенсивности и полуширины основной линии фотолюминесценции ансамблей КК GaAs от температуры в диапазоне 20-60 К.

5. Разработан спектральный метод расчета уровней энергии и волновых функций носителей заряда для наноструктур произвольной формы в электрическом и магнитном полях, учитывающий диффузионное размытие гетерограниц, анизотропию формы и непараболичность энергетического спектра и впервые исследованы его сходимость и устойчивость.

6. Впервые исследованы электронные транспортные свойства НЕМТ гетероструктур с гибридной системой, содержащей квантовую яму и слой квантовых колец GaAs/AlGaAs, и непосредственно зарегистрирован эффект Ааронова-Бома при протекании тока вдоль данной структуры.

Теоретическая и практическая значимость работы

Практический эффект от результатов работы заключается в возможности проектировать приборы опто- и нанoeлектроники на основе 0D наноструктур сложной формы, с тонким управлением спектральными и иными характеристиками за счет изменения размеров, формы, состава и поверхностной плотности ансамблей наноструктур независимо и в широких пределах. В отличие от обычно используемого метода Странски-Крастанова, данный способ может обеспечить формирование нескольких различных нанокристаллов в одном слое (одиночные и двойные квантовые кольца, парные квантовые точки и т.д.), что может стать основой наноразмерной схемотехники для квантовых вычислений. Получение ненапряженных ансамблей квантовых точек и квантовых колец обеспечит улучшение оптических свойств таких гетероструктур, за счет отсутствия пьезопотенциала и дислокаций несоответствия.

С фундаментальной точки зрения, метод позволяет изучать процессы диффузии адатомов по поверхности полупроводника и оценивать соответствующие энергетические барьеры, а также с высокой точностью исследовать кинетику наноразмерных кластеров металлов и их ансамблей на поверхности. Кроме того, электронные, магнитные и оптические свойства квантовых колец и других наноструктур нетривиальной геометрии обеспечит новые фундаментальные результаты в области квантовой механики и физики конденсированного состояния.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Аналитическая модель формирования квантовых колец в процессе капельной эпитаксии. Ключевую роль в формировании квантовых колец играют процессы восходящей и нисходящей диффузии атомов Ga и As, а также адсорбции-десорбции мышьяка. Для концентрических квантовых колец радиус внешнего кольца возрастает с ростом температуры подложки и уменьшается с ростом давления As_4 , тогда как радиус внутреннего кольца определяется размером наноклапты Ga.

2. Аномальная зависимость интенсивности и полуширины линии фотолюминесценции ансамблей квантовых колец GaAs/Al_yGa_{1-y}As от температуры (рост интенсивности и уменьшение полуширины при увеличении температуры от 20 до 70 К) вызвана зависимостью термоактивации и туннелирования носителей заряда от размеров КК и дисперсией размеров ансамбля КК.

3. Усовершенствованный спектральный метод расчета квантовых уровней энергии и волновых функций носителей заряда в квантовых кольцах различной формы, находящихся в электрическом и магнитном полях, с учетом диффузионного размытия гетерограниц и анизотропии формы. Предложены критерии сходимости метода на основе использования вариационного принципа.

4. В квантовых наноструктурах AlGaAs/GaAs/AlGaAs с дельта-легированием кремнием при добавлении массива квантовых колец GaAs на верхнюю гетерограницу AlGaAs/GaAs обнаружен фотоиндуцированный переход диэлектрик-металл при толщине двумерного слоя GaAs 6 нм, обусловленный сильной латеральной флуктуацией потенциала составной квантовой ямы и сильной локализацией электронов.

Достоверность научных положений, результатов и выводов

Достоверность научных результатов обусловлена применением общепризнанных современных экспериментальных методов: молекулярно - лучевой эпитаксии (МЛЭ), атомно - силовой микроскопии (АСМ), растровой электронной микроскопии (РЭМ), спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ), метода измерения параметров Холла в геометрии Ван дер Пау. Используемые теоретические методы основаны на фундаментальных физических принципах и их результаты не противоречат эксперименту и данным других научных групп. Полученные результаты неоднократно апробированы на международных и Российских конференциях, опубликованы в рецензируемых журналах.

Личный вклад соискателя

Соискателем был выполнен анализ научных источников по теме исследования, разработаны процедуры эпитаксиального роста образцов, произведена обработка результатов измерений параметров образцов, проведен теоретический анализ процесса капельной эпитаксии и расчетное моделирование уровней энергии носителей заряда в квантовых кольцах. Соискатель также принимал участие в эксперименте на всех этапах: рост образцов, измерение их морфологических, оптических и электронных транспортных свойств.

Апробация работы

Результаты апробированы на 23 международных и российских конференциях: XIII International Conference on Nanostructured Materials (2016 г., Квебек, Канада); XII International Conference on Nanostructured Materials (2014 г., Московский государственный университет им.

М.В.Ломоносова, Москва); 21st International Symposium “Nanostructures: Physics and Technology” (2013 г., Санкт-Петербург, Санкт-Петербургский академический университет РАН); 11-я Российская конференция по физике полупроводников (2013 г., Санкт-Петербург, Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН); Школа-конференция с международным участием "Saint–Petersburg OPEN" (2015, 2017 г., Санкт-Петербург, Санкт-Петербургский академический университет РАН); 17 Всероссийская молодежная конференция по физике полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто- и наноэлектронике (2015 г., Санкт-Петербург, Санкт-Петербургский политехнический университет имени Петра Великого); 2-9-я Международная Научно-практическая конференция по физике и технологии наногетероструктурной СВЧ электроники «Мокеровские чтения» (2012-2018 гг., Москва, НИЯУ МИФИ); 10-я и 11-я Курчатовская молодежная научная школа, (2012-2013 гг., Москва, НИЦ Курчатовский институт); Научные сессии НИЯУ МИФИ (2012-2015 гг., Москва, НИЯУ МИФИ); III и IV Международная молодежная научная школа-конференция «Современные проблемы физики и технологий» (2014-2015 гг., Москва, НИЯУ МИФИ); Физические проблемы наноэлектроники, нанотехнологии и микросистем, (2013 г., Ульяновск, Ульяновский государственный университет).

Публикации по теме диссертации

По теме диссертации опубликованы 24 работы в научных журналах и сборниках трудов международных и российских конференций, в том числе 7 работ в рецензируемых журналах (из перечня ВАК и/или индексируемых в международных базах данных Scopus и/или Web of Science).

Структура и объем диссертации

Работа представлена на 139 страницах, содержит введение, пять глав, заключение, список литературы из 115 пунктов и 73 рисунка.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность выбранного направления – исследования механизмов самоорганизации квазиульмерных наноструктур методом капельной эпитаксии, изучения оптических и электронных транспортных свойств гетероструктур на их основе – сформулирована цель работы и решаемые задачи, указана научная новизна и практическая значимость работы, сформулированы положения и результаты, выносимые на защиту.

Первая глава диссертации содержит обзор современного состояния проблемы. Приводятся основные сведения об эпитаксиальных полупроводниковых квантовых точках, их свойствах и методах получения, таких как электронно-лучевая литография или более широко используемый метод Странски-Крастанова. Кратко рассмотрены свойства квантовых колец (та-

кие как эффект Ааронова-Бома) и описаны основные способы их получения из квантовых точек, предложенные в последние годы, и их ограничения. Наконец, представлен метод капельной эпитаксии для роста квантовых колец и его основные преимущества.

Капельная эпитаксия (КЭ) - наиболее гибкий и перспективный метод для создания КТ, КК и других 0D наноструктур соединений $A^{III}B^V$, в том числе и для материалов с совпадающими постоянными решетки. Он был впервые предложен для КТ InSb в 1991 г., однако широко использоваться начал с 1998 г. уже для GaAs. Для роста наноструктур GaAs на подложке $Al_yGa_{1-y}As$, основные этапы процесса КЭ таковы:

- 1) Осаждение Ga при закрытой заслонке As_4 .
- 2) Включение потока As_4 для кристаллизации капель в наноструктуры GaAs.
- 3) Отжиг, наращивание покровным слоем $Al_yGa_{1-y}As$.

Морфология полученных объектов определяется диффузией атомов Ga и As в процессе кристаллизации, поэтому она зависит от двух основных параметров — температуры подложки и давления потока As_4 .

В зависимости от этих двух параметров, наноструктуры примут различные формы. Обзор большинства имеющихся экспериментальных работ по КЭ для GaAs/AlGaAs позволил сделать вывод, что одна и та же процедура позволяет получить квантовые точки, квантовые кольца, двойные (концентрические) квантовые кольца, нанодиски, нанократеры и парные квантовые точки.

Основными преимуществами метода КЭ перед описанными выше способами получения КТ и КК, основанными на режиме Странски-Крастанова, являются:

- Рост квантовых точек в напряженных и ненапряженных системах материалов;
- Получение квантовых точек / колец / концентрических колец единым образом в рамках одного цикла;
- Рост квантовых точек (колец) с или без смачивающего слоя, управление толщиной смачивающего слоя;
- Независимое управление плотностью и размером наноструктур;
- Возможность создания уникальных, впервые наблюдаемых структур (концентрические КК, нанодиски, парные квантовые точки и т. д.);
- Возможность создания пространственно-упорядоченных ансамблей на предварительно паттернированной подложке.

Несмотря на обширный экспериментальный материал по КЭ для GaAs/AlGaAs, слабее изучена КЭ в системе $In_xGa_{1-x}As/AlGaAs$. Добавление In увеличивает глубину потенциальной ямы для носителей, что может быть полезно для оптических приложений. Кроме того, атомы In более подвижны в рассматриваемом диапазоне температур, чем атомы Ga, что может влиять

на процесс КЭ. В отличие от метода Странски-Крастанова, при КЭ вносимое In напряжение не требуется для образования наноструктур, что позволяет использовать сколь угодно малую долю In.

Полной физической модели процессов, протекающих при капельной эпитаксии, до сих пор не создано. Для GaAs были проведены обширные экспериментальные исследования (более 50 работ). Значительно меньше работ по КЭ для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, пока не проводились комплексные исследования по влиянию содержания индия на морфологию и свойства наноструктур.

Были предприняты попытки построения диффузионных моделей КЭ, которые, однако, использовали необоснованные приближения и не описывали всю совокупность экспериментальных результатов. В последних работах проводилось численное моделирование процесса КЭ, основанное на методе Монте-Карло, также страдающие от чрезмерных упрощений и произвола в выборе числовых параметров. До сих пор не затрагивался вопрос влияния анизотропии поверхности на форму КК.

Во **второй главе** описываются основные экспериментальные методы, использованные при выполнении исследования. Это метод молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), использованный для создания образцов, а также его особые режимы, такие как капельная эпитаксия (КЭ) и миграционно-усиленная эпитаксия (МУЭ). Это методы атомно-силовой микроскопии (АСМ) и растровой электронной спектроскопии (РЭМ), использованные для исследования поверхности образцов и морфологических свойств ансамблей квантовых колец. Это метод спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ), использовавшийся для исследования излучательных переходов в образцах гетероструктур с массивами квантовых колец, а также методы Ван-дер-Пау и магнетотранспорта в квантующем поле, которые использовались для изучения электронных транспортных свойств легированных образцов.

Третья глава описывает экспериментальную процедуру и условия роста образцов гетероструктур с ансамблями квантовых колец методом МЛЭ, а также результаты исследования морфологических свойств ансамблей методами атомно-силовой микроскопии (АСМ) и растровой электронной микроскопии (РЭМ).

Методом МЛЭ на полуизолирующих подложках GaAs с ориентацией (001) были выращены образцы наногетероструктур с КК $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. При 580 °С выращивался слой $\text{Al}_{0,28}\text{Ga}_{0,72}\text{As}$ толщиной ~200 нм для создания потенциального барьера для носителей тока, после чего температура опускалась до 200-350 °С и проводился процесс КЭ:

- 1) Осаждение около 5 МС (монослоев) Ga при закрытом источнике As_4 для формирования ансамбля наноразмерных капель;
- 2) Включение потока As_4 для кристаллизации капель Ga в квантовые кольца GaAs (при давлении $\text{As}_4 - 0,2-1,5 \cdot 10^{-5}$ Торр);

Условия роста и результат отражены в табл. 1 и на рис. 1.

Морфология поверхности образцов изучалась методами растровой электронной микроскопии (РЭМ) высокого разрешения, а также атомно-силовой микроскопии (АСМ). Как показали РЭМ и АСМ сканы (рис. 1), на поверхности образцов А1 и В1 (а также Б1-Б4 с In, сканы здесь не приведены) сформировались ансамбли одиночных КК, а на поверхности образцов А2, В2, В3, Г1-Г3 – двойных КК.

Поверхностная плотность колец оценивалась по РЭМ и АСМ сканам 10х10 мкм. В результате сравнения образцов в пределах одной серии, можно сделать вывод, что поверхностная плотность зависит от температуры подложки на этапе формирования капель, уменьшаясь с ростом температуры. Также она уменьшается и с увеличением содержания In в каплях, по-видимому вследствие меньшего барьера диффузии для атомов In на поверхности GaAs(001).

Таблица 1. Условия роста и оценочные параметры полученных образцов КК $In_xGa_{1-x}As$

№	$X_{In}, \%$	$T_1, ^\circ C$	$T_2, ^\circ C$	$P_{As4}, 10^{-5} \text{ Торр}$	Тип КК	Средний диаметр, нм		Пов. плотность, мкм^{-2}
						Внешнее	Внутреннее	
А1	0	220	220	1,3	Один.	51		141
А2	0	280	280	0,55	Двойн.	120	42	22
Б1	5	250	250	5,0	Один.	75		51
Б2	10	250	250	5,0	Один.	76		38
Б3	20	250	250	5,0	Один.	78		34
Б4	20	200	200	5,0	Один.	63		51
В1	0	325	325	0,2	Один.	22		32
В2	0	325	220	0,2	Двойн.	79	31	33
В3	0	325	325	1,0	Двойн.	69	27	73
Г1	0	350	350	1,5	Двойн.	233	86	15
Г2	0	300	300	0,75	Двойн.	242	91	13
Г3	0	265	265	0,75	Двойн.	132	66	28
Г4	0	300	300	1,5	Один.	134		40

(T_1 – температура подложки при осаждении капель, T_2 – температура роста колец)

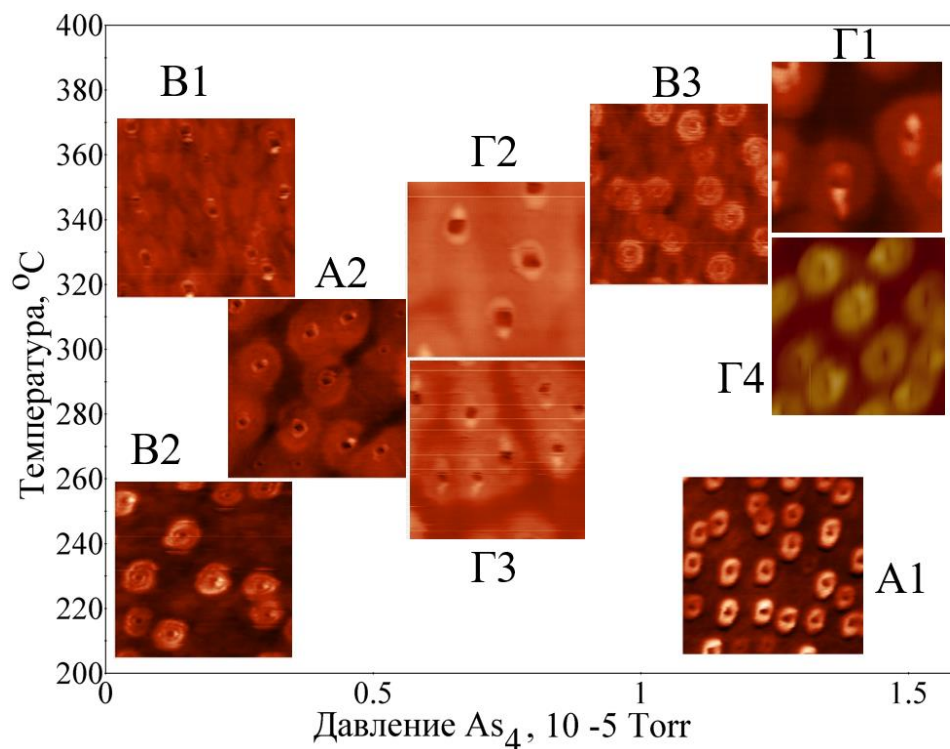


Рис. 1. Влияние условий роста на морфологию колец GaAs.

Были созданы и исследованы образцы Г1-Г6 с гибридной системой квантовая яма – квантовые кольца GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As и опорные образцы НЕМТ гетероструктур без квантовых колец. Для образцов Г1-Г3 квантовые кольца были выращены непосредственно на квантовой яме толщиной 6 и 10 нм, для образцов Г4-Г6 слой квантовых колец был отделен спейсером от квантовой ямы толщиной 10 и 20 нм. Толщина квантовой ямы в опорных образцах составляла 20 нм. Для образцов Г1-Г3 легирование кремнием было осуществлено в виде дельта-слоя через спейсер Al_{0.3}Ga_{0.7}As, как и в опорных образцах, тогда как во второй серии легировались непосредственно квантовые кольца.

В дополнение к описанным выше структурам, на поверхности образцов А2, А3 и Б2 были обнаружены разреженные ансамбли более крупных наноструктур - парных квантовых точек (ПКТ), ориентированных по направлению [0-11] (рис. 2). (Образец А3 отличается от А2 отсутствием квантовых колец на поверхности). Эти объекты независимо сосуществуют с квантовыми кольцами на поверхности образцов А2 и Б2. Каждая пара состоит из большой и малой точек, причем большая представляет собой ярко выраженную трехгранную пирамиду. Для образцов А2, А3 и Б2, соответственно, высота пирамиды составила примерно 50, 20 и 60 нм, ширина основания в направлении [011] - 340, 150 и 300 нм, плотность объектов на поверхности - 0.61, 0.36 и 0.25 мкм⁻².

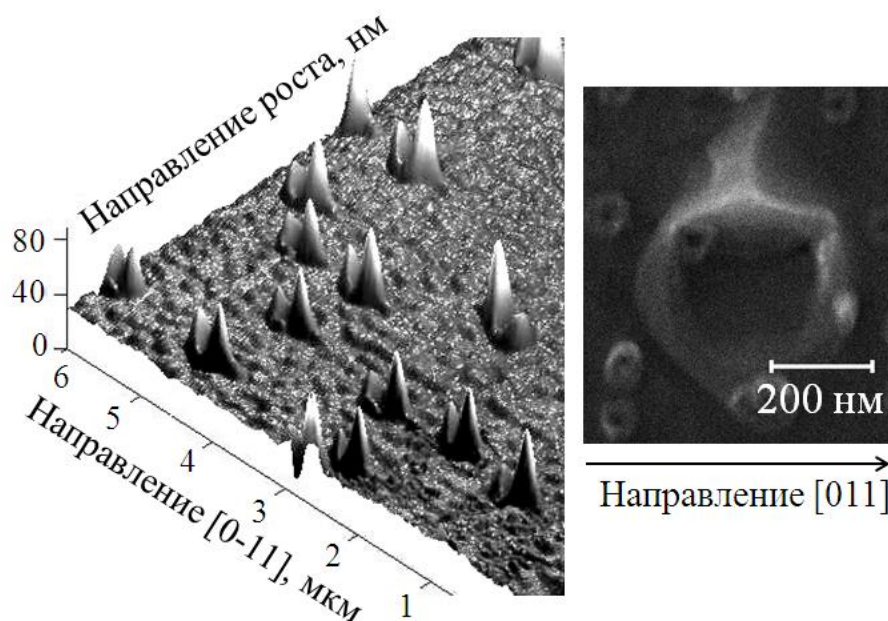


Рис. 2. Упорядоченные парные квантовые точки в образцах А2 и Б2.

В **четвертой главе** приводятся результаты исследований электронных транспортных и оптических свойств полученных образцов.

Электронный транспорт вдоль слоя самоорганизованных квантовых колец практически ранее не был исследован. Эта область представляет интерес как с практической стороны (например, фотодетекторы с латеральной проводимостью) так и с фундаментальной (эффект Ааронова-Бома, явление перколяции).

По результатам измерений температурных зависимостей удельного сопротивления и эффекта Холла среди легированных образцов с дельта-легированием Г1-Г3 заметную проводимость в темноте проявил только образец Г1. По-видимому, «смачивающего слоя» толщиной 6 нм (образцы Г2, Г3) не достаточно для делокализации носителей заряда из КК (высота самих колец по измерениям АСМ составляет около 10-15 нм). Однако при освещении оптическим либо инфракрасным излучением образец Г3 также становится проводящим, при этом при температуре жидкого азота его сопротивление в результате освещения падает более чем в 250 раз.

Образец Г1 демонстрирует несколько меньшую концентрацию электронов проводимости по сравнению с опорными образцами, и значительно меньшую их подвижность, которая слабо возрастает при уменьшении температуры (примерно вдвое, по сравнению с 20 кратным ростом при 77 К и 50 кратным при 4 К для опорных образцов). Температурные зависимости концентрации и подвижности носителей заряда немонотонные, максимум подвижности наблюдается в районе 100 К. Перечисленные факторы связаны, скорее всего, с неупорядоченной структурой КК, которая приводит к сильным латеральным флуктуациям потенциала зоны

проводимости у верхней границы КЯ и вносит решающий вклад в рассеяние носителей. Освещение образца при 77 К приводит к росту как концентрации носителей, так и их подвижности более чем в 1,5 раза (последнее связано, по-видимому, с экранированием неоднородностей потенциала).

Во второй серии (образцы Г4, Г5 и Г6) проводящим (на уровне сравнимом с опорными образцами) оказался только образец Г6, что может быть связано с более высокой плотностью КК по сравнению с образцом Г4, более высокой концентрацией Si, а также иным режимом встраивания примеси по сравнению с образцом Г5. Образец демонстрирует аномальную температурную зависимость электронно-транспортных свойств – при повышении температуры холловская подвижность электронов растет, а концентрация падает.

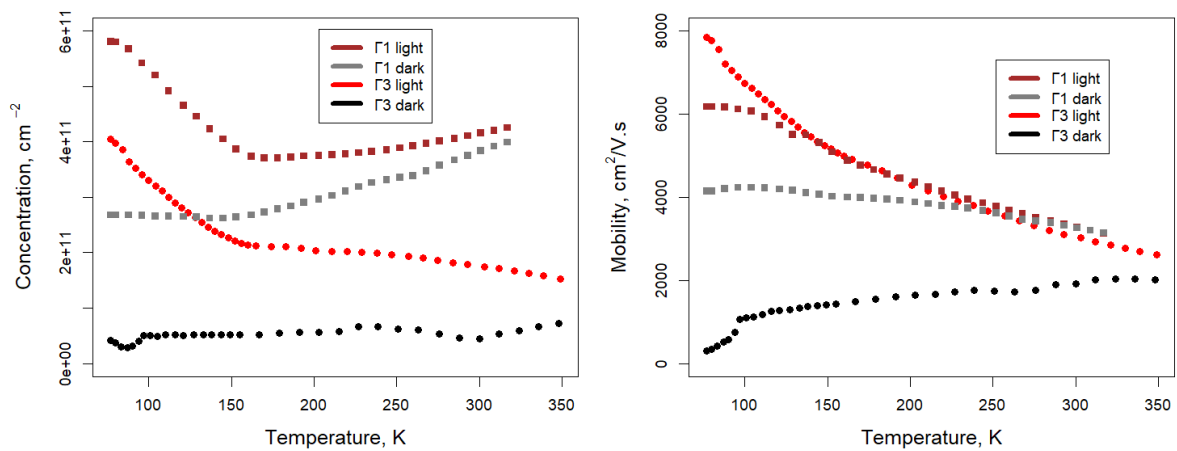


Рис. 3. Температурные зависимости холловской концентрации и подвижности в образцах Г1 и Г3.

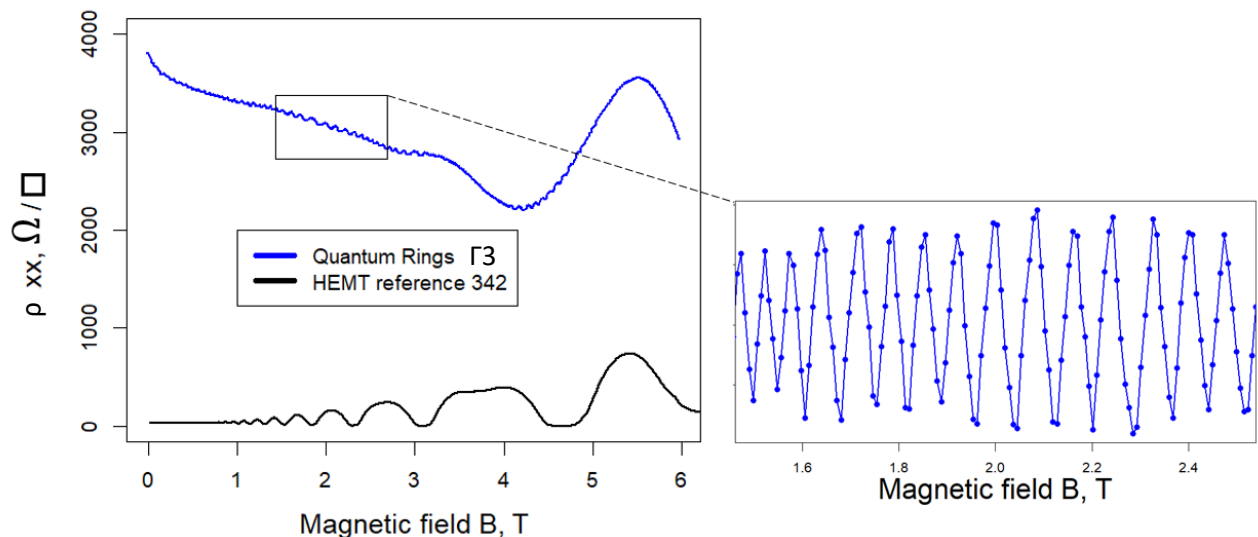


Рис. 4. Магнетосопротивление в освещенном образце Г3 и в опорном образце 342 (слева) и периодические осцилляции Ааронова-Бома (справа) при температуре 4 К.

При температурах $2\div 4$ К и магнитных полях до 6,5 Тл в образце Г1 и в освещенном образце Г3 наблюдаются два периода осцилляций Шубникова-де Гааза. При этом в образцах Г3 и Г6 однако можно видеть слабые осцилляции, периодичные по магнитному полю. Согласно расчетам, последние вероятно вызваны эффектом Ааронова-Бома.

Фотолюминесценция в образцах с квантовыми кольцами GaAs изучалась в ряде работ, обычно при двух значениях температур – близкой к точке кипения жидкого гелия (4-10 К), и комнатной. Нет уверенности в правильном определении принадлежности всех пиков. Отсутствуют данные по температурной зависимости положения максимумов, полуширины и интенсивности пиков, которые могут дать информацию о преобладающих механизмах рассеяния фотовозбужденных носителей тока при различных температурах, а также других эффектах, которые могут влиять на оптические свойства эпитаксиальных структур с квантовыми кольцами. Поэтому целью данной работы являлось изучение спектральных особенностей фотолюминесценции гетероструктур с квантовыми кольцами $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ в широком интервале температур $20\div 300$ К.

В образцах А1 и А2 при низких температурах (рис. 5) наблюдались интенсивные пики, соответствующие переходам между уровнями размерного квантования в слоях с квантовыми кольцами. При $T=20$ К положение максимума линии, соответствующего уровню размерного квантования образца А1 – 1,735 эВ (715 нм), для образца А2 – 1,738 эВ (714 нм). Образец А2 содержит также дополнительный максимум, энергия которого 1,620 эВ. При этом ширина запрещенной зоны GaAs при $T=20$ К составляет 1,518 эВ.

При $T<50$ К возникали дополнительные пики, соответствующие энергии 1,86 эВ, вызванные межзонными переходами в барьерном слое $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$. Это подтверждается расчетом энергии запрещенной зоны $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ при температуре 20 К и мольной доле AlAs 28% (1,87 эВ), а также сравнением со спектрами образцов, с которых методом селективного травления были удалены слои с квантовыми кольцами (рис. 5).

При росте температуры наблюдается красное смещение пиков ФЛ от квантовых колец (рис. 6), что находится в качественном согласии с эмпирической зависимостью Варшни для ширины запрещенной зоны GaAs.

Полуширина (ширина на половине высоты) спектральных линий ФЛ от квантовых колец уменьшается с ростом температуры вплоть до 70 К, особенно это заметно для образца А1 (рис. 7). Такое поведение не характерно для объемных полупроводников, где причиной температурного уширения является рассеяние носителей на фононах. Мы связываем уширение в основном с дисперсией квантовых колец по размерам, поэтому температурная зависимость полуширины может иметь более сложный характер. Такой эффект наблюдался в литературе и для узких (5 нм) квантовых ям GaAs.

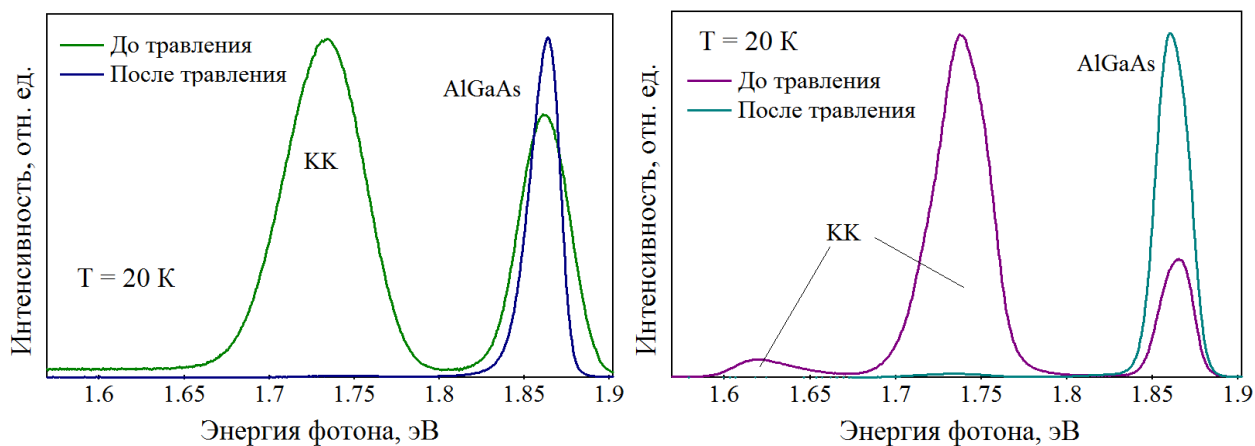


Рис. 5. Нормализованные спектры фотолюминесценции образцов A1 и A2 при температуре 20 К до и после удаления верхнего слоя.

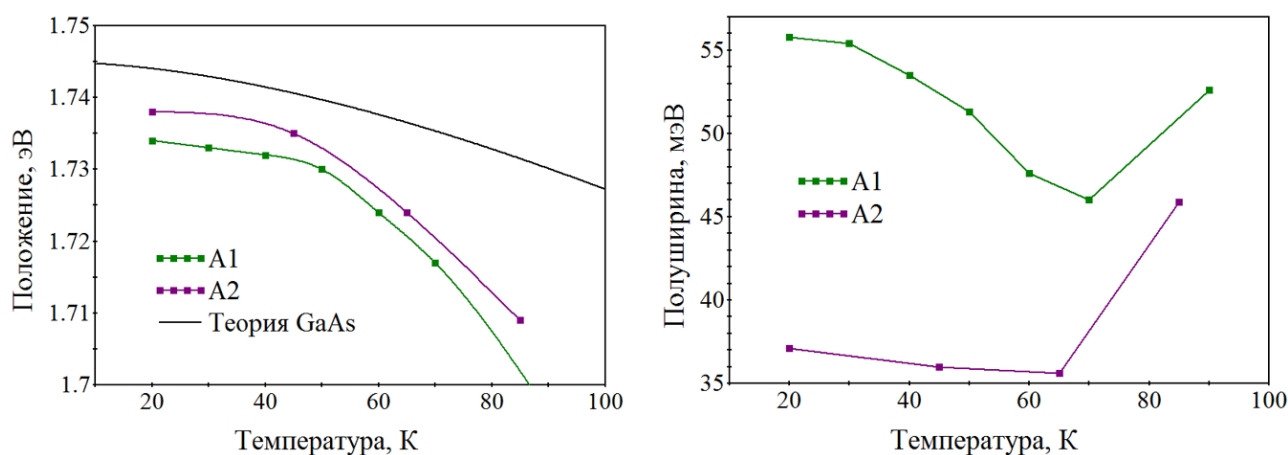


Рис. 6. Зависимость положения максимума и полуширины пика KK образцов A1 и A2 от температуры.

Были также проведены измерения ФЛ при комнатной температуре в режиме накопления сигнала. При этом на спектрах образцов наблюдался пик подложки/буферного слоя GaAs, соответствующий межзонному переходу (1,42 эВ), а также пики размерного квантования, отсутствовавшие на спектре подложки.

Пятая глава освещает результаты теоретического анализа влияния условий эпитаксиального роста на морфологию ансамблей квантовых колец и расчетного моделирования энергетических уровней и волновых функций носителей заряда, локализованных в квантовых кольцах различной формы, в т.ч. в магнитном поле.

Расчет уровней энергии и волновых функций стационарного состояния электронов и дырок в полупроводниковых наноструктурах дает возможность анализировать и моделировать

оптические свойства квантовых колец и других наноструктур (например, положение и интенсивность пиков фотолюминесценции и поглощения), а также судить об электронных транспортных свойствах (например, туннельном транспорте через квантовое кольцо).

Для точного решения этой задачи необходимо учитывать множество факторов – это геометрия наноструктуры, форма потенциала, непараболичность зон, смешение состояний из различных зон, межчастичное взаимодействие, локальный потенциал кристаллической решетки. Еще более ситуация усложняется в присутствии электрического и магнитного полей. В последнем случае может потребоваться учет спина электрона.

Поэтому на практике для моделирования состояний носителей заряда в наноструктурах используют ряд приближений. Нужно принять во внимание также погрешности в измерении размеров и состава конкретных наноструктур и дисперсию данных величин при усреднении по ансамблю наноструктур.

Первоначально для оценки энергий размерного квантования, и в частности, анализа спектров фотолюминесценции образцов серии А была использована аналитическая модель. Из таблицы 1 видно, что высота колец много меньше их диаметра. Это означает, что основной вклад в энергию размерного квантования вносит именно локализация носителей тока в направлении роста. Поэтому вклад в энергию квантования за счет поперечного конфайнмента должен быть порядка энергии квантования в узкой квантовой яме GaAs соответствующей толщины.

Потенциал в направлении роста для слоя квантовых колец GaAs на поверхности можно аппроксимировать асимметричной прямоугольной потенциальной ямой. Один из барьеров для электронов (дырок) определяется разрывом зоны проводимости (валентной зоны) GaAs/Al_{0.28}Ga_{0.72}As, а второй считается бесконечным, т.к. энергия кванта используемого излучения (2,54 эВ) значительно меньше работы выхода электрона из GaAs (4-5 эВ). Для внутреннего слоя квантовых колец, окруженного Al_{0.28}Ga_{0.72}As (образец А2), можно использовать модель симметричной прямоугольной ямы.

Уровни энергии для асимметричной (1) и симметричной (2) ямы можно найти из уравнений:

$$\eta \operatorname{ctg}(\eta d) = -\sqrt{\frac{2m_{AlGaAs}^* U_o}{\hbar^2} - \eta^2} \quad (1)$$

$$\eta \operatorname{tg}\left(\frac{\eta d}{2}\right) = \sqrt{\frac{2m_{AlGaAs}^* U_o}{\hbar^2} - \eta^2} \quad (2)$$

$$\text{где} \quad \eta^2 = \frac{2m_{GaAs}^* E}{\hbar^2} \quad (3)$$

Пользуясь измеренными значениями средней высоты колец, получаем энергию размерного квантования в направлении роста для поверхностного слоя квантовых колец GaAs:

$$\Delta E_{\text{теор}}(A1) = 0,18 \pm 0,03 \text{ эВ}$$

$$\Delta E_{\text{теор}}(A2) = 0,19 \pm 0,01 \text{ эВ}$$

Оценим энергию размерного квантования носителей в плоскости колец, воспользовавшись моделью цилиндрического кольца с прямоугольным профилем. Так как кольца находятся на поверхности, высоту энергетического барьера в плоскости можно считать бесконечной. В таком случае для концентрических колец можно не учитывать туннельную связь, рассчитывая их по отдельности.

Энергию основного состояния носителя в квантовом кольце в этом случае можно найти из соотношения:

$$J_0(\sqrt{k^2 - \eta^2}R) Y_0(\sqrt{k^2 - \eta^2}r) = J_0(\sqrt{k^2 - \eta^2}r) Y_0(\sqrt{k^2 - \eta^2}R) \quad (4)$$

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{GaAs}^*} \quad (5)$$

Где R, r – внешний и внутренний радиусы, J_0, Y_0 – функции Бесселя. Параметр η^2 отвечает энергии размерного квантования в направлении роста, оцененной выше.

Экспериментальные значения находятся в хорошем согласии с расчетными, причем по асимметричной форме пика от верхнего слоя квантовых колец образца A2 можно предположить, что он образован наложением пиков от внешних и внутренних колец, с расстоянием между максимумами примерно равным 0,02 эВ.

Численный метод.

В данной работе мы используем универсальный алгоритм для расчета собственных энергий и волновых функций стационарного состояния электронов и дырок (в одночастичном приближении) в квантовых кольцах различной геометрии и профиля потенциала (имеется в виду, как резкая граница между ямой и барьером, так и плавная, диффузионно-размытая граница) в присутствии стационарных электрического и магнитного полей.

Метод основан на том что любая волновая функция стационарного состояния может быть представлена как бесконечная сумма собственных волновых функций произвольного потенциала, для которого уравнение Шредингера имеет аналитическое решение – это могут быть, например, разделяющиеся в декартовой системе координат потенциалы прямоугольной ямы с бесконечно высокими стенками и гармонического осциллятора.

Конечность числа базисных функций в реальных представлениях приводит к тому, что решение начинает зависеть от параметров выбранного базиса – к примеру, от размеров бесконечной потенциальной ямы или собственных частот гармонического осциллятора. В данной работе ставится задача поиска оптимальных параметров базисных функций. Для этого используется вариационный принцип – параметры базиса выбираются из условия минимизации энергии основного состояния. Можно видеть, что такой способ определения базиса позволяет выбрать диапазон значений параметров, в котором решение практически от них не зависит.

Наибольшая вычислительная сложность метода заключена именно в вычислении матричных элементов, а сама диагонализация матрицы производится современными программами довольно быстро. Поэтому, когда это возможно, необходимо искать явные аналитические выражения для матричных элементов, чтобы избежать ресурсоемкого численного интегрирования.

Для моделирования квантовых колец сложной формы удобно использовать потенциал в виде функции Гаусса:

$$U(x, y) = U_0 \left[\left(1 + \frac{x^2}{2a_x^2} + \frac{y^2}{2a_y^2} \right) \exp \left(-\frac{x^2}{2a_x^2} - \frac{y^2}{2a_y^2} \right) - \left(1 + \frac{x^2}{2b_x^2} + \frac{y^2}{2b_y^2} \right) \exp \left(-\frac{x^2}{2b_x^2} - \frac{y^2}{2b_y^2} \right) \right] \quad (6)$$

Такой вид потенциала позволяет учесть размытие гетерограниц, асимметрию кольца и многие другие факторы. Кроме того, он позволяет свести численное решение уравнения Шредингера в трехмерном случае к нескольким одномерным задачам.

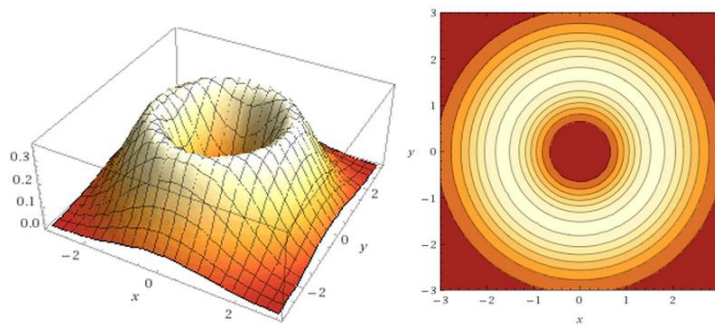


Рис. 7. Вид потенциала (6), позволяющий моделировать кольцо вулканической формы.

На рис. 8 показаны результаты расчета двух первых уровней для электронов в одномерной яме Гаусса, с использованием двух видов базисных функций, при этом матричные элементы были рассчитаны аналитически. Можно видеть, что в определенных диапазонах результат расчета не зависит от параметров базисных функций, и соответствует минимуму энергии.

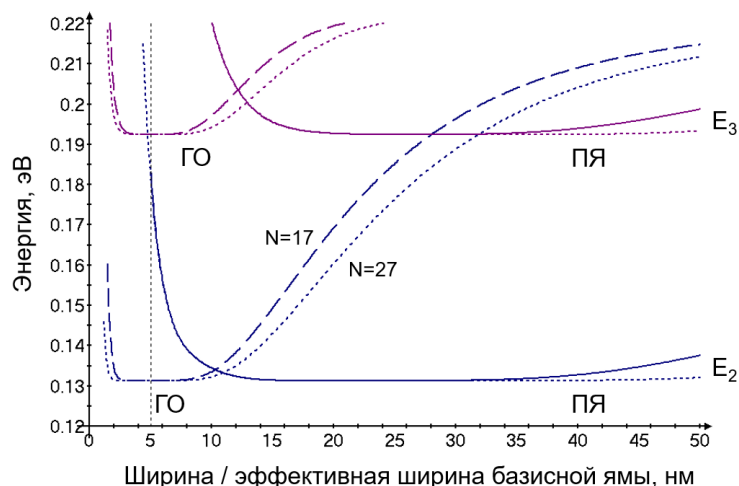


Рис. 8. Зависимость рассчитанных уровней энергии электрона в Гауссовой яме от параметров базисных функций. Для гармонического осциллятора (ГО) использована эффективная полуширина волновой функции основного состояния. Полуширина Гауссовой ямы 5 нм.

Предложенный метод использован как для уточнения аналитических расчетов анализа спектров фотолюминесценции (результаты хорошо соответствуют экспериментальным значениям), так и для более сложных задач, к примеру, эффекта Ааронова-Бома в кольцах различной формы.

Диффузионная модель формирования квантовых колец.

Для анализа полученных результатов и понимания кинетики образования наноструктур, в данном разделе рассмотрены процессы, приводящие к самоорганизации ансамбля КК, начиная с формирования ансамбля капель и до кристаллизации соединения в потоке As₄.

Решая уравнения диффузии для атомов As в жидкой капле Ga, а также для адатомов Ga и As на поверхности вокруг капли с определенными граничными условиями, можно получить распределение скорости роста и определить форму наноструктуры.

А) После того как Ga осаждается на поверхность (около 1,75 монослоя требуется для компенсации As-насыщенной реконструкции поверхности c(4x4) или (2x4)), он формирует наноразмерные капли с концентрацией на поверхности, средним диаметром, дисперсией по размерам и контактным углом, которые зависят от температуры осаждения, скорости осаждения и времени осаждения.

Дисперсия по размерам приводит к обмену адатомами между разными каплями (созревание Оствальда), поэтому на поверхности между каплями всегда существует популяция адатомов Ga.

Б) После включения потока As_4 начинают действовать два конкурирующих процесса – поверхностная диффузия и встраивание в кристаллическую решетку адатомов Ga и As, на которые влияет в основном температура поверхности и парциальное давление (поток) As_4 .

Для упрощения рассмотрим одиночную каплю Ga на поверхности GaAs в потоке атомов As. Действительность этой модели подтверждена качественным согласием с экспериментом.

Одиночные кольца формируются из-за низкой растворимости As в жидком Ga (при низких температурах и давлении As_4), что приводит к росту на границе капли, но не внутри нее.

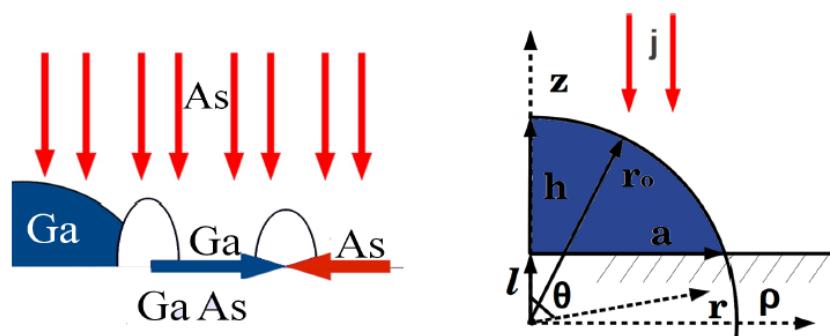


Рис. 9. Атомные потоки вокруг капли Ga. Обозначения, используемые далее.

В данном случае, подобно жидкофазной эпитаксии, скорость роста GaAs ограничена диффузионным потоком As вблизи поверхности кристалла, который значительно больше на границе капли, чем на ее дне, и кроме того уменьшается с уменьшением размеров капли, что и приводит к формированию кольца.

Повышение температуры подложки или уменьшение потока As_4 приводит к формированию **двойных** (концентрических) **колец**. Граница внешнего кольца определяется истощением потока адатомов Ga от капли набегающим потоком адатомов As.

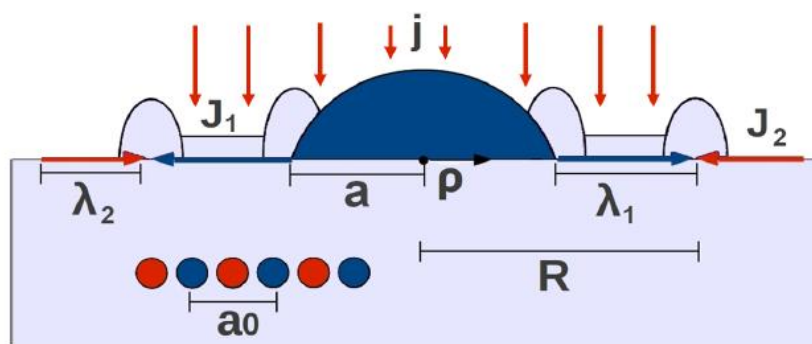


Рис. 10. Схема формирования внешнего кольца и используемые обозначения.

Стационарные уравнения диффузии и граничные условия для адатомов Ga и As выглядят следующим образом:

$$D_1 \Delta n_1 - \frac{n_1}{\tau_1} = 0 \quad \begin{aligned} n_1(a) &= n_a \\ n_1(R) &= 0 \end{aligned} \quad (7)$$

$$D_2 \Delta n_2 - \frac{n_2}{\tau_2} + j = 0 \quad \begin{aligned} n_2(R) &= 0 \\ n_2(\infty) &= j\tau_2 \end{aligned} \quad (8)$$

Здесь D – коэффициенты диффузии:

$$D = a_0^2 \nu e^{-\frac{E_d}{kT}} \quad \begin{aligned} \nu &= \frac{kT}{\pi \hbar} \\ \lambda &= \sqrt{D\tau} \end{aligned} \quad (9)$$

Длина диффузии адатомов Ga ограничена потоком As от источника (т.к. давление паров Ga над поверхностью GaAs очень низко и десорбции при температурах ниже 600 °C практически не происходит).

Длина диффузии адатомов As ограничена десорбцией.

$$\begin{aligned} \lambda_1 &= \sqrt{\frac{k}{\pi \hbar}} \sqrt{\frac{T}{j}} e^{-\frac{E_{d1}}{2kT}} \\ \lambda_2 &= a_0 e^{-\frac{E_{a2} - E_{d2}}{2kT}} \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь E_{d1} , E_{d2} – барьеры диффузии адатомов Ga и As соответственно, E_{a2} – барьер десорбции адатомов As.

Внешний радиус двойного КК определяется условием равенства потоков Ga и As:

$$\frac{R}{\lambda_1^2} e^{-\frac{E_{v1}}{kT}} \left[I_0\left(\frac{R}{\lambda_1}\right) K_0\left(\frac{a}{\lambda_1}\right) - K_0\left(\frac{R}{\lambda_1}\right) I_0\left(\frac{a}{\lambda_1}\right) \right] \sqrt{a_0^2 + \lambda_2^2 \frac{K_1^2\left(\frac{\rho}{\lambda_2}\right)}{K_0^2\left(\frac{R}{\lambda_2}\right)}} = 1 \quad (11)$$

Здесь E_{v1} – энергия связи атомов Ga в капле, I_0, I_1, K_0, K_1 – функции Бесселя.

Полезно рассмотреть приближения данной формулы, которыми можно пользоваться при определенных условиях:

$$A) a \gg \lambda_1, R \gg \lambda_1, R \gg \lambda_2$$

$$\text{sh} \frac{R - a}{\lambda_1} = \frac{\lambda_1 e^{-\frac{E_{v1}}{kT}}}{\sqrt{a_0^2 + \lambda_2^2}} \quad (12)$$

$$B) a \ll \lambda_1, \lambda_2 \ll R \ll \lambda_1$$

$$R \ln \frac{R}{a} = \frac{\lambda_1^2 e^{-\frac{E_{v1}}{kT}}}{\sqrt{a_0^2 + \lambda_2^2}} \quad (13)$$

Данные приближения довольно хорошо описывают экспериментальные наблюдения при различных температурах и потоках As₄ и позволяют объяснить тот факт, что радиус внешней

границы двойного кольца растет с ростом температуры и падает с ростом потока As_4 (как и длина диффузии адатомов Ga).

В области между внешним и внутренним кольцами скорость роста постоянна и определяется потоком As от источника. Скорость роста внешнего кольца больше, так как добавляется дополнительный поверхностный поток As. Если температура возрастает более $\sim 325^\circ C$, длина диффузии адатомов As на поверхности становится пренебрежимо мала, поэтому двойное кольцо превращается в «нанодиск» без явной внешней кромки.

Таким образом, предложена диффузионная модель формирования квантовых колец GaAs в процессе капельной эпитаксии, которая хорошо объясняет экспериментальные данные. Модель может быть обобщена на другие материалы A_3B_5 .

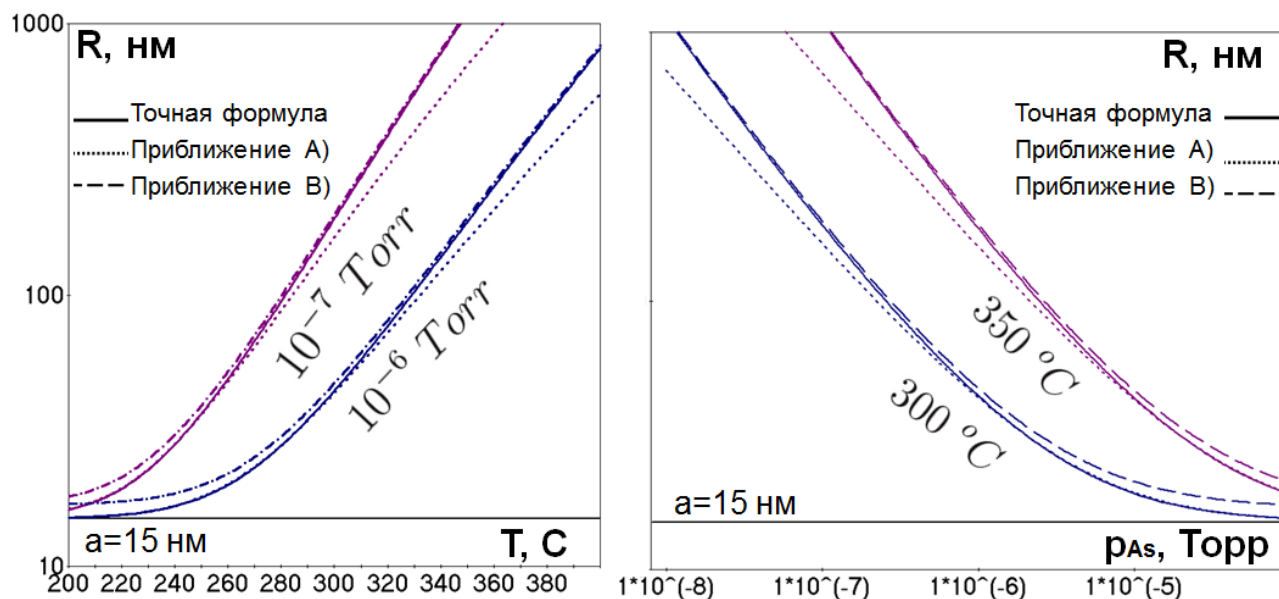


Рис. 11. Зависимость радиуса внешнего кольца от температуры подложки и давления As_4 , рассчитанный по точной формуле и по приближенным.

Необычную структуру ПКТ мы связываем с анизотропией реконструкций поверхности GaAs(001) (таких как 2×4 и 4×6), на которой формируются капли. Такая поверхность состоит из чередующихся рядов в направлении $[0-11]$ шириной ~ 1 нм, различающихся по высоте и соотношению Ga/As. Это аналогично поведению микронных капель воды на поверхности с чередующимися полосами сильного и слабого смачивания.

Асимметрия ПКТ вероятно вызвана следующими причинами. При кристаллизации капля истощается, однако её граница испытывает пиннинг из-за линейного натяжения. Это приводит к уменьшению краевого угла и увеличению напряжения в поверхностном слое капли. На некотором этапе происходит разрыв смачивающего слоя (dewetting), причем для уменьшения поверхностной энергии образуется единичная капля с увеличенным краевым углом, которая и становится наибольшей из ПКТ.

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. Создана физическая модель капельной эпитаксии, объясняющая механизмы и условия формирования одиночных и двойных квантовых колец, а также более сложных наноструктур, на основе рассмотрения взаимодействия конкурирующих процессов кристаллизации и диффузии атомов Ga и As.
2. Впервые показано, что In выступает как катализатор поверхностной диффузии адатомов Ga: добавление всего 5% In резко усиливает поверхностную диффузию всей системы адатомов $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}$, что выражается в резком уменьшении поверхностной плотности нанокластеров.
3. Разработан метод формирования нового типа наноструктур – парных квантовых точек – в процессе эпитаксиального роста $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ на $\text{GaAs}(001)$ в условиях дефицита мышьяка. Впервые определен порог образования ПКТ при росте методом миграционно-усиленной эпитаксии с попеременным осаждением одного монослоя $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}$ и As_4 : ПКТ возникают при уменьшении времени подачи As_4 с 1.2 с до 1.1 с. Асимметричная форма и упорядочение в одном кристаллографическом направлении объясняется анизотропией поверхностной диффузии и пиннингом границы капли металла в процессе кристаллизации ПКТ в условиях дефицита мышьяка.
4. Аномальная зависимость интенсивности и полуширины линии фотолюминесценции ансамблей квантовых колец $\text{GaAs}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ от температуры (рост интенсивности и уменьшение полуширины при первоначальном увеличении температуры) вызвана связью термоактивации туннелирования носителей заряда с дисперсией размеров ансамбля КК.
5. Разработан спектральный метод расчета уровней энергии и волновых функций носителей заряда в квантовых кольцах произвольной формы, находящихся в электрическом и магнитном полях, с учетом диффузионного размытия гетерограниц. Выявлены условия сходимости метода на основе использования вариационного принципа для поиска области сходимости.
6. Впервые исследованы электронные транспортные свойства НЕМТ гетероструктур с дельта-легированной гибридной системой, содержащей квантовую яму и слой квантовых колец $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$. Обнаружен фотоиндуцированный переход диэлектрик-металл при толщине двумерного слоя GaAs 6 нм, обусловленный сильной латеральной флуктуацией потенциала составной квантовой ямы и сильной локализацией электронов. Впервые непосредственно зарегистрированы осцилляции Ааронова-Бома в структуре с самоорганизованными слоями квантовых колец.

ОСНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. И.С. Васильевский, А.Н. Виниченко, И.С. Еремин, Ю.Д. Сибирмовский, Д.М. Жигунов, Н.И. Каргин, М.Н. Стриханов. Особенности формирования ансамблей квантовых колец GaAs/AlGaAs и InGaAs/AlGaAs методом капельной эпитаксии. // Вестник Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», 2013. Т. 2. № 3. С. 267–272.
2. Ю.Д. Сибирмовский, И.С. Васильевский, А.Н. Виниченко, И.С. Еремин, Н.И. Каргин, О.С. Коленцова, М.Н. Стриханов. Особенности диффузионных процессов при капельной эпитаксии квантовых колец. // Краткие сообщения по физике ФИАН, 2014. Т. 41. № 9. С. 3–8.
3. Ю.Д. Сибирмовский, И.С. Васильевский, А.Н. Виниченко, И.С. Еремин, О.С. Коленцова, Н.И. Каргин. Самоорганизованные ансамбли наноструктур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{AlGaAs}$ методом капельной эпитаксии. // Нано- и микросистемная техника, 2015. № 3(176). С. 24-30.
4. Ю.Д. Сибирмовский, И.С. Васильевский, А.Н. Виниченко, И.С. Еремин, Д.М. Жигунов, Н.И. Каргин, О.С. Коленцова, П.А. Мартюк, М.Н. Стриханов. Фотолуминесценция массивов квантовых колец GaAs/AlGaAs. // Физика и техника полупроводников, 2015. Т. 49. № 5. С. 652-657.
5. Y.D. Sibirmovsky, I.S. Vasil'evskii, A.N. Vinichenko, I.S. Eremin, O.S. Kolentsova, N.I. Kargin, M.N. Strikhanov. Temperature dependence of photoluminescence of GaAs/AlGaAs quantum rings. // J. Phys. Conf. Ser. 2015. V. 643. № 1. P. 12073.
6. Y.D. Sibirmovsky, I.S. Vasil'evskii, N.I. Kargin. Eigenstate modelling in arbitrary shaped nanostructures with gradual heterointerfaces. // J. Phys. Conf. Ser. 2016. V 690. P. 12016.
7. Y.D. Sibirmovsky, I.S. Vasil'evskii, A.N. Vinichenko, D.M. Zhigunov, I.S. Eremin, O.S. Kolentsova, D.A. Safonov, N.I. Kargin. Electronic and optical properties of HEMT heterostructures with delta-Si doped GaAs/AlGaAs quantum rings - quantum well system. // J. Phys. Conf. Ser. 2017. V. 917. P. 032041.