

ФУНДАМЕНТАЛЬНЫЕ ПРОБЛЕМЫ ФОТОННЫХ УСТРОЙСТВ НА ОСНОВЕ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ НАНОГЕТЕРОСТРУКТУР

УДК 621.3.049.77

СПЕКТРОСКОПИЯ ОДИНОЧНЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК InAs*

А. В. Гайслер, А. С. Ярошевич, И. А. Дерезов, А. К. Калагин,
А. К. Бакаров, А. И. Торопов, Д. В. Щеглов, В. А. Гайслер,
А. В. Латышев, А. Л. Асеев

*Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 13
E-mail: derebezov@isp.nsc.ru*

Методом молекулярно-лучевой эпитаксии получены массивы квантовых точек InAs сверхнизкой плотности ($\sim 10^6 \text{ см}^{-2}$), что позволило провести исследования спектральных характеристик излучения одиночных квантовых точек с использованием методики криогенной микрофотолюминесценции. Продемонстрировано монотонное увеличение расщепления экситонных состояний с увеличением размера квантовых точек до значений $\sim 10^2 \text{ мкэВ}$. Показано, что в интервале энергий экситонов 1,3–1,4 эВ величина расщепления экситонных состояний сравнима с естественной шириной экситонных линий, и это представляет большой интерес для разработки излучателей пар запутанных фотонов на основе квантовых точек InAs.

Ключевые слова: полупроводниковые квантовые точки, экситон, биэкситон, тонкая структура, излучатели одиночных фотонов, излучатели фотонных пар, запутанных по поляризации.

Введение. Полупроводниковые квантовые точки (КТ) [1–5] представляют большой интерес для разработки сверхминиатюрных излучателей, применяемых в квантовых информационных системах [6–8]. На основе полупроводниковых КТ создаются эффективные излучатели одиночных фотонов (ИОФ) [5, 9–11]. Квантовые точки важны и для создания излучателей фотонных пар (ИФП), запутанных по поляризации [5, 10, 12–15], которые могут применяться как в системах квантовых вычислений, так и для реализации ряда протоколов квантовой криптографии. Пары запутанных фотонов могут излучаться полупроводниковыми КТ в процессе каскадной рекомбинации биэкситона и экситона в случае, если экситоны с полными спиновыми моментами $M = 1$ и $M = -1$, принадлежащие одной квантовой точке, вырождены по энергии или же их расщепление ΔE_{FS} не превышает естественную ширину экситонных уровней $\Gamma_X = \hbar/\tau_X$, где τ_X — время жизни экситона. В этом случае излучается пара фотонов, запутанных по поляризации [5]. В реальных КТ расщепление экситонных состояний ΔE_{FS} , как правило, многократно превышает естественную ширину экситонных уровней Γ_X , что обусловлено отклонением формы КТ от идеальной, наличием пьезопотенциала, индуцированного встроенными механическими напряжениями [5, 16, 17]. Исследование факторов, задающих величину ΔE_{FS} , а также условий, при которых расщепление экситонных состояний подавляется до уровня Γ_X , актуально для разработки ИФП на базе полупроводниковых КТ.

*Работа выполнена при поддержке Президиума РАН (программа фундаментальных исследований № 24 «Основы фундаментальных исследований нанотехнологий и наноматериалов»). Ряд экспериментов проведён на оборудовании Центра коллективного пользования «Наноструктуры».

Цель данной работы — исследование тонкой структуры экситонных состояний квантовых точек InAs, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) по механизму Странского — Крастанова с малым временем прерывания роста.

Методика выращивания структур с квантовыми точками. Исследованные образцы синтезировались на установке МЛЭ "Riber C21" на подложках GaAs(001). На поверхности подложки выращивался буферный слой GaAs толщиной 0,3 мкм. Структура содержала два слоя $Al_{0,6}Ga_{0,4}As$ (по 50 нм), препятствующих диффузии фотовозбуждённых носителей заряда, и слой GaAs (160 нм) между ними. В середине слоя GaAs (160 нм), поглощающего большую часть мощности возбуждающего лазера, находился слой КТ InAs. На верхнем слое $Al_{0,6}Ga_{0,4}As$ выращивался защитный слой GaAs (10 нм). Слой КТ InAs синтезировался по механизму Странского — Крастанова [1–5] при температуре $T = 430$ °С. На поверхности GaAs (10 нм) синтезировался слой InAs критической толщины (~1,8 моно-слоя (МС)), по достижении которой начинает формироваться массив самоорганизованных КТ InAs. Скорость роста слоя InAs составляла 0,02 МС/с, соотношение потоков элементов As/In поддерживалось на уровне 10^2 . Момент перехода от двумерного механизма роста к трёхмерному контролировался методом дифракции быстрых электронов. По достижении критической толщины процесс роста InAs прекращался, и в течение ростовой паузы длительностью τ_{GI} формировался массив КТ InAs по механизму Оствальда [18–21], который заключается в «созревании», увеличении размеров трёхмерных островков — квантовых точек — за счёт обеднения, уменьшения толщины выращенного слоя InAs. По завершении ростовой паузы слой КТ InAs зарастивался GaAs. Время ростовой паузы τ_{GI} варьировалось от единиц до сотен секунд. Продолжительность ростовой паузы τ_{GI} в значительной степени определяет параметры массива КТ InAs. С увеличением τ_{GI} до 10^1 – 10^2 с формируются массивы КТ высокой плотности (до 10^{10} см⁻²), возрастает средний размер КТ, а также дисперсия их размеров. Напротив, использование в ростовом эксперименте малых τ_{GI} (единицы секунд) является эффективным способом получения массива КТ сверхмалой плотности (до 10^6 см⁻²), при этом формируются КТ минимального размера с малой дисперсией размера.

Методика эксперимента. Структуры КТ InAs исследовались методом микрофотолюминесценции, площадь пятна возбуждающего лазера на поверхности структуры составляла 3 мкм². Для возбуждения люминесценции применялось излучение Nd:YAG-лазера с длиной волны 532 нм, работающего в непрерывном режиме, плотность мощности варьировалась в интервале 10^{-2} – 10^2 Вт/см². Структуры размещались в He-криостате, задающем температуру $T = 10$ К. Люминесценция регистрировалась с помощью тройного монохроматора "TriVista 555" с охлаждаемой матрицей фотоприёмников Si.

Экспериментальные данные и их анализ. Спектры микролюминесценции двух структур с КТ InAs представлены на рис. 1. При выращивании первой структуры (рис. 1, *a*) ростовая пауза составляла $\tau_{GI} = 120$ с, при этом формировался массив КТ с высокой плотностью (~ 10^{10} см⁻²). Вторая структура (рис. 1, *b*) синтезировалась с прерыванием роста $\tau_{GI} = 3$ с, что позволило получить очень низкую плотность КТ на уровне ~ 10^6 см⁻².

В спектрах отчётливо видны узкие пики, соответствующие люминесценции одиночных КТ. В первом образце спектр люминесценции содержит десятки пиков от различных КТ, образующих континуум, что затрудняет интерпретацию этих пиков и анализ их характеристик. Для второго образца с низкой плотностью КТ (~ 10^6 см⁻²) среднее расстояние между КТ составляет около 10 мкм (диаметр лазерного пятна на поверхности образца ~2 мкм), что уверенно позволяет возбуждать и анализировать люминесценцию одиночных InAs квантовых точек, не прибегая к дополнительным нанотехнологическим операциям, таким как формирование субмикронных мез или субмикронных апертур в слоях металла, нанесённого на поверхность структуры [16, 17, 22].

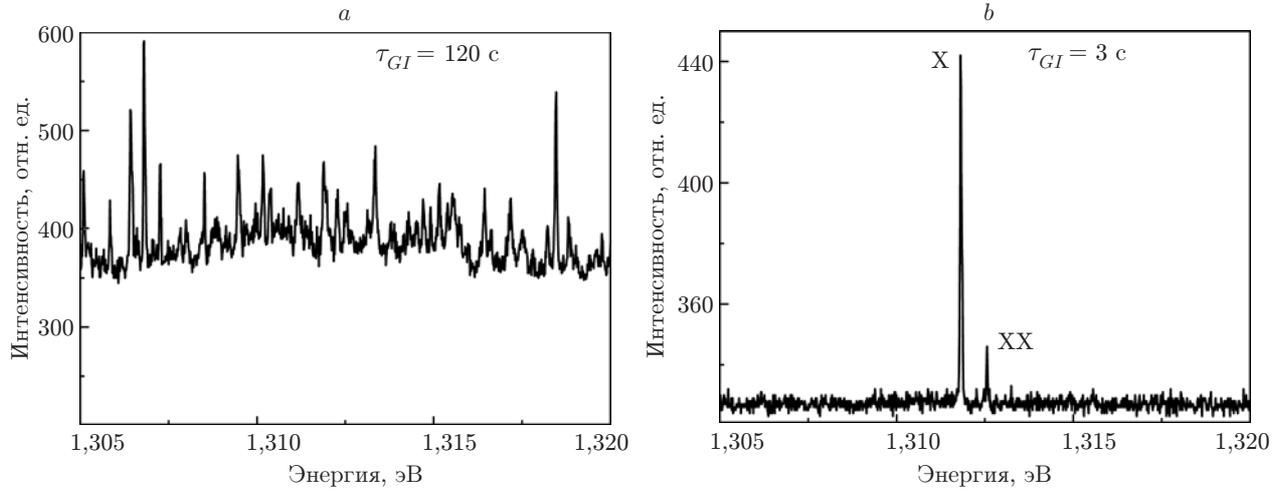


Рис. 1

Спектр микролюминесценции второго образца (см. рис. 1, *b*) содержит два узких пика, отвечающих люминесценции экситона (X) и биэкситона (XX) одиночной КТ InAs. Интерпретация пиков люминесценции одиночных КТ проводилась с использованием зависимостей интенсивностей пиков от плотности мощности излучающего лазера. При наименьших плотностях мощности в спектрах люминесценции в первую очередь проявляются пики экситонов X и зависимость их интенсивности от плотности мощности линейна. При больших плотностях мощности в спектрах появляются пики биэкситонов XX, интенсивность которых возрастает по квадратичному закону от плотности мощности лазера [23].

В КТ InAs малого размера, исследуемых в данной работе, электронные и дырочные уровни содержат лишь основные состояния. Проекция спина электронов на ось роста z составляет $\pm 1/2$. В валентной зоне локализуются только тяжёлые дырки (проекция моментов на ось роста $\pm 3/2$) [5]. Соответственно существуют четыре различных экситонных состояния с полными моментами $M = 2, 1, -1, -2$. Все они вырождены по энергии. Четырёхкратное вырождение снимается за счёт электронно-дырочного обменного взаимодействия. Оно приводит к образованию двух пар экситонных состояний с полными моментами $M = 2, -2$ (оптически неактивные экситоны) и $M = 1, -1$ (оптически активные экситоны). Последняя пара экситонных состояний двукратно вырождена по энергии. В реальных КТ снимается и двукратное вырождение по энергии оптически активных экситонов за счёт отклонения КТ от идеальной формы, а также влияния пьезопотенциала, индуцированного встроенными механическими напряжениями [16, 17].

Величина расщепления экситонных уровней ΔE_{FS} определяется как степень отклонения формы КТ от идеальной, так и влиянием пьезопотенциала, значение которого возрастает с увеличением размера КТ [5, 16, 17]. На величину ΔE_{FS} оказывают влияние электрические и магнитные поля, а также постростовые воздействия, например высокотемпературный отжиг [5]. При ΔE_{FS} , значительно превосходящих Γ_X , излучения экситона и биэкситона линейно поляризованы вдоль кристаллографических направлений [110] и $[1\bar{1}0]$ [5, 16, 17]. На рис. 2 приведены энергетическая диаграмма экситонных состояний КТ InAs и иллюстрация излучательных процессов рекомбинации экситона и биэкситона для случая $\Delta E_{FS} \gg \Gamma_X$. В КТ, содержащей два электрона и две дырки (биэкситонное состояние), за время τ_{XX} рекомбинирует первая электронно-дырочная пара с образованием фотонов, поляризованных вдоль кристаллографического направления [110] или $[1\bar{1}0]$ (на рисунке обозначены $XX[110]$ и $XX[1\bar{1}0]$). После чего квантовая точка переходит в эк-

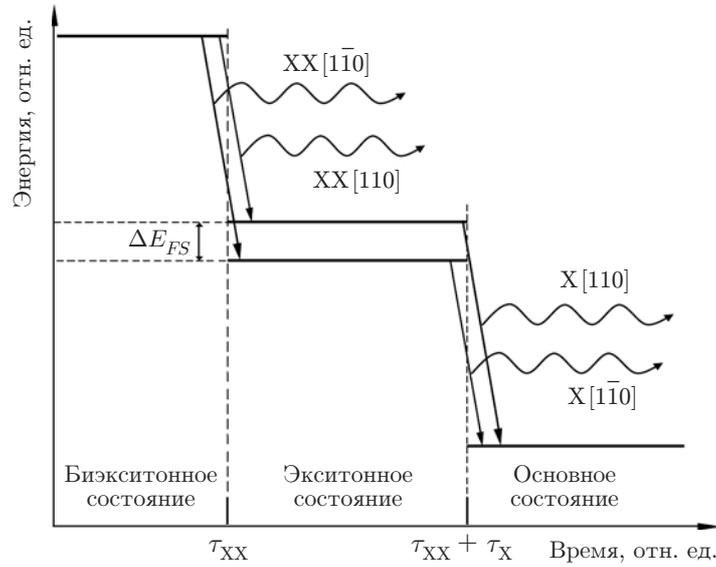


Рис. 2

ситонное состояние и содержит одну электронно-дырочную пару, которая рекомбинирует по прошествии времени τ_X . При этом образуются фотоны с той же поляризацией вдоль направления [110] или $[1\bar{1}0]$ (фотоны, отвечающие рекомбинации экситонов на рис. 2 обозначены X[110] и X[110̄]). Как видно из диаграммы, энергии фотонов XX[110] и XX[110̄], а также фотонов X[110] и X[110̄] отличаются на величину ΔE_{FS} . Соответственно спектры люминесценции, записанные для поляризаций вдоль направлений [110] и $[1\bar{1}0]$ будут содержать пики экситонов X[110] и X[110̄] и биекситонов XX[110] и XX[110̄], смещённых относительно друг друга на величину ΔE_{FS} , что позволяет непосредственно из спектров излучения находить параметр расщепления экситонных состояний ΔE_{FS} (рис. 3, a, b). В данной работе величина ΔE_{FS} определялась как разница энергий фотонов X[110] и X[110̄], отвечающих экситонной рекомбинации в КТ.

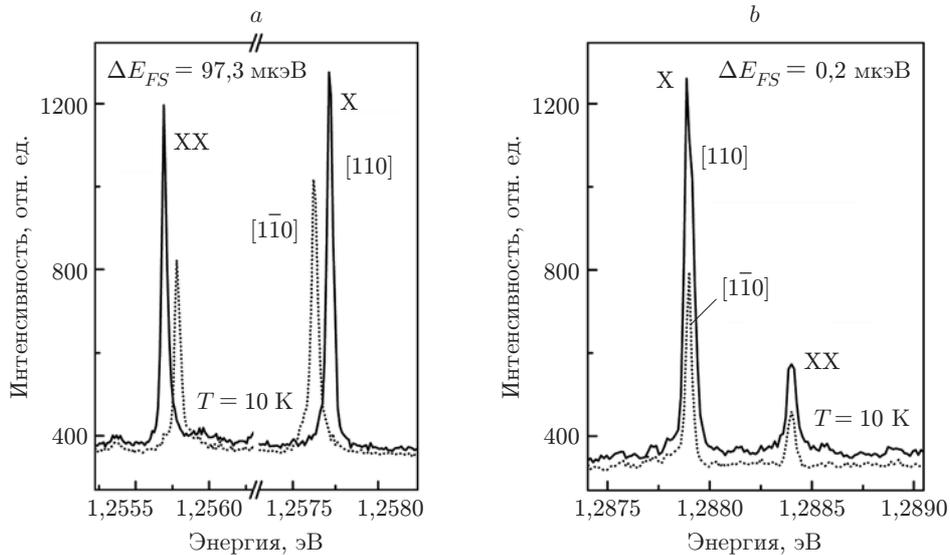


Рис. 3

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

В данной работе для увеличения точности определения параметра ΔE_{FS} экспериментальные контуры пиков люминесценции аппроксимировались контурами Лоренца. Максимум контура Лоренца принимался за максимум пика. С использованием аппроксимации погрешность в определении параметра ΔE_{FS} составляла $\sigma_{FS} = \pm 1,6$ мкэВ, что сравнимо с естественной шириной экситонных пиков Γ_X .

Параметр ΔE_{FS} был определён для 135 одиночных КТ. На рис. 4 приведены экспериментальные данные для ΔE_{FS} . Отметим основные закономерности полученной зависимости. С уменьшением энергии экситона (с ростом размера КТ) наблюдается монотонный рост ΔE_{FS} от малых значений до значений ~ 100 мкэВ при энергиях экситона $\sim 1,22$ эВ, а также большой разброс значений ΔE_{FS} при заданной энергии экситона. Эти закономерности отмечались ранее [5, 16, 17], рост ΔE_{FS} связан с увеличением пьезопотенциала с ростом размеров КТ, большие флуктуации параметра ΔE_{FS} обусловлены отклонением формы КТ от идеальной: снижением симметрии КТ с C_{4v} до C_{2v} , флуктуациями аспектного отношения вертикальных и латеральных размеров КТ.

Наиболее важной особенностью полученной зависимости является наличие группы КТ с энергией экситонов в интервале 1,3–1,4 эВ, для которых ΔE_{FS} близко к нулю в пределах точности измерений $\pm 1,6$ мкэВ. К этой группе относятся КТ наименьшего размера, где пьезопотенциал не приводит к заметному расщеплению экситонных состояний. На рис. 4 группа отмечена прямоугольной рамкой. На вставке приведена гистограмма распределения числа КТ от ΔE_{FS} для интервала от -10 до 40 мкэВ, ширина столбца равна

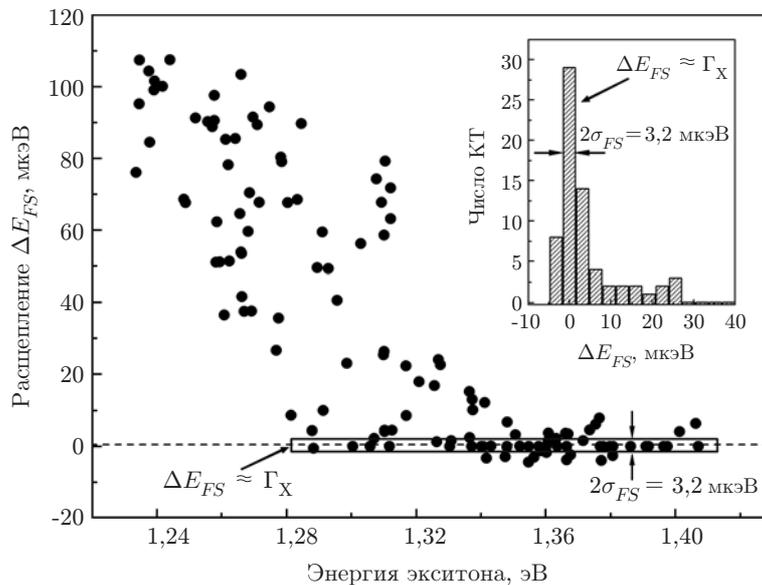


Рис. 4

удвоенной погрешности измерений 3,2 мкэВ, сравнимой с естественной шириной экситонных уровней Γ_X . Как видно из гистограммы, максимум распределения приходится на КТ с $\Delta E_{FS} = 0 \pm 1,6$ мкэВ. Очевидно, что данная выборка КТ представляет большой интерес для создания ИФП.

Заключение. В предлагаемой работе показано, что структуры с квантовыми точками InAs, выращенными по механизму Странского — Крастанова с малым временем прерывания роста, содержат субансамбли КТ с $\Delta E_{FS} \approx \Gamma_X$, пригодные для создания излучателей пар запутанных фотонов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Bimberg D., Grundmann M., Ledentsov N.** Quantum Dot Heterostructures. Chichester: John Wiley & Sons, 1999. 328 p.
2. **Single Quantum Dots, Fundamentals, Applications and New Concepts** /Ed. P. Michler. Berlin: Springer-Verlag, 2003. 347 p.
3. **Semiconductor Nanostructures** /Ed. D. Bimberg. Berlin: Springer-Verlag, 2008. 357 p.
4. **Self-Assembled Quantum Dots** /Ed. Z. M. Wang. N. Y.: Springer Science + Business Media, LLC, 2008. 463 p.
5. **Single Semiconductor Quantum Dots** /Ed. P. Michler. Berlin: Springer-Verlag, 2009. 389 p.
6. **Bouwmeester D., Ekert A. K., Zeilinger A.** The Physics of Quantum Information. Berlin: Springer, 2000. 314 p.
7. **Gisin N., Ribordy G., Tittel W., Zbinden H.** Quantum cryptography // Rev. Modern Phys. 2002. **74**, N 1. P. 145–195.
8. **Walls D. F., Milburn G. J.** Quantum Optics. Berlin: Springer-Verlag, 2008. 425 p.
9. **Lochmann A., Stock E., Schulz O. et al.** Electrically driven single quantum dot polarised single photon emitter // Electron. Lett. 2009. **45**, N 13. P. 566–567.
10. **Bimberg D., Stock E., Lochmann A. et al.** Quantum dots for single- and entangled-photon emitters // IEEE Photon. Journ. 2009. **1**, N 1. P. 58–68.
11. **Heindel T., Kessler C., Rau M. et al.** Quantum key distribution using quantum dot single-photon emitting diodes in the red and near infrared spectral range // New Journ. Phys. 2012. **14**. 083001.
12. **Benson O., Santori C., Pelton M., Yamamoto Y.** Regulated and entangled photons from a single quantum dot // Phys. Rev. Lett. 2000. **84**, N 11. P. 2513–2516.
13. **Stevenson R. M., Young R. J., Atkinson P. et al.** A semiconductor source of triggered entangled photon pairs // Nature. 2006. **439**. P. 179–182.
14. **Mohan A., Felici M., Gallo P. et al.** Polarization-entangled photons produced with high-symmetry site-controlled quantum dots // Nature Photon. 2010. **4**. P. 302–306.
15. **Stevenson R. M., Salter C. L., Nilsson J. et al.** Indistinguishable entangled photons generated by a light-emitting diode // Phys. Rev. Lett. 2012. **108**, N 4. 040503.
16. **Seguin R., Schliwa A., Germann T. D. et al.** Control of fine-structure splitting and excitonic binding energies in selected individual InAs/GaAs quantum dots // Appl. Phys. Lett. 2006. **89**, N 26. 263109.
17. **Seguin R., Schliwa A., Rodt S. et al.** Quantum-dot size dependence of exciton fine-structure splitting // Physica E. 2006. **32**, N 1–2. P. 101–103.
18. **Li L. H., Chauvin N., Patriarche G. et al.** Growth-interruption-induced low-density InAs quantum dots on GaAs // Journ. Appl. Phys. 2008. **104**, N 8. 083508.

19. **Krzyzewski T. J., Jones T. S.** Ripening and annealing effects in InAs/GaAs(001) quantum dot formation // Journ. Appl. Phys. 2004. **96**, N 1. P. 668–674.
20. **Muller-Kirsch L., Heitz R., Pohl U. W. et al.** Temporal evolution of GaSb/GaAs quantum dot formation // Appl. Phys. Lett. 2001. **79**, N 7. P. 1027–1029.
21. **Pohl U. W., Pötschke K., Schliwa A. et al.** Evolution of a multimodal distribution of self-organized InAs/GaAs quantum dots // Phys. Rev. B. 2005. **72**, N 24. 245332.
22. **Moreau E., Robert I., Gérard J. M. et al.** Single-mode solid-state photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities // Appl. Phys. Lett. 2001. **79**, N 18. P. 2865–2867.
23. **Thompson R. M., Stevenson R. M., Shields A. J. et al.** Single-photon emission from exciton complexes in individual quantum dots // Phys. Rev. B. 2001. **64**, N 20. 201302.

Поступила в редакцию 24 июня 2013 г.
