VILNIAUS UNIVERSITETAS FIZIKOS FAKULTETAS PUSLAIDININKIŲ FIZIKOS KATEDRA

Evelina Pozingytė

EPITAKSINIŲ InAs KVANTINIŲ TAŠKŲ DARINIŲ FOTOATSPINDŽIO SPEKTROSKOPIJA

Magistratūros studijų baigiamasis darbas (studijų programa- APLINKOS IR CHEMINĖ FIZIKA)

Studentas Darbo vadovas Recenzentas Katedros vedėjas Evelina Pozingytė dr. Ramūnas Nedzinskas doc. dr. Ramūnas Aleksiejūnas prof. habil. dr. Gintautas Tamulaitis

Vilnius 2016

Turinys

Sa	ntru	mpos	3							
Da	arbo	rezultatų viešinimas	4							
Įvadas										
1	Lite	ratūros apžvalga ir teorinis įvadas	6							
	1.1	Kvantiniai taškai	6							
		1.1.1 Saviformuojantys kvantiniai taškai	6							
		1.1.2 Molekulių pluoštelio epitaksija	7							
		1.1.3 InAs kvantinių taškų tyrimų apžvalga	7							
		1.1.4 InAs/InGaAs/GaAs kvantinių taškų pritaikymas	11							
	1.2	Kvantinių taškų optinė spektroskopija	13							
		1.2.1 Fotoliuminescencija	13							
		1.2.2 Moduliacinė spektroskopija	13							
2	Ban	diniai ir eksperimento metodika	16							
	2.1	InGaAs kvantinių taškų bandiniai	16							
	2.2	Eksperimento metodika	16							
3	Rez	ultatai ir jų aptarimas	20							
	3.1	Fotoliuminescencijos matavimai	20							
	3.2	Įtempimus sumažinančio InGaAs sluoksnio įtaka	21							
	3.3	Atspindžio nuo padėklo paviršiaus įtaka	24							
	3.4	Fotomoduliacijos mechanizmai	25							
	3.5	Temperatūriniai fotoatspindžio matavimai	26							
	3.6	Temperatūrinis intensyvumo gesimas	27							
	3.7	Optinių šuolių energijos priklausomybė nuo temperatūros	28							
	3.8	Skaitmeniniai DWELL bandinio energijos spektro skaičiavimai	30							
4	Išva	dos ir pagrindiniai rezultatai \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	32							
Išv	Išvados									
$\mathbf{Li}^{\mathbf{r}}$	${ m Literatar{u}ra}$									
Santrauka										
Santrauka 37 Summary 38										

Santrumpos

_

Santrumpa	Paaiškinimas			
CER	Bekontaktis elektrinis atspindys (contactless electroreflectance)			
DPSS	Diodu kaupinamas kietakūnis lazeris ($diode-pumped \ solid-state$)			
DWELL	Taškai, įterpti į sudėtinę kvantinę duobę ($dots{\text{-}in{\text{-}a{-}well}})$			
\mathbf{ER}	Elektrinis atspindys (<i>electroreflectance</i>)			
ES	Sužadinta būsena (<i>excited-state</i>)			
GS	Pagrindinė būsena (ground-state)			
IR	Infraraudonoji spinduliuotė (infrared radiation)			
ITO	Indžio-alavo-oksido elektrodas (<i>indium-tin-oxyde</i>)			
LWIR	Tolimoji infraraudonoji spinduliuotė (long wavelength infrared)			
MBE	Molekulių pluoštelio epitaksija (molecular beam epitaxy)			
MWIR	Vidurinioji infraraudonoji spinduliuotė (mid wavelength infrared)			
PA	Fotomoduliuota sugertis (photoabsorption)			
PL	Fotoliuminescencija (photoluminescence)			
PLE	Fotoliuminescencijos žadinimas (photoluminescence excitation)			
\mathbf{PR}	Fotoatspindys (<i>photoreflectance</i>)			
PRE	Fotoatspindžio žadinimas (photoreflectance excitation)			
QCSE	Kvantiškai apribotas Štarko efektas (quantum-confined Stark effect)			
QD	Kvantinis taškas ($quantum \ dot$)			
QDIP	Kvantinių taškų IR fotojutiklis (quantum dots infrared photodetector)			
QW	Kvantinė duobė (quantum well)			
QWIP	Kvantinių duobių IR fotjutiklis (quantum well infrared photodetector)			
R	Atspindys (reflectance)			
SK	Stranskio-Krastanovo moda (Stranski-Krastanow mode)			
T	Pralaidumas (transmittance)			
WL	Drėkinantysis sluoksnis (<i>wetting layer</i>)			

Darbo rezultatų viešinimas¹

Mokslinės publikacijos

 R. Nedzinskas, B. Čechavičius, A. Rimkus, E. Pozingytė, J. Kavaliauskas, G. Valušis, Li. Li ir E. H. Linfield. *Temperature-dependent modulated reflectance of InAs/InGaAs/GaAs quantum dots-in-a-well infrared photodetectors*. Journal of Applied Physics, 117(14), 144304 (2015).

Pranešimai mokslinėse konferencijose

- E. Pozingytė, A. Rimkus, R. Nedzinskas, B. Čechavičius, J. Kavaliauskas, G. Valušis. Temperature-dependent Photoreflectance and Photoluminescence Spectroscopy of InAs Quantum Dots-in-a-Well Structures, Naujametė fizikos konferencija, Vilnius, Lietuva, sausio 2-3 d. 2015 m.
- E. Pozingytė, A. Rimkus, R. Nedzinskas. Temperature-dependent Photoreflectance Spectroscopy of InAs Dots-in-a-Well Structures, Open Readings 2015. 58th Scientific Conference for Students of Physics and Natural Sciences, Vilnius, Lietuva, kovo 24-27 d. 2015 m.
- A. Rimkus, E. Pozingytė, R. Nedzinskas, B. Čechavičius. Comparative Spectroscopy Study of InAs Dots-in-a-Well Quantum Structures with/without InGaAs Cap Layer, Open Readings 2015. 58th Scientific Conference for Students of Physics and Natural Sciences, Vilnius, Lietuva, kovo 24-27 d. 2015 m.
- A. Rimkus, E. Pozingytė, R. Nedzinskas, B. Čechavičius. Temperature-dependent Spectroscopic Study of InAs Dots-in-a-Well Structures with InGaAs capping Layer. OPTO2015, Vroclavas, Lenkija, gegužės 27-29 d. 2015 m.
- E. Pozingytė, A. Rimkus, R. Nedzinskas, V. Karpus, B. Čechavičius, J. Kavaliauskas, G. Valušis. Analitinis modelis cilindrinių kvantinių taškų ir kvantinių strypelių elektronų energijos spektro skaičiavimams. 41-oji Lietuvos Nacionalinė Fizikos Konferencija, Vilnius, Lietuva, birželio 17-19 d. 2015 m.
- R. Nedzinskas, A. Rimkus, E. Pozingytė, B. Čechavičius, J. Kavaliauskas, G. Valušis, L. Li, and E. Linfield. *Tarpjuostiniai elektroniniai šuoliai InAs/InGaAs kvantinių taškų hete-rodariniuose*. 41-oji Lietuvos Nacionalinė Fizikos Konferencija, Vilnius, Lietuva, birželio 17-19 d. 2015 m.
- 7. E. Pozingytė, A. Rimkus, R. Nedzinskas, B. Čechavičius, J. Kavaliauskas, G. Valušis, L. Li and E. H. Linfield. *Temperature-dependent Photomodulated Reflectance of InAs/InGaAs Dots-in-a-Well Quantum Structures*. 44th "Jaszoviec" International School and Conference on the Physics of Semiconductors, Visla, Lenkija, birželio 20-25 d. 2015m

¹Straipsnis ir konferencijų tezės pateikti "Priedai".

Įvadas

Saviformuojantys InAs kvantiniai taškai (QD) dėl unikalių tik atomams būdingų savybių (trimačio kvantinio apribojimo, diskretinio energijos lygmenų spektro, delta-tipo būsenų tankio ir kt.) yra plačiai tyrinėjami ir fundamentiniu aspektu, ir šiuolaikinės optoelektronikos prietaisų — jutiklių ir lazerių — kūrimo reikmėms [1–6]. Naujos kartos kvantinių taškų IR fotojutikliuose aktyviąją terpę sudaro InAs kvantiniai taškai (QD), įterpti į sudėtinę InGaAs/GaAs kvantinę duobę (QW). Šie vadinamieji DWELL jutikliai pranašesni už savo pirmtakus kvantinių duobių (QWIP) ir kvantinių taškų (QDIP) IR fotojutiklius, nes leidžia registruoti statmenai krintančią IR spinduliuotę, o taip pat keičiant taško aplinką ar/ir išoriniu elektriniu lauku derinti fotoatsako bangos ilgį [3,7]. Optimizuojant DWELL medžiaginės sudėties ir sluoksnių storių parametrus, tokių struktūrų tarppajuostinių (*intraband*) elektroninių šuolių energija atitinka viduriniųjų (3–5 μ m, MWIR) ir tolimųjų IR (8–12 μ m, LWIR) spindulių spektrinį ruožą. Kita vertus, šie InAs/InGaAs DWELL dariniai leidžia ženkliai paslinkti emisijos maksimumą (nuo 1,1 μ m InAs/GaAs taškuose) į raudonąją spektrinę sritį. Todėl, išnaudojant tarpjuostinius (*interband*) šuolius tarp pagrindinių QD būsenų, iš DWELL darinių galima suprojektuoti lazerius, emituojančius standartinių telekomunikacijos bangos ilgių — 1,3 μ m ir 1,55 μ m — spinduliuotę.

Siekiant ištobulinti InGaAs kvantinių taškų heterodarinių auginimo technologiją ir pritaikyti šiuos kvantinius darinius šiuolaikiniuose optoelektronikos komponentuose, būtina detaliai žinoti tokių struktūrų elektroninę sandarą ir optines savybes. InGaAs nanodarinių energijos lygmenų spektrą ir optinius ypatumus galima sėkmingai tirti bandinio nesuardančiais optinės spektroskopijos metodais: fotoliuminescencija (PL) [8], fotoliuminescencijos žadinimu (PLE) [9], moduliacine spektroskopija (MS) [10–12] ir kt. Šiame darbe kaip pagrindinis QD darinių charakterizavimo instrumentas naudojama fotoatspindžio (PR) moduliacinė spektroskopija. Tiesiogiai eksperimentiškai spektro išvestinę leidžiančio matuoti PR metodo pagrindinis privalumas lyginant su PL yra tas, kad galima registruoti tarpjuostinius optinius šuolius ne tik iš žemiausių QD, bet ir iš aukštesnių QW būsenų, taip atskleidžiant optinių perėjimų herterodarinyje visumą [13–15].

Šio darbo tikslas buvo išsamiai ištirti InAs/InGaAs DWELL darinių optinį atsaką, taikant fotoatspindžio spektroskopiją 3–300 K temperatūroje. Šiam tikslui pasiekti buvo suformuluoti tokie uždaviniai:

- ištirti tarpjuostinius optinius šuolius InAs/GaAs ir InAs/InGaAs/GaAs kvantinių taškų heterostruktūrose, taikant fotoatspindžio spektroskopiją 3–300 K temperatūroje;
- atlikti fotoatspindžio signalo intensyvumo ir optinių šuolių energijų priklausomybės nuo temperatūros analizę;
- nustatyti moduliacinius mechanizmus, kurie daro įtaką fotoatspindžio linijos formai ir intensyvumui, keičiantis temperatūrai.

1 Literatūros apžvalga ir teorinis įvadas

1.1 Kvantiniai taškai

Puslaidininkiniai kvantiniai taškai (quantum dots, QD) yra nulinės dimensijos (**0-D**) dariniai, kuriuose elektronai erdvėje apriboti (lokalizuoti) visomis trimis kryptimis. Tiek natūralių atomų, tiek ir sintetinių — kvantinių taškų — energijos spektrą sudaro diskretiniai lygmenys. Optinį šių darinių atsaką vienareikšmiškai apsprendžia energijos lygmenų išsidėstymas valentinėje ir laidumo juostose. Energijos lygmenų pádėtis (taigi, ir fotoatsaką) galima paslankiai valdyti juostinės struktūros modeliavimo ir medžiagų inžinerijos pagrindu. Epitaksinio QD auginimo metu galima keisti taško vidinius-struktūrinius parametrus (geometriją, medžiaginę sudėtį), o prie suformuotos kvantinės heterostruktūros prijungę išorinį elektrinį lauką galima valdyti elektronus izoliuojantį potencialą. Dėl šių priežasčių kvantiniai taškai yra iki šiol plačiai tyrinėjami ir naudojami nano-elektronikoje ir fotonikoje [16].

1.1.1 Saviformuojantys kvantiniai taškai

Šiame darbe tiriami saviformuojančių (*self-assembling*) arba Stranskio-Krastanovo (SK) kvantinių taškų heterodariniai. SK auginimo esmė yra ta, kad QD auginami epitaksinių sluoksnių nusodinimo metodais iš puslaidininkių, kurių gardelės konstantos ženkliai skiriasi. Didesnės gardelės konstantos puslaidininkio (pvz., InAs) epitaksinis sluoksnis yra nusodinamas ant mažesnės gardelės konstantos puslaidininkio (pvz., GaAs) padėklo. Iš pradžių episluoksnio medžiaga imituoja padėklo gardelę, tačiau pasiekus kritinį storį įtempimo energija yra išlaisvinama atomams susigrupuojant į "nanosaleles" — kvantinius taškus (**1 pav.**). Kitaip tariant, SK metodu sintetinamų QD procesas susideda iš dviejų etapų — 2-D sluoksnio ir 3-D "salelės" augimo. Pažymėtina, kad plonas (~ 5 Å) saviformuojančių QD pasluoksnis — drėkinantysis sluoksnis (*wetting layer*, WL) — egzistuoja visada, nepriklausomai nuo QD tankio.

Vieni SK metodo privalumų yra palyginti lengva QD augimo parametrų kontrolė, išaugintų taškų dydžio homogeniškumas [16, 17]. Esminis trūkumas — atsitiktinės QD padėtys ant padėklo (dėl saviformuojančios QD prigimties; analogija su vandens lašais ant stiklo).



1 pav. Stranskio-Krastanovo kvantinis taškas. Adaptuota iš [16].

1.1.2 Molekulių pluoštelio epitaksija

Visos šiame darbe tiriamos struktūros buvo išaugintos molekulių pluoštelio epitaksijos (*molecular beam epitaxy*, MBE) metodu. Šiuo metodu auginamų sluoksnių storis dėl mažo nusodinimo greičio (< 1 μ m/h) gali būti kontroliuojamas monosluoksnio tikslumu. Taip pat MBE metodu galima užauginti labai grynus bandinius, kurių paviršiai minimaliai šiurkštūs.

Epitaksiniam auginimui MBE būdu reikalingas superaukštas vakuumas ($<10^{-8}$ Pa). MBE auginimo metu gryni elementai (In, Ga, As₂ arba As₄, Si ir t.t.) yra patalpinti atskirose efuzinėse celėse, kur yra kaitinami, kol pradeda lėtai sublimuoti. Tada kompiuteriu valdant sklendes, esančias prieš kiekvieną celę, tikslai kontroliuojamas išeinantis medžiagų srautas. Medžiagos garinamos ant pastoviu greičiu besisukančio padėklo, ant jo kondensuojasi ir taip sluoksnis po sluoksnio užauginama norima struktūra. Padėklas sukamas tam, kad būtų suvienodintas užgarintos medžiagos pasiskirstymas. Episluoksnių auginimo metu bandinio paviršius yra stebimas aukštos energijos elektronų difrakcijos (*Reflection High Energy Electron Diffraction*, RHEED) metodu [18].

Norint užauginti saviformuojančius kvantinius taškus, reikia, kad susiformuotų epitaksinės salelės. Dėl to, puslaidininkis turintis didesnę gardelės konstantą nusodinamas ant padėklo su mažesne gardelės konstanta. Visgi, kad formuotųsi QD, auginamų sluoksnių gardelių nesuderinamumas turi būti gana mažas (1–10 %), o tai labai apriboja tinkamų medžiagų pasirinkimą [19].

1.1.3 InAs kvantinių taškų tyrimų apžvalga

Šiame skyrelyje pristatomos įdomesnės su magistratūros baigiamojo darbo tema susijusios kitų mokslinių grupių publikacijos. Pristatomuose straipsniuose tiriami panašūs bandiniai ir nagrinėjami panašūs reiškiniai, todėl jų apžvalga leidžia lengviau suprasti "Rezultatų ir jų aptarimo" skyriuje aiškinamus spektrus ir daromas prielaidas.

PR moduliacijos mechanizmai

Motyka *et al.* darbe [9] buvo tirti moduliuoto fotoatspindžio moduliacijos mechanizmai savitvarkiuose InAs QD, pasitelkus moduliuoto fotoatspindžio žadinimo (PRE) ir fotoliuminescencijos žadinimo (PLE) eksperimentinius metodus. Straipsnyje autoriai išskyrė du galimus moduliacijos mechanizmus, kuriuos lemia:

- būsenų užpildymas (Pauli draudimas),
- kvantiškai apribotas Štarko efektas (quantum-confined Stark effect, QCSE).

Norėdami išsiaiškinti, kuris šių efektų yra atsakingas už fotomoduliaciją, autoriai analizavo QD PRE ir PLE spektrus. Iš **2 pav.** matyti, kad PRE ir PLE spektrai nepersikloja. PLE signalas staigiai krinta, kai žadinimo energija tampa mažesnė už GaAs draustinės juostos tarpo energiją (fotogeneruotų elektronų-skylių porų koncentracija staigiai mažėja). Visgi, kai žadinimo energija sutampa su tarpjuostinių šuolių WL energija, stebimas nedidelis PLE signalo intensyvumo



2 pav. InAs QD darinio PRE ir PLE spektrai 300 K temperatūroje. Adaptuota iš [9].



3 pav. InAs QD darinio PR (a) ir CER (b) spektrai 300 K temperatūroje. Adaptuota iš [9].

padidėjimas. Kitaip negu PLE spektre, PRE signalas registruojamas net kai fotono energijos yra mažesnės už GaAs draustinės juostos tarpą. Tai susiję su tuo, kad bandinį apšviečiant mažesne fotono energija vis tiek sukeliama vidinio lauko moduliacija. Iš esmės tai reiškia, kad nebūtina fotogeneruotiems krūvininkams pasiekti QD, kad būtų daroma įtaka moduliacijai. Straipsnyje suformuluojama išvada, kad pagrindinis PR signalo moduliaciją veikiantis efektas yra kvantiškai apribotas Štarko efektas [9].

Šią išvadą pagrindžia bekontakčio elektrinio atspindžio (CER) ir moduliuoto fotoatspindžio (PR) matavimo rezultatai (**3 pav.**). PR ir CER užregistruotų spektrinių linijų formos atitikimas įrodo tai, kad dominuojantis efektas veikiantis moduliaciją yra iš esmės susijęs su paviršinio elektrinio lauko moduliacija.

InAs kvantiniai taškai įvairiose (In)GaAs aplinkose

2014 m. O. Nasr *et al.* [15] publikavo darbą, kuriame pristatė InAs optinių savybių priklausomybės nuo kvantinį tašką supančios aplinkos tyrimą, naudojant moduliuoto fotoatspindžio (PR)



4 pav. InAs QD patalpintų skirtingose terpėse 12K-PL spektrai (a), taip pat visų tirtų bandinių QD GS šuolio energijos (b) ir PL intensyvumo (c) priklausomybės nuo temperatūros. Adaptuota iš [15].

ir fotoliuminescencijos (PL) metodus. Straipsnyje aptariami 4 InAs QD įvairiose (In)GaAs aplinkose bandiniai: InAs QD įterpti į GaAs matricą (QDs), taip pat InAs QD padengti įtempimus sumažinančiu dengiančiuoju $In_{0,15}Ga_{0,85}As$ sluoksniu (QDCL), InAs QD užauginti ant $In_{0,15}Ga_{0,85}As$ sluoksnio (QDUL) ir InAs QD įterpti į $In_{0,15}Ga_{0,85}As$ sluoksnį (DWELL).

Visų pirma autoriai palygino visų 4 bandinių 12K–PL spektrus, esant skirtingo intensyvumo sužadinimui (**4 pav., a**). PL spektruose stebimą 34 meV ir 40 meV QD GS raudonąjį poslinkį QDCL ir DWELL bandiniams autoriai aiškina įtempimų sumažėjimu ir/arba auginimo metu padidėjusiais QD matmenimis dėl dengiančiojo InGaAs sluoksnio. Netikėtas, QDUL bandinio QD GS linijos mėlynasis poslinkis ir linijų puspločių padidėjimas paaiškintas tuo, kad padidinus po QD esančio InGaAs sluoksnio storį labai išauga QD dydžio dispersija. Tai lemia didesnį nespindulinių relaksacijos kanalų skaičių ir emisiją iš koherentiškų mažų QD. Norint detaliai ištirti InAs QD įvairiose Ga(In)As aplinkose straipsnyje pristatoma ir temperatūrinių PL spektrų Varšni ir Arenijaus analizės (**4 pav., b, c**). Iš (**4 pav., b**) matyti, kad QDs, QDCL ir DWELL bandinių QD GS energijos priklausomybė nuo temperatūros seka Varšni dėsnį visame temperatūrų intervale. Tačiau, QDUL bandiniui aukštesnėse už 100 K temperatūros stebimas spartesnis QD GS energijos mažėjimas nei numato Varšni dėsnis. Autoriai šį nukrypimą aiškina tuo, kad QDUL bandinyje krūvininkai iš mažesnių QD termiškai persiskirsto į didesnius QD, kurių energija mažesnė. Iš Arenijaus derinimo rezultatų (4 pav., c) buvo nustatytos visų bandinių aktyvacijos energijų vertės. Paaiškėjo, kad bandiniai QDs ir QDUL turi po 2, o bandiniai QDCL ir DWELL po 3 terminės aktyvacijos kanalus. Lyginant gautas aktyvacijos energijas su energijų skirtumais (ΔE) tarp įvairių tarpjuostinių šuolių tirtas struktūras sudarančiuose sluoksniuose nustatyta, kad relaksacijos kanalai žemose temperatūrose buvo siejami su terminės emisijos efektyvumu iš aukštesnių QD būsenų. Taip pat, nustatyta, kad auštose temperatūrose QDs ir QDUL bandiniuose terminė aktyvacija vyksta tiesiogiai iš InAs WL. Tuo tarpu, QDCL ir DWELL bandiniuose terminė aktyvacija vidutinėse temperatūrose vyksta iš QD į binarinę QD duobę susidedančią iš InAs WL ir InGaAs QW, o aukštose — tiesiai į GaAs barjerą.

InGaAs ir GaAsSb įtempimus sumažinantys sluoksniai

InGaAs įtempimus sumažinantis sluoksnis nėra vienintelis, kuris gali būti naudojamas auginant DWELL darinius. Hospodkova *et al.* straipsnyje [20] pristatė InAs QD, padengtų InGaAs ir GaAsSb įtempimus sumažinančiu sluoksniu, lyginamuosius tyrimus. Straipsnyje apžvelgiami InGaAs ir GaAsSb dengiančiųjų sluoksnių PL ir skaitmeninių skaičiavimų, atliktų su nextnano3 programa, rezultatai.

Visų pirma, dar kartą parodoma **5 pav., a**, kad InGaAs įtempimus sumažinantis sluoksnis lemia QD GS raudonąjį poslinkį dėl įtempimų sumažėjimo ir padidėjusių InAs QD matmenų. Taip pat autoriai pažymi, kad dėl mažo energijų skirtumo tarp QD GS ir pirmos ES, DWELL struktūros su InGaAs sluoksniu nėra optimalios lazerių gamybai. Dėl mažo QD GS ir pirmos



5 pav. InAs QD dengtų InGaAs (a) ir GaAsSb (b) sluoksniais PL spektrai. Elektronų ir skylių banginių funkcijų persiklojimo (c) ir skylių lokalizacijos (d) priklausomybės nuo Sb koncentracijos DWELL bandinyje su GaAsSb dengiančiuoju sluoksniu. [20].



6 pav. Apskaičiuotos I– ir II–tipo juostinės struktūros kartu su elektronų ir skylių banginėmis funkcijomis QD. Adaptuota iš [21].

ES energijų skirtumo padidėja tikimybė, kad emisija vyks iš sužadintos būsenos ir spinduliuotė bus išplitusi ar netinkamo bangos ilgio.

Iš **5 pav., b** matyti, kad naudojant GaAsSb sluoksnį, raudonasis QD GS poslinkis mažesnis. Be to, autoriai teigia, kad šiuo atveju QD matmenys nepadidėja. Visgi, GaAsSb sluoksnio naudojimas lemia DWELL darinio juostinės struktūros pokyčius **5 pav., c**. Padidinus Sb kiekį iki 13 % I–tipo heterosandūra tarp InAs QD ir GaAsSb QW virsta II–tipo heterosandūra (**6 pav.**). Dėl to raudonasis QD GS poslinkis padidėja, bet sumažėja elektronų ir skylių banginių funkcijų persiklojimas ir PL intensyvumas — esminiai trūkumai lazeriniams taikymams.

Visgi, autoriai teigia, kad naudojant GaAsSb sluoksnį galima keisti skylių lokalizaciją bandinyje, keičiant Sb koncentraciją. Esant mažai Sb koncentracijai, skylės lokalizuojasi prie QD taško pagrindo, o didinant Sb koncentraciją artėja prie QD viršūnės. Skaitmeniniai skaičiavimai tai patvirtino (**5 pav., d**). Ir nors esant I–tipo juostinei struktūrai skylių padėtis kinta labai nežymiai, tačiau dipolinio momento orientacija vis tiek keičiasi. Dipolinio momento vertė ir orientacija daro didelę įtaką elektronų ir skylių banginių funkcijų persiklojimui. Autoriai teigia, kad taip gali būti padidintas osciliatoriaus stipris, o kartu ir PL intensyvumas. Taip pat svarbu paminėti, kad net ir prie stiprių žadinimo verčių nebuvo stebima sužadinta būsena, o tai yra didelis privalumas norint naudoti InAs QD su GaAsSb sluoksniu lazeriuose.

1.1.4 InAs/InGaAs/GaAs kvantinių taškų pritaikymas

InAs kvantinius taškus padengus įtempimus sumažinančiu InGaAs sluoksniu, suformuojami DWELL kvantiniai dariniai. Keičiant InGaAs QW parametrus ir/ar pridedant išorinį elektrinį lauką galima efektyviai paslinkti šių struktūrų charakteringą bangos ilgį į ilgabangę spektrinę sritį. Tinkamai parinkus parametrus tokių struktūrų tarppajuostinių (*intraband*) elektroninių šuolių energija atitinka viduriniųjų (3–5 μ m, MWIR) ir tolimųjų infraraudonųjų (8–12 μ m, LWIR) spindulių spektrinį ruožą. Šie bangos ilgiai labai svarbūs projektuojant IR jutiklius aktualiems taikymams, išnaudojant spektrinius atmosferos "langus". Kita vertus, tokios DWELL struktūros gali būti pritaikytos ir telekomunikacijose kaip šviesos šaltiniai: išnaudojant tarpjuostinius (*interband*) šuolius tarp pagrindinių kvantinio taško būsenų galima suprojektuoti

lazerius, emituojančius 1,3 μ m ir 1,55 μ m bangos ilgio spinduliuotę [2,7,22,23].

Naujos kartos kvantinių taškų IR fotojutikliai (quantum dot infrared photodetectors, QDIP), kurių aktyviąją terpę sudaro DWELL struktūros (**7 pav., a**), daug pranašesni už kvantinių duobių IR fotojutiklius (quantum well infrared photodetectors, QWIP). Su QDIP galima efektyviai registruoti statmenai krintančią IR spinduliuotę, kas dėl kvantmechaninių atrankos taisyklių nebuvo galima naudojant QWIP. Taip pat QDIP efektinė krūvininkų gyvavimo trukmė yra santykinai ilgesnė [23, 24] ir tamsinė srovė daug žemesnė [3, 25]. Kvantinių taškų IR jutiklių



7 pav. a) DWELL darinio skerspjūvio TEM vaizdas; b) QDIPs veikimo principo schema [1].

veikimas yra paremtas tuo, kad energijų skirtumas tarp QD ir QW elektronų būsenų sutampa su norimu aptikti (detektuoti) bangos ilgiu. Taigi, elektronai užpildantys pagrindinę būseną yra rezonansiškai sužadinami į aukštesnius energijos lygmenis ir dalyvauja fotolaidume [1]. Jei tokią struktūrą paveikiama išoriniu elektriniu lauku, jos energijų juostos yra pakreipiamos (žiūrėti **7 pav., b**), dėl to atsiranda galimybė elektronams iš sužadintų būsenų tuneliuoti pro barjera.

Saviformuojantys InAs QD su dengiančiuoju InGaAs sluoksniu taip pat gali būti naudojami ir kaip aktyvioji šviesolaidinių telekomunikacinių lazerių terpė. Keičiant QD dydį ir QW duobės parametrus šis DWELL dizainas leidžia gana lengvai gauti telekomunikacijai svarbius 1,3 μ m ir 1,55 μ m bangos ilgius. Taip pat, dėl stipraus kvantinio ribojimo QD lazeriai pasižymi žema slenkstine srove, temperatūriniu stabilumu ir jiems reikalingas silpnas kaupinimas [4, 5]. QD lazerių veikimo principas paremtas tuo, kad QD pagrindinės būsenos eksitono energija atitinka norimą gauti bangos ilgį (**8 pav.**). Visgi, QD dydžių nehomogeniškumas lemia išplitusias QD emisijos linijas [6] ir ši problema iki šiol nėra išspręsta. Siekiant sumažinti kvantinių taškų didžių pasiskirstymą buvo pasiūlyta auginti kvantinius taškus ant šablonų (*mask pattern*) [26], tačiau taip užaugintų taškų PL intensyvumas buvo ženkliai mažesnis.

Taigi, siekiant nustatyti optimalius fizikinius parametrus ir technologines sąlygas mikro- ir optoelektronikos komponentų kūrimui ir plėtojimui, panaudojant kombinuotus InGaAs kvantinius darinius, būtina išsamiai žinoti tokių nanodarinių optines savybes bei elektroninę sandarą.



8 pav. QD lazerio tipinė struktūra ir veikimo principo schema.

1.2 Kvantinių taškų optinė spektroskopija

Šioje darbo dalyje trumpai pristatomi dviejų pagrindinių QD tyrimams naudojamų optinės sprektroskopijos metodų fizikiniai principai. Taip pat pristatomi fotoliuminescencijos ir moduliuotos spektroskopijos metodų privalumai bei trūkumai.

1.2.1 Fotoliuminescencija

Fotoliuminescencija (*photoluminescence*, PL) vadinamas procesas, kai šviesa sužadinti krūvininkai rekombinuodami į pagrindinę būseną išspinduliuoja šviesos kvantą [27]. Tai universalus, bekontaktis ir bandinio negadinantis metodas elektroninės medžiagų struktūros tyrimams. PL yra vienas pagrindinių įrankių, naudojamų tirti kvantines struktūras. Visgi, PL metodu tiriami tik mažiausios energijos tarpjuostiniai šuoliai (optiniai šuoliai tarp žemiausių laidumo juostos ir aukščiausių valentinės juostos būsenų). Taip pat, PL spektrinės juostos paprastai yra plačios, todėl gretimi optiniai ypatumai spektre persikloja ir juos sunku išskirti.

Norint PL metodu stebėti optinius šuolius iš aukštesniųjų (sužadintųjų) energijos lygmenų, reikia naudoti stipraus sužadinimo PL spektroskopija, bet tam reikalingi didelės galios lazeriai. Dėl to gali atsirasti papildomi nepageidaujami efektai, tokie kaip lokalus bandinio kaitimas. Be viso to, ir stipraus sužadinimo PL metodu ne visada galima stebėti fotoliuminescenciją iš aukštesnių sužadintų lygmenų [10]. Kita vertus, šiam tikslui galima naudoti fotoliuminescencijos žadinimo (*photoluminescence excitation*, PLE) metodiką, tačiau tam reikalingas derinamo bangos ilgio lazeris arba šviesos lempa ir monochromatorius.

1.2.2 Moduliacinė spektroskopija

Mokslinių darbų, paremtų moduliacine spektroskopija (modulation spectroscopy, MS), gausa [8–12, 15, 28] įrodo, kad ji yra vienas pagrindinių metodų tirti žemos dimensijos puslaidininkines nanostruktūras, tokias kaip kvantiniai taškai. Moduliacinės spektroskopijos eksperimente moduliuojamas tam tikras tiriamos struktūros parametras (vidinis elektrinis laukas, temperatūra, slėgis, įtempimai) ir registruojami atspindžio (R) arba pralaidumo (T) pokyčiai ΔR ar ΔT . Taigi, moduliacinėje spektroskopijoje tiesiogiai registruojamas diferencialinis tos sistemos optinio atsako spektras ir dėl to metodas pasižymi dideliu jautrumu.²

MS spektruose matomos ryškios siauros smailės, susijusios su tarpjuostiniais šuoliais energijų juostos ekstremumo aplinkoje [29]. Tūrinio GaAs atspindžio (R) ir elektrinio atspindžio (ER)



9 pav. GaAs atspindžio ir elektrinio atspindžio spektrai kambario temperatūroje [29].

spektrai kambario temperatūroje pateikiami **9 pav.** Atspindžio spektre optiniai ypatumai yra platūs ir sunku išskirti detales, tuo tarpu ER spektre stebimos ryškios ir išskiriamos spektrinės linijos, suteikiančios informaciją apie tarpjuostinius šuolius.

Moduliacinės spektroskopijos įvairovė plati (yra daug variantų pasirinkti moduliuojamą parametrą). Eksperimentiškai dažniausiai yra taikomi šie metodai. Elektrinio atspindžio spektroskopijoje išoriniu elektriniu lauku, o fotoatspindžio — lazerio spinduliuote moduliuojamas vidinis bandinio elektrinis laukas. Pjezoatspindžio spektroskopijoje moduliuojama išoriniu slėgiu veikiant bandinį. Termoatspindžio spektroskopijoje moduliuojama periodiškai keičiant bandinio temperatūrą (lėtas vyksmas). Be viso šito, papildomos informacijos gali duoti ir kitų moduliacijos kintamųjų, tokių kaip fazė, moduliacijos dažnis, amplitudė ir t.t., parinkimas.

Bekontaktis elektrinis atspindys

Šiame darbe buvo naudota bekontakčio elektrinio atspindžio (*contactless electroreflectance*, CER) spektroskopija. Matavimų metu bandinys yra veikiamas išoriniu periodiškai kintančiu (sinusiniu) lauku. Tai toks metodas, kai heterodarinio vidinis elektrinis laukas moduliuojamas naudojant į kondensatorių panašią sistemą. Bandinys yra patalpinamas tarp dviejų kontaktų. Viršutinis kontaktas yra pusiau skaidrus, paprastai, indžio-alavo-oksido (*indium-tin-oxyde*, ITO) arba varinio tinklelio, o apatinis — metalinis (varinis). Tokiu būdu ant bandinio gali būti pridedamos didelės (kilovoltų eilės) moduliuojančios įtampos. Šiuo metodu moduliuojami tik

 $^{^{2}}$ Moduliacinės spektroskopija leidžia matuoti 10^{-4} – 10^{-5} atspindžio arba pralaidumo santykinius pokyčius.

paviršiniai tiriamos struktūros sluoksniai (mažas zondavimo gylis palyginti su fotoatspindžio metodika) [30,31].

Fotoatspindys

Kitas labai efektyvus MS metodas yra fotoatspindžio (*photoreflectance*, PR) spektroskopija. Šis metodas labai panašus į elektrinio atspindžio metodą, tik šiuo atveju, moduliuojama naudojant koherentinį šviesos šaltinį (lazerį) ir mechaninį moduliatorių (*chopper*). Lazeris generuoja krūvininkus ir taip dėl kuloninės sąveikos keičia vidinių elektrinių laukų pasiskirstymą bandinyje. Šio metodo privalumas yra tas, kad nereikia specialaus bandinio paruošimo. Taip pat, parenkant skirtingus lazerio bangos ilgius gali būti keičiamas spinduliuotės įsiskverbimo (tuo pačiu ir moduliacijos) gylis.

Matuojant PR yra reikalingi atkertantys (*highpass*) filtrai, dėl to, kad lazerio spindulys yra moduliuojamas tuo pačiu dažniu, kaip ir registruojamas signalas. Be to, lazerio spinduliuotė sužadina bandinio liuminescenciją (ypač žemose temperatūrose arba esant stipriam lazerio intensyvumui), todėl PR spektre atsiranda integralinė fotoliuminescencijos dedamoji.Ši nepageidaujama fotoliuminescencija gali būti sumažinama naudojant ilgo židinio nuotolio optiką. Kitas būdas išvengti integralinės PL dedamosios — naudoti dviejų monochromatorių sistemą ir kartu su PR spektru registruoti PL spektrą, vėliau papildomo matavimo metu pastarąjį eliminuojant [32].

2 Bandiniai ir eksperimento metodika

2.1 InGaAs kvantinių taškų bandiniai

Šiame darbe tirti QD bandiniai buvo užauginti Leeds universitete (Didžioji Britanija) MBE metodu ant pusiau izoliuojančio GaAs (100) padėklo. Buvo tirtos dvi skirtingos InAs QD struktūros. Jų schemos pavaizduotos **10 pav.** InAs kvantiniai taškai buvo apsupti 30/35 nm storio GaAs kvantinių duobių (*quantum well*, QW) ir apriboti 5 nm storio AlAs barjerų. Tokios struktūros periodiškumas bandinyje L442 yra 10, o bandinyje L444 — 15. Abiejose struktūrose buvo užauginti saviformuojantys QD, nusodinant 2,4 InAs monosluoksnio. Bandinys L442 papildomai buvo padengtas 5 nm storio įtempimus mažinančiu $In_{0,15}Ga_{0,85}As$ sluoksniu. Tokiu būdu gauname dvi skirtingas kvantinių taškų, įterptų į sudėtines kvantines duobes (*dots-in-a-well*, DWELL) struktūras: InAs/GaAs/AlAs (bandinys L444, QDs) ir InAs/InGaAs/GaAs/AlAs (bandinys L442, DWELL). Kvantiniuose heterodariniuose susiformavo lęšio formos QD, kurių aukštis yra 5 nm, o skersmuo — 20 nm. Kvantiniai taškai buvo legiruoti donorinėmis (Si) priemaišomis, kurių tankis yra palyginamas su QD tankiu plokštumoje (vienam QD tenka apie vieną elektroną). Tiriant atspindžio nuo galinės sienelės poveikį, bandinių blizgūs padėklai buvo pašiurkštinti.



10 pav. DWELL bandinių L442 ir L444 aktyviųjų zonų ir viso heterodarinio schemos. QD — kvantinis taškas, QW — kvantinė duobė ir WL — drėkinantysis sluoksnis.

2.2 Eksperimento metodika

Visuose eksperimentuose buvo naudojamas tas pats optinių matavimų stendas su nedidelėmis modifikacijomis. Stendo schema pateikta **11 pav.**



11 pav. PR ir PL matavimų stendo schema.

Fotoliuminescencija

Fotoliuminescencijos spektrai buvo registruojami 3–300 K temperatūrų diapazone. Diodu kaupinami kietakūniai (diode-pumped solid-state, DPSS) lazeriai šio eksperimento metu buvo naudojami kaip žadinantieji šaltiniai. Iš lazerio išėjusi spinduliutė lęšiu (f = 100 mm) buvo fokusuojama į bandinį. Iš bandinio išėjusi fotoliuminescencija dviejų lęšių sistema ($f_{L3} = 100$ mm, $f_{L4} = 325$ mm) buvo fokusuojama į monochromatoriaus (Andor SR-500i, f=500 mm, f/6, 5) įėjimo plyšį, o ant monochromatoriaus išėjimo plyšio pritvirtintas fotojutiklis registravo signalą. Matavimuose priklausomai nuo registruojamos spektro dalies buvo naudojami Si (Andor SR-ASM-0046, 400–1100 nm) arba termoelektriškai šaldomas InGaAs (SR-ASM-0044, 800–1700 nm) jutikliai.

Fotoliuminescencijos žadinimo spektroskopija

Fotoliuminescencijos žadinimo spektrai buvo registruojami 3 K temperatūroje. Šio eksperimento metu bandinys buvo žadinamas lempos spinduliuote praėjusia pirmąjį monochromatorių. Iš pirmojo monochromatoriaus išėjęs kvazimonochromatinis spindulys lęšiu (f = 100 mm) buvo fokusuojama į bandinį. Iš bandinio išėjusi fotoliuminescencija dviejų lęšių sistema ($f_{L3} =$ 100 mm, $f_{L4} = 325$ mm) buvo fokusuojamas į monochromatoriaus (Andor SR-500i, f=500 mm, f/6, 5) įėjimo plyšį. Šio eksperimento metu antrojo monochromatoriaus padėtis buvo fiksuojama ties PL piko, priskiriamo QD pagrindinei būsenai, maksimumu. Ant monochromatoriaus išėjimo plyšio pritvirtintas termoelektriškai šaldomas InGaAs (SR-ASM-0044, 800–1700 nm) fotojutiklis registravo signalą.

Fotatspindys

Fotoatspindžio spektrai taip pat buvo registruojami 3–300 K temperatūrų diapazone. Bandinys buvo patalpintas uždarojo ciklo He kriostate (Janis SHI-4). Siekiant pasiekti geresnį signalo/triukšmo santykį, buvo naudojama dviejų monochromatorių sistema (**11 pav.**). Zonduojančio šviesos šaltinio spinduliuotė — 100 W halogeninė lempa —buvo sufokusuota į pirmojo monochromatoriaus (Andor SR-500i) įėjimo plyšį. Iš šio monochromatoriaus išėjimo plyšio išeina kvazimonochromatinis spindulys, kuris dviejų lęšių sistema ($f_{L1} = 325 \text{ mm}$, $f_{L2} = 200 \text{ mm}$) fokusuojamas į bandinį. Ant bandinio sufokusuotas zonduojantis spindulys yra pilnai perklojamas moduliuojančiu lazerio spinduliu (dėl to lazerio spindulys buvo išskleistas), kad būtų įvykdyta efektyvios moduliacijos sąlyga. Nuo bandinio atsispindėjusi kvazimonochromatinė šviesa dviejų lęšių sistema ($f_{L3} = 100 \text{ mm}$, $f_{L4} = 325 \text{ mm}$) fokusuojama į antrojo analogiško monochromatoriaus plyšį. Abiejuose monochromatoriuose esančios gardelės sukamos sinchroniškai. Dėl to, antrasis monochromatorius veikia kaip ypač jautrus siauros juostos filtras. Kaip ir PL matavimuose priklausomai nuo registruojamos PR spektro dalies buvo naudojami Si arba InGaAs detektoriai, pritvirtinti prie antrojo monochromatoriaus išėjimo plyšio.

Šiame eksperimente kaip moduliuojantys šaltiniai buvo naudoti DPSS lazeriai, kurie spinduliuoja 355 nm ir 532 nm bangos ilgio spinduliuotę. Lazerio spinduliuotė buvo moduliuojama mechaniniu moduliatoriumi 270 Hz dažniu, o spinduliuotės intensyvumas keičiamas įvairiais neutraliais skirtingo optinio tankio filtrais arba ateniuatoriumi (Rochono poliarizatoriumi).

Be viso to reiktų paminėti, kad žemose temperatūrose PR spektre atsiranda didelio intensyvumo PL komponentė. Kitaip tariant, PR eksperimento metu, registruojamas $\Delta R + PL$ spektras. Norint gauti tikrą PR spektrą ($\Delta R/R$), iš užregistruoto signalo ($\Delta R + PL$) atimamas grynas PL spektras, kurį PR eksperimento metu leidžia užregistruoti dviejų monochromatorių sistema, uždengiant pirmojo monochromatoriaus plyšį. Po to gautas skirtumas sunormuojamas į atspindžio (R) spektrą.

Kadangi abiejų tirtų DWELL darinių padėklai buvo blizgūs, dviejų monochromatorių konfigūracija (**11 pav.**) leido matuoti ir fotopralaidumą atspindžio geometrijoje.

Bekontaktis elektrinis atspindys

Bekontakčio elektrinio atspindžio matavimai buvo atliekami kambario temperatūroje, bandinį montuojant į kondensatoriaus tipo laikiklį, kurio schema pavaizduota **12 pav.** Jį sudaro 2 elektrodai: pusiau skaidrus ITO kontaktas ir metalinė Cu plokštelė. Bandinys buvo talpinamas tarp jų. Moduliuojančiam elektriniam laukui gauti buvo naudojamas aukštos įtampos genera-



12 pav. CER matavimuose naudoto kondensatoriaus tipo laikiklio schema.

torius (Trek 609E-6). Generatoriaus išėjime, kuris buvo sujungtas su viršutiniu pusiau skaidriu

ITO elektrodu, buvo paduodamas sinusinis $U_m = 1,5$ kV amplitudės ir 190 Hz dažnio signalas. Signalo fazei jautrus (sinchroninis) stiprintuvas (*lock- in amplifier*) buvo naudojamas naudingo signalo išskyrimui iš triukšmų.

Fotopralaidumas

Fotopralaidumo (*phototransmittance*, PT) metodu buvo matuota DWELL struktūra (L442) ant blizgaus padėklo, siekiant ištirti atspindžio nuo galinės sienelės poveikį. Zonduojantis šviesos šaltinis buvo, kaip ir PR eksperimento atveju, 100 W halogeninė lempa, kurios spinduliuotė buvo sufokusuota į pirmojo monochromatoriaus įėjimo plyšį. Iš jo išeinantis kvazimonochromatinis spindulys L1 ir L2 lęšių sistema buvo sufokusuojamas į bandinį. Ant bandinio sufokusuotas zonduojantis spindulys buvo moduliuojamas lazeriu, o per bandinį perėjusi spinduliuotė surenkama ir registruojama Si/InGaAs fotojutikliu.

Spektrinių linijų formos analizė

Optiniai šuoliai QD buvo nagrinėjami pasitelkus spektrinių linijų formos analizę. Buvo laikoma, kad fotomoduliuotiems spektrams įtaką daro du moduliacijos mechanizmai: Pauli lygmenų užpildymas ir kvantiškai apribotas Štarko efektas. Laikyta, kad QD būsenų užpildymo signalo kreivę dėl Pauli draudimo atitinka pirmoji dielektrinės funkcijos išvestinė pagal intensyvumą (ar osciliatoriaus stiprumą), ir kuri gali būti aprašyta Gauso funkcija. Savo ruožtu, Štarko poslinkis gali būti aprašomas Gauso funkcijos pirmosios eilės išvestine.

Norint priskirti optinių šuolių energijas ir apibrėžti išplitimo parametrus, moduliuoto atspindžio spektrai buvo analizuoti mažiausių kvadratų metodu ir derinami pagal Lorentzo tipo funkciją [33]:

$$\frac{\Delta R}{R} = \operatorname{Re}\left[Ce^{\mathrm{i}\theta}(E - E_{\mathrm{ex}} + \mathrm{i}\Gamma)^{-m}\right],\tag{1}$$

kur C, θ , E_{ex} , ir Γ yra atitinkamai amplitudė, fazė, energija ir išplitimo parametras. Skaičiavimams buvo naudojamos m = 1,5 ir m = 3 parametro vertės. Kai parenkama parametro vertė m = 1,5, lygtis (1) gana tiksliai aprašo Gausinį profilį, o parinkus parametro vertę m = 3— Gauso kreivės pirmos eilės išvestinę. Tokia lygtis tinka aprašyti kvantines sistemas, kurių energijos lygmenys išplitę nehomogeniškai.

Individualių optinių šuolių moduliai buvo įvertinti naudojant PR modulio funkciją [31]:

$$|\Delta\rho(E)| = \frac{C}{[(E - E_{\rm ex})^2 + \Gamma^2]^{m/2}}.$$
(2)

PR modulio spektro linijos maksimumas nurodo optinio šuolio energiją, o amplitudė proporcinga optinio šuolio tikimybei (intensyvumui).

3 Rezultatai ir jų aptarimas

Šioje darbo dalyje pateikiami ir analizuojami tirtų InAs/GaAs/AlAs kvantinių taškų su ir be įtempimus sumažinančio InGaAs sluoksnio energijos spektrai. Kartu su eksperimentiniais rezultatais pristatomi ir tirtų struktūrų energijos spektrų teoriniai–skaitmeniniai skaičiavimai.

3.1 Fotoliuminescencijos matavimai

Visų pirma buvo palyginti stipraus ir silpno sužadinimo InAs QD su įtempimus sumažinančiu InGaAs sluoksniu fotoliuminescencijos spektrai, kurie buvo užregistruoti 300 K temperatūroje (**13 pav.**). Kaip matyti iš grafiko, silpno sužadinimo spektre aiškiai matomi tik QD žemiausiems optiniams šuoliams priskiriami ypatumai. Visgi, norint detaliai analizuoti DWELL struktūras reikalinga informacija ir apie optinius šuolius iš aukštesnių būsenų. Stipraus sužadinimo PL spektre yra išskiriami spektro ypatumai, kurie gali būti priskirti optiniams šuoliams iš aukštesniųjų QD ir QW būsenų. Tačiau, norint registruoti stipraus sužadinimo PL spektrus, reikalingas didelės galios lazeris, kuris gali sukelti nepageidaujamus efektus, tokius kaip lokalus bandinio kaitimas. Be to, palyginus stipraus sužadinimo PL ir CER spektrus matome, kad CER spektrnės juostos siauresnės ir "aštresnės", o tai palengvina spektrų analizę. Taigi PL spektrai šiame darbe buvo naudojami, tik kaip papildomi duomenys, pagrindžiantys PR rezultatus ir patvirtinantys PR spektre kvantiniams taškams priskiriamas žemiausių energijų spektrines juostas.



13 pav. Stipraus ir silpno sužadinimo InAs/InGaAs/GaAs/AlAs kvantinės struktūros PL ir CER spektrai, užregistruoti 300 K temperatūroje.

Be stipraus ir silpno sužadinimo fotoliuminescencijos spektrų buvo užregistruoti ir abiejų bandinių fotoliuminescencijos žadinimo spektrai 3 K temperatūroje (**14 pav.**). Kaip matoma abiejuose grafikuose PLE intensyvumas staigiai padidėja ties GaAs kraštu. Žemų energijų srtyje stebimi mažesnio intensyvumo ypatumai priskiriami optiniams šuoliams InGaAs QW (DWELL bandinys) arba InAs WL (QDs bandinys) ir InAs QD. Taip pat galima pastebėti, kad bandinio DWELL PLE spektre (**14 pav., a**) matoma vienu spektriniu ypatumu daugiau



14 pav. InAs/GaAs/AlAs kvantinių taškų su (a) ir be įtempimus sumažinančio InGaAs sluoksnio (b) PLE ir PR spektrai, užregistruoti 3 K temperatūroje.

negu bandinio QDs PLE spektre (**14 pav., b**). Šis ties 1,36 eV atsiradęs papildomas ypatumas gali būti priskiriamas binarinės InAs/InGaAs QW lengvų skylių būsenai. Abiejų bandinių PLE spektrus palyginus su PR spektrais, matoma, kad PLE spektre stebimų ypatumų padėtis gana gerai sutampa su PR spektre stebimais ypatumais. Tačiau, PLE spektre negali būti stebimas su QD GS susijęs spektrinis ypatumas, dėl to, kad PLE eksperimento metu antrasis monochromatorius buvo fiksuotas ties QD GS būsenos energija. Mažiausių energijų srityje stebimas nedidelis intensyvumo padidėjimas gali būti priskiriamas sužadintoms QD būsenoms.

3.2 Įtempimus sumažinančio InGaAs sluoksnio įtaka

Kambario temperatūroje užregistruoti abiejų InAs QD, įterptų į GaAs/AlAs, su (bandinys DWELL) ir be (bandinys QDs) įtempimus mažinančiu InGaAs sluoksniu PR ir stipraus sužadinimo PL spektrai pavaizduoti **15 pav.** Juose galima išskirti tris charakteringas sritis, kurios gali būti priskirtos įvairiems tarpjuostiniams optiniams šuoliams. Spektrinės juostos stebimos virš GaAs draustinių juostų tarpo (1,42 eV) yra priskiriamos GaAs/AlAs QW tarpjuostiniams šuoliams ir Franzo-Keldysho osciliacijoms viršutiniame ir buferiniame GaAs sluoksniuose. Aštrios PR smailės, stebimos 1,25–1,42 eV energijų intervale, QDs bandinio spektre susijusios su optiniais šuoliais WL, o bandiniui LDWELL — su optiniais šuoliais binarinėje InAs/InGaAs kvantinėje duobėje, kurią formuoja InAs WL ir įtempimus mažinantis InGaAs sluoksniai. Mažu energijų intervale 0,9–1,25 eV stebimi spektriniai ypatumai, priskiriami kvantiniams šuoliams tarp pagrindinių ir sužadintų QD būsenų.

Norint nustatyti optinių šuolių energijas ir išplitimo parametrus spektrai buvo analizuojami mažiausių kvadratų metodu ir derinami pagal Lorentzo tipo funkciją (1). Bandiniui su įtempimus mažinančiu InGaAs sluoksniu žemų energijų intervale susijusiame su optiniais šuoliais QD nustatyta, kad tarpjuostinius šuolius atitinkančios energijos yra $GS_{(1)} = 0,951$ eV, $ES1_{(2)} = 1,008$ eV, $ES2_{(3)} = 1,062$ eV ir $ES3_{(4)} = 1,152$ eV. Sunkių ir lengvų skylių šuoliai



15 pav. InAs kvantinių taškų be (QDs bandinys (a)) ir su (DWELL bandinys (b)) InGaAs sluoksniu PR ir PL spektrai kambario temperatūroje. Juostinių diagramų schemose pavaizduoti eksperimentiškai identifikuoti šuoliai (pažymėti skaitmenimis).

InAs/InGaAs bi-QW yra $11H_{(5)} = 1,250 \text{ eV}$ ir $11L_{(6)} = 1,358 \text{ eV}$. Su QD susijusių šuolių energijos bandiniui be įtempimus mažinančio sluoksnio buvo $GS_{(1)} = 1,073 \text{ eV}$, $ES1_{(2)} = 1,128 \text{ eV}$ ir $ES2_{(3)} = 1,190 \text{ eV}$. Su WL susiję šuoliai sunkioms ir lengvoms skylėms yra $11H_{(4)} = 1,321 \text{ eV}$ $11L_{(5)} = 1,398 \text{ eV}$. Tokiu būdu buvo nustatytas tarpjuostinių šuolių tarp pagrindinių kvantinio taško su InGaAs sluoksniu būsenų ~ 120 meV poslinkis į mažesnių energijų pusę. Šis poslinkis gali būti siejamas su QD matmenų padidėjimu.

In kiekis InGaAs sluoksnyje

Norint paaiškinti gautus eksperimentinius rezultatus ir patvirtinti prielaidą, kad QD padidėja auginimo metu, buvo bandoma surasti tikrąją In kiekio koncentraciją $In_xGa_{1-x}As$ dengiančiąjame sluoksnyje. Tuo tikslu, efektinės masės artinio rėmuose buvo atlikti sudėtinės į GaAs/AlAs QW įterptos QW, sudarytos iš InAs WL ir InGaAs įtempimus sumažinančio sluoksnio, skaitmeniniai skaičiavimai. Skaitmeniniam modeliavimui buvo naudota *nextnano3* programinė įranga³, o reikalingi medžiagų parametrai buvo paimti iš [34] šaltinio.

Skaitmeniškai buvo apskaičiuoti InAs/InGaAs/GaAs/AlAs struktūros elektronų, sunkių ir lengvų skylių potenciniai profiliai, energijos lygmenys ir juos atitinkančių banginių funkcijų modulio kvadratai. Skaičiuojant buvo laikoma, kad išorinis elektrini laukas lygus nuliui. Skaičiavimo rezultatai pavaizduoti **16 pav.** Iš grafiko matoma, kad banginės funkcijos skaičiuotoje DWELL struktūroje yra asimetrinės, o tai leidžia net ir nulinio elektrinio lauko sąlygomis tokius šuolius kaip 12H, 21H ir t.t., kurie simetrinėje QW duobėje yra negalimi. Norint PR eksperimentiniame spektre stebimus ypatumus susijusius su QW priskirti konkretiems optiniams šuoliams yra skaičiuojamos optinių šuolių tikimybės, kurios yra proporcingos elektronų ir skylių banginių funkcijų persiklojimo integralams. Gauti teoriniai rezultatai — optinių šuolių energija

³Puslaidininkinių nanodarinių modeliavimo programa. Puslapis internete http://www.nextnano.de



16 pav. Nulinio elektrinio lauko sąlygomis skaitmeniškai apskaičiuoti elektronų, lengvų ir sunkių skylių potenciniai profiliai, energijų lygmenys ir banginės funkcijos sudėtinėje InAs/InGaAs/GaAs/AlAs QW.



17 pav. DWELL darinio su InGaAs sluoksniu PR moduliai (kreivės) ir skaitmeninių skaičiavimų rezultatai (vertikalios kolonėlės). Intarpe pavaizduota elektronų lygmenų kompozitinėje InAs/InGaAs/AlAs QW schema.

ir tikimybė – yra atvaizduoti vertikaliais stulpeliais **15 pav.** ir lyginami su eksperimentinių PR spektrų ypatumais.

Dėl aiškumo, **17 pav.** tos pačios DWELL bandinio optinių šuolių tikimybės atvaizduotos kartu su iš eksperimentinių rezultatų gautais PR moduliais. Vertikalių stulpelių pavaizduotų grafiko apačioje padėtis nusako optinio šuolio energiją, o aukštis — intensyvumą. Iš **15 pav., a** ir **17 pav.** atvaizduotų grafikų matoma, kad intensyvesni teoriškai numatyti optiniai šuoliai stebimi ir eksperimentiniuose spektruose. Visgi, kai kurių teoriškai numatytų šuolių intensyvumas buvo per mažas arba jų energijos persiklojo su kitais optiniais šuoliais ir eksperimentiškai visų numatytų šuolių užregistruoti nepavyko. Nepaisant to, eksperimentinių ir teorinių rezultatų sutapimas geras. Lyginant rezultatus buvo nustatyta, kad In kiekis įtempimus sumažinančiame $In_xGa_{1-x}As$ sluoksnyje siekia x = 13 % ir yra sumažėjęs 2 % palyginti su koncentracija, kuri buvo numatyta QD heterodarinio dizaine. In procentinis sumažėjimas sluoksnyje iš esmės ir paaiškina spektro poslinkį į ilgų bangų pusę su InAs QD susijusioje srityje. Jį sukelia InAs QD padidėjimas ir taško formos kitimas dėl to, kad In kiekis nanodarinio auginimo metu persiskirsto tarp InAs QD ir įtempimus mažinančio InGaAs sluoksnio.

3.3 Atspindžio nuo padėklo paviršiaus įtaka

Kadangi šiame darbe tirtos DWELL struktūros buvo užaugintos ant blizgaus GaAs padėklo, registruodami PR spektrus susidūrėme su atspindžio nuo galinės sienelės efektu. Sugerties proceso tikimybė QD sluoksnyje apibrėžiama sugerties skerspjūviu $\sigma = \alpha N$, kur α – sugerties koeficientas, o N — QD tankis. Kadangi QD σ ir QD sluoksnių skaičius maži, tai zonduojančios spinduliuotės įsiskverbimo gylis (1/ α) viršija bendrą DWELL struktūros storį ir atspindžio nuo blizgaus padėklo komponentė gali daryti didelę įtaką PR spektrams.

Norint detaliau ištirti atspindžio nuo galinės sienelės įtaką PR spektrams, bandinys L442 buvo padalintas pusiau ir vienos dalies padėklas buvo pašiurkštintas. Tada buvo užregistruoti abiejų bandinio dalių PR (**18 pav.**, **a**), nemoduliuoto atspindžio (R) bei pralaidumo (T) spektrai (**18 pav.**, **b**) kambario temperatūroje. Taip pat palyginimui buvo užregistruoti PT, CER ir stipraus sužadinimo PL spektrai.

Kaip matome iš **18 pav.** DWELL bandinio su blizgiu padėklu fotomoduliuotas spektras (PTR) gana gerai sutampa su PT spektru. Tačiau lyginant PT spektrą su DWELL bandinio su pašiurkštintu padėklu PR spektru toks panašumas nėra stebimas. Tai reiškia, kad bandinio su blizgiu padėklu spektrui didelę įtaką daro atspindys nuo galinės sienelės. Pažvelgus į **18 pav. b** paveikslą matomas didelis panašumas tarp DWELL bandinio su blizgiu padėklu R ir T spektrų. Atspindžio signalo intensyvumas staigiai krinta, kai fotono energija priartėja prie GaAs draustinių juostų tarpo energijos, ir šis staigus kritimas sutampa su pralaidumo spektro kraštu, kas byloja apie daugkartinius atspindžius tarp bandinio galinio ir priekinio paviršių. Bandinio su pašiurkštintu padėklu R spektre toks staigus intensyvumo kritimas ties GaAs draustinių juostų tarpo energija nėra stebimas.

Atsižvelgus į ankščiau gautus rezultatus, galima teigti, kad PTR signalas nuo bandinio su blizgiu padėklu susideda iš dviejų komponenčių. Pirmoji yra žinoma, kaip PR ir yra susijusi



18 pav. DWELL bandinio spektrai kambario temperatūroje: (a) stipraus sužadinimo PL, CER, PR, fotopralaidumo atspindžio geometrijoje (PTR) spektrai ir (b) lyginamieji abiejų bandinių R ir T spektrai.

su šviesa moduliuojamu vidiniu elektriniu lauku, o antroji — PT, susijusi su atspindžiu nuo bandinio padėklo. Fotopralaidumo atspindžio geometrijoje spektre dominuojantis efektas yra fotomoduliuota sugertis (*photoabsorption*, PA) [35]. Tai galima paaiškinti tuo, kad matuojant moduliuotą fotoatspindį bandiniui su blizgiu paviršiumi zonduojanti šviesa iš dalies atsispindi nuo padėklo ir šitokiu būdu du kartus pereina QD sluoksnius, o bendras PA efektas yra atskirų QD sluoksnių sandauga. Iš tikrųjų, PTR eksperimentiškai matuojamas dydis yra $\Delta T/T \approx -2\Delta \alpha d$, kur d — QD sluoksnio storis. Tuo tarpu, PR signalas silpnai priklauso nuo QD sluoksnių skaičiaus [36]. Kaip matome **18 pav. a** atspindys nuo galinės sienelės nedaro jokios įtakos CER spektrui. Taip yra dėl mažo moduliacijos gylio CER eksperimente [31].

Taigi, apibendrinant galima teigti, kad daugiasluoksnėms QD struktūroms atspindys nuo galinės sienelės gali komplikuoti moduliuoto atspindžio spektrų interpretaciją. Visgi, kai kada šis efektas gali būti išnaudojamas, norint sustiprinti signalus, susijusius su optiniais šuoliais tarp QD būsenų.

3.4 Fotomoduliacijos mechanizmai

Analizuojant **18 pav. a** spektrų linijos formos simetriją QD taškų srityje matoma, kad PT ir PTR spektrai gana aiškiai skiriasi nuo PR ir CER spektrų. PT ir PTR spektrinėje su QD optiniais šuoliais susijusioje dalyje matomas teigiamas signalas, kai CER ir PR spektruose matoma dispersinė kreivė. Paaiškinti tai galima nagrinėjant skirtingus moduliacijos mechanizmus, kurios lemia šie efektai:

- būsenų užpildymo efektas (Pauli užpildymas);
- kvantiškai apribotas Štarko efektas (QCSE).

Taigi, šiame darbe tiriamuose DWELL bandiniuose dalį QD, patenkančių į erdvinio krūvio sritį, veikia palyginti stiprūs elektriniai laukai, kurie riboja QD būsenų užpildymą krūvininkais. Kadangi eksperimente naudojamos trumpabangės moduliuojančios lazerinės spinduliuotės įsiskverbimo gylis gana mažas, PR signale dominuoja QCSE moduliacijos mechanizmas. Lazerinės spinduliuotės sugeneruotos laisvos elektronų-skylių poros keičia/moduliuoja vidinį elektrinį lauką [9]. Tačiau, giliau esančiuose QD sluoksniuose, nepatenkančiuose į erdvinio krūvio sritį, signalas gali būti moduliuojamas ir dėl būsenų užpildymo mechanizmo. Šiuo atveju, dėl Pauli draudimo principo sugertis į užpildytas QD būsenas yra apribota. Taip pat gali pasireikšti kuloninės sąveikos efektas, kuris lemia elektronais neužpildytų ES būsenų dispersinę linijų formą [37].

3.5 Temperatūriniai fotoatspindžio matavimai

Norint išvengti atspindžio nuo galinės sienelės įtakos, temperatūriniai DWELL struktūrų optiniai matavimai buvo atlikti su bandiniais, kurių pusiau izoliuojantis GaAs padėklas buvo pašiurkštintas. Temperatūriniai abiejų tirtų bandinių PR spektrai mažų ir vidutinių fotonų energijų srityje pavaizduoti **19 pav.** Kaip matyti iš grafikų, mažinant temperatūrą spektre stebimas optinių šuolių mėlynasis poslinkis, kuris gali būti siejamas su QD/QW draustinių juostų energijų tarpo didėjimu. Taip pat, matoma, kad InAs QD dengtų InGaAs sluoksniu spektrų (**19 pav., a**) temperatūrinis kitimas kiek neįprastas. Temperatūrai nukritus iki ~ 150 K su QD susijusių PR ypatumų intensyvumas staigiai išauga, o forma pasikeičia. InAs QD bandinio be dengiančiojo InGaAs sluoksnio spektruose (**19 pav., b**) toks neįprastas temperatūrinis kitimas taip pat stebimas. Temperatūriniai abiejų bandinių spektrų pokyčiai aiškinami tolimesniuose dviejuose skyreliuose.



19 pav. InAs kvantinių taškų su (DWELL bandinys (a)) ir be (QDs bandinys (b)) InGaAs sluoksnio PR ir PL spektrai 3–300 K temperatūrose.

3.6 Temperatūrinis intensyvumo gesimas

InAs QD bandinio su įtempimus sumažinančiu InGaAs sluoksniu optinių šuolių tarp pagrindinių QD būsenų PL intensyvumo ir PR amplitudės priklausomybė nuo temperatūros pateikta **20 pav., a**. Tame pačiame grafike atvaizduotos ir kreivės, gautos, atlikus eksperimentinių duomenų aproksimaciją pagal Arenijaus formulę [38]

$$I = \frac{I_0}{1 + a \exp(-E_{\rm a}/kT) + b \exp(-E_{\rm b}/kT)},$$
(3)

kur *a* ir *b* yra skirtingi terminės relaksacijos kanalus atitinkantys koeficientai, o $E_{\rm a}$ ir $E_{\rm b}$ yra terminės aktyvacijos energijos vidutinių ir aukštų temperatūrų srityse. **20 pav., a** buvo atvaizduotas vienpakopis PL intensyvumo ir PR amplitudės gesimo mechanizmas, o **20 pav., b** nagrinėjamas dvipakopis abiejų bandinių PL intensyvumo gesimo maechanizmas, ne tik aukštų (210–300 K), bet ir vidutinių (120–210 K) temperatūrų srityje.

Kaip matoma **20 pav., a**, temperatūrą mažinant nuo 300 K iki 150 K, matomas PR signalo augimas, kuris beveik identiškas PL signalo augimui. Atlikta eksperimentinių rezultatų aproksimacija pagal Arenijaus formulę (spektre pažymėta linijomis) labai gerai atitinka eksperimentinius rezultatus (spektre pažymėti simboliais), o tai reiškia, kad PL intensyvumas yra susijęs su krūvininkų sugerties/populiacijos tikimybe kvantiniuose taškuose. Kai tuo tarpu, PR signalo kitimas, keičiantis temperatūrai, gali būti siejamas su krūvininkų terminės emisijos efektyvumu iš QD į QW arba/ir nespindulinius rekombinacinius centrus. Rezultatų aproksimacijos metu buvo gauta ~ 320 meV aktyvacijos energija (E_a^1), kuri yra artima pilnutiniam barjero aukščiui $\Delta E = E_{QW}^{11H} - E_{QD}^{GS}$. Taigi šis terminio gesimo efektas yra siejamas su krūvininkų termine aktyvacija (~ 300 meV) iš QD į QW energijos lygmenis.

Atlikus abiejų bandinių PL eksperimentinių rezultatų aproksimaciją pagal Arenijaus formulę įskaitant du intensyvumo gesimo kanalus (**20 pav., b** pavaizduota linijomis), buvo nustatyta



20 pav. InAs QD su įtempimus sumažinančiu InGaAs sluoksniu struktūros PL intensyvumo ir PR amplitudės priklausomybė nuo temperatūros (a), ir InAs QD su ir be įtempimus sumažinančio InGaAs PL intensyvumo priklausomybių nuo temperatūros palyginimas (b). Intarpas: InAs QD su įtempimus sumažinančiu InGaAs sluoksniu PL priklausomybė nuo temperatūros.

po dvi aktyvacijos energijas abiems tirtiems bandiniams. Iš Arenijaus aproksimacijos gautos aktyvacijų energijų vertės pateiktos **1 lentelėje**. Kaip matome, nagrinėjant dvipakopį PL temperatūrinį intensyvumo kitimą, gauta aktyvacijos energija auštųjų temperatūrų intervale (E_b^2) gerai sutampa su prieš tai gauta aktyvacijos energija, nagrinėjant vienpakopį PL temperatūrinį gesimą DWELL bandiniui (E_a^1) . Taigi aukštų temperatūrų srityje gautos aktyvacijos energijos gana gerai sutampa su pilnutiniu barjero aukščiu $\Delta E = E_{WL/QW} - E_{QD}$, o tai įrodo, kad staigų PL signalo intensyvumo kitimą aukštose temperatūrose >210 K lemia eksitonų jonizacija iš QD surištųjų būsenų į InAs WL arba į InGaAs QW. Tuo tarpu vidutiniųjų temperatūrų srityje (120–210 K) aktyvacijos energijų vertės yra lygios pusei GaAs barjero aukščio $\Delta E = E_{GaAs} - E_{WL/QW}$ (žiūrėti **1 lent.**), o tai reiškia, kad intensyvumo gesimas yra susijęs su elektronų-skylių porų termine aktyvacija iš InAs WL (QDs bandinys) arba iš InGaAs QW (DWELL bandinys) į plačiąją GaAs/AlAs duobę.

	$E_{\rm GaAs} - E_{\rm WL/QW}$	$E_{\rm WL/QW} - E_{\rm QD}$	E_{a}^2	$E_{\rm b}^2$
			$120-210~{\rm K}$	210 –300 K
L442	170 meV	299 meV	86 meV	301 meV
L444	79 meV	268 meV	62 meV	$269~{\rm meV}$

1 lentelė PL spektrų Arenijaus derinimo rezultatų apibendrinimas.

Apibendrinant rezultatus galima teigti, kad **20 pav.** stebimas PR signalo intensyvumo didėjimas temperatūrą mažinant iki 150 K gali būti siejamas su QD GS būsenos užpilda ir/arba vidinio elektrinio lauko ekranavimu. Toliau mažinant temperatūrą iki 3 K PR signalo, susijusio su QD šuoliais tarp pagrindinių būsenų, intensyvumas tolygiai mažėjo dėl būsenų užpildymo efekto.

PR linijų formos temperatūrinio kitimo priežastys vis dar tiriamos, tačiau galima spėti, kad jis susijęs su dominuojančio fotomoduliacijos mechanizmo pasikeitimu keičiantis temperatūrai. Galima teigti, kad aukštose temperatūrose dominuoja QCSE efektas, o žemose temperatūrose PR spektro linijos formą lemia būsenų užpildos mechanizmas.

3.7 Optinių šuolių energijos priklausomybė nuo temperatūros

Abiejų tirtų bandinių QD optinių šuolių energijų, gautų iš PR matavimų, temperatūrinės priklausomybės simboliais pavaizduotos **21 paveiksle**. Taip pat grafikuose palyginimui kartu atvaizduotos ir optinių šuolių energijos gautos iš PL eksperimento, o DWELL bandiniui ir iš kambario temperatūroje užregistruotų CER spektrų. Matome, kad DWELL bandiniui stebimos pagrindinė ir net 4 sužadintos kvantinio taško būsenos visame temperatūrų intervale. Tuo tarpu, QDs bandiniui stebimos tik 2 sužadintos būsenos. Papildomai **21 pav., a** didesnių energijų srityje, matoma ir 5 ypatumo temperatūrinė energijos priklausomybė (spektre pažymėta ES5?). Šis, PR pikas gali būti siejamas su "kryžminiais" šuoliais tarp QD ir QW būsenų. Iš 21 pav. matome, kad optinių šuolių energijų priklausomybės nuo temperatūros kreivės yra beveik lygiagrečios, o atstumai tarp jų yra ~ 60 meV. Tai reiškia, kad elektronai lęšio formos kvantiniuose taškuose yra lokalizuoti parabolinėje potencinėje duobėje [39, 40]. Taip pat, eks-



21 pav. InAs QD su (a) ir be (b) dengiančiojo InGaAs sluoksnio optinių šuolių tarp pagrindinių (GS) ir sužadintųjų (ES) QD būsenų energijos priklausomybė nuo temperatūros. Intarpas: Tarp InAs QD grynoje GaAs matricoje PR ir PL esantis Stokso poslinkis.

perimentiškai gautos optinių šuolių priklausomybės nuo temperatūros gana gerai sutapo su iš empirinės Varšni lygties [41]

$$E(T) = E_0 - \frac{\alpha T^2}{T + \beta}.$$
(4)

apskaičiuotomis kreivėmis (**21 pav.**). Čia E_0 yra draustinių energijų tarpas 0 K temperatūroje, α temperatūrinis koeficientas, o β parametras artimas medžiagos Debajaus temperatūrai. Apskaičiuoti abiejų bandinių aproksimacijos parametrai E_0 , α ir β pateikti **2 lentelėje**. Taip pat, lentelėje pateikti ir literatūriniai tūrinių InAs ir GaAs kristalų parametrai [42]. Kaip matoma, iš **2 lentelės** DWELL bandinio QD parametrai, kurie buvo gauti derinimo metu, yra truputį didesni negu literatūroje pateikiami tūriniam InAs [42]. O tai rodo, kad tirti DWELL darinių QD sudėtis auginimo metu galėjo pasikeisti dėl Ga/In persiskirstymo.

2 lentelė Varšni lygties parametrai.

Optiniai šuoliai	$E_0 (eV)$	$\alpha \ ({\rm meV/K})$	β (K)			
DWELL bandinys						
GS	1,035	0,429	190			
E_{1}	1,094	0,429	190			
E_2	$1,\!153$	0,412	195			
E_3	1,213	0,404	196			
${ m E_4}$	1,269	0,389	207			
11H QW	1,269	0,389	191			
InAs $[42]$	0,415	0,276	93			
GaAs [42]	$1,\!319$	$0,\!540$	204			
QDs bandinys						
GS	1,176	$3,86\times10^{-4}$	149			
E_1	1,235	$3,56\times10^{-4}$	$129,\! 6$			
E_2	1,292	$3,92\times 10^{-4}$	135,1			

Lyginant PL ir PR spektrus matoma, kad bandiniui DWELL PL maksimumų vertės gana gerai sutapo su PR duomenimis. Dėl to galima teigti, kad tarp PL ir PR spektrų esantis Stokso poslinkis InAs QD su dengiančiuoju sluoksniu bandiniui nėra svarbus. Tačiau, InAs QD įterptų į gryną GaAs matricą bandiniui PR maksimumų vertės taip gerai nesutampa su PL maksimumų vertėmis, kas rodo nors ir nežymų, bet tarp PL ir PR spektrų esantį Stokso poslinkį **21 pav., b intarpas**). Pasak literatūros, InAs/GaAS QD GS piko raudonasis poslinkis PL spektruose yra įprastas reiškinys bandinio temperatūrai viršijus ~ 100 K. Tai gali būti aiškinama tuo, kad pakilus temperatūrai krūvininkai persiskirsto tarp skirtingo dydžio QD [43]. QD GS raudonasis poslinkis nėra stebimas PR spektre dėl to, kad PR metodiką registruoja vidutinį signalą iš visų QD. Tai, kad QDs bandiniui stebimo PR ir PL spetrų nesutapimo, nėra DWELL bandiniui rodo, kad InAs QD su dengiančiuoju InGaAs sluoksniu dydžių homogeniškumas yra didesnis, nei InAs QD užaugintų grynoje GaAs matricoje.

3.8 Skaitmeniniai DWELL bandinio energijos spektro skaičiavimai

Norint paaiškinti InAs QD su įtempimus sumažinančiu InGaAs sluoksniu PR ir PL spektrus, buvo skaitmeniškai modeliuojama tirta DWELL struktūra. Skaičiavimai buvo atliekami 8×8 k.p modelio rėmuose pasinaudojant nextnano3 programine įranga. Buvo modeliuoti DWELL struktūros QD matmenys [100] ir [010] kryptimis. InAs WL storis 0,5 nm ir dengiančiojo InGaAs sluoksnio storis 5 nm buvo fiksuoti. Keičiant InAs QD geometriją ir medžiaginę sudėtį (įvedant gradientinį profilio kitimą) ir skaičiuojant įtempimus ir pjezoelektrinius potencialus QD ir jo aplinkoje bei sprendžiant trimates Puasono ir Šriodingerio lygtis iš gautų QD energijų lygmenų spektro ir banginių funkcijų palyginimo su eksperimentiniais rezultatais (ieškant geriausio sutapimo) buvo gauti optimalūs QD taško matmenys **22 pav.**. Nustatyta, kad InAs QD yra lęšio formos ($d_1 = 23$ nm, $d_2 = 8$ nm), o jų aukštis — 5 nm. Tokios DWELL struktūros energijos lygmenų spektras [001] kryptimi pavaizduotas **23 pav., a intarpe**. Taip pat, **23 pav., a** pavaizduotos ir iš banginių funkcijų persiklojimo integralų gautos optinių šuolių tikimybės (spektre pavaizduota vertikaliomis kolonėlėmis) ir iš eksperimentinių rezultatų gauti PR moduliai.



22 pav. DWELL bandinio struktūra, gauta modeliuojant QD matmenis.

Apibendrinant, iš **23 pav., b** matoma, kad teoriniai ir eksperimentiniai spektrai gana gerai sutampa. Skirtumas tarp suskaičiuotų ir eksperimentiškai gautų tarpjuostinių optinių šuolių energijų tesiekia 10 meV. Šis nedidelis skirtumas galėjo atsirasti dėl skaičiavimuose neįskaitytų

eksitoninių efektų.



23 pav. (a) InAs QD optinių šuolių stipriai ir energijos lygmenys augimo kryptimi [001](intarpas).
(b) DWEll bandinio PR ir PL spekrai kartu su PR moduliais ir iš skaitmeninių skaičiavimų gautomis optinių šuolių tikimybėmis.

4 Išvados ir pagrindiniai rezultatai

- 1. Įtempimus sumažinantis InGaAs sluoksnis lemia energijų tarpo tarp kvantinio taško pagrindinių būsenų sumažėjimą (~ 120 meV), kas rodo kvantinio taško padidėjimą dėl In persiskirstymo tarp QD ir dengiančiojo InGaAs sluoksnio.
- Kvantinių taškų su dengiančiuoju InGaAs sluoksniu spektruose stebimas didesnis sužadintųjų būsenų skaičius ir sumažėjęs spektrinių juostų pusplotis rodo geresnį kvantinių taškų homogeniškumą.
- Temperatūrinė fotomoduliuoto atspindžio spektrų linijos forma keičiasi kartu su fotomoduliacijos mechanizmu: aukštose temperatūrose dominuoja kvantiškai apribotas Štarko efektas, o žemose temperatūrose — būsenų užpildos mechanizmas.
- 4. Spektro linijų intensyvumo gesimas vidutinėse temperatūrose (120–210 K) yra susijęs su elektronų-skylių porų termine aktyvacija iš InAs drėkinančiojo sluoksnio arba iš InGaAs kvantinės duobės į plačiąją GaAs/AlAs duobę. Intensyvumo gesimą aukštose (210–300 K) temperatūrose lemia eksitonų terminė aktyvacija iš surištųjų taško būsenų į InAs drėkinantįjį sluoksnį arba į InGaAs kvantinę duobę.
- 5. Varšni parametrų vertės rodo, kad InAs kvantinių taškų sudėtis heterodariniuose iš dalies pakinta dėl Ga/In persiskirstymo.

Literatūra

- L. Höglund, P.O. Holtz, L. Ouattara, C. Asplund, Q. Wang, S. Almqvist, E. Petrini, H. Malm, J. Borglind, S. Smuk, et al. Quantum dots-in-a-well infrared photodetectors for long wavelength infrared detection. In *Optics/Photonics in Security and Defence*, pages 640109–640109. International Society for Optics and Photonics, 2006.
- [2] A.V. Barve, T. Rotter, Y. Sharma, S.J. Lee, S.K. Noh, and S. Krishna. Systematic study of different transitions in high operating temperature quantum dots in a well photodetectors. *Appl. Phys. Lett.*, 97.
- [3] S. Krishna, D. Forman, S. Annamalai, P. Dowd, P. Varangis, T. Tumolillo Jr, A. Gray, J. Zilko, K. Sun, M. Liu, et al. Demonstration of a 320× 256 two-color focal plane array using InAs/InGaAs quantum dots in well detectors. *Appl. Phys. Lett.*, 86(19):193501, 2005.
- [4] Z. Mi and P. Bhattacharya. Pseudomorphic and metamorphic quantum dot heterostructures for long-wavelength lasers on GaAs and Si. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 14(4):1171–1179, 2008.
- [5] Y. Arakawa and H. Sakaki. Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current. Appl. Phys. Lett., 40(11):939–941, 1982.
- [6] R.P. Mirin, J.P. Ibbetson, K. Nishi, A.C. Gossard, and J.E. Bowers. 1.3 μm photoluminescence from InGaAs quantum dots on GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 67(25):3795–3797, 1995.
- [7] S. Krishna. Quantum dots-in-a-well infrared photodetectors. Infrared physics & technology, 47(1):153–163, 2005.
- [8] H.M. Alouane, B. Ilahi, L. Sfaxi, and H. Maaref. InAs quantum dots on different Ga(In)As surrounding material investigated by photoreflectance and photoluminescence spectroscopy: electronic energy levels and carrier's dynamic. J. Nanopart. Res., 13(11):5809–5813, 2011.
- [9] M. Motyka, G. Sęk, R. Kudrawiec, J. Misiewicz, L.H. Li, and A. Fiore. On the modulation mechanisms in photoreflectance of an ensemble of self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *J. of Appl. Phys.*, **100**(7):073502, 2006.
- [10] M. Motyka, R. Kudrawiec, G. Sek, J. Misiewicz, I.L. Krestnikov, S. Mikhrin, and A. Kovsh. Room temperature contactless electroreflectance characterization of InGaAs/InAs/GaAs quantum dot wafers. *Semicond. Sci. Technol.*, **21**(10):1402, 2006.
- [11] I. Aigouy, T. Holden, F.H. Pollak, N.N. Ledentsov, W.M. Ustinov, P.S. Kop'ev, and D. Bimberg. Contactless electroreflectance study of a vertically coupled quantum dotbased InAs/GaAs laser structure. *Appl. Phys. Lett.*, **70**(25):3329–3331, 1997.

- [12] J. Misiewicz, P. Sitarek, and G. Sek. Photoreflectance spectroscopy of low-dimensional semiconductor structures. *Optoelectronics review*, 8(1):1–24, 2000.
- [13] R. Nedzinskas, B. Čechavičius, V. Karpus, J. Kavaliauskas, G. Valušis, L.H. Li, S.P. Khanna, and E.H. Linfield. Photoreflectance and photoluminescence studies of epitaxial InGaAs quantum rods grown with As2 and As4 sources. J. Appl. Phys., 109(12):123526, 2011.
- [14] R. Nedzinskas, B. Čechavičius, J. Kavaliauskas, V. Karpus, D. Seliuta, V. Tamošiūnas, G. Valušis, G. Fasching, K.l. Unterrainer, and G. Strasser. Modulated reflectance study of InAs quantum dot stacks embedded in GaAs/AlAs superlattice. J. Appl. Phys., 106(6):064308, 2009.
- [15] O. Nasr, M.H. Hadj Alouane, H. Maaref, F. Hassen, L. Sfaxi, and B. Ilahi. Comprehensive investigation of optical and electronic properties of tunable InAsQDs optically active at O – band telecommunication window with (In)GaAs surrounding material. JOL, 148:243– 248, 2014.
- [16] V. Karpus. Dvimačiai elektronai. UAB Ciklonas, Vilnius, 2004.
- [17] B. Daudin, F. Widmann, G. Feuillet, Y. Samson, M. Arlery, and J.L. Rouviere. Stranskikrastanov growth mode during the molecular beam epitaxy of highly strained GaN. *Phys. Rev. B*, 56(12):R7069, 1997.
- [18] J. Kundrotas. GaAs/AlGaAs technologija, volume 1. Puslaidininkių fizikos institutas, 1999.
- [19] C. Downs and T.E. Vandervelde. Progress in infrared photodetectors since 2000. Sensors, 13(4):5054–5098, 2013.
- [20] A. Hospodková, E. Hulicius, J. Pangrác, J. Oswald, J. Vyskočil, K. Kuldová, T. Šimeček, .P Hazdra, and O. Caha. InGaAs and GaAsSb strain reducing layers covering InAs/GaAs quantum dots. J. Cryst. Growth, **312**(8):1383–1387, 2010.
- [21] A. Hospodková, M. Zíková, J. Pangrác, J. Oswald, J. Kubištová, K. Kuldová, .P Hazdra, and E. Hulicius. Type I – –typeII band alignment of a GaAsSb/InAs/GaAs quantum dot heterostructure influenced by dot size and strain-reducing layer composition. J. Phys.D: Appl. Phys., 46(9):095103, 2013.
- [22] W.Y. Jang, M.M. Hayat, J.S. Tyo, R.S. Attaluri, T.E. Vandervelde, Y.D. Sharma, R. Shenoi, A. Stintz, E.R. Cantwell, S.C. Bender, et al. Demonstration of bias-controlled algorithmic tuning of quantum dots in a well (DWELL)midIR detectors. *IEEE J. Quant. Electron.*, 45(6):674–683, 2009.
- [23] E.T Kim, A. Madhukar, Y. Zhengmao, and J.C. Campbell. High detectivity InAs quantum dot infrared photodetectors. *Appl. Phys. Lett.*, 84(17):3277–3279, 2004.

- [24] J. Urayama, T.B. Norris, J. Singh, and P. Bhattacharya. Observation of phonon bottleneck in quantum dot electronic relaxation. *Phys. Rev. Lett.*, 86(21):4930, 2001.
- [25] A. Rogalski. Infrared detectors: status and trends. Progress in quantum electronics, 27(2):59–210, 2003.
- [26] J. Tatebayashi, M. Nishioka, T. Someya, and Y. Arakawa. Area-controlled growth of InAs quantum dots and improvement of density and size distribution. *Appl. Phys. Lett.*, 77(21):3382–3384, 2000.
- [27] J. Kundrotas. GaAs/AlGaAs savybės. Puslaidininkių fizikos institutas, 2001.
- [28] W.M. Theis, G.D. Sanders, C.E. Leak, K.K. Bajaj, and H. Morkoc. Excitonic transitions in GaAs/Ga_xAl_{1-x}As quantum wells observed by photoreflectance spectroscopy: Comparison with a first-principles theory. *Phys. Rev. B*, **37**(6):3042, 1988.
- [29] F. H. Pollak and H. Shen. Modulation spectroscopy of semiconductors: bulk/thin film, microstructures, surfaces/interfaces and devices. *Materials Science and Engineering: R: Reports*, 10(7):XV-374, 1993.
- [30] A. Patane and N. Balkan. Semiconductor Research: Experimental Techniques, volume 150. Springer Science & Business Media, 2012.
- [31] J. Misiewicz and R. Kudrawiec. Contactless electroreflectance spectroscopy of optical transitions in low dimensional semiconductor structures. *Opto-Electronics Review*, 20(2):101– 119, 2012.
- [32] W. M. Theis, G.D. Sanders, C.E. Leak, K.K. Bajaj, and H. Morkoc. Excitonic transitions in GaAs/Ga_xAl_{1-x}As quantum wells observed by photoreflectance spectroscopy: Comparison with a first-principles theory. *Phys Rev B*, **37**(6):3042, 1988.
- [33] D.E. Aspnes. Third-derivative modulation spectroscopy with low-field electroreflectance. Surface Science, **37**:418–442, 1973.
- [34] I. Vurgaftman, J.R. Meyer, and L.R. Ram-Mohan. Band parameters forIII -V compound semiconductors and their alloys. J. Appl. Phys., 89(11):5815–5875, 2001.
- [35] H. Röppischer, N. Stein, U. Behn, and A.B. Novikov. Below gap photoreflectance of semi-insulating GaAs. J. Appl. Phys., 76(7):4340–4343, 1994.
- [36] A.J. Shields and P.C. Klipstein. Line-shape model for the modulated reflectance of multiple quantum wells. *Phys. Rev. B*, 43(11):9118, 1991.
- [37] T.M. Hsu, W.H. Chang, C.Y. Lai, N.T. Yeh, and J.I. Chyi. Scanning electron filling modulation reflectance of charged InGaAs self-assembled quantum dot. J. Appl. Phys., 91(7):4399–4402, 2002.

- [38] D.P Popescu, P.G. Eliseev, A. Stintz, and K.J. Malloy. Temperature dependence of the photoluminescence emission from InAs quantum dots in a strained Ga_{0.85}In_{0.15}As quantum well. Semicond. Sci. Technol., **19**(1):33, 2004.
- [39] S. Raymond, S. Fafard, P.J. Poole, A. Wojs, P. Hawrylak, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Leon, P.M. Petroff, and J.L. Merz. State filling and time-resolved photoluminescence of excited states in In_xGa_{1-x}As/GaAs self-assembled quantum dots. *Phys.l Rev. B*, 54(16):11548, 1996.
- [40] R. Heitz, O. Stier, I. Mukhametzhanov, A. Madhukar, and D. Bimberg. Quantum size effect in self-organized InAs/GaAs quantum dots. *Phys.l Rev. B*, 62(16):11017, 2000.
- [41] Y.P. Varshni. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. *Physica*, 34(1):149–154, 1967.
- [42] F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliwa, O. Stier, N.N. Ledentsov, A.R. Kovsh, V.M. Ustinov, and D. Bimberg. Strain engineering of self-organized InAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 64(8):085305, 2001.
- [43] S. Sanguinetti, M. Henini, M. Grassi Alessi, M. Capizzi, P. Frigeri, and S. Franchi. Carrier thermal escape and retrapping in self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B*, 60(11):8276, 1999.

Santrauka

Epitaksinių InAs kvantinių taškų darinių fotoatspindžio spestroskopija Evelina Pozingytė

Saviformuojantys InAs kvantiniai taškai, patalpinti sudėtinėje InGaAs/GaAs/AlAs duobėje, sudaro šiuolaikinių infraraudonosios spinduliuotės jutiklių aktyviąją terpę. Šis juostinės struktūros dizainas leidžia paslankiai valdyti nanostruktūrų optinį atsaką, derinant kvantinės duobės parametrus ir/arba pridedant išorinį elektrinį lauką. Visgi, norint sėkmingai panaudoti kombinuotus InAs kvantinių taškų darinius šiuolaikinių mikro- ir opto-elektronikos komponentuose būtina detaliai žinoti tokių struktūrų elektroninę sandarą ir optines savybes.

InAs/GaAs/AlAs kvantinių taškų, be ir su įtempimus sumažinančiu InGaAs sluoksniu, spektroskopiniai fotoliuminescencijos (PL) ir moduliuoto fotoatspindžio (PR) tyrimai parodė, kad InGaAs sluoksnis lemia ženklų optinių šuolių tarp pagrindinių kvantinio taško būsenų energijos sumažėjimą (~ 120 meV). Lyginant eksperimentinius ir skaitmeninio modeliavimo rezultatus buvo nustatyta, kad šis raudonasis poslinkis atsiranda dėl kvantinio taško padidėjimo persiskirstant In kiekiui tarp InAs taškų ir juos dengiančio InGaAs sluoksnio auginimo metu. InGaAs sluoksnio medžiaginės sudėties kitimą patvirtina ir Varšni parametrų vertės, nustatytos iš optinių šuolių energijų tarp pagrindinių ir sužadintų taško būsenų temperatūrinių priklausomybių. Be to, InAs/InGaAs/GaAs/AlAs struktūros PR spektre stebimas didesnis sužadintųjų būsenų skaičius ir sumažėjęs spektrinių juostų pusplotis rodo geresnį kvantinių taškų homogeniškumą.

Lyginant fotoatspindžio, fotopralaidumo, fotopralaidumo atspindžio geometrijoje ir bekontakčio elektrinio atspindžio eksperimentinius rezultatus paaiškėjo, kad atspindys nuo blizgaus padėklo yra reikšmingas ir komplikuoja PR spektrų analizę. Atspindžio nuo galinės sienelės efektai buvo tiriami pašiurkštinant bandinio padėklą. Šitaip eliminavus fotomoduliuotos sugerties komponentę pavyko aprašyti PR spektrus.

Temperatūriniai fotomodulioto atspindžio matavimai 3–300 K temperatūrų intervale parodė, kad mažinant temperatūrą stebimas mėlynasis spektrinių linijų poslinkis. Analizuojant moduliuoto fotoatspindžio linijų formos temperatūrinę eigą nustatyta, kad keičiasi vyraujantis fotomoduliacijos mechanizmas: aukštose temperatūrose dominuoja kvantiškai apribotas Štarko efektas, o žemose temperatūrose — būsenų užpildos mechanizmas.

Analizuojant Arenijaus aproksimacijos rezultatus nustatyta, kad intensyvumo gesimas vidutinėse temperatūrose (120–210 K) susijęs su sumažėjusiu krūvininkų pritekėjimo į kvantinius taškus dėl elektrono-skylės porų terminės aktyvacijos iš InAs drėkinančiojo sluoksnio arba iš InGaAs kvantinės duobės į plačią GaAs/AlAs duobę. Intensyvumo gesimas aukštose (210– 300 K) temperatūrose yra susijęs su kvantinių taškų jonizacija, t.y., eksitonų termine aktyvacija iš surištųjų taško būsenų į InAs drėkinantįjį sluoksnį arba į InGaAs kvantinę duobę.

Summary

Photoreflectance spectroscopy of epitaxial InAs quantum dot heterostructures Evelina Pozingytė

Self-assembled InAs quantum dots (QD), embedded in InAs/GaAs/AlAs quantum well (QW), are used as active region for novel QD infrared photodetectors (QDIPs). This dotsin-a-well (DWELL) design is based on optical transitions between bound states of quantum dot and quantum well. Such photodetector scheme allows a control of peak wavelength by changing width and composition of the QW and/or by adding an external electric field. However, better knowledge about electronic states and optical properties are essential for optimising the operation of these devices.

Spectroscopic photoreflectance (PR) and photoluminescence (PL) results of InAs QDs with and without strain-relieving InGaAs layer shifts the InAs QD ground-state interband transition to lower energy by ~ 120 eV. Comparison of experimental and calculation results revealed that the red-shift of the ground-state is attributed to increase of dot size due to reduced In content in the InGaAs-capping layer during growth. The decomposition of the InGaAs layer was also confirmed by Varsni analysis. Four QD excited-states established in modulated photoreflectance spectra and narrow photoluminescence linewidth of InGaAs-capped sample indicate a higher uniformity of QDs ensemble.

Comulative analysis of photoreflectance, phototransmittance, contactless electroreflectance and phototransmittance in reflection geometry revealed the influence of back-surface reflections on the PR line shape. In order to eliminate the component of photoabsorption in PR spectra DWELL sample was sanded.

There is a blue-shift of all main features as the temperature is reduced in PR spectra (3–300 K). Also, it was found that temperature-dependent lineshape in PR spectra varies with photomodulaition mechanism. More detailed analysis of PR spectra disclosed that at high temperatures the line shape is influenced by the quantum-confined Stark effect. Whereas at low temperatures the line shape of PR indicated a presence of state-filling mechanisms.

The Arrhenius fitting explained the PL intensity quenching in InAs QDs. In the intermediate temperatures (120–210 K) PL intensity decay is caused by the reduced carrier flow into quantum dots due to the thermal escape of electron-hole pairs from InAs wetting layer or InGaAs cap layer to GaAs/AlAs wide quantum well. However, in high temperature region (210–300 K) PL intensity quenching is related to the excitons escaping from the QD bound-state to InAs wetting layer or to InGaAs quantum well.