

На правах рукописи

КАЦ Владимир Наумович

**Спектроскопия квантовых точек GaAs, внедренных в  
нанонити AlGaAs**

01.04.07 – физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург  
2015

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук

Научный руководитель: **Владимир Петрович Кочерешко**, доктор физ.-мат. наук, главный научный сотрудник ФГБУН Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук

Официальные оппоненты: **Вартанян Тигран Арменакович**, доктор физ.-мат. наук, главный научный сотрудник ФГАОУ ВО «Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики»

**Шалыгин Вадим Александрович**, доктор физ.-мат. наук, профессор ФГАОУ ВО "Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого"

Ведущая организация: ФГАОУ ВО «Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет «ЛЭТИ» им.В.И. Ульянова (Ленина)», г. Санкт-Петербург.

Защита состоится «29» октября 2015 года в 11 ч 00 мин на заседании диссертационного совета Д 212.232.33 по защите докторских и кандидатских диссертаций при Санкт-Петербургском государственном университете по адресу: 198504, Санкт-Петербург, Ульяновская ул., д. 1., Санкт-Петербургский государственный университет, физический факультет, малый конференц-зал.

С диссертацией можно ознакомиться в научной библиотеке им. М. Горького Санкт-Петербургского государственного университета и на сайте СПбГУ: [spbu.ru](http://spbu.ru).

Отзывы на автореферат в двух экземплярах, заверенные печатью, высылать по указанному адресу ученому секретарю диссертационного совета.

Автореферат разослан «\_\_\_» \_\_\_\_\_ 2015г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета  
к. ф.-м.н., доцент

А.М. Поляничко

### **Актуальность проблемы**

Исследования квазидвумерных полупроводниковых гетероструктур началось в начале 80-х годов. К настоящему времени планарные структуры с квантовыми ямами исследованы достаточно детально. Квазиульмерные структуры с квантовыми точками (КТ) появились только 15 лет назад и исследованы не столь подробно, хотя и довольно широко. Несмотря на возрастающий интерес к квазиодномерным структурам с квантовыми нитями, в этом направлении все еще остается много неразрешенных вопросов. До последнего времени удовлетворительной технологии получения таких структур не существовало. Совсем недавно, менее 7 лет назад, на основе МВЕ (метод молекулярно-пучковой эпитаксии) появился метод выращивания структур с квантовыми нитями с использованием металлического катализатора. За несколько лет технология изготовления таких структур была значительно усовершенствована, и появилась возможность получать такие структуры приемлемого качества для фундаментальных исследований. В настоящее время изготовление и исследование структур с квантовыми нитями является быстро развивающейся областью физики полупроводниковых наноструктур. Наблюдается «взрывной» характер роста числа публикаций на эту тему. На международных конференциях появились отдельные секции, посвященные физике полупроводниковых квантовых нитей.

Квазиодномерные нанонити на основе GaAs обладают уникальными оптическими свойствами. Современный уровень развития метода каталитического МВЕ-роста, который продолжает активно развиваться, позволяет получать образцы высокого качества. В частности, отработана методика формирования внутри одиночных нанонитей одной или несколько КТ геометрически правильной формы (правильная шестиугольная призма). КТ, выращенные внутри нанонитей, имеют ряд преимуществ перед самоорганизованными КТ – это значительно больший квантовый выход фотолюминесценции (ФЛ) и наличие естественных электрических контактов. Последнее свойство позволяет исследовать электрооптические свойства КТ. Такая система способна стать источником, так называемых, запутанных фотонов, что может быть использовано в криптографии и квантовых вычислениях. По этой причине оптические исследования нанонитей со встроенными в них КТ

актуальны как с точки зрения фундаментальной науки, так и для технических приложений.

### **Цель работы**

Целью диссертационной работы является исследование методами оптической спектроскопии квазиодномерных систем – квантовых нитей и гибридных наноструктур на их основе, а также их оптическая характеристика с целью усовершенствования технологии изготовления. Наряду с характеристикой структур с квантовыми нитями задачей работы является поиск новых физических явлений и закономерностей, характерных для таких структур, исследование экситонных состояний в КТ.

### **Защищаемые научные положения**

1. Оптимальная температура подложки для получения однородного по размерам и кристаллической структуре массива квантовых нитей на основе  $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ , лежит в окрестности значения  $580\text{ }^{\circ}\text{C}$ .
2. КТ GaAs, выращенные при температуре  $580\text{ }^{\circ}\text{C}$  внутри нанонитей AlGaAs, содержащих сегменты со структурой вюрцита и цинковой обманки, как правило, имеют структуру цинковой обманки, при этом окружающие точку барьеры имеют структуру вюрцита.
3. Линии, наблюдаемые в спектрах возбуждения ФЛ КТ, встроенной в одиночную нанонить, соответствуют переходам между основным состоянием размерного квантования электрона и возбужденными состояниями размерного квантования дырки в плоскости (111).
4. Фактор спектроскопического расщепления экситонного уровня (g-фактор) в КТ GaAs, встроенных в нанонить, по модулю равен единице.
5. Аномально большая (2.5 мэВ) наблюдаемая ширина линии излучения экситона из одиночной КТ объясняется тем, что энергетическое положение узкой (0.2 мэВ) линии излучения экситона меняется скачкообразно во времени. Эти скачки объясняются изменениями в состоянии окружающей точку среды.
6. Причиной значительной линейной поляризации излучения в спектрах ФЛ одиночной КТ, встроенной в нанонить, в направлении [111] является неаксиальное расположение КТ внутри нанонити.

### **Научная новизна и практическая ценность**

Новизна и практическая значимость определяются новизной результатов, полученных в данной работе. Перечислим некоторые из них:

- 1). По результатам анализа спектров ФЛ большого набора образцов, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии, удалось определить оптимальные параметры роста, при которых удастся получить однородный массив нанонитей AlGaAs.
- 2). Установлено, что нанонити, выращенные в направлении [111], могут кристаллизоваться как в структуре цинковой обманки, так и в структуре вюрцита, причем условия образования той или иной структуры для GaAs и AlGaAs не совпадают. В результате анализа спектров ФЛ определена кристаллическая структура КТ GaAs, находящейся внутри нанонити AlGaAs, и кристаллическая структура окружающих ее барьеров.
- 3). Обнаружено, что ширина линии ФЛ экситона из одиночной КТ необычно велика и проанализированы причины этого. Обнаружен новый вид динамического уширения линии люминесценции, связанный с ее скачкообразными сдвигами между несколькими дискретными состояниями.
- 4). Впервые наблюдались спектры возбуждения ФЛ от одиночной КТ, встроенной в одиночную нанонить. Объяснено происхождение всех наблюдаемых в спектрах линий. Эти линии связаны с переходами между возбужденными состояниями дырки и основным состоянием размерного квантования электрона.
- 5). Обнаружено, что ФЛ от одиночной КТ в направлении [111] линейно поляризована. Это объяснено неаксиальным расположением точки внутри нанонити.

### **Работа над диссертацией была поддержана:**

- 1). Грантом Отделения Физических Наук РАН: «Электронные корреляции в системах с сильным взаимодействием» *Проект*: «Многоэлектронные эффекты в полупроводниковых нанонитях»
- 2). Грантом СПбГУ № 11.37.646.2013 «Квантовые нити и структуры на их основе - новый материал для физики полупроводников и твердотельной электроники»

**Апробация работы** Основные результаты диссертационной работы докладывались на многочисленных международных конференциях (XVI

Международный симпозиум «Нанозфизика и Нанозлектроника», 2012, Нижний Новгород, Россия; 7th International Conference on Quantum Dots ,2012, Santa Fe, New Mexico, USA; ICPS 2012 – 31st International Conference on the Physics of Semiconductors, 2012, Zurich, Switzerland; XI российская конференция по физике полупроводников 2013 Санкт-Петербург, Россия; The 16<sup>th</sup> International Conference on II-VI Compound and Related Materials (II-VI 2013), Нагахана, Япония; Международная конференция ICON 2013, Аннеси, Франция; 8th International Conference on Quantum Dots, 2014, Пиза, Италия), на научных семинарах кафедры физики твердого тела СПбГУ, на семинарах лаборатории Спектроскопии Твердого Тела и лаборатории Физики Ферроиков Физико-Технического Института им. А.Ф. Иоффе РАН.

### **Публикации**

По теме работы опубликовано 6 статей в рецензируемых журналах из списка ВАК, список статей приведен в конце автореферата [А1-А6].

### **Личный вклад автора**

Все результаты, представленные в работе, получены соискателем лично, либо при его непосредственном участии.

### **Структура и объем работы**

Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения и списка цитированной литературы из 50 наименований, она содержит 89 страниц текста, включая 31 рисунок.

### **Содержание работы**

Во **введении** обоснована актуальность и новизна темы исследования, сформулированы основные цели работы и положения, выносимые на защиту, обоснована практическая ценность работы и кратко изложено содержание диссертации.

**Первая глава** посвящена обзору существующих методов выращивания нанонитей, также обсуждается влияние основных параметров роста на

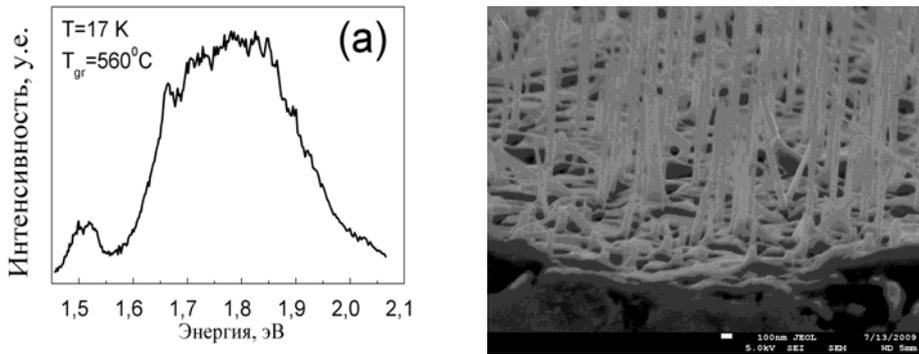
кристаллические свойства нанонитей. Во второй части представлены работы, в которых продемонстрировано применение уникальных оптических и электрооптических свойств нанонитей. В частности, нанонить может служить естественными контактами для КТ, заключенной в нее. Приложенное к КТ электрическое поле позволяет менять концентрацию носителей заряда в ней, давая возможность для исследования в точке экситонных комплексов. Вторым примером может служить использование нитевидных кристаллов в качестве микрорезонаторов для создания “галереи шепчущих мод”. Подобные структуры используются для изучения образующихся в них смешанных экситон-фотонных состояний (поляритонов).

Оптические свойства нанонитей в значительной степени определяются параметрами каталитического МВЕ-роста, описанного в первой главе. Для того чтобы выращивать нанонити с заранее определенными свойствами необходимо установить корреляцию между этими свойствами и параметрами роста, чему и посвящена **вторая глава** диссертации.

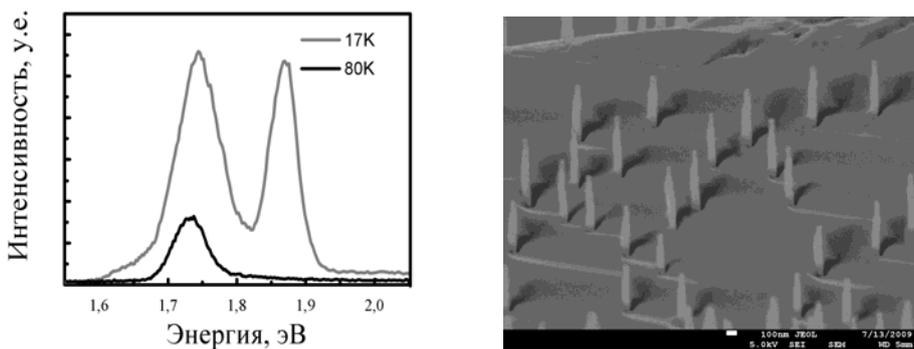
В данной главе описываются оптические свойства массивов нанонитей AlGaAs с внедренными в них КТ GaAs. Изучаемые массивы были выращены в диапазоне температур от 560 °С до 600 °С методом каталитического МВЕ. Оптическими методами удалось обнаружить критическое влияние температуры не только на оптические свойства нанонитей, но и на их кристаллическую однородность, а также подобрать наиболее оптимальную температуру роста. На рисунке 1 приведены спектр ФЛ массива (рис. 1а), выращенного при температуре 560 °С, а также его SEM-изображение (рис 1б.). Рисунок показывает, что рассматриваемый массив в значительной степени неоднороден как по составу (рис 1а), так и по геометрическим размерам (рис 1б). На рисунке 2 представлены спектр ФЛ массива (рис 2а), выращенного при температуре 580 °С, а также его SEM-изображение (рис 2б.). Данный рисунок демонстрирует значительно большую геометрическую и структурную однородность массива.

Вторая часть главы посвящена определению кристаллической структуры КТ, заключенной в нанонить. Известно, что нанонить, при отсутствии специального контроля над перенасыщением в капле катализатора, растет полиморфной. В ней вдоль оси роста чередуются слои, имеющие структуру вюрцита, и слои со структурой цинковой обманки. В этой части главы показано, что кристаллическая

структура КТ, заключенной в полиморфную нанонить, не случайна и является структурой цинковой обманки.

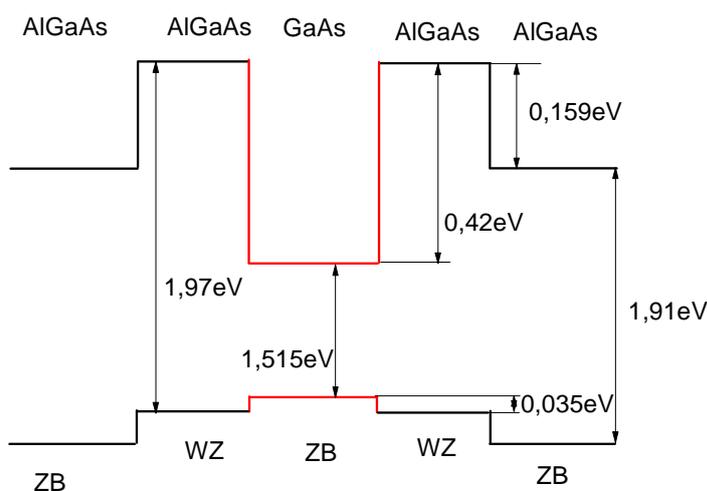


**Рис. 1** а) Спектр ФЛ массива нанонитей с КТ, выращенный при температуре 560 °С. б) SEM-изображение данного массива.



**Рис. 2** а) Спектр ФЛ массива нанонитей с КТ, выращенного при температуре 580 °С. б) SEM-изображение данного массива.

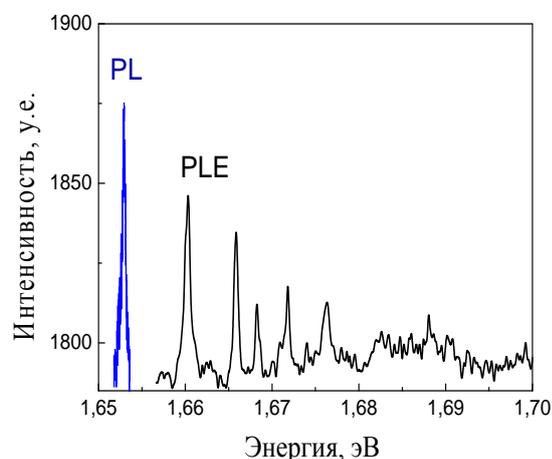
На основании положения линии ФЛ из КТ (рис 2б) определена средняя энергия размерного квантования экситона в КТ. Расчет зависимости энергии размерного квантования экситона в КТ от высоты окружающего ее барьера показал, что мономорфной такая структура быть не может, так как в этом случае невозможно достигнуть полученного экспериментально значения энергии размерного квантования экситона в КТ. Более того, только один вид потенциального профиля, а, следовательно, и кристаллическая структура КТ и окружающих ее барьеров, позволяют достичь искомого значения энергии размерного квантования экситона. КТ в этом случае имеет структуру цинковой обманки и окружена вюрцитными барьерами (рис 3).



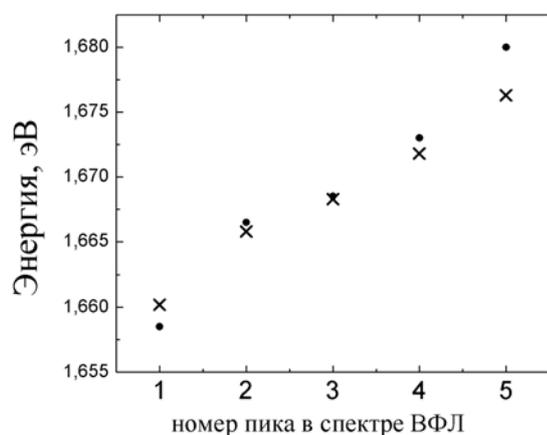
**Рис.3** Потенциальный профиль КТ GaAs в нанонити AlGaAs. КТ со структурой цинковой обманки, барьеры – со структурой вюрцита

В **третьей главе** представлены результаты исследований спектров возбуждения ФЛ одиночных КТ GaAs, заключенных в нанонити (рис 4). Результаты этого эксперимента позволяют определить реальные энергии размерного квантования в точке, а также определить профиль потенциала для дырок. В спектрах удастся наблюдать до шести экситонных состояний. Расстояние между соседними максимумами в спектрах составляет всего несколько мэВ, в то же время разница между энергиями квантования экситона вдоль оси [111] больше 100 мэВ для точки высотой 5 нм. Данный факт позволил предположить, что в спектре возбуждения ФЛ наблюдаются возбужденные состояния экситона, энергия которых квантуется в плоскости (111). Во второй части данной главы приведены расчеты энергий квантования основного и возбужденных состояний экситона в плоскости (111) для цилиндрической КТ. При расчете учитывался вид потенциального профиля КТ и окружающих ее барьеров вдоль оси [111] (рис. 3), что позволило правильно определить энергии размерного квантования основных состояний легкого и тяжелого экситонов в КТ. При расчете также была учтена анизотропия масс легкой и тяжелой дырок. В качестве параметров использовались высота и радиус КТ. Результаты расчетов и их сравнение с экспериментальными данными представлены на рисунке 5. Хорошее согласие расчетов и эксперимента позволяет подтвердить правильность вывода о

потенциальном профиле КТ, сделанного в предыдущей главе, а также заключить, что наблюдаемые в спектре возбуждения ФЛ линии соответствуют переходам между основным состоянием электрона и основными и возбужденными состояниями дырок, энергии которых квантуются в плоскости (111).



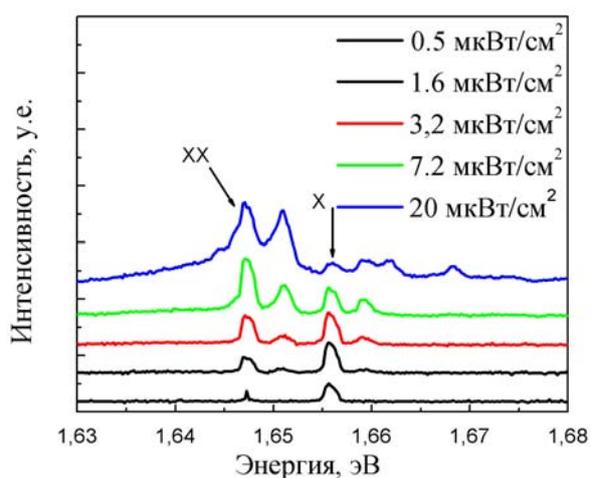
**Рис. 4** Спектры возбуждения ФЛ от одиночной КТ в нанонити, высота КТ составляет 5 нм. В спектре наблюдается пять возбужденных экситонных состояний.



**Рис. 5** Зависимости энергетического положения экситонных состояний от их номера. Крестики – эксперимент (положение линий в спектре возбуждения ФЛ, рис 4), кружки - расчет.

**Четвертая глава** посвящена описанию оптических и магнитооптических свойств одиночных нанонитей, в каждой из которых выращено две КТ. В этой главе представлены спектры ФЛ из двух КТ, выращенных внутри одной нанонити, при

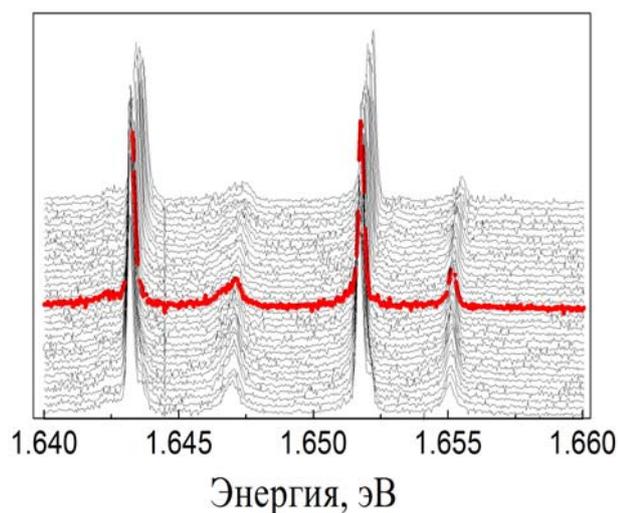
различных плотностях возбуждения (рис. 6). Данные измерения позволили правильно идентифицировать все четыре линии в спектре ФЛ, эти линии соответствуют ФЛ двух экситонов и двух биэкситонов из двух КТ. Здесь также рассматриваются спектры ФЛ двух КТ в магнитном поле от -8 Тл до +8 Тл в геометрии Фарадея при плотности возбуждения  $7.2 \text{ мкВт/см}^2$  (рис 7). Регистрация и возбуждение производились циркулярно-поляризованным светом только в одной левой круговой поляризации. Данная геометрия эксперимента эквивалентна измерениям спектров ФЛ в двух циркулярных поляризациях в магнитном поле, меняющемся от 0 до +8 Тл. Эти измерения позволили определить абсолютное значение g-фактора экситона в КТ высотой 5 нм, оно оказалось равным по модулю единице и совпало со значением g-фактора, полученным Снеллингом для квантовых ям того же состава и шириной 5 нм.



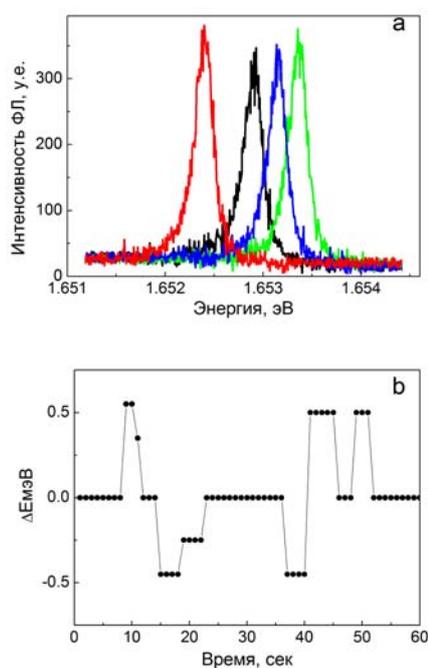
**Рис. 6** Спектры ФЛ из двух КТ, заключенных в одной нанонити, при различных плотностях возбуждения.  $T=1.5 \text{ К}$ .

Во второй части главы описано явление динамического уширения спектров ФЛ из одиночной КТ. Спектры ФЛ из одиночных КТ, представленные в настоящей работе, значительно уширены: полуширина линии ФЛ на полувысоте составляет 2 мэВ, что необычно для объекта нулевой размерности. Тщательные исследования спектров ФЛ при экстремально низких плотностях возбуждения показали, что данное уширение является динамическим. При плотности возбуждения в доли мкВт/см<sup>2</sup> ширина линии в спектре ФЛ уменьшается на порядок. Положение линии меняется скачками на фиксированные значения с течением времени при

отсутствии изменения внешнего воздействия (рис 8). В настоящей работе наблюдались переходы между четырьмя энергетическими положениями. При увеличении плотности возбуждения частота переходов возрастает, что приводит к визуальному уширению линии ФЛ.



**Рис. 7** Спектры циркулярно-поляризованной ФЛ двух экситонов и двух биэкситонов из двух КТ внутри одной нанонити при магнитных полях от  $-8$  до  $+8$ Т. Геометрия Фарадея. Линия красного цвета соответствует спектру ФЛ при нулевом магнитном поле.  $T=1.5$ К.



**Рисунок 8** а) Спектр ФЛ одиночной КТ в различные моменты времени, ширина линий составляет  $0.2$  мэВ.  $T=6$ К.

б) Статистика изменений положений максимумов ФЛ КТ с течением времени

**В пятой главе** рассматривается эффект линейной поляризации ФЛ экситона из КТ, встроенной в нанонить.

В спектрах поляризованной ФЛ одиночных нанонитей было обнаружено необычное явление. Оказалось, что излучение в направлении [111] при аннигиляции экситона в КТ, заключенной в нанонить, линейно поляризовано вдоль осей [1-10] и [11-2]. Эти направления совпадают с соответствующими кристаллографическими осями подложки. Степень линейной поляризации  $P_{lin}$  меняется от образца к образцу в пределах от 10% до 70%. Этот эффект, необычен, так как в направлении, перпендикулярном [111], не может быть анизотропии. Причиной этого явления, вероятнее всего, может являться неаксиальное расположение экситона внутри нанонити. В диссертации показано, что наиболее вероятным является смещение КТ к краю нити относительно оси роста нити. Таким образом, потенциал, действующий на носители, перестанет быть центрально-симметричным. Это приведет к тому, что состояния экситона перестанут характеризоваться заданным угловым моментом, что в свою очередь приведет к изменению правил отбора. А именно, нарушится симметрия между состояниями, поляризованными вдоль оси  $x$  и оси  $y$ , то есть экситонное излучение из КТ станет линейно поляризованным.

Проведено экспериментальное исследование оптических свойств КТ, встроенных в нанонить. В **заключении** сформулированы основные результаты диссертационной работы:

- Обнаружено, что температура роста массивов нанонитей сильно влияет на их оптические свойства. Найдена оптимальная для изучения оптических свойств температура роста, которая оказалась равной 580 °С.
- Установлено, что температура роста влияет на геометрические свойства массива нанонитей, массив наиболее однороден при температуре роста 580 °С.
- Найдена наиболее вероятная конфигурация потенциального профиля для КТ в нанонити с учетом наличия в нити сверхрешетки ZB/WZ.
- Измерены спектры возбуждения ФЛ одиночной КТ GaAs, находящейся внутри нанонити AlGaAs, в которых наблюдается до шести дискретных состояний.
- Произведен расчет возбужденных состояний экситона в КТ и произведено сравнение с экспериментальными данными.

- Исследованы спектры ФЛ одиночных КТ GaAs в нанонитях AlGaAs во внешнем магнитном поле в геометрии Фарадея, где наблюдаются линии излучения экситонов и биэкситонов.
- Обнаружено расщепление спектральных линий в продольном магнитном поле. Определены значения g-факторов для экситона и биэкситона в КТ высотой 5 нм.
- Установлена аномально большая ширина линии излучения экситона из одиночной КТ. Уширение является динамическим – энергетическое положение узкой линии излучения скачкообразно меняется во времени между четырьмя фиксированными состояниями.
- Наблюдается сильное несоответствие между ожидаемыми и наблюдаемыми экспериментально поляризационными свойствами ФЛ КТ. Это несоответствие удастся объяснить неаксиальным расположением квантовой точки внутри нанонити.

#### **Список публикаций по теме диссертации:**

- A1. «Оптические свойства одиночных квантовых точек GaAs, внедренных в квантовые проволоки AlGaAs». Платонов А.В.; Кочерешко В.П.; Кац В.Н.; Цырлин Г.Э.; Буравлев А.Д.; Самсоненко Ю.Б.; Besombes, L.; Mariette H. Поверхность, т.7 страницы: 20-24 (2013)
- A2. «Optical study of GaAs quantum dot embedded into AlGaAs nanowires». V.N. Kats, V.P. Kochereshko, A.V. Platonov, T.V. Chizhova, G.E. Cirlin, A.D. Bouravleuv, Yu.B. Samsonenko, I.P. Soshnikov, E.V. Ubyivovk, J. Bleuse and H. Mariette. Semicond. Sci. Technol. 27 (2012) 015009 (5pp)
- A3. «Фотолюминесценция одиночных квантовых нитей и квантовых точек». Кочерешко В.П.; Кац В.Н.; Платонов А.В.; Сурис Р.А.; Цырлин Г.Э.; Буравлев А.Д.; Самсоненко Ю.Б.; Besombes L.; Le\_Gal C.; Mariette H. Поверхность, т.9 страницы: 18-21, (2012)
- A4. «Model of a GaAs Quantum Dot Embedded in a Polymorph AlGaAs Nanowire» . D. Baretin, A. Platonov, A. Pecchia, V. Kats, G.E. Cirlin, A.D. Buravlev, Yu.B. Samsonenko, L.Besombes, and H.Mariette. Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of PP, v.19, i.5 (2013)

A5. «Modelling of GaAs quantum dot embedded in a polymorph AlGaAs nanowire». Baretin D; Platonov AV; Pecchia A; Kats VN; Cirlin GE; Soshnikov IP; Bouravleuv AD; Besombes L; Mariette H; Der Maur MA; Di Carlo A. В сборнике: 13th international conference on numerical simulation of optoelectronic devices, NUSOD, (2013), с. 139.

A6. «GaAs single quantum dot embedded into AlGaAs nanowire»

Kochereshko VP; Kats VN; Platonov AV; Cirlin GE; Bouravleuv AD; Samsonenko YuB; Besombes L; Mariette H. В сборнике: Proceedings of the 31st International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS) AIP Conf. Proc., v.1566 с. 482 (2013)