На правах рукописи

Лямкина Анна Алексеевна

СТРУКТУРЫ МЕТАЛЛИЧЕСКИЙ КЛАСТЕР - КВАНТОВАЯ ТОЧКА, ВЫРАЩЕННЫЕ НАНОКАПЕЛЬНОЙ МОЛЕКУЛЯРНО-ЛУЧЕВОЙ ЭПИТАКСИЕЙ

01.04.10 – физика полупроводников

ΑΒΤΟΡΕΦΕΡΑΤ

диссертации на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

Новосибирск - 2015

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук

Научный руководитель:

Торопов Александр Иванович, кандидат физико-математических наук, доцент, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук, заведующий лабораторией

Официальные оппоненты:

Слабко Виталий Васильевич, доктор физико-математических наук, профессор, Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования Сибирский федеральный университет (г. Красноярск), ведущий научный сотрудник

Черненко Александр Васильевич, кандидат физико-математических наук, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики твёрдого тела Российской академии наук (г. Черноголовка), старший научный сотрудник

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук

Защита состоится 23 июня 2015 г. в 15:00 на заседании диссертационного совета Д 003.037.01 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук по адресу:

630090, г. Новосибирск, проспект академика Лаврентьева, д. 13.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук: $http://isp.nsc.ru/comment.php?id_dissert = 780$

Автореферат разослан « » мая 2015 года.

Ученый секретарь диссертационного совета

Погосов Артур Григорьевич

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы

Наноплазмоника и особенно использование локализованного поверхностного плазмонного резонанса (ЛППР) в последнее время привлекают всё большее внимание исследователей из различных областей – от биологии и химии до физики полупроводников и прикладной физики. Важными плазмонными приложениеми являются повышение скорости работы и уменьшение размера устройств генерации и передачи оптических сигналов, таких как одиночные квантовые точки (КТ). Как известно, в присутствии металлических частиц за счёт возбуждения плазмонов электрическое поле локально усиливается, и взаимодействие плазмона с излучателем может существенно влиять на скорость излучения [1]. Кроме того, длина волны плазмона меньше, чем длина волны света, поэтому размер соответствующего устройства может быть значительно уменьшен. Таким образом, гибридные структуры, включающие полупроводниковые КТ и металлические частицы, предлагают новый способ контроля свойств КТ для последующего создания оптических устройств нового поколения. Несмотря на простоту и элегантность идеи, на настоящий момент такая система недостаточно изучена с точки зрения фундаментальных исследований и не оптимизирована для практических приложений, и является весьма актуальной для фундаментальной и прикладной науки.

В большинстве работ по твёрдотельным системам с КТ, полученным методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), для формирования металлических частиц используется метод электронной литографии [2]. При этом возникает проблема, связанная с взаимным расположением КТ и частиц металла, - несмотря на то, что положение литографических элементов можно контролировать с высокой точностью, расстояние между КТ и частицами меняется от пары к паре. Применение атомно-силовой микроскопии для позиционирования частиц на поверхности структуры осложняется тем, что КТ находятся в полупроводниковой матрице, и относительное расположение оценивается по морфологическим особенностям или сигналу люминесценции.

Альтернативным подходом может стать формирование металлических частиц в режиме самоорганизации в поле упругих напряжений слоя КТ, расположенного вблизи поверхности структуры. Для этого можно использовать начальную стадию нанокапельной эпитаксии – метода получения КТ, основанного на предварительном формировании массива кластеров металла III группы на подложке. При выращивании слоёв КТ, разделённых тонким буферным слоем, из-за распределения упругих напряжений в матрице происходит вертикальное упорядочение точек [3]. Замена верхнего слоя КТ на кластеры металла должна привести к аналогичному упорядочению, то есть расположению кластера над КТ [4]. Несмотря на то, что пары КТ-кластер латерально расположены случайным образом, расстояние в такой паре определяется толщиной буферного слоя. Вертикальное упорядочение может оказаться эффективным способом контроля расстояния между частицей и КТ, а, значит, и величины экситон-плазмонного взаимодействия. Важным преимуществом такого подхода является совместимость создания кластеров металла с технологией МЛЭ, используемой для роста КТ. Таким образом, создание новой твёрдотельной гибридной системы и исследование в ней экситон-плазмонного взаимодействия представляют большой интерес для повышения внешнего квантового выхода КТ.

Цели и задачи исследования

Целью данной работы являются исследование возможности создания металл-полупроводниковых структур с квантовыми точками InAs/AlGaAs и плазмонными частицами в рамках технологии молекулярно-лучевой эпитаксии и исследование экситон-плазмонного взаимодействия в таких гибридных системах.

Для достижения поставленной цели были поставлены и решены следующие **задачи**:

- 1. Изучение процессов формирования металлических кластеров на подложке GaAs в МЛЭ росте с помощью начальной стадии нанокапельной эпитаксии и влияния ростовых условий на их параметры;
- Теоретическое исследование плазмонного резонанса в кластерах металлов III группы с учётом экспериментально полученных параметров кластеров. Выяснение влияния материала, размеров и геометрии кластеров на поверхностный плазмонный резонанс и изучение влияния металлической частицы на скорость релаксации расположенного рядом с ней точечного диполя;
- Получение гибридных структур и изучение их структурных и оптических свойств. Экспериментальное исследование экситон-плазмонного взаимодействия.

Научная новизна полученных результатов

Научная новизна полученных результатов обусловлена тем, что в ходе выполнения настоящей работы впервые:

- изучено формирование кластеров индия и галлия на поверхности GaAs при высоких температурах подложки, определены типичные структурные параметры таких кластеров и предложен способ определения состава кластера по углу смачивания;
- с помощью численного моделирования показано, что кластеры металлов ІІІ группы, сформированные на поверхности GaAs в МЛЭ росте, могут

быть эффективно использованы для плазмонных приложений. Изучено влияние материала, размеров и геометрии на плазмонный резонанс в кластерах. Предложена постростовая подстройка ЛППР под излучение КТ с помощью плазменно-химического окисления кластеров с последующим селективным травлением плёнки оксида;

- теоретически показано, что формирование конуса травления под кластером увеличивает скорость переноса возбуждения в плазмон для излучателя, расположенного на оси симметрии кластера. Это приводит к усилению экситон-плазмонного взаимодействия и позволяет увеличить расстояние между КТ и поверхностью, негативно влияющей на их оптические свойства;
- прямым методом электронной микроскопии продемонстрировано вертикальное упорядочение металлических кластеров над столбцами квантовых точек, вызванное распределением упругих деформаций в матрице;
- 5) обнаружено экситон-плазмонное взаимодействие в гибридных металлполупроводниковых структурах, полученных методом МЛЭ, которое приводит к появлению в спектре нового длинноволнового пика. Показано, что наличие металлического кластера над ансамблем КТ приводит к появлению взаимодействия между ними за счёт переноса энергии через возбуждение плазмонной моды.

Теоретическая и практическая значимость работы

Исследования гибридных наноструктур вызывают повышенный интерес, связанный с перспективами их использования для повышения эффективности квантовых излучателей. Значимость данной работы определается тем, что в ней последовательно изучены гибридные системы, которые могут быть сформированы способом, полностью совместимым с технологией молекулярно-лучевой эпитаксии. Результаты работы могут быть использованы для реализации новых металл-полупроводниковых систем с твёрдотельными излучателями, которые найдут широкое применение в квантовой оптике и квантовых коммуникациях.

Положения, выносимые на защиту:

- Плазмонный резонанс в линзовидных кластерах металлов III группы, формируемых в молекулярно-лучевой эпитаксии, перекрывается с полосой фотолюминесценции квантовых точек InAs/AlGaAs. Эффективность возбуждения плазмонов в кластерах индия достигает 70% от обычно используемого золота.
- 2. При формировании кластеров металла в росте молекулярно-лучевой эпитаксией на поверхности структуры с квантовыми точками, закрытыми буфер-

ным слоем толщиной меньше 10 нм, происходит их вертикальное упорядочение, вызванное распределением упругих деформаций в матрице.

- 3. В изготовленных таким способом гибридных металл-полупроводниковых структурах с квантовыми точками InAs/AlGaAs и кластерами индия, разделёнными буфером 8-10 нм, имеет место сильное экситон-плазмонное взаимодействие, которое проявляется в виде длинноволнового узкого пика, интегральная интенсивность которого сравнима с интегральной интенсивностью основного пика фотолюминесценции квантовых точек. Наличие металлического кластера над ансамблем квантовых точек приводит к появлению между ними взаимодействия за счёт переноса энергии через возбуждение плазмонной моды в крупную точку-акцептор и усилению длинноволновой фотолюминесценции.
- 4. Формирование конуса травления под металлическим кластером увеличивает скорость переноса возбуждения из экситона в плазмон для излучателя, расположенного на оси симметрии кластера, и уменьшает тушение фотолюминесценции квантовых точек, связанное с влиянием поверхности.

Степень достоверности полученных результатов обеспечивается применением современных методов получения и экспериментального исследования образцов, воспроизводимостью экспериментальных результатов и сопоставлением с результатами, полученными другими авторами.

Публикации

По результатам исследований, составляющих содержание диссертации, опубликовано 6 печатных работ в рецензируемых журналах, входящих в перечень ВАК, 2 труда конференций и 20 тезисов докладов, представленных на российских и международных конференциях. Полный список публикаций приведен в конце автореферата.

Личный вклад автора в работу заключался в участии в постановке целей и задач исследования, проведении численных расчётов, проектировании и контроле изготовления экспериментальных образцов, проведении экспериментальных измерений методом атомно-силовой микроскопии и фотолюминесценции, анализе и интерпретации экспериментальных данных, написании научных статей и тезисов конференций, а также представлении полученных результатов на научных семинарах и конференциях.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, пяти глав и заключения. Объем диссертации составляет 121 страницу, включая 49 рисунков и список литературы из 166 наименований.

Апробация работы

Основные результаты работы, изложенные в диссертации, докладывались и обсуждались на лабораторных и институтских семинарах, на заседаниях Учёного Совета ИФП СО РАН, на конкурсе научных работ молодых учёных ИФП СО РАН, а также на следующих российских и международных конференциях: 21 Всероссийская научная конференция студентов-физиков (Омск, 2015), Международная научно-техническая конференция "Фундаментальные проблемы радиоэлектронного приборостроения" (Москва, 2014), Conference on Laser Physics and Photonics (Vladimir-Suzdal, Russia, 2014), Конференция и школа молодых учёных по актуальным проблемам физики полупроводниковых структур, посвящённые 50-летию образования Института физики полупроводников им. А.В. Ржанова (Новосибирск, 2014), International Conference on Problems of Strongly Correlated and Interacting Systems (Saint-Petersburg, Russia, 2014), XI Российская конференция по физике полупроводников (Санкт-Петербург, 2013), 6 International Symposium "Modern Problems of Laser Physics" (MPLP'2013) (Novosibirsk, Russia 2013), Summer School On Plasmonics (Cargese, France, 2013), International Conference on Quantum Technologies (Moscow, 2013), IV International Conference "Fundamental Bases of Mechanochemical Technologies" (Novosibirsk, Russia, 2013), 7 Russian-French workshop on Nanosciences and Nanotechnologies (Novosibirsk, Russia, 2013), Конференция "Фотоника и оптические технологии" (Новосибирск, 2012), 18 Всероссийская научная конференция студентов-физиков (Красноярск, 2012), 50 Международная научная студенческая конференция (Новосибирск, 2012), Международная молодежная конференция по люминесценции и лазерной физике (туристическая база "Песчанка", Иркутская обл., 2012), Всероссийская конференция "Физические и физико-химические основы ионной имплантации" (Новосибирск, 2012), 14 Всероссийская молодёжная конференция по физике полупроводников и наноструктур и опто- и наноэлектронике (Санкт-Петербург, 2012), 12 Kharkiv Young Scientists Conference on radiophysics, electronics, photonics and biophysics (Kharkiv, Ukraine, 2012), International Nano-Optoelectronic Workshop (St. Petersburg, Russia - Wurzburg, Germany, 2011).

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность исследований, проводимых в рамках данной диссертационной работы, формулируется цель, ставятся задачи работы, указаны научная новизна и практическая значимость полученных результатов представляемой работы и изложены основные защищаемые положения.

Первая глава посвящена краткому обзору литературы по тематике гибридных металл-полупроводниковых структур. Описаны основные методы формирования полупроводниковых самоорганизованных квантовых точек, обсуждаются способы создания плазмонных частиц и влияние параметров металлических кластеров на их оптические свойства. Рассмотрены способы получения гибридных структур с плазмонными элементами, особое внимание уделено твёрдотельным системам. Приводится литературный обзор работ, посвященных изучению экситон-плазмонного взаимодействия в различных гибридных структурах. На основе анализа существующей литературы сделан вывод об актуальности изучения вопроса о создании металл-полупроводниковых структур с квантовыми точками InAs/AlGaAs и плазмонными частицами в рамках технологии молекулярно-лучевой эпитаксии и исследования экситон-плазмонного взаимодействия в таких гибридных системах.

Во второй главе описаны основные методы, использованные для получения образцов, исследования их свойств и проведения численных расчётов. Гибридные структуры были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии, основной особенностью является формирование металлических кластеров также в камере МЛЭ с помощью нанокапельной эпитаксии. Оптические свойства структур были изучены с помощью установок макро- и микрофотолюминесценции (ФЛ и микро-ФЛ), схемы которых приведены в главе. Также приведено описание метода приближения дискретными диполями, использованного для моделирования плазмонного резонанса в металлических кластерах.

В третьей главе обсуждаются вопросы формирования металлических кластеров методом МЛЭ с помощью начальной стадии нанокапельной эпитаксии. Приведены результаты статистического анализа параметров металлических кластеров, проведённого методом атомно-силовой микроскопии (ACM). Предложен новый метод исследования степени перемешивания материалов кластеров и подложки, основанный на анализе угла смачивания, простой оценкой которого является отношение высоты кластера к его радиусу. На основе экспериментальных результатов и анализа литературных данных предположено существование двух механизмов формирования капель.

Получение металлических кластеров описано в параграфе 3.1. Для этого на поверхность GaAs при температуре 500°С в отсутствие элемента V группы наносился металл III группы, и происходило формирование кластеров в форме капель (сегмента сферы). Типичное изображение поверхности с кластерами индия, полученное методом ACM приведено на вставке рисунка 1.

Использование высоких температур приводит к перемешиванию металла кластера с материалом подложки за счёт её травления. Степень этого перемешивания была оценена в параграфе 3.2 с помощью анализа угла смачивания каплей металла подложки, в качестве оценки которого использовалось отношение высоты кластера к его радиусу. Распределение кластеров по углу смачивания в зависимости от скорости нанесения металла приведено на рисунке 1.



Рисунок 1. Распределение кластеров по отношению высоты к радиусу в зависимости от ростовых условий. На вставке ACM изображение поверхности с кластерами индия 10х10 мкм² и изображение одиночного кластера размером 300х300 нм² и высотой 40 нм

Видно, что оно имеет выраженный бимодальный характер для кластеров индия, в то время как для кластеров галлия наблюдается одна группа. Степень перемешивания зависит от скорости нанесения металла на поверхность, согласно проведённой оценке содержание индия в группах кластеров для скорости 0.16 монослоёв в секунду (МС/с) составляет 100% и 62%, а для 0.04 МС/с 74% и 27% соответственно. В параграфе 3.3 обсуждаются полученные данные, которые позволяют предположить, что наличие двух групп связано с изменением поверхности во время нанесения металла за счёт испарения мышьяка из подложки и, соответственно, появления новых центров зародышеобразования.

Результаты изучения геометрии металлических кластеров, сформированных на поверхности GaAs с помощью начальной стадии нанокапельной эпитаксии, далее были использованы для анализа плазмонных свойств таких металлических частиц и выяснения возможности их применения в гибридных структурах.

Четвёртая глава посвящена теоретическому исследованию плазмонного резонанса в металлических кластерах различных форм, размеров и состава с помощью численного моделирования. Для задания геометрии кластеров использованы данные, приведённые в предыдущей главе. Для изучения плазмонного резонанса в частицах использовано возбуждение плоской волной, затем с помощью возбуждения точечным дипольным источником рассмотрено влияние локализованного поверхностного плазмона в металлической частице на излучатель в зависимости от их взаимного расположения.

В параграфе 4.1 описана модель кластера в виде сегмента сферы, основанная на результатах измерений из третьей главы (см. рисунок 2а), и обсуждается применимость модели точечного дипольного излучателя для полупроводниковых квантовых точек. В параграфе 4.2 приведены результаты изучения влияния материала, размера и формы кластера на резонансную частоту плазмона. Для этого был исследован плазмонный резонанс в кластерах из доступных в МЛЭ установке металлов - алюминия, индия и сурьмы, а также золота в качестве репера. Расчёты были проведены для кластеров с высотами 21 и 42 и диаметрами 170 и 340 нм соответственно. Для меньших кластеров амплитуда пика поглощения кластера индия составляет около 70% от поглощения золотого кластера. Спектры эффективности поглощения, рассчитанные для больших кластеров и ТЕ волны, показаны на рисунке 26. Видно, что поглощение кластеров металлов III группы и сурьмы превышает поглощение золотой частицы. Численные эксперименты доказывают, что наноструктуры металлов III группы могут применяться для плазмоники в ближней ИК области, при этом совместимость с МЛЭ является их явным технологическим преимуществом.

Спектры поглощения кластеров различного размера, приведенные на рисунке 2в, подтверждают, что форма спектра и положение резонансов сильно зависят от размера кластера. Пик, соответствующий дипольному поглощению, с увеличением размера сместился в длинноволновую область. В спектрах достаточно больших кластеров кроме основного дипольного пика появляются дополнительные пики, связанные с возбуждением мультипольных мод, что подтверждается распределением электрического поля для резонансных длин волн. Таким образом, изменяя размер кластера с помощью ростовых условий (температура подложки, количество металла), можно управлять положением резонанса в широком диапазоне.



Рисунок 2. а) Схема кластера с параметрами, использованными в расчётах: высота h, диаметр основания d, угол θ между осью симметрии кластера и волновым вектором k и поляризация света. На вставке 3D модель кластера; б) спектры поглощения TE волны кластерами с h=42 нм, d=340 нм, состоящими из золота, алюминия, индия и сурьмы; в) спектры поглощения TE волны кластерами индия в зависимости от размеров (размеры даны в нм): h=16 d=128, h=21 d=170, h=27 d=213, h=32 d=256, h=37 d=300, h=42 d=340, h=48 d=384, h=53 d=427

Параграф 4.3 посвящён изучению взаимодействию локализованного плазмона в кластере индия и точечного дипольного излучателя. С помощью численных расчётов можно определить, как скорость релаксации точечного диполя изменяется в присутствии металлической частицы. При этом релаксацию можно разделить на излучательную часть, которая соответствует уходу излучения в дальнее поле, и перенос возбуждения из экситона в плазмон, который соответствует безызлучательному каналу. На рисунке 3а представлены зависимости скорости релаксации дипольного излучателя от расстояния до основания кластера для различных положений дипольного источника относительно металлической частицы и длин волн.



Известно, что плазмонный резонанс зависит от формы металлического кластера. Одним из наиболее естественных способов изменения формы линзовидных кластеров является формирование под ним конуса травления. На глубину такого конуса *l* можно влиять с помощью изменения температуры подложки и/или времени формирования структуры. Зависимости скорости безызлучательной релаксации дипольного излучателя, расположенного на оси X, от расстояния до основания кластера для различной глубины конуса травления представлены на рисунке 36. При увеличении глубины конуса травления кластера для источника, расположенного на фиксированном расстоянии от основания кластера (которое соответствует поверхности структуры), скорость безызлучательной релаксации значительно изменяется. Таким образом, наличие конуса позволяет увеличить расстояние между КТ и поверхностью структуры, которая негативно влияет на оптические свойства КТ, при этом сохраняя достаточно сильное экситон-плазмонное взаимодействие.

Наличие конуса может влиять на взаимодействие излучателя с плазмонной модой в зависимости от латерального положения излучателя. На рисунке Зв представлены зависимости скорости безызлучательной релаксации от положения дипольного излучателя под кластером индия для капли с плоским дном и капли с конусом травления глубиной 21 нм при фиксированном расстоянии излучателя до основания кластера. Для кластера с конусом травления скорость релаксации излучателя, расположенного на оси симметрии, значительно увеличивается.

Пятая глава посвящена экспериментальному исследованию экситонплазмонного взаимодействия в гибридных структурах КТ InAs/AlGaAs с кластерами индия. Описана ростовая процедура и приведены результаты исследования поверхности и структуры образцов. Впервые продемонстрировано экситон-плазмонное взаимодействие в гибридной системе с КТ, полученной полностью в рамках МЛЭ технологии. Предложена модель переноса энергии в подансамбле КТ, расположенных под индиевым кластером, посредством возбуждения и поглощения локализованных плазмонов в этом кластере.

В параграфе 5.1 описана ростовая процедура получения гибридных структур и обсуждается использование в данной работе плотных ансамблей КТ ($\sim 10^{10}$ см⁻²), когда под каждым кластером заведомо находится несколько КТ. В такой системе можно ожидать большего сигнала от экситон-плазмонного вза-имодействия. В то же время из-за упругих напряжений сохраняется высокая степень корреляции металлического кластера и самой высокой КТ, а экситон-плазмонное взаимодействие в системе с несколькими излучателями и одной плазмонной частицей может приводить к переносу энергии в подансамбле КТ и появлению новых коллективных мод.



Рисунок 4. ПРЭМ изображение поперечного сечения структуры с Іп кластером над столбцом КТ Параграф 5.2 посвящён экспериментальному исследованию корреляции ансамбля кластеров с ансамблем КТ методом электронной микроскопии. Для усиления упругих напряжений и повышения вероятности упорядочения были изготовлены гибридные структуры со столбцами КТ $InAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ из пяти слоёв КТ, расстояние между которыми было выбрано равным 10 нм. После роста последнего слоя КТ и буферного слоя $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ на поверхность в отсутствии потока мышьяка было нанесено количество индия, номинально соответствующее 1.7 монослоя InAs, и сформированы металлические кластеры. На рисунке 4 представлено изображение поперечного сечения образца, полученное с помощью

просвечивающей растровой электронной микроскопии (ПРЭМ). На нём видно, что металлический кластер располагается ровно над столбцом крупных КТ, для наглядности КТ в столбце и кластер над ними схематически обозначены контурами. Таким образом, впервые прямым методом получено доказательство вертикального упорядочения металлических кластеров над КТ в МЛЭ росте.

В параграфе 5.3 методом фотолюминесценции изучены оптические свойства гибридных структур. В спектре образца с 5 слоями КТ присутствует слабая длинноволновая особенность, однако, из-за сильной зависимости от расстояния только экситоны из квантовых точек, расположенных в ближнем к кластеру слое, могут взаимодействовать с плазмоном. Это приводит к падению общей эффективности экситон-плазмонного взаимодействия в структуре, поэтому в дальнейшем гибридные структуры выращивались с одним слоем КТ.

Для более подробного исследования влияния металлических кластеров на спектр излучения КТ была выращена пара структур с массивом КТ $InAs/Al_{0.38}Ga_{0.62}As$, отделённых от поверхности тонким буферным слоем толщиной 8 нм. На поверхности одной из них были сформированы кластеры индия, далее эта структура обозначена как МК. Во второй, контрольной структуре в верхнем слое вместо кластеров методом Странского-Крастанова были выращены КТ. Таким образом, исследуемые образцы полностью аналогичны по ростовой процедуре за исключением верхнего слоя, который состоял из кластеров металла для МК и квантовых точек для контрольной структуры.

Согласно данным АСМ измерений плотность металлических кластеров составила 10^8 см^{-2} , а плотность КТ в контрольном образце $3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$, при этом в структуре МК под одним металлическим кластером оказывается больше 10 КТ. Спектры ФЛ структуры МК и контрольной структуры приведены на рисунке 5а. В спектре контрольной структуры содержится только широкий пик ФЛ КТ, а в спектре структуры МК кроме него присутствует новый узкий длинно-



Рисунок 5. а) Спектры ФЛ контрольного образца (кривая 1) и структуры МК (кривая 2), для наглядности спектры совмещены по оси Y; б) схема подансамбля КТ, взаимодействующих через плазмонную моду кластера. Стрелками показаны перенос возбуждения в плазмон и отсутствие прямого взаимодействия между КТ; в) схема переноса энергии в подансамбле КТ через плазмонную моду. Горизонтальными стрелками обозначен перенос возбуждения из экситона в плазмон и обратно, вертикальными - излучательная рекомбинация в КТ

волновый пик. Для наглядности спектры совмещены по оси ординат. Высокое совпадение контуров широких пиков КТ подтверждает, что внутренние слои точек в контрольном образце и структуре МК формировались в одинаковых ростовых условиях. Отметим, что полученный сигнал является интегральным по всей площади пятна лазера ($\sim 10^{-4}$ см⁻²), а по данным АСМ покрытие кластерами составляет менее 5% от этой площади. Интегральная интенсивность (ИИ) новой полосы, связанной с формированием кластеров металла на поверхности, сравнима с ИИ основной полосы ФЛ КТ, что свидетельствует о высокой степени этого взаимодействия. При увеличении расстояния между слоями КТ и кластеров металла с 8 до 50 нм новый пик, как и ожидалось, пропадает, так как величина этого взаимодействия сильно зависит от расстояния.

В параграфе 5.4 проводится анализ гипотез, позволяющих описать экспериментальные данные. Для объяснения возникновения нового пика предложена модель взаимодействия ансамбля КТ с плазмонной модой, за счёт которого возникает перенос энергии в крупную точку-акцептор через плазмонные моды по механизму, описанному в [5]. В работе [5] рассмотрена система, состоящая из ансамбля атомов, расположенных рядом с металлическим шаром, причем уровни атомов находятся в полосе плазмонного резонанса. В такой системе возникает новое взаимодействие за счёт того, что атомы обмениваются виртуальными плазмонами. Это взаимодействие может приводить к безызлучательному переносу возбуждения из ансамбля атомов на акцептор — излучатель с самой низкой энергией [6]. В структуре МК в ансамбле КТ, расположенных под металлическим кластером, может происходить аналогичное взаимодействие за счёт возбуждения плазмонов. Прямым взаимодействием между КТ можно пренебречь из-за большого расстояния между соседними КТ (~ 100 нм). В нашей системе акцептором является самая крупная КТ в ансамбле. Расстояние между этой КТ и кластером наименьшее во взаимодействующем ансамбле, значит, экситонплазмонное взаимодействие в этой паре самое сильное. Отметим, что сильное экситон-плазмонное взаимодействие именно для центральной КТ было также обнаружено в численных экспериментах по исследованию взаимодействия точечного диполя с плазмоном в индиевом кластере с учётом формирования конуса травления, описанных в параграфе 4.3. Ансамбль КТ, взаимодействующих через плазмонную моду, схематически изображен на рисунке 56.

Как известно, экситон-плазмонное взаимодействие может приводить к уменьшению времени излучательной рекомбинации [7]. Кроме того, время жизни экситона в КТ обратно пропорционально её размеру [8], а, значит, в выделенном ансамбле оно минимально именно для крупной КТ. Тогда при наличии переноса энергии от соседних КТ за счёт медиатора в виде плазмонной моды центральная крупная квантовая точка представляет собой излучательный канал, через который проходят возбуждения всего взаимодействующего ансамбля, как показано на рисунке 5в. Возбуждение КТ-донора передаётся в плазмонную моду и после частичной релаксации энергии резонансно переходит в другую КТ. Этот процесс продолжается до перехода возбуждения в крупную КТ, из которой оно излучается в виде длинноволнового фотона. Это приведёт к увеличению сигнала ФЛ от длинноволновой части распределения КТ, которое и наблюдается в нашем эксперименте.

Для изучения зависимости экситон-плазмонного взаимодействия от количества КТ под кластером был изготовлен образец с монотонно изменяющейся плотностью КТ. Для этого вращение образца во время нанесения InAs для формирования КТ было остановлено, что привело к градиенту количества нанесённого InAs и, соответственно, размеров и плотности КТ вдоль некоторой оси. После роста КТ и буферного слоя AlGaAs толщиной 8 нм на поверхности структуры был сформирован однородный массив кластеров индия.

Спектры ФЛ структуры с градиентом КТ и однородным массивом металлических кластеров приведены на рисунке ба. Видно, что спектры содержат два пика, отличающихся по ширине. С увеличением количества InAs происходит длинноволновый сдвиг широкого пика, что соответствует увеличению среднего размера КТ, и амплитуды обоих пиков заметно возрастают с увеличением плотности КТ. На рисунке бб показана зависимость отношения узкого и широкого пика КТ, то есть от плотности КТ. Сначала отношение $S_{плазмон}/S_{KT}$ постоянно, а затем линейно растёт с увеличением количества индия, то есть зависимость взаимодействия от плотности КТ становится квадратичной. Представление экс-

периментальных данных именно в таких переменных делает переход от линейной к квадратичной зависимости особенно наглядным.



Рисунок 6. а) Спектры ФЛ образца с градиентом количества InAs в KT и однородным массивом кластеров индия на поверхности; б) Зависимость отношения площадей узкого пика и пика KT $S_{плазмон}/S_{KT}$ от площади пика KT, на вставке показано разложение спектра. Приведены линейные аппроксимации двух участков зависимости

Предложенная модель экситон-плазмонного взаимодействия позволяет объяснить сильную зависимость отношения $S_{плазмон}/S_{KT}$ от количества InAs. С увеличением толщины плёнки InAs при критическом значении происходит переход Странского-Крастанова, и плотность КТ скачком меняется на порядок величины, а затем монотонно растёт. При некотором количестве InAs происходит переход от одной КТ под кластером к нескольким, и включается описанный выше механизм переноса возбуждения. После этого сигнал длинноволновых точек квадратично зависит от плотности КТ, что и наблюдается на втором участке зависимости на рисунке 66.

В параграфе 5.5 описаны результаты измерений микро-ФЛ на структурах с КТ InAs/AlGaAs с буферным слоем толщиной 10 нм, на поверхности которых методом электронной литографии были сформированы золотые плазмонные антенны типа бабочка. С помощью исследования таких структур было получено дополнительное подтверждение наличия экситон-плазмонного взаимодействия в аналогичных структурах с кластерами индия. Переход от индиевых кластеров, сформированных методом МЛЭ, к периодически расположенным массивам литографических антенн также позволил установить корреляцию между расположением плазмонных элементов и КТ с большой интенсивностью ФЛ. Пространственное разрешение микро-ФЛ (~ 1 мкм) недостаточно для обнаружения на поверхности отдельных случайно расположенных кластеров размером 300 нм. Для идентификации расположения золотых частиц было использовано изображение отражения лазера накачки. На нём отчётливо видна пери-

одическая структура, параметры которой соответствуют изображению массива антенн, полученному сканирующей электронной микроскопией. Совпадение расположения КТ с высокой интенсивностью ФЛ с максимумами отражения лазера позволяет утверждать, что такие КТ расположены под антеннами.



Рисунок 7. Спектры микро-ФЛ для яркой КТ, измеренные в параллельной (1) и перпендикулярной (2) поляризациях относительно оси антенны. На вставке показана полная поляризационная зависимость для этой КТ

Обнаружено, что интенсивность ФЛ ярких КТ, расположенных под антеннами, на порядок выше интенсивности реперных точек, расположенных вне массивов антенн. Одновременно для них наблюдалась сильная поляризационная зависимость, обусловленная анизотропией антенны. На рисунке 7 представлены спектры КТ с большой интенсивностью, измеренные в параллельной и перпендикулярной поляризациях относительно главной оси антенны. На вставке приведена подробная поляризационная зависимость интегрального сигнала ФЛ для исследованной КТ, отношение лепестков которой достигает 9 и соответствует степени поляризации 80%. Измерение кинетики микро-ФЛ показало уменьшение времени жизни возбуждения для иссле-

дованной КТ примерно в 3 раза, причём полученное ускорение ограничено разрешающей способностью установки. Таким образом, в гибридных металлполупроводниковых системах были обнаружены усиление ФЛ КТ, расположенных рядом с наноантеннами, сильная поляризационная зависимость ФЛ и значительное ускорение кинетики ФЛ. Обнаружение всех этих трёх факторов одновременно убедительно свидетельствует о наличии сильного экситонплазмонного взаимодействия в системе с КТ, расположенными на минимальном расстоянии от поверхности. Доказательства экситон-плазмонного взаимодействия КТ с литографическими антеннами дополняют результаты исследования гибридных структур с индиевыми кластерами, в которых эффекты взаимодействия выражены ещё более ярко из-за фиксации минимального расстояния между КТ и кластером при вертикальном упорядочении.

Основные результаты и выводы работы:

1. При формировании кластеров индия на подложке GaAs в процессе МЛЭ роста при температуре $500^{\circ}C$ происходит значительное перемешивание металла кластера с материалом подложки за счёт травления подложки. Это приводит к бимодальности распределения высот индиевых кластеров и отношения высоты кластера к его радиусу, являющегося простой оценкой угла смачивания. На основе анализа последнего предложен новый метод исследования степени перемешивания материалов кластеров и подложки. Обнаруженная бимодальность угла смачивания свидетельствует о том, что на поверхности имеются группы кластеров с разным составом.

В предположении о составе кластеров с наибольшим и наименьшим углами смачивания проведены оценки состава всех наблюдаемых групп кластеров. Показано, что при понижении скорости нанесения индия от 0.16 до 0.04 MC/с содержание индия в кластерах может снизиться до 30% за счёт перемешивания с материалом подложки. На основе экспериментальных результатов предложена модель эволюции кластера на поверхности и формирования двух групп кластеров, учитывающая испарение мышьяка и последующее изменение состояния поверхности.

2. Теоретическое исследование зависимости поверхностного плазмонного резонанса в металлических кластерах с учётом реальной геометрии от материала кластера показало, что кластеры металлов III группы, сформированные в МЛЭ росте, могут быть эффективно использованы для плазмоники. С помощью изменения размера кластера положение резонанса может быть перестроено в широком диапазоне длин волн, учёт влияния подложки приводит к сдвигу плазмонного резонанса в длинноволновую сторону. В качестве инструмента для постростовой подстройки резонанса под излучение КТ предложено плазменно-химическое окисление кластеров с последующим селективным травлением плёнки. Установлено, что достаточно большие кластеры поддерживают мультипольные моды, и изучены свойства этих мод.

3. Теоретически показано, что формирование конуса травления под кластером увеличивает скорость переноса возбуждения в плазмонную моду для излучателя, расположенного на оси симметрии кластера, и, соответственно, приводит к усилению экситон-плазмонного взаимодействия. Это позволяет увеличить расстояние между КТ и поверхностью, негативно влияющей на их оптические свойства, в то же время сохраняя достаточный уровень взаимодействия между излучателем и плазмонной частицей.

4. Прямым методом электронной микроскопии показано, что в металлполупроводниковой системе с КТ InAs/AlGaAs и кластерами индия на поверхности, полученной методом МЛЭ, происходит вертикальное упорядочение кластеров индия над КТ.

5. Наличие металлических кластеров на поверхности приводит к появлению нового пика на длинноволновом крыле КТ в спектрах фотолюминесценции ги-

бридных структур. В образцах без кластеров индия, а также в образцах с увеличенным до 50 нм расстоянием между слоями кластеров и точек эта полоса ФЛ отсутствует. Согласно данным АСМ, кластерами металла покрыто около 5% площади, поэтому удельная интенсивность ФЛ КТ из областей с кластерами значительно превышает интенсивность остальных КТ, что свидетельствует о сильном экситон-плазмонном взаимодействии.

Для объяснения экспериментальных результатов предложена модель экситонплазмонного взаимодействия в подансамбле КТ, находящихся под металлическим кластером. В этой модели между КТ возникает взаимодействие за счёт медиатора в виде плазмонной моды, которое приводит к безызлучательному переносу возбуждения КТ на акцептор - крупную КТ. Из-за упругих напряжений кластер формируется над самой крупной точкой в подансамбле, которая является выделенной. Усиление фотолюминесценции КТ-акцептора благодаря переносу энергии приводит к появлению новой длинноволновой полосы ФЛ, которая наблюдается в эксперименте.

Результаты работы изложены в следующих публикациях:

[A1] Lyamkina, A.A. Influence of localized surface plasmon in a lens-shaped metal cluster on the decay dynamics of a point-dipole emitter / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // J. Quant. Spectr. Radiat. Transfer. -2015. - Vol. 156. - P. 12–16.

[А2] Лямкина, А.А. Экситон-плазмонное взаимодействие в гибридных структурах квантовые точки - металлические кластеры, полученных методом МЛЭ / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко, Д.В. Дмитриев, А.И. Торопов, Т.С. Шамирзаев // Письма в ЖЭТФ. – 2014. – Т. 99, №4. – Р. 245–249.

[A3] Moshchenko, S.P. Modelling the localized surface plasmon resonance of nanoclusters of group III metals and semimetallic antimonys / S.P. Moshchenko, A.A. Lyamkina // Journal of Siberian Federal University: Mathematics & Physics. -2014. – Vol. 7, no. 2. – P. 211–217.

[A4] Lyamkina, A.A. Numerical investigation of surface plasmon resonance in lens-shaped self-assembled nanodroplets of group III metals / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // J. Phys. Chem. C. – 2013. – Vol. 117, no. 32. – P. 16564–16570.

[A5] Лямкина, А.А. Подстройка в резонанс экситон-плазмонного взаимодействия в гибридной системе квантовая точка-капля индия при контролируемом окислении металла: численное моделирование / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко // Известия вузов. Физика. – 2013. – Т. 56, №2/2. – Р. 223–227.

[A6] Lyamkina, A.A. The investigation of intermediate stage of template etching with metal droplets by wetting angle analysis on (001) GaAs surface / A.A. Lyamkina, D.V. Dmitriev, Yu.G. Galitsyn, V.G. Kesler, S.P. Moshchenko, A.I. Toropov // Nanoscale Res. Lett. -2011. - Vol. 6. - P. 42–48.

[A7] Лямкина, А.А. Экситон-плазмонное взаимодействие в гибридных металлполупроводниковых структурах с InAs/AlGaAs КТ и плазмонными наноантеннами / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко, К. Шрамль, М. Канибер, Д. Финли // Материалы 21 Всероссийской научной конференции студентов-физиков, Омск, 26 марта - 2 апреля, 2015. С. 196-197.

[А8] Лямкина, А.А. Взаимодействие локализованного поверхностного плазмона в линзовидной частице из металлов III группы и сурьмы с точечным диполем / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко // Международная научно-техническая конференция «Фундаментальные проблемы радиоэлектронного приборостроения », Москва, 1-5 декабря, 2014. С. 90-93.

[A9] Lyamkina, A.A. Plasmon-mediated coupling of self-assembled InAs/AlGaAs QDs in hybrid metal-semiconductor structure grown by MBE / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // Conference on Laser Physics and Photonics, Suzdal, Russia, November 7-17, 2014. P. 38.

[A10] Лямкина, А.А. Перенос энергии в ансамбле самоорганизованных квантовых точек через плазмонные моды / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко // Конференция, посвящённая 50-летию ИФП СО РАН, Новосибирск, 15-18 сентября, 2014. С. 28.

[A11] Lyamkina, A.A. Plasmon-mediated energy transfer in the ensemble of selfassembled InAs/AlGaAs QDs / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // International Conference on Problems of Strongly Correlated and Interacting Systems, St-Petersburg, Russia, May 28–31, 2014. P. 73.

[А12] Лямкина, А.А. Гибридные металл-полупроводниковые структуры с вертикальным самосовмещением для плазмонных приложений / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко, Д.В. Дмитриев, Т.С. Шамирзаев, А.И. Торопов // Тезисы докладов XI Российской конференции по физике полупроводников, Санкт-Петербург, Россия, 16-20 сентября, 2013. С. 83.

[A13] Lyamkina, A.A. Selective enhancement of photoluminescence due to excitonplasmon interaction in the hybrid system quantum dot – metal droplet grown by MBE / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // The 6 International Symposium «Modern Problems of Laser Physics» (MPLP'2013), Novosibirsk, Russia, August 25-31, 2013. B25.

[A14] Lyamkina, A.A. Resonant enhancement of photon emission by localized surface plasmons in hybrid metal-semiconductor QD structures / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // Summer School On Plasmonics, Cargese, France, July 28-August 03, 2013.

[A15] Lyamkina, A.A. Plasmon-mediated PL enhancement for quantum dots in hybrid metalsemiconductor nanostructures on GaAs substrate / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko, T.S. Shamirzaev et al. // Proceedings of International Conference on Quantum Technologies (ICQT'13), Moscow, July 20-24, 2013. P.77.

[A16] Lyamkina, A.A. Elastically driven vertical alignment of metal droplet over InAs/GaAs quantum dots / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko, M.A. Neklyudova, Yu.G. Galitsyn // IV International Conference «Fundamental Bases of Mechanochemical Technologies», Novosibirsk, Russia, June 25-28, 2013. P. 73.

[A17] Lyamkina, A.A. Non-radiative energy transfer in quantum dot ensemble mediated by localized surface plasmons / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // 7 Russian-French workshop on Nanosciences and Nanotechnologies, Novosibirsk, June 3-6, 2013. P.64.

[A18] Lyamkina, A.A. PL enhancement due to exciton-plasmon interaction in the hybrid system quantum dot – metal droplet grown by MBE / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // 12 Kharkiv Young Scientists Conference on radiophysics, electronics, photonics and biophysics, Kharkiv, Ukraine, 4-7 December, 2012.

[А19] Лямкина, А.А. Резонансное усиление люминесценции в системе квантовая точка - металлическая капля за счёт экситон-плазмонного взаимодействия / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко // Тезисы 14 молодёжной конференции по физике полупроводников и наноструктур и опто- и наноэлектронике, Санкт-Петербург, 26-30 ноября, 2012. С. 57.

[А20] Лямкина, А.А. Управление частотой плазмонного резонанса в нанокаплях индия при окислении ионами кислорода в плазме разряда Таунсенда / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко, В.Г. Кеслер // IV Всероссийская конференция «Физические и физико-химические основы ионной имплантации», Новосибирск, 23-26 октября, 2012. С. 58.

[А21] Лямкина, А.А. Подстройка в резонанс экситон-плазмонного взаимодействия в гибридной системе квантовая точка-капля индия при контролируемом окислении металла: численное моделирование / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко // Материалы Международной молодежной конференции по люминесценции и лазерной физике, туристическая база «Песчанка», Иркутская обл., Россия, 16-22 июля, 2012. С. 38.

[A22] Лямкина, А.А. Экситон-плазмонное взаимодействие в массиве вертикально упорядоченных металлических капель и квантовых точек в системе InAs/GaAs / A.A. Лямкина, С.П. Мощенко // Материалы 50 Международной научной студенческой конференции, Новосибирск, 13-19 апреля, 2012. С. 39.

[А23] Лямкина, А.А. Численное изучение поверхностного плазмонного резонанса в нанокаплях металлов III группы / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко // Материалы 50 Международной научной студенческой конференции, Новосибирск, 13-19 апреля, 2012. С. 13.

[А24] Лямкина, А.А. Исследование оптических свойств металлических нанокапель для плазмонных приложений методом численного моделирования / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко // Материалы 18 Всероссийской научной конференции студентов-физиков, Красноярск, 29 марта-5 апреля, 2012. С. 115.

[A25] Лямкина, А.А. Экситон-плазмонное взаимодействие в гибридной структуре квантовая точка - металлическая капля, полученной методом МЛЭ / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко // Материалы 18 Всероссийской научной конференции студентов-физиков, Красноярск, 29 марта-5 апреля, 2012. С. 114. [A26] Лямкина, А.А. Усиление люминесценции ансамбля квантовых точек, связанных с плазмонными металлическими каплями / А.А. Лямкина, С.П. Мощенко // Материалы конференции Фотоника и оптические технологии, Новосибирск, 26-28 марта, 2012. С. 39.

[A27] Lyamkina, A.A. Numerical investigation of surface plasmon resonance in metal nanodroplets grown by MBE / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // International Nano-Optoelectronic Workshop, St. Petersburg, Russia – Wurzburg, Germany, July 24-August 5, 2011, p. 112.

[A28] Lyamkina, A.A. MBE compatible surface plasmon resonance technique based on droplet epitaxy / A.A. Lyamkina, S.P. Moshchenko // International Conference on Micro/Nanotechnologies and Electron Devices, Erlagol, Russia, June 30-July 4, 2011. P. 63.

Список цитируемой литературы:

 Su, X. Multipole-plasmon-enhanced Förster energy transfer between semiconductor quantum dots via dualresonance nanoantenna effects / X. Su, W. Zhang, Li Zhou, X.-N. Peng, D.-W. Pang, S.-D. Liu, Z.-K. Zhou, Q.-Q. Wang // Appl. Phys. Lett. – 2010. – Vol. 96. – P. 043106.

2. Schraml, K. Optical properties and interparticle coupling of plasmonic bowtie nanoantennas on a semiconducting substrate / K. Schraml, M. Spiegl, M. Kammerlocher, G. Bracher, J. Bartl, T. Campbell, J. Finley, M. Kaniber // Phys. Rev. B. -2014. – Vol. 90. – P. 035435.

3. Shchukin, V.A. Vertical correlations and anticorrelations in multisheet arrays of two-dimensional islands / V.A. Shchukin, D. Bimberg, V.G. Malyshkin, N.N. Ledentsov // Phys. Rev. B. – 1998. – Vol. 57. – P. 12262.

4. Urbanczyk, A. Strain-driven alignment of In nanocrystals on InGaAs quantum dot arrays and coupled plasmonquantum dot emission / A. Urbanczyk, G.J. Hamhuis, R. Noetzel // Appl. Phys. Lett. – 2010. – Vol. 96. – P. 113101.

5. Pustovit, V.N. Cooperative emission of light by an ensemble of dipoles near a metal nanoparticle: The plasmonic Dicke effect / V.N. Pustovit, T.V. Shahbazyan // Phys. Rev. Lett. -2009. - Vol. 102. - P. 077401.

6. Pustovit, V.N. Cooperative amplification of energy transfer in plasmonic systems / V.N. Pustovit, A.M. Urbas, T.V. Shahbazyan // Phys. Rev. B. – 2013. – Vol. 88. – P. 245427.

7. Palomba, S. Optical coupling of core-shell quantum dots to size-selected gold clusters / S. Palomba, R.E. Palmer // J. Appl. Phys. -2008. - Vol. 104. - P. 094316.

8. Stobbe, S. Frequency dependence of the radiative decay rate of excitons in selfassembled quantum dots: Experiment and theory / S. Stobbe, J. Johansen, P. T. Kristensen, J. M. Hvam, P. Lodahl // Phys. Rev. B. – 2009. – Vol. 80. – P. 155307.