



Πανεπιστήμιο Κρήτης

Σχολή Θετικών και Τεχνολογικών Επιστημών

Τμήμα Φυσικής

ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ

“Πειραματική και θεωρητική διερεύνηση των δομικών και οπτικών ιδιοτήτων των κβαντικών τελειών αρσενικούχου ινδίου ανεπτυγμένων σε υπόστρωμα αρσενικούχου γαλλίου κατά τη (211) κρυσταλλογραφική διεύθυνση”

ΓΕΩΡΓΙΟΣ ΔΙΑΛΥΝΑΣ

Ηράκλειο, 2020

Διδακτορική διατριβή

«Πειραματική και θεωρητική διερεύνηση των δομικών και οπτικών ιδιοτήτων των κβαντικών τελειών αρσενικούχου ινδίου ανεπτυγμένων σε υπόστρωμα αρσενικούχου γαλλίου κατά τη (211) κρυσταλλογραφική διεύθυνση»

Τριμελής συμβουλευτική επιτροπή

Πελεκάνος Νίκος (επιβλέπων καθηγητής)

Καθηγητής, Τμήμα Επιστήμης και Τεχνολογίας Υλικών / Πανεπιστήμιο Κρήτης

Χατζόπουλος Ζαχαρίας (συνεπιβλέπων)

Αναπληρωτής Καθηγητής, Τμήμα Φυσικής / Πανεπιστήμιο Κρήτης

Σαββίδης Παύλος

Καθηγητής, Τμήμα Επιστήμης και Τεχνολογίας Υλικών / Πανεπιστήμιο Κρήτης

Επταμελής Επιτροπή κρίσης της Διδακτορικής Διατριβής

Πελεκάνος Νίκος

Καθηγητής, Τμήμα Επιστήμης και Τεχνολογίας Υλικών / Πανεπιστήμιο Κρήτης

Χατζόπουλος Ζαχαρίας

Αναπληρωτής Καθηγητής, Τμήμα Φυσικής / Πανεπιστήμιο Κρήτης

Σαββίδης Παύλος

Καθηγητής, Τμήμα Επιστήμης και Τεχνολογίας Υλικών / Πανεπιστήμιο Κρήτης

Γεωργακίλας Αλέξανδρος

Καθηγητής, Τμήμα Φυσικής, Παν/μιο Κρήτης

Ηλιόπουλος Ελευθέριος

Αναπληρωτής Καθηγητής Τμήμα Φυσικής / Πανεπιστήμιο Κρήτης

Κιοσέογλου Γεώργιος

Αναπληρωτής Καθηγητής, Τμήμα Επιστήμης και Τεχνολογίας Υλικών/ Πανεπιστήμιο Κρήτης

Κωνσταντινίδης Γεώργιος

Διευθυντής Ερευνών, Ινστιτούτο Ηλεκτρονικής Δομής και Λείζερ / I.T.E.

Στη Βέτα, στην Έλλη-Σοφία

και στους γονείς μου

ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ

Η παρούσα εργασία αποτελεί το επιστέγασμα μιας προσπάθειας πολλών χρόνων και πραγματοποιήθηκε με την επίβλεψη και επιστημονική καθοδήγηση του κκ. Νίκου Πελεκάνου, Καθηγητή του Τμήματος Επιστήμης και Τεχνολογίας Υλικών του Πανεπιστημίου Κρήτης (Π.Κ.). Ο κ. Πελεκάνος με εισήγαγε στις βασικές αρχές της εφαρμοσμένης κβαντικής μηχανικής και μου έμαθε πολλά για το μαγικό κόσμο της φυσικής ημιαγωγών και των ημιαγωγικών νανοδιατάξεων. Θα ήθελα να τον ευχαριστήσω για την αμέριστη συμπαράσταση, ενθάρρυνση, υπομονή και επιμονή του καθόλη τη διάρκεια των σπουδών μου.

Ιδιαίτερος ευχαριστώ τα υπόλοιπα μέλη της τριμελούς επιτροπής, κκ. Σαββίδη Παύλο, Καθηγητή του Τμήματος Επιστήμης και Τεχνολογίας Υλικών του Πανεπιστημίου Κρήτης, για την πολύτιμη καθοδήγηση του σε πειραματικές τεχνικές καθώς και τον κκ. Ζαχαρία Χατζόπουλο, ο οποίος ανέπτυξε τα δείγματα κβαντικών τελειών, τα οποία μελετήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας εργασίας. Ευχαριστώ, επίσης, τα υπόλοιπα μέλη της επταμελούς επιτροπής κρίσης της Διδακτορικής Διατριβής, κκ. Γεωργακίλα Αλέξανδρο, Καθηγητή και Πρόεδρο του τμήματος Φυσικής / Π.Κ., Ηλιόπουλο Ελευθέριο, Αναπληρωτή Καθηγητή τμήματος Φυσικής / Π.Κ., Κιοσέογλου Γεώργιο, Αναπληρωτή Καθηγητή Τ.Ε.Τ.Υ. / Π.Κ. και Κωνσταντινίδη Γεώργιο Διευθυντή Ερευνών Ι.Η.Δ.Α. / Ι.Τ.Ε., για τις παρατηρήσεις και τις διορθώσεις που έκαναν στο κείμενο της διατριβής.

Θα ήθελα να ευχαριστήσω, επίσης τα μέλη (νυν και πρώην) της Ομάδας Μικροηλεκτρονικής και ιδιαίτερα όσους συνεργάστηκαμε κατά τη διάρκεια της παρούσας εργασίας, και οι οποίοι συνεισέφεραν τα μέγιστα στην εκπόνησή της. Ενδεικτικά αναφέρω τους: Σάββα Γερμάνη, Μαρία Ανδρουλιδάκη, Κατερίνα Τσαγκαράκη, Αντώνη Σταυρινίδη, Σίμο Τσίντζο και Σωκράτη Καλλιάκο.

Ένα μεγάλο ευχαριστώ, τέλος, στη σύζυγό μου Βέτα Κυρίκογλου, στην κόρη μου Έλλη-Σοφία και στους γονείς μου για τη συνεχή συμπαράσταση και στήριξη όλα αυτά τα χρόνια. Επίσης ευχαριστώ ολόψυχα τα υπόλοιπα μέλη της οικογένειάς μου, τους συναδέλφους μου στο Γυμνάσιο Ανωγείων και τους φίλους μου για την βοήθεια που μου προσέφεραν.

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Οι ημιαγωγικές κβαντικές τελείες (QDs), οι οποίοι βασίζονται σε ετεροδομές αρσενιδίων (As), παρουσιάζονται ως το ιδανικό σύστημα για τη μελέτη των θεμελιωδών ιδιοτήτων της ύλης καθώς και για την υλοποίηση καινοτόμων συσκευών. Στην περίπτωση που η ανάπτυξη των τελειών αυτών γίνεται σε υψηλού δείκτη κρυσταλλογραφικές διευθύνσεις όπως η (211) κρυσταλλογραφική διεύθυνση, στο χώρο των κβαντικών τελειών εμφανίζεται ισχυρό πιεζοηλεκτρικό πεδίο, το οποίο αναμένεται να προσδίδει ιδιαίτερες ιδιότητες στις τελείες αυτές.

Στην παρούσα εργασία παρουσιάζεται μια μελέτη στις δομικές και οπτικές ιδιότητες των QDs αρσενικούχου ινδίου (InAs), οι οποίες αναπτύσσονται με τη μέθοδο της επίταξης μοριακών δεσμών (MBE) σε υπόστρωμα (211)B αρσενικούχου γαλλίου (GaAs). Οι δομικές και μορφολογικές ιδιότητες των InAs QDs μελετώνται με τη βοήθεια μικροσκοπίου ατομικών δυνάμεων (AFM). Η μελέτη αυτή καταδεικνύει ότι οι αναπτυσσόμενες τελείες έχουν σχήμα κόλουρης πυραμίδας. Εξετάζεται η επίδραση παραμέτρων της επίταξης στο μέγεθος και το σχήμα των αναπτυσσόμενων νανοδομών. Παρατηρείται αύξηση του ύψους των κβαντικών τελειών με αύξηση της θερμοκρασίας. Παρόμοια αύξηση του μέσου μεγέθους των τελειών εμφανίζεται και με μείωση του ρυθμού εναπόθεσης του InAs. Οι μετρήσεις AFM επιτρέπουν τον προσδιορισμό του πάχους του διδιάστατου wetting layer (WL) με μεγάλη ακρίβεια στην περιοχή των 1.0 – 1.3 μονοστρωμάτων (MLs) InAs. Η σύσταση των τελειών εξετάζεται με τη βοήθεια μετρήσεων TEM και προσδιορίζεται το ποσοστό του In στο χώρο των τελειών. Το ποσοστό αυτό μεταβάλλεται από 30% στη βάση των τελειών σε 90% στην πάνω πλευρά τους.

Παράλληλα οι οπτικές ιδιότητες τόσο δειγμάτων QDs όσο και μεμονωμένων QDs μελετώνται σε πειράματα φωτοφωταύγειας (PL) και μικρο-φωτοφωταύγειας (μ -PL) αντίστοιχα. Η μελέτη των φασμάτων εκπομπής PL αναδεικνύει ότι μόνο ένα μικρό μέρος των InAs QDs, με ύψος 2-3nm, είναι οπτικά ενεργές. Η μελέτη της εκπομπής μεμονωμένων QDs σε πειράματα μ -PL αναδεικνύει δύο βασικά χαρακτηριστικά των (211)B InAs τελειών. Καταρχήν, μελετώντας την πόλωση των φασματικών γραμμών ξιτονίου (X) και διεξιτονίου (XX) σε πειράματα μ -PL, συμπεραίνουμε ότι η μεγάλη πλειοψηφία των (211)B InAs QDs παρουσιάζει αμελητέο διαχωρισμό λεπτής υφής (FSS). Το γεγονός αυτό αποδίδεται στην παρουσία του PZ πεδίου, το οποίο αυξάνει τη συμμετρία του περιοριστικού δυναμικού και καθιστά τις δομές αυτές ιδανικούς υποψήφιους για χρήση σε εφαρμογές συζευγμένων

φωτονίων. Επιπρόσθετα οι (211)B InAs QDs, σε αντίθεση με όσες αναπτύσσονται σε υπόστρωμα (100) GaAs, παρουσιάζουν μεγάλη αντιδέσμια ενέργεια διεξιτονίου ΔE_{XX}^{bind} ($> 10\text{meV}$). Για την ερμηνεία των παραπάνω αποτελεσμάτων και τη θεωρητική μελέτη των (211)B InAs QDs αναπτύχθηκε μοντέλο, το οποίο επιτρέπει τον υπολογισμό των ενεργειών X και XX, λαμβάνοντας υπόψη φαινόμενα πολλών σωματιδίων μέσω της αλληλεπίδρασης σχηματισμών. Τα αποτελέσματα των υπολογισμών αναδεικνύουν ότι η μεγάλη αντιδέσμια ενέργεια του διεξιτονίου ΔE_{XX}^{bind} είναι ένα ξεκάθαρο αποτέλεσμα της ύπαρξης του PZ πεδίου. Εξαιτίας του πιεζοηλεκτρικού πεδίου, η τιμή της ΔE_{XX}^{bind} αυξάνεται με αύξηση του ύψους των τελειών και του ποσοστού του In στο χώρο της τελείας και μπορεί να φτάσει τα 25meV για InAs/GaAs QDs με ύψος 4nm . Η μεγάλη διαφορά ανάμεσα στις ενέργειες εξιτονίου και διεξιτονίου καθιστά τις δομές αυτές ιδανικό υποψήφιο σύστημα για την κατασκευή εκπομπών μεμονωμένων φωτονίων σε υψηλές θερμοκρασίες.

ΠΕΡΙΕΧΟΜΕΝΑ

Κεφάλαιο 1: Εισαγωγή.....	1
1.1. Κβαντικές Τελείες – Ιστορική Αναδρομή.....	1
1.2. Μέθοδοι Κατασκευής Κβαντικών Τελειών.....	4
1.3. Εξιτονικά σύμπλοκα σε κβαντικές τελείες.....	6
1.4. Ενέργεια ανταλλαγής – Διαχωρισμός λεπτής υφής.....	10
1.5. Εφαρμογές κβαντικών τελειών.....	16
1.6. Σκοπός της εργασίας.....	19
1.6.1. Πιεζοηλεκτρικές Κβαντικές Τελείες.....	20
1.6.2. Ενισχυμένο Κβαντικό Φαινόμενο Stark.....	22
1.6.2.1. Ευαισθησία Φάσματος Εκπομπής σε εξωτερικό πεδίο.....	23
1.6.3. Περιορισμός Διαχωρισμού Λεπτής Υφής.....	24
1.6.4. Αρνητική ενέργεια δέσμησης διεξιτονίου.....	24
1.6.4.1. SPSs υψηλής θερμοκρασίας.....	25
Βιβλιογραφικές Αναφορές.....	25
Κεφάλαιο 2: Δομικές ιδιότητες κβαντικών τελειών.....	30
2.1 Εισαγωγή.....	30
2.2. Τεχνικές χαρακτηρισμού.....	30
2.2.1. Μικροσκοπία Ατομικών Δυνάμεων (AFM).....	30
2.2.2. Ηλεκτρονική Μικροσκοπία σάρωσης (SEM).....	34
2.2.3. Ηλεκτρονική μικροσκοπία διέλευσης (TEM).....	36
2.3. Πληροφορίες Δειγμάτων.....	37
2.4. Επίδραση θερμοκρασίας.....	39
2.5. Επίδραση ρυθμού εναπόθεσης.....	43
2.6. Επίδραση πάχους εναπόθεσης.....	45
2.7. Σύσταση – Μορφολογία κβαντικών τελειών.....	48
2.8. Συμπεράσματα.....	53
Βιβλιογραφικές Αναφορές.....	53
Κεφάλαιο 3: Οπτικές Ιδιότητες Κβαντικών Τελειών.....	56
3.1. Εισαγωγή.....	56
3.2 Μέθοδος φωτοφωταύγειας.....	56
3.3. Πειραματική Διάταξη.....	58

3.4. Μορφή Φάσματος Φωτοφωταύγειας.....	60
3.5. Φάσμα Φωτοφωταύγειας από κβαντικές παύλες.....	61
3.6. Εκτίμηση πάχους wetting layer.....	63
3.6.1. Εξάρτηση εκπομπής φωτοφωταύγειας από το πάχος του InAs.....	67
3.6.2. Οπτικά Ενεργές κβαντικές τελείες.....	69
3.7. Πειράματα φωτοφωταύγειας με μεταβλητή ένταση διέγερσης.....	70
3.8. Συμπεράσματα.....	72
Βιβλιογραφικές Αναφορές.....	72
Κεφάλαιο 4: Εκπομπή φωτός από μεμονωμένες κβαντικές τελείες.....	74
4.1. Φασματοσκοπία μεμονωμένων κβαντικών τελειών.....	74
4.2. Προετοιμασία δείγματος.....	74
4.3. Καθορισμός φασματικών γραμμών εξιτονίου – διεξιτονίου.....	76
4.4. Διαχωρισμός Λεπτής Υφής.....	83
Βιβλιογραφικές Αναφορές.....	85
Κεφάλαιο 5: Θεωρητική Μελέτη Κβαντικών Τελειών.....	87
5.1. Εισαγωγή.....	87
5.2. Παρουσίαση Θεωρητικού Μοντέλου.....	87
5.2.1. Σχήμα – Μέγεθος Νανοδομών.....	87
5.2.2. Βήματα θεωρητικού μοντέλου.....	88
5.2.3. Υπολογισμός ελαστικής τάσης.....	90
5.2.4. Προσδιορισμός πιεζοηλεκτρικού πεδίου.....	94
5.2.5. Τάση – Περιοριστικό Δυναμικό.....	96
5.2.6. Καταστάσεις ενός σωματιδίου.....	100
5.2.7. Αλληλεπίδραση Coulomb.....	101
5.2.8 Αλληλεπίδραση Σχηματισμών.....	103
5.2.9. Υπολογισμός χρόνου ζωής.....	106
5.3. Επίδραση Μεγέθους Κβαντικών Τελειών.....	110
5.4. Επίδραση ποσοστού Ινδίου.....	114
5.5. Εξάρτηση από την ενέργεια εξιτονίου.....	116
5.6. Υπολογισμός χρόνου ζωής εξιτονίου.....	117
Βιβλιογραφικές Αναφορές.....	121
Κεφάλαιο 6: Συμπεράσματα – Μελλοντικές Προοπτικές.....	125

Βιβλιογραφικές Αναφορές.....	127
Παράρτημα Ι: Κατάλογος Ερευνητικών Δημοσιεύσεων – Ανακοινώσεων.....	128

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1: ΕΙΣΑΓΩΓΗ

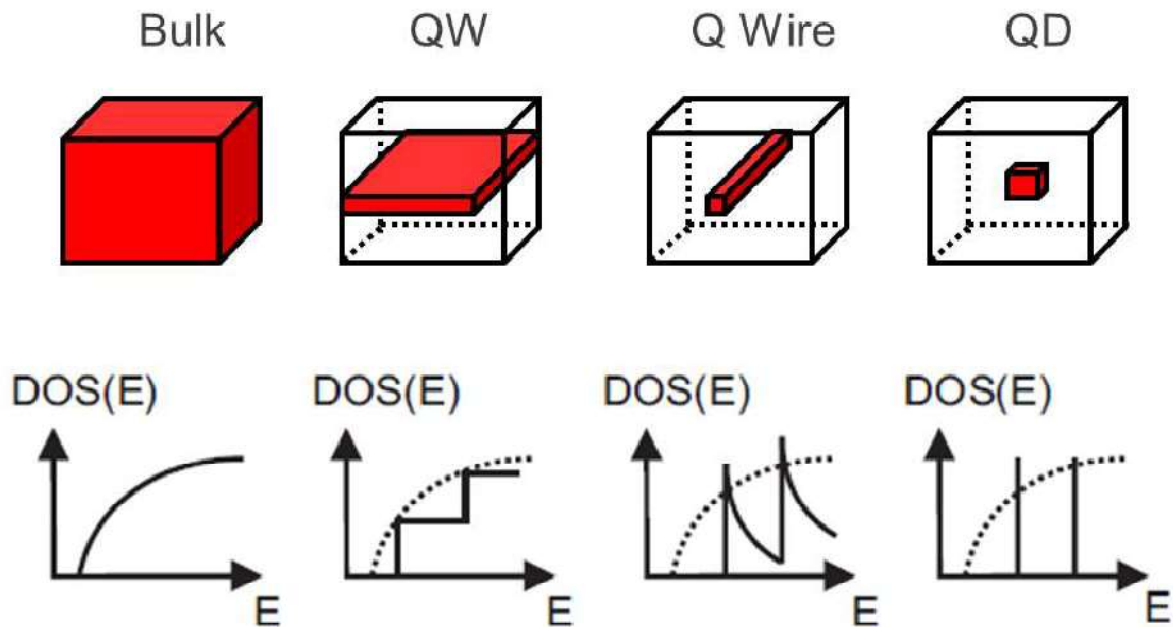
1.1 ΚΒΑΝΤΙΚΕΣ ΤΕΛΕΙΕΣ: ΙΣΤΟΡΙΚΗ ΑΝΑΔΡΟΜΗ

Τα τελευταία χρόνια εκδηλώνεται ιδιαίτερο ενδιαφέρον στο πεδίο της ηλεκτρονικής και της οπτοηλεκτρονικής σχετικά με πιθανές εφαρμογές συστημάτων με πολύ μικρές διαστάσεις της τάξης των 1-100nm, που αποκαλούνται νανοδομές. Το βασικό κίνητρο για τη χρήση των δομών αυτών είναι ότι εξαιτίας των περιορισμένων διαστάσεων είναι δυνατό να βοηθήσουν στην κατασκευή διατάξεων με πολύ μεγαλύτερη ταχύτητα λειτουργίας και μικρότερες απώλειες. Επιπρόσθετα, παρουσιάζουν το πλεονέκτημα ότι σε αυτές τις κλίμακες μήκους, εξαιτίας του τρισδιάστατου περιορισμού των φορέων, τα κβαντομηχανικά φαινόμενα είναι εξαιρετικά ισχυρά.

Όταν η κίνηση ενός φορέα (ηλεκτρονίου ή οπής) περιοριστεί σε ένα στρώμα πάχους της τάξης του μήκους κύματος De Broglie ($\approx 10\text{nm}$), τότε προκύπτει μια δομή που είναι γνωστή ως κβαντικό πηγάδι. Σε μια τέτοια δομή, οι φορείς είναι περιορισμένοι κατά τα μια διάσταση. Η ιδέα της χρήσης πολύ λεπτών στρωμάτων για τη μελέτη και την εκμετάλλευση των ιδιοτήτων ενός κβαντικού πηγαδιού υπήρξε ιδιαίτερα δημοφιλής από τα τέλη της δεκαετίας του 1950¹. Έγινε όμως εφικτή με την έλευση νέων τεχνικών ετεροεπιταξιακής κρυσταλλικής ανάπτυξης όπως η Επιταξία Μοριακών Δεσμών (Molecular Beam Epitaxy – MBE)² και η Επιταξία Μεταλλοργανικής Αέριας Φάσης (Metal – Organic Chemical Vapor Deposition – MOCVD)³. Με τις τεχνικές αυτές έγινε δυνατή η εισαγωγή πολύ λεπτών στρωμάτων ημιαγωγού με μικρό ενεργειακό χάσμα, μέσα σε μια μήτρα υλικού μεγαλύτερου ενεργειακού χάσματος. Με τον τρόπο αυτό προκαλείται εντοπισμός των φορέων στην περιοχή του κβαντικού πηγαδιού. Τα αμέσως επόμενα χρόνια οι ιδιότητες των κβαντικών πηγαδιών μελετήθηκαν διεξοδικά, οδηγώντας στη βελτίωση διατάξεων που υπήρχαν, όπως π.χ. τα διπολικά τρανζίστορ ετεροεπαφών, ή τα λέιζερ κβαντικών πηγαδιών. Σήμερα τα ημιαγωγικά λέιζερ που έχουν στην ενεργό περιοχή τους κβαντικά πηγάδια, αποτελούν τα κύρια συστατικά των οπτοηλεκτρονικών και φωτονικών ολοκληρωμένων κυκλωμάτων και παίζουν καθοριστικό ρόλο στην μετάδοση πληροφορίας και στην επικοινωνία.

Περί τα τέλη της δεκαετίας του 80 οι βασικές ιδιότητες των κβαντικών πηγαδιών και των υπερπλεγμάτων είχαν μελετηθεί διεξοδικά, και το ενδιαφέρον των ερευνητών άρχισε να στρέφεται σε δομές με μειωμένη διαστατικότητα, όπως τα κβαντικά σύρματα⁴ ή οι κβαντικές τελείες⁵⁻⁸. Στις κβαντικές τελείες, λόγω του ισχυρού τρισδιάστατου περιορισμού των φορέων,

το κλασικό μοντέλο των δομής ενεργειακών ζωνών παύει να ισχύει. Η πυκνότητα καταστάσεων σε μια κβαντική τελεία αναπαρίσταται στο Σχ. 1.1. Για σύγκριση στο ίδιο σχήμα παρουσιάζεται η πυκνότητα καταστάσεων στην περίπτωση συμπαγούς ημιαγωγού, κβαντικού πηγαδιού (quantum well – QW) και κβαντικού σύρματος (quantum wire – QWire).



Σχ. 1.1: Γραφική αναπαράσταση της πυκνότητας καταστάσεων για συμπαγή ημιαγωγό, κβαντικό πηγάδι, κβαντικό σύρμα και κβαντική τελεία. Η πυκνότητα καταστάσεων στην περίπτωση των κβαντικών τελειών είναι διακριτή, ενώ σε όλες τις άλλες περιπτώσεις είναι συνεχής.

Όπως παρατηρούμε σε όλες τις περιπτώσεις εκτός των κβαντικών τελειών, η πυκνότητα ενεργειακών καταστάσεων είναι συνεχής. Αντίθετα σε μια κβαντική τελεία είναι ένα άθροισμα συναρτήσεων δέλτα, όπως φαίνεται και στο Σχ. 1.1. Αυτό σημαίνει ότι κατά την επανασύνδεση ηλεκτρονίων και οπών σε μια QD, το φάσμα εκπομπής που προκύπτει είναι διακριτό, όπως και στην περίπτωση των μεμονωμένων ατόμων. Αυτός είναι και ο λόγος για τον οποίο πολλές φορές στη βιβλιογραφία αναφέρονται ως σύνθετα άτομα. Η εξάρτηση της πυκνότητας καταστάσεων $D(E)$ από το είδος του περιορισμού επηρεάζει τη θερμική διεύρυνση της κατανομής φορέων $n(E)$, η οποία δίνεται από τη σχέση $n(E) = D(E) \cdot f(E)$, όπου $f(E)$ είναι η συνάρτηση Fermi. Στην περίπτωση ισχυρού τρισδιάστατου περιορισμού, η διαφορά ανάμεσα στις διαδοχικές ενεργειακές καταστάσεις $E_{f+1} - E_f \gg k_B \cdot T$, με αποτέλεσμα τη μείωση της θερμικής διεύρυνσης. Επομένως η κατανομή φορέων $n(E)$ αναμένεται να είναι ανεξάρτητη από τη θερμοκρασία και μόνο μια ενεργειακή κατάσταση εποικίζεται θερμικά. Αυτός είναι ο λόγος για τον οποίο συσκευές, όπως π.χ. λέιζερ, οι οποίες έχουν στην ενεργό περιοχή QDs

είναι λιγότερο ευαίσθητες σε θερμοκρασιακές μεταβολές⁹, σε σύγκριση με αντίστοιχες συσκευές που χρησιμοποιούν συμπαγείς ημιαγωγούς ή κβαντικά πηγάδια.

Παρόλο που η αναλογία QD – ατόμων μπορεί να δώσει μια εικόνα για τις ιδιότητες των συστημάτων QDs, τα πιο ενδιαφέροντα χαρακτηριστικά τους στην πραγματικότητα προκύπτουν από τις ιδιαίτερες συνθήκες ανάπτυξης. Οι συνθήκες ανάπτυξης καθορίζουν τις δομικές ιδιότητες των τελειών, οι οποίες με τη σειρά τους επηρεάζουν την ηλεκτρονική τους δομή. Τα κύρια δομικά και μορφολογικά χαρακτηριστικά που επηρεάζουν την ηλεκτρονική δομή και τις ιδιότητες των QDs είναι:

- I. Το μέγεθος της τελείας: Όσο μικρότερη η τελεία τόσο εντονότερος είναι ο περιορισμός των φορέων, και τόσο μεγαλύτερη η ενέργεια μετάβασης ανάμεσα στις θεμελιώδεις καταστάσεις ηλεκτρονίων και οπών στο χώρο της QD.¹⁰
- II. Η σύσταση της τελείας: Το υλικό της τελείας μπορεί να αποτελείται από στοιχειώδεις, διμερείς, τριμερείς ή τετραμερείς ημιαγωγούς. Η ακριβής σύσταση της τελείας καθορίζει το ενεργειακό χάσμα του υλικού της τελείας. Συνεπώς επηρεάζει τόσο την ενέργεια των μεταβάσεων, αλλά και το ενεργειακό φράγμα στις ζώνες αγωγιμότητας και σθένους.
- III. Το σχήμα της τελείας: Το σχήμα της τελείας μεταβάλλει την επικάλυψη των κυματοσυναρτήσεων ηλεκτρονίων και οπών, την αλληλεπίδραση Coulomb ανάμεσα τους, και επομένως τις ενεργειακές καταστάσεις των φορέων.
- IV. Τη τάση: Οι διαφορετικές πλεγματικές σταθερές του υλικού της τελείας και του περιβάλλοντος υλικού έχουν ως αποτέλεσμα την εμφάνιση τάσης στο εσωτερικό της τελείας. Η τάση αυτή μεταβάλλει το ενεργειακό διάγραμμα των ζωνών αγωγιμότητας και σθένους, αλλά ταυτόχρονα προκαλεί τη γέννηση πιεζοηλεκτρικών πεδίων.
- V. Η συμμετρία του σχήματος της τελείας: Σε ασύμμετρες τελείες ο εκφυλισμός των ενεργειακών καταστάσεων αίρεται. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα τη μεταβολή της ενέργειας μετάβασης. Ταυτόχρονα τροποποιεί την εικόνα του φάσματος εκπομπής των τελειών, τόσο ως προς την πολικότητα των φασματικών γραμμών όσο και ως προς τον αριθμό τους.

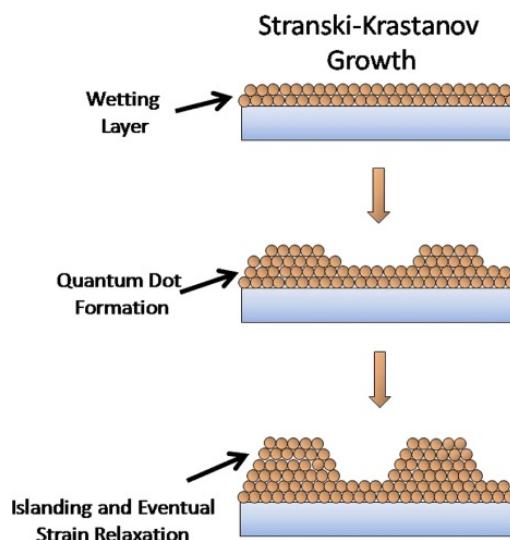
Η πολύπλοκη σχέση ανάμεσα στις δομικές παραμέτρους των QDs και στις οπτικές και ηλεκτρονικές τους ιδιότητες αναδεικνύει τη δυνατότητα κατασκευής τελειών προσαρμοσμένων για χρήση σε συγκεκριμένες εφαρμογές. Επομένως, λόγω των ιδιαίτερων

χαρακτηριστικών τους, οι QDs αποτελούν ένα ελκυστικό σύστημα τόσο για την μελέτη θεμελιωδών αρχών της Φυσικής όσο και για την κατασκευή καινοτόμων ηλεκτρονικών και φωτονικών συσκευών.¹¹⁻¹⁵

1.2 ΜΕΘΟΔΟΙ ΚΑΤΑΣΚΕΥΗΣ ΚΒΑΝΤΙΚΩΝ ΤΕΛΕΙΩΝ

Η κατασκευή υψηλής ποιότητας δειγμάτων κβαντικών τελειών προσφέρει, επομένως εξαιρετικές ευκαιρίες για νέες ηλεκτρονικές και οπτικές εφαρμογές. Υπάρχουν πολλοί διαφορετικοί τύποι τελειών, οι οποίοι βασίζονται σε διαφορετικές κατασκευαστικές τεχνικές. Στα πρώτα της βήματα, η παραγωγή QDs βασίστηκε στη χρήση λιθογραφικών τεχνικών για την κατεργασία δειγμάτων κβαντικών πηγαδιών. Οι τεχνικές που χρησιμοποιήθηκαν ήταν η οπτική λιθογραφία, η λιθογραφία ακτίνων Χ και η λιθογραφία δέσμης ηλεκτρονίων¹⁶⁻¹⁹. Για τη δημιουργία των QDs στην επιφάνεια του δείγματος, η λιθογραφία συνοδεύεται από χημική χάραξη. Με τον τρόπο αυτό κατασκευάζονται δείγματα με QDs μεγέθους 100nm. Το βασικό πρόβλημα των τεχνικών αυτών ήταν αρχικά η σχετικά χαμηλή ανάλυση των τεχνικών αυτών, η οποία οδηγούσε στην κατασκευή ετεροδομών μεγάλου μεγέθους και επομένως μειωμένου τρισδιάστατου περιορισμού. Κυρίως όμως, η χημική κατεργασία του δείγματος, που είναι απαραίτητη στις τεχνικές αυτές, έχει επιπτώσεις στην κρυσταλλική ποιότητα του δείγματος, μια και καταστρέφει τις επιφάνειες των ημιαγωγικών υλικών, υποβαθμίζοντας τις οπτικές και ηλεκτρονιακές τους ιδιότητες.

Τα τελευταία χρόνια, η συντριπτική πλειονότητα των δειγμάτων κβαντικών τελειών κατασκευάζονται με χρήση μηχανισμών αυτοοργάνωσης και συγκεκριμένα με τη μέθοδο των Stranski – Krastanow (SK)²⁰⁻²³. Η μέθοδος βασίζεται στη διαφορά των πλεγματικών σταθερών υποστρώματος και επιστρώματος, όπως π.χ. στην περίπτωση του συστήματος InAs/GaAs που μελετάται στην παρούσα εργασία και παρουσιάζει μια διαφορά πλεγματικών σταθερών ίση περίπου με 7%.



Σχ. 1.2: Σχήμα που απεικονίζει τα διαφορετικά στάδια του Stranski – Krastanow κρυσταλλικού τρόπου ανάπτυξης ενός λεπτού ημιαγωγικού στρώματος πάνω σε υπόστρωμα διαφορετικής πλεγματικής σταθεράς.

Κατά το SK τρόπο ανάπτυξης, ο οποίος παρουσιάζεται στο Σχ. 1.2 το επίστρωμα αρχικά εναποτίθεται υπό τάση με τη μορφή διδιάστατου υμενίου πάνω στο υπόστρωμα (wetting layer – WL), έχοντας πλεγματική σταθερά ίση με αυτή του υποστρώματος. Η διδιάστατη εναπόθεση του επιστρώματος συνεχίζεται μέχρις ότου το υμένιο να φτάσει σε ένα κρίσιμο πάχος, το οποίο εξαρτάται από τη διαφορά των πλεγματικών σταθερών επιστρώματος και υποστρώματος. Εναπόθεση πέραν του κρίσιμου πάχους οδηγεί σε κατάρρευση του διδιάστατου τρόπου ανάπτυξης. Το επιπρόσθετο ημιαγωγικό υλικό που εναποτίθεται, αναπτύσσεται με τη μορφή τρισδιάστατων νησίδων πάνω στο WL. Το πλεονέκτημα της μεθόδου, σε σύγκριση με τις λιθογραφικές τεχνικές, είναι η κατασκευή δειγμάτων QDs υψηλής κρυσταλλικής ποιότητας και μικρού μεγέθους. Το βασικό μειονέκτημα της είναι η σχετικά μεγάλη ανομοιομορφία των νανοδομών, τόσο ως προς την πυκνότητα τους όσο κυρίως ως προς το μέγεθος και τη σύστασή τους. Επιπρόσθετα, στις κβαντικές τελείες που κατασκευάζονται με τη μέθοδο SK, οι δομικές ιδιότητες των δειγμάτων κβαντικών τελειών παρουσιάζουν μεγάλη ευαισθησία στις συνθήκες επίταξης και συγκεκριμένα σε παράγοντες όπως:

1. Η θερμοκρασία κάτω από την οποία γίνεται η επίταξη των διαφόρων στρωμάτων.
2. Οι ροές εναπόθεσης των υλικών και επομένως ο ρυθμός επίταξης.
3. Η χρονική διάρκεια της εναπόθεσης.

Όλοι οι παραπάνω παράγοντες επηρεάζουν έντονα το σχήμα, το μέγεθος καθώς και τη ενδοδιάχυση των ατόμων των υλικών κβαντικής τελείας και υποστρώματος. Επιπρόσθετα, οι

συνθήκες αυτές καθορίζουν την ποιότητα της διεπιφάνειας τελείας – υποστρώματος. Οι InAs κβαντικές τελείες που παρουσιάζονται στα πλαίσια της παρούσας διατριβής αναπτύχθηκαν με MBE πάνω υποστρώματα (211)B GaAs, ακολουθώντας το SK τρόπο ανάπτυξης. Οι λεπτομέρειες των συνθηκών επίταξης, καθώς και η επίδραση των συνθηκών επίταξης στη μορφολογία των InAs QDs θα μελετηθεί αναλυτικά σε επόμενο κεφάλαιο της διατριβής.

1.3 ΕΞΙΤΟΝΙΚΑ ΣΥΜΠΛΟΚΑ ΣΕ ΚΒΑΝΤΙΚΕΣ ΤΕΛΕΙΕΣ

Όταν ένας ημιαγωγός άμεσου ενεργειακού χάσματος E_g , διεγείρεται, τότε ορισμένα από τα ηλεκτρόνια μεταβαίνουν στη ζώνη αγωγιμότητας, με αποτέλεσμα τη δημιουργία ζευγών ηλεκτρονίων – οπών. Σε μια QD, τα ζεύγη e-h παγιδεύονται από το περιοριστικό δυναμικό, όπως φαίνεται στο Σχ. 1.3. και αλληλεπιδρούν μεταξύ τους με δύναμη Coulomb, σχηματίζοντας μια νέα ασταθή κατάσταση, η οποία ονομάζεται εξιτόνιο. Σε QD καλής κρυσταλλικής ποιότητας, τα εξιτόνια δημιουργούνται από την αλληλεπίδραση Coulomb ηλεκτρονίων και οπών που βρίσκονται στη θεμελιώδη κατάσταση των ζωνών αγωγιμότητας και σθένους αντίστοιχα. Η ενέργεια του εξιτονίου δίνεται από τη σχέση:

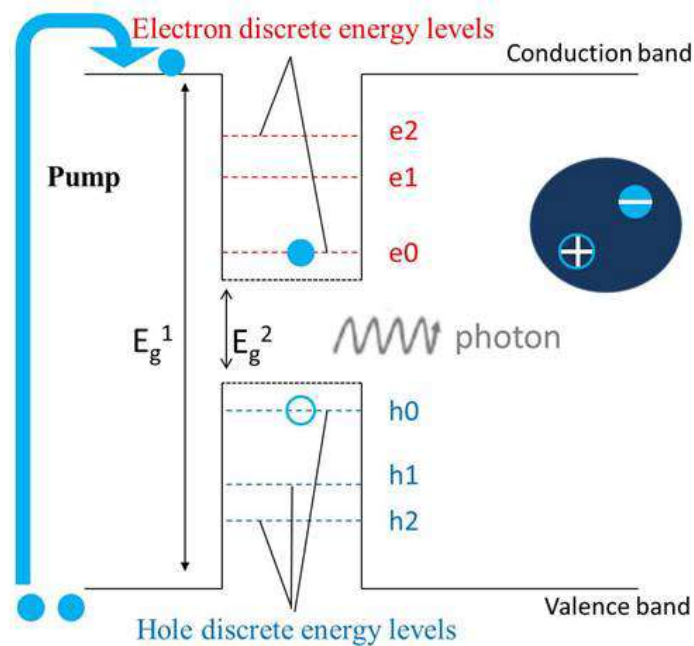
$$E(X) = E(e) + E(h) + C_{eh}$$

Όπου με τον όρο C_{ij} περιγράφουμε την αλληλεπίδραση Coulomb ανάμεσα σε δύο φορτισμένα σωματίδια i και j , η οποία δίνεται από τον τύπο:

$$C_{ij} = \iint \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0} \frac{|\psi_i(r_1)|^2 \cdot |\psi_j(r_2)|^2}{\epsilon(r_1, r_2) |r_1 - r_2|} dr_1 dr_2$$

Όπου Ψ_i, Ψ_j είναι οι κυματοσυναρτήσεις των φορτισμένων σωματιδίων, ενώ $\epsilon(r_1, r_2)$ είναι η χωρικά εξαρτώμενη συνάρτηση διηλεκτρικής σταθεράς. Εξαιτίας της ελκτικής δύναμης Coulomb, τα εξιτόνια έχουν μικρότερη ενέργεια από την ενέργεια του ζεύγους ηλεκτρονίου οπής, από το οποίο προήλθαν. Η διαφορά των ενεργειών εξιτονίου και του ζεύγους e-h ονομάζεται δέσμια ενέργεια εξιτονίου:

$$E_x^{bind} = E(X) - E(e) - E(h) = C_{eh}$$



Σχ. 1.3: Σχήμα που απεικονίζει την ηλεκτρονική δομή μιας QD. Στο ίδιο σχήμα αναπαριστάνεται η διέγερση ηλεκτρονίων στη ζώνη αγωγιμότητας του φράγματος, η επανασύνδεση των φορέων και η εκπομπή φωτονίου κατά την αποδιέγερση του εξιτονίου.

Στις ημιαγωγικές δομές τα εξιτόνια διακρίνονται σε δύο μεγάλες κατηγορίες, τα εξιτόνια Frenkel, τα οποία συναντάμε σε ιοντικές κρυσταλλικές ενώσεις, και τα εξιτόνια Wannier. Στην περίπτωση των InAs QDs, που εξετάζονται, το ενδιαφέρον εστιάζεται στα εξιτόνια Wannier, στα οποία η σύζευξη ηλεκτρονίου – οπής θεωρείται ασθενής, σε σχέση με το περιοριστικό δυναμικό των φορέων.

Όπως ήδη αναφέρθηκε, η κατάσταση του εξιτονίου είναι ασταθής, και εξαιτίας αυτού ο χρόνος ζωής τους είναι μικρός. Σε μια QD ο χρόνος ζωής των εξιτονίων υπολογίζεται σε μερικά nsec, και η αποσύνθεση τους μπορεί να γίνει μέσω ακτινοβόλου και μη ακτινοβόλου επανασύνδεσης των φορέων. Σε ημιαγωγούς άμεσου ενεργειακού χάσματος όπως το InAs, εφόσον η κρυσταλλική ποιότητα είναι καλή, κυριαρχεί η ακτινοβόλος επανασύνδεση των φορέων, η οποία συνοδεύεται από την εκπομπή φωτονίων ενέργειας ίσης με την ενέργεια του εξιτονίου E_x .

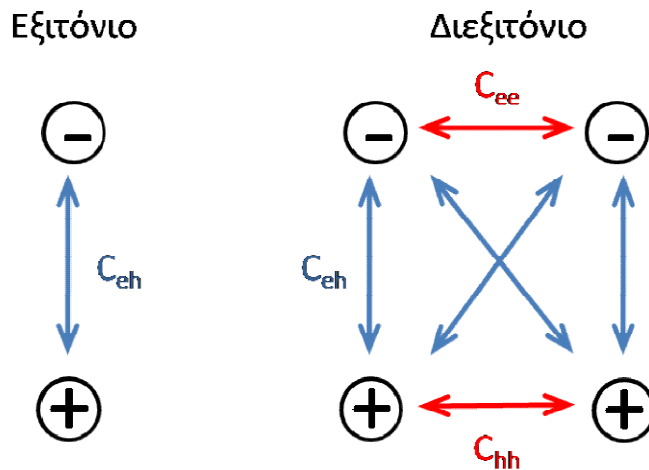
Πέρα από το εξιτόνιο, κατά τη διέγερση μιας QD δημιουργούνται και μια σειρά από εξιτονικά σύμπλοκα, τα οποία εμπλέκουν διαφορετικό αριθμό ηλεκτρονίων και οπών. Το πιο γνωστό από αυτά είναι το διεξιτόνιο XX, το οποίο δημιουργείται από την αλληλεπίδραση δύο ζευγών ηλεκτρονίου – οπής. Στην περίπτωση που στη QD υπάρχουν δύο ηλεκτρόνια και μια οπή, τότε το ψευδοσωμάτιο που δημιουργείται είναι γνωστό ως αρνητικά φορτισμένο εξιτόνιο

ή αρνητικό τριών (X^-). Στην αντίθετη περίπτωση, όταν στη QD υπάρχουν ένα εξιτόνιο και μια οπή, δημιουργείται το θετικά φορτισμένο εξιτόνιο ή θετικό τριών (X^+).

Στις τρεις αυτές περιπτώσεις εξιτονικών συμπλόκων, τόσο τα ηλεκτρόνια όσο και οι οπές βρίσκονται στις θεμελιώδεις καταστάσεις των ζωνών αγωγιμότητας και σθένους. Όταν ένα τέτοιο ζεύγος ηλεκτρονίου – οπής επανασυνδέεται, αφήνει την τελεία κατειλημμένη με ένα νέο εξιτονικό σύμπλοκο. Για παράδειγμα, στην περίπτωση του διεξιτονίου, η αποδιέγερση γίνεται μέσω ακτινοβόλου επανασύνδεσης ηλεκτρονίου – οπής και είναι μια διαδικασία δύο βημάτων. Στο πρώτο βήμα το ένα από τα δύο ζεύγη φορέων επανασυνδέεται, υπό την παρουσία του δεύτερου ζεύγους οπότε το διεξιτόνιο μεταβαίνει στην κατάσταση του εξιτονίου. Ταυτόχρονα εκπέμπεται φωτόνιο ενέργειας E_{XX} , η οποία είναι διαφορετική από την ενέργεια εκπομπής του εξιτονίου E_X και δίνεται από τη σχέση:

$$E(XX) = E_X + 2C_{eh} + C_{hh} + C_{ee}$$

Η ενέργεια του διεξιτονίου, όπως φαίνεται στην εξίσωση διαφέρει από την E_X , αφού στην περίπτωση αυτή η επανασύνδεση των φορέων γίνεται με την παρουσία δύο επιπλέον φορέων, η οποία προκαλεί επιπλέον αλληλεπιδράσεις Coulomb. Οι αλληλεπιδράσεις μεταξύ των φορέων στην περίπτωση του εξιτονίου και του διεξιτονίου απεικονίζονται στο Σχ. 1.4.



Σχ. 1.4: Σχηματική αναπαράσταση των αλληλεπιδράσεων Coulomb στην περίπτωση του εξιτονίου και του διεξιτονίου. Με C_{ij} συμβολίζονται οι αλληλεπιδράσεις Coulomb ανάμεσα στα ηλεκτρόνια και τις οπές.

Η ενέργεια δέσμωσης του διεξιτονίου ισούται με την ενεργειακή διαφορά που προκύπτει από το σχηματισμό του διεξιτονίου σε σχέση με τη δημιουργία δύο εξιτονίων, και δίνεται από τη σχέση:

$$E_{XX}^{bind} = 2E(X) - E(XX) = -C_{ee} - 2C_{eh} - C_{hh}$$

Όμοια προς τα εξιτόνια και τα διεξιτόνια, τα φορτισμένα εξιτόνια έχουν μικρό χρόνο ζωής και αποσυντίθενται με ταυτόχρονη εκπομπή φωτονίων ενέργειας E_{X^-} και E_{X^+} , οι οποίες διαφέρουν από την ενέργεια του εξιτονίου E_X . Οι ενέργειες δέσμωσης των φορτισμένων εξιτονίων ορίζονται σε σχέση με την ενέργεια του εξιτονίου και με τρόπο ανάλογο με το διεξιτόνιο.

$$E_{X^+}^{bind} = E(X) + E(h) - E(X^+) = -C_{eh} - C_{hh}$$

$$E_{X^-}^{bind} = E(X) + E(e) - E(X^-) = -C_{eh} - C_{ee}$$

Να σημειωθεί ότι οι όροι C_{ee} και C_{hh} αναπαριστούν απωστικές αλληλεπιδράσεις και έχουν θετικό πρόσημο, σε αντίθεση με τον όρο C_{eh} , ο οποίος αναπαριστά ελκτική αλληλεπίδραση και έχει αρνητικό πρόσημο. Οι τιμές των απωστικών και ελκτικών αλληλεπιδράσεων ανάμεσα στους φορείς καθορίζουν το πρόσημο των ενεργειών δέσμωσης των εξιτονικών συμπλόκων. Στις συνήθεις (100) InAs / GaAs QDs μπορεί να εξαχθεί ένας γενικός κανόνας για τις ενεργειακές θέσεις των εξιτονικών συμπλόκων X , X^+ , X^- και XX . Λόγω της μεγαλύτερης ενεργού μάζας των οπών σε σχέση με τα ηλεκτρόνια, οι κυματοσυναρτήσεις των οπών είναι πιο ισχυρά περιορισμένες στο χώρο της τελείας σε σχέση με τις κυματοσυναρτήσεις των ηλεκτρονίων. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα η απωστική αλληλεπίδραση C_{hh} να είναι ισχυρότερη σε σχέση με την απωστική αλληλεπίδραση των ηλεκτρονίων C_{ee} . Με δεδομένο ότι στις δομές των (100) InAs QDs δεν υπάρχει κάποιος προφανής παράγοντας, ο οποίος να διαχωρίζει τους φορείς, τα κέντρα μάζας ηλεκτρονίου και οπής δεν διαφέρουν πολύ οπότε μπορεί κανείς να ισχυριστεί ότι:

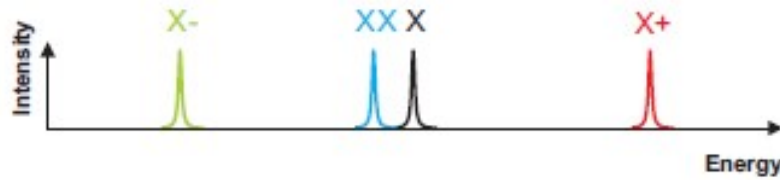
$$C_{ee} < |C_{eh}| < C_{hh}$$

Με βάση τη διάταξη των αλληλεπιδράσεων Coulomb και τις σχέσεις που δίνουν τις ενέργειες δέσμωσης των εξιτονικών συμπλόκων προκύπτει για τις ενέργειες δέσμωσης τους ότι:

$$E_{X^+}^{bind} < 0$$

$$E_{X^-}^{bind} > 0$$

Μια απλοποιημένη εικόνα του φάσματος εκπομπής μιας QD φαίνεται στο Σχ. 1.5.



Σχ. 1.5: Σχετική ενεργειακή θέση των εξιτονικών συμπλόκων μιας QD. Στο σχήμα φαίνεται η αρνητική δέσμια ενέργεια του θετικά φορτισμένου εξιτονίου X^+ , και η θετική δέσμια ενέργεια του X^- .

Η παραπάνω απλουστευμένη μελέτη δεν μπορεί να δώσει ξεκάθαρη απάντηση για το αν η ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου έχει θετικό ή αρνητικό πρόσημο. Για τον υπολογισμό της απαιτείται μια λεπτομερέστερη ανάλυση, η οποία λαμβάνει υπόψη της το φαινόμενο της αλληλεπίδρασης Coulomb, αλλά και τα φαινόμενα εναλλαγής και συσχέτισης. ειδικά στην περίπτωση των (211)B InAs QDs, οι οποίες παρουσιάζουν σημαντικές ιδιαιτερότητες.

1.4. ΕΝΕΡΓΕΙΑ ΑΝΤΑΛΛΑΓΗΣ - ΔΙΑΧΩΡΙΣΜΟΣ ΛΕΠΤΗΣ ΥΦΗΣ

Στην ανάλυση μας μέχρι τώρα έχουμε αγνοήσει ότι τα ηλεκτρόνια και οι οπές είναι φερμιόνια, μια και έχουν ημιακέραιο σπιν και επομένως υπακούουν στην απαγορευτική αρχή του Pauli. Εξαιτίας αυτού δημιουργείται ένας ακόμη όρος στην αλληλεπίδραση Coulomb, ο οποίος ονομάζεται αλληλεπίδραση ανταλλαγής. Η αλληλεπίδραση ανταλλαγής θα συζητηθεί λεπτομερώς στην παράγραφο αυτή, μια και είναι υπεύθυνη για το εξαιρετικά σημαντικό φαινόμενο του διαχωρισμού λεπτής υφής, το οποίο εμφανίζεται στις QDs.

Στην περίπτωση δύο πανομοιότυπων σωματιδίων, μια εναλλαγή στις συντεταγμένες τους οδηγεί σε μια κατάσταση όμοια της προηγούμενης. Αυτό σημαίνει ότι εάν για δύο σωματίδια α και β η συνάρτηση $\Psi_{12}=\psi_{\alpha}(r_1)\otimes\psi_{\beta}(r_2)$ είναι ιδιοσυνάρτηση της Χαμιλτωνιανής του συστήματος, τότε στις ιδιοσυναρτήσεις ανήκει και η $\Psi_{21}=\psi_{\alpha}(r_2)\otimes\psi_{\beta}(r_1)$. Οι δύο αυτές κυματοσυναρτήσεις, μάλιστα, έχουν την ίδια ιδιοτιμή (εκφυλισμός ανταλλαγής) και στην

περίπτωση που τα πανομοιότυπα σωματίδια είναι φερμιόνια, συνδέονται μέσω της σχέσης $\Psi_{12} = -\Psi_{21}$. Δηλαδή, αν λάβουμε υπόψη μας το φερμιονικό χαρακτήρα των σωματιδίων, οι κυματοσυναρτήσεις που προκύπτουν είναι αντισυμμετρικές. Χρησιμοποιώντας την αντισυμμετρική βάση κυματοσυναρτήσεων, ο όρος της Χαμιλτωνιανής που περιγράφει την αλληλεπίδραση Coulomb δεν περιέχει μόνος όρους της μορφής C_{ij} , όπως είχαμε δει στην προηγούμενη παράγραφο, αλλά και όρους της μορφής:

$$\langle \psi_a^1 \psi_b^2 | H_{Coul} | \psi_a^2 \psi_b^1 \rangle$$

Οι όροι αυτοί είναι γνωστοί ως όροι ανταλλαγής. Εφόσον η αλληλεπίδραση ανταλλαγής εμφανίζεται όταν συμπεριλάβουμε το σπιν, μπορεί να θεωρηθεί ως μια αλληλεπίδραση σπιν – σπιν μεταξύ των σωματιδίων.

Στην περίπτωση του εξιτονίου ενός ημιαγωγού, το σωματίδιο αυτό δημιουργείται από τις διαφορετικές διατάξεις σπιν του ηλεκτρονίου και της οπής. Στην περίπτωση συμπαγών ημιαγωγών που έχουν δομή σφαλερίτη, όπως το InAs ή το GaAs η κατάσταση του εξιτονίου είναι οκταπλά εκφυλισμένη. Αυτό οφείλεται στις οκτώ διαφορετικές διατάξεις του εξιτονίου, οι οποίες πηγάζουν από τις δύο διαφορετικές δυνατές τιμές του spin για τα ηλεκτρόνια $m_s = \pm \frac{1}{2}$ και τις τέσσερις διαφορετικές δυνατές τιμές του spin για τις οπές, δύο για τις βαριές οπές $m_j = \pm \frac{3}{2}$ και δύο για τις ελαφρές οπές $m_j = \pm \frac{1}{2}$. Στην περίπτωση των QDs ο εκφυλισμός είναι μικρότερος, λόγω της τάσης. Στην περίπτωση που η τάση είναι συμπίεστική, όπως στην περίπτωση των InAs/GaAs QDs, οι ζώνες ελαφρών και βαρέων οπών διαχωρίζονται μεταξύ τους. Οι βαριές οπές ωθούνται λόγω τάσης πλησιέστερα προς τη ζώνη αγωγιμότητας, σε αντίθεση με τις ελαφρές οπές που ωθούνται βαθύτερα στη ζώνη σθένους. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα στις QDs το εξιτόνιο να δημιουργείται κυρίως από ζεύγη ηλεκτρονίων – βαρέων οπών, και να είναι τετραπλά εκφυλισμένο. Ο τετραπλός εκφυλισμός της θεμελιώδους κατάστασης του εξιτονίου μπορεί να αρθεί μέσω της αλληλεπίδρασης ανταλλαγής.

Το μέγεθος της αλληλεπίδρασης ανταλλαγής εξαρτάται από έναν αριθμό διαφορετικών παραμέτρων, πολλές από τις οποίες είναι δύσκολο να προσδιοριστούν. Επομένως, ο υπολογισμός της διόρθωσης στην ενέργεια του εξιτονίου, ο οποίος προκαλείται από την αλληλεπίδραση ανταλλαγής, είναι δύσκολο να προσδιοριστεί με ακρίβεια. Παρόλα αυτά είναι δυνατό, χρησιμοποιώντας θεωρία ομάδων και λαμβάνοντας υπόψη τη συμμετρία του

κρυστάλλου, να δώσουμε μια έκφραση για τη διόρθωση της Χαμιλτωνιανής λόγω αλληλεπίδρασης ανταλλαγής, προκειμένου να δώσουμε μια ποιοτική ερμηνεία των πειραματικών αποτελεσμάτων. Στην περίπτωση κρυστάλλων με συμμετρία C_{2v} , ο όρος της Χαμιλτωνιανής που περιγράφει την αλληλεπίδραση ανταλλαγής δίνεται από τη σχέση²⁴:

$$H^{ex} = 2\Delta_0 J_z S_z + \Delta_1 (J_x S_x - J_y S_y) + \Delta_2 (J_x S_x + J_y S_y)$$

Όπου $S=(S_x, S_y, S_z)$ και $J=(J_x, J_y, J_z)$ είναι οι τελεστές του ολικού spin για τα ηλεκτρόνια και τις σπές αντίστοιχα, και οι όροι Δ_i είναι σταθερές. Στην περίπτωση του εξιτονίου, οι τελεστές S και J είναι οι τελεστές spin ηλεκτρονίου και βαριάς σπής. Σε πιο πολύπλοκα εξιτονικά σύμπλοκα, οι τελεστές S και J αποτελούνται από περισσότερους του ενός τελεστές spin μονού σωματιδίου. Παρόλο που η παραπάνω Χαμιλτωνιανή περιγράφει ποιοτικά το διαχωρισμό των εκφυλισμένων ενεργειακών καταστάσεων του εξιτονίου, εντούτοις η ποσοτική συμφωνία με τα πειραματικά αποτελέσματα δεν είναι δυνατή, μια και οι σταθερές Δ_i είναι παράμετροι χωρίς φυσικό νόημα, και επομένως είναι δύσκολο να προσδιοριστούν.

Η Χαμιλτωνιανή αυτή στην περίπτωση του εξιτονίου παίρνει τη μορφή:

$$H^{ex} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & \Delta_1 & 0 & 0 \\ \Delta_1 & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & \Delta_2 \\ 0 & 0 & \Delta_2 & -\Delta_0 \end{pmatrix}$$

Όπου οι γραμμές και οι στήλες αντιστοιχούν στις καταστάσεις του συνολικού spin $|-1\rangle, |+1\rangle, |-2\rangle, |+2\rangle$. Η παραπάνω Χαμιλτωνιανή μπορεί να θεωρηθεί ως το άθροισμα τριών επιμέρους Χαμιλτωνιανών:

$$H^{ex} = H_0^{ex} + H_1^{ex} + H_2^{ex}$$

Ο πρώτος όρος περιλαμβάνει τα διαγώνια στοιχεία Δ_0 , ο όρος H_1 τα μη διαγώνια στοιχεία Δ_1 και καλείται ανισοτροπικός όρος ανταλλαγής, και τέλος ο όρος H_2 περιλαμβάνει τα μη διαγώνια Δ_2 . Η Χαμιλτωνιανή H_0 αίρει τον τετραπλό εκφυλισμό της θεμελιώδους κατάστασης του εξιτονίου, χωρίζοντας τη σε δύο ζεύγη: Το ζεύγος των σκοτεινών εξιτονικών καταστάσεων, στις οποίες η συνολική στροφορμή του εξιτονίου μπορεί να είναι $M_{dark} = \pm 2$, και το ζεύγος των φωτεινών εξιτονικών καταστάσεων, στις οποίες η συνολική στροφορμή του

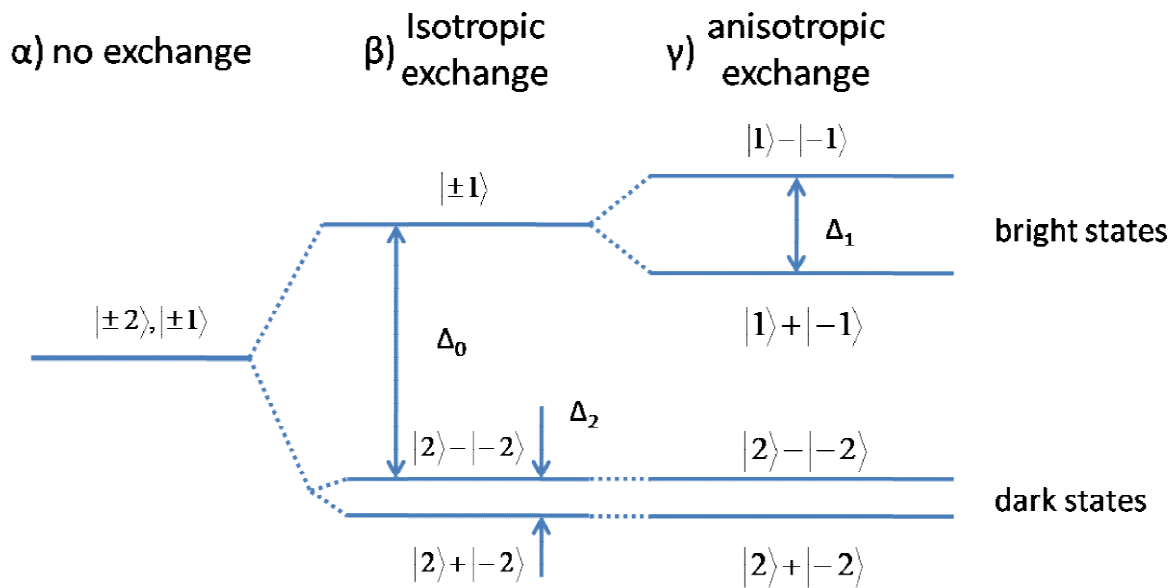
εξιτονίου είναι $M_{bright} = \pm 1$. Οι καταστάσεις με συνολική στροφορμή ± 1 χαρακτηρίζονται ως φωτεινές, διότι η διέγερση των φορέων στις καταστάσεις αυτές μπορεί να γίνει με απορρόφηση φωτονίου με σπιν ± 1 (όμοια κατά την αποδιέγερση εκπέμπεται φωτόνιο με ενέργεια ίση με την ενέργεια του εξιτονίου). Αντίθετα οι μεταβάσεις από και προς τις σκοτεινές εξιτονικές καταστάσεις δεν μπορούν να πραγματοποιηθούν με εκπομπή ή απορρόφηση φωτονίων.

Οι όροι H_1 και H_2 της Χαμιλτωνιανής προκαλούν ανάμιξη ανάμεσα στις φωτεινές και σκοτεινές εξιτονικές καταστάσεις, αίροντας τον μεταξύ τους εκφυλισμό και οδηγώντας στη δημιουργία δύο νέων φωτεινών και σκοτεινών εξιτονικών καταστάσεων. Οι νέες μη εκφυλισμένες καταστάσεις του εξιτονίου αποτελούνται από τη συμμετρική και αντισυμμετρική διάταξη των φωτεινών και σκοτεινών εξιτονικών καταστάσεων και δίνονται αντίστοιχα από τις παρακάτω σχέσεις:

$$\left\{ \frac{1}{\sqrt{2}} (|1\rangle + |-1\rangle) \right\}, \left\{ \frac{1}{\sqrt{2}} (|1\rangle - |-1\rangle) \right\}$$

$$\left\{ \frac{1}{\sqrt{2}} (|2\rangle + |-2\rangle) \right\}, \left\{ \frac{1}{\sqrt{2}} (|2\rangle - |-2\rangle) \right\}$$

Η διαφορά ανάμεσα στους όρους Δ_1 και Δ_2 της Χαμιλτωνιανής ανταλλαγής είναι ότι το στοιχείο Δ_1 έχει μη μηδενική τιμή μόνο στην περίπτωση που το περιοριστικό δυναμικό των τελειών παρουσιάζει ανισοτροπία. Μια πλήρης εικόνα της μορφής των διαφορετικών εξιτονικών καταστάσεων, στην περίπτωση ισοτροπικού και ανισοτροπικού περιοριστικού δυναμικού φαίνεται στο Σχ. 1.6.



Σχ.1.6: Το ενεργειακό διάγραμμα της θεμελιώδους κατάστασης, της εξιτονικής κατάστασης X σε QDs: α) Χωρίς να ληφθούν υπόψη τα φαινόμενα ανταλλαγής, β) Λαμβάνοντας υπόψη μόνο τα ιστροπικά φαινόμενα ανταλλαγής ($\Delta_i=0$), γ) Λαμβάνοντας υπόψη τόσο τα ιστροπικά όσο και τα ανιστροπικά φαινόμενα ανταλλαγής.

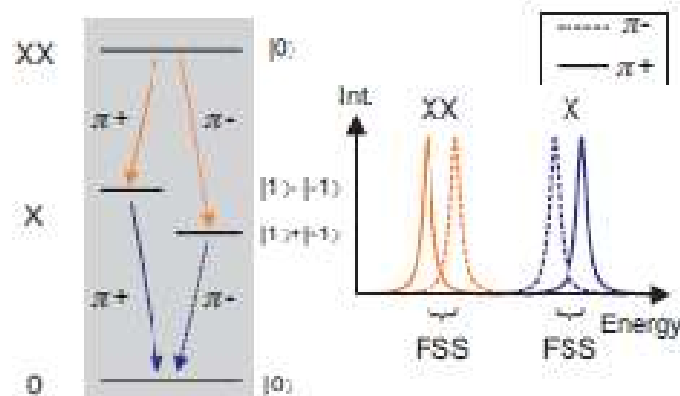
Θα πρέπει να σημειωθεί ότι η μελέτη των φασμάτων εκπομπής των QDs μπορεί να επιτρέψει τον προσδιορισμό μόνο της παραμέτρου Δ_i , αφού οι μεταβάσεις από και προς τις σκοτεινές εξιτονικές καταστάσεις δεν συνοδεύονται από την εκπομπή φωτονίων. Για τον προσδιορισμό των παραμέτρων Δ_0 και Δ_2 απαιτούνται πειράματα φασματοσκοπίας, στα οποία εφαρμόζεται μαγνητικό πεδίο στο χώρο των QDs. Το μαγνητικό αυτό πεδίο προκαλεί ανάμιξη των φωτεινών και σκοτεινών εξιτονικών καταστάσεων και δημιουργεί νέες. Οι μεταβάσεις μεταξύ των νέων αυτών καταστάσεων είναι μερικώς οπτικά επιτρεπόμενες, δίνοντας τη δυνατότητα υπολογισμού των παραμέτρων Δ_0 και Δ_2 ²⁵. Παρόλα αυτά ο υπολογισμός των παραμέτρων αυτών είναι μια σχετικά δύσκολη και απαιτητική διαδικασία.

Όπως αναφέρθηκε παραπάνω, από τη μελέτη των φασμάτων εκπομπής των QDs είναι δυνατό να προσδιοριστεί η παράμετρος Δ_i . Ο υπολογισμός του Δ_i μπορεί να γίνει μέσω του διαχωρισμού λεπτής υφής (fine structure splitting – FSS) με διπλό τρόπο, όπως φαίνεται στο Σχ. 1.6.

Τα εξιτόνια μιας QD μπορούν να καταλαμβάνουν μια από τις δύο φωτεινές εξιτονικές καταστάσεις, και επανασυνδέονται με ταυτόχρονη εκπομπή φωτονίου. Τα φωτόνια που εκπέμπονται με τον τρόπο αυτό διαφέρουν ενεργειακά κατά FSS, όπως φαίνεται στο Σχ. 1.6.

Επιπρόσθετα, εφόσον οι φωτεινές εξιτονικές καταστάσεις είναι μια υπέρθεση των καταστάσεων $| -1 \rangle$ και $| +1 \rangle$, τα φωτόνια που εκπέμπονται κατά την επανασύνδεση τους θα είναι μια υπέρθεση κυκλικά πολωμένων φωτονίων, και επομένως θα παρουσιάζουν γραμμική πόλωση. Μάλιστα οι άξονες πόλωσης των φωτονίων, που εκπέμπονται κατά την παραπάνω διαδικασία είναι παράλληλοι και κάθετοι στους άξονες ανισοτροπίας του περιοριστικού δυναμικού.

Όμοια, κατά την μετάπτωση του διεξιτονίου στη θεμελιώδη κατάσταση, υπάρχουν δύο διαφορετικά μονοπάτια ακτινοβόλου επανασύνδεσης. Η κατάσταση του διεξιτονίου, όπως φαίνεται στο Σχ. 1.7 είναι εκφυλισμένη, μια και υπάρχει μια μόνο πιθανή κατάσταση για το διεξιτόνιο, με συνολικό spin για τα ζεύγη ηλεκτρονίων – οπών ίσο με το 0. Τα δύο διαφορετικά μονοπάτια ακτινοβόλου επανασύνδεσης οφείλονται στις διαφορετικές ενδιάμεσες φωτεινές εξιτονικές καταστάσεις. Ανάλογα με την εξιτονική αυτή κατάσταση, κατά την μετάπτωση του διεξιτονίου στην ενδιάμεση κατάσταση εξιτονίου, παράγονται φωτόνια διαφορετικής ενέργειας, με αποτέλεσμα το φάσμα εκπομπής του διεξιτονίου να αποτελείται από δύο γραμμικά πολωμένες φασματικές γραμμές, όπως και στην περίπτωση του εξιτονίου. Συνολικά, λοιπόν, κατά την μετάπτωση του διεξιτονίου στη θεμελιώδη κατάσταση, παράγονται δύο ζεύγη γραμμικά πολωμένων φασματικών γραμμών, οι οποίες διαφέρουν ενεργειακά κατά FSS.



Σχ.1.7: Σχηματική αναπαράσταση της σειριακής αποδιέγερσης του διεξιτονίου XX, δια μέσου της εξιτονικής κατάστασης X, η οποία συνοδεύεται από την εκπομπή ενός ζεύγους πολωμένων φωτονίων. Στο σχήμα φαίνονται επίσης τα ζεύγη των γραμμικά πολωμένων φωτεινών γραμμών του εξιτονίου και του διεξιτονίου. Οι φωτεινές γραμμές κάθε ζεύγους διαφέρουν ενεργειακά κατά FSS.

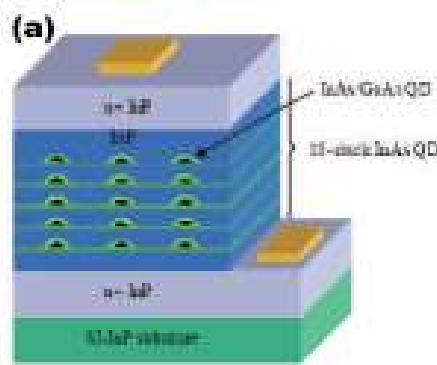
Η μελέτη του διαχωρισμού λεπτής υφής έχει προσελκύσει το ενδιαφέρον των ερευνητών τα τελευταία χρόνια εξαιτίας των πιθανών τεχνολογικών εφαρμογών του²⁶⁻³¹. Επομένως είναι εξαιρετικά σημαντική η κατανόηση της προέλευσης του FSS καθώς και ο έλεγχος της τιμής της. Στην επόμενη παράγραφο γίνεται αναφορά στις εφαρμογές των μεμονωμένων κβαντικών τελειών με έμφαση σε όσες σχετίζονται με τη τιμή του FSS.

1.5 ΕΦΑΡΜΟΓΕΣ ΚΒΑΝΤΙΚΩΝ ΤΕΛΕΙΩΝ

Όπως αναφέρθηκε σε προηγούμενη ενότητα, οι μεμονωμένες QDs είναι ημιαγωγικές δομές διαστάσεων λίγων nm, οι οποίες επιβάλλουν τρισδιάστατο χωρικό περιορισμό στους φορείς και παρουσιάζουν διακριτό ενεργειακό φάσμα. Το ενεργειακό φάσμα των δομών αυτών προσέλυσε γρήγορα το ενδιαφέρον των επιστημόνων για χρήση των QDs σε μια σειρά από εξωτικές εφαρμογές. Μια από τις εφαρμογές αυτές ήταν να χρησιμοποιηθούν οι QDs ως το ενεργό υλικό για τη λειτουργία λέιζερ. Το ρεύμα κατωφλίου των συσκευών αυτών προβλέπονταν να είναι σημαντικά μικρότερο συγκρινόμενο με το ρεύμα κατωφλίου των αντίστοιχων ημιαγωγικών λέιζερ που χρησιμοποιούσαν στην ενεργό περιοχή τους κβαντικά πηγάδια³². Παρά τις αισιόδοξες προβλέψεις, κατά την παρασκευή τέτοιων λέιζερ παρουσιάστηκαν πολλές τεχνολογικές δυσκολίες³³ και χρειάστηκαν αρκετά χρόνια για να ενταχθεί ένα στρώμα QDs στην ενεργό περιοχή ενός λέιζερ. Πέντε χρόνια αργότερα οι επιστήμονες επέδειξαν την κατασκευή λέιζερ με χαμηλό ρεύμα κατωφλίου³⁴, το οποίο περιείχε στην ενεργό περιοχή του ένα στρώμα InAs QDs ενσωματωμένο σε ένα $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ κβαντικό πηγάδι. Ήταν η πρώτη φορά που ένα QD λέιζερ επέδειξε υπέρτερη λειτουργία σε σχέση με τα λέιζερ κβαντικών πηγαδιών ακόμα και σε θερμοκρασία δωματίου.

Πέρα από τη χρήση τους για την κατασκευή δομών λέιζερ, ημιαγωγικές δομές, που περιλαμβάνουν πολλαπλά στρώματα από QDs μπορούν να χρησιμοποιηθούν για την κατασκευή υπέρυθρων φωτοανιχνευτών (QD infrared photodetectors – QDIP). Οι ημιαγωγοί που χρησιμοποιούνται για την κατασκευή τέτοιων ανιχνευτών είναι κυρίως το InP και το GaAs. Οι QDIPs παρουσιάζουν πολλά πλεονεκτήματα συγκρινόμενα με τους παραδοσιακούς ανιχνευτές που περιέχουν στην ενεργό τους περιοχή κβαντικά πηγάδια (QWIPs). Τα πλεονεκτήματα αυτά περιλαμβάνουν υψηλότερη ευαισθησία, λειτουργία σε υψηλότερη θερμοκρασία και υψηλή σύζευξη φωτός. Μια σχηματική αναπαράσταση της διατομής ενός

QDIP δίνεται στο Σχ. 1.8, στο οποίο εικονίζεται ένας QDIP, ο οποίος λειτουργεί στα 9μm στους 77K και χρησιμοποιεί πολλαπλά στρώματα InAs/GaAs QDs με φράγματα InP.



Σχ. 1.8: Αναπαράσταση της διατομής ενός φωτοανιχνευτή, ο οποίος χρησιμοποιεί στην ενεργό περιοχή του πολλαπλά στρώματα InAs QDs. Ανατύπωση από [33].

Παράλληλα προς αυτές τις ερευνητικές δραστηριότητες, οι οποίες ενέπλεκαν στρώματα με μεγάλο αριθμό QD, οι επιστήμονες ξεκίνησαν να ερευνούν πειραματικές μεθόδους για την απομόνωση QDs και τη μελέτη μικρού αριθμού τελειών (ιδανικά μεμονωμένων QDs). Το πεδίο έρευνας, το οποίο μελετά τη δημιουργία δειγμάτων απομονωμένων QDs, τη βελτιστοποίηση των κατασκευαζόμενων δομών καθώς και τη μελέτη μεμονωμένων QDs, ονομάζεται φασματοσκοπία μεμονωμένων QDs. Η μεγάλη χωρική και φασματική ανάλυση, η οποία είναι απαραίτητη για την απομόνωση της εκπομπής από μια μεμονωμένη QD απαιτεί τη διεξαγωγή πειραμάτων υψηλών απαιτήσεων. Σε αυτή την κατεύθυνση μελετήθηκαν με χρήση οπτικών πειραμάτων φασματικές γραμμές πολύ μικρού εύρους, οι οποίες οφείλονταν σε QDs που σχηματίζονται εξαιτίας διακυμάνσεων του πλάτους ενός GaAs κβαντικού πηγαδιού³⁶. Αργότερα, οι επιστήμονες μελέτησαν φάσματα εκπομπής από δείγματα με InAs QDs σε πειράματα φωτοφωταύγειας³⁷ και καθοδοφωταύγειας³⁸. Στα πειράματα αυτά οι επιστήμονες ανέφεραν ότι τα φάσματα εκπομπής αποτελούνταν από λεπτές φωτεινές γραμμές και προσδιόριζαν την προέλευση των γραμμών αυτών ως αποτέλεσμα της ακτινοβόλου επανασύνδεσης σε μεμονωμένες QDs. Παρόλο που το φάσμα εκπομπής προερχόταν από περισσότερες από μια QDs, ήταν η πρώτη πειραματική ένδειξη του τρισδιάστατου περιορισμού των φορέων και της επίδρασης του στην εκπομπή μιας QD.

Μια από τις πρώτες επιδείξεις εκπομπής φωτός από μεμονωμένες QDs παρουσιάστηκε από το Hessman et al³⁹. και αφορούσε την εκπομπή φάσματος φωτοφωταύγειας από μια μεμονωμένη InP QD. Η απομόνωση των QDs γινόταν με χρήση μιας μάσκας χρυσού, στην

επιφάνεια της οποίας υπήρχαν ανοίγματα με διαστάσεις μερικών nm, ώστε να απομονώνεται η εκπομπή μιας τελείας από τις υπόλοιπες του δείγματος. Αργότερα, ο επιστήμονες απέδειξαν πειραματικά ότι μια μεμονωμένη QD μπορεί να γίνει εκπομπός μεμονωμένων φωτονίων^{40,41}. Με άλλα λόγια, μια μεμονωμένη QD είναι το κατάλληλο σύστημα για τη δημιουργία μιας ρυθμιζόμενης ροής φωτονίων, η οποία θα περιέχει σε κάθε χρονική στιγμή ένα και μόνο φωτόνιο, το οποίο δεν έχει καμία σύζευξη με άλλα φωτόνια που εκπέμπονται από την ίδια ή άλλες QDs. Τέτοιου είδους πηγές μεμονωμένων φωτονίων έχουν εφαρμογή στο πεδίο της κβαντικής κρυπτογραφίας, με εφαρμογές σε συστήματα ασφαλούς κβαντικού κλειδιού. Παρά τις απόπειρες που έγιναν για την κατασκευή τέτοιων συστημάτων με χρήση πολύ ασθενών πηγών διέγερσης, είναι ξεκάθαρο ότι ρεαλιστική προστασία από παρεμβολές και υποκλοπές προσφέρει μόνο η χρήση ενός πραγματικού εκπομπού μεμονωμένων φωτονίων⁴².

Το φαινόμενο της εκπομπής μεμονωμένων φωτονίων από QDs σε υψηλές θερμοκρασίες έχει παρουσιαστεί μέχρι σήμερα για QDs του συστήματος II-VI, και συγκεκριμένα για τελείες (Cd, Zn)Se/ZnSe καθώς και σε QD νιτριδίων σε δομές GaN/AlN. Στην περίπτωση τελειών του συστήματος II-VI το φαινόμενο έχει επιδειχθεί σε διάφορες θερμοκρασίες μέχρι τους 220K⁴³. Στην περίπτωση των QD νιτριδίων, το φαινόμενο της εκπομπής μεμονωμένων φωτονίων έχει παρουσιαστεί ακόμα και σε θερμοκρασία 300K⁴⁴. Αντίθετα σε QDs του συστήματος InAs/GaAs, η ανώτατη θερμοκρασία στην οποία έχει επιδειχθεί λειτουργία εκπομπής μεμονωμένων φωτονίων είναι στους 120K για QDs οπτικά διεγερμένες⁴⁵ και 80K για ηλεκτρικά διεγερμένες⁴⁶. Οι χαμηλές αυτές θερμοκρασίες οφείλονται σε μεγάλο βαθμό στη μικρή διαφορά ανάμεσα στις ενέργειες εκπομπής του εξιτονίου και των υπόλοιπων εξιτονικών συμπλόκων, που δεν επιτρέπει το φασματικό διαχωρισμό των εκπεμπόμενων φωτονίων. Οι πιεζοηλεκτρικές QDs (211) InAs /GaAs που παρουσιάζονται στην εργασία παρουσιάζουν μεγάλη διαφορά μεταξύ των ενεργειών εξιτονίου και διεξιτονίου, η οποία μπορεί να υπερβεί σε ορισμένες περιπτώσεις τα 10meV, καθιστώντας το φασματικό διαχωρισμό εφικτό, ακόμη και σε υψηλές θερμοκρασίες.

Παρόλο που η πλειονότητα των πειραμάτων παρατήρησης εκπομπής μεμονωμένων φωτονίων έχει γίνει με χρήση οπτικής διέγερσης, η ρεαλιστική υλοποίηση μιας τέτοιας συσκευής απαιτεί ηλεκτρική διέγερση των υποψήφιων διατάξεων. Από αυτή την άποψη, η χρήση του συστήματος InAs/GaAs παρουσιάζει σημαντικά πλεονεκτήματα, εξαιτίας της

ώριμης τεχνολογίας κατεργασίας των δειγμάτων των αρσενιδίων. Αν αυτό συνδυαστεί με τη μεγάλη διαφορά ενεργειών εξιτονίου και διεξιτονίου στις (211) InAs QDs, καθιστά τις δομές αυτές ένα καλό υποψήφιο σύστημα για την κατασκευή ηλεκτρικά διεγερμένων εκπομπών μεμονωμένων φωτονίων.

Μια ακόμη ενδιαφέρουσα χρήση των QDs είναι ότι μπορούν να χρησιμοποιηθούν σε κβαντικές πηγές φωτός σε μελλοντικές τηλεπικοινωνιακές εφαρμογές, όπου τα κβαντικά δίκτυα επιμερίζουν κλειδιά σε μεγάλες αποστάσεις, χρησιμοποιώντας συζευγμένα ζεύγη φωτονίων⁴⁷. Μια διεγερμένη QD αποτελεί μια ιδανική πηγή συζευγμένων ζευγών φωτονίων, γεννώντας ένα ζεύγος συζευγμένων φωτονίων ανά παλμό. Αυτό μπορεί να συμβεί μέσω διαδοχικών ακτινοβόλων επανασυνδέσεων⁴⁸, στις οποίες το σύστημα των φορέων ξεκινά από την κατάσταση διεξιτονίου XX και καταλήγει στη θεμελιώδη κατάσταση του περνώντας πρώτα από την ενδιάμεση εξιτονική κατάσταση, όπως φαίνεται στο Σχ. 1.7. Όπως τονίστηκε σε προηγούμενη παράγραφο, αυτό μπορεί να γίνει μέσω δύο διαφορετικών δρόμων. Αν ο διαχωρισμός λεπτής υφής των δύο εξιτονικών καταστάσεων είναι πολύ μικρός, τότε οι οπτικές διαδρομές δεν μπορούν να διακριθούν μεταξύ τους. Τα φωτόνια που παράγονται στην περίπτωση αυτή είναι μεταξύ τους συζευγμένα. Παρά το γεγονός ότι αυτά τα είδη των πειραμάτων έχουν πραγματοποιηθεί τόσο με οπτική όσο και ηλεκτρική διέγερση⁴⁹ σε διάφορα ημιαγωγικά συστήματα, συνήθως περιορίζονται σε χαμηλές θερμοκρασίες (~10K), και απαιτούν ιδιαίτερα απαιτητικές τεχνικές για την μείωση ή την πλήρη εξαφάνιση του διαχωρισμού λεπτής υφής. Από την άλλη πλευρά, οι InAs/GaAs QDs που αναπτύσσονται σε υποστρώματα υψηλού κρυσταλλογραφικού δείκτη, όπως το (111)GaAs και το (211)GaAs, παρουσιάζουν μικρό ή αμελητέο διαχωρισμό λεπτής υφής⁵⁰⁻⁵³. Αυτό σε συνδυασμό με τη δυνατότητα των τελειών αυτών να χρησιμοποιηθούν σε εκπομπούς μεμονωμένων φωτονίων σε υψηλές θερμοκρασίες, καθιστά τις πιεζοηλεκτρικές (N11) InAs QDs ένα ενδιαφέρον υποψήφιο σύστημα για την κατασκευή πηγών μεμονωμένων και συζευγμένων φωτονίων σε υψηλές θερμοκρασίες.

1.6. ΣΚΟΠΟΣ ΤΗΣ ΕΡΓΑΣΙΑΣ

Η ευρύτητα των εφαρμογών που παρουσιάζουν οι κβαντικές τελείες κατέστησε εξαιρετικά σημαντική τη μελέτη τόσο των μεμονωμένων κβαντικών τελειών όσο και των δειγμάτων

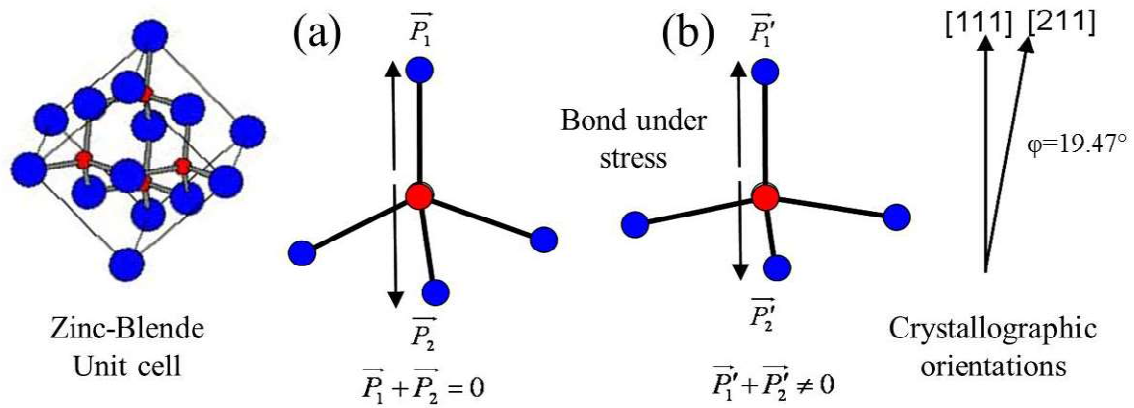
τους. Η μελέτη αυτή συνίσταται στη διεύρυνση των οπτικών και ηλεκτρικών τους ιδιοτήτων και στην διερεύνηση πιθανών εφαρμογών τους. Στην παρούσα εργασία εστιάζουμε τη μελέτη μας στις πιεζοηλεκτρικές QDs, δηλαδή σε τελείες, στις οποίες η διαφορά ανάμεσα στις πλεγματικές σταθερές υποστρώματος και υλικού των τελειών, έχει ως αποτέλεσμα τη δημιουργία ηλεκτρικού πεδίου στο εσωτερικό των τελειών. Ειδικότερα, εστιάζουμε τη μελέτη μας σε δομές που περιλαμβάνουν InAs QDs, οι οποίες αναπτύσσονται σε (211)B GaAs υποστρώματα. Οι δομές αυτές επιτρέπουν την μελέτη της επίδρασης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου στις ιδιότητες των QDs, αλλά και το να εκμεταλλευτούμε τα πλεονεκτήματα της ώριμης τεχνολογίας του GaAs. Στις επόμενες παραγράφους θα συζητήσουμε εκτενώς τα πλεονεκτήματα των πιεζοηλεκτρικών QDs για εφαρμογές όπως οι πηγές μεμονωμένων φωτονίων που λειτουργούν σε διάφορες θερμοκρασίες, οι εκπομποί συζευγμένων φωτονίων και οι εκπομποί μεμονωμένων φωτονίων μεταβλητού μήκους κύματος.

1.6.1. ΠΙΕΖΟΗΛΕΚΤΡΙΚΕΣ ΚΒΑΝΤΙΚΕΣ ΤΕΛΕΙΕΣ

Το κύριο στοιχείο που χαρακτηρίζει τις QDs που μελετώνται στην παρούσα εργασία είναι το πιεζοηλεκτρικό πεδίο, το οποίο αναπτύσσεται σε αυτές. Το πιεζοηλεκτρικό πεδίο οφείλεται στο γεγονός ότι η επίταξη γίνεται πάνω σε υποστρώματα (211)B GaAs. Η κρυσταλλογραφική διεύθυνση (211) ανήκει στην οικογένεια των (N11) κρυσταλλογραφικών διευθύνσεων. Επίταξη υπό τάση κατά μήκος των κρυσταλλογραφικών διευθύνσεων αυτής της οικογένειας σε ημιαγωγούς που έχουν τη κρυσταλλική δομή zincblende, έχει ως αποτέλεσμα τη γέννηση ενός ισχυρού πιεζοηλεκτρικού πεδίου. Στη συνέχεια θα περιγράψουμε το μηχανισμό δημιουργίας του πιεζοηλεκτρικού πεδίου κατά μήκος των (N11) κρυσταλλογραφικών διευθύνσεων της δομής zincblende.

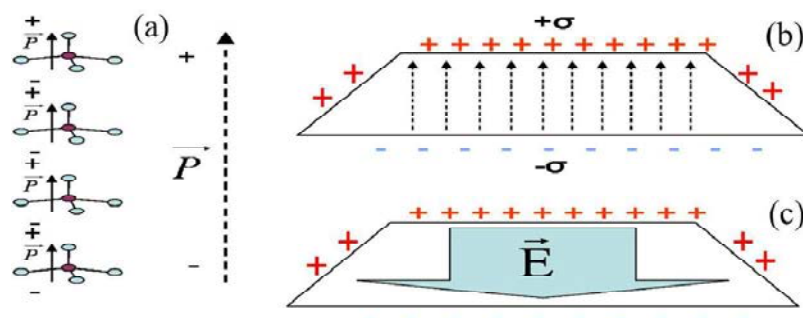
Η επίταξη υλικών με διαφορετικές πλεγματικές σταθερές σε υποστρώματα (N11) προκαλεί την παραμόρφωση των δεσμών ανάμεσα στα άτομα της QD. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα την εμφάνιση πόλωσης κατά μήκος του άξονα επίταξης. Στο Σχ. 1.9 α) φαίνεται το σύστημα των τεσσάρων δεσμών ανάμεσα σε ένα άτομα Ga και στα τέσσερα γειτονικά άτομα As, στην περίπτωση που η ανάπτυξη γίνεται χωρίς τάση στην (111) κρυσταλλογραφική διεύθυνση. Το τετράπολο που δημιουργείται στην περίπτωση αυτή παρουσιάζει μηδενική συνολική πόλωση. Η εικόνα αυτή αλλάζει δραστικά στην περίπτωση της επίταξης υπό τάση, οπότε οι δεσμοί παραμορφώνονται, έχοντας ως αποτέλεσμα τη δημιουργία ενός διπόλου κατά

την (111) κρυσταλλογραφική διεύθυνση, όπως φαίνεται στο Σχ. 1.9.β). Θεωρώντας ότι ένα ημιαγωγικό στρώμα αποτελείται από διάφορα στρώματα ατόμων, τότε η παραπάνω διαδικασία έχει ως αποτέλεσμα τη δημιουργία μιας αλυσίδας τέτοιων διπόλων.



Σχ. 1.9: Σχηματική αναπαράσταση της πόλωσης κατά την (111) κρυσταλλογραφική διεύθυνση της δομής σφαλερίτη, η οποία επάγεται από την παραμόρφωση λόγω τάσης.

Το θετικό φορτίο κάθε διπόλου εξουδετερώνεται από το αρνητικό φορτίο του γειτονικού διπόλου, και μόνο τα φορτία στα δύο άκρα του στρώματος επιβιώνουν δημιουργώντας ένα ισχυρό δίπολο στα άκρα της αλυσίδας. Σε όλο τον όγκο της QD δημιουργούνται πολλά τέτοια δίπολα κατά μήκος του άξονα ανάπτυξης, έχοντας ως αποτέλεσμα την εμφάνιση μιας επιφανειακής πυκνότητας φορτίου, στο μέρος της QD καθώς και στη βάση της, όπως αναπαριστάται στο Σχ. 1.10. Η επιφανειακή πυκνότητα φορτίου προκαλεί τη γέννηση ενός ισχυρού εσωτερικού ηλεκτρικού πεδίου, το οποίο είναι γνωστό και ως πιεζοηλεκτρικό πεδίο.



Σχ. 1.10: α) Η αλυσίδα των διπόλων, η οποία δημιουργείται από την επίταξη υπό τάση, καθώς και η συνολική πόλωση κατά μήκος του άξονα επίταξης. β) Σχήμα, που απεικονίζει το φορτίο, το οποίο δημιουργείται στην επιφάνεια της QD, λόγω πόλωσης. γ) Το δημιουργούμενο ηλεκτρικό πεδίο.

Στην πραγματικότητα, η δημιουργία του πιεζοηλεκτρικού πεδίου είναι αρκετά πιο πολύπλοκη διαδικασία. Πέρα από την παραμόρφωση των ιοντικών δεσμών, στη δημιουργία του πιεζοηλεκτρικού πεδίου συμβάλλει και ο μετασχηματισμός του ηλεκτρονιακού νέφους, εξαιτίας της επίταξης υπό τάση. Παρόλα αυτά η απλουστευμένη εικόνα της δημιουργίας του πιεζοηλεκτρικού πεδίου λόγω της παραμόρφωσης των ιοντικών δεσμών προσφέρει μια επαρκή βάση για την κατανόηση των πιεζοηλεκτρικών φαινομένων στις (111) QDs. Παρόμοια εικόνα παρουσιάζεται και στην περίπτωση που η επίταξη γίνεται κατά τη (N11) κρυσταλλογραφική διεύθυνση και εξηγεί την εμφάνιση ενός ισχυρού πιεζοηλεκτρικού πεδίου κατά τον άξονα της επίταξης. Ένα τέτοιο ηλεκτρικό πεδίο αναμένεται να έχει σημαντικές συνέπειες στις ιδιότητες των QDs. Επισημαίνουμε επιγραμματικά τα εξής αποτελέσματα:

- I. Ενισχυμένο κβαντικό φαινόμενο Stark στο εσωτερικό των QDs.
- II. Αρνητική ενέργεια δέσμησης διεξιτονίου.
- III. Αμελητέα ενέργεια διαχωρισμού λεπτής υφής.

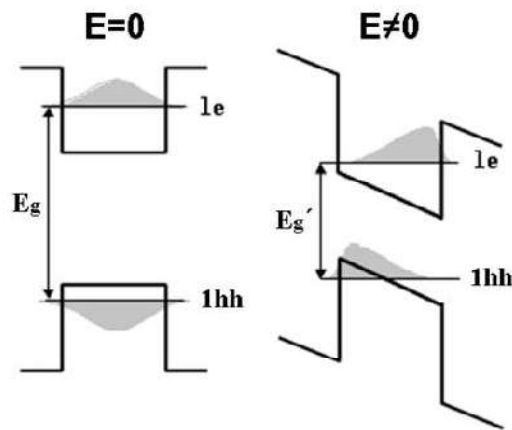
Οι συνέπειες που ένα τέτοιο ηλεκτρικό πεδίο αναμένεται να έχει στις ιδιότητες των QDs, θα εξεταστεί διεξοδικά σε επόμενες παραγράφους.

1.6.2. ΕΝΙΣΧΥΜΕΝΟ ΚΒΑΝΤΙΚΟ ΦΑΙΝΟΜΕΝΟ STARK

Η παρουσία του εσωτερικού πιεζοηλεκτρικού πεδίου, το οποίο γεννάται στο εσωτερικό των κβαντικών τελειών έχει ως αποτέλεσμα τα επόμενα φαινόμενα:

- I. Την κάμψη των ενεργειακών ζωνών αγωγιμότητας και σθένους.
- II. Το χωρικό διαχωρισμό ηλεκτρονίων και οπών καθώς και των κυματοσυναρτήσεων τους, εξαιτίας του αντίθετου φορτίου τους.
- III. Την μετατόπιση των ενεργειών μετάβασης σε χαμηλότερες τιμές, εξαιτίας της ύπαρξης του εσωτερικού ηλεκτρικού πεδίου⁵⁴.

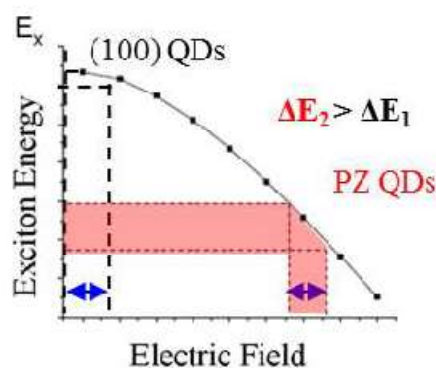
Μια σχηματική αναπαράσταση των παραπάνω φαινομένων σε πιεζοηλεκτρικές QDs καθώς και μια σύγκριση τους με τις αντίστοιχες (100) τελείες, στις οποίες το ηλεκτρικό πεδίο είναι αμελητέο, δίνεται στο Σχ. 1.11.



Σχ. 1.11: Σχηματική αναπαράσταση, η οποία απεικονίζει το διάγραμμα ενεργειακών ζωνών, απουσία και παρουσία ηλεκτρικού πεδίου στο χώρο της QD. Στο ίδιο σχήμα απεικονίζονται οι κυματοσυναρτήσεις ηλεκτρονίων και οπών στις δύο περιπτώσεις.

1.6.2.1 ΕΥΑΙΣΘΗΣΙΑ ΦΑΣΜΑΤΟΣ ΕΚΠΟΜΠΗΣ ΣΕ ΕΞΩΤΕΡΙΚΟ ΠΕΔΙΟ

Το αξιοσημείωτο πιεζοηλεκτρικό πεδίο, το οποίο εμφανίζεται κατά μήκος του άξονα επίταξης καθιστά τις (211) InAs QDs υπερβολικά ευαίσθητες στην εφαρμογή εξωτερικών ηλεκτρικών πεδίων. Η εφαρμογή μικρών ηλεκτρικών πεδίων σε τέτοιες δομές έχει ως αποτέλεσμα τη δραστική μετατόπιση της ενέργειας εκπομπής. Η ιδέα περιγράφεται στο Σχ. 1.12, όπου είναι ορατή η μεγάλη διαφορά ανάμεσα στις μετατοπίσεις λόγω φαινομένου Stark ΔE_2 σε δομές (211) QDs σε σύγκριση με την αντίστοιχη μετατόπιση ΔE_1 , η οποία εμφανίζεται σε (100) QDs, που στερούνται πιεζοηλεκτρικού πεδίου, όπως φαίνεται στο Σχ. 1.12. Η έντονη ερυθρή μετατόπιση του φάσματος εκπομπής σε πιεζοηλεκτρικές (211) InAs QDs έχει χρησιμοποιηθεί μάλιστα και για την μελέτη μη - γραμμικών πιεζοηλεκτρικών φαινομένων και έχει αναδειχθεί η σημασία τους στον προσδιορισμό της τιμής και της κατεύθυνσης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου στο εσωτερικό των QDs⁵⁵.



Σχ. 1.12: Σχηματική αναπαράσταση της ενισχυμένης ερυθρής μετατόπισης της εξιτονικής ενεργειακής μετάβασης λόγω φαινομένου Stark στην περίπτωση των (211) InAs PZ QDs σε σχέση με τις μη πολικές (100) QDs.

1.6.3. ΠΕΡΙΟΡΙΣΜΟΣ ΔΙΑΧΩΡΙΣΜΟΥ ΛΕΠΤΗΣ ΥΦΗΣ

Όπως τονίστηκε σε προηγούμενη παράγραφο, κατά την μετάπτωση ενός εξιτονίου στη θεμελιώδη κατάσταση παράγονται φωτόνια, τα οποία διαφέρουν μεταξύ τους κατά FSS. Όπως αναφέρθηκε προηγουμένως, η ενεργειακή διαφορά των εξιτονικών και διεξιτονικών φασματικών γραμμών είναι ένα μέτρο της ανισοτροπίας του περιοριστικού δυναμικού. Τρεις είναι οι βασικές πηγές της ανισοτροπίας αυτής που αναφέρονται στη βιβλιογραφία:

- I. Η ασυμμετρία του σχήματος των τελειών, η οποία προκαλείται για παράδειγμα από την επιμήκυνση των τελειών κατά μήκος κάποιας κρυσταλλογραφικής διεύθυνσης. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα τη μείωση της συμμετρίας από C_{4u} σε C_{2u} , η οποία αυξάνει τη τιμή του FSS.
- II. Οι ατομικιστικές ανισοτροπίες^{56,57}, οι οποίες πηγάζουν από ατομικιστικές διαφορές στις διεπιφάνειες των QDs.
- III. Τα ισχυρά πλευρικά πιεζοηλεκτρικά πεδία, τα οποία αναπτύσσονται λόγω τάσης στις πλευρικές επιφάνειες των QDs.^{58,59} Σε πρόσφατες αναφορές στη βιβλιογραφία έχει αναφερθεί ότι σε QDs, οι οποίες εμπεριέχουν ισχυρά πιεζοηλεκτρικά πεδία κατά τον άξονα επιταξίας, τα πεδία αυτά λειτουργούν ανταγωνιστικά προς την μορφολογική ασυμμετρία των QDs. Σε μια τέτοια περίπτωση το περιοριστικό δυναμικό αποκτά συμμετρία μεγαλύτερου βαθμού, και το FSS μειώνεται προσεγγίζοντας μηδενικές τιμές⁵⁰⁻⁵³. Επομένως, QDs με ισχυρά πιεζοηλεκτρικά πεδία στο εσωτερικό τους θα μπορούσαν να αποτελέσουν ένα ελκυστικό υποψήφιο σύστημα για την κατασκευή εκπομπών συζευγμένων φωτονίων.

1.6.4. ΑΡΝΗΤΙΚΗ ΕΝΕΡΓΕΙΑ ΔΕΣΜΕΥΣΗΣ ΔΙΕΞΙΤΟΝΙΟΥ

Ένα ακόμη φαινόμενο, το οποίο αναμένεται σε πιεζοηλεκτρικές QDs είναι η αρνητική ενέργεια δέσμευσης του διεξιτονίου. Το φαινόμενο αυτό αποδίδεται στις ενισχυμένες απώσεις ηλεκτρονίου – ηλεκτρονίου και οπής – οπής, οι οποίες είναι ισχυρότερες από την έλξη

ηλεκτρονίου – οπής. Το φαινόμενο έχει παρατηρηθεί σε περιορισμένο βαθμό πειραματικά σε (100) InAs QDs μικρού μεγέθους που αναπτύσσονται με υψηλούς ρυθμούς εναπόθεσης. Η αρνητική ενέργεια δέσμησης στην περίπτωση αυτή προσεγγίζει τα 2-4meV. Σε επόμενο κεφάλαιο της εργασίας, θα παρουσιάσουμε τα πειραματικά δεδομένα, τα οποία έχουν εξαχθεί από πειράματα μικροφωτοφωταύγειας (μ-PL) σε (211) InAs QDs. Όπως θα συζητήσουμε εκτενώς σε επόμενο κεφάλαιο, οι (211) InAs QDs παρουσιάζουν μεγάλες αρνητικές ενέργειες δέσμησης εξαιτίας των ισχυρών πιεζοηλεκτρικών τους πεδίων⁵⁵. Αυτό ανοίγει νέες προοπτικές για την κατασκευή εκπομπών μεμονωμένων φωτονίων (SPSs), οι οποίοι να βασίζονται σε δομές (211)B InAs QDs.

1.6.4.1 SPSs ΥΨΗΛΗΣ ΘΕΡΜΟΚΡΑΣΙΑΣ

Οι InAs πιεζοηλεκτρικές QDs καθιστούν ρεαλιστική τη λειτουργία SPSs υψηλής λειτουργικότητας σε υψηλές θερμοκρασίες. Η ενεργειακή διαφορά ανάμεσα στις ενέργειες εκπομπής εξιτονίου και διεξιτονίου είναι αρκετά σημαντική. Αν και εφόσον η ενεργειακή διαφορά είναι μεγαλύτερη από το ομογενές εύρος των γραμμών εκπομπής εξιτονίου και διεξιτονίου σε θερμοκρασία δωματίου, οι δύο φωτεινές γραμμές μπορούν να διακριθούν μεταξύ τους στη θερμοκρασία αυτή. Ένα τυπικό ομογενές εύρος γραμμής για ένα GaAs εξιτόνιο σε θερμοκρασία δωματίου είναι περίπου 10meV. Αυτό σε συνδυασμό με το γεγονός ότι διατάξεις που βασίζονται σε ετεροδομές αρσενιδίων έχουν μελετηθεί διεξοδικά και μπορούν να ενταχθούν εύκολα σε ολοκληρωμένα ηλεκτρονικά κυκλώματα, προσδίδει ένα ιδιαίτερο πλεονέκτημα στις InAs πιεζοηλεκτρικές τελείες σε σύγκριση με αντίστοιχες ετεροδομές άλλων ημιαγωγών.

BIBΛΙΟΓΡΑΦΙΚΕΣ ΑΝΑΦΟΡΕΣ

- [1] V.N. Lutskaa, *Phys.Stat. Sol (a)* 1, 199 (1970)
- [2] A.Y. Cho, *J. Vac. Sci. Technol.* 1, 398 (1983)
- [3] R.D. Dupius, R.C. Miller and P.M. Petroff, *J. Crystal Growth* 68, 398 (1984)
- [4] E. Kapon, M. Hwang and R. Bhat, *Phys. Rev. Lett.* 63, 430 (1989)

- [5] M. Reed, R.T. Bate, K. Bradshaw, W.M. Duncan, W.M. Frensley, J.W. Lee and H.D. Smith, *J. Vac. Sci. Technology B* **4**, 358 (1986)
- [6] J. Cilbert, P.M. Petroff, G.J. Dolan, S.J. Pearton, A.C. Gossard and J.H. English, *Appl. Phys. Lett.* **49**, 1275 (1986)
- [7] H. Temkin, G.J. Dolan, M.B. Panish and S.N.G. Chu, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 413 (1987)
- [8] K. Kash, A. Scherer, J.M. Worlock, H.G. Craighead and M.C. Tamargo, *Appl. Phys. Lett* **49**, 1043 (1986)
- [9] D. Bimberg, M. Grundmann and N.N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures* (John Wiley & Sons, Chichester, 1999)
- [10] A.R. Kovsh, N.A. Maleev, A.E. Zhukov, S.S. Mikhrin, A.R. Vasilev, Y.M. Shemyakov, M.V. Maximov, D.A. Livshits, V.M. Ustinov, Z.I. Alferov, N.N. Ledentsov and D. Bimberg, *Electronics Letters* **38**, 1104 (2002)
- [11] N. Kirstaedter, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. Ustinov, S. Ruvimov, M. Maximov, P. Kop'ev and Z. Alferov, *Electronics Letters* **30**, 1416 (1994).
- [12] D. Bimberg, N. Kirstaedter, N.N. Ledentsov, Z. Alferov, P.S. Kopaposev and V.M. Ustinov, *IEEE J. Sel. Top. Quant.* **3**, 196 (1997).
- [13] F. Heinrichsdorff, C. Ribbat, M. Grundmann and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 556 (2000).
- [14] J. Tatebayashi, N. Hatori, M. Ishida, H. Ebe, M. Sugawara, Y. Arakawa, H. Sudo and A. Kuramata, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 53107 (2005).
- [15] A.V. Uskov, E. O'Reilly, R. Manning, R. Webb, D. Cotter, M. Laemmlin, N. Ledentsov and D. Bimberg, *Photonics Technology Letters, IEEE* **16**, 1265 (2005).
- [16] J. Cibert, P.M. Petroff, G. J. Dolan, S.J. Perton, A.C. Gossard and J.H. English, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 413 (1987).
- [17] K. Kash, A. Scherer, J.M. Worlock, H.G. Craighead and M.C. Tamargo, *Appl. Phys. Lett.* **49**, 1043 (1986)
- [18] T. Demel, D. Heitmann, P. Grambow and K. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 788 (1990)
- [19] T.P. Smith, K.Y. Lee, C.M. Knoedler, J.M. Hong and D.P. Kern, *Phys. Rev. B* **38**, 2172 (1988)

- [20] M. Grundmann, O. Stier and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* 52, 11969 (1995)
- [21] J.-Y. Marzin,, J.M. Gerard, A. Izrael, D. Barrier and G. Bastard, *Phys. Rev. Lett.* 73, 716 (1994)
- [22] S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, J.L. Merz and P.M. Petroff, *Phys. Rev. B* 50, 8086 (1994)
- [23] S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, J.L. Merz and P.M. Petroff, *Phys. Rev. B* 52, 5752 (1995)
- [24] E.L. Ivchenko and G. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures* (Springer Verlag, Berlin, 1995)
- [25] O. Benson, C. Santori, M. Pelton and Y. Yamamoto, *Phys. Rev. Lett.* 84, 2513 (2000)
- [26] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. Reinecke, S. Walck, J. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schafer, *Phys. Rev. B* 65, 1 (2002).
- [27] A.S. Lenihan, M.V. Gurudev, D.G. Steel, S. Ghosh and P.K. Bhattacharya, *Phys. Rev. Lett.* 88, 223601 (2002)
- [28] J.J. Finley, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, A.D. Ashmore, C. Baker, A.F.G. Monte and M. Hopkinson, *Phys. Rev. B* 66, 153316 (2002)
- [29] A.I. Tartakovskii, M.N. Makhonin, I.R. Sellers, J. Cahill, A.D. Andreev, D.M. Whittaker, J.-P.R. Wells, A.M. Fox, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, K.M. Groom, M.J. Steer, H.Y. Liu and M. Hopkinson, *Phys. Rev. B* 70, 193303 (2004)
- [30] K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaitre, S. Laurent, P. Senellart, P. Voisin and J.A. Gaj, *Appl. Phys. Lett.* 86, 041907 (2005)
- [31] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter and A. Wieck, *Phys. Rev. B* 69, 161301 (2004)
- [32] Y. Arakawa and H. Sakaki, *Appl. Phys. Lett.* 40, 939 (1982).
- [33] N. Kirstaedter, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V.M. Ustinov, S.S. Ruvimov, M.V. Maximov, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele, and J. Heydenreich, *Electron. Lett.* 30, 1416 (1994).
- [34] G.T. Liu, A. Stintz, H. Li, K.J. Malloy, and L.F. Lester, *Electron. Lett.* 35, 1163 (1999).
- [35] <http://cqdeccs.northwestern.edu/research/qdots.php>, Center of Quantum Devices at the Northwestern University

- [36] A. Zrenner, L. V. Butov, M. Hagn, G. Abstreiter, G. Bohm, and G. Weimann, *Phys. Rev. Lett.* 72,3382 (1994).
- [37] J. Y. Marzin, J. M. Gerard, A. Izrael, D. Barrier, and G. Bastard, *Phys. Rev. Lett.* 73, 716 (1994).
- [38] M. Grundmann, J. Christen, N. Ledentsov, J. Böhler, D. Bimberg, S. Ruvimov, , P. Werner, U. Richter, U. Gosele, J. Heydenreich, V. Ustinov, A. Egorov, A. Zhukov, P. Kop'ev, and Zh. Alferov, *Phys. Rev. Lett.* 74, 4043 (1995).
- [39] D. Hessman, P. Castrillo, M.-E. Pistol, C. Pryor, and L. Samuelson, *Appl. Phys. Lett.* 69, 749 (1996).
- [40] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W.V. Schoenfeld, P.M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu, *Science* 290, 2282 (2000).
- [41] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, and Y. Yamamoto, *Phys. Rev.Lett.* 86, 1502 (2001).
- [42] G. Brassard, N. Lutkenhaus, T. Mor, and B.C. Sanders, *Phys. Rev. Lett.* 85, 1330 (2000).
- [43] O. Fedorych, C. Kruse, A. Ruban, D. Hommel, G. Bacher, and T. Kummell, *Appl. Phys. Lett.* 100, 061114 (2012).
- [44] M.J. Holmes, K. Choi, S. Kako, M. Arita, and Y. Arakawa, *Nano Lett.* 14, 982 (2014).
- [45] R.P. Mirin, *Appl. Phys. Lett.* 84, 1260 (2004).
- [46] X. M. Dou, X. Y. Chang, B. Q. Sun, Y. H. Xiong, Z. C. Niu, S. S. Huang, H. Q. Ni, Y. Du, and J. B. Xia, *Appl. Phys. Lett.* 93, 1 (2008).
- [47] D. Bouwmeester, J W Pan, K Mattle, M Eibl, H. Weinfurter, and A Zeilinger, *Nature*, 390, 575 (1997).
- [48] O. Benson, C. Santori, M. Pelton, and Y. Yamamoto, *Phys. Rev.Lett.*, 84, 2513 (2000).
- [49] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, *Nature*, 439, 179 (2006).
- [50] D. Bimberg, E. Stock, A. Lochmann, A. Schliwa, J.A. Tofflinger, W. Unrau, M. Munnix, S. Rodt, V.A. Haisler, A.I. Toropov, A. Bakarov and A.K. Kalagin, *IEEE Photonics Journal* 1, 58 (2009)
- [51] A. Schliwa, M. Winkelkemper, A. Lochmann, E. Stock and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* 80, 161307 (2009)
- [52] R. Singh and G. Bester, *Phys. Rev. Lett.* 103, 1 (2009)
- [53] S. Germanis, A. Beveratos, G.E. Dialynas, G. Deligeorgis, P.G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, and N.T. Pelekanos, *Phys. Rev. B* 86, 1 (2012).
- [54] D. A B Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, *Phys. Rev. Lett.* 53, 2173 (1984).

- [55] G. Bester, X. Wu, D. Vanderbilt, and A. Zunger, *Phys. Rev.Lett.*, 96(18):1-4, 2006.
- [56] G. Bester, S. Nair and A. Zunger, *Phys. Rev. B* 67, 161306 (2003)
- [57] G. Bester and A. Zunger, *Phys. Rev. B* 71, 045318 (2005)
- [58] O. Stier, M. Grundmann and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* 59, 5688 (1999)
- [59] M. Grundmann, O. Stier and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* 52, 11969 (1995)

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2: ΔΟΜΙΚΕΣ ΙΔΙΟΤΗΤΕΣ ΚΒΑΝΤΙΚΩΝ ΤΕΛΕΙΩΝ

2.1 ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Όπως αναφέρθηκε σε προηγούμενη ενότητα, οι QDs αποτελούν ένα ιδιαίτερα ενδιαφέρον σύστημα για την παρατήρηση φαινομένων όπως η εκπομπή μεμονωμένων φωτονίων ή ζευγών συζευγμένων φωτονίων, με εφαρμογές στην κβαντική κρυπτογραφία και στις τηλεπικοινωνίες. Για τη ρεαλιστική υλοποίηση τέτοιων καινοτόμων εφαρμογών είναι απαραίτητος ο έλεγχος και η κατανόηση όλων των εμπλεκόμενων φαινομένων, όπως ο διαχωρισμός λεπτής υφής, του εξιτονίου¹, η ενεργειακή διαφορά ανάμεσα στην ενέργεια του εξιτονίου E_x και στις ενέργειες των εξιτονικών συμπλόκων²⁻⁸, και ο διαχωρισμός των p -καταστάσεων των ηλεκτρονίων⁹. Όλα τα παραπάνω φυσικά φαινόμενα εξαρτώνται από το σχήμα, το μέγεθος και τη σύσταση των QDs. Οι μορφολογικές και δομικές ιδιότητες των QDs καθορίζουν την κατανομή της τάσης στο χώρο της τελείας, την κατανομή του PZ πεδίου και τον αριθμό των διαθέσιμων καταστάσεων των φορέων, και διαμέσου αυτών επηρεάζουν τις οπτοηλεκτρονικές τους ιδιότητες. Για τους παραπάνω λόγους κρίνεται επιβεβλημένη η μελέτη της μορφολογίας και της σύστασης των QDs.

Στο κεφάλαιο αυτό παρουσιάζονται οι δομικές και μορφολογικές ιδιότητες των (211)B InAs QDs με τη βοήθεια μικροσκοπίας AFM και TEM, ώστε να αναδειχθούν οι ιδιαιτερότητες της επίταξης στην κρυσταλλογραφική αυτή διεύθυνση. Εξετάζεται η επίπτωση παραμέτρων της επίταξης, όπως η θερμοκρασία και ο ρυθμός εναπόθεσης, στην κρυσταλλική ανάπτυξη των τελειών και προσδιορίζεται η κατανομή της τάσης σε όλο τον όγκο τους.

2.2. ΤΕΧΝΙΚΕΣ ΧΑΡΑΚΤΗΡΙΣΜΟΥ

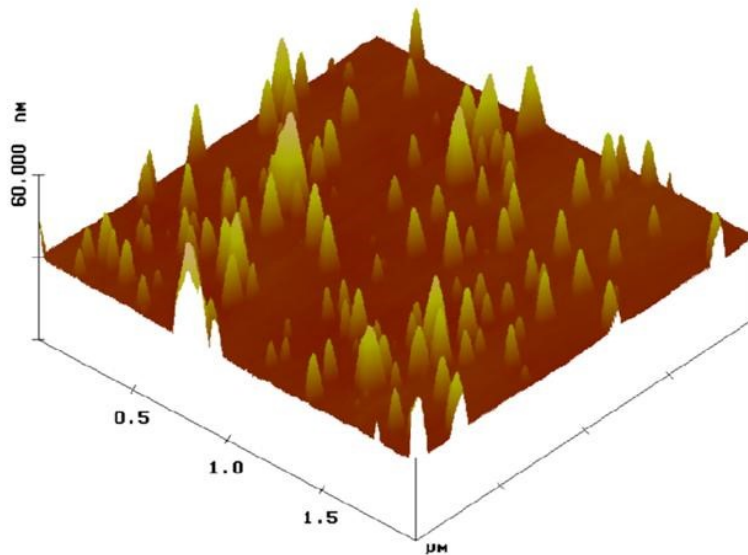
Για το χαρακτηρισμό και τη μελέτη των ιδιοτήτων των επιταξιακών κρυσταλλικών στρωμάτων χρησιμοποιήθηκαν μετά την επίταξη τεχνικές, οι οποίες δίνουν πληροφορίες για τη χημική σύσταση, την ομοιομορφία των δειγμάτων, καθώς και για τη μορφολογία της επιφάνειας. Στις παραγράφους που ακολουθούν παρουσιάζεται η αρχή λειτουργίας κάθε τεχνικής χαρακτηρισμού από αυτές που χρησιμοποιήθηκαν.

2.2.1. ΜΙΚΡΟΣΚΟΠΙΑ ΑΤΟΜΙΚΩΝ ΔΥΝΑΜΕΩΝ (AFM)

Για το λεπτομερή μορφολογικό χαρακτηρισμό και τη μέτρηση της τραχύτητας της επιφάνειας των δειγμάτων χρησιμοποιήθηκε το μικροσκόπιο ατομικών δυνάμεων (Atomic Force Microscope ή AFM). Η λειτουργία του βασίζεται στην αλληλεπίδραση των ατόμων της ακίδας του μικροσκοπίου με αυτά της επιφάνειας του ημιαγωγικού δείγματος^{10,11}.

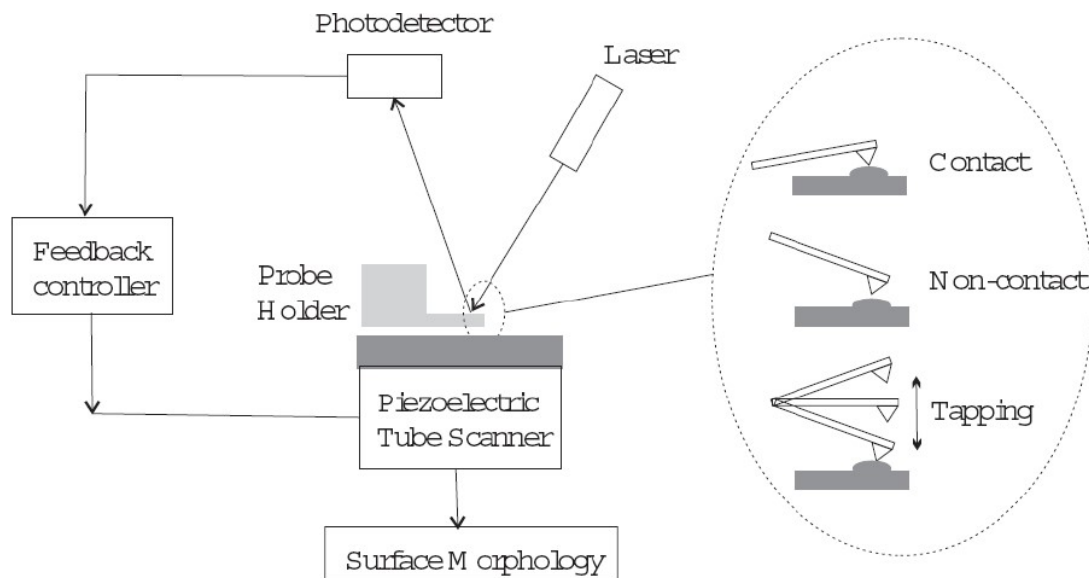
Σε αντίθεση με τα μικροσκόπια που χρησιμοποιούν κάποιο είδος ακτινοβολίας (φως, δέσμη ηλεκτρονίων, κ.α.), τα μικροσκόπια ατομικών δυνάμεων δουλεύουν μετρώντας τη μεταβολή κάποιας ιδιότητας όπως το ύψος σε ατομική κλίμακα, με τη βοήθεια μιας ακίδας που τοποθετείται πολύ κοντά στο δείγμα. Για να σχηματιστεί μια εικόνα της επιφάνειας του δείγματος, το μικροσκόπιο σαρώνει μέσω της ακίδας την επιφάνεια αυτή μετρώντας κάποια από τις τοπικές ιδιότητες που αναφέραμε. Σε αντίθεση με τα μικροσκόπια, που χρησιμοποιούν ακτινοβολία, στο μικροσκόπιο σάρωσης ακίδας, η διακριτική ικανότητα δεν περιορίζεται από το μήκος κύματος της ακτινοβολίας (φως ή ηλεκτρόνια), αλλά καθορίζεται από το μέγεθος της ακίδας και το βαθμό της τραχύτητας της επιφάνειας του δείγματος.

Η ακίδα AFM είναι μικρή, διαμέτρου 15nm στο λεπτότερο της σημείο, και στηρίζεται στο άκρο μιας λεπτής και ελαφριάς δοκού. Η δοκός μπορεί να πάλλεται στον κατακόρυφο άξονα. Μια δέσμη λέιζερ, που παράγεται από μια ημιαγωγική δίοδο προσπίπτει στο πάνω μέρος της δοκού και ανακλάται υπό μικρή γωνία. Ένας ανιχνευτής φωτοδίοδου ανιχνεύει το σήμα και στέλνει τα δεδομένα στον υπολογιστή του συστήματος για να τα επεξεργαστεί και να εξάγει την τελική εικόνα. Καθώς μετακινείται το δείγμα ή η ακίδα κατά μήκος του επιπέδου που ορίζει η επιφάνεια του, η ακίδα και η δοκός μετακινείται κατακόρυφα ακολουθώντας τις ανωμαλίες της επιφάνειας. Οι μετατοπίσεις αυτές επηρεάζουν την ανακλώμενη δέσμη λέιζερ και μετατοπίζουν το σημείο, στο οποίο η δέσμη αυτή προσπίπτει πάνω στον ανιχνευτή. Ο ανιχνευτής, με τη βοήθεια κατάλληλου λογισμικού, μετατρέπει τις κινήσεις της ακίδας σε εικόνα. Η εικόνα αυτή καταγράφεται για κάθε σημείο του ημιαγωγικού δείγματος και έτσι παράγεται το τελικό τοπογραφικό διάγραμμα της επιφάνειας. Μια τυπική εικόνα δείγματος (211) InAs QDs με τη βοήθεια μικροσκοπίου AFM φαίνεται στο Σχ. 2.1, όπου γίνονται ορατές οι νανοδομές InAs που αναπτύσσονται με πυραμιδική μορφή στην επιφάνεια του υποστρώματος GaAs.



Σχ. 2.1: Εικόνα AFM ενός μη καλυμμένου στρώματος (211) InAs QDs.

Η μέθοδος παρουσιάζει δύο σημαντικά μειονεκτήματα. Το πρώτο από αυτά είναι ότι η ακίδα, καθώς μετακινείται πάνω στο δείγμα, μπορεί να το χαράξει και να αλλοιώσει την αρχική του εικόνα. Ένα δεύτερο μειονέκτημα έναντι των συμβατικών μικροσκοπιών με φακούς είναι ότι η σάρωση όλης της επιφάνειας του δείγματος απαιτεί αρκετό χρόνο προκειμένου να επιταυχθεί μεγάλη ακρίβεια και καλή ανάλυση και είναι αδύνατο να παρθούν εικόνες σε πραγματικό χρόνο. Ένα τρίτο μειονέκτημα αναδείχθηκε κατά τη διάρκεια της παρούσας εργασίας και αφορά στην περιορισμένη ακρίβεια του AFM, όταν χρησιμοποιείται για τη μελέτη επιφανειών με νανοδομές μικρού ύψους, της τάξης των 2-3nm όπως τα δείγματα των InAs QDs που μελετήθηκαν. Στην περίπτωση αυτή, λόγω του μεγάλου μεγέθους της ακίδας που είναι της τάξης των δεκάδων nm, η διακριτική ικανότητα του οργάνου στη μέτρηση των πλευρικών διαστάσεων των τελειών περιορίζεται, με αποτέλεσμα οι πλευρικές διαστάσεις των τελειών να υπερεκτιμώνται.



Σχ. 2.2: Η αρχή λειτουργίας των τριών τρόπων λειτουργίας του AFM. Ανατύπωση από [12].

Το AFM μπορεί να χρησιμοποιηθεί σε τρεις διαφορετικούς τρόπους λειτουργίας. Οι λειτουργίες αυτές είναι η λειτουργία επαφής (contact-mode), η λειτουργία μη επαφής (non-contact mode) και η λειτουργία ελαφρών χτυπημάτων (tapping mode). Μια σχηματική αναπαράσταση των τριών τρόπων λειτουργίας του AFM φαίνεται στο Σχ. 2.2. Στη λειτουργία επαφής το AFM μετρά τις δυνάμεις απώθησης μεταξύ της ακίδας και του δείγματος. Η ακίδα στην περίπτωση αυτή σύρεται κατά μήκος της επιφάνειας, η οποία απωθείται από την επιφάνεια. Ο τρόπος αυτός λειτουργίας έχει μεγάλη κάθετη ανάλυση αλλά καθώς η ακίδα σύρεται πάνω στο δείγμα, ελλοχεύει ο κίνδυνος καταστροφής είτε της ακίδας είτε του δείγματος.

Στη λειτουργία μη επαφής μετρώνται οι δυνάμεις έλξης μεταξύ της ακίδας και της επιφάνειας. Ο τρόπος αυτός λειτουργίας παρουσιάζει μειωμένη ανάλυση, αλλά και μειωμένο κίνδυνο καταστροφής της ακίδας. Τέλος, στον τρόπο λειτουργίας των ελαφρών χτυπημάτων, η ακίδα του AFM είναι προσαρμοσμένη στο άκρο της δοκού που ταλαντώνεται με μια σταθερή συχνότητα, κάθετα στην επιφάνεια του δείγματος. Με τον τρόπο αυτό, η ακίδα ταλαντώνεται και ακουμπά την επιφάνεια του δείγματος, μόνο στο κατώτερο σημείο της ταλάντωσης, προκαλώντας την μικρότερη δυνατή αλλοίωση στο ημιαγωγικό δείγμα. Το κύκλωμα που καθορίζει την κίνηση της ακίδας διατηρεί σταθερό πλάτος ταλάντωσης διατηρώντας σταθερή τη μέση τιμή (RMS) του σήματος που καθορίζει την ταλάντωση και προσέχοντας συνεχώς την τιμή του σήματος που προέρχεται από τη φωτοδίοδο. Η οριζόντια θέση του σαρωτή στους άξονες X, Y καταγράφεται από το σύστημα ταυτόχρονα με την

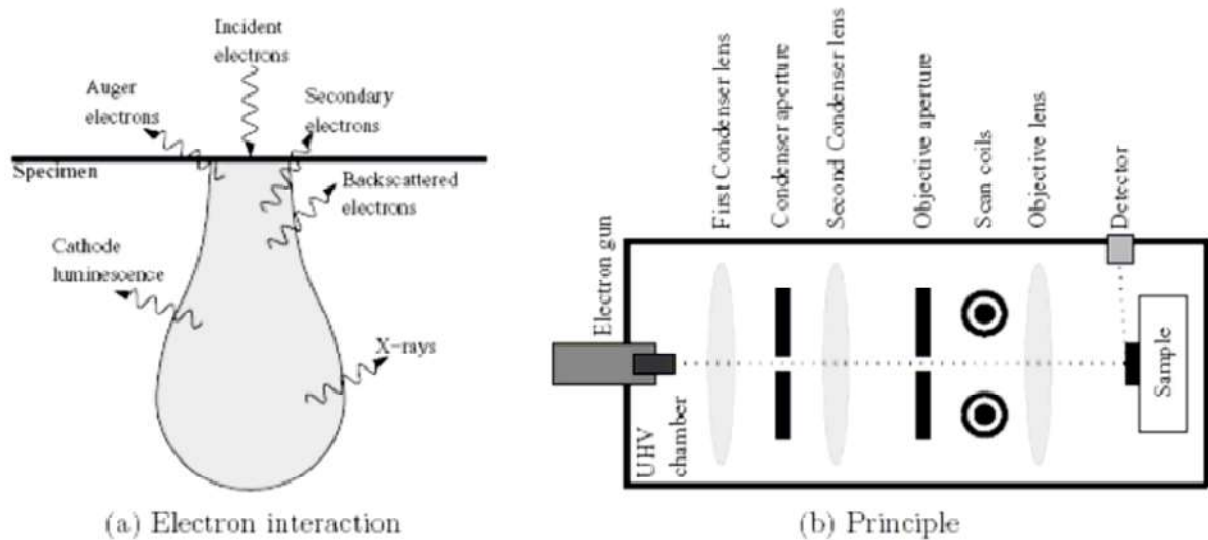
κάθετη θέση της δοκού ώστε να παραχθεί το τελικό τοπογραφικό διάγραμμα της επιφάνειας. Στην μελέτη των δειγμάτων (211)B InAs / GaAs QDs χρησιμοποιήθηκε η μέθοδος των ελαφρών χτυπημάτων, η οποία προσφέρει υψηλή ανάλυση και προκαλεί την μικρότερη καταστροφή στην επιφάνεια του δείγματος. Το μικροσκόπιο που χρησιμοποιήθηκε ήταν το σύστημα Digital IIIa Nanoscope της εταιρείας Digital Instrument, το οποίο είναι εγκατεστημένο στο Τμήμα Φυσικής του Πανεπιστημίου Κρήτης.

2.2.2. ΗΛΕΚΤΡΟΝΙΚΗ ΜΙΚΡΟΣΚΟΠΙΑ ΣΑΡΩΣΗΣ (SEM)

Για την περαιτέρω μελέτη της μορφολογίας της επιφάνειας των δειγμάτων των κβαντικών τελειών, αλλά και για τη μέτρηση του μεγέθους των δομών mesa που κατασκευάστηκαν στην επιφάνεια του δείγματος, χρησιμοποιήθηκε το ηλεκτρονικό μικροσκόπιο σάρωσης (SEM). Το ηλεκτρονικό μικροσκόπιο σάρωσης είναι ένα εξαιρετικά χρήσιμο εργαλείο, το οποίο επιτρέπει τη τρισδιάστατη παρατήρηση της επιφάνειας του δείγματος σε πραγματικό χρόνο σε πολλαπλές μεγεθύνσεις, καθώς και τον προσδιορισμό του μεγέθους ορισμένων δομών που βρίσκονται στην επιφάνεια των δειγμάτων αυτών.

Η αρχή λειτουργίας ενός τέτοιου μικροσκοπίου βασίζεται στην οπισθοσκέδαση ταχέως κινούμενων ηλεκτρονίων, όταν αυτά προσπίπτουν στην επιφάνεια ενός υλικού. Το πρώτο μικροσκόπιο σάρωσης παρουσιάστηκε το 1932¹³. Ήταν εφοδιασμένο με μια ψυχρή κάθοδο για την παραγωγή ηλεκτρονίων και μαγνητικούς φακούς για την εστίαση της δέσμης. Στα σύγχρονα SEM, τα ηλεκτρόνια έχουν ενέργεια μερικών keV. Εξαιτίας της μεγάλης ενέργειας τους, έχουν μήκος κύματος μέχρι και 10^5 φορές μικρότερο από αυτό του ορατού φωτός και επομένως μπορούν να “διακρίνουν” αντικείμενα αντίστοιχων διαστάσεων. Η δέσμη των ηλεκτρονίων εστιάζεται από σύστημα ηλεκτρονικών φακών και σαρώνει την επιφάνεια του δείγματος. Όλη η παραπάνω διάταξη βρίσκεται μέσα σε θάλαμο κενού. Κατά την πρόσπτωση των ηλεκτρονίων αυτών στην επιφάνεια ενός ημιαγωγικού δείγματος και εξαιτίας της αλληλεπίδρασης τους με αυτή, παρατηρείται εκπομπή δευτερογενών ηλεκτρονίων, ηλεκτρονίων Auger καθώς και ακτίνων X συνεχούς και διακριτού φάσματος. Με ειδικό ανιχνευτή Si – Li γίνεται η συλλογή και καταμέτρηση των δευτερογενών ηλεκτρονίων, η ένταση των οποίων εξαρτάται από τη μορφολογία του δείγματος. Το σήμα των ανιχνευτών αναπαράγεται στην οθόνη με τη βοήθεια κατάλληλου λογισμικού. Η σχηματική

αναπαράσταση της λειτουργίας ενός μικροσκοπίου SEM αλλά και η αλληλεπίδραση μεταξύ του δείγματος και της προσπίπτουσας δέσμης ηλεκτρονίων φαίνεται στο Σχ. 2.3.



Σχ. 2.3: α) Αλληλεπίδραση μεταξύ δείγματος και προσπίπτουσας δέσμης ηλεκτρονίων. Β) Απεικόνιση της διάταξης του μικροσκοπίου. Ανατύπωση από [12].

Θα πρέπει να τονιστεί στο σημείο αυτό ότι είναι απαραίτητο τα ηλεκτρόνια της δέσμης να μη συσσωρεύονται στην επιφάνεια, διότι σε μια τέτοια περίπτωση δημιουργούν ηλεκτρικό πεδίο, το οποίο αλλοιώνει την πορεία της προσπίπτουσας δέσμης, την εκπομπή των δευτερογενών ηλεκτρονίων και επομένως την εικόνα του δείγματος. Για το λόγο αυτό θα πρέπει το δείγμα να εμφανίζει μια μικρή αγωγιμότητα ώστε να απομακρύνονται τα ηλεκτρόνια και να αποφεύγεται η συσσώρευση τους. Στην περίπτωση μας, στα οποία μελετώνται ημιαγωγικά δείγματα, δεν υφίσταται τέτοιου είδους πρόβλημα.

Ανάλογα με τον τρόπο λειτουργίας της δέσμης των ηλεκτρονίων, τα ηλεκτρονικά μικροσκόπια διακρίνονται σε:

- A. Θερμιονικής Εκπομπής: Στα μικροσκόπια αυτά η δέσμη ηλεκτρονίων παράγεται με θερμιονική εκπομπή από μεταλλικό νήμα. Στη συνέχεια, τα ηλεκτρόνια επιταχύνονται με τη βοήθεια κάποιου ηλεκτρικού πεδίου προτού πέσουν στην επιφάνεια του δείγματος.
- B. Εκπομπής Πεδίου: Στα μικροσκόπια της κατηγορίας αυτής η εκπομπή των ηλεκτρονίων γίνεται με τη βοήθεια ενός ισχυρού ηλεκτρικού πεδίου. Υπάρχουν δύο διαφορετικοί τρόποι εκπομπής πεδίου, η ψυχρή εκπομπή και η θερμή. Στην ψυχρή

εκπομπή πεδίου τα ηλεκτρόνια εξάγονται από την επιφάνεια μιας ακίδας με φαινόμενο σήραγγας, όταν εφαρμόζουμε ένα ισχυρό ηλεκτρικό πεδίο σε αυτή. Κατά τη θερμή εκπομπή πεδίου, τα ηλεκτρόνια εκπέμπονται από μια θερμαινόμενη (1800 K) ορθά πολωμένη δίοδο Schottky Βολφραμίου – Οξειδίου του Ζιρκονίου. Λόγω της θέρμανσης της διόδου δημιουργείται ηλεκτρικό πεδίο, το οποίο ωθεί τα ηλεκτρόνια εκτός της διόδου δημιουργώντας μια δέσμη ηλεκτρονίων.

Τα μικροσκόπια εκπομπής πεδίου προσφέρουν δέσμες ηλεκτρονίων μεγαλύτερης έντασης και κατευθυντικότητας και επομένως έχουν μεγαλύτερη διακριτική ικανότητα συγκρινόμενα με τα SEM θερμιονικής εκπομπής. Στα πλαίσια της παρούσας ερευνητικής εργασίας, χρησιμοποιήθηκε το ηλεκτρονικό μικροσκόπιο σάρωσης JEOL 7000F (εκπομπής πεδίου). Το μικροσκόπιο JEOL 7000F έχει διακριτική ικανότητα που φτάνει θεωρητικά μέχρι και 1,3nm, επιτρέποντας πολύ μεγάλες μεγεθύνσεις και τη διεξοδική εξέταση της επιφάνειας του δείγματος. Παρά τη μεγάλη διακριτική ικανότητα του οργάνου, η παρατήρηση κβαντικών τελειών με τη βοήθεια του SEM είναι μια σχετικά δύσκολη διαδικασία. Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας, το SEM χρησιμοποιήθηκε κυρίως για τη μελέτη των νανοδομών που δημιουργήθηκαν στην επιφάνεια του δείγματος μετά την κατεργασία του, η οποία απαιτείται για τα πειράματα της μικροφωτοφωταύγειας.

2.2.3. ΗΛΕΚΤΡΟΝΙΚΗ ΜΙΚΡΟΣΚΟΠΙΑ ΔΙΕΛΕΥΣΗΣ (TEM)

Για το χαρακτηρισμό της δομικής ποιότητας των ημιαγωγικών κρυστάλλων χρησιμοποιήθηκε για ένα μέρος των δειγμάτων της εργασίας αυτής, η ηλεκτρονική μικροσκοπία διέλευσης (Transmission Electron Microscopy – TEM)¹⁴. Η λειτουργία ενός μικροσκοπίου TEM βασίζεται στην περίθλαση μιας δέσμης ηλεκτρονίων πολύ υψηλής ενέργειας στα κρυσταλλικά επίπεδα του ημιαγωγικού δείγματος. Καθώς η δέσμη των ηλεκτρονίων προσπίπτει στην επιφάνεια του κρυστάλλου περιθλάται σε διαφορετικές γωνίες. Οι περιθλώμενες δέσμες εστιάζονται στο οπίσθιο εστιακό επίπεδο ενός αντικειμενικού φακού. Από την εικόνα που δημιουργείται και με τη βοήθεια φακών μπορεί να αναπαραχθεί η εικόνα του κρυστάλλου.

Στην περίπτωση που ο κρύσταλλος έχει εξαρμώσεις ή άλλες ατέλειες, τότε τα κρυσταλλικά επίπεδα παραμορφώνονται και η πορεία των περιθλώμενων ακτίνων μεταβάλλεται. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα, στην ανακατασκευασμένη εικόνα του κρυστάλλου,

οι περιοχές των ατελειών να παρουσιάζουν διαφορετική φωτεινότητα σε σχέση με τον τέλειο κρύσταλλο. Με τον τρόπο αυτό η μικροσκοπία TEM δίνει τη δυνατότητα ταυτοποίησης του είδους της ατέλειας και της μέτρησης της πυκνότητας των ατελειών του κρυστάλλου. Η αυξημένη ανάλυση της μικροσκοπίας TEM προσφέρει τη δυνατότητα της μελέτης των παραμέτρων της εξεταζόμενης δομής σε ατομική κλίμακα και καθιστά εφικτό τον προσδιορισμό της κατανομής της τάσης σε όλο τον όγκο του κρυστάλλου.

Για την μελέτη επίταξης QD, τα δείγματα εξετάζονται με τη χρήση TEM σε συνδυασμό με τη χρήση AFM. Το μεγάλο πλεονέκτημα της μικροσκοπίας TEM στις δομές αυτές είναι ότι παρέχει πληροφορίες για τη μορφολογία των QDs, σε δείγματα καλυμμένων τελειών, τα οποία χρησιμοποιούνται στις περισσότερες εφαρμογές. Αν συνδυάσουμε μετρήσεις AFM σχετικά με τη μορφολογία των τελειών πριν την επίταξη του καλύμματος GaAs, με μετρήσεις TEM της ίδιας δομής μετά την επίταξη του καλύμματος του GaAs, μπορούμε να έχουμε μια πληρέστερη εικόνα των διαδικασιών και των φαινομένων που λαμβάνουν χώρα κατά την επίταξη των δομών αυτών. Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας χρησιμοποιήθηκε το μικροσκόπιο που χρησιμοποιήθηκε ήταν το μοντέλο JEOL-2011 TEM, το οποίο λειτουργεί στα 200 kV με σημειακή ανάλυση 0.194 nm.

2.3 ΠΛΗΡΟΦΟΡΙΕΣ ΔΕΙΓΜΑΤΩΝ

Για τις απαιτήσεις της παρούσας εργασίας ένα σύνολο 46 δειγμάτων κβαντικών τελειών InAs αναπτύχθηκαν πάνω σε n^+ υποστρώματα GaAs αναπτυγμένα κατά την κρυσταλλογραφική διεύθυνση (211). Μετά την μεταφορά των υποστρωμάτων αυτών σε θάλαμο υπερυψηλού κενού του MBE, το δείγμα θερμαίνεται σε υψηλή θερμοκρασία, περί τους 580°C, κάτω από ροή As και απομακρύνεται το οξείδιο, το οποίο υπάρχει στην επιφάνεια των δειγμάτων αυτών. Σε όλα τα δείγματα, η πίεση στο εσωτερικό του θαλάμου του MBE καθόλη τη διάρκεια της ανάπτυξης είναι περίπου ίση με $8 \cdot 10^{-8}$ mbar. Η παρατήρηση της διαδικασίας ανάπτυξης γίνεται με τη βοήθεια ενός περιθλασίμετρου ανακλώμενων ηλεκτρονίων υψηλής ενέργειας (Reflection high energy electron diffraction, RHEED), και ο ρυθμός ανάπτυξης καθορίζεται από μετρήσεις του ίδιου οργάνου σε υποστρώματα GaAs, αναπτυγμένων κατά τη (100) κρυσταλλογραφική διεύθυνση.

Τα δείγματα που χρησιμοποιήθηκαν στην παρούσα εργασία αποτελούνταν από μια σειρά στρωμάτων διαφορετικών ημιαγωγικών υλικών. Αμέσως μετά τον καθαρισμό του υποστρώματος, στην επιφάνεια του εναποθέτουμε ένα ενδογενές στρώμα GaAs πάχους 0.5μm, σε θερμοκρασία 620°C, τυπική για την εναπόθεση στρωμάτων GaAs υψηλής κρυσταλλικής ποιότητας. Η εναπόθεση αυτή αποσκοπεί στη βελτίωση της επιφάνειας πάνω στην οποία θα αναπτυχθούν οι κβαντικές τελείες, μια και το στρώμα του GaAs που αναπτύσσεται στο θάλαμο του MBE αναμένεται να έχει καλύτερη κρυσταλλική ποιότητα από το υπόστρωμα. Το στρώμα του GaAs ακολουθείται από ένα υπέρπλεγμα GaAs και AlAs, το οποίο αναπτύσσεται στην ίδια θερμοκρασία των 620°C. Το υπέρπλεγμα αποτελείται από 40 περιόδους, κάθε μια από τις οποίες αποτελείται από ένα στρώμα GaAs πάχους 2.3nm ακολουθούμενο από ένα στρώμα AlAs πάχους 1.5nm. Ο σκοπός της εναπόθεσης του υπερπλέγματος αυτού είναι διπλός:

1. Η εναπόθεση των συνεχόμενων λεπτών στρωμάτων των δύο ημιαγωγικών υλικών τροποποιεί το πεδίο κρυσταλλικής παραμόρφωσης. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα τη μείωση της πυκνότητας των εξαρμώσεων και των λοιπών ατελειών και γενικά τη βελτίωση της κρυσταλλικής ποιότητας του υποστρώματος, στο οποίο αναπτύσσονται οι κβαντικές τελείες.
2. Το υπέρπλεγμα, λόγω του μεγάλου ενεργειακού χάσματος του AlAs, βοηθά στον περιορισμό των φορέων στο τμήμα του δείγματος, που βρίσκεται κοντά στην επιφάνεια.

Μετά την εναπόθεση του υπερπλέγματος, ένα πολύ λεπτό στρώμα GaAs εναποτίθεται στην επιφάνεια του δείγματος σε θερμοκρασία 620°C. Το λεπτό αυτό στρώμα θα αποτελέσει το ψευδοϋπόστρωμα, πάνω στο οποίο θα αναπτυχθούν οι κβαντικές τελείες. Μετά την ανάπτυξη του GaAs η θερμοκρασία μειώνεται και ξεκινά η ανάπτυξη του στρώματος των κβαντικών τελειών InAs. Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας μελετήθηκε η επίδραση:

- I. Της θερμοκρασίας εναπόθεσης του στρώματος InAs.
- II. Του ρυθμού εναπόθεσης του στρώματος InAs.
- III. Του πάχους του στρώματος του InAs

στο μέγεθος, την πυκνότητα και την κρυσταλλική ποιότητα των κβαντικών τελειών. Για το σκοπό αυτό μελετήθηκε η επίταξη του InAs σε διαφορετικές θερμοκρασίες T_G , διαφορετικούς ρυθμούς εναπόθεσης G και για διαφορετικά πάχη εναπόθεσης Θ .

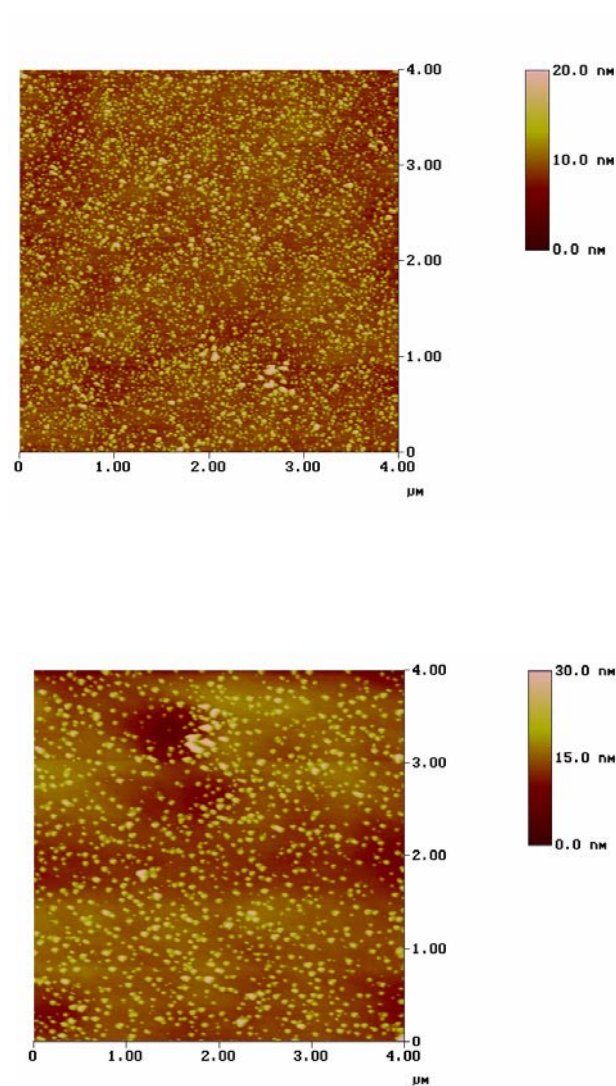
Για κάθε σετ των τριών παραπάνω παραμέτρων T_G , G και Θ κατασκευάστηκαν δύο διαφορετικά δείγματα. Στο πρώτο από αυτά η επίταξη σταματούσε στο στρώμα των τελειών του InAs, προκειμένου αυτό να μείνει ακάλυπτο και να είναι εύκολο να μελετηθούν οι δομικές ιδιότητες των QDs όπως το μέγεθος και η πυκνότητα τους. Στο δεύτερο από τα δείγματα, το στρώμα των κβαντικών τελειών καλύπτεται από ένα στρώμα GaAs πάχους 30nm, το οποίο χρησιμοποιείται για τον περιορισμό των φορέων στην περιοχή των κβαντικών τελειών. Η επίταξη του επιστρώματος GaAs γίνεται στην ίδια θερμοκρασία με το στρώμα των QDs και όχι στη συνήθη θερμοκρασία επίταξης του GaAs (620 °C) για να περιοριστεί η ενδοδιάχυση των ατόμων Ga και In, η οποία γίνεται εντονότερη σε υψηλές θερμοκρασίες και αλλοιώνει τη σύσταση των QDs.

2.4 ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΘΕΡΜΟΚΡΑΣΙΑΣ

Η πρώτη από τις παραμέτρους επίταξης, η οποία μελετήθηκε, ήταν η θερμοκρασία εναπόθεσης του InAs. Για να μελετήσουμε την επιρροή της θερμοκρασίας και να αποκλείσουμε τυχόν επίδραση των άλλων δύο παραμέτρων επίταξης, κατασκευάστηκαν τέσσερα διαφορετικά δείγματα πάχους εναπόθεσης ίσου με 2.5MLs₁₀₀ με ρυθμό ίσο με 0.1MLs/sec σε τέσσερις διαφορετικές θερμοκρασίες 400, 450, 500 και 530°C. Ανεξάρτητα από τη θερμοκρασία επίταξης, και στα τέσσερα δείγματα, στα αρχικά στάδια της εναπόθεσης του InAs η εικόνα του RHEED παραμένει γραμμωτή, ενδεικτικό της διδιάστατης ανάπτυξης του InAs πάνω στο υπόστρωμα GaAs. Μετά από ένα κρίσιμο πάχος εναπόθεσης, του οποίου η τιμή ήταν περίπου σταθερή και ανεξάρτητη από τη θερμοκρασία επίταξης, μια αξιοσημείωτη μεταβολή στην εικόνα του RHEED παρουσιάζεται. Η μεταβολή στην εικόνα του RHEED διαφοροποιείται ανάλογα με τη θερμοκρασία επίταξης.

Για $T_G \leq 500^\circ\text{C}$, η εικόνα αλλάζει από γραμμωτή σε διάστικτη (spotty). Η μεταβολή αυτή της εικόνας του RHEED είναι ενδεικτική της μετάβασης του τρόπου ανάπτυξης από διδιάστατο σε τρισδιάστατο, η οποία συνοδεύεται από το σχηματισμό κβαντικών τελειών InAs, όπως εικονίζεται στο Σχ. 2.4. Στο Σχ. 2.4 φαίνονται οι εικόνες που ελήφθησαν με AFM από την

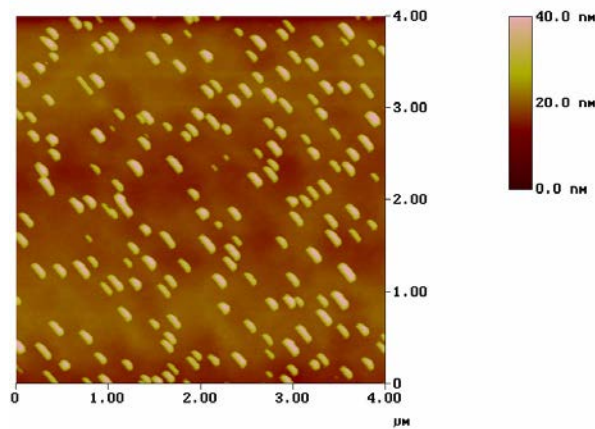
επιφάνεια των δειγμάτων InAs, στις περιπτώσεις που η θερμοκρασία επίταξης είναι 450 και 500°C. Σε όλες τις εικόνες είναι ευδιάκριτη η δημιουργία τρισδιάστατων νανοδομών InAs στην επιφάνεια του GaAs. Όπως φαίνεται από την εικόνα AFM, το ύψος και η πυκνότητα των κβαντικών τελειών διαφοροποιούνται με τη θερμοκρασία. Η εξάρτηση του μεγέθους και της πυκνότητας των αναπτυσσόμενων QDs από τη θερμοκρασία θα συζητηθεί σε επόμενη υποενότητα της διατριβής.



Σχ. 2.4: Εικόνες AFM μη καλυμμένων στρωμάτων (211) InAs QDs, οι οποίες αναπτύσσονται με ρυθμό 0.1 MLs/sec σε θερμοκρασία: α) 450°C, και β) 500°C.

Στην περίπτωση που η θερμοκρασία εναπόθεσης είναι $T_G=530^\circ\text{C}$, παρατηρείται αλλαγή της εικόνας του RHEED από γραμμωτή σε hazy. Η αλλαγή αυτή υποδεικνύει το σχηματισμό ενός

άλλου τύπου νανοδομής, όπως φαίνεται στο Σχ. 2.5, όπου είναι ορατή η ανάπτυξη επιμήκων νανοδομών, οι οποίες καλούνται κβαντικές παύλες (quantum dashes, QDHs). Το τυπικό μήκος των QDHs είναι περίπου 200nm, το πλάτος τους 100nm, ενώ το ύψος τους 20nm.

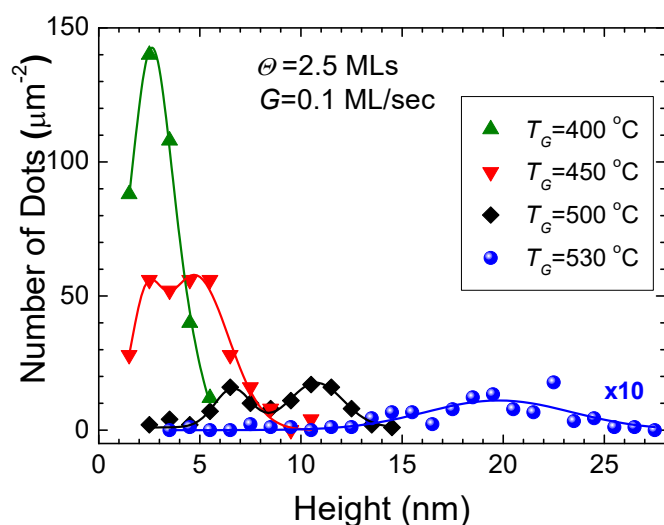


Σχ. 2.5: Εικόνες AFM μη καλυμμένων (211) InAs QDHs, οι οποίες αναπτύσσονται με ρυθμό 0.1 MLs/sec σε θερμοκρασία 530°C. Είναι προφανής η ευθυγράμμιση των QDHs στην επιφάνεια του δείγματος.

Οι διαστάσεις των QDHs είναι αρκετά μεγαλύτερες από τις μέσες διαστάσεις των (211) InAs QDs. Αντίθετα η πυκνότητα τους είναι αρκετά μικρή σε σύγκριση με τα δείγματα κβαντικών τελειών και πλησιάζει το 10^9cm^{-2} . Στα δείγματα των QDHs δεν παρατηρείται ίχνος δημιουργίας μικρότερων νανοδομών στην επιφάνεια. Μια ακόμη ιδιαιτερότητα των QDHs, η οποία θα πρέπει να σχολιαστεί, είναι ότι τα QDHs έχουν την τάση να αναπτύσσονται πλήρως ευθυγραμμισμένα πάνω στην επιφάνεια του δείγματος. Η εναπόθεση σε προτιμητέες θέσεις και διευθύνσεις του υποστρώματος οφείλεται κυρίως στη μικρότερη επιφανειακή ενέργεια των σημείων αυτών, καθώς και στην αυξημένη κινητικότητα των μορίων στις διευθύνσεις αυτές. Επομένως, τα μόρια προτιμούν να εναποτίθενται σε καθορισμένες διευθύνσεις, προκειμένου να ελαχιστοποιείται η ενέργεια του κρυστάλλου. Παρόμοια ευθυγράμμιση κατά μήκος πολυατομικών χασμάτων έχει παρατηρηθεί στην περίπτωση νανοδομών, οι οποίες αναπτύσσονται σε υποστρώματα (211)B GaAs^{15,16} αλλά και σε (111)B GaAs¹⁷.

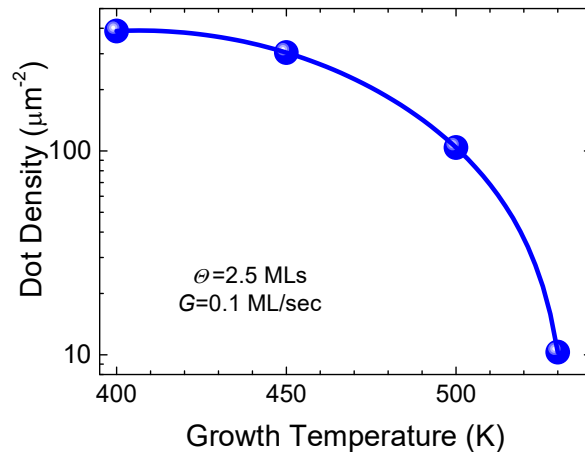
Ας εξετάσουμε τώρα την επίδραση της θερμοκρασίας στη μορφή, το μέγεθος και την πυκνότητα των αναπτυσσόμενων κβαντικών τελειών. Αυξανόμενη της θερμοκρασίας, το μέγεθος των κβαντικών τελειών αυξάνεται. Η τάση αυτή της αύξησης του μεγέθους των κβαντικών τελειών, καθώς αυξάνεται η θερμοκρασία φαίνεται στο Σχ. 2.6, στο οποίο έχουμε παραστήσει την κατανομή ύψους των τελειών σε διάφορες θερμοκρασίες για δεδομένο πάχος

εναπόθεσης $\Theta=2.5\text{MLs}_{100}$ και ρυθμό εναπόθεσης ίσο με $G=0.1\text{ML}_{100}/\text{sec}$. Το μέσο ύψος των τελειών μεταβάλλεται από 2.5nm στους 400°C, σε 4nm στους 450 °C, σε 9nm στους 500 °C και τέλος στα 20nm στους 530°C. Παρόμοια αύξηση παρατηρείται και στις διαστάσεις της βάσης των κβαντικών τελειών, καθώς αυξάνεται η θερμοκρασία, δείχνοντας μια συνολική αύξηση του μεγέθους των κβαντικών τελειών. Παρόμοια αύξηση του μεγέθους των κβαντικών τελειών με τη θερμοκρασία εμφανίζεται και για ρυθμούς εναπόθεσης μικρότερους από 0.1ML₁₀₀/sec.



Σχ. 2.6: Κατανομή του ύψους των QDs και των QDHs για διάφορα δείγματα, στα οποία η εναπόθεση του InAs έγινε σε θερμοκρασία 400 °C, 450 °C, 500 °C and 530 °C. Το πάχος της εναπόθεσης είναι ίσο με $\Theta=2.5\text{ MLs}$, ενώ ο ρυθμός εναπόθεσης είναι ίσος με $G=0.1\text{ ML}/\text{sec}$.

Αντίθετα, η πυκνότητα των κβαντικών τελειών παρουσιάζει αισθητή μείωση καθώς αυξάνεται η θερμοκρασία, όπως φαίνεται στο Σχ. 2.7. Για μια αύξηση της θερμοκρασίας από τους 400°C στους 530°C, η πυκνότητα των κβαντικών τελειών μειώνεται περισσότερο από μια τάξη μεγέθους.



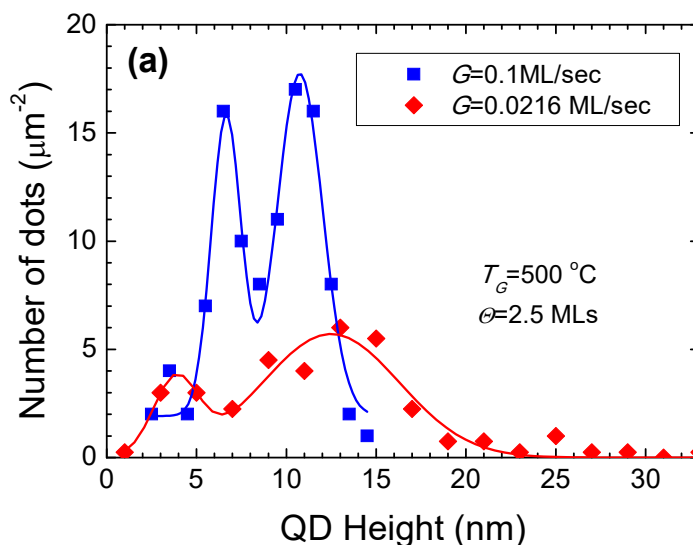
Σχ. 2.7: Μεταβολή της πυκνότητας των τελειών σε σχέση με τη θερμοκρασία επίταξης.

Η εξάρτηση τόσο του μεγέθους των τελειών όσο και της πυκνότητάς τους από τη θερμοκρασία μπορεί να ερμηνευτεί από την αυξημένη κινητικότητα των ατόμων, καθώς αυξάνεται η θερμοκρασία του υποστρώματος. Τα άτομα έχουν, λόγω μεγαλύτερης θερμοκρασίας, αυξημένη επιφανειακή ενέργεια και επομένως μπορούν να διαχυθούν σε μεγαλύτερες αποστάσεις στην επιφάνεια του κρυστάλλου, προκειμένου να φτάσουν σε θέσεις ενεργειακά προτιμητέες. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα η πυκνότητα των δημιουργούμενων νανοδομών να μειώνεται και το μέγεθος τους να αυξάνεται, καθώς αυξάνεται η θερμοκρασία του δείγματος. Μάλιστα, εφόσον οι ενεργειακά προτιμητέες θέσεις για ανάπτυξη βρίσκονται πάνω σε μια συγκεκριμένη διεύθυνση του δείγματος, αναμένουμε ότι οι νανοδομές θα εμφανίζονται περισσότερο ευθυγραμμισμένες σε υψηλές θερμοκρασίες. Αυτό ερμηνεύει και το γεγονός πως οι QDHs που αναπτύσσονται στους 530° C είναι πολύ εντονότερα διαταγμένες σε σύγκριση με τις QDs που αναπτύσσονται σε χαμηλότερες θερμοκρασίες.

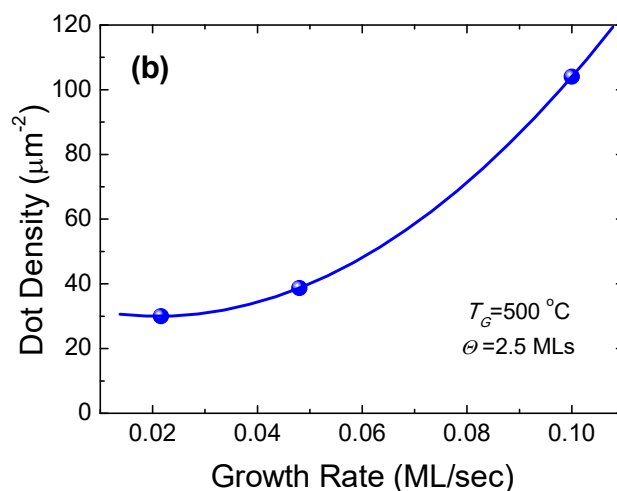
2.5 ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΡΥΘΜΟΥ ΕΝΑΠΟΘΕΣΗΣ

Η δεύτερη από τις παραμέτρους επίταξης που εξετάζουμε για την επίδραση της στο μέγεθος και την πυκνότητα των δημιουργούμενων νανοδομών είναι ο ρυθμός εναπόθεσης. Για το σκοπό αυτό συγκρίνουμε την κατανομή ύψους και την πυκνότητα δύο δειγμάτων κβαντικών τελειών ισοδύναμου πάχους $\Theta=2.5\text{MLs}_{100}$, τα οποία αναπτύσσονται σε

θερμοκρασία $T_G=500^\circ\text{C}$ με δύο διαφορετικούς ρυθμούς εναπόθεσης, $0.1\text{ML}/\text{sec}$ και $0.0216\text{ML}/\text{sec}$. Τα αποτελέσματα των μετρήσεων φαίνονται στο Σχ. 2.8, όπου παριστάνουμε την κατανομή του ύψους των τελειών για τους δύο διαφορετικούς ρυθμούς εναπόθεσης. Παρατηρούμε ότι αύξηση του ρυθμού εναπόθεσης έχει ως αποτέλεσμα τη μετατόπιση της κατανομής προς QDs μεγαλύτερου ύψους. Η αύξηση του μεγέθους των τελειών συνοδεύεται και στην περίπτωση αυτή από μείωση της πυκνότητας των κβαντικών τελειών, καθώς μειώνεται ο ρυθμός εναπόθεσης, όπως φαίνεται στο Σχ. 2.9.



Σχ. 2.8: Κατανομή του ύψους των QD δύο διαφορετικών δειγμάτων QD, τα οποία αναπτύχθηκαν με ρυθμούς ανάπτυξης $0.1\text{ ML}/\text{sec}$ και $0.0216\text{ ML}/\text{sec}$.



Σχ. 2.9: Μεταβολή της συνολικής πυκνότητας των QD σε σχέση με το ρυθμό ανάπτυξης.

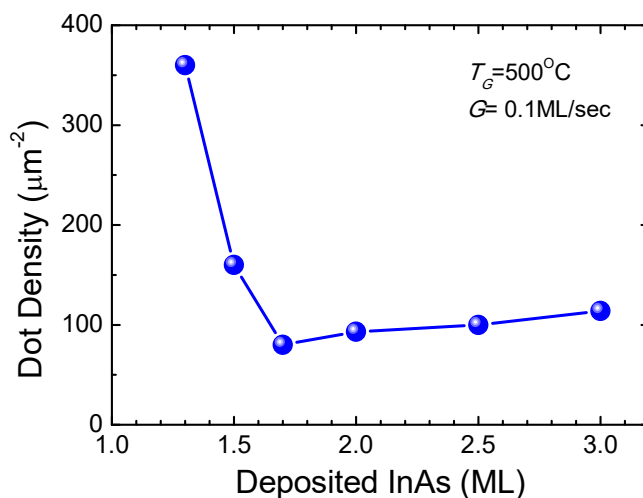
Οι δύο παραπάνω παρατηρήσεις μπορούν να ερμηνευτούν από την αυξημένη ικανότητα διάχυσης των μορίων του In και του As στην επιφάνεια του δείγματος, στην περίπτωση που ο ρυθμός επίταξης είναι μικρός. Όσο μικρότερος είναι ο ρυθμός επίταξης, τόσο λιγότερα άτομα των δύο στοιχείων θα βρίσκονται στην επιφάνεια του δείγματος στην μονάδα του χρόνου. Επομένως τα άτομα έχουν μεγαλύτερη ελευθερία να μετακινηθούν σε πολύ μεγαλύτερες αποστάσεις στην επιφάνεια προτού ενσωματωθούν στον κρύσταλλο, σε σημεία όπου η συνολική επιφανειακή ενέργεια ελαχιστοποιείται. Η διαδικασία αυτή οδηγεί, όπως είδαμε και στην προηγούμενη παράγραφο, στο σχηματισμό κβαντικών τελειών μεγάλου μεγέθους και μικρής πυκνότητας.

2.6 ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΠΑΧΟΥΣ ΕΝΑΠΟΘΕΣΗΣ

Μια ακόμη κρίσιμη παράμετρος, η οποία καθορίζει την μορφολογία και το μέγεθος των κβαντικών τελειών είναι το πάχος Θ του εναποτιθέμενου InAs. Για να μελετήσουμε την εξάρτηση αυτή μια σειρά δειγμάτων κατασκευάστηκε στους 500°C με ρυθμό εναπόθεσης 0.1ML/sec. Στα δείγματα αυτά το πάχος Θ του InAs που αναπτύχθηκε πάνω στο υπόστρωμα του GaAs ποίκιλλε από 0.7MLs₁₀₀ σε 3.0MLs₁₀₀. Σε όσα από τα δείγματα αυτά ανιχνεύθηκαν στην επιφάνεια τρισδιάστατες νανοδομές, το μέγεθος και η πυκνότητα τους μετρήθηκε με τη βοήθεια του AFM. Τα κυριότερα αποτελέσματα των μετρήσεων μας μπορούν να συνοψιστούν στα εξής:

- Στα δείγματα, που το πάχος του εναποτιθέμενου InAs ήταν μικρότερο από 1.3MLs₁₀₀, η επίταξη του InAs πάνω στο GaAs ήταν δισδιάστατη και δεν παρατηρήθηκαν στο AFM ίχνη τρισδιάστατων νανοδομών στην επιφάνεια του GaAs. Το μικρότερο πάχος, στο οποίο παρατηρήθηκε τρισδιάστατη ανάπτυξη του InAs και σχηματισμός τελειών, ήταν τα 1.3MLs₁₀₀. Η παρατήρηση αυτή μας προσφέρει μια πρώτη εκτίμηση για το κρίσιμο πάχος εναπόθεσης αλλά και για το πάχος του wetting layer.
- Για πάχη μεγαλύτερα του 1.3MLs₁₀₀, η πυκνότητα των τελειών εμφανίζει μια μη μονοτονική συμπεριφορά με το πάχος του εναποτιθέμενου InAs. Η μεταβολή της πυκνότητας των τελειών σε συνάρτηση με το πάχος εναπόθεσης φαίνεται στο Σχ. 2.10. Για πάχος $\Theta=1.3\text{MLs}_{100}$, στην επιφάνεια του δείγματος αναπτύσσονται μικρές τελείες με μέσο ύψος 2nm και υψηλή πυκνότητα της τάξης των $3.7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Καθώς, όμως, το

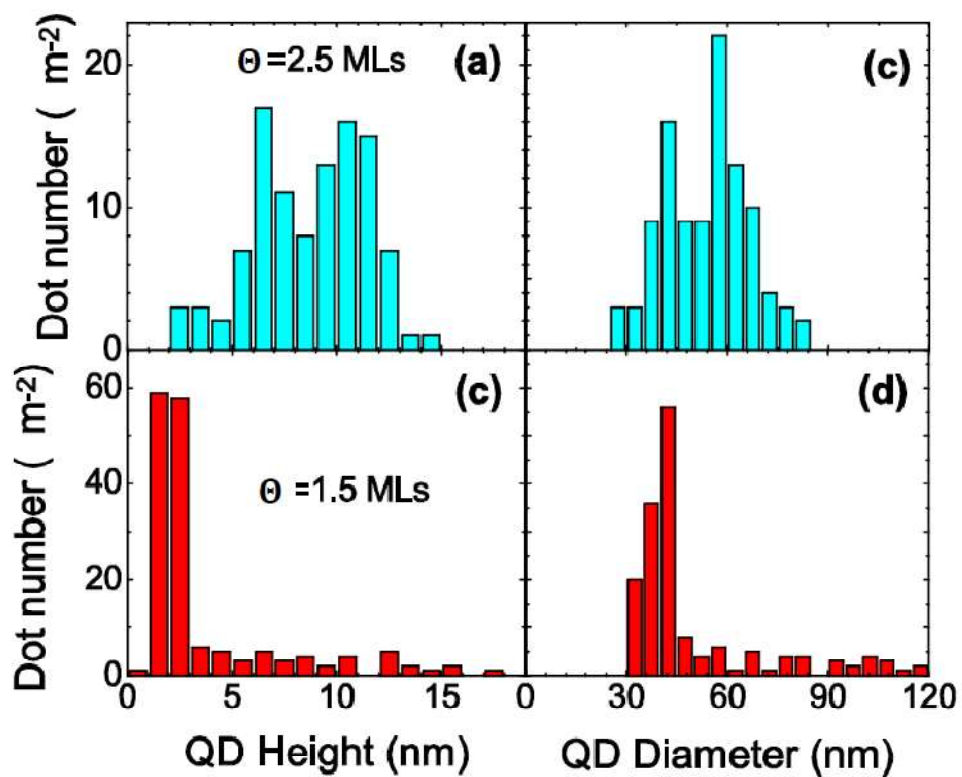
πάχος Θ αυξάνεται και μέχρι τη τιμή $\Theta=1.7\text{MLs}_{100}$, η πυκνότητα των κβαντικών τελειών μειώνεται κατά τέσσερις περίπου φορές στη τιμή των 10^{10}cm^{-2} .



Σχ. 2.10: Μετρούμενη πυκνότητα QD για διάφορες τιμές του πάχους εναπόθεσης του InAs, από 1.3MLs έως 3.0MLs. Σε όλα τα δείγματα η θερμοκρασία εναπόθεσης είναι $T_G = 500^\circ\text{C}$ και ο ρυθμός εναπόθεσης είναι ίσος με $G = 0.1\text{MLs/sec}$.

Τέλος για πάχη $\Theta > 1.7\text{MLs}_{100}$, η πυκνότητα παραμένει περίπου σταθερή καθώς αυξάνεται το πάχος του δείγματος. Αυτή η ανεξαρτησία της πυκνότητας των τελειών από το πάχος εναπόθεσης δείχνει ότι όλα τα επιπλέον μόρια των στοιχείων, που προστίθενται για πάχη μεγαλύτερα του 1.7MLs_{100} , ενσωματώνονται σε ήδη υπάρχουσες τελείες και δεν χρησιμοποιούνται για τη δημιουργία νέων νανοδομών. Η αύξηση του μεγέθους των ήδη υπάρχουσών τελειών εις βάρος της δημιουργίας νέων οφείλεται κυρίως στο γεγονός ότι σε κβαντικές τελείες μεγάλου μεγέθους, το υλικό της τελείας χαλαρώνει δημιουργώντας εξαρμώσεις και αποκτά σταδιακά τη δική του πλεγματική σταθερά. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα να μειώνεται η τάση και η ενέργεια λόγω παραμόρφωσης. Επομένως οι τελείες μέσου και μεγάλου μεγέθους αποτελούν σημεία μειωμένης επιφανειακής ενέργειας και αποτελούν ιδανικά σημεία για την ενσωμάτωση των νέων ατόμων που προσπίπτουν στην επιφάνεια του δείγματος. Αυτός είναι και ο λόγος για τον οποίο τα νεοπροστιθέμενα άτομα ενσωματώνονται σε μεγάλες τελείες, οδηγώντας στην αύξηση του μεγέθους τους.

- Για πάχη εναπόθεσης ανάμεσα στα 1.3 και τα 1.7MLs, η μείωση της πυκνότητας συνοδεύεται από αύξηση του μεγέθους των τελειών. Η αύξηση του μεγέθους είναι αποτέλεσμα κυρίως της συγχώνευσης γειτονικών τελειών. Καθώς το πάχος εναπόθεσης ξεπερνά τα 1.7MLs, οι κβαντικές τελείες συνεχίζουν να αυξάνονται σε μέγεθος, μια και αποτελούν σημεία ενσωμάτωσης στον κρύσταλλο και έλκουν τα άτομα, που προσπίπτουν στην επιφάνεια του δείγματος. Η διαδικασία της ενσωμάτωσης προκαλεί μια μη συμμετρική αύξηση του μεγέθους των τελειών και οδηγεί σε διεύρυνση της κατανομής του μεγέθους των τελειών, όπως φαίνεται στο Σχ. 2.11, για δύο διαφορετικές τιμές του Θ

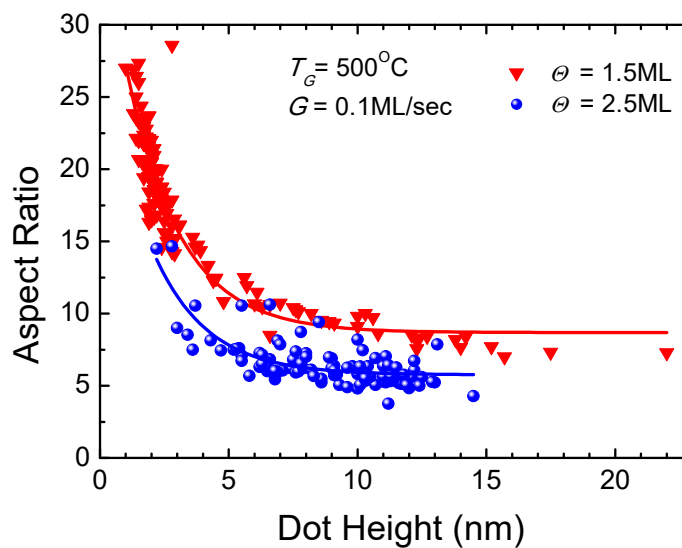


Σχ. 2.11: a), c) Ιστογράμματα του ύψους των QDs για δύο δείγματα διαφορετικού πάχους έναπόθεσης, του InAs, 2.5MLs για το a) και 1.5MLs για το c). Ο ρυθμός εναπόθεσης και στις δύο περιπτώσεις είναι ίσος με $G = 0.1$ ML/sec και η θερμοκρασία εναπόθεσης ίση με $T_G = 500^\circ\text{C}$. b), d) Ιστογράμματα της διαμέτρου των QDs για τα δύο παραπάνω δείγματα. Ανατύπωση από [18].

Όπως εικονίζεται στο Σχ. 2.11, ενώ για $\Theta = 1.5\text{MLs}_{100}$ η κατανομή ύψους και διαμέτρου των τελειών είναι στενή, η κατανομή διευρύνεται έντονα για $\Theta = 2.5\text{MLs}_{100}$. Η διεύρυνση της κατανομής των μεγεθών των τελειών συνοδεύεται και από αύξηση του μέσου ύψους και

διαμέτρου. Για παράδειγμα, ενώ για $\Theta=1.5\text{MLs}_{100}$ η πλειονότητα των τελειών έχει μέσο ύψος περίπου 3nm, ενώ για $\Theta=2.5\text{MLs}_{100}$ το μέσο ύψος αυξάνεται στα 9nm.

Επιπρόσθετη πληροφορία για το σχήμα των (211) B InAs QDs εξάγεται και από τον προσδιορισμό του λόγου των πλευρικών διαστάσεων της τελείας προς το ύψος (aspect ratio – AR), όπως προκύπτουν από τη μέτρηση των διαστάσεων των τελειών με τη βοήθεια του AFM. Στο Σχ. 2.12 φαίνεται η μεταβολή του AR σε συνάρτηση με το ύψος της τελείας για δύο δείγματα InAs QDs, τα οποία αναπτύσσονται σε θερμοκρασία $T_G=500^\circ\text{C}$ και με ρυθμό ανάπτυξης $G=0.1\text{ML}/\text{sec}$ για δύο πάχη εναπόθεσης $\Theta=1.5\text{MLs}$ και 2.5MLs . Σε κάθε περίπτωση παρατηρείται μια ξεκάθαρη και έντονη αύξηση του AR των τελειών καθώς μειώνεται το ύψος τους. Για μικρού μεγέθους τελείες με ύψος μικρότερο των 3nm ο λόγος αυτός μπορεί εύκολα να ξεπεράσει το 10. Η εξάρτηση του AR από το ύψος της τελείας είναι συνεπής με μικροσκοπικές θεωρητικές αναλύσεις, οι οποίες αποδεικνύουν ότι καθώς το μέγεθος της QD αυξάνεται, το σχήμα της τελείας εξελίσσεται από πεταλοειδές (με μεγάλο AR), σε σχήμα συντετμημένης πυραμίδας και τέλος σε σχήμα καθαρής πυραμίδας¹⁹.

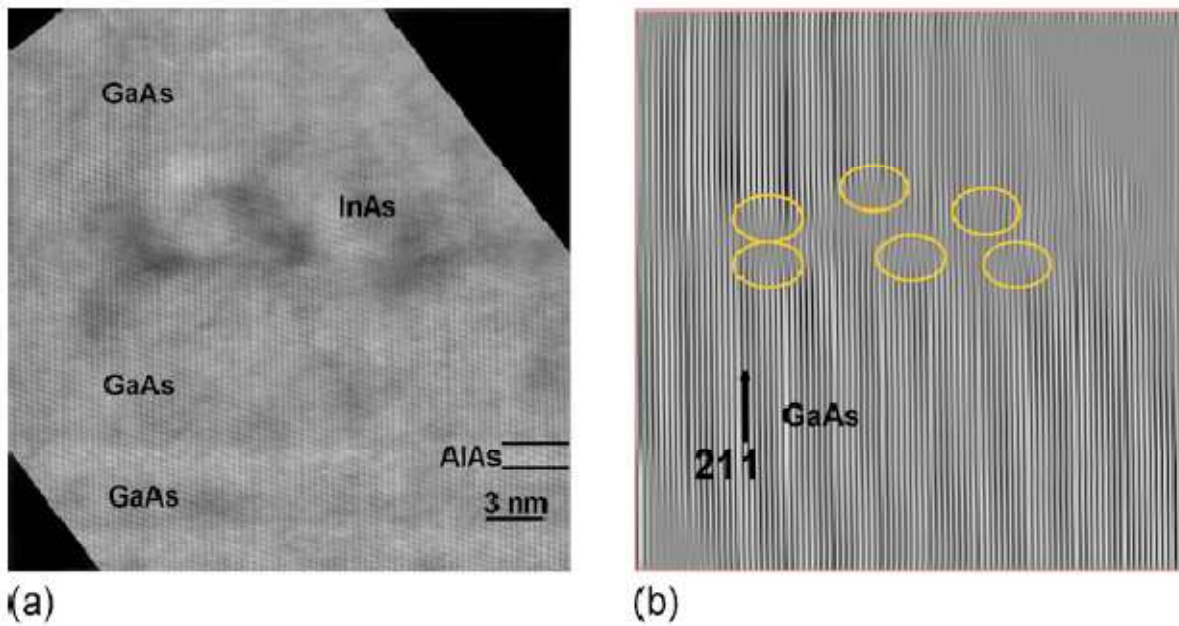


Σχ. 2.12: Μεταβολή του λόγου πλευρικών διαστάσεων – ύψους AR σε σχέση με το ύψος των QDs για δύο δείγματα που αναπτύχθηκαν σε θερμοκρασία ίση με $T_G = 500^\circ\text{C}$ και με ρυθμό εναπόθεσης ίσο με $G = 0.1\text{ML}/\text{sec}$. Το πάχος εναπόθεσης είναι 1.5MLs και 2.5MLs. Ανατύπωση από [18].

2.7. ΣΥΣΤΑΣΗ – ΜΟΡΦΟΛΟΓΙΑ ΚΒΑΝΤΙΚΩΝ ΤΕΛΕΙΩΝ

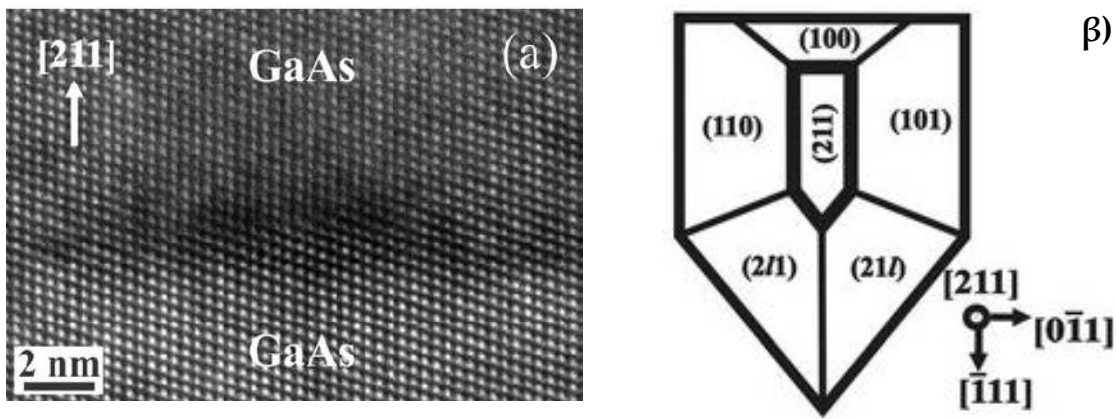
Η μικροσκοπία AFM δίνει ξεκάθαρη εικόνα για το μέγεθος και τη μορφολογία, δεν μπορεί, όμως, να χρησιμοποιηθεί στη μελέτη QDs που επικαλύπτονται από στρώμα GaAs και χρησιμοποιούνται σε μετρήσεις PL και μ-PL. Για να εξεταστούν οι επιπτώσεις της προσθήκης του στρώματος του GaAs στην μορφολογία των (211)B InAs QDs, προσφεύγουμε σε μετρήσεις υψηλής ανάλυσης μικροσκοπίας μεταβιβαζόμενων ηλεκτρονίων (High Resolution Transmission Electron Microscope – HRTEM). Οι μετρήσεις HRTEM πραγματοποιήθηκαν στο Εργαστήριο Ηλεκτρονικής Μικροσκοπίας και Δομικού Χαρακτηρισμού του Τμήματος Φυσικής του Αριστοτελείου Πανεπιστημίου, με τη βοήθεια ενός ηλεκτρονικού μικροσκοπίου Jeol 2011, το οποίο λειτουργεί με τάση 200kV²⁰. Η προετοιμασία των δειγμάτων περιλαμβάνει την απόξεση τους, τη λείανση τους και στη συνέχεια την κατεργασία τους με δέσμη ιόντων Ar⁺, πριν από τη λήψη των εικόνων. Οι εικόνες που λαμβάνονται με το μικροσκόπιο ψηφιοποιούνται σε ανάλυση 4000 dpi, χρησιμοποιώντας σαρωτή Nikon SUPER COOLSCAN 9000, και στη συνέχεια επεξεργάζονται με τη βοήθεια κατάλληλου λογισμικού. Με χρήση της μεθόδου της Ανάλυσης Γεωμετρικής Φάσης (GPA) προσδιορίζεται η κατανομή της τάσης σε ένα μεγάλο αριθμό InAs QDs²¹. Μέσω της κατανομής της τάσης, που προσδιορίζεται μέσω της GPA, μπορούμε να προσδιορίσουμε τη μεταβολή της σύστασης σε όλο το χώρο της QD.

Το συμπέρασμα που προκύπτει από τη μελέτη των εικόνων που λαμβάνονται με το HRTEM κατά μήκος των διευθύνσεων προβολής $[0\ 1\ \bar{1}]$ και $[\bar{1}\ 1\ 1]$ είναι ότι οι QDs τείνουν να αποκτήσουν ένα ανισοτροπικό πυραμιδικό σχήμα, επιμηκυμένο κατά μήκος της $[\bar{1}\ 1\ 1]$ διεύθυνσης. Ο λόγος των πλευρικών διαστάσεων των τελειών εκτιμάται σε 1.3 έως 1.4. Στο Σχ. 2.13 α) φαίνεται η εικόνα μιας (211)B InAs QD μεγάλου μεγέθους με ύψος 6nm. Η τελεία έχει σχήμα κολουρης πυραμίδας, σε συμφωνία με τη μορφή των ακάλυπτων τελειών InAs, οι οποίες αναπτύσσονται κάτω από τις ίδιες συνθήκες. Οι δακτύλιοι Moire, οι οποίοι είναι ορατοί στο Σχ. 2.13α), υποδηλώνουν ότι η τελεία και το GaAs έχουν διαφορετικές πλεγματικές σταθερές. Περαιτέρω ένδειξη της χαλάρωσης του υλικού της τελείας δίνεται στο Σχ. 2.13β). Στο Σχ. 2.13β) αυτό παρουσιάζεται η εικόνα των τελειών του Σχ. 2.13α) μετά από φιλτράρισμα Fourier, χρησιμοποιώντας χωρικές συχνότητες. Η διαδικασία επιτρέπει τον υπολογισμό της πυκνότητας των εξαρμώσεων, οι οποίες εμφανίζονται στο Σχ. 2.13β) ως τα σημεία, στα οποία τερματίζονται τα κρυσταλλικά ημιπίπεδα²². Θα πρέπει να σημειωθεί ότι εξαρμώσεις, λόγω διαφοράς στις πλεγματικές σταθερές τελείας και GaAs, δεν εμφανίζονται σε τελείες μικρού μεγέθους.



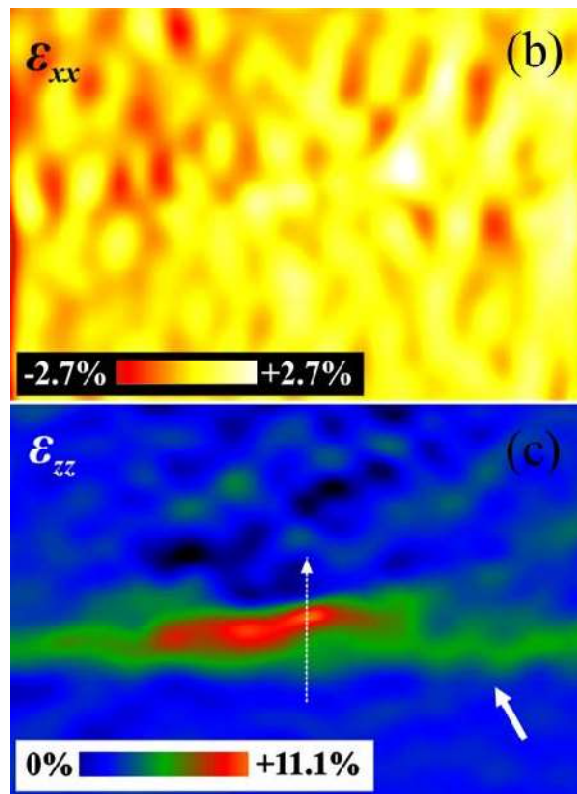
Σχ. 2.13: α) Εικόνα HRTEM από QD μεγάλου μεγέθους, με ύψος περίπου 6nm κατά μήκος της διεύθυνσης $[0 \ 1 \ \bar{1}]$. β) Το ίδιο σχήμα μετά από φιλτράρισμα Fourier, το οποίο καταδεικνύει την παρουσία εξαρμώσεων στο χώρο των τελειών. Ανατύπωση από [18].

Στο Σχ. 2.14 α) φαίνεται η εικόνα μιας (211)B InAs QD μικρού μεγέθους, η οποία λαμβάνεται με τη βοήθεια HRTEM κατά μήκος της $[0 \ 1 \ \bar{1}]$ διεύθυνσης. Η τελεία έχει σχήμα κολουρης πυραμίδας, σε συμφωνία με τις μετρήσεις AFM, ενώ το ύψος της εκτιμάται ίσο περίπου με 2-3nm, και οι πλευρικές της διαστάσεις ίσες με 8-10nm. Ένα τρισδιάστατο μοντέλο του σχήματος μιας (211)B InAs QD, φαίνεται στο Σχ. 2.14 β), στο οποίο φαίνονται οι κρυσταλλογραφικές διευθύνσεις των εδρών της πυραμιδικής τελείας. Το πάχος του διδιάστατου WL είναι μικρότερο από 1nm. Στο εσωτερικό της τελείας αλλά και στις διεπιφάνειες με το στρώμα του GaAs δεν παρατηρούνται δομικές ατέλειες, καταδεικνύοντας την απουσία πλαστικής χαλάρωσης. Οι InAs QDs αναπτύσσονται ψευδομορφικά στο υπόστρωμα του GaAs, έχοντας πλεγματική σταθερά ίση με την πλεγματική σταθερά του GaAs.



Σχ. 2.14: Α) Εικόνα HRTEM κατά μήκος της διεύθυνσης $[0 \ 1 \ \bar{1}]$, το οποίο αναδεικνύει το σχηματισμό InAs QD πυραμιδικού σχήματος εμβαπτισμένης σε (211) GaAs. Β) Κάτοψη του 3D μοντέλου του σχήματος μιας (211) InAs QD. Η τιμή του δείκτη l των πλευρικών επιφανειών (21l) και (2l1) είναι ίσος με 3. Ανατύπωση από [20].

Μετρήσεις GPA πραγματοποιήθηκαν τόσο κατά μήκος του επιπέδου επίταξης, όσο και εκτός αυτού. Για την καλύτερη ανάλυση των μετρήσεων στον γρήγορο μετασχηματισμό Fourier της εικόνας του HRTEM χρησιμοποιήθηκε μια Γκαουσιανή μάσκα $g/3$ όπου g το μέγεθος του διανύσματος του αντίστροφου χώρου. Η χρήση της μάσκας αυτής επέτρεψε χωρική ανάλυση της τάξης του 1nm σε πραγματικές διαστάσεις. Τα αποτελέσματα των μετρήσεων φαίνονται στο Σχ. 2.15 α), όπου απεικονίζεται η κατανομή της επίπεδης τάσης ϵ_{xx} στην διεπιφάνεια των δύο υλικών. Σε όλες τις μετρήσεις το στρώμα του GaAs χρησιμοποιήθηκε ως υπόστρωμα αναφοράς. Όπως προκύπτει, η μέση τιμή της ϵ_{xx} πάνω στην διεπιφάνεια είναι ίση με 0, αναδεικνύοντας την ανάπτυξη των QDs υπό ελαστική τάση και με πλήρη απουσία ενδοεπιφανειακών ατελειών. Κάποιες μικρές αποκλίσεις από τη τιμή $\epsilon_{xx} = 0$ οφείλονται σε διακυμάνσεις του πάχους του δείγματος στην περιοχή που εξετάστηκε και μπορούν να αγνοηθούν. Αντίθετα, κατά μήκος του άξονα επίταξης παρατηρείται μια αξιοσημείωτη μεταβολή της μετρούμενης με GPA τάσης. Όπως απεικονίζεται στο Σχ. 2.15 β), υπάρχει μια βαθμιαία μεταβολή της τάσης, με το ϵ_{zz} να αυξάνεται από 0.042 (± 0.001) στη διεπιφάνεια InAs/GaAs σε 0.111 (± 0.001) στην κορυφή της τελείας. Στη συνέχεια η τιμή του ϵ_{zz} μηδενίζεται απότομα στο χώρο πάνω από την τελεία. Η τάση αύξησης του ϵ_{zz} κατά τον άξονα της τελείας παρουσιάζεται σε όλες τις τελείες του δείγματος που εξετάστηκαν, με διαφορετικές τιμές ϵ_{zz} . Όσον αφορά το WL, η τιμή του ϵ_{zz} αυξάνεται από 0 στην διεπιφάνεια με το GaAs, και φτάνει στη μέγιστη τιμή του 0.042 (± 0.001), υποδηλώνοντας ανάμειξη των υλικών.



Σχ. 2.15: A) Μεταβολή της τάσης, που υπολογίζεται με τη μέθοδο GPA, κατά μήκος του επιπέδου επίταξης. Οι μετρήσεις αναδεικνύουν μια μέση τιμή $\epsilon_{xx} = 0$, κατά μήκος του επιπέδου επίταξης. B) Μεταβολή της τάσης ϵ_{zz} , που υπολογίζεται με τη μέθοδο GPA, κατά τη διεύθυνση επίταξης. Γίνεται εμφανής η αύξηση του ϵ_{zz} καθώς προχωράμε από τη βάση προς την κορυφή της πυραμιδικής τελείας. Το βέλος υποδεικνύει το σημείο, στο οποίο σχηματίζεται το διδιάστατο WL. Ανατύπωση από [23].

Προκειμένου να τεκμηριώσουμε τις τιμές της τάσης που εξάγονται από τη GPA, οι QDs μελετώνται στα πλαίσια του αναπτύγματος Hammerschmidt²⁴. Στα πλαίσια του αναπτύγματος αυτού, μπορούμε μέσω της θεωρίας της συνεχούς ελαστικότητας να καθορίσουμε τον λόγο του Poisson και να υπολογίσουμε το τανυστή της τάσης κατά μήκος της διεύθυνσης [2 1 1] του κρυσταλλικού πλέγματος. Ακολούθως υπολογίζεται η ελαστική απόκριση του υλικού του InAs στο επίπεδο του υποστρώματος και κάθετα σε αυτό, και μέσω αυτής εξάγεται το στοιχείο της τάσης $\epsilon_{zz}=0.1201$. Εφαρμόζοντας το Νόμο του Vegard στις τιμές του ϵ_{zz} , που έχουν εξαχθεί από τις μετρήσεις του GPA, μπορούμε να προσδιορίσουμε το ποσοστό του In στο χώρο της τελείας. Η τιμή αυτή αντιστοιχεί σε ποσοστό In, το οποίο αυξάνεται προοδευτικά από 0.35 στη βάση της τελείας σε 0.92 στην κορυφή της, δείχνοντας ξεκάθαρα ότι υπάρχει μια ανάμειξη ατόμων In και Ga στο χώρο της τελείας, κυρίως κοντά στη βάση της. Η ανάμειξη αυτή δεν είναι ξεκάθαρο αν πραγματοποιείται κατά την επίταξη

του InAs στο υπόστρωμα του GaAs ή κατά την επικάλυψη των τελειών με το επίστρωμα του GaAs. Παρόμοια, με τη βοήθεια της μεθόδου GPA, το ποσοστό του In στο χώρο του WL φαίνεται να αυξάνεται από 0 σε 0.35 (± 0.01) υποδηλώνοντας ότι πρόκειται μάλλον για στρώμα $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ παρά για InAs. Η μεταβολή του ποσοστού του In στο χώρο των QDs μελετήθηκε για διαφορετικές τελείες με GPA. Σε όλες τις τελείες, το ποσοστό του In αυξάνοταν καθώς ανεβαίνουμε από τη βάση της τελείας στην κορυφή της. Το ελάχιστο ποσοστό In στη βάση της πυραμίδας εκτιμήθηκε ίσο με 0.20 (± 0.01), ενώ το μέγιστο ποσοστό μετρήθηκε ίσο με 0.92 (± 0.01) στην κορυφή. Θα πρέπει να σημειωθεί ότι η μέτρηση του ϵ_{zz} , και επομένως του ποσοστού του In στις QDs εμπεριέχει σφάλμα, λόγω της επίδρασης του περιβάλλοντος GaAs στις μετρήσεις GPA. Για να ελαχιστοποιηθεί το σφάλμα αυτό, οι μετρήσεις διεξάγονται σε πολύ λεπτές περιοχές του δείγματος, που το πάχος τους συγκρίνεται με το ύψος των QDs. Παρόλα αυτά η ύπαρξη σφάλματος στη μέτρηση του ποσοστού του In είναι πιθανή.

2.8 ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ

Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας, προχωρήσαμε σε μια συστηματική μελέτη της επίδρασης διαφόρων παραγόντων της επίταξης στις δομικές και μορφολογικές ιδιότητες των τρισδιάστατων νανοδομών InAs, οι οποίες αναπτύσσονται σε υποστρώματα (211)B GaAs. Ανάλογα με τις συνθήκες επίταξης, οι νανοδομές του InAs μπορούν να πάρουν τη μορφή κβαντικών τελειών ή παυλών με ύψος που ποικίλλει από 2nm έως 20nm και πυκνότητες που μεταβάλλονται από 10^8 έως 10^{10} cm^{-2} . Οι νανοδομές αυτές εξετάστηκαν με τη χρήση HRTEM. Οι μετρήσεις TEM των δειγμάτων ανέδειξαν την πλήρη απουσία δομικών ατελειών σε τελείες μικρού ύψους, σε αντίθεση με τις τελείες μεγάλου ύψους, οι οποίες περιέχουν εξαρμώσεις. Τέλος, οι μετρήσεις HRTEM επέτρεψαν τον προσδιορισμό του ποσοστού του In στο χώρο των QDs. Οι μετρήσεις ανέδειξαν ότι το ποσοστό του In μεταβάλλεται από 30% στη βάση της τελειών σε 90% στην πάνω επιφάνεια των τελειών.

BIBΛΙΟΓΡΑΦΙΚΕΣ ΑΝΑΦΟΡΕΣ

[1] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Potschke, U.W. Pohl and D. Bimberg, *Phys. Rev. Lett.* 95, 257402 (2005)

- [2] M. Bayer, T. Gutbrod, A. Forchel, V.D. Kulakovskii, A. Gorbunov, M. Michel, R. Steffen and K.H. Wang, *Phys. Rev. B* 58, 4740 (1998)
- [3] S. Rodt, R. Heitz, A. Schliwa, R.L. Sellin, F. Guffarth, and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* 68, 035331 (2003)
- [4] L. Landin, M.S. Miller, M. Pistol, C.E. Pryor and L. Samuelson, *Science* 280, 282 (1998)
- [5] M.E. Ware, A.S. Bracker, E. Stinnaf, D. Gammon, D. Gershoni and V.L. Korenev, *Physica E* 13, 55 (2005)
- [6] B. Urbaszek, R.J. Warburton, K. Karrai, B.D. Gerardot, P. Petroff and J. Garcia, *Phys. Rev. Lett* 90, 247403 (2003)
- [7] G.A. Narvaez, G. Bester and A. Zunger, *Phys. Rev. B* 72, 245318 (2005)
- [8] I.A. Akimov, A. Hundt, T. Flissikowski and F. Henneberger, *Appl. Phys. Lett.* 81, 4730 (2002)
- [9] O. Stier, M. Grundmann and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* 59, 5688 (1999)
- [10] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber and E. Weibel, *Phys. Rev. Lett* 49, 57 (1982)
- [11] G. Binnig, C.F. Quatt, C. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* 56, 30 (1986)
- [12] Γ. Τσιακατούρας, Διδακτορική Διατριβή, Τμήμα Φυσικής, Πανεπιστήμιο Κρήτης (2012)
- [13] B.E. P. Beeston, R.W. Horne, R. Markham, *Electron Diffraction and Optical Diffraction Techniques*, edited by A.M. Glauert, North – Holland Publ. Co., Appendix 2 (1972)
- [14] M. Knoll and E. Ruska, *Zeitschrift fur Physik* 78, 318 (1932)
- [15] J-S Lee, S. Sugou, Y. Masumoto, *Journal of Crystal Growth* 205, 467 (1999).
- [16] S. P. Guo, H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura, Y. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* 70, 2738 (1997)
- [17] G. E. Dialynas, A. Pantazis, Z. Hatzopoulos, M. Androulidaki, K. Tsagaraki, G. Konstantinidis, C. Xenogianni, E. Trichas, S. Tsintzos, P. G. Savvidis, N. T. Pelekanos, *Int. Journal of Nanotechnology* 6, 124 (2009).
- [18] G. E. Dialynas, S. Kalliakos, C. Xenogianni, M. Androulidaki, T. Kehagias, P. Komninou, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, and N. T. Pelekanos, *J. Appl. Phys.* **108**, 103525 (2010)

- [19] I. Daruka, J. Tersoff, A.-L. Barabasi, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2753 (1999).
- [20] N. Florini, G. P. Dimitrakopoulos, J. Kioseoglou, S. Germanis, C. Katsidis, Z. Hatzopoulos, N. T. Pelekanos, and Th. Kehagias, *Journal of Applied Physics* 119, 034304 (2016)
- [21] M. J. Hytch, E. Snoeck, and R. Kilaas, *Ultramicroscopy* 74, 131 (1998).
- [22] T. Hammerschmidt, P. Kratzer, and M. Schffler, *Phys. Rev. B* 75, 1 (2007).
- [23] S. Germanis, C. Katsidis, S. Tsintzos, A. Stavrinidis, G. Konstantinidis, N. Florini, J. Kioseoglou, G.P. Dimitrakopoulos, Th. Kehagias, Z. Hatzopoulos, and N.T. Pelekanos, *Phys. Rev. Applied* **6**, 014004 (2016)
- [24] J. Kioseoglou, G.P. Dimitrakopoulos, P. Komninou, T. Karakostas and E.C. Aifantis, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41**, 035408 (2008).

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3: ΟΠΤΙΚΕΣ ΙΔΙΟΤΗΤΕΣ ΚΒΑΝΤΙΚΩΝ ΤΕΛΕΙΩΝ

3.1 ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Όπως αναφέρθηκε σε προηγούμενες ενότητες, οι κβαντικές τελείες είναι ημιαγωγικές δομές σε νανοκλίμακα, οι οποίες παρουσιάζουν συμπεριφορά παρόμοια με των ατόμων, εξαιτίας του τρισδιάστατου περιορισμού των φορέων. Ένας συνήθης τρόπος για να παρατηρηθούν οι μοναδικές ιδιότητες του κβαντικού περιορισμού, είναι μέσω πειραμάτων οπτικής διέγερσης. Τα πειράματα αυτά συνίστανται στο να χρησιμοποιηθεί πηγή φωτός ώστε να διεγείρουμε ηλεκτρόνια από τη ζώνη σθένους στη ζώνη αγωγιμότητας του υλικού που περιβάλλει την τελεία. Τα ηλεκτρόνια και οι οπές που δημιουργούνται με τον τρόπο αυτό, δεσμεύονται στο χώρο της τελείας και καταλήγουν στις θεμελιώδεις καταστάσεις τους, όπου και επανασυνδέονται. Ανάλογα με την ένταση της διέγερσης, ο αριθμός των φορέων που διεγείρεται και συσσωρεύεται στο χώρο της τελείας είναι διαφορετικός. Με τον τρόπο αυτό μπορεί να παρατηρηθεί διαφορετικός αριθμός οπτικών μεταβάσεων. Η πιο γνωστή από τις μεθόδους διέγερσης των δειγμάτων QDs είναι η μέθοδος της φωτοφωταύγειας (PL). Στο κεφάλαιο αυτό δίνεται μια σύνοψη της πειραματικής αυτής τεχνικής καθώς και τα σημαντικότερα αποτελέσματα της στη μελέτη των (211)B InAs QDs. Περιγράφονται τα κυριότερα στοιχεία της χρησιμοποιούμενης πειραματικής διάταξης, ενώ παρουσιάζονται οι μορφές του φάσματος PL που εκπέμπεται από δείγματα InAs QDs, ανάλογα με τις συνθήκες επίταξης. Εξετάζεται επίσης η επίπτωση της έντασης διέγερσης στη μορφή των φασμάτων PL, ενώ εξετάζονται το μέγεθος και η μορφολογία των οπτικά ενεργών τελειών.

3.2. ΜΕΘΟΔΟΣ ΦΩΤΟΦΩΤΑΥΓΕΙΑΣ

Για τη μελέτη των οπτικών ιδιοτήτων των δειγμάτων (211)B InAs QDs χρησιμοποιήθηκαν δύο πειραματικές διατάξεις φωτοφωταύγειας:

- A. Η διάταξη της συνήθους φωτοφωταύγειας (photoluminescence –PL)
- B. Η διάταξη της μικροφωτοφωταύγειας (microphotoluminescence –μPL)

Η φασματοσκοπία φωτοφωταύγειας είναι μια μη καταστροφική μέθοδος χαρακτηρισμού των ημιαγωγών. Φωτοφωταύγεια είναι η αυθόρμητη εκπομπή φωτός από έναν ημιαγωγό και γενικά από ένα υλικό, όταν αυτό διεγείρεται οπτικά, δηλαδή όταν τα ηλεκτρόνια του

απορροφούν ακτινοβολία ενέργειας μεγαλύτερης από το ενεργειακό χάσμα του ημιαγωγού. Τα ηλεκτρόνια σε αυτή την περίπτωση μεταβαίνουν από τη ζώνη σθένους σε ελεύθερες καταστάσεις στη ζώνη αγωγιμότητας, δημιουργώντας οπές στις καταστάσεις της ζώνης σθένους. Οι καταστάσεις της ζώνης αγωγιμότητας είναι ενεργειακά ασταθείς και οι φορείς παραμένουν σε αυτές για πολύ μικρό χρονικό διάστημα της τάξης των 0.1-1nsec. Στη συνέχεια οι φορείς χαλαρώνουν μέσω διαφόρων μηχανισμών, όπως π.χ. με διαδικασίες Auger και με σκέδαση με φωνόνια, και καταλήγουν στη θεμελιώδη τους κατάσταση. Λόγω του ότι οι μηχανισμοί αυτοί εφησυχασμού είναι πολύ πιο γρήγοροι σε σύγκριση με το χρόνο ακτινοβόλου επανασύνδεσης, γίνεται κατανοητό ότι οι φορείς στο μεγαλύτερο χρονικό διάστημα βρίσκονται στο άκρο των ζωνών αγωγιμότητας και σθένους. Στη συνέχεια οι φορείς επανασυνδέονται εκπέμποντας φωτόνια με ενέργεια ίση με την ενέργεια επανασύνδεσης.

Με βάση την αρχή λειτουργίας της, η τεχνική της PL μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την ανίχνευση των ενεργειακών μεταβάσεων του ημιαγωγού. Επιπρόσθετα, μπορεί να μας δώσει πληροφορίες για την κρυσταλλική ποιότητα του ημιαγωγικού δείγματος. Οποιαδήποτε ατέλεια επιφανειακή ή κρυσταλλική, παγιδεύει φορείς που θα μπορούσαν να επανασυνδεθούν ακτινοβόλα και μειώνει την ένταση της εκπομπής της PL. Επομένως η ισχυρή εκπομπή PL είναι ενδεικτική, στις περισσότερες περιπτώσεις, ενός δείγματος καλής κρυσταλλικής ποιότητας. Στην περίπτωση που η διέγερση των φορέων γίνεται με τη χρήση ενός παλμικού λέιζερ, τότε η ένταση της εκπομπής PL μπορεί να δώσει πληροφορίες για το χρόνο ζωής των φορέων. Τέλος, η μεταβολή της έντασης της PL με τη θερμοκρασία μπορεί να μας δώσει πληροφορίες για τις μη ακτινοβόλες διαδικασίες που ενεργοποιούνται σε υψηλές θερμοκρασίες.

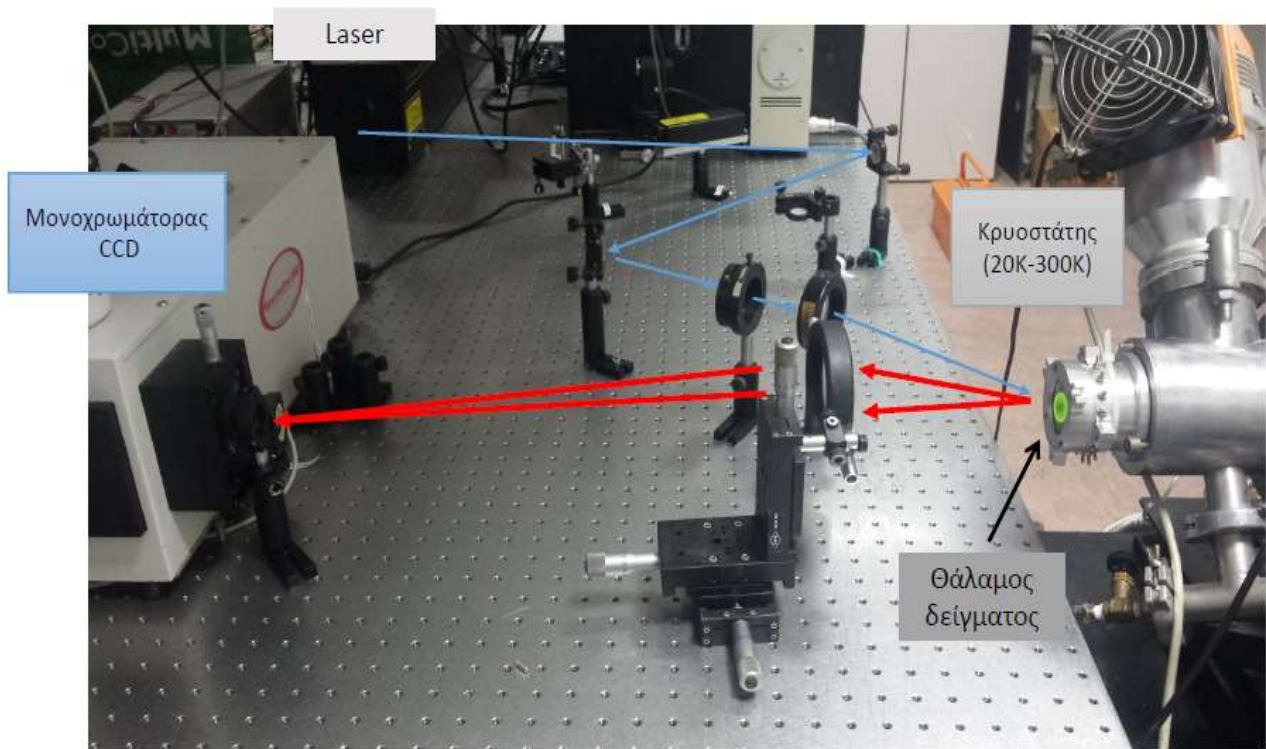
Μέχρι σήμερα η μεγάλη πλειοψηφία των μελετών που αφορούν τις οπτικές ιδιότητες των InAs/GaAs περιορίζονται σε νανοδομές που αναπτύσσονται σε (100) GaAs.¹⁴ Πολύ λίγες εργασίες είναι αφιερωμένες στη μελέτη τελειών InAs, που αναπτύσσονται σε διευθύνσεις υψηλού κρυσταλλογραφικού δείκτη.⁵⁻¹⁰ Όπως έγινε αντιληπτό στο προηγούμενο κεφάλαιο, η διεύθυνση επίταξης επηρεάζει έντονα τις ιδιότητες των μορίων του επιτασσόμενου υλικού, όπως π.χ. το ρυθμό προσρόφησης τους στην επιφάνεια του υποστρώματος, καθώς και την απόσταση που διανύουν προτού να ενσωματωθούν στον κρύσταλλο. Αναμένεται, επομένως να επηρεάζει τις οπτικές ιδιότητες των επιτασσόμενων QDs. Μια ακόμη παράμετρος, η οποία διαφοροποιεί τις νανοδομές InAs, οι οποίες αναπτύσσονται σε επιφάνειες υψηλού

κρυσταλλογραφικού δείκτη, είναι το ισχυρό πιεζοηλεκτρικό πεδίο, που δημιουργείται στο εσωτερικό των τελειών αυτών.¹¹ Τέτοια ισχυρά πεδία αναμένεται να επηρεάζουν αποφασιστικά τις οπτικές ιδιότητες των νανοδομών αυτών και προσφέρουν μοναδικά πλεονεκτήματα για πολλές συναρπαστικές εφαρμογές.

3.3. ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΗ ΔΙΑΤΑΞΗ

Η πειραματική διάταξη που χρησιμοποιήθηκε για τον οπτικό χαρακτηρισμό των διεγμάτων της παρούσας εργασία με τη μέθοδο της φωτοφωταύγειας (PL) περιελάμβανε:

1. Τον κρυστάτη μέσα στον οποίο είναι τοποθετημένο το δείγμα, για μετρήσεις σε χαμηλές θερμοκρασίες.
2. Την πηγή διέγερσης: Για την οπτική διέγερση των δειγμάτων των κβαντικών τελειών χρησιμοποιήθηκαν διάφορα λέιζερ. Στα περισσότερα πειράματα χρησιμοποιήθηκε ένα λέιζερ ηλίου – καδμίου (He – Cd) συνεχούς εκπομπής με μήκος κύματος εκπομπής 325nm και ένα διοδικό λέιζερ συνεχούς εκπομπής με μήκος κύματος εκπομπής 405nm.
3. Τον οπτικό δρόμο, ο οποίος περιλαμβάνει ένα σύστημα φακού – κατόπτρων, για την εστίαση της δέσμης διέγερσης καθώς και τη συλλογή της ακτινοβολίας που εκπέμπεται από το δείγμα. Για το σκοπό αυτό χρησιμοποιείται αντικειμενικός φακός μεγάλης μεγέθυνσης και διαφράγματος. Η χρήση φακού μεγάλης μεγέθυνσης επιτρέπει την καλύτερη εστίαση του στίγματος του λέιζερ στο δείγμα, ώστε να διεγείρεται όσο το δυνατό μικρότερος αριθμός QDs. Παράλληλα το μεγάλο διάφραγμα του φακού επιτρέπει τη καλύτερη συλλογή του φωτός που εκπέμπεται από το δείγμα των QDs. Σε ορισμένες περιπτώσεις χρησιμοποιήθηκαν πλακίδια ελάττωσης της ισχύος του λέιζερ διέγερσης, για να μελετηθεί η απόκριση των δειγμάτων κάτω από διαφορετικές εντάσεις διέγερσης.
4. Το μετρητικό σύστημα, για την ανίχνευση του οπτικού σήματος, τη φασματική ανάλυση του και την απεικόνιση του.



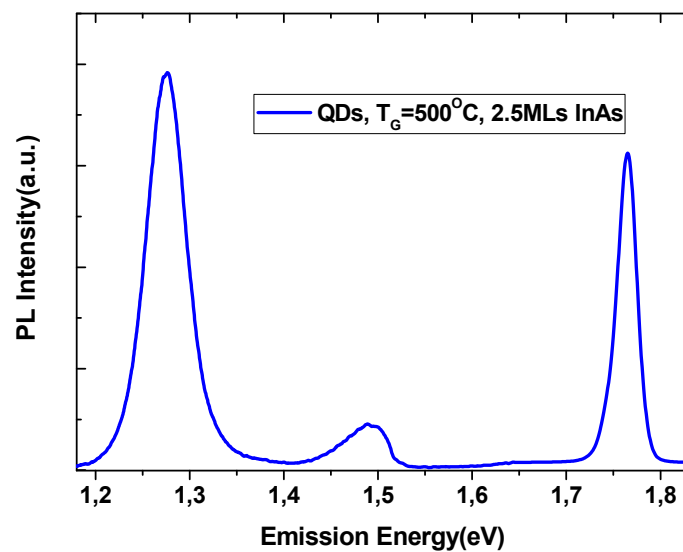
Σχ. 3.1: Πειραματική διάταξη για τη μέτρηση της φωτοφωταύγειας. Η μπλε γραμμή δείχνει την πορεία της δέσμης του laser, ενώ η κόκκινη γραμμή δείχνει την κατεύθυνση της εκπομπής PL του δείγματος.

Μια εικόνα της πειραματικής διάταξης για τη λήψη των φασμάτων φωτοφωταύγειας φαίνεται στο Σχ. 3.1. Στα πειράματα που πραγματοποιήθηκαν στα πλαίσια της εργασίας αυτής, τα δείγματα τοποθετήθηκαν σε κρυοστάτη υψηλού κενού, ο οποίος ψύχεται με τη βοήθεια κλειστού κυκλώματος He, ώστε να μπορούν να γίνουν μετρήσεις φωτοφωταύγειας σε πολύ χαμηλές θερμοκρασίες (18K). Για να μπορούμε να μεταβάλλουμε ελεγχόμενα τη θερμοκρασία του δείγματος, ο κρυοστάτης συνοδεύεται από θερμαντικό στοιχείο και από ένα σύστημα ελέγχου της θερμοκρασίας. Με τον τρόπο αυτό μπορούμε να μεταβάλλουμε τη θερμοκρασία του δείγματος ελεγχόμενα από τους 18K έως τους 300K με ακρίβεια 1K.

Το φως εκπομπής του δείγματος εστιάζεται με τη βοήθεια συστήματος φακών στη σχισμή ενός φασματογράφου ACTON 500mm της εταιρείας Princeton Instruments, εξοπλισμένου με τρία εναλλάξιμα πλάγματα περίθλασης των 150 σχισμών/mm, 600 σχισμών/mm και 1200 σχισμών/mm. και το σήμα αναλύεται με τη βοήθεια πλέγματος αποτελούμενου από 300 γραμμές ανά χιλιοστό (300 gr/mm). Το σήμα αναλύεται με τη βοήθεια των πλεγμάτων αυτών και ανιχνεύεται με τη βοήθεια μια υπερευαίσθητης κάμερας CCD, η οποία ψύχεται με υγρό άζωτο. Οι μετρήσεις συλλέγονται και επεξεργάζονται με τη βοήθεια ηλεκτρονικού υπολογιστή και κατάλληλου λογισμικού.

3.4 ΜΟΡΦΗ ΦΑΣΜΑΤΟΣ ΦΩΤΟΦΩΤΑΥΓΕΙΑΣ

Η μελέτη των οπτικών ιδιοτήτων των κβαντικών τελειών (211)B InAs / GaAs έγινε με τη βοήθεια πειραμάτων φωτοφωταύγειας (PL) και τα αποτελέσματα της συσχετίστηκαν με τα συμπεράσματα, που εξήχθησαν από την ανάλυση των δομικών και μορφολογικών χαρακτηριστικών των τελειών. Ένα τυπικό φάσμα PL, το οποίο εκπέμπεται από ένα δείγμα καλυμμένων InAs QDs που αναπτύχθηκε στους 500°C με ένα ρυθμό ανάπτυξης ίσο με 0.1ML/sec φαίνεται στο Σχ. 3.2. Το ισοδύναμο πάχος του εναποτιθέμενου InAs είναι ίσο με 2.5MLs₁₀₀.



Σχ. 3.2: Φάσμα εκπομπής PL στους 18K από ένα δείγμα QD που αναπτύσσεται στους 500°C με πάχος εναπόθεσης ίσο με 2.5MLs InAs.

Στο φάσμα εκπομπής των τελειών δεσπόζουν τρεις κορυφές:

- Η πρώτη από αυτές βρίσκεται σε ενέργεια 1.75eV και αποδίδεται στην ακτινοβολο επανασύνδεση φορέων, οι οποίοι καταλαμβάνουν ενεργειακές καταστάσεις στο εσωτερικό του υπερπλέγματος GaAs/AlAs¹².
- Μια δεύτερη κορυφή, πολύ ασθενέστερη της πρώτης βρίσκεται στην περιοχή των 1.5eV και αποδίδεται σε ακτινοβολο επανασύνδεση στο n⁺ υπόστρωμα GaAs των δειγμάτων.

- Η τρίτη κορυφή του φάσματος PL βρίσκεται στην περιοχή των 1.27eV είναι η κυρίαρχη κορυφή του φάσματος και αποδίδεται στην επανασύνδεση φορέων στο εσωτερικό των κβαντικών τελειών.

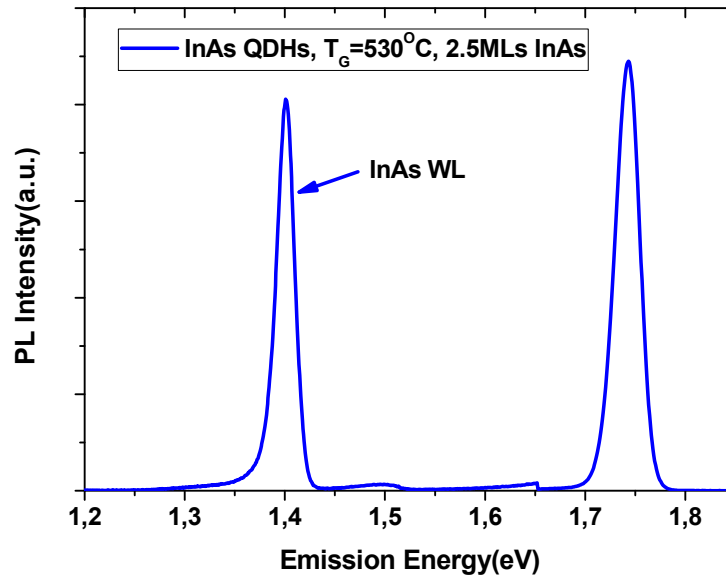
Δύο είναι τα βασικά χαρακτηριστικά της φασματικής κορυφής, η οποία αποδίδεται στις κβαντικές τελείες:

- Το εύρος του φάσματος εκπομπής των τελειών αυτών είναι σχετικά μικρό, της τάξης των 50meV, παρά την ευρεία κατανομή των μεγεθών των τελειών, η οποία εμφανίζεται στις συγκεκριμένες συνθήκες επίταξης.
- Η μικρή ισχύς του φάσματος εκπομπής των τελειών, η οποία είναι περίπου μια τάξη μεγέθους ασθενέστερη σε σύγκριση με δείγματα κβαντικών τελειών InAs, οι οποίες αναπτύσσονται σε υποστρώματα (100) GaAs και έχουν συγκρίσιμες πυκνότητες QDs.

Οι δύο παραπάνω παρατηρήσεις θα συζητηθούν εκτενώς στη συνέχεια, και θα επιχειρηθεί η ερμηνεία των δύο παραπάνω φαινομένων, τα οποία εμφανίζονται σε ένα τυπικό φάσμα εκπομπής των κβαντικών τελειών (211)B InAs / GaAs. Προτού προχωρήσουμε στην περαιτέρω ανάλυση και ερμηνεία, θα εξετάσουμε τη μορφή που παρουσιάζουν τα φάσματα εκπομπής της δεύτερης μεγάλης κατηγορίας νανοδομών που εμφανίζονται σε υποστρώματα (211)GaAs, των κβαντικών παυλών.

3.5. ΦΑΣΜΑ ΦΩΤΟΦΩΤΑΥΓΕΙΑΣ ΑΠΟ ΚΒΑΝΤΙΚΕΣ ΠΑΥΛΕΣ

Όπως είχαμε ήδη αναφέρει, κβαντικές παύλες δημιουργούνται στην περίπτωση που η επίταξη του InAs πάνω σε υποστρώματα (211) GaAs γίνεται σε θερμοκρασία 530°C. Ένα τυπικό φάσμα εκπομπής από ένα δείγμα κβαντικών παυλών InAs που αναπτύσσονται σε θερμοκρασία 530°C σε υπόστρωμα (211)B GaAs με ρυθμό 0.1ML/sec, φαίνεται στο Σχ. 3.3.



Σχ. 3.3: Φάσμα εκπομπής PL στους 18K από ένα δείγμα QDH που αναπτύσσεται στους 530°C με πάχος εναπόθεσης ίσο με 2.5MLs InAs. Η έντονη φασματική κορυφή στην περιοχή των 1.4eV αποδίδεται σε επανασύνδεση φορέων στην περιοχή του διαστάτου WL.

Όπως φαίνεται στο γράφημα, το φάσμα εμφανίζει κορυφές στα 1.75eV και 1.5eV, όμοια προς τα αντίστοιχα φάσματα εκπομπής των κβαντικών τελειών. Οι κορυφές αυτές αποδίδονται, όπως και στην περίπτωση των QDs, σε επανασύνδεση φορέων στο υπερπλέγμα GaAs/AlAs και στο n^+ υπόστρωμα GaAs αντίστοιχα. Το φάσμα εμφανίζει επιπρόσθετα μια ακόμη φωτεινή κορυφή μεγάλης έντασης στην περιοχή των 1.4eV. Η φωτεινή αυτή κορυφή δεν μπορεί να αποδοθεί σε επανασύνδεση φορέων στις κβαντικές παύλες για δύο λόγους:

- Οι κβαντικές παύλες, όπως φάνηκε και από τις εικόνες AFM, έχουν μέγεθος πολύ μεγαλύτερο από τις κβαντικές τελείες. Επομένως, ο περιορισμός των φορέων στις κβαντικές παύλες είναι ασθενέστερος και η ενέργεια των εκπεμπόμενων φωτονίων, που προέρχονται από την επανασύνδεση των φορέων, αναμένεται να είναι μικρότερη σε σύγκριση με τα δείγματα κβαντικών τελειών. Συνεπώς, η εκπομπή φωτονίων στα 1.4eV δεν μπορεί να αποδοθεί σε επανασύνδεση φορέων στις κβαντικές παύλες.
- Λόγω του μεγάλου τους μεγέθους αλλά και της μεγάλης πλεγματικής διαφοράς ανάμεσα στα InAs και GaAs, οι κβαντικές παύλες είναι πιθανό να έχουν χαλαρώσει από τη τάση παραμόρφωσης μέσω ενός δικτύου εξαρμώσεων. Όπως έχει ήδη

αναφερθεί στην περίπτωση των QDs, η ύπαρξη εξαρμώσεων υποβαθμίζει την ποιότητα του κρυσταλλικού υλικού και δημιουργεί εστίες μη ακτινοβόλου επανασύνδεσης των φορέων. Αυτό πρακτικά καθιστά τις QDHs οπτικά ανενεργές, γεγονός που έρχεται σε αντίθεση με τη μεγάλη ένταση του σήματος εκπομπής στην περιοχή των 1.4eV.

Με βάση τις παραπάνω παρατηρήσεις, και με δεδομένη τη δομή των δειγμάτων, αποδίδουμε τη φασματική κορυφή των 1.4eV σε επανασύνδεση των φορέων στο InAs WL. Η εκπομπή του στρώματος του InAs στη σχετικά υψηλή αυτή ενέργεια (σε σύγκριση με το ενεργειακό χάσμα του InAs) οφείλεται σε δύο αιτίες:

1. Κατά κύριο λόγο στο πολύ μικρό πάχος του στρώματος του InAs WL. Εξαιτίας του ισχυρού περιορισμού των φορέων, οι ενεργειακές στάθμες των φορέων απομακρύνονται μεταξύ τους, και η ενέργεια των εκπεμπόμενων φωτονίων αυξάνεται.
2. Στην διαφορά των πλεγματικών σταθερών των InAs και GaAs. Το λεπτό στρώμα του InAs αναπτύσσεται ψευδομορφικά στο υπόστρωμα GaAs. Λόγω, όμως, της μεγαλύτερης πλεγματικής σταθεράς του InAs, το InAs WL υφίσταται συμπιεστική παραμόρφωση, η οποία προκαλεί την αύξηση του ενεργειακού χάσματος του InAs.

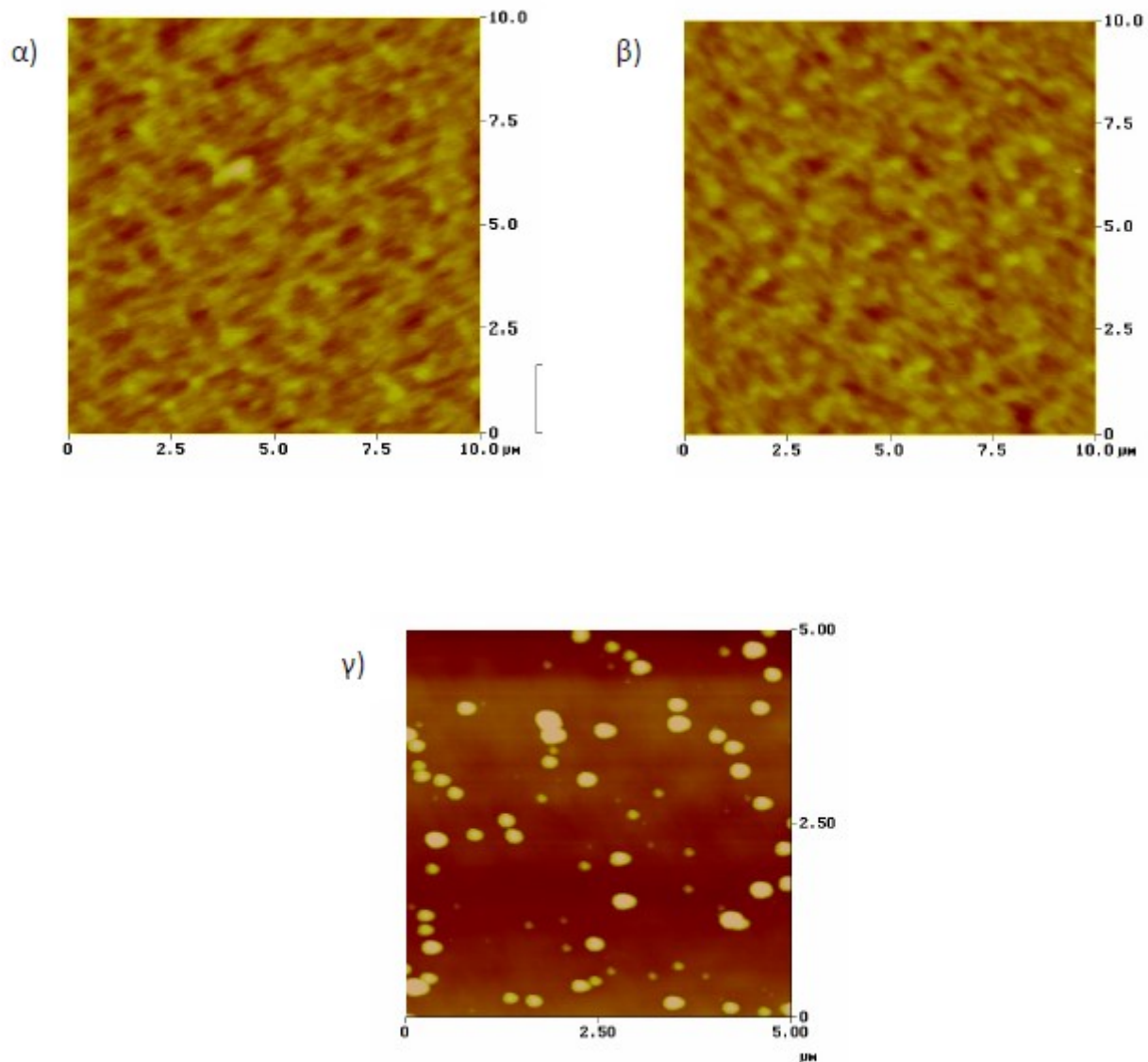
Το ενισχυμένο σήμα από την εκπομπή του WL στην περίπτωση των δειγμάτων κβαντικών παυλών σε σύγκριση με τα αντίστοιχα δείγματα κβαντικών τελειών αποδίδεται στη χαμηλή πυκνότητα των QDHs, η οποία είναι της τάξης των 10^9cm^{-2} . Έτσι αυξάνεται η πιθανότητα παγίδευσης και ακτινοβόλου επανασύνδεσης των φορέων στο στρώμα του WL, προτού εγκλωβιστούν στο εσωτερικό των QDHs.

3.6 ΕΚΤΙΜΗΣΗ ΠΑΧΟΥΣ WETTING LAYER

Τα πειράματα φωτοφωταύγειας σε δείγματα QDHs, τα οποία παρουσιάστηκαν σε προηγούμενη παράγραφο, δίνουν μια πρώτη εκτίμηση για το πάχος του WL, μέσω της ενέργειας εκπομπής στα φάσματα PL. Προκειμένου να έχουμε μια ακριβέστερη εκτίμηση για το πάχος του στρώματος αυτού, κατασκευάστηκε μια σειρά δειγμάτων InAs σε υπόστρωμα n^+ (211)B GaAs ώστε να μελετηθεί η εξέλιξη της επιφάνειας του InAs στα αρχικά στάδια εναπόθεσης. Η εναπόθεση του InAs έγινε σε θερμοκρασία 530°C με ρυθμό 0.1MLs/sec, ενώ το πάχος του στρώματος ποίκιλλε από 0.7MLs σε 2.5MLs. Τα μορφολογικά χαρακτηριστικά των

δειγμάτων αυτών μελετήθηκαν με τη βοήθεια του AFM, διαδικασία που επέτρεψε έναν πρόχειρο υπολογισμό του πλάτους του WL. Ένας ακριβέστερος υπολογισμός του πάχους επετεύχθη μέσω της ανάλυσης των φασμάτων PL των δειγμάτων αυτών.

Σε όλα τα δείγματα της σειράς αυτής η εικόνα του RHEED στα αρχικά στάδια της επίταξης ήταν γραμμωτή (streaky), αναδεικνύοντας το 2D τρόπο εναπόθεσης του InAs στο υπόστρωμα. Η εξέλιξη της εικόνας του RHEED παρουσιάζει μια διαφοροποίηση η οποία εξαρτάται από το πάχος του εναποτιθέμενου InAs. Στην περίπτωση που το πάχος του στρώματος του InAs είναι μικρότερο από 1.3MLs, τότε η εικόνα του RHEED παραμένει γραμμωτή καθόλη τη διάρκεια της εναπόθεσης. Η εικόνα αυτή επιβεβαιώνεται και από την παρατήρηση της επιφάνειας των δειγμάτων αυτών με AFM, τα αποτελέσματα της οποίας φαίνονται στο Σχ. 3.4, όπου δίνονται οι εικόνες AFM της επιφάνειας δειγμάτων InAs με ισοδύναμο πάχος εναπόθεσης $\Theta=0,7$ και 1.0ML. Είναι φανερή η εναπόθεση του InAs στρώμα με στρώμα και η απουσία 3D νανοδομών από την επιφάνεια του δείγματος.

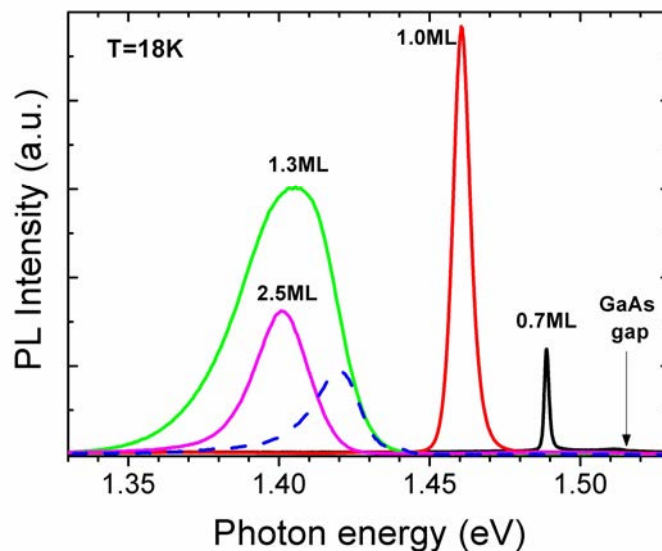


Σχ. 3.4: Εικόνες AFM από δείγματα QDH αναπτυσσόμενα στους 530°C και με ρυθμό επίταξης $G=0.1\text{MLs/sec}$ για διάφορες ποσότητες του εναποτιθέμενου InAs: α) 0.7MLs, β) 1.0 ML, γ) 1.3MLs. Στις περιπτώσεις α), β) ο τρόπος ανάπτυξης είναι διδιάστατος. Αντίθετα στην περίπτωση που το πάχος είναι 1.3MLs, παρατηρείται η ανάπτυξη QDs στην επιφάνεια του WL.

Αντίθετα, στην περίπτωση που το πάχος του εναποτιθέμενου InAs $\Theta > 1.3\text{MLs}$, τότε παρατηρείται μια ξεκάθαρη μεταβολή της εικόνας του RHEED από γραμμωτό σε διάστικτο, ενδεικτικό της αλλαγής του τρόπου ανάπτυξης τους επιστρώματος από 2D σε 3D. Η αλλαγή αυτή επιβεβαιώνεται και από την παρατήρηση της επιφάνειας των δειγμάτων με χρήση AFM, όπως φαίνεται στο Σχ. 3.4γ, όπου απεικονίζεται η επιφάνεια δειγμάτων InAs με ισοδύναμο πλάτος $\Theta = 1.3\text{MLs}$. Οι παραπάνω παρατηρήσεις οδηγούν στο συμπέρασμα ότι το κρίσιμο

πάχος L_c του InAs, πέρα από το οποίο λαμβάνει χώρα μετατροπή του τρόπου εναπόθεσης από 2D σε 3D είναι μεταξύ των 1 και 1.3MLs. Αυτό θέτει αυτόματα ένα άνω όριο για το πάχος του WL, καθώς το WL δεν μπορεί να είναι πιο παχύ από το L_c . Συμπερασματικά, μπορούμε να πούμε ότι ο μορφολογικός χαρακτηρισμός μας προσφέρει μια πρόχειρη εκτίμηση του πάχους του WL στην περιοχή $1.0ML < WL < 1.3MLs$.

Για μια πιο ακριβή μέτρηση του πάχους του WL, εξετάζουμε τις οπτικές ιδιότητες των παραπάνω δειγμάτων σε πειράματα PL. Για το σκοπό αυτό κατασκευάζονται δείγματα, στα οποία το στρώμα του InAs εναποτίθεται με συνθήκες όμοιες με τα δείγματα του Σχ. 3.4, διαθέτουν, όμως, επιπλέον ένα στρώμα GaAs πάχους 30nm, για την κάλυψη των κβαντικών τελειών InAs. Τα φάσματα PL που λαμβάνονται από τα δείγματα αυτά σε χαμηλή θερμοκρασία ($T=18K$) φαίνονται στο Σχ. 3.5.



Σχ. 3.5: Φάσματα εκπομπής PL στους 18K από διάφορα δείγματα (211) InAs QDHs, που αναπτύχθηκαν στους 530°C και με ρυθμό εναπόθεσης ίσο με $G = 0.1$ ML/sec για διάφορες ποσότητες του εναποτιθέμενου InAs από 0.7MLs έως 2.5MLs. Στο διάγραμμα (διακεκομμένη γραμμή) φαίνεται η εκπομπή PL από δείγμα (211) InAs QDs, στο οποίο η εναπόθεση έχει γίνει στους 450°C με ρυθμό 0.0216 MLs/sec. Αναδημοσίευση από [13].

Όλα τα δείγματα εμφανίζουν μια έντονη φωτεινή κορυφή σε ενέργειες μικρότερες από το χάσμα του GaAs. Η θέση της φωτεινής αυτής κορυφής στο φάσμα εξαρτάται από το πάχος του εναποτιθέμενου InAs. Συγκεκριμένα, καθώς το πάχος Θ του InAs αυξάνει από 0.7MLs σε 1.3MLs, παρατηρείται μια έντονη ερυθρή μετατόπιση του μεγίστου εκπομπής από τα 1.49eV στα 1.4eV. Καθώς, όμως, το πάχος του εναποτιθέμενου InAs αυξάνει πέρα των 1.3MLs, η

παρατηρούμενη μετατόπιση περιορίζεται σημαντικά. Η μη μονοτονική εξάρτηση της ενέργειας της φωτεινής κορυφής μπορεί να ερμηνευθεί σε συνδυασμό με τη δομική και μορφολογική μελέτη των δειγμάτων του InAs, η οποία προηγήθηκε. Όπως έχει ήδη αναφερθεί, στα αρχικά στάδια της εναπόθεσης του InAs η ανάπτυξη γίνεται στρώμα με στρώμα, και το προστιθέμενο InAs αυξάνει το πάχος του WL. Εφόσον, όμως, το πάχος του InAs αυξάνεται, ο περιορισμός των φορέων γίνεται πιο χαλαρός, με αποτέλεσμα η ενέργεια εκπομπής να μειώνεται, όπως παρατηρείται για πάχη μικρότερα του 1.3MLs. Σε πάχη μεγαλύτερα των 1.3MLs, όμως, η εναπόθεση μεταλλάσσεται από 2D σε 3D, και το προστιθέμενο υλικό εναποτίθεται με τη μορφή QDs. Επομένως, το πάχος του WL και η ενέργεια εκπομπής του παραμένουν ανεξάρτητα από το πάχος του εναποτιθέμενου InAs, όπως επιβεβαιώνεται πειραματικά από τις μετρήσεις PL των δειγμάτων για $\Theta > 1.3\text{MLs}$. Από τα παραπάνω αποτελέσματα μπορούμε να εξάγουμε ένα κάτω όριο για το πάχος του InAs WL. Το πάχος του WL δεν μπορεί να είναι μικρότερο από 1.0ML, και επομένως ικανοποιεί την παρακάτω ανισότητα:

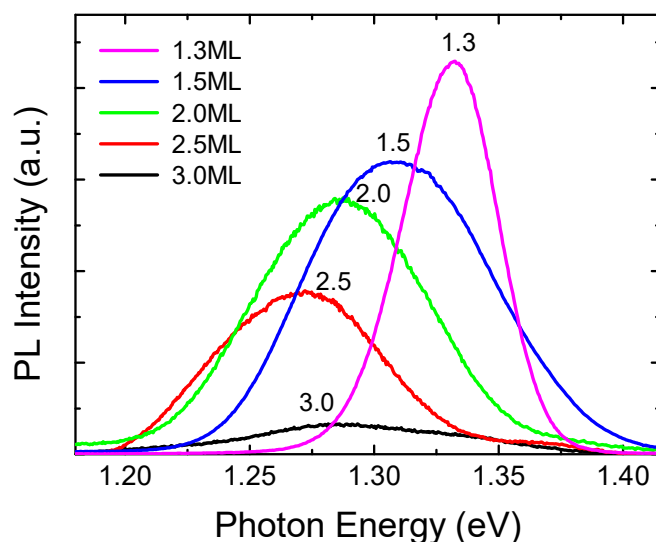
$$1.0\text{ML} < WL < L_c < 1.3\text{MLs}$$

Για να εξετάσουμε αν το πάχος του WL επηρεάζεται από τις συνθήκες επίταξης, εξετάζουμε το φάσμα εκπομπής ενός δείγματος (211)B InAs QDs, στο οποίο η εναπόθεση έχει γίνει στους 450°C με ρυθμό 0.0216 MLs/sec. Το πάχος εναπόθεσης στην περίπτωση αυτή είναι 2.5MLs. Όπως φαίνεται στο Σχ. 3.5, το φάσμα εκπομπής PL του δείγματος παρουσιάζει φωτεινή κορυφή στα 1.4eV, η οποία αποδίδεται και στην περίπτωση αυτή στην εκπομπή του WL. Συγκρίνοντας το φάσμα εκπομπής με τα φάσματα εκπομπής δειγμάτων που αναπτύχθηκαν σε υψηλότερες θερμοκρασίες (500°C και 530°C) και υψηλότερο ρυθμό επίταξης, ίσο με 0,1MLs/sec, παρατηρούμε ότι η ενέργεια εκπομπής των δειγμάτων παραμένει περίπου σταθερή και ανεξάρτητη από τις συνθήκες επίταξης. Αυτό, πρακτικά, αναδεικνύει ότι το πάχος του WL μένει ανεπηρέαστο από τις συνθήκες επίταξης και συγκεκριμένα από τη θερμοκρασία και το ρυθμό ανάπτυξης.

3.6.1 ΕΞΑΡΤΗΣΗ ΕΚΠΟΜΠΗΣ ΦΩΤΟΦΩΤΑΥΓΕΙΑΣ ΑΠΟ ΤΟ ΠΑΧΟΣ ΤΟΥ InAs

Για να ενισχύσουμε την άποψη μας ότι μόνο οι τελείες μικρού μεγέθους είναι οπτικά ενεργές, προχωρούμε σε μελέτη της επίδρασης του πάχους Θ του InAs που εναποθέτουμε στις

οπτικές ιδιότητες των δειγμάτων. Τα φάσματα PL μιας σειράς δειγμάτων, τα οποία αναπτύχθηκαν σε θερμοκρασία 500°C με ρυθμό εναπόθεσης 0.1ML/sec και στα οποία το πάχος του εναποτιθέμενου InAs μεταβάλλεται από 1.3MLs σε 3.0MLs, φαίνονται στο Σχ. 3.6. Ένα από τα βασικά συμπεράσματα που προκύπτουν από τη μελέτη του γραφήματος είναι ότι καθώς το πάχος Θ του InAs αυξάνεται 1.3MLs σε 2.5MLs, η κορυφή του σήματος εκπομπής υφίσταται ερυθρή μετατόπιση. Αυτή η μετατόπιση της κορυφής σε μικρότερες τιμές ενέργειας είναι σε πλήρη συμφωνία με τη μεταβολή της κατανομής του μεγέθους των τελειών καθώς το πάχος Θ αυξάνεται, η οποία σχολιάστηκε σε προηγούμενη παράγραφο. Όπως έχει ήδη αναφερθεί και απεικονίζεται στο γράφημα του Σχ. 3.6, καθώς το πάχος του InAs αυξάνεται, η κατανομή των τελειών διευρύνεται και μετατοπίζεται προς τελείες μεγαλύτερου μεγέθους. Το αυξημένο μέγεθος των τελειών συνεπάγεται μειωμένο περιορισμό των φορέων, ο οποίος με τη σειρά του συνοδεύεται από μετατόπιση του φάσματος προς μικρότερες ενέργειες.



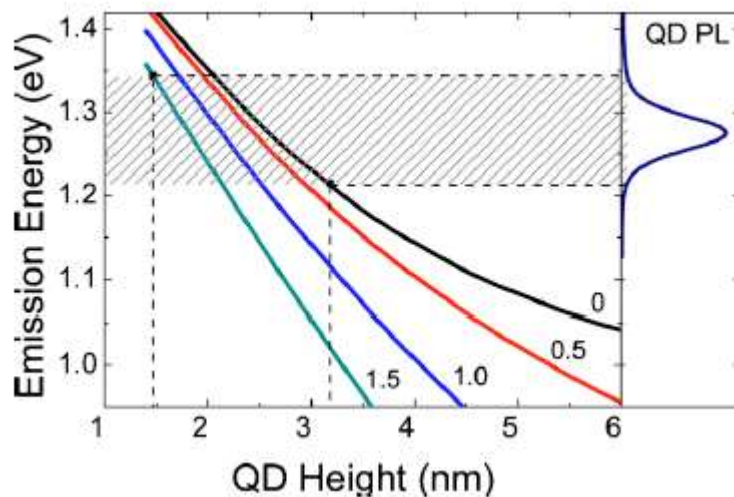
Σχ. 3.6: Φάσματα εκπομπής PL στους 18K από διάφορα δείγματα (211) InAs QDs για διάφορες ποσότητες του εναποτιθέμενου InAs: 1.3 ML, 1.5ML, 2.0ML, 2.5ML και 3.0ML. Τα φάσματα που λαμβάνονται στις τρεις τελευταίες περιπτώσεις έχουν πολλαπλασιαστεί με έναν παράγοντα 10. Αναδημοσίευση από [13].

Το πλέον ενδιαφέρον και σημαντικό συμπέρασμα, το οποίο εξάγεται από τη μελέτη του Σχ. 3.6 είναι η μείωση της έντασης του εκπεμπόμενου φάσματος, καθώς αυξάνεται το πάχος του InAs. Συγκεκριμένα, η ένταση του φάσματος μειώνεται κατά ένα παράγοντα 20, καθώς το πάχος αυξάνεται από 1.5MLs σε 2.5MLs, παρόλο που η πυκνότητα των τελειών στα δύο δείγματα είναι παρόμοια. Η μεγάλη αυτή απόκλιση αποδίδεται και στην περίπτωση αυτή

στην κατανομή των τελειών στα δείγματα και στη διαφορετική οπτική ενεργότητα μικρών και μεγάλων QDs. Τα δείγματα μικρού πάχους InAs περιέχουν ως επί το πλείστον τελείες μικρού μεγέθους ($H < 3\text{nm}$), οι οποίες είναι οπτικά ενεργές και συμμετέχουν στην εκπομπή PL, σύμφωνα με τα συμπεράσματα της προηγούμενης παραγράφου. Αντίθετα στα δείγματα όπου το πάχος εναπόθεσης είναι μεγάλο, κυριαρχούν οι τελείες μεγάλου μεγέθους ($H > 3\text{nm}$), οι οποίες στις περισσότερες περιπτώσεις δεν συμμετέχουν στην εκπομπή PL. Επομένως τα δείγματα αυτά αναμένεται να παρουσιάζουν μειωμένη ένταση εκπομπής σε σύγκριση με τα δείγματα μικρότερου πάχους. Μάλιστα, αν εξετάσουμε τα ιστογράμματα ύψους των δειγμάτων με πάχος $\Theta = 1.5\text{MLs}$ και 2.5MLs , θα διαπιστώσουμε ότι στην περίπτωση του δείγματος με $\Theta = 1.5\text{MLs}$, το ποσοστό των τελειών με ύψος μικρότερο των 3nm είναι περίπου 75%, ενώ το αντίστοιχο ποσοστό στην περίπτωση του δείγματος με $\Theta = 2.5\text{MLs}$ είναι περίπου ίσο με 3%, δηλαδή μικρότερο κατά 25 φορές. Η απόκλιση αυτή θα μπορούσε να ερμηνεύσει ποσοτικά τη διαφορά των εντάσεων της PL των δύο δειγμάτων κατά ένα παράγοντα 20.

3.6.2. ΟΠΤΙΚΑ ΕΝΕΡΓΕΣ ΚΒΑΝΤΙΚΕΣ ΤΕΛΕΙΕΣ

Τα φάσματα εκπομπής PL των (211)B InAs QDs παρουσιάζουν μια σημαντική ιδιαιτερότητα σε σχέση με τελείες παρόμοιου μεγέθους που αναπτύσσονται σε υπόστρωμα (100)GaAs. Όπως αναφέρθηκε, το εύρος του φάσματος είναι εξαιρετικά μικρό, ιδιαίτερα αν ληφθεί υπόψη η ευρεία κατανομή μεγέθους των τελειών αυτών. Για την ερμηνεία της ιδιαίτερης αυτής συμπεριφοράς, προχωρούμε σε υπολογισμό της ενέργειας της θεμελιώδους μετάβασης σε μια InAs QD, σε συνάρτηση με το ύψος της τελείας. Για απλοποίηση των υπολογισμών, αγνοούμε τον τρισδιάστατο περιορισμό των φορέων και λύνουμε την 1-D εξίσωση Schroedinger, θεωρώντας ότι ο περιορισμός των φορέων κατά τη διεύθυνση επίταξης είναι πολύ ισχυρότερος σε σύγκριση με τις πλευρικές διαστάσεις. Η απλοποίηση αυτή δικαιολογείται από τον μεγάλο λόγο των πλευρικών διαστάσεων προς το ύψος των (211)B InAs QDs, ειδικά για τελείες μικρού ύψους. Δύο παράγοντες δυσχεραίνουν τους υπολογισμούς. Ο πρώτος είναι η αβεβαιότητα σχετικά με την ισχύ των μη γραμμικών πιεζοηλεκτρικών φαινομένων, ενώ ο δεύτερος αφορά την ανομοιομορφία των τελειών, ως προς το ποσοστό του In. Οι δύο αυτοί παράγοντες δεν επιτρέπουν τον ακριβή υπολογισμό του πιεζοηλεκτρικού πεδίου στο χώρο των τελειών. Για τον λόγο αυτό η ένταση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου χρησιμοποιείται ως μεταβλητή παράμετρος στους απλουστευμένους 1-D υπολογισμούς μας.



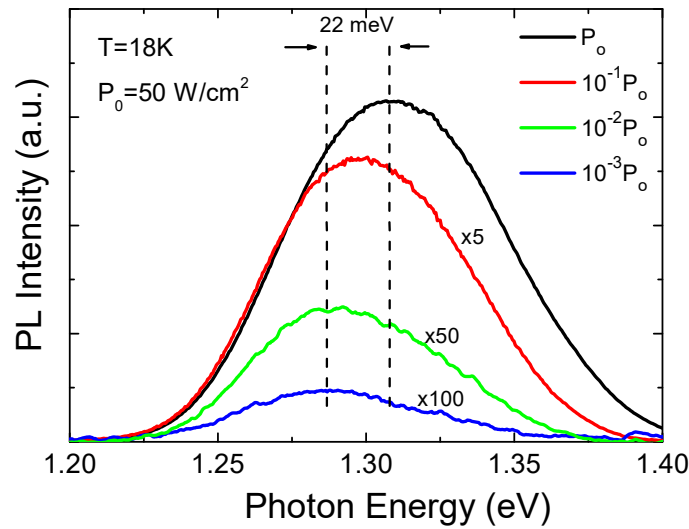
Σχ. 3.7: Μεταβολή της ενέργειας θεμελιώδους μετάβασης σε συνάρτηση με το ύψος των QDs, όπως υπολογίζεται με τη βοήθεια του απλουστευμένου μοντέλου. Η ενέργεια υπολογίζεται για διάφορες πιθανές τιμές του πιεζοηλεκτρικού πεδίου από 0 έως 1.5MV/cm. Για σύγκριση απεικονίζεται ένα τυπικό φάσμα PL εκπομπής από δείγμα (211)B InAs QDs. Η γραμμοσκιασμένη περιοχή, η οποία αναπαριστά το ενεργειακό εύρος της PL εκπομπής των QDs, αποδίδεται σε τελείες με ύψος 2-3nm, ανεξάρτητα από το μέγεθος του πεδίου. Αναδημοσίευση από [13].

Στο Σχ. 3.7 απεικονίζεται γραφικά η μεταβολή της ενέργειας της θεμελιώδους μετάβασης των (211) InAs QDs σε συνάρτηση με το ύψος των τελειών, όπως υπολογίζεται με τη βοήθεια του μοντέλου για διάφορες πιθανές τιμές του πιεζοηλεκτρικού πεδίου από 0 έως 1.5MV/cm. Συγκρίνοντας τα αποτελέσματα των θεωρητικών υπολογισμών μας με ένα τυπικό φάσμα PL εκπομπής των τελειών, μπορούμε να συμπεράνουμε ότι ανεξάρτητα από την ακριβή τιμή του πιεζοηλεκτρικού πεδίου, η εκπομπή προέρχεται από τελείες μικρού μεγέθους, με ύψος περίπου 3nm. Το συμπέρασμα αυτό είναι συμβατό με τις εικόνες που ελήφθησαν μέσω TEM και οι οποίες αποκαλύπτουν ότι οι μεγαλύτερες τελείες περιέχουν πολλαπλές εξαρμώσεις και επομένως είναι οπτικά ανενεργές.

3.7 ΠΕΙΡΑΜΑΤΑ ΦΩΤΟΦΩΤΑΥΓΕΙΑΣ ΜΕ ΜΕΤΑΒΛΗΤΗ ΕΝΤΑΣΗ ΔΙΕΓΕΡΣΗΣ

Μια αρκετά ισχυρή ένδειξη της ύπαρξης ισχυρού πιεζοηλεκτρικού πεδίου στις (211) InAs QDs παρουσιάζεται στα πειράματα PL με μεταβαλλόμενη ένταση διέγερσης. Στο Σχ. 3.8 παρουσιάζουμε την εξάρτηση της εκπομπής PL από ένα δείγμα QDs κάτω από διαφορετικές εντάσεις διέγερσης. Το ενδιαφέρον σημείο είναι ότι το μέγιστο του φάσματος εκπομπής

παρουσιάζει μετατόπιση 22meV προς υψηλότερες ενέργειες, με αύξηση της έντασης διέγερσης κατά 1000 φορές, όπως φαίνεται στο Σχ. 3.8.



Σχ. 3.8: Εξάρτηση της εκπομπής PL στους 18K από την ένταση διέγερσης για ένα δείγμα InAs QD, στο οποίο η εναπόθεση του InAs γίνεται στους 500°C. Είναι εμφανής η ερυθρή μετατόπιση της φασματικής κορυφής, που αποδίδεται στις QD, κατά 22meV. Αναδημοσίευση από [13].

Ένα μέρος της κυανής μετατόπισης του φάσματος μπορεί να αποδοθεί στην κατάληψη υψηλότερων ενεργειακά καταστάσεων στην QD. Παρόλα αυτά, αυτό δεν είναι σίγουρα το κυρίαρχο φαινόμενο, μια και σε μια τέτοια περίπτωση, η κυανή μετατόπιση θα συνοδεύονταν από μια έντονη διεύρυνση του φάσματος, ιδιαίτερα στο υψηλό ενεργειακό μέρος του. Εντούτοις, στην μελέτη των φασμάτων PL που μελετάμε, η διεύρυνση του φάσματος είναι μικρή και φτάνει περίπου το 15% για μεταβολή της έντασης διέγερσης κατά 1000 φορές. Η κυανή μετατόπιση του φάσματος αποδίδεται κυρίως στη θωράκιση του ισχυρού πιεζοηλεκτρικού πεδίου που υπάρχει στις (211) InAs QDs. Μεγάλη ένταση διέγερσης προκαλεί την γέννηση μεγάλου αριθμού φορέων μέσα ή γύρω από τις QDs. Οι μεγάλοι αριθμοί φορέων προκαλούν θωράκιση του PZ πεδίου και εξασθένιση του φαινομένου Stark στο εσωτερικό των τελειών, οδηγώντας σε κυανή μετατόπιση της ενέργειας εκπομπής.

3.8. ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ

Τα δείγματα των QDs που αναπτύχθηκαν, μελετήθηκαν σε πειράματα PL. Αναλύοντας τα φάσματα εκπομπής PL από τις QDs, συμπεραίνουμε ότι μόνο οι μικρές τελείες με ύψος μικρότερο από 3nm είναι οπτικά ενεργές. Η παρατήρηση αυτή είναι συμβατή με τις HRTEM μετρήσεις των δειγμάτων, οι οποίες δείχνουν ότι οι μεγάλες QDs παρουσιάζουν μεγάλη πυκνότητα εξαομώσεων. Παράλληλα, η οπτική διέγερση των δειγμάτων ανέδειξε το σχηματισμό ενός διδιάστατου WL πάχους περίπου 0.5nm, το οποίο σχηματίζεται κατά τα πρώτα στάδια της εναπόθεσης του InAs στο υπόστρωμα (211)B GaAs. Τέλος, η έντονη κυανή μετατόπιση του φάσματος εκπομπής των QDs που παρατηρείται αυξάνοντας την ένταση της διέγερσης, αποδίδεται στην ενισχυμένη θωράκιση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου, το οποίο αναμένεται να είναι παρόν στις τελείες αυτές.

ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΚΕΣ ΑΝΑΦΟΡΕΣ

- [1] H. Lee, W. Yang and P.C. Sercel, *Phys. Rev. B* 55, 9757 (1997)
- [2] K.H. Schmidt, G. Medeiros – Ribeiro and P.M. Petroff, *Phys. Rev. B* 58, 3597 (1998)
- [3] M. Grundmann, N.N. Ledentsov, O Stier and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.* 68, 979 (1996)
- [4] L. Chu, M. Arzberger, A. Zrenner, G. Böhm and G. Abstreiter, *Appl. Phys. Lett.* 75, 2247 (1999)
- [5] S. Guo, H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura and Y. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* 70, 2738 (1997)
- [6] S. Guo, H. Ohno, A. Shen, Y. Ohno and F. Matsukura, *Japanese Journal of Appl. Phys. Part 1* 37, 1527 (1998)
- [7] D.I. Lumbyshev, P.P. Gonzalez – Borrero, E. Marega, E. Petiprez, P. Basmaji, *Journal of Vacuum Science and Technology B* 14, 2212 (1996)
- [8] M. Henini, S. Sanguinetti, L. Brusaferrri, E. Grilli, M. Guzzi, M.D. Upward, P. Moriarty and B.H. Beton, *Microelectronics Journal* 28, 933 (1997)
- [9] A. Polimeni, M. Henini, A. Patane, L. Eaves, P.C. Main, G. Hill, *Appl. Phys. Lett.* 73, 1415 (1998)
- [10] S. Sanguinetti, A. Miottio, S. Castiglioni, E. Grilli, M. Guzzi, M. Henini, A. Polimeni, A. Patane, L. Eaves and P.C. Main, *Microelectronics Journal* 30, 419 (1999)

- [11] G. Bester, X. Wu, D. Vanderbilt, and A. Zunger, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 187602 (2006)
- [12] M. Zervos, C. Xenogianni, G. Deligeorgis, M. Androulidaki, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos and N. T. Pelekanos, *Phys. Status Solidi C* **3**, 3988 (2006).
- [13] G. E. Dialynas, S. Kalliakos, C. Xenogianni, M. Androulidaki, T. Kehagias, P. Komninou, P.G.Savvidis, Z. Hatzopoulos, and N. T. Pelekanos, *J. Appl. Physics* **108**, 103525 (2010)

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4: ΕΚΠΟΜΠΗ ΦΩΤΟΣ ΑΠΟ ΜΕΜΟΝΩΜΕΝΕΣ ΚΒΑΝΤΙΚΕΣ ΤΕΛΕΙΕΣ

4.1. ΦΑΣΜΑΤΟΣΚΟΠΙΑ ΜΕΜΟΝΩΜΕΝΩΝ ΚΒΑΝΤΙΚΩΝ ΤΕΛΕΙΩΝ

Η μελέτη των οπτικών ιδιοτήτων ενός δείγματος QD προσφέρει μια συγκεχυμένη εικόνα, λόγω της μεγάλης διακύμανσης του μεγέθους των τελειών, ως αποτέλεσμα του τρόπου ανάπτυξης τους. Όπως έχει ήδη αναφερθεί σε προηγούμενες ενότητες, ο σχηματισμός των τελειών σε ενεργειακά προτιμητέες θέσεις είναι μια καθαρά τυχαία διαδικασία. Ανεξάρτητα από το πόσο καλό έλεγχο των συνθηκών επίταξης μπορούμε να επιτύχουμε, οι QDs διαφοροποιούνται έντονα ως προς το μέγεθος, τη μορφή, τη τάση και τα γειτονικά τους άτομα. Αυτό, όπως τονίστηκε σε προηγούμενο κεφάλαιο, έχει επιπτώσεις στο εύρος του φάσματος εκπομπής των δομών αυτών. Για να αποφευχθεί αυτή η διεύρυνση του φάσματος και να εξαχθούν όσο το δυνατό ασφαλέστερα συμπεράσματα για τις ιδιότητες των (211)InAs QDs, είναι απαραίτητη η διέγερση μεμονωμένων τελειών.

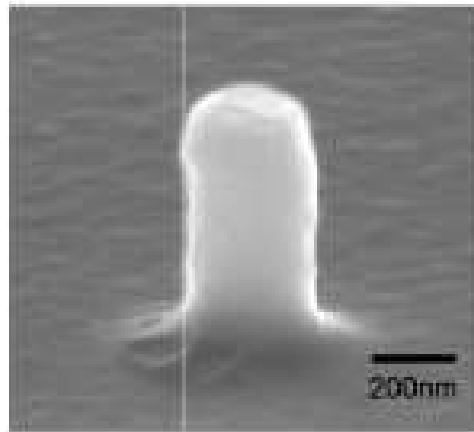
Η ανίχνευση του φάσματος εκπομπής μεμονωμένων κβαντικών τελειών μπορεί να γίνει με διάφορους τρόπους. Οι κυριότερες μέθοδοι που έχουν χρησιμοποιηθεί για την απομόνωση κβαντικών τελειών αφορούν:

- I. Στη δημιουργία δομών mesa με χάραξη σε λιθογραφικά καθορισμένες περιοχές της επιφάνειας του ημιαγωγικού δείγματος^{1,2}.
- II. Στην επικάλυψη του δείγματος με μέταλλο και στο άνοιγμα νανο-οπών στην επιφάνεια του μετάλλου με χάραξη³.
- III. Σε πειράματα καθοδοφωταύγειας, στα οποία η διέγερση του δείγματος περιορίζεται σε μικρό όγκο, ώστε να είναι εφικτή η διέγερση πολύ μικρού αριθμού τελειών⁴.
- IV. Σε πειράματα φωταύγειας, τα οποία συνδυάζονται με μικροσκοπία STM⁵. Τα πειράματα αυτά επιτρέπουν τη διερεύνηση μεμονωμένων QDs, τα οποία συσχετίζουν τη μορφολογία των εξεταζόμενων νανοδομών με τα φάσματα φωταύγειας τους.

4.2 ΠΡΟΕΤΟΙΜΑΣΙΑ ΔΕΙΓΜΑΤΟΣ

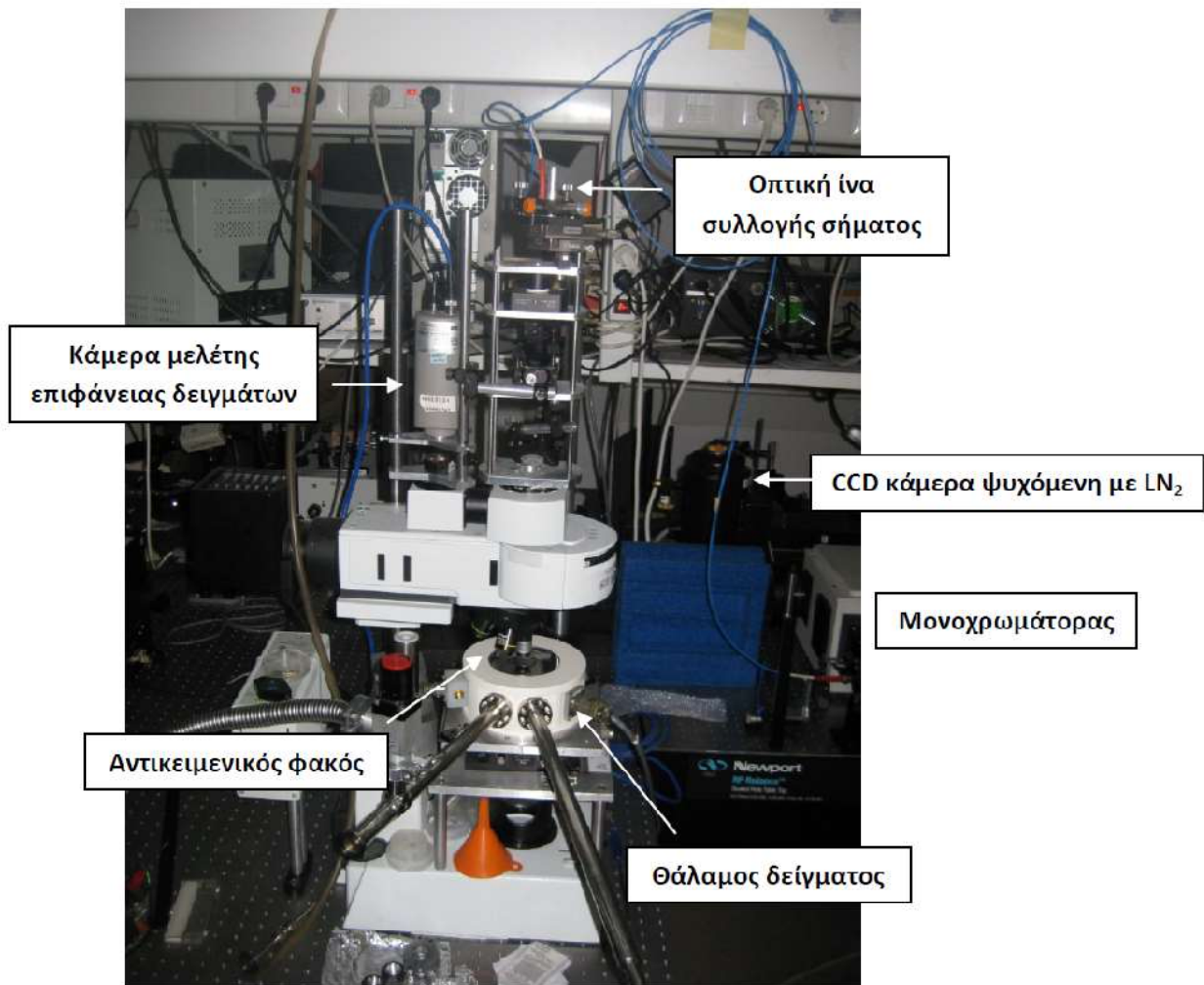
Τα δείγματα που χρησιμοποιήθηκαν σε πειράματα μικροφωτοφωταύγειας στην παρούσα εργασία αποτελούνταν από ένα στρώμα InAs QDs, το οποίο αναπτύχθηκε στη μέση ενός κβαντικού πηγαδιού GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As πάχους 10nm. Για την επίταξη του στρώματος των QDs,

εναποτέθηκε 1.5MLs του InAs στους 500°C με ρυθμό ανάπτυξης ίσο με 0.1 ML/sec. Η πυκνότητα των τελειών που εναποτέθηκαν με τον τρόπο αυτό ήταν ίση με 10^{10} cm^{-2} . Για την απομόνωση των τελειών, το δείγμα κατεργάστηκε με τη χρήση λιθογραφίας δέσμης ηλεκτρονίων, και δομές mesa μεταβλητής διαμέτρου (150 – 500nm) με απόσταση μεγαλύτερη από 15μm δημιουργήθηκαν στην επιφάνεια του δείγματος. Μια τυπική εικόνα των mesa δομών που δημιουργήθηκαν φαίνεται στο Σχ. 4.1.



Σχ. 4.1: Εικόνα SEM από μια τυπική δομή mesa, η οποία χρησιμοποιείται για πειράματα μικροφωτοφωταύγειας (μ-PL). Αναδημοσίευση από [6].

Για την οπτική διέγερση των απομονωμένων δομών mesa χρησιμοποιήθηκε ένα διοδικό λέιζερ συνεχούς εκπομπής στα 405nm. Η δέσμη του λέιζερ εστιαζόταν πάνω στο δείγμα με τη βοήθεια συστήματος φακών και η διάμετρος της εκτιμάται ότι ήταν περίπου 2μm, κατά την πρόσπτωση της στο δείγμα. Το φάσμα εκπομπής των απομονωμένων mesa ανιχνευόταν με τη βοήθεια μιας κάμερας δεσμευμένων φορτίων (charge couple device camera – CCD camera), η οποία ψύχονταν με τη βοήθεια υγρού αζώτου και αναλυόταν με την βοήθεια ενός φασματογράφου μήκους 0.75m εφοδιασμένου με φράγμα περίθλασης 1200 γραμμών ανά mm. Για την μελέτη της επίδρασης της θερμοκρασίας, το ημιαγωγικό δείγμα τοποθετήθηκε σε κρουοστάτη συνεχούς ροής ηλίου και μεταβλητής θερμοκρασίας, ώστε να είναι εφικτή η μελέτη του φάσματος εκπομπής των QDs σε θερμοκρασίες 5 – 300K. Για τη μελέτη του διαχωρισμού λεπτής υφής και την ανάλυση του φάσματος εκπομπής με βάση την πόλωση του εκπεμπόμενου φωτός, χρησιμοποιήθηκαν ένας γραμμικός πολωτής, ο οποίος τοποθετήθηκε στην είσοδο του φασματογράφου, καθώς και ένα πλακίδιο καθυστέρησης $\lambda/2$ για την περιστροφή του άξονα της πόλωσης. Μια εικόνα της πειραματικής διάταξης, που χρησιμοποιήθηκε στα πειράματα μικροφωτοφωταύγειας, φαίνεται στο Σχ. 4.2.

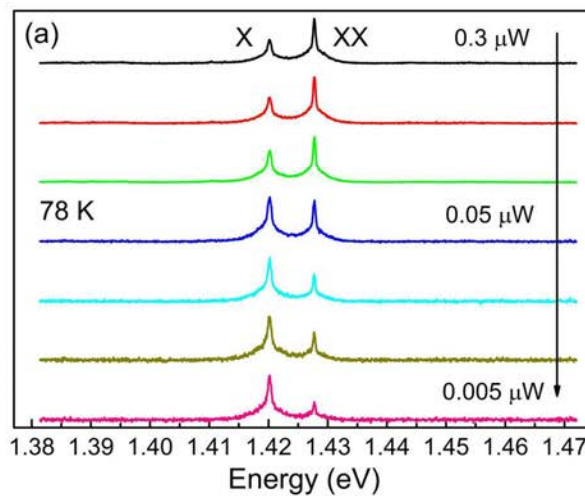


Σχ. 4.2 : Πειραματική διάταξη, η οποία χρησιμοποιήθηκε στα πειράματα μικρο-φωτοφωταύγειας (μ-PL).

4.3. ΚΑΘΟΡΙΣΜΟΣ ΦΑΣΜΑΤΙΚΩΝ ΓΡΑΜΜΩΝ ΕΞΙΤΟΝΙΟΥ – ΔΙΕΞΙΤΟΝΙΟΥ

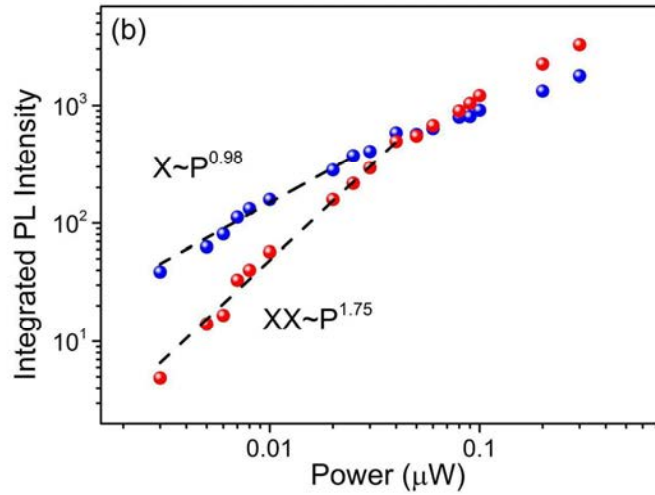
Πειράματα μ-PL έγιναν σε πολλές διαφορετικές δομές mesa και μελετήθηκαν τα φάσματα εκπομπής πολλών διαφορετικών μεμονωμένων QDs σε διαφορετικές συνθήκες θερμοκρασίας και έντασης διέγερσης. Στο Σχ. 4.3 παρουσιάζεται ένα χαρακτηριστικό φάσμα μ-PL από μία απομονωμένη InAs QD επιτασσόμενη σε υπόστρωμα (211) GaAs, κάτω από διαφορετικές εντάσεις διέγερσης στους 78K. Στο φάσμα κυριαρχούν δύο βασικές λεπτές φασματικές κορυφές, οι οποίες προσδιορίζονται ως προερχόμενες από την επανασύνδεση εξιτονίου (X) και διεξιτονίου (XX) από μια συγκεκριμένη QD. Μπορούμε να ταυτοποιήσουμε τις δύο αυτές φασματικές γραμμές, με βάση την εξάρτησή τους από την ένταση διέγερσης, ιδιαίτερα στην περίπτωση που στο φάσμα δεν παρουσιάζονται άλλες κορυφές εκπομπής. Σε χαμηλές

εντάσεις διέγερσης, η φασματική κορυφή του εξιτονίου X κυριαρχεί. Η εικόνα, όμως, αλλάζει καθώς η ένταση διέγερσης μεγαλώνει, με τη φασματική κορυφή του διεξιτονίου XX να αυξάνει ένταση σε σχέση με την κορυφή X, και τελικά να κυριαρχεί σε μεγάλες εντάσεις διέγερσης. Ο λόγος της διαφοροποίησης του φάσματος καθώς αλλάζει η ένταση διέγερσης οφείλεται στο ότι σε χαμηλές εντάσεις διέγερσης, στο χώρο των QD υπάρχει χαμηλή πυκνότητα ηλεκτρονίων και οπών. Οι φορείς αυτοί επανασυνδέονται με τη μορφή εξιτονίου. Καθώς η ένταση διέγερσης αυξάνει, ο ρυθμός διέγερσης ηλεκτρονίων και οπών αυξάνει, με αποτέλεσμα να αυξάνεται η πιθανότητα ύπαρξης περισσότερων του ενός εξιτονίου στο χώρο της QD.



Σχ. 4.3: Εξάρτηση της εκπομπής εξιτονίου X και διεξιτονίου XX από την ισχύ της οπτικής διέγερσης.

Για να εξετάσουμε διεξοδικότερα την εξάρτηση των φασματικών κορυφών από την ένταση διέγερσης, προσαρμόζουμε Λορετζιανές καμπύλες στις κορυφές του φάσματος, και υπολογίζουμε τη συνολική ένταση εκπομπής της κάθε κορυφής. Τα αποτελέσματα της διαδικασίας αυτής φαίνονται στο Σχ. 4.4. Είναι ξεκάθαρη η διαφορετική συμπεριφορά των φασματικών κορυφών εξιτονίου X και διεξιτονίου XX σε συνάρτηση με την ένταση διέγερσης. Ενώ η ένταση της κορυφής X παρουσιάζει γραμμική εξάρτηση ($\sim P^{0.98}$) από την ένταση διέγερσης P , η ένταση του XX παρουσιάζει τετραγωνική εξάρτηση ($\sim P^{1.75}$). Η παραπάνω ανάλυση εφαρμόζεται σε μεγάλο αριθμό μεμονωμένων QD.



Σχ. 4.4: Μεταβολή της συνολικής έντασης εκπομπής της εξιτονικής X και διεξιτονικής XX φασματικής γραμμής σε συνάρτηση με την ένταση διέγερσης. Οι διακεκομμένες γραμμές αναδεικνύουν την γραμμική εξάρτηση της έντασης της φασματικής γραμμής X και η τετραγωνική εξάρτηση της XX από την ένταση διέγερσης. Αναδημοσίευση από [7].

Προτού προχωρήσουμε στην περαιτέρω μελέτη των φασμάτων εκπομπής των μεμονωμένων QDs, θα πρέπει να εξετάσουμε το ενδεχόμενο κάποιες από τις φασματικές γραμμές να αποδίδονται σε άλλα εξιτονικά σύμπλοκα, όπως για παράδειγμα σε φορτισμένα εξιτόνια X^- και X^+ . Τέτοιου είδους υποθέσεις, όμως, μπορούν εύκολα να απορριφθούν, παρόλο που η ένταση των κορυφών των φορτισμένων εξιτονίων συχνά παρουσιάζει μη γραμμική εξάρτηση από την ένταση διέγερσης, όπως και στην περίπτωση του XX. Σε ετεροδομές ενδογενών ημιαγωγών, όπως αυτές που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της παρούσας εργασίας, οι φασματικές γραμμές των X^- και X^+ εμφανίζονται συνήθως ως συμπληρωματικές στην εκπομπή των ουδέτερων εξιτονικών συμπλόκων. Επομένως είναι αναμενόμενο να έχουν σημαντικά μικρότερη ένταση από τις κορυφές X και XX, ακόμα και σε υψηλές εντάσεις διέγερσης. Επιπρόσθετα, στις (211) InAs QDs που είναι πιεζοηλεκτρικές, τα φορτισμένα εξιτόνια αναμένεται να εμφανίζονται σε μικρότερη ενέργεια σε σχέση με την εκπομπή XX, όπως φαίνεται και από τις ενέργειες δέσμευσης τους:

$$E_{bind}^{XX} = -C_{ee} - 2C_{eh} - C_{hh}$$

$$E_{bind}^{X^+} = -C_{eh} - C_{hh}$$

$$E_{bind}^{X^-} = -C_{eh} - C_{ee}$$

Στις παραπάνω σχέσεις οι όροι C_{ee} , $C_{hh} > 0$ και ο όρος $C_{eh} < 0$. Λόγω του πιεζοηλεκτρικού πεδίου, τα ηλεκτρόνια και οι οπές διαχωρίζονται στο χώρο της τελείας, με αποτέλεσμα οι

απώσεις ηλεκτρονίου – ηλεκτρονίου και οπής – οπής είναι αυξημένες σε σχέση με την έλξη ηλεκτρονίων – οπών. Επομένως στις πιεζοηλεκτρικές (211)B InAs QDs αναμένεται να ισχύει:

$$|C_{eh}| < C_{ee} < C_{hh}$$

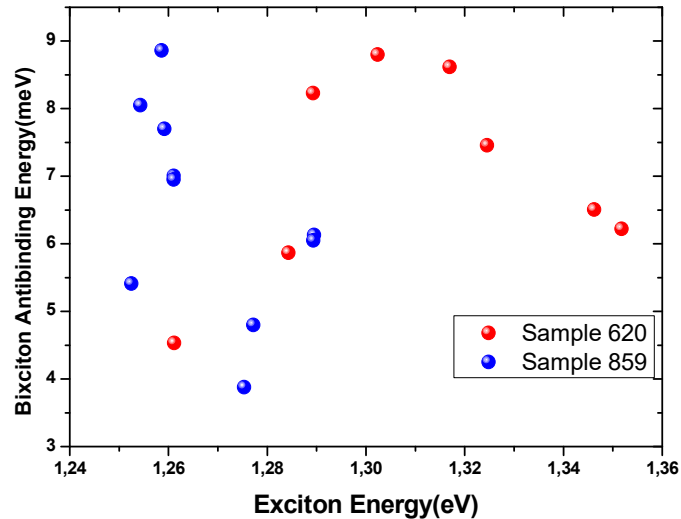
Με βάση τα παραπάνω, προκύπτει ότι:

$$|E_{bind}^{XX}| > |E_{bind}^{X^+}| > |E_{bind}^{X^-}|$$

Αν λοιπόν η φασματική γραμμή του XX, λοιπόν, αποδίδονταν σε ένα από τα X^- ή X^+ , στο φάσμα θα έπρεπε, ειδικά σε πολύ υψηλές εντάσεις διέγερσης, να εμφανίζονται και άλλες φασματικές γραμμές μεγαλύτερης έντασης και σε μεγαλύτερη ενέργεια, οι οποίες να αποδίδονται στο XX ή σε φορτισμένα διεξιτόνια. Τέτοιου είδους φασματικές γραμμές δεν εμφανίζονται. Ένας επιπλέον λόγος, ο οποίος πιστοποιεί ότι η παρατηρούμενη εκπομπή δεν οφείλεται σε επανασύνδεση X^- ή X^+ , είναι ότι στην περίπτωση της συγκεκριμένης QD οι έντονες γραμμές του φάσματος, παρουσιάζουν αξιοσημείωτο FSS μεγαλύτερο των 10meV. Η πειραματική αυτή μέτρηση έρχεται σε αντίθεση με τις θεωρητικές μελέτες, σύμφωνα με τις οποίες οι φασματικές γραμμές των φορτισμένων εξιτονίων δεν παρουσιάζουν τέτοιο διαχωρισμό λόγω γραμμικής πόλωσης⁸.

Επιβεβαιώνοντας την προέλευση των φασματικών γραμμών, προχωρούμε στη μελέτη των φασμάτων. Σε όλες τις QDs που εξετάστηκαν, η ενέργεια του διεξιτονίου XX εμφανίζεται σε υψηλότερη ενέργεια σε σχέση με το εξιτόνιο X. Στην περίπτωση των πιεζοηλεκτρικών QD που εξετάζονται, η ενεργειακή διαφορά ανάμεσα στις φωτεινές γραμμές X και XX είναι περίπου 7.6meV. Η αρνητική ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου E_{bind}^{XX} είναι, όπως αναφέρθηκε παραπάνω, μια ξεκάθαρη συνέπεια της δράσης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου, το οποίο διαχωρίζει ηλεκτρόνια και οπές στο χώρο των τελειών, μειώνοντας την έλξη ανάμεσα τους. Συνεπώς, η συνεισφορά του όρου C_{eh} στη διαμόρφωση της E_{bind}^{XX} είναι μειωμένη σε σχέση με τους όρους C_{ee} και C_{hh} , με αποτέλεσμα η ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου να αποκτά αρνητικό πρόσημο.

Η συμπεριφορά αυτή εμφανίζεται σε όλες τις (211) InAs QDs, που εξετάστηκαν με πειράματα μ -PL και μπορεί να φτάσει τα 10meV, όπως φαίνεται και στο Σχ. 4.5. Στο σχήμα αυτό απεικονίζεται η μεταβολή της αντιδέσμιας ενέργειας $E_{xx} - E_x$ σε σχέση με την ενέργεια του εξιτονίου, για διάφορες απομονωμένες τελείες δύο διαφορετικών δειγμάτων, τα οποία τιτλοφορούνται 620 και 859.

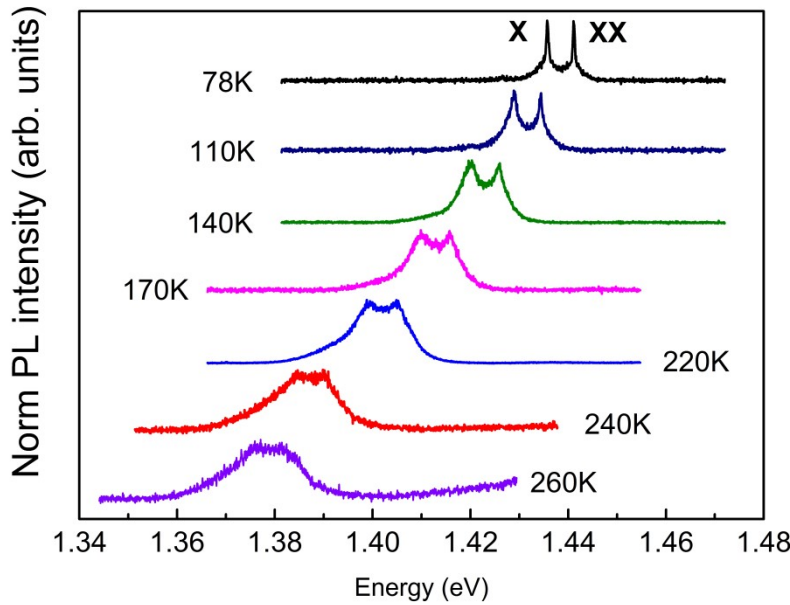


Σχ. 4.5: Μέτρηση της αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου για διάφορες μεμονωμένες QD δύο διαφορετικών δειγμάτων QD, τα οποία ονοματίζονται ως 620 και 859, σε συνάρτηση με την ενέργεια του εξιτονίου.

Από το σχήμα αυτό δεν προκύπτει κάποια ξεκάθαρη τάση για τη μεταβολή της αντιδέσμιας ενέργειας του διεξιτονίου σε σχέση με την ενέργεια του εξιτονίου, και συνεπώς με τις διαστάσεις της QD. Το γεγονός αυτό έρχεται σε αντίθεση με την αναμενόμενη επίδραση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου σε QDs διαφορετικού μεγέθους. Θεωρητικά, όσο μεγαλύτερο είναι το ύψος της τελείας, τόσο εντονότερος είναι ο διαχωρισμός των φορέων, που δημιουργεί το πιεζοηλεκτρικό πεδίο. Επομένως σε τελείες μεγάλου ύψους οι απώσεις ηλεκτρονίου – ηλεκτρονίου και οπής – οπής είναι εξαιρετικά αυξημένες σε σχέση με την έλξη ηλεκτρονίων – οπών σε σύγκριση με τις ρηχές τελείες όπου η απόκλιση των φορέων είναι σχετικά μικρή. Συνεπώς θα έπρεπε η ενεργειακή διαφορά $E_{xx} - E_x$ να είναι αυξημένη στις τελείες μεγάλου ύψους σε σχέση με τις ρηχές τελείες. Παρόλα αυτά, η αντιδέσμια ενέργεια του διεξιτονίου δεν φαίνεται να παρουσιάζει τέτοιου είδους καθαρή εξάρτηση από τις διαστάσεις των τελειών. Μπορεί κανείς να συμπεράνει ότι υπεισέρχονται και άλλα φαινόμενα στην επίδραση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου, τα οποία περιπλέκουν τη μελέτη και καθιστούν απαραίτητη την ανάπτυξη ενός πλήρους θεωρητικού μοντέλου, το οποίο να ερμηνεύει την παραπάνω συμπεριφορά.

Στο Σχ. 4.6 φαίνεται η εξέλιξη της εκπομπής φωτός από μια μεμονωμένη QD σε σχέση με τη θερμοκρασία. Κατά τη διάρκεια των μετρήσεων, σε κάθε θερμοκρασία, η ισχύς διέγερσης ρυθμίζεται κατάλληλα ώστε να βρίσκεται μόλις κάτω από το επίπεδο κορεσμού της

εξιτονικής μετάβασης. Με τον τρόπο αυτό, η άντληση των καταστάσεων X και XX διατηρείται σταθερή σε όλες τις θερμοκρασίες.



Σχ. 4.6: Μελέτη του φάσματος μ-PL που λαμβάνεται από μια απομονωμένη QD για θερμοκρασίες 78 – 260K. Οι φασματικές γραμμές εξιτονίου X και διεξιτονίου XX διακρίνονται σχετικά εύκολα ακόμη και σε θερμοκρασίες 200K. Αναδημοσίευση από [7].

Δύο είναι οι βασικές παρατηρήσεις που εξάγονται από τη μελέτη του Σχ. 4.6. Πρώτα από όλα, καθώς αυξάνεται η θερμοκρασία, οι δύο κορυφές του φάσματος υφίστανται μια ερυθρή μετατόπιση. Η μετατόπιση αυτή είναι σε συμφωνία με τη μείωση του ενεργειακού χάσματος ενός ημιαγωγού καθώς αυξάνεται η θερμοκρασία, που προβλέπει ο Νόμος του Varshni⁹:

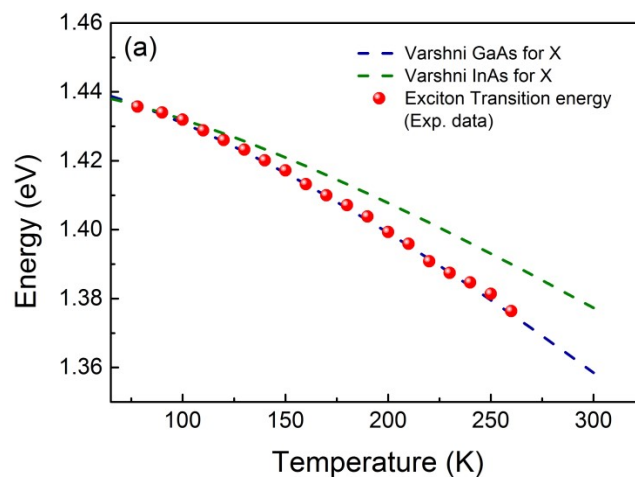
$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha \cdot T^2}{\beta + T}$$

Για την πληρέστερη κατανόηση της θερμοκρασιακής εξέλιξης του φάσματος, προχωρούμε σε θεωρητικό υπολογισμό της μεταβολής της ενέργειας του X σε σχέση με τη θερμοκρασία, με τη βοήθεια του Νόμου του Varshni. Για τους υπολογισμούς χρησιμοποιήθηκαν οι τιμές των σταθερών α και β του GaAs, του InAs, αλλά και του In_{0.5}Ga_{0.5}As. Στην περίπτωση των GaAs και InAs οι τιμές των σταθερών ελήφθησαν από τη βιβλιογραφία, και οι αντίστοιχες σχέσεις που χρησιμοποιήθηκαν είναι¹⁰:

$$E^{GaAs}(T) = E^{GaAs}(0) - \frac{0.00058T^2}{300 + T}$$

$$E^{InAs}(T) = E^{InAs}(0) - \frac{0.000419T^2}{271 + T}$$

Θα πρέπει να σημειωθεί ότι η θερμοκρασιακή εξάρτηση του ενεργειακού χάσματος είναι ανεξάρτητη από την κρυσταλλική διεύθυνση. Το αποτέλεσμα της σύγκρισης των πειραματικών αποτελεσμάτων με τη θεωρητική πρόβλεψη από το Νόμο του Varshni, απεικονίζονται στο Σχ. 4.7. Όπως μπορεί κανείς να παρατηρήσει, η θερμοκρασιακή μεταβολή της ενέργειας του X ακολουθεί σε μεγάλο βαθμό το Νόμο του Varshni για το GaAs. Το γεγονός αυτό μπορεί εν μέρει να αποδοθεί στο ότι ένα σημαντικό μέρος των κυματοσυναρτήσεων των φορέων βρίσκεται στο χώρο του φράγματος του GaAs, εξαιτίας του μικρού μεγέθους της τελείας. Επιπρόσθετα, το αποτέλεσμα αυτό είναι ενδεικτικό της σύστασης των QDs, της ανάμειξης InAs και GaAs, η οποία μειώνει το ποσοστό του In στο χώρο της τελείας, και είναι σε καλή συμφωνία με τις μετρήσεις TEM σχετικά με τη σύσταση των τελειών.



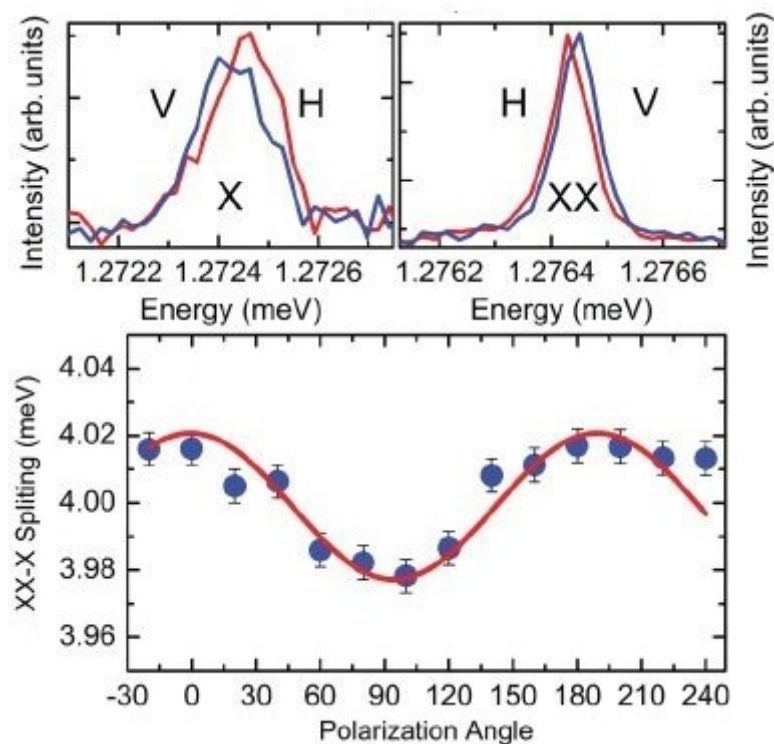
Σχ. 4.7: Μείωση της ενέργειας του εξιτονίου X σε συνάρτηση με τη θερμοκρασία. Οι διακεκομμένες γραμμές περιγράφουν την αντίστοιχη μεταβολή που προβλέπεται θεωρητικά με βάση το Νόμο του Varshni, αν χρησιμοποιηθούν οι σταθερές του InAs και του GaAs. Αναδημοσίευση από [7].

Επιπρόσθετα, η αύξηση της θερμοκρασίας προκαλεί μια σταδιακή υποχώρηση της έντασης των φασματικών κορυφών X και XX , η οποία συνοδεύεται από τη ταυτόχρονη διεύρυνση τους, όπως φαίνεται στο Σχ. 4.5. Η μείωση της έντασης αποτελεί μια ξεκάθαρη ένδειξη ότι ο αριθμός των φορέων που συμμετέχουν στην ακτινοβόλο επανασύνδεση μειώνεται, και μπορεί να αποδοθεί στους ακόλουθους λόγους. Πρώτον, η αύξηση της θερμοκρασίας έχει ως αποτέλεσμα τη θερμική ενεργοποίηση των φορέων. Επομένως είναι

ευκολότερο για αυτούς να διαφύγουν από την τελεία είτε προς το WL είτε προς το GaAs, όπου υφίστανται μη ακτινοβολητική επανασύνδεση. Επιπρόσθετα, η αύξηση της θερμοκρασίας έχει ως αποτέλεσμα μια μικρή αύξηση του χρόνου ακτινοβόλου επανασύνδεσης, φαινόμενο που συμβάλλει στην περαιτέρω εξασθένιση της έντασης της μ -PL.

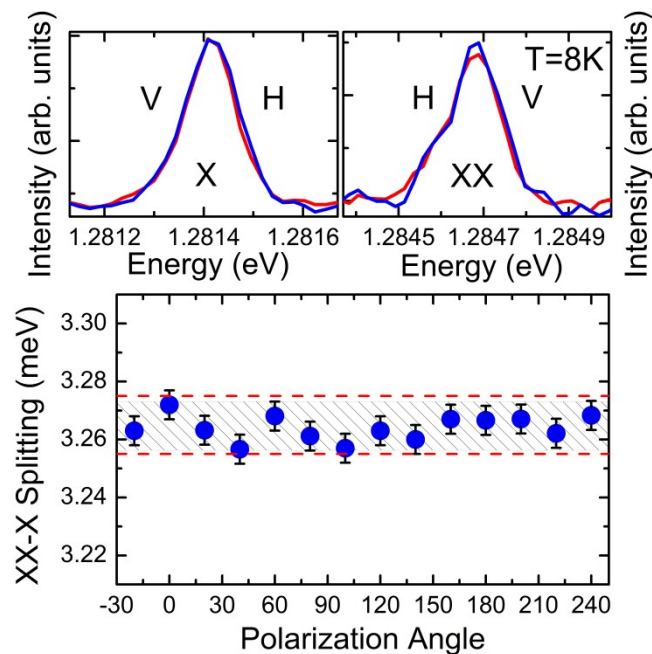
4.4 ΔΙΑΧΩΡΙΣΜΟΣ ΛΕΠΤΗΣ ΥΦΗΣ

Για να προσδιορίσουμε το διαχωρισμό λεπτής υφής FSS στις (211)B InAs/GaAs QDs, πραγματοποιήθηκαν πειράματα μ -PL, στα οποία μελετήθηκε η πόλωση των φασματικών γραμμών X και XX. Στα πλαίσια της μελέτης αυτής εξετάστηκε ένας μεγάλος αριθμός τελειών και χρησιμοποιήθηκαν τεχνικές αποπεριέλιξης για το διαχωρισμό των φασματικών κορυφών. Θα πρέπει να σημειωθεί ότι, λαμβάνοντας υπόψη την ακρίβεια του μετρητικού συστήματος, καθώς και το εύρος της φασματικής κορυφής του εξιτονίου X, το οποίο είναι περίπου 100 μ eV, η ανάλυση του οργάνου εκτιμάται ότι είναι περίπου ίση με 10 μ eV. Μάλιστα, η ανάλυση αυτή μπορεί να βελτιωθεί ακόμη περισσότερο, αν προσαρμόσει κανείς στις φασματικές κορυφές Λορεντζιανές καμπύλες, προκειμένου να προσδιορίσει με μεγαλύτερη ακρίβεια τις ενέργειες εξιτονίου και διεξιτονίου¹¹.



Σχ. 4.8: α) Ανάλυση με βάση την πόλωση των φασματικών γραμμών X και XX, που εκπέμπονται από (211) InAs/GaAs QD, η οποία παρουσιάζει αξιοσημείωτο FSS. β) Μεταβολή της αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου XX-X σε συνάρτηση με τη γωνία πόλωσης. Από την προσαρμογή ημιτονοειδούς καμπύλης προκύπτει τιμή FSS ίση με 20 μ eV για τη συγκεκριμένη τελεία. Αναδημοσίευση από [6].

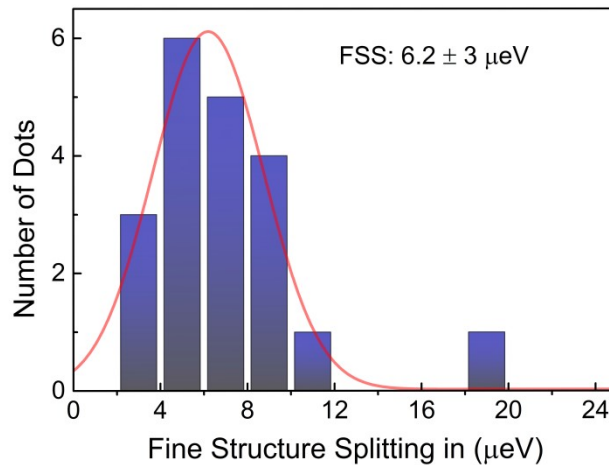
Από τις QDs που μελετήθηκαν ελάχιστες παρουσίασαν FSS μεγαλύτερα από την ακρίβεια του μετρητικού συστήματος. Μια τέτοια περίπτωση φαίνεται στο Σχ. 4.8, όπου απεικονίζεται η εξάρτηση της εκπομπής X και XX μιας QD από την πόλωση. Παρατηρούμε ότι ενώ η ένταση των φασματικών γραμμών παραμένει ανεπηρέαστη από την πόλωση, η ενέργεια τους μεταβάλλεται με τη γωνία του πολωτή προς την αντίθετη κατεύθυνση του φάσματος. Προσαρμόζουμε τις φασματικές κορυφές με Λορετζιανές καμπύλες, και προσομοιώνουμε τη μεταβολή της ενεργειακής διαφοράς XX-X σε συνάρτηση με την γωνία πόλωσης με μια ημιτονοειδή συνάρτηση. Από την παραπάνω προσομοίωση, προκύπτει ότι η ενεργειακή διαφορά XX-X παρουσιάζει μια ημιτονοειδή περιοδικότητα 180°. Από τη μέγιστη και την ελάχιστη τιμή της ενεργειακής αυτής διαφοράς, συμπεραίνουμε ότι ο διαχωρισμός λεπτής υφής στις τελείες αυτές είναι ίσος περίπου με 20μeV.



Σχ. 4.9: α) Ανάλυση με βάση την πόλωση των φασματικών γραμμών X και XX, που εκπέμπονται από (211) InAs/GaAs QD με μικρό FSS. β) Μεταβολή της αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου XX-X σε συνάρτηση με τη γωνία πόλωσης για την παραπάνω τελεία. Ανεξάρτητα από τη γωνία πόλωσης, η ενεργειακή διαφορά βρίσκεται στη σκιαγραφημένη περιοχή εύρους 20μeV, υποδηλώνοντας τιμή FSS μικρότερη από 10μeV. Αναδημοσίευση από [6].

Στις περισσότερες από τις QDs που εξετάστηκαν, η τιμή του FSS που υπολογίστηκε ήταν μικρότερη από 10μeV, στα όρια του σφάλματος του μετρητικού μας συστήματος. Ένα τυπικό παράδειγμα τέτοιας τελείας απεικονίζεται στο Σχ. 4.9, στο οποίο οι ενέργειες των φασματικών κορυφών X και XX δεν φαίνεται να επηρεάζονται από την πόλωση, ενώ η ενεργειακή διαφορά XX-X δεν παρουσιάζει ημιτονοειδή μεταβολή σε σχέση με τη γωνία πόλωσης, όπως φαίνεται στο Σχ. 4.8. Στις τελείες αυτές η ενεργειακή διαφορά XX-X βρίσκεται

μέσα σε μια στενή σκιαγραφημένη περιοχή εύρους 20μeV, γεγονός που αναδεικνύει ότι ο διαχωρισμός λεπτής υφής είναι μικρότερος από 10μeV.



Σχ. 4.10: Στατιστική κατανομή των τιμών FSS των (211) InAs QDs που εξετάστηκαν. Στο σχήμα φαίνεται, επίσης, η Γκαουσιανή καμπύλη, που προσαρμόζεται στα δεδομένα, καθώς και η μέση τιμή του FSS που εξάγεται από την προσαρμογή της Γκαουσιανής καμπύλης. Αναδημοσίευση από [6].

Προκειμένου να αποδώσουμε μια τιμή υφής λεπτού διαχωρισμού, αφαιρούμε τις τιμές της ενεργειακής διαφοράς $XX-X$ στις γωνίες πόλωσης 0° και 90° και διαιρούμε με το 2. Το ιστόγραμμα των τιμών διαχωρισμού λεπτής υφής που παίρνουμε με την παραπάνω διαδικασία απεικονίζεται στο Σχ. 4.10¹⁰. Από το Σχ. 4.10 επιβεβαιώνεται ότι μόνο το 10% των QDs παρουσιάζουν ένα διαχωρισμό μεγαλύτερο από 10μeV. Υποθέτοντας μια Γκαουσιανή κατανομή για την μεταβολή του διαχωρισμού λεπτής υφής, προκύπτει μια μέση τιμή ίση με 6.2μeV. Η τιμή αυτή είναι εξαιρετικά μικρή αν συγκριθεί με τη τιμή FSS, η οποία συναντάται στις (100) InAs/GaAs QDs¹¹, η οποία μπορεί να φτάσει μέχρι και μερικές δεκάδες μeV και απαιτούνται εξειδικευμένες τεχνικές για τη μείωση της¹².

BIBΛΙΟΓΡΑΦΙΚΕΣ ΑΝΑΦΟΡΕΣ

- [1] J.-Y. Marzin, J.-M. Gerard, A. Izrael, D. Barrier and G. Bastard, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 716 (1994).
- [2] A. Kuther, M. Bayer, A. Forchel, A. Gorbunov, V.B. Timofeev, F. Schafer and J.P. Reithmaier, *Phys. Rev. B* **58**, R7508 (1998).
- [3] D. Hessman, P. Castrillo, M.-E. Pistol, C. Pryor and L. Samuelson, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 749 (1996).

- [4] M. Grundmann, J. Christen, N.N. Ledentsov, J. Bohrer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gosele, J. Heydenreich, V. Ustinov, A.Y. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kopev, and Z.I. Alferov, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4043 (1995).
- [5] U. Hakanson, M.K. Johansson, J. Persson, J. Johansson, M.-E. Pistol, L. Montelius and L. Samuelson, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 494 (2002).
- [6] S. Germanis, A. Beveratos, G.E. Dialynas, G. Deligeorgis, P.G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, N.T. Pelekanos, *Physical Review B*, 86(3), 035323 (2012)
- [7] Σ. Γερμάνης, Διδακτορική Διατριβή, Τμήμα Επιστήμης και Τεχνολογίας Υλικών, Πανεπιστήμιο Κρήτης (2015).
- [8] G.A. Narvaez, G. Bester, and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **72**, 245318 (2005).
- [9] Y.P. Varshni, *Physica* **34**, 149 (1967).
- [10] M. Baira, L. Bouzaiene, L. Sfaxi, H. Maaref, O. Marty, and C. Bru-Chevallier, *J. Appl. Phys.*, **105**, 094322, 2009.
- [11] R. J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, K. M. Groom, A. I. Tartakovskii, and M. S. Skolnick, *Phys. Rev. B*, **72**, 1 (2005).
- [12] D. J. P. Ellis, R. M. Stevenson, R. J. Young, A. J. Shields, P. Atkinson, and D. A. Ritchie, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 011907 (2007).

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5: ΘΕΩΡΗΤΙΚΗ ΜΕΛΕΤΗ ΚΒΑΝΤΙΚΩΝ ΤΕΛΕΙΩΝ

5.1 ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Στα προηγούμενα κεφάλαια προχωρήσαμε στη μελέτη των δομικών, μορφολογικών και οπτικών ιδιοτήτων των (211)B InAs QDs. Προκειμένου να συσχετίσουμε τις δομικές και οπτικές ιδιότητες και να ερευνήσουμε το ρόλο της κρυσταλλογραφικής διεύθυνσης, αναπτύχθηκε ένα τρισδιάστατο θεωρητικό μοντέλο. Το μοντέλο λαμβάνει υπόψη του την επίδραση της ανάπτυξης υπό τάση καθώς και τα πιεζοηλεκτρικά φαινόμενα πρώτης και δεύτερης τάξης, και υπολογίζει τις ενέργειες ηλεκτρονίων και οπών με επίλυση της εξίσωσης Schrodinger στα πλαίσια της προσέγγισης ενεργού μάζας. Οι ενέργειες εξιτονίου και διεξιτονίου υπολογίζονται μέσω αλληλεπίδρασης σχηματισμών (configuration interaction - CI), λαμβάνοντας υπόψη φαινόμενα συσχέτισης. Στις επόμενες παραγράφους θα επιχειρήσουμε μια λεπτομερέστερη εξήγηση των παραμέτρων που χρησιμοποιήθηκαν στους υπολογισμούς μας καθώς και μια παρουσίαση των κυριότερων αποτελεσμάτων. Ταυτόχρονα, θα επιχειρηθεί και μια σύγκριση μεταξύ θεωρητικών αποτελεσμάτων και πειραματικών δεδομένων και θα εξεταστεί η ακρίβεια του θεωρητικού μοντέλου.

5.2 ΠΑΡΟΥΣΙΑΣΗ ΘΕΩΡΗΤΙΚΟΥ ΜΟΝΤΕΛΟΥ

Το μοντέλο που αναπτύχθηκε στα πλαίσια της παρούσας εργασίας αποτελείται από πέντε βασικά βήματα, όπως φαίνεται και στο διάγραμμα ροής του Σχ. 5.1. Στην συνέχεια της ενότητας αυτής περιγράφουμε ορισμένες βασικές λεπτομέρειες των βημάτων αυτών. Όπου είναι αναγκαίο παρουσιάζονται και οι πιο συχνά χρησιμοποιούμενες μέθοδοι μοντελοποίησης κβαντικών τελειών, όπως αυτές αναφέρονται στη βιβλιογραφία.

5.2.1 ΣΧΗΜΑ – ΜΕΓΕΘΟΣ ΝΑΝΟΔΟΜΩΝ

Οι κβαντικές τελείες που εξετάστηκαν στα πλαίσια του θεωρητικού μοντέλου ήταν In_xGa_{1-x}As / GaAs αναπτυγμένες κατά τη (211) κρυσταλλογραφική διεύθυνση. Για να προσομοιωθεί ο Stranski – Krastanow τρόπος ανάπτυξης των τελειών, οι δομές που μοντελοποιήθηκαν περιελάμβαναν ένα λεπτό διδιάστατο στρώμα InAs πάχους περίπου 1ML, το οποίο παρεμβάλλονταν ανάμεσα στις QDs και στο υπόστρωμα του GaAs. Το σχήμα και το μέγεθος

των μοντελοποιημένων QDs επιλέχθηκαν ώστε να βρίσκονται σε συμφωνία με τα συμπεράσματα που προέκυψαν από το δομικό και μορφολογικό χαρακτηρισμό των δειγμάτων QD που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της εργασίας αυτής. Οι τελείες που μοντελοποιήθηκαν, είχαν σχήμα συντετμημένης πυραμίδας με λόγο πλευρικών διαστάσεων – ύψους ίσο με 20. Σε ότι αφορά το ύψος των τελειών που εξετάστηκε, θεωρητικοί υπολογισμοί έγιναν μόνο σε τελείες μικρού ύψους, περίπου 2-4nm. Μεγαλύτερες νανοδομές αποκλείστηκαν από τη μελέτη, μια και όπως αναδείχθηκε σε προηγούμενες ενότητες της εργασίας, οι (211)B InAs QDs μεγάλου μεγέθους είναι οπτικά ανενεργές εξαιτίας της μεγάλης πυκνότητας εξαρμώσεων που περιέχουν. Μια ακόμη παράμετρος της ετεροδομής, η οποία μελετήθηκε, ήταν η περιεκτικότητα των κβαντικών τελειών σε In. Στα πλαίσια της εργασίας εξετάστηκαν QDs με περιεκτικότητα In που ποικίλλει μεταξύ του 30% και του 100%. Εξετάστηκαν ακόμη τελείες, στις οποίες το ποσοστό του In μεταβάλλεται βαθμιαία κατά μήκος του άξονα επίταξης, ώστε να είναι σε καλύτερη συμφωνία με τα αποτελέσματα των μετρήσεων TEM.

5.2.2. ΒΗΜΑΤΑ ΘΕΩΡΗΤΙΚΟΥ ΜΟΝΤΕΛΟΥ

Στην παράγραφο αυτή περιγράφουμε τα βήματα του μοντέλου, που χρησιμοποιούμε για τη θεωρητική μελέτη των οπτικών και ηλεκτρονικών ιδιοτήτων των QDs και να καθορίσουμε λεπτομερώς σε ποιο βαθμό τα πειραματικά αποτελέσματα συνδέονται με τα θεωρητικά αποτελέσματα. Τα κύρια στάδια της θεωρητικής προσέγγισης των QDs φαίνονται στο Σχ. 5.1.

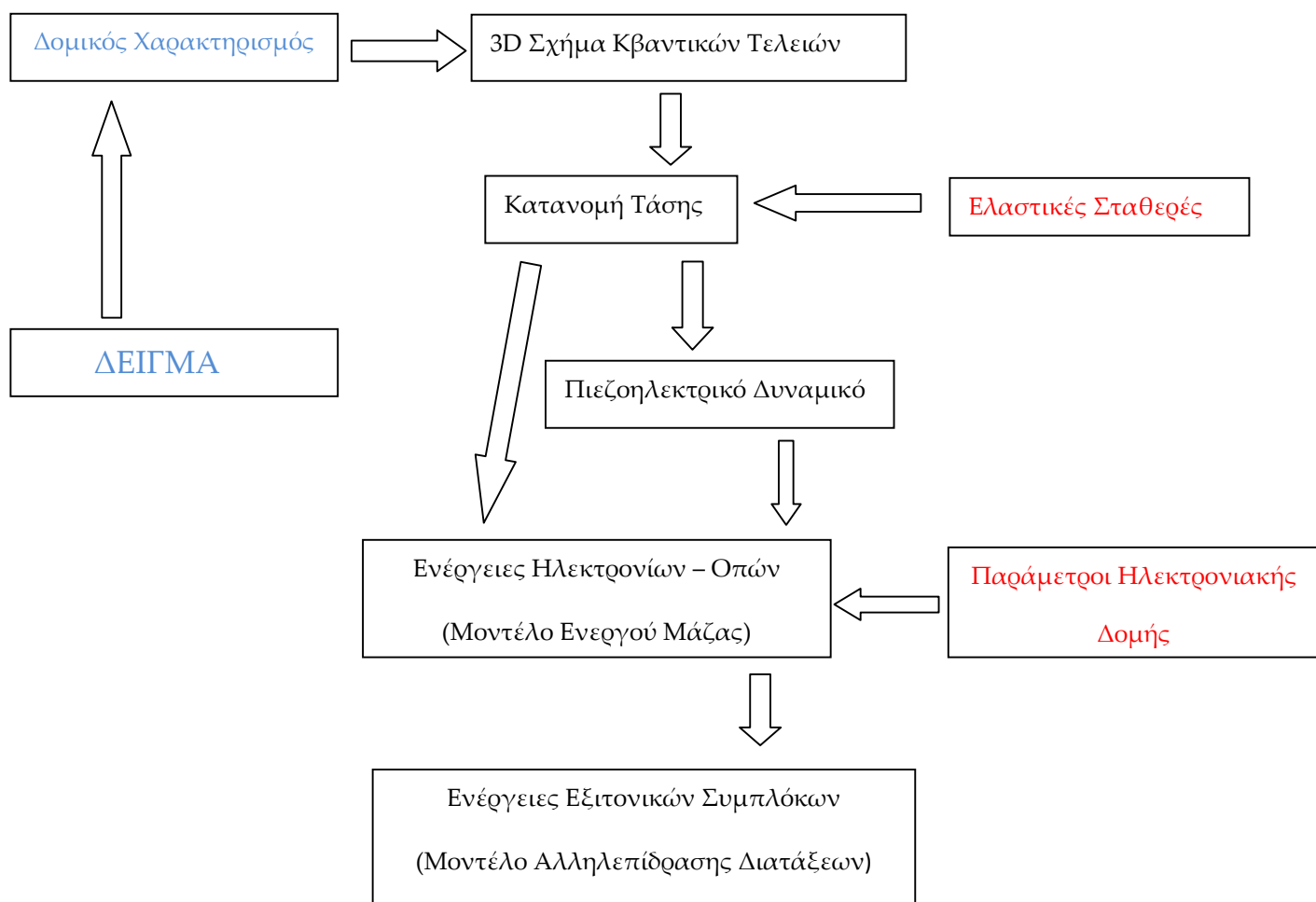
Μια σημαντική παράμετρος, η οποία επηρεάζει σημαντικά τις ιδιότητες των κβαντικών τελειών είναι η κατανομή της τάσης σε όλο τον όγκο της τελείας και στο περιβάλλον υλικό. Για τον υπολογισμό της τάσης δεν χρησιμοποιήθηκαν δυναμικά ατομικιστικά μοντέλα, τα οποία μελετούν τον ενεργειακά συμφερότερο τρόπο σύνδεσης των ατόμων και αναπαράγουν το σχήμα των τελειών και την κατανομή της τάσης ούτε μελετήθηκε η μεταβολή της τάσης κατά τη διάρκεια της δημιουργίας της QD. Αντίθετα, στο μοντέλο το σχήμα, το μέγεθος και η σύσταση των αναπτυσσόμενων QDs θεωρούνται δεδομένα και με βάση αυτά υπολογίζεται η κατανομή της τάσης σε όλο τον όγκο της τελείας αλλά και στο περιβάλλον υλικό. Το μοντέλο υπολογισμού της τάσης λαμβάνει υπόψη του την επίδραση της ανάπτυξης σε υπόστρωμα υψηλού κρυσταλλογραφικού δείκτη. Τέλος θα πρέπει να αναφερθεί ότι οι ελαστικές

σταθερές, που χαρακτηρίζουν το υλικό της τελείας και το περιβάλλον υλικό και είναι απαραίτητες για τον υπολογισμό της τάσης, αντλούνται από πειραματικά δεδομένα.

Στη συνέχεια του μοντέλου, η κατανομή της τάσης χρησιμοποιείται ως δεδομένο για τον προσδιορισμό του πιεζοηλεκτρικού πεδίου. Κατά τον υπολογισμό του πεδίου λαμβάνονται υπόψη τόσο γραμμικά όσο και μη γραμμικά πιεζοηλεκτρικά φαινόμενα. Επιπρόσθετα, προσδιορίζεται η επίπτωση της τάσης στη διαμόρφωση του ενεργειακού χάσματος των υλικών της ετεροδομής. Με τη βοήθεια όλων των παραπάνω παραγόντων καθορίζεται το περιοριστικό δυναμικό ηλεκτρονίων και οπών στο χώρο της τελείας.

Το επόμενο βήμα του θεωρητικού μοντέλου είναι ο προσδιορισμός των καταστάσεων μονού σωματιδίου. Με δεδομένο ότι ο αριθμός των ατόμων που περιέχονται σε μια QD είναι αρκετά μεγάλος (10^5 άτομα και περισσότερα) η χρήση ενός ημιεμπειρικού μοντέλου, όπως η προσέγγιση ενεργού μάζας θεωρείται ιδανική επιλογή. Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας, για τον προσδιορισμό των ιδιοενεργειών και των ιδιοκαταστάσεων ηλεκτρονίων και οπών στο χώρο της QD, ακολουθήθηκε η προσέγγιση ενεργού μάζας. Οι παράμετροι, που χρησιμοποιήθηκαν στα πλαίσια της προσέγγισης της ενεργού μάζας για τον προσδιορισμό της ηλεκτρονιακής δομής σε ετεροδομές $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$, αντλήθηκαν από τη βιβλιογραφία. Στον υπολογισμό των ιδιοενεργειών και των ιδιοκαταστάσεων στις παραπάνω νανοδομές λαμβάνεται υπόψη και η επίδραση της επίταξης υπό τάση, η οποία ως γνωστό παραμορφώνει το διάγραμμα ενεργειακών ζωνών των υλικών. Για τη μελέτη των αλληλεπιδράσεων πολλών σωματιδίων, όπως η αλληλεπίδραση Coulomb μεταξύ ηλεκτρονίων – οπών καθώς και τα φαινόμενα συσχέτισης, χρησιμοποιείται η προσέγγιση της αλληλεπίδρασης σχηματισμών (configuration interaction – CI). Στα πλαίσια της προσέγγισης αυτής, όπως θα φανεί σε επόμενη παράγραφο, με σύζευξη των κυματοσυναρτήσεων που αντιστοιχούν στις δέσμιες καταστάσεις ηλεκτρονίων και οπών, δημιουργούνται ορίζουσες Slater. Πάνω στις ορίζουσες αυτές δρουν οι Χαμιλτωνιανές των εξιτονικών συμπλόκων, λύνεται το αντίστοιχο πρόβλημα ιδιοτιμών και προσδιορίζονται οι ενέργειες του εξιτονίου και των εξιτονικών συμπλόκων.

Μια σχηματική αναπαράσταση του διαγράμματος ροής του θεωρητικού μοντέλου, φαίνεται στο παρακάτω σχήμα. Από το σχήμα αυτό φαίνεται ότι το τρισδιάστατο σχήμα των δομών QDs, οι οποίες προσομοιώνονται με τη βοήθεια του μοντέλου, επιλέγεται ώστε να ταιριάζει με τα μορφολογικά και δομικά χαρακτηριστικά των QDs, που προσδιορίστηκαν από τις μετρήσεις AFM και TEM.



Σχ. 5.1: Διάγραμμα ροής του θεωρητικού μοντέλου, το οποίο αναπτύχθηκε στα πλαίσια της παρούσας εργασίας.

Στις υποενότητες που ακολουθούν προχωρούμε σε μια λεπτομερέστερη παρουσίαση των κυριότερων σημείων του θεωρητικού μοντέλου, καθώς και των αποτελεσμάτων του.

5.2.3. ΥΠΟΛΟΓΙΣΜΟΣ ΕΛΑΣΤΙΚΗΣ ΤΑΣΗΣ

Το πρώτο βήμα για την μοντελοποίηση των δομών QDs, μετά τον καθορισμό των παραμέτρων της εξεταζόμενης νανοδομής, είναι ο προσδιορισμός της κατανομής της ελαστικής τάσης. Η κατανομή αυτή έχει ιδιαίτερη σημασία για τις ιδιότητες των QDs καθώς επηρεάζει τη μορφή του περιοριστικού δυναμικού, που αντιλαμβάνονται τα ηλεκτρόνια και

τις οπές. Για τον προσδιορισμό της κατανομής της τάσης ακολουθούνται στη βιβλιογραφία πολλές διαφορετικές προσεγγίσεις. Οι κυριότερες από αυτές είναι:

- I. Το ιστροπικό μοντέλο^{1,2}.
- II. Το μοντέλο της συνεχούς ελαστικότητας^{3,4}.
- III. Το μοντέλο του πεδίου των δυνάμεων σθένους^{5,6,7}.

Στην παρούσα εργασία ακολουθήθηκε τεχνική⁸⁻¹⁰, η οποία βασίζεται στο μετασχηματισμό Fourier των συναρτήσεων Green, και λαμβάνει υπόψη του την ανισοτροπία των ελαστικών σταθερών σε μια κυβική κρυσταλλική δομή, όπως αυτή των InAs/GaAs QDs που ακολουθούν την κρυσταλλική δομή σφαλερίτη (zinc-blende). Για να απλουστεύσουμε όσο το δυνατό περισσότερο τους υπολογισμούς, θεωρούμε ότι τόσο το υλικό της τελείας όσο και το περιβάλλον υλικό έχουν τις ίδιες ελαστικές σταθερές, αλλά διαφορετικές πλεγματικές σταθερές.

Για να υπολογίσουμε το διάνυσμα της μετατόπισης κατά την κατεύθυνση i της κρυσταλλικής δομής, χρησιμοποιούμε τη συνέλιξη του τανυστη Green $G_{in}(r,r')$ και της στοιχειώδους δύναμης dF_n σε όλο το χώρο της QD.

$$u_i(r) = u_i^{(0)}(r) + \int_{\Omega} G_{in}(r,r')\delta(r-r')dF_{\Omega}(r')$$

Στην παραπάνω σχέση το $u_i^{(0)}(r)$ εκφράζει τη μετατόπιση, η οποία προκαλείται από τη διαφορά των πλεγματικών σταθερών του υλικού της QD και του περιβάλλοντος υλικού. Στην ίδια εξίσωση, ο τανυστής Green $G_{in}(r,r')$ δίνει τη μετατόπιση σε μια θέση r της ετεροδομής κατά τη κατεύθυνση i , όταν ασκείται μια απειροστή δύναμη dF_n σε μια διαφορετική διεύθυνση n , ενώ ο δείκτης i συμβολίζει τις τρεις διαφορετικές χωρικές κατευθύνσεις. Οι στοιχειώδεις αυτές δυνάμεις που ασκούνται κατά την κατεύθυνση n μπορούν να εκφραστούν μέσω της σχέσης:

$$dF_n = \sigma_{nk} \cdot dS_k$$

Όπου σ_{nk} είναι τα στοιχεία του τανυστή της πίεσης και το dS_k συμβολίζει μια στοιχειώδη επιφάνεια του κρυστάλλου σε μια θέση r' , στην οποία ασκείται η δύναμη dF_n . Στην περίπτωση που οι ελαστικές σταθερές είναι ίσες στο χώρο της τελείας και στο περιβάλλον υλικό, ο τανυστής Green ικανοποιεί την ακόλουθη εξίσωση:

$$\lambda_{iklm} \frac{\partial G_{ln}}{\partial x_k \partial x_m} = -\delta(r) \cdot \delta_{in}$$

Όπου λ_{iklm} είναι τα στοιχεία του τανυστή ελαστικότητας, τα οποία ικανοποιούν τη σχέση:

$$\sigma_{nk} = \lambda_{nkpr} \cdot e_{pr}$$

Όπου e_{pr} είναι τα στοιχεία του τανυστή της τάσης, τα οποία στην περίπτωση κυβικών κρυσταλλικών δομών, όπως η ετεροδομή InAs/GaAs έχουν τη μορφή:

$$e_{pr} = \frac{\alpha_M - a_{QD}}{a_{QD}} \delta_{pr}$$

Όπου τα α_M και a_{QD} είναι οι πλεγματικές σταθερές του περιβάλλοντος υλικού και του υλικού της τελείας αντίστοιχα. Με βάση τα παραπάνω η σχέση που μας δίνει τη μετατόπιση u_i παίρνει τη μορφή:

$$u_i(r) = u_i^T(r) \cdot x_{QD}(r) + \int_{\Omega} G_{in}(r, r') \cdot \lambda_{nkpr} \cdot e_{pr} \cdot dS_k$$

Στην παραπάνω σχέση το x_{QD} είναι μια συνάρτηση, η οποία ονομάζεται χαρακτηριστική συνάρτηση της QD. Η συνάρτηση αυτή παίρνει τη τιμή 1 στο χώρο της τελείας, και γίνεται ίση με 0 στον περιβάλλοντα χώρο. Από τη σχέση, χρησιμοποιώντας το θεώρημα Gauss και κάνοντας χρήση του τανυστή της τάσης στη θέση της μετατόπισης $u_i(r)$, καταλήγουμε στην εξής σχέση:

$$e_{ij}(r) = e_{ij}^T(r) \cdot x_{QD}(r) + \frac{1}{2} \int_{QD} \left[\frac{dG_{in}(r, r')}{dx_j dx_k} + \frac{dG_{jn}(r, r')}{dx_i dx_k} \right] \lambda_{nkpr} \cdot e_{pr} \cdot dV'$$

Το παραπάνω ολοκλήρωμα γίνεται σε όλο το χώρο της κβαντικής τελείας. Εφαρμόζοντας το θεώρημα της συνέλιξης και κάνοντας μετασχηματισμό Fourier, καταλήγουμε σε μια εξίσωση, η οποία μας δίνει τη μετασχηματισμένη κατά Fourier συνάρτηση κατανομής του strain στην περιοχή της κβαντικής τελείας:

$$\tilde{e}_{ij} = e_{ij}^T \cdot \tilde{x}_{QD}(\xi) - \frac{(2\pi)^3}{2} \{ \xi_i \cdot \tilde{G}_{jn}(\xi) + \xi_j \cdot \tilde{G}_{in}(\xi) \} \times \lambda_{nkpr} \cdot \xi_k \cdot e_{pr}^T \cdot \tilde{x}_{QD}(\xi)$$

Η τελευταία σχέση μας δίνει τη γενική έκφραση για το μετασχηματισμό Fourier του τανυστή της τάσης στην περίπτωση μιας ετεροδομής που περιέχει μια QD τυχαίου σχήματος,

ανεξάρτητα από τη συμμετρία του κρυστάλλου. Για τον υπολογισμό της κατανομής της τάσης μέσω της συνάρτησης αυτής, θα πρέπει να τονίσουμε τα ακόλουθα:

1. Το μέγεθος και το σχήμα της QD μπαίνουν στον υπολογισμό μόνο μέσω της χαρακτηριστικής συνάρτησης χ_{QD} , η οποία υπάρχει στην παραπάνω σχέση. Η μορφή της συνάρτησης αυτής μεταβάλλεται ανάλογα με το σχήμα της τελείας. Για πυραμιδικές τελείες ύψους h με πλευρικές διαστάσεις L_x και L_y , ο μετασχηματισμός Fourier της χαρακτηριστικής συνάρτησης παίρνει τη μορφή:

$$\tilde{\chi}_{QD}(\xi) = -\frac{e^{-ih\xi_3}}{\xi_1 \cdot \xi_2} \left\{ E\left(h, \xi_3 - \frac{L_x}{2h} \xi_1 - \frac{L_y}{2h} \xi_2\right) - E\left(h, \xi_3 - \frac{L_x}{2h} \xi_1 + \frac{L_y}{2h} \xi_2\right) - E\left(h, \xi_3 + \frac{L_x}{2h} \xi_1 - \frac{L_y}{2h} \xi_2\right) + E\left(h, \xi_3 + \frac{L_x}{2h} \xi_1 + \frac{L_y}{2h} \xi_2\right) \right\}$$

Όπου η συνάρτηση: $E(a, x) = \frac{e^{i \cdot a \cdot x} - 1}{i \cdot x}$

2. Για τον υπολογισμό της μετασχηματισμένης κατά Fourier συνάρτησης κατανομής της τάσης $\tilde{\epsilon}_{ij}$ χρειάζεται να προσδιορίσουμε τη μορφή και τους όρους του τανυστή της ελαστικότητας, λ_{iklm} . Η μορφή του τανυστή αυτού μεταβάλλεται ανάλογα με τη συμμετρία του κρυστάλλου. Στην περίπτωση των InAs/GaAs που ακολουθούν τη κρυσταλλική δομή σφαλερίτη (zincblende), η συμμετρία του κρυστάλλου είναι κυβική. Ο μετασχηματισμός του τανυστή τάσης για κβαντικές τελείες με κυβική συμμετρία δίνεται από τη σχέση:

$$\tilde{\epsilon}_{ij}(\xi) = \epsilon_0 \cdot \tilde{\chi}_{QD}(\xi) \times \left\{ \delta_{ij} - \frac{(C_{11} + 2C_{12}) \cdot \xi_i \xi_j / \xi^2}{1 + (C_{12} + C_{44}) \sum_{p=1}^3 \frac{\xi_p^2}{C_{44} \cdot \xi^2 + C_{an} \cdot \xi_p^2}} \times \frac{1}{2} \left[\frac{\xi^2}{C_{44} \cdot \xi^2 + C_{an} \cdot \xi_i^2} + \frac{\xi^2}{C_{44} \cdot \xi^2 + C_{an} \cdot \xi_j^2} \right] \right\}$$

Οι ελαστικές παράμετροι, οι οποίες χρησιμοποιήθηκαν στον υπολογισμό των στοιχείων της τάσης για το InAs και το GaAs φαίνονται στον πίνακα 5.1:

Πίνακας 5.1 Ελαστικές Παράμετροι InAs – GaAs¹¹

Ελαστικές Παράμετροι	GaAs	InAs
C ₁₁ (GPa)	12.11	8.33
C ₁₂ (GPa)	5.48	4.53
C ₄₄ (GPa)	6.04	3.96

Έχοντας προσδιορίσει τα $\tilde{x}_{QD}(\xi)$ και τα στοιχεία λ_{iklm} του τανυστή ελαστικότητας, μπορούμε να προσδιορίσουμε το μετασχηματισμό Fourier των στοιχείων του τανυστή τάσης. Με αντίστροφο μετασχηματισμό Fourier καταλήγουμε στη χωρική κατανομή του τανυστή της τάσης.

5.2.4. ΠΡΟΣΔΙΟΡΙΣΜΟΣ ΠΙΕΖΟΗΛΕΚΤΡΙΚΟΥ ΠΕΔΙΟΥ

Έχοντας υπολογίσει την κατανομή της τάσης στην περιοχή της QD, προχωρούμε στο επόμενο βήμα του μοντέλου, το οποίο αφορά στην επίδραση της τάσης αυτή στο περιοριστικό δυναμικό. Η επίδραση αυτή είναι διπλή: Η τάση τροποποιεί το διάγραμμα ενεργειακών ζωνών και μεταβάλλει το ενεργειακό χάσμα των InAs και GaAs. Ταυτόχρονα, όμως έχει ως αποτέλεσμα τη συσσώρευση ηλεκτρικού φορτίου στις διεπιφάνειες των επιτασσόμενων υλικών στην περίπτωση που η τάση εφαρμόζεται σε έναν κρύσταλλο, ο οποίος στερείται κέντρου συμμετρίας, όπως π.χ. στη zincblende κρυσταλλική δομή. Το φαινόμενο αυτό είναι γνωστό ως πιεζοηλεκτρικότητα. Στην υποενότητα αυτή περιγράφεται η διαδικασία που ακολουθήθηκε στους θεωρητικούς υπολογισμούς για τον υπολογισμό του πιεζοηλεκτρικού πεδίου, με δεδομένη την κατανομή της τάσης στο χώρο της QD. Για τον υπολογισμό της έντασης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου σε δομές σφαλερίτη, χρειάζεται να γνωρίζουμε τέσσερις παραμέτρους, οι οποίες συμβολίζονται ως e_{14} , B_{114} , B_{124} και B_{156} και είναι γνωστές ως πιεζοηλεκτρικές σταθερές. Από τις πιεζοηλεκτρικές σταθερές, η e_{14} χρησιμοποιείται για να προσμετρηθούν τα φαινόμενα γραμμικής (ή πρώτης τάξης) πιεζοηλεκτρικότητας έχοντας ως αποτέλεσμα μια πόλωση P_1 , ενώ μέσω των σταθερών B_{114} , B_{124} και B_{156} προσμετρώνται τα μη γραμμικά (ή δεύτερης τάξης) πιεζοηλεκτρικά φαινόμενα., τα οποία οδηγούν σε μια πόλωση P_2 . Οι τιμές της σταθεράς e_{14} και των B_{114} , B_{124} και B_{156} φαίνονται στον Πίνακα 5.2:

Πίνακας 5.2: Γραμμικές και μη γραμμικές πιεζοηλεκτρικές σταθερές InAs και GaAs¹²

	e_{14}	B_{114}	B_{124}	B_{156}
InAs	-0.045	-0.531	-4.076	-0.12
GaAs	-0.16	-0.439	-3.765	-0.492

Η συνολική πόλωση που αναπτύσσεται στο χώρο της τελείας δίνεται από τη σχέση:

$$P_{0\Lambda} = P_1 + P_2 = 2e_{14} \begin{pmatrix} \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{xy} \end{pmatrix} + 2B_{114} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \cdot \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{yy} \cdot \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{zz} \cdot \varepsilon_{xy} \end{pmatrix} + 2B_{124} \begin{pmatrix} \varepsilon_{yz} \cdot (\varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) \\ \varepsilon_{xz} \cdot (\varepsilon_{zz} + \varepsilon_{xx}) \\ \varepsilon_{xy} \cdot (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}) \end{pmatrix} + 4B_{156} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xz} \cdot \varepsilon_{xy} \\ \varepsilon_{yz} \cdot \varepsilon_{xy} \\ \varepsilon_{yz} \cdot \varepsilon_{xz} \end{pmatrix}$$

Η σημασία των πιεζοηλεκτρικών όρων δεύτερης τάξης έχει επισημανθεί στη βιβλιογραφία. Θεωρητικοί υπολογισμοί έχουν αναδείξει ότι οι πολώσεις P_1 και P_2 , οι οποίες οφείλονται σε πρώτης και δεύτερης τάξης πιεζοηλεκτρικά φαινόμενα, έχουν αντίθετη κατεύθυνση σε δομές (111) InGaAs/GaAs κβαντικών πηγαδιών και QDs^{12,13}. Σε ετεροδομές, στις οποίες η διαφορά πλεγματικών σταθερών QD και υποστρώματος είναι σχετικά μικρή, ο γραμμικός πιεζοηλεκτρικός όρος υπερισχύει. Σε δομές, όμως, που η διαφορά των πλεγματικών σταθερών είναι μεγάλη, ο μη γραμμικός πιεζοηλεκτρικός όρος γίνεται συγκρίσιμος με το γραμμικό. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα την εξαφάνιση του εσωτερικού ηλεκτρικού πεδίου στο εσωτερικό των δομών αυτών. Σε ακραίες περιπτώσεις, όπου το ποσοστό του In είναι αρκετά υψηλό (και επομένως η διαφορά των πλεγματικών σταθερών είναι μεγάλη), ο πιεζοηλεκτρικός όρος δεύτερης τάξης υπερισχύει, προκαλώντας τη μεταβολή της κατεύθυνσης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου. Μια ακόμη ιδιαιτερότητα των πιεζοηλεκτρικών φαινομένων 2^{ης} τάξης, η οποία εμφανίζεται σε ετεροδομές QDs είναι ότι η ισχύς τους περιορίζεται στο εσωτερικό των QDs. Αντίθετα οι πιεζοηλεκτρικοί όροι 1^{ης} τάξης διατηρούν σε μεγάλο βαθμό την ισχύ τους σε μεγάλη απόσταση από την διεπιφάνεια τελείας – περιβάλλοντος υλικού¹⁴. Αυτό οφείλεται στο γεγονός ότι ο γραμμικός όρος της πόλωσης εξαρτάται από τα μη διαγώνια στοιχεία του τανυστή της τάσης, ενώ ο μη γραμμικός όρος προκύπτει ως αποτέλεσμα των γινομένων διαγώνιων και μη διαγώνιων στοιχείων του τανυστή της τάσης. Σε αντίθεση με τα μη διαγώνια στοιχεία, τα διαγώνια έχουν μεγάλες

τιμές μόνο στο χώρο της QD και γύρω από αυτόν. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα ο μη γραμμικός όρος να έχει σημαντική συνεισφορά μόνο στο εσωτερικό των QDs.

Τα πιεζοηλεκτρικά φορτία που προκύπτουν από την πόλωση, δίνονται από τη σχέση:

$$\rho_{piezo}(r) = -\nabla \cdot P_{OL}$$

Λύνοντας την εξίσωση Poisson και λαμβάνοντας υπόψη τη μεταβολή της σχετικής διηλεκτρικής σταθεράς $\epsilon_s(r)$ κατά μήκος της ετεροδομής, μπορούμε να προσδιορίσουμε τη μεταβολή του δυναμικού στο χώρο της QD:

$$\Delta V(r) = \frac{\rho_{piezo}(r)}{\epsilon_0 \cdot \epsilon_s(r)} - \frac{1}{\epsilon_s(r)} \nabla V_p(r) \cdot \nabla \epsilon_s(r)$$

Στην παραπάνω εξίσωση, ο πρώτος όρος στο δεξιό μέλος αναφέρεται στην τρισδιάστατη κατανομή φορτίου, που προκαλεί το πιεζοηλεκτρικό πεδίο. Ο δεύτερος όρος αντιπροσωπεύει τη μεταβολή στο περιοριστικό δυναμικό, η οποία οφείλεται στο φορτίο που συγκεντρώνεται στις διεπιφάνειες των ετεροδομών, εξαιτίας των διαφορετικών διηλεκτρικών σταθερών των υλικών. Η συνολική μεταβολή ΔV , που υπολογίζεται από την παραπάνω σχέση, προστίθεται στο περιοριστικό δυναμικό και το παραμορφώνει. Η παραμόρφωση αυτή, στην περίπτωση των (111) B InGaAs/GaAs κβαντικών πηγαδιών¹⁵ και των (N11)InAs/GaAs QDs^{16,17}, όπως έχει δειχθεί στη βιβλιογραφία, έχει ως αποτέλεσμα το διαχωρισμό των φορέων και επηρεάζει αποφασιστικά τις ιδιότητες των ετεροδομών αυτών.

5.2.5. ΤΑΣΗ – ΠΕΡΙΟΡΙΣΤΙΚΟ ΔΥΝΑΜΙΚΟ

Στην προηγούμενη ενότητα εξετάστηκε η επίδραση της τάσης στη γέννηση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου. Η επίπτωση της τάσης στο περιοριστικό δυναμικό, δεν περιορίζεται μόνο στη γέννηση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου. Όπως αναφέρθηκε σε προηγούμενη ενότητα, η επίταξη υπό τάση, τροποποιεί το ενεργειακό χάσμα του υλικού της QD και του GaAs, μεταβάλλοντας το περιοριστικό δυναμικό των φορέων. Στην ενότητα αυτή εξετάζουμε την επίπτωση της τάσης στη διαμόρφωση του ενεργειακού χάσματος των υλικών τελείας και φράγματος καθώς και του περιοριστικού δυναμικού. Στην περίπτωση της επίταξης υπό τάση, οι δομές ενεργειακών ζωνών βαρέων και ελαφρών οπών της ζώνης σθένους, αν αγνοήσει τη

σύζευξη τους με τη ζώνη spin – τροχιάς (spin – orbit), μπορεί να περιγραφεί από τη 4×4 Χαμιλτωνιανή:

$$H = \begin{pmatrix} A & B & C & 0 \\ B^* & -A & 0 & C \\ C^* & 0 & -A & B \\ 0 & -C^* & B^* & A \end{pmatrix} - a_v (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) \cdot I$$

Οι όροι A, B και C εξαρτώνται από τους κυματαριθμούς k_x , k_y , k_z , αλλά περιέχουν και συνιστώσες, οι οποίες εξαρτώνται από την κατανομή της τάσης. Οι εξαρτώμενες από τη τάση συνιστώσες των όρων A, B και C της Χαμιλτωνιανής είναι συναρτήσεις της κρυσταλλογραφικής διεύθυνσης, στην οποία γίνεται η ανάπτυξη. Οι εκφράσεις που δίνουν τα στοιχεία A, B και C δίνονται από τις σχέσεις στην περίπτωση της επίταξης σε υπόστρωμα (211) GaAs:

$$A = \frac{3b(6\sqrt{2} \cdot \varepsilon_{xz} + 3 \cdot \Gamma) + d\sqrt{3}(9\Gamma - 6\sqrt{2}\varepsilon_{xz})}{36}$$

$$B = \frac{\sqrt{3}b(6\sqrt{2} \cdot \varepsilon_{xz} + 3 \cdot \Gamma) + d(-3\Gamma - 6\sqrt{2}\varepsilon_{xz})}{36}$$

$$C = \frac{2\sqrt{3}b(-12 \cdot \varepsilon_{xz} + 3 \cdot \sqrt{2} \cdot \Gamma) + d(-6 \cdot \sqrt{2} \cdot \Gamma - 12 \cdot \varepsilon_{xz})}{36}$$

Όπου το $\Gamma = \varepsilon_{//} - \varepsilon_{zz}$, ενώ το $\varepsilon_{//}$ είναι η σχετική διαφορά των πλεγματικών σταθερών υποστρώματος και QD. Η σταθερά a_v είναι το δυναμικό της υδροστατικής παραμόρφωσης της ζώνης σθένους, b είναι το τετραγωνικό δυναμικό παραμόρφωσης συνάφειας (tetragonal shear deformation potential) και d το ρομβοεδρικό δυναμικό παραμόρφωσης συνάφειας. Τα δυναμικά παραμόρφωσης χρησιμοποιούνται για την ανάδειξη της επίδρασης της τάσης στη διαμόρφωση των ενεργειακών ζωνών και οι τιμές τους είναι χαρακτηριστικές για κάθε ημιαγωγικό υλικό. Σε πλήρη αναλογία, η τάση επηρεάζει τη Χαμιλτωνιανή της ζώνης αγωγιμότητας, η οποία μπορεί να γραφεί ως εξής:

$$H = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} + a_c (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) \cdot I$$

Στο παραπάνω σχέση το α_c είναι το δυναμικό της υδροστατικής παραμόρφωσης της ζώνης αγωγιμότητας. Το συνολικό δυναμικό υδροστατικής παραμόρφωσης καθορίζεται μέσω της σχέσης:

$$\alpha = \alpha_v + |\alpha_c|$$

Οι τιμές των δυναμικών υδροστατικής παραμόρφωσης, οι οποίες χρησιμοποιούνται στα πλαίσια της παρούσας εργασίας, φαίνονται στον πίνακα 5.3, για το InAs και το GaAs. Οι τιμές των παραμέτρων αυτών στην περίπτωση ενός τριμερούς κράματος $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ προκύπτουν από τις τιμές των διμερών συστατικών με χρήση του νόμου του Vegard.

Πίνακας 5.3. Δυναμικά Παραμόρφωσης InAs – GaAs^{3,18,19}

Δυναμικά Παραμόρφωσης	GaAs	InAs
$\alpha_c(\text{eV})$	-7.17	-5.08
$\alpha_v(\text{eV})$	1.16	0.66
$b(\text{eV})$	-2.0	-1.8
$d(\text{eV})$	-5.062	-3.6

Στο σύστημα αυτό, η επίταξη των InAs QDs γίνεται υπό συμπιεστική τάση, η οποία έχει διπλή επίπτωση στο περιοριστικό δυναμικό των φορέων. Προκαλεί αύξηση στο ενεργειακό χάσμα του υλικού της τελείας κατά τον παράγοντα:

$$\Delta E_g = -a \cdot (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz})$$

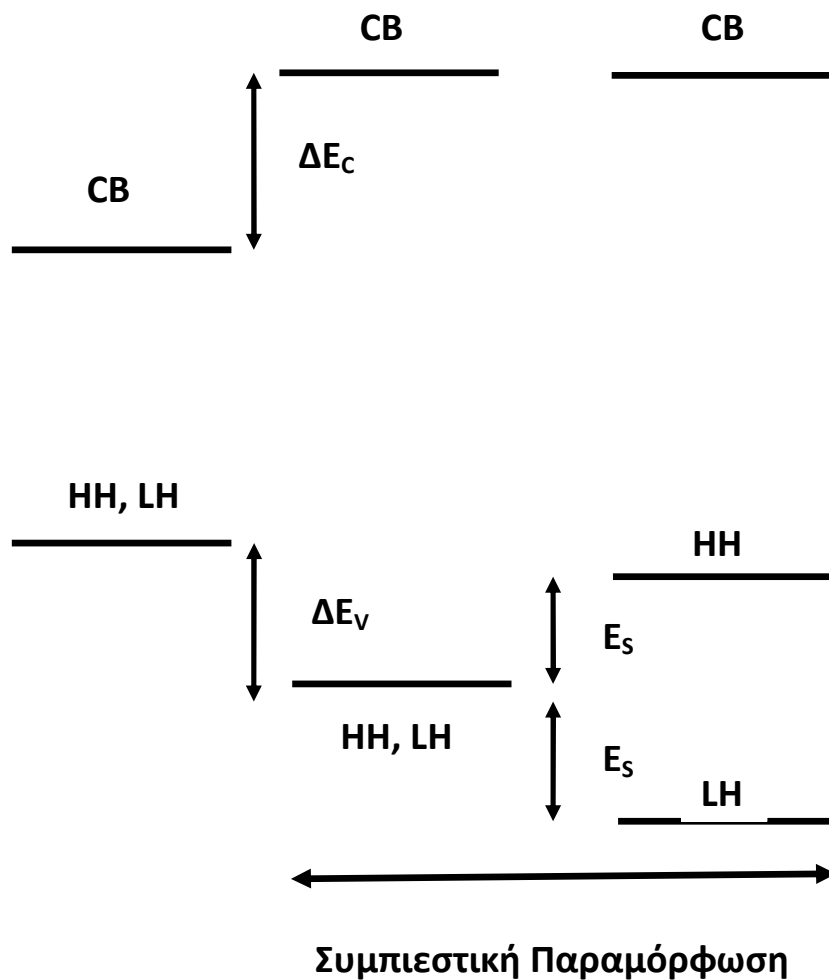
Παράλληλα, όμως, στην περίπτωση συμπιεστικής παραμόρφωσης, οι στάθμες των βαρέων και ελαφρών οπών διαχωρίζονται. Οι στάθμες των ελαφρών οπών ωθούνται βαθύτερα στο ενεργειακό διάγραμμα της ζώνης σθένους, σε σύγκριση με τις βαριές οπές. Τούτο έχει ως αποτέλεσμα τη μείωση του φράγματος δυναμικού που αντιλαμβάνονται οι ελαφρές οπές, ενώ αντίθετα αυξάνεται το αντίστοιχο φράγμα για τις βαριές οπές. Οι θέσεις των άκρων των ζωνών για τα τρία είδη φορέων στο εσωτερικό της τελείας δίνονται από τις εξής σχέσεις:

$$V_{CB} = E_{CB} + a_c \cdot (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz})$$

$$V_{HH} = E_{VB} + \alpha_v \cdot (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) + \sqrt{A^2 + B^2 + C^2}$$

$$V_{LH} = E_{VB} + \alpha_v \cdot (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) - \sqrt{A^2 + B^2 + C^2}$$

Όπου V_{HH} και V_{LH} είναι οι θέσεις των άκρων των ενεργειακών υποζωνών βαρέων και ελαφρών οπών εξαιτίας της επίταξης υπό τάση, ενώ το V_{CB} εκφράζει τη θέση του άκρου της ζώνης αγωγιμότητας, όταν η επίταξη γίνεται υπό τάση. Τέλος τα E_{CB} , E_{VB} εκφράζουν τις θέσεις των άκρων των ζωνών αγωγιμότητας και σθένους, όταν η επίταξη των υλικών της ετεροδομής γίνεται χωρίς τάση. Σε αυτή την απλοποιημένη εικόνα, η υδροστατική τάση μετατοπίζει τα άκρα των ζωνών αγωγιμότητας και σθένους, ενώ η διαξονική τάση εισάγει μια διαφορά ανάμεσα στη ζώνη σθένους για τις ελαφρές και βαριές οπές, όπως φαίνεται στο σχήμα 5.2:



Σχ. 5.2: Μεταβολή του διαγράμματος ενεργειακών ζωνών υπό την επίδραση συμπιεστικής παραμόρφωσης.

Στο παραπάνω σχήμα, οι ενεργειακές αποστάσεις ΔE_c , ΔE_v και E_s που φαίνονται, δίνονται από τις σχέσεις:

$$\Delta E_C = a_C \cdot (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz})$$

$$\Delta E_V = \alpha_V \cdot (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz})$$

$$E_S = \sqrt{A^2 + B^2 + C^2}$$

Όπως φαίνεται στο διάγραμμα, στην περίπτωση συμπιεστικής παραμόρφωσης, όπως π.χ. στην περίπτωση της ετεροδομής InAs/GaAs, η παρουσία της τάσης ωθεί τις στάθμες των ελαφρών οπών βαθύτερα στο ενεργειακό διάγραμμα της ζώνης σθένους, σε σύγκριση με τις ενεργειακές στάθμες των βαρέων οπών. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα τον περιορισμό της ασυνέχειας των ζωνών σθένους στην περίπτωση των ελαφρών οπών, και τη μείωση των δέσμιων καταστάσεων των ελαφρών οπών στο εσωτερικό της τελείας. Για το λόγο αυτό, στη συνέχεια της μελέτης, θα περιοριστούμε στον προσδιορισμό των ιδιοκαταστάσεων των βαρέων οπών. Στη συνέχεια της εργασίας, οποιαδήποτε αναφορά σε υπολογισμό ενέργειας εξιτονίου ή εξιτονικών συμπλόκων, θα έχει να κάνει αποκλειστικά με σωματίδια που προκύπτουν από την αλληλεπίδραση ηλεκτρονίων – βαρέων οπών.

5.2.6. ΚΑΤΑΣΤΑΣΕΙΣ ΕΝΟΣ ΣΩΜΑΤΙΔΙΟΥ

Με δεδομένο το περιοριστικό δυναμικό, οι ιδιοενέργειες και οι ιδιοσυναρτήσεις ηλεκτρονίων και οπών υπολογίζονται με επίλυση της εξίσωσης Schroedinger στα πλαίσια της προσέγγισης ενεργού μάζας μονών ζωνών (single band effective mass approximation).

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla^2 \psi(r) + V(r) \cdot \psi(r) = E \cdot \psi(r)$$

Όπου m^* είναι η ενεργός μάζα ηλεκτρονίων και οπών, η οποία υπεισέρχεται στους υπολογισμούς, ενώ το $V(r)$ είναι το χωρικά εξαρτώμενο περιοριστικό δυναμικό τόσο της ζώνης αγωγιμότητας όσο και της ζώνης σθένους, το οποίο έχει προσδιοριστεί με τη διαδικασία που περιγράφεται στις προηγούμενες παραγράφους. Για την ενεργό μάζα των βαρέων και ελαφρών οπών στην περίπτωση που η επίταξη γίνεται σε υπόστρωμα (211)GaAs, δίνεται μέσω της σχέσης^{20,21}:

$$m_{HH} = \frac{m_0}{\gamma_1 - 2\sqrt{\frac{9\gamma_2^2 + 27\gamma_3^2}{36}}} \quad \text{και} \quad m_{LH} = \frac{m_0}{\gamma_1 + 2\sqrt{\frac{9\gamma_2^2 + 27\gamma_3^2}{36}}}$$

Με τη βοήθεια της προσέγγισης ενεργού μάζας, μπορούμε να προσδιορίσουμε τις ιδιοενέργειες και τις ιδιοσυναρτήσεις Ψ_e , Ψ_{hh} και Ψ_{lh} των ηλεκτρονίων και των βαρέων και

ελαφρών οπών, λύνοντας την εξίσωση Schroedinger για κάθε ένα από τους παραπάνω φορείς ανεξάρτητα. Στην προσέγγιση αυτή, οι ζώνες αγωγιμότητας και σθένους θεωρούνται πλήρως μη συζευγμένες. Οι παράμετροι που χρησιμοποιήθηκαν στους υπολογισμούς, φαίνονται στον Πίνακα 5.4:

Πίνακας 5.4: Παράμετροι υλικών που χρησιμοποιούνται στους υπολογισμούς¹⁸

Παράμετρος	GaAs	InAs
ϵ_r	13.18	14.6
$E_0(eV)$	1.52	0.42
$E_V(eV)$	-5.622	-5.449
$\Delta_0(eV)$	0.34	0.38
$E_P(eV)$	25.7	22.2
m_e	0.067	0.023
γ_1	6.98	20.0
γ_2	2.06	8.5
γ_3	2.93	9.30

Η μέθοδος έχει χρησιμοποιηθεί για τον προσδιορισμό των ηλεκτρονικών καταστάσεων σε συμπαγείς ημιαγωγούς, σε κβαντικά πηγάδια, κβαντικά σύρματα. Η μελέτη τέτοιου είδους ετεροδομών με την προσέγγιση της ενεργού μάζας μονών ζωνών παρουσιάζει σημαντικά ελαττώματα απέναντι σε άλλες προσεγγίσεις, όπως η μέθοδος $k \cdot p$ ^{3,22-25}, αλλά και σε μικροσκοπικές θεωρίες όπως η μέθοδος των ψευδοδυναμικών²⁶⁻²⁸ ή η μέθοδος της ισχυρής σύζευξης. Στα μειονεκτήματα της μεθόδου περιλαμβάνονται ο περιορισμός της μελέτης γύρω από το σημείο Γ , ότι δεν λαμβάνει υπόψη τη συμμετρία του κρυστάλλου ούτε και το φερμιονικό χαρακτήρα ηλεκτρονίων και οπών. Στον αντίποδα, στα πιο ελκυστικά γνωρίσματα της μεθόδου περιλαμβάνονται η καλή γνώση όλων των παραμέτρων που υπεισέρχονται στους υπολογισμούς, τόσο σε σύγκριση με τη μέθοδο $k \cdot p$ όσο και σε σύγκριση με μικροσκοπικές τεχνικές. Επιπρόσθετα, η μέθοδος απαιτεί μικρότερο υπολογιστικό χρόνο σε σύγκριση με όλες τις προαναφερόμενες μεθόδους.

5.2.7. ΑΛΛΗΛΕΠΙΔΡΑΣΗ COULOMB

Με τη βοήθεια της εξίσωσης Schroedinger μπορούμε να προχωρήσουμε στον υπολογισμό των ιδιοενεργειών και των ιδιοσυναρτήσεων ηλεκτρονίων και οπών στις ετεροδομές InAs/GaAs QDs. Έχοντας προσδιορίσει τις ιδιοσυναρτήσεις των φορέων, μπορούμε να προσδιορίσουμε την επίπτωση της αλληλεπίδρασης Coulomb στην ενέργεια του εξιτονίου και του διεξιτονίου. Για τον υπολογισμό της αλληλεπίδρασης Coulomb ανάμεσα σε δύο φορτισμένους φορείς i και j , μπορούμε να χρησιμοποιήσουμε τη σχέση:

$$C_{ij} = \iint \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0} \frac{|\psi_i(r_1)|^2 \cdot |\psi_j(r_2)|^2}{\epsilon(r_1, r_2) |r_1 - r_2|} dr_1 dr_2$$

όπως είδαμε και στο κεφάλαιο 1. Στον παραπάνω υπολογισμό, η μεταβλητή $\epsilon(r_1, r_2)$ συμβολίζει τη χωρικά εξαρτώμενη συνάρτηση της διηλεκτρικής σταθεράς. Ο υπολογισμός της αλληλεπίδρασης Coulomb μέσω του παραπάνω εξαπλού ολοκληρώματος είναι αρκετά επίπονος και χρονοβόρος και δεν επιτρέπει μια βολική αντιμετώπιση της συνάρτησης διηλεκτρικής σταθεράς $\epsilon(r_1, r_2)$. Για το σκοπό αυτό ακολουθούμε μια εναλλακτική μέθοδο για τον προσδιορισμό της αλληλεπίδρασης Coulomb, η οποία βασίζεται στη χρήση του θεωρήματος Green. Στην περίπτωση αυτή ο υπολογισμός του εξαπλού ολοκληρώματος ανάγεται στην επίλυση της εξίσωσης Poisson²⁹:

$$\nabla[\epsilon_r(r_1)\nabla V_{C,i}(r_1)] = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} |\psi_i(r_1)|^2$$

Μέσω της λύσης αυτής προσδιορίζεται το δυναμικό $V_{C,i}$, το οποίο χρησιμοποιείται στη συνέχεια για τον υπολογισμό του C_{ij} , μέσω του τριπλού ολοκληρώματος:

$$C_{ij} = \int V_{C,i} |\psi_j|^2 dr_2$$

Με τη βοήθεια των παραπάνω ολοκληρωμάτων, προσδιορίζουμε την ενεργειακή διόρθωση λόγω αλληλεπίδρασης Coulomb μεταξύ ηλεκτρονίων και οπών C_{ee} , C_{eh} και C_{hh} , και μέσω αυτών την ενέργεια δέσμωσης του εξιτονίου και του διεξιτονίου, οι οποίες, όπως είδαμε στο κεφάλαιο 1, δίνονται από τις σχέσεις:

$$E_x^{bind} = E(X) - E(e) - E(h) = -C_{eh}$$

$$E_{XX}^{bind} = 2E(X) - E(XX) = -C_{ee} - 2C_{eh} - C_{hh}$$

Θα πρέπει να τονιστεί στο σημείο αυτό ότι στους θεωρητικούς υπολογισμούς δεν λάβαμε υπόψη μας την αλληλεπίδραση εναλλαγής, στον υπολογισμό της ενέργειας εξιτονίου και διεξιτονίου. Η προσέγγιση ενεργού μάζας, που χρησιμοποιήθηκε για τον υπολογισμό των καταστάσεων ενός σωματιδίου, δεν λαμβάνει υπόψη της το φερμιονικό χαρακτήρα των ηλεκτρονίων και των οπών. Επομένως δεν μπορεί η εκτιμηθεί ορθά η διόρθωση στην ενέργεια, η οποία προκαλείται από τα φαινόμενα εναλλαγής. Θα πρέπει να τονιστεί, φυσικά, ότι η διόρθωση λόγω εναλλαγής είναι στις περισσότερες περιπτώσεις αρκετά μικρή, της τάξης των 0,5meV και δεν αποτελεί σοβαρή διόρθωση για τις ενέργειες εξιτονίου και διεξιτονίου.

5.2.8. ΑΛΛΗΛΕΠΙΔΡΑΣΗ ΣΧΗΜΑΤΙΣΜΩΝ

Από τη στιγμή που δύο ή περισσότεροι φορείς βρίσκονται μέσα στο χώρο της QD, η αλληλεπίδραση Coulomb οδηγεί στο σχηματισμό διακριτών καταστάσεων πολλών σωματιδίων. Αυτές οι καταστάσεις πολλών σωματιδίων μπορούν να υπολογιστούν με τη βοήθεια της μεθόδου αλληλεπίδρασης σχηματισμών (configuration interaction method – CI). Η μέθοδος CI είναι μια γραμμική μέθοδος μεταβολών, η οποία χρησιμοποιείται για την επίλυση της εξίσωσης Schroedinger λίγων σωματιδίων. Στην προσέγγιση της CI, επεκτείνουμε τις συναρτήσεις του εξιτονίου και των συμπλόκων σε ένα γραμμικό συνδυασμό οριζουσών Slater, οι οποίες προκύπτουν από τις καταστάσεις μονού – σωματιδίου. Στην περίπτωση του εξιτονίου, οι ορίζουσες Slater έχουν τη μορφή:

$$\Phi_{i,j} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{vmatrix} \psi_{e,i}(r_1) & \psi_{h,j}(r_1) \\ \psi_{e,i}(r_2) & \psi_{h,j}(r_2) \end{vmatrix}$$

όπου $\Psi_{e,i}$ και $\Psi_{h,j}$ είναι η i-οστή κυματοσυνάρτηση των ηλεκτρονίων και η j-οστή κυματοσυνάρτηση των οπών. Στην περίπτωση του διεξιτονίου, η αντίστοιχη ορίζουσα Slater παίρνει τη μορφή:

$$\Phi_{ijkl} = \frac{1}{\sqrt{24}} \begin{vmatrix} \psi_{e,i}(r_1) & \psi_{e,j}(r_1) & \psi_{h,k}(r_1) & \psi_{h,l}(r_1) \\ \psi_{e,i}(r_2) & \psi_{e,j}(r_2) & \psi_{h,k}(r_2) & \psi_{h,l}(r_2) \\ \psi_{e,i}(r_3) & \psi_{e,j}(r_3) & \psi_{h,k}(r_3) & \psi_{h,l}(r_3) \\ \psi_{e,i}(r_4) & \psi_{e,j}(r_4) & \psi_{h,k}(r_4) & \psi_{h,l}(r_4) \end{vmatrix}$$

όπου $\Psi_{e,i}$, $\Psi_{e,j}$ είναι οι i -οστή και j -οστή κυματοσυνάρτηση των ηλεκτρονίων και $\Psi_{h,k}$ και $\Psi_{h,l}$ είναι η k -οστή και η l -οστή κυματοσυνάρτηση των οπών. Η συνολική κυματοσυνάρτηση Ψ_N εξιτονίου και εξιτονικών συμπλόκων μπορεί να γραφεί ως γραμμικός συνδυασμός όλων των πιθανών οριζουσών Slater Φ_{ijkl} , τα οποία εξάγονται από την επίλυση της εξίσωσης Schroedinger για ηλεκτρόνια και οπές. Για παράδειγμα στην περίπτωση του διεξιτονίου, όπου το $N=2$, η μορφή της συνάρτησης Ψ_N δίνεται από τη σχέση:

$$\Psi(r_1, r_2, \dots, r_M) = \sum_{i,j,k,l} C_{i,j,k,l} \cdot \Phi_{i,j,k,l}$$

Αν η παραπάνω σειρά περιέχει έναν άπειρο αριθμό από όρους, δηλαδή λαμβάνει υπόψη της όλες τις δέσμιες και μη δέσμιες καταστάσεις ηλεκτρονίων και οπών, τότε η συνάρτηση Ψ_N είναι ακριβής. Ο υπολογισμός της συνάρτησης, όμως, στην περίπτωση αυτή είναι μη διαχειρίσιμος. Περιορίζοντας τη σειρά σε μια μόνο οριζουσα Slater, στην οποία τα N σωματίδια περιγράφονται από τις κυματοσυναρτήσεις της θεμελιώδους κατάστασης τους, η συνάρτηση Ψ_N αντιστοιχεί σε αυτό που ονομάζεται προσέγγιση Hartree. Παρόλο που η προσέγγιση αυτή λαμβάνει υπόψη της τα φαινόμενα εναλλαγής, εντούτοις δεν προσμετρά τις συσχετίσεις υψηλότερης τάξης, και επομένως δεν προσφέρει μια ακριβή εκτίμηση της ενέργειας του συστήματος. Για μια πιο ακριβή εκτίμηση μπορούμε να χρησιμοποιήσουμε μια βάση, η οποία αποτελείται από όλες τις κυματοσυναρτήσεις που αντιστοιχούν στις δέσμιες καταστάσεις των φορέων. Ο υπολογισμός στην περίπτωση αυτή δεν είναι απολύτως ακριβής, αλλά επιτρέπει την κατανόηση της επίδρασης των διατάξεων στην ενέργεια εξιτονίου και εξιτονικών συμπλόκων.

Για τον υπολογισμό των ιδιοενεργειών και των ιδιοσυναρτήσεων με τη μέθοδο της αλληλεπίδρασης σχηματισμών, πολλαπλασιάζουμε τις δύο πλευρές της εξίσωσης Schroedinger με μια οριζουσα Φ_i και λύνουμε το πρόβλημα ιδιοτιμών που προκύπτει³⁰⁻³²:

$$\sum_j \langle \Phi_i | H | \Phi_j \rangle C_j = \sum_j E_j \langle \Phi_i | \Phi_j \rangle C_j \quad \Leftrightarrow$$

$$\sum_j \langle \Phi_i | H | \Phi_j \rangle C_j = \sum_j E_j \delta_{ij} C_j \quad \Leftrightarrow$$

$$\sum_j \langle \Phi_i | H | \Phi_j \rangle C_j = E_i C_i$$

Για απλοποίηση των συμβολισμών, για τη διάκριση των οριζουσών Slater χρησιμοποιήθηκε μονός δείκτης. Ο δείκτης αυτός υποκαθίσταται από δύο ή τέσσερις επιμέρους δείκτες, ανάλογα με το αν το πρόβλημα ιδιοτιμών αφορά σε εξιτόνιο ή διεξιτόνιο αντίστοιχα. Από την επίλυση του προβλήματος ιδιοτιμών προκύπτουν ως λύσεις οι τιμές της ενέργειας των εξιτονικών συμπλόκων και οι τιμές των συντελεστών C_i , οι οποίες βοηθούν στον προσδιορισμό των ιδιοσυναρτήσεων τους. Με τον τρόπο αυτό λαμβάνουμε υπόψη μας στον υπολογισμό τα φαινόμενα συσχέτισης.

Υπάρχουν τρεις βασικοί παράγοντες, οι οποίοι καθορίζουν το μέγεθος της διόρθωσης που προκαλούν τα φαινόμενα συσχέτισης στην ενέργεια του εξιτονίου και των υπόλοιπων εξιτονικών συμπλόκων. Ο πρώτος παράγοντας είναι η μορφή των κυματοσυναρτήσεων ηλεκτρονίου και οπής, και συγκεκριμένα το εύρος και η σχετική τους θέση. Συγκεκριμένα, ισχυρά φαινόμενα συσχέτισης των εξιτονικών συμπλόκων παρατηρούνται στις περιπτώσεις όπου τα ηλεκτρόνια και οι οπές ωθούνται σε διαφορετικές περιοχές της τελείας, εξαιτίας π.χ της ύπαρξης πιεζοηλεκτρικού πεδίου ή ασυμμετριών στο σχήμα ή τη σύσταση των τελειών. Ο διαχωρισμός μειώνει, όπως αναφέραμε την αλληλεπίδραση Coulomb ηλεκτρονίου – οπής C_{eh} σε σχέση με τους αντίστοιχους όρους C_{ee} και C_{hh} , αυξάνοντας την ενέργεια εξιτονίου και διεξιτονίου. Για να ελαχιστοποιηθεί η ενέργεια, όπως απαιτεί η αλληλεπίδραση σχηματισμών, θα πρέπει να αυξηθεί η συνεισφορά του όρου C_{eh} . Στην αλληλεπίδραση σχηματισμών αυτό αναμένεται να γίνεται με αυξημένη συνεισφορά των διεγερμένων καταστάσεων των φορέων στη διαμόρφωση της θεμελιώδους κατάστασης εξιτονίου και διεξιτονίου. Οι διεγερμένες αυτές καταστάσεις των φορέων είναι λιγότερο επηρεασμένες από την παρουσία του πιεζοηλεκτρικού πεδίου και εκτείνονται σε μεγαλύτερο χώρο στην QD. Συμπεριλαμβάνοντας τις καταστάσεις αυτές, η αλληλεπίδραση Coulomb C_{eh} ενισχύεται και η ενέργεια εξιτονίου και διεξιτονίου μειώνεται. Αυξημένη ανάμειξη των σχηματισμών διεγερμένων καταστάσεων στη διαμόρφωση της θεμελιώδους κατάστασης, συνεπάγεται και μεγαλύτερη συνεισφορά του όρου συσχέτισης στην ενέργεια εξιτονίου και διεξιτονίου. Με βάση τα παραπάνω, αναμένεται σε δομές, όπου ο διαχωρισμός των φορέων είναι εντονότερος, να είναι μεγαλύτερη η συνεισφορά του όρου συσχέτισης στη διαμόρφωση της ενέργειας εξιτονίου και διεξιτονίου.

Ο τύπος του εξιτονικού συμπλόκου είναι ο δεύτερος παράγοντας που καθορίζει τη διόρθωση λόγω φαινομένου της συσχέτισης. Όσο αυξάνεται η πολυπλοκότητα του εξιτονικού

συμπλόκου, δηλαδή όσο αυξάνεται ο αριθμός των φορέων από τους οποίους αποτελείται, τόσο αυξάνεται ο αριθμός των αλληλεπιδράσεων Coulomb ανάμεσα στους φορείς αυτούς. Σε μια τέτοια περίπτωση, η αλληλεπίδραση Coulomb μεταξύ των φορέων γίνεται σημαντική σε σύγκριση με την κινητική τους ενέργεια, και η συνεισφορά των φαινομένων συσχέτισης μεγεθύνεται. Επομένως, η σημασία των φαινομένων Coulomb στην περίπτωση του διεξιτονίου αναμένεται να είναι μεγαλύτερη σε σχέση με το εξιτόνιο.

Ο τρίτος και τελευταίος παράγοντας, ο οποίος καθορίζει τη διόρθωση λόγω συσχέτισης είναι η ενεργός μάζα των φορέων. Η ενεργός μάζα καθορίζει τον αριθμό των ιδιοκαταστάσεων των φορέων, την ενεργειακή απόσταση ανάμεσα στη θεμελιώδη κατάσταση και τις διεγερμένες, όπως επίσης και την χωρική έκταση των κυματοσυναρτήσεων στο χώρο της τελείας. Μεγαλύτερη ενεργός μάζα των φορέων, σημαίνει μειωμένη ενεργειακή διαφορά ανάμεσα στη θεμελιώδη και τις διεγερμένες καταστάσεις. Στην περίπτωση αυτή η ανάμιξη των διατάξεων θεμελιώδους και διεγερμένων καταστάσεων θα είναι εντονότερη και η διόρθωση λόγω συσχέτισης θα είναι μεγαλύτερη. Η σημασία του παράγοντα αυτή γίνεται ορατή όταν συγκρίνονται οι διορθώσεις λόγω συσχέτισης στην ενέργεια του φορτισμένων εξιτονίων X^+ και X^- . Τα δύο αυτά εξιτονικά σύμπλοκα, αν και περιέχουν τον ίδιο αριθμό σωματιδίων, επηρεάζονται διαφορετικά από τα φαινόμενα συσχέτισης, λόγω της διαφορετικής ενεργού μάζας των οπών και ηλεκτρονίων. Η μεγαλύτερη ενεργός μάζα των οπών, κάνει το ενεργειακό τους φάσμα πιο πυκνό και τις διορθώσεις λόγω φαινομένων συσχέτισης εντονότερες στην περίπτωση του θετικά φορτισμένου εξιτονίου:

$$\delta_{\text{Corr}}(X^+) > \delta_{\text{Corr}}(X^-)$$

Στη συνέχεια της μελέτης, θα εξετάσουμε την επίπτωση των φαινομένων συσχέτισης στην ενέργεια των εξιτονικών συμπλόκων σε διαφορετικές ετεροδομές QD, όπως υπολογίζεται με τη βοήθεια του θεωρητικού μοντέλου. Τα αποτελέσματα των θεωρητικών υπολογισμών φαίνονται στις επόμενες παραγράφους.

5.2.9. ΥΠΟΛΟΓΙΣΜΟΣ ΧΡΟΝΟΥ ΖΩΗΣ

Μια ακόμη παράμετρος των οπτικών ιδιοτήτων των (211)B InAs QDs, η οποία αποτελεί αντικείμενο μελέτης, είναι ο χρόνος ζωής των φορέων στο χώρο της τελείας. Ο τρόπος υπολογισμού του χρόνου ζωής των φορέων στα πλαίσια της μεθόδου των διατάξεων,

περιγράφεται στη βιβλιογραφία. Έχοντας εκφράσει τις συναρτήσεις των εξιτονικών συμπλόκων με τη βοήθεια των οριζουσών Slater των κυματοσυναρτήσεων μονού σωματιδίου για τα ηλεκτρόνια και τις οπές:

$$\Psi(r_1, r_2, \dots, r_M) = \sum_{i,j,k,l} C_{i,j,k,l} \cdot \Phi_{i,j,k,l}$$

Στην παρούσα εργασία, οι οριζουσες Slater δημιουργούνται χρησιμοποιώντας $N_e=4$ καταστάσεις στη ζώνη αγωγιμότητας και $N_h=10$ καταστάσεις στη ζώνη σθένους. Η επιλογή του αριθμού αυτού αντιστοιχεί σε 40 διαφορετικές διατάξεις για το εξιτόνιο και 225 διατάξεις για το διεξιτόνιο. Ο χρόνος ζωής της τυχαίας ακτινοβόλου μετάβασης $\Psi^{(i)} \rightarrow \Psi^{(j)}$ υπολογίζεται στα πλαίσια της χρονοεξαρτώμενης θεωρίας διαταραχών³³:

$$\left(\frac{1}{\tau}\right)_{i,j} = \frac{4nF\alpha\omega_{ij}^3}{3c^2} |M_{i,j}|^2.$$

Όπου n είναι ο δείκτης διάθλασης του περιβάλλοντος υλικού της QD, το F είναι ένας παράγοντας θωράκισης, ίσος με:

$$F = \frac{3\varepsilon}{\varepsilon_{NQD} + 2\varepsilon}$$

Όπου $\varepsilon = n_{GaAs}^2$, ενώ ε_{NQD} είναι η διηλεκτρική σταθερά του υλικού της QD, α μια σταθερά, η οποία συνδέεται με το φαινόμενο της λεπτής υφής, $\hbar \cdot \omega_{ij}$ είναι η ενέργεια μετάβασης, c είναι η ταχύτητα του φωτός στο κενό και M_{ij} είναι τα στοιχεία του πίνακα μετάβασης. Για τον υπολογισμό της ε_{QD} χρησιμοποιήθηκε μια γενίκευση του μοντέλου του Penn³⁴, σύμφωνα με την οποία η διηλεκτρική σταθερά στις περιπτώσεις σφαιρικών τελείων με διαστάσεις μεγαλύτερες από 2nm, μπορεί να προσδιοριστεί, σε καλή προσέγγιση μέσω της σχέσης³⁵:

$$\varepsilon_{NQD} = 1 + \frac{\varepsilon_{InAs} - 1}{1 + (\alpha_b / R)^2}$$

Όπου α_b είναι η ακτίνα του εξιτονίου στο συμπαγή ημιαγωγό InAs, και R είναι η ακτίνα της κβαντικής τελείας. Για τις κβαντικές τελείες που εξετάζουμε, των οποίων οι πλευρικές διαστάσεις είναι κατά πολύ μεγαλύτερες από την ακτίνα του εξιτονίου, η διηλεκτρική σταθερά ε_{NQD} είναι πολύ κοντά στη διηλεκτρική σταθερά ε του InAs. Για τον υπολογισμό των

στοιχείων του πίνακα μετάβασης, στην προσέγγιση της αλληλεπίδρασης διατάξεων, χρησιμοποιείται η σχέση:

$$M_{i,j} = \sum_{v,c} C_{vc}^{*(i)} \cdot C_{v,c}^{(j)} \langle \psi_v | r | \psi_c \rangle$$

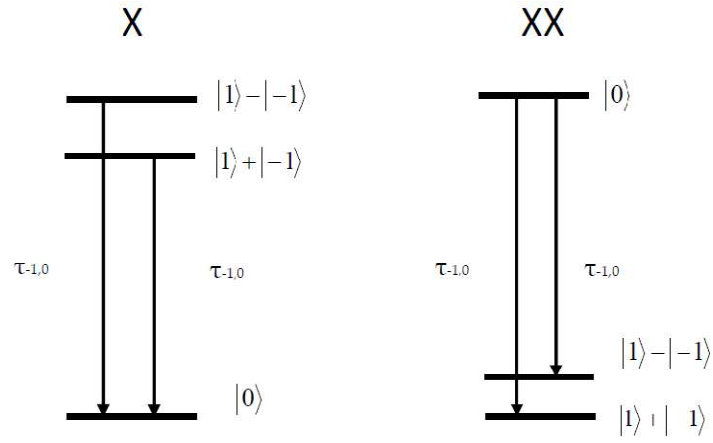
Όπου οι σταθερές $C_{v,c}$ είναι οι σταθερές που προκύπτουν από την επίλυση της εξίσωσης:

$$\Psi(r_1, r_2, \dots, r_M) = \sum_{i,j,k,l} C_{i,j,k,l} \cdot \Phi_{i,j,k,l}$$

Στην παρούσα εργασία, θα περιοριστούμε στον υπολογισμό του χρόνου ζωής του εξιτονίου. Για τον υπολογισμό αυτό θα πρέπει να ληφθούν υπόψη όλα τα πιθανά μονοπάτια, που μπορούν να ακολουθηθούν κατά την εξιτονική επανασύνδεση³⁶:

$$\frac{1}{\tau(X)} = \sum_{i,j} n_i \frac{1}{\tau_{i,f}(X)}$$

όπου n_i είναι ο μέσος πληθυσμός της κάθε εξιτονικής κατάστασης i . Συνεπώς η δομή λεπτής υφής, για την οποία μιλήσαμε σε προηγούμενες ενότητες, παίζει πολύ σημαντικό ρόλο στον προσδιορισμό του χρόνου ζωής, καθώς είναι αυτή που καθορίζει τον αριθμό των καναλιών επανασύνδεσης. Για τους υπολογισμούς που ακολουθούν, θα θεωρήσουμε ότι οι χαρακτηριστικοί χρόνοι μετάβασης $\tau_{i,f}(X)$ είναι ίσοι, ανεξάρτητα από το είδος της μετάβασης. Η υπόθεση αυτή είναι λογική από τη στιγμή που η ισχύς ταλαντωτή είναι ανεξάρτητη από τη τιμή του σπιν. Υπό αυτή την προϋπόθεση, μπορούμε να προσδιορίσουμε το χρόνο ζωής του εξιτονίου και των υπόλοιπων συμπλόκων, μετρώντας απλά τον αριθμό των πιθανών καναλιών επανασύνδεσης κάθε συμπλόκου. Στην περίπτωση του εξιτονίου υπάρχουν δύο πιθανά κανάλια επανασύνδεσης, όπως φαίνεται στο Σχ. 5.3. Με δεδομένο ότι ο διαχωρισμός λεπτής υφής είναι αμελητέος σε σχέση με την ενέργεια της εξιτονικής μετάβασης, η πιθανότητα εποικισμού των δύο φωτεινών εξιτονικών καταστάσεων είναι ίση και ο πληθυσμός τους είναι ίσος με 0,5.



Σχ. 5.3: Τα πιθανά κανάλια επανασύνδεσης στην περίπτωση εξιτονίου και διεξιτονίου. Οι καταστάσεις, οι οποίες δεν παίζουν ρόλο για την επανασύνδεση, παραλείπονται από το σχήμα.

Επομένως, ο χρόνος ζωής του εξιτονίου δίνεται από τη σχέση:

$$\frac{1}{\tau(X)} = \frac{1}{2} \cdot \frac{1}{\tau_{-1,0}} + \frac{1}{2} \cdot \frac{1}{\tau_{1,0}} = \frac{1}{\tau_X}$$

Αντίστοιχα, ο χρόνος ζωής του διεξιτονίου ισοδυναμεί με:

$$\frac{1}{\tau(XX)} = \frac{1}{\tau_{0,-1}} + \frac{1}{\tau_{0,+1}} = 2 \frac{1}{\tau_{XX}}$$

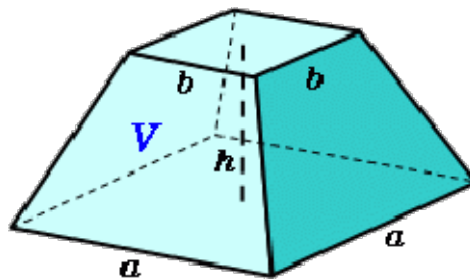
Ένα ερώτημα που προκύπτει είναι οι παράγοντες που επηρεάζουν τους χρόνους των μεταβάσεων. Οι χαρακτηριστικοί χρόνοι, οι οποίοι απαιτούνται για τις μεταβάσεις ανάμεσα στις διαφορετικές καταστάσεις εξιτονίου και διεξιτονίου είναι ίσοι μεταξύ τους, ανεξάρτητα από το μέγεθος και το σχήμα των τελειών. Υπό αυτή την προσέγγιση, για τους χρόνους ζωής εξιτονίου και διεξιτονίου, ισχύει:

$$\frac{\tau(X)}{\tau(XX)} = 2$$

Στη συνέχεια του κεφαλαίου, προχωρούμε στον υπολογισμό του χρόνου ζωής του εξιτονίου σε μεμονωμένες InAs QDs με τη βοήθεια του θεωρητικού μοντέλου, για διάφορες τιμές του μεγέθους των τελειών αλλά και της περιεκτικότητας τους σε In. Συγκρίνουμε τα αποτελέσματα των υπολογισμών αυτών με πειραματικές μετρήσεις του χρόνου ζωής στις ετεροδομές αυτές, όπως εξήχθησαν σε πειράματα TRPL.

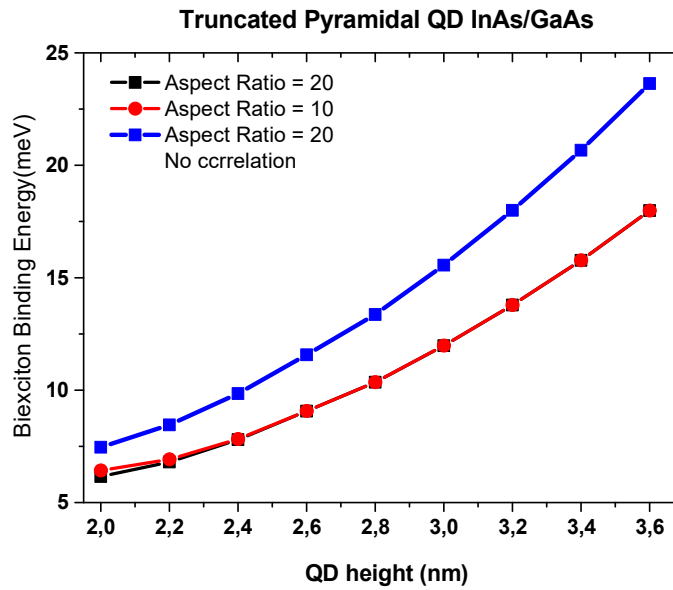
5.3 ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΜΕΓΕΘΟΥΣ ΚΒΑΝΤΙΚΩΝ ΤΕΛΕΙΩΝ

Μια σημαντική ιδιαιτερότητα που παρουσιάζουν οι (211)B InAs QDs είναι ότι εμφανίζουν αρνητική ενέργεια δέσμησης διεξιτονίου. Για να εξετάσουμε τα όρια της αρνητικής ενέργειας δέσμησης, υπολογίζουμε με τη βοήθεια του θεωρητικού μοντέλου την ενέργεια δέσμησης μιας (211) B InAs QD. Οι τελείες που εξετάστηκαν είχαν σχήμα κόλουρης πυραμίδας τετραγωνικής βάσης, σχήμα παρόμοιο με αυτό που ανέδειξαν οι μετρήσεις TEM των δειγμάτων.



Σχ. 5.4. Σχήμα των (211)B InAs QDs που χρησιμοποιείται στους θεωρητικούς υπολογισμούς.

Το ύψος των εξεταζόμενων τελειών ποικίλλει από 2.0 – 3.6nm, μέγεθος που ταιριάζει με τις διαστάσεις των οπτικά ενεργών τελειών. Στους υπολογισμούς χρησιμοποιήθηκαν δύο διαφορετικές τιμές του λόγου πλευρικών διαστάσεων – ύψους, ίσες με 10 και 20. Στους υπολογισμούς των ενεργειών εξιτονίου και διεξιτονίου, όπως αναφέρθηκε σε προηγούμενη παράγραφο, λαμβάνονται υπόψη φαινόμενα συσχέτισης, τα φαινόμενα ανταλλαγής, όμως, αγνοούνται. Τα αποτελέσματα των υπολογισμών του μοντέλου φαίνονται στο Σχ. 5.5. Για να εκτιμήσουμε τη διόρθωση στην ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου λόγω των φαινομένων συσχέτισης, στο ίδιο διάγραμμα απεικονίζουμε τη μεταβολή της δέσμιας ενέργειας του διεξιτονίου σε μια InAs/GaAs QD με λόγο ύψους – πλευρικών διαστάσεων ίσο με 10, στην περίπτωση που αγνοούνται τα φαινόμενα συσχέτισης.



Σχ. 5.5: Μεταβολή της υπολογιζόμενης αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου σε σχέση με το ύψος της τελείας. Οι QD που μελετήθηκαν είχαν σχήμα κόλουρης πυραμίδας τετραγωνικής βάσης και ο λόγος των πλευρικών διαστάσεων – ύψους ήταν ίσος με 10 και 20.

Από τη μελέτη του παραπάνω διαγράμματος προκύπτει ότι για κάθε τιμή του ύψους τελείας, η ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου είναι αρνητική, σε συμφωνία με τα πειραματικά δεδομένα. Σε αντίθεση, όμως, με τα πειραματικά αποτελέσματα, στα οποία η τιμή της αρνητικής ενέργειας δέσμησης παρουσιάζεται ανεξάρτητη από την ενέργεια του εξιτονίου, η θεωρητική μελέτη των (211)B InAs QDs προβλέπει ότι η διαφορά ενέργειας $E_{xx}-E_x$ αυξάνεται καθώς αυξάνεται το ύψος της QD. Ένα ακόμη σημαντικό εύρημα που προκύπτει από τη μελέτη του Σχ. 5.4 είναι ότι η ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου παρουσιάζεται ανεξάρτητη από το λόγο πλευρικών διαστάσεων – ύψους των QDs, ιδιαίτερα σε τελείες μεγαλύτερου ύψους. Για να κατανοήσουμε τους λόγους για τους οποίους η ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου παρουσιάζει τη συμπεριφορά αυτή, θα πρέπει να σκεφτούμε τους παράγοντες που καθορίζουν την ενέργεια εξιτονίου και διεξιτονίου.

Η ιδιαιτερότητα που παρουσιάζουν οι (211)B InAs QDs σε σύγκριση με τις συνηθισμένες QDs είναι ότι περιέχουν στο εσωτερικό τους πολύ ισχυρό πιεζοηλεκτρικό πεδίο, στη διεύθυνση του άξονα επίταξης. Το ηλεκτρικό αυτό πεδίο προκαλεί το διαχωρισμό των φορέων στις δύο αντίθετες πλευρές της τελείας. Ο διαχωρισμός αυτός είναι εντονότερος, όσο ισχυρότερο είναι το ηλεκτρικό πεδίο και όσο μεγαλύτερο το ύψος της τελείας. Στην περίπτωση του διεξιτονίου,

η απομάκρυνση των φορέων επιφέρει την ενίσχυση της άπωσης e-e και h-h, φαινόμενα τα οποία δεν υπάρχουν στο εξιτόνιο. Η ενίσχυση αυτή είναι εντονότερη στην περίπτωση της άπωσης h-h, διότι οι κυματοσυναρτήσεις των οπών είναι ισχυρά περιορισμένες στο χώρο της QD, εξαιτίας της μεγάλης ενεργού τους μάζας, σε αντίθεση με τα πολύ ελαφρύτερα ηλεκτρόνια, των οποίων οι κυματοσυναρτήσεις εξαπλώνονται και στο χώρο του φράγματος. Τα εντονότερα απωστικά φαινόμενα Coulomb στην περίπτωση του διεξιτονίου έχουν ως αποτέλεσμα το διεξιτόνιο να εμφανίζεται σε μεγαλύτερη ενέργεια σε σχέση με το εξιτόνιο. Όσο αυξάνεται ο διαχωρισμός των φορέων, τόσο εντονότερα είναι τα απωστικά φαινόμενα Coulomb, με αποτέλεσμα την αύξηση της διαφοράς ανάμεσα στις ενέργειες εξιτονίου και διεξιτονίου. Αυτό δικαιολογεί την αύξηση της αντιδέσμιας ενέργειας του διεξιτονίου σε τελείες μεγαλύτερου ύψους, όπως παρατηρείται στο Σχ. 5.5.

Πέρα από το πιεζοηλεκτρικό πεδίο, σημαντικός είναι και ο ρόλος των φαινομένων συσχέτισης, τα οποία προσφέρουν διόρθωση στην ενέργεια των εξιτονικών συμπλόκων, όπως φαίνεται στο Σχ.5.5. Τα φαινόμενα συσχέτισης μειώνουν την ενέργεια τόσο του εξιτονίου όσο και του διεξιτονίου. Η επίδραση τους, όπως έχει ήδη αναφερθεί, είναι σημαντικότερη στην περίπτωση του διεξιτονίου, λόγω των αυξημένων αλληλεπιδράσεων Coulomb ανάμεσα στους τέσσερις φορείς. Επομένως η μείωση της ενέργειας είναι εντονότερη στην περίπτωση του διεξιτονίου σε σχέση με το εξιτόνιο, με αποτέλεσμα τη μείωση της αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου, αν συμπεριλάβει κανείς τα φαινόμενα συσχέτισης. Όπως φαίνεται στο Σχ. 5.5, η μείωση της E_{XX}^{bind} λόγω φαινομένων συσχέτισης είναι μεγαλύτερη σε QDs μεγαλύτερου ύψους. Αυτό διότι, σε μεγαλύτερες τελείες όπου ο διαχωρισμός των φορέων είναι εντονότερος, οι διορθωμένες κυματοσυναρτήσεις των εξιτονικών συμπλόκων με βάση τις οριζουσες Slater, παρουσιάζουν αυξημένη επικάλυψη σε σχέση με τις κυματοσυναρτήσεις μονού σωματιδίου. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα την αύξηση της αλληλεπίδρασης Coulomb ηλεκτρονίου – οπής. Τα φαινόμενα συσχέτισης στην περίπτωση αυτή είναι ενισχυμένα, και η διόρθωση στην E_{XX}^{bind} παρουσιάζει αύξηση. Το φαινόμενο αναδεικνύεται στο Σχ.5.5 από την αυξημένη διαφορά ανάμεσα στις τιμές του E_{XX}^{bind} που υπολογίζονται θεωρητικά αν συμπεριλάβουμε ή αγνοήσουμε τα φαινόμενα συσχέτισης.

Παρά την επίδραση των φαινομένων συσχέτισης στην ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου, το κυρίαρχο φαινόμενο που καθορίζει την ενέργεια των εξιτονικών συμπλόκων είναι το πιεζοηλεκτρικό πεδίο. Εξαιτίας της δράσης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου, η ενέργεια δέσμησης

του διεξιτονίου, όπως φαίνεται στο Σχ. 5.5, γίνεται ολοένα και πιο αρνητική καθώς αυξάνει το ύψος των τελειών, παρά την αυξημένη επίδραση των φαινομένων συσχέτισης σε τελείες μεγάλου μεγέθους. Το φαινόμενο της αύξησης του E_{xx}^{bind} με αύξηση του ύψους των τελειών παρουσιάζεται και σε μεγαλύτερου μεγέθους τελείες με ύψος μέχρι και 6-8nm.

Ένα ακόμη αποτέλεσμα των θεωρητικών υπολογισμών, το οποίο θα πρέπει να εξεταστεί, είναι ότι η ενέργεια δέσμησης δεν παρουσιάζει εξάρτηση από το λόγο πλευρικών διαστάσεων – ύψους των τελειών, παρά το γεγονός ότι πιεζοηλεκτρικά πεδία μικρότερης έντασης υπάρχουν και κατά μήκος των διαστάσεων αυτών. Στις δομές που εξετάστηκαν, οι πλευρικές διαστάσεις των τελειών είναι πολύ μεγαλύτερες από το ύψος τους. Οι φορείς περιορίζονται κυρίως κατά μήκος της διεύθυνσης επίταξης, οι κυματοσυναρτήσεις ηλεκτρονίων και οπών εκτείνονται σε μεγάλες αποστάσεις και μένουν ανεπηρέαστες από την ασυμμετρία του περιοριστικού δυναμικού λόγω του πλευρικού πιεζοηλεκτρικού πεδίου. Για να γίνει κατανοητό πώς επηρεάζουν οι μεγάλες πλευρικές διαστάσεις τις ενέργειες εξιτονίου και διεξιτονίου, ας θεωρήσουμε την οριακή περίπτωση κυβικών τελειών με μεγάλες διαστάσεις (~20nm). Στην οριακή αυτή περίπτωση, οι κυματοσυναρτήσεις ηλεκτρονίων και οπών ταυτίζονται σε μεγάλο βαθμό, παρά τη διαφορετική τους ενεργό μάζα, οι αλληλεπιδράσεις Coulomb e-e, h-h και e-h αλληλοεξουδετερώνονται με αποτέλεσμα η ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου:

$$E_{xx}^{bind} = 2E_x - E_{xx} = -C_{ee} - C_{hh} - 2C_{eh}$$

να μηδενίζεται. Μέσω της παραπάνω οριακής περίπτωσης, μπορούμε να κατανοήσουμε ότι στην περίπτωση QDs με μεγάλες πλευρικές διαστάσεις, όπως οι τελείες που εξετάζουμε στους θεωρητικούς υπολογισμούς, οι πλευρικές διαστάσεις παίζουν αμελητέο ρόλο στη διαμόρφωση της ενέργειας δέσμησης του διεξιτονίου, όπως φανερώνεται και στο Σχ. 5.4.

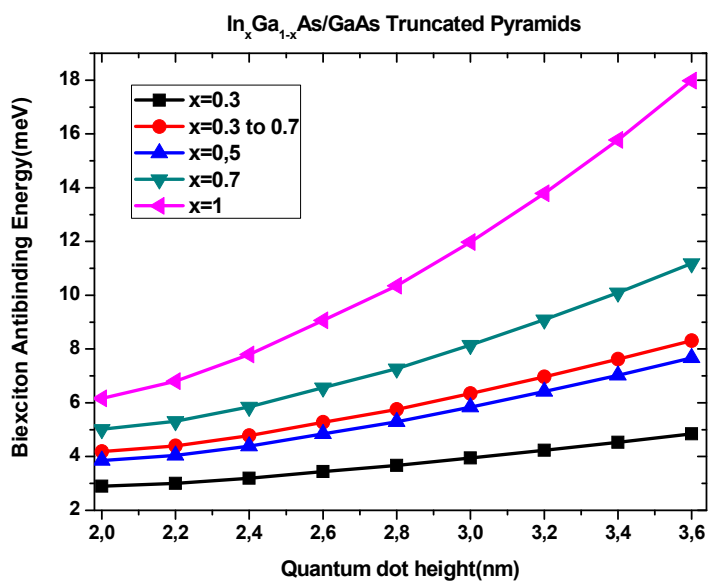
Όπως έχει ήδη αναφερθεί, η αύξηση της αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου, καθώς αυξάνεται το μέγεθος της QD, δεν συμφωνεί με τα πειραματικά αποτελέσματα, στα οποία η ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου δεν παρουσιάζει ξεκάθαρη εξάρτηση από το ύψος της τελείας. Αυτή η ποιοτική ασυμφωνία ανάμεσα στα πειραματικά και τα θεωρητικά αποτελέσματα μπορεί να αποδοθεί σε διάφορους πιθανούς παράγοντες. Ο πρώτος από τους παράγοντες που ευθύνονται για την ποιοτική ασυμφωνία ανάμεσα στις θεωρητικές προβλέψεις και τα πειραματικά αποτελέσματα είναι η προσέγγιση του σχήματος των QDs.

Στους θεωρητικούς υπολογισμούς, για λόγους απλότητας, οι μελετούμενες QDs είχαν σχήμα κόλουρης πυραμίδας με τετραγωνική βάση. Η απλοποιημένη αυτή μορφή προσεγγίζει ορθά το κόλουρο πυραμιδικό σχήμα της τελείας, δεν λαμβάνει υπόψη, όμως, το ανισοτροπικό σχήμα των (211)B InAs QDs, ούτε την επιμήκυνση τους κατά μήκος της [1 1 1] διεύθυνσης, όπως ανέδειξαν οι μετρήσεις HRTEM (Κεφ. 3). Το έντονα ανισοτροπικό σχήμα των (211) B InAs που κατασκευάστηκαν και μελετήθηκαν, με λόγο πλευρικών διαστάσεων ίσο με 1.3 – 1.5, προκαλεί την ελάττωση της κρυσταλλικής συμμετρίας από C_{4v} σε C_{2v} , τροποποιεί την κατανομή της τάσης στο χώρο της κβαντικής τελείας, δημιουργεί ασυμμετρίες στο περιοριστικό δυναμικό των φορέων, μεταβάλλει τις αλληλεπιδράσεις Coulomb ανάμεσα στους φορείς και επηρεάζει τις ενέργειες των εξιτονικών συμπλόκων. Ένας δεύτερος παράγοντας που ερμηνεύει την ασυμφωνία πειράματος – θεωρητικών υπολογισμών, είναι η τιμή του λόγου πλευρικών διαστάσεων – ύψους στις (211)B InAs QDs. Οι κβαντικές τελείες που μελετήθηκαν στους θεωρητικούς υπολογισμούς είχαν λόγο πλευρικών διαστάσεων – ύψους ίσο με 10 – 20, σε αντίθεση με την πραγματική τιμή του λόγου, η οποία είναι περίπου 5, όπως ανέδειξαν οι μετρήσεις HRTEM. Παρόλο που οι θεωρητικοί υπολογισμοί ανέδειξαν ότι η τιμή του AR δεν επηρεάζει έντονα την ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου, εντούτοις αναμένεται να υπάρχει μια μικρή διόρθωση, ειδικά από τη στιγμή που τιμή του λόγου γίνεται σχετικά μικρή, και ο περιορισμός των φορέων είναι πραγματικά τρισδιάστατος. Τέλος, ένας εξαιρετικά σημαντικός παράγοντας, ο οποίος ευθύνεται για τη ασυμφωνία πειράματος – θεωρίας είναι το ποσοστό του In στο εσωτερικό της τελείας καθώς και τα φαινόμενα ανάμειξης των υλικών τελείας και περιβάλλοντος ημιαγωγού. Ενώ οι θεωρητικοί υπολογισμοί διεξάγονται σε InAs QDs, οι μετρήσεις μ -PL γίνονται σε τελείες, στις οποίες το ποσοστό του In μεταβάλλεται κατά μήκος του άξονα της τελείας από 0.3 έως 0.7, όπως ανέδειξαν οι μετρήσεις HRTEM. Το μειωμένο ποσοστό του In στην QD επηρεάζει ποικιλοτρόπως την οπτοηλεκτρονική συμπεριφορά των (211)B InAs QDs.

5.4 ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΠΟΣΟΣΤΟΥ ΙΝΔΙΟΥ

Για να εκτιμηθεί ποσοτικά η επίδραση του ποσοστού ινδίου στις ιδιότητες των τελειών, μελετήθηκε η επίδραση του ύψους στην ενέργεια δέσμησης των (211)B InGaAs QDs., με τη βοήθεια του θεωρητικού μοντέλου. Στους υπολογισμούς χρησιμοποιήθηκαν διαφορετικά ποσοστά In καθώς και η περίπτωση κβαντικών τελειών, στις οποίες το ποσοστό του In

μεταβάλλονταν βαθμιαία από 0.3 σε 0.7, καθώς προχωράμε από τη βάση στην κορυφή της πυραμιδικής τελείας. Τα αποτελέσματα των υπολογισμών για διαφορετικά ύψη τελειών απεικονίζονται στο Σχ. 5.6. Ανεξάρτητα από το ύψος των QDs και το ποσοστό του In, η ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου παραμένει αρνητική, σε ποιοτική συμφωνία με τα αποτελέσματα των μετρήσεων μ -PL. Σε όλες τις εξεταζόμενες δομές και ανεξάρτητα από το ποσοστό του In, η αντιδέσμια ενέργεια του διεξιτονίου αυξάνεται καθώς αυξάνεται το ύψος της τελείας. Η τιμή, όμως, του ΔE_{xx} , μειώνεται κατά απόλυτη τιμή καθώς μειώνεται το ποσοστό του In στο χώρο της τελείας. Η μείωση αυτή εμφανίζεται ανεξάρτητα από το ύψος των QDs. Στην περίπτωση τελειών με μεταβαλλόμενο ποσοστό In από 0.3 σε 0.7, οι οποίες ανταποκρίνονται καλύτερα στο πραγματικό προφίλ του In στο χώρο της QD, η αντιδέσμια ενέργεια διεξιτονίου υπολογίζεται ίση με 4-7meV, ανάλογα με το ύψος της τελείας. Οι τιμές αυτές είναι σημαντικά μικρότερες από τις αντίστοιχες τιμές που υπολογίζονται σε καθαρές InAs QDs, οι οποίες φτάνουν μέχρι και τα 18meV και έρχονται σε καλύτερη συμφωνία με τα πειραματικά αποτελέσματα.



Σχ. 5.6.: Μεταβολή της θεωρητικά υπολογιζόμενης αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου μιας κόλουρης πυραμιδικής τετραγωνικής βάσης $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QD σε σχέση με το ύψος της, για διάφορες τιμές του ποσοστού του ινδίου x .

Το ποσοστό του In στο χώρο των QDs είναι μια βασική παράμετρος, η οποία καθορίζει σε μεγάλο βαθμό τη συμπεριφορά των (211)B InGaAs QDs., καθώς καθορίζει το ενεργειακό χάσμα του υλικού της QD και επομένως το μήκος κύματος εκπομπής τους. Στην περίπτωση

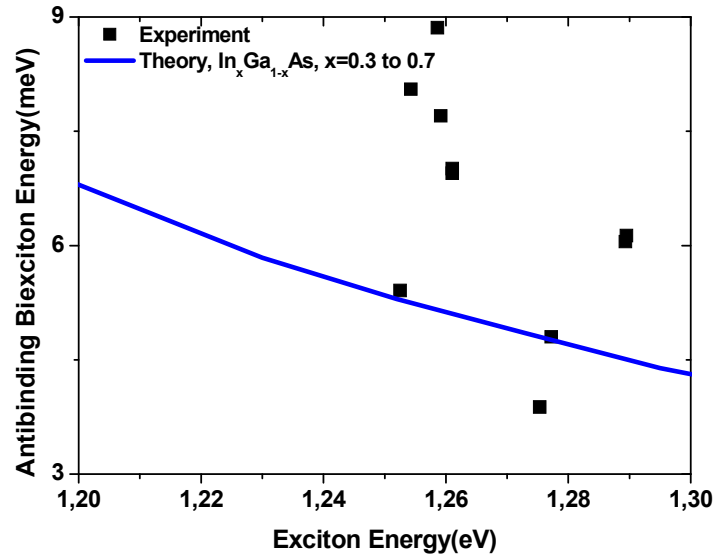
των (211)B InAs, QDs, το ποσοστό του In επηρεάζει τη συμπεριφορά των τελειών και μέσω του πιεζοηλεκτρικού πεδίου. Καθώς μειώνεται το ποσοστό του In στην QD, τα δεύτερης τάξης πιεζοηλεκτρικά φαινόμενα, τα οποία κυριαρχούν στην περίπτωση του InAs, εξασθενούν με πολύ εντονότερο ρυθμό από τους όρους πρώτης τάξης. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα, σε χαμηλές τιμές ποσοστού In, το πιεζοηλεκτρικό πεδίο να μειώνεται σημαντικά και σε ακραίες περιπτώσεις να μηδενίζεται. Η εξασθένιση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου έχει ως αποτέλεσμα την εξάπλωση των κυματοσυναρτήσεων των φορέων σε μεγαλύτερο όγκο. Οι απωστικές ενέργειες Coulomb C_{e-e} και C_{h-h} μειώνονται σε σύγκριση με την έλξη C_{e-h} , με αποτέλεσμα η ενέργεια δέσμησης του διεξιτονίου:

$$E_{XX}^{bind} = 2E_X - E_{XX} = -C_{ee} - C_{hh} - 2C_{eh}$$

να μειώνεται, όπως φαίνεται στο Σχ. 5.6. Οι μειωμένες τιμές της ενέργειας δέσμησης του διεξιτονίου βρίσκονται ποσοτικά σε συμφωνία με τις μετρήσεις της E_{XX}^{bind} σε πειράματα μ-PL.

5.5 ΕΞΑΡΤΗΣΗ ΑΠΟ ΤΗΝ ΕΝΕΡΓΕΙΑ ΕΞΙΤΟΝΙΟΥ

Για καλύτερη σύγκριση των πειραματικών μας μετρήσεων και των αποτελεσμάτων του θεωρητικού μοντέλου, εξετάζουμε τη μεταβολή της αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου $E_{XX} - E_X$ σε συνάρτηση με την ενέργεια εκπομπής του εξιτονίου. Τα αποτελέσματα των υπολογισμών φαίνονται στο Σχ. 5.7. Η μελέτη έχει περιοριστεί σε InGaAs QDs με μεταβαλλόμενο ποσοστό In μεταξύ του 0.3 και του 0.7, ενώ για σύγκριση στο ίδιο γράφημα απεικονίζονται οι αντιδέσμιες ενέργειες διεξιτονίου, που προέκυψαν από τα πειράματα μ-PL.



Σχ. 5.7: Μεταβολή της θεωρητικά υπολογιζόμενης αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου, σε συνάρτηση με την ενέργεια του εξιτονίου για InGaAs QDs με μεταβαλλόμενο ποσοστό In μεταξύ 0.3 και 0.7. Για σύγκριση δίνονται οι τιμές αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου, που προέκυψαν από πειράματα μ-PL.

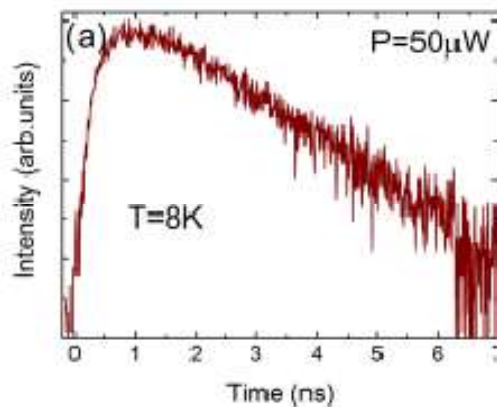
Από τη μελέτη του Σχ. 5.7 προκύπτει ότι παρά το γεγονός ότι τόσο από τις μετρήσεις όσο και από το θεωρητικό μοντέλο προκύπτουν τιμές αντιδέσμιας ενέργειας διεξιτονίου στην περιοχή των 4-8meV, εντούτοις υπάρχουν ποιοτικές διαφορές ανάμεσα στα αποτελέσματα του μοντέλου και το πείραμα. Ενώ το θεωρητικό μοντέλο προβλέπει μια ξεκάθαρη εξάρτηση του E_{XX}^{bind} από την ενέργεια του εξιτονίου, τα πειραματικά αποτελέσματα δεν επιβεβαιώνουν την εξάρτηση αυτή. Οι πειραματικές τιμές του E_{XX}^{bind} παρουσιάζουν μεγάλες αποκλίσεις που φτάνουν ακόμη και τα 5meV σε τελείες που έχουν την ίδια ενέργεια εκπομπής εξιτονίου, και δεν επιτρέπουν την εξαγωγή ασφαλών συμπερασμάτων. Το μεγάλο εύρος των τιμών της E_{XX}^{bind} καταδεικνύει ότι η ενέργεια αυτή εξαρτάται από την ακριβή μορφολογία της SQD και τη σύσταση της, γεγονός που καθιστά δύσκολη την ακριβή μοντελοποίηση τέτοιων δομών.

5.6 ΥΠΟΛΟΓΙΣΜΟΣ ΧΡΟΝΟΥ ΖΩΗΣ ΕΞΙΤΟΝΙΟΥ

Όπως έχει ήδη τονιστεί, μια από τις σημαντικότερες εφαρμογές των QDs είναι η χρήση τους σε διατάξεις εκπομπής μεμονωμένων αλλά και εναγκαλισμένων φωτονίων. Στην κατεύθυνση αυτή οι (211)B InAs/GaAs QDs αποτελούν μια ελκυστική δομή, εξαιτίας των

ιδιοτήτων τους, όπως η μεγάλη ενεργειακή διαφορά εξιτονίου – διεξιτονίου, το εξαιρετικά μικρό FSS και το ισχυρό πιεζοηλεκτρικό πεδίο που περιέχουν. Η χρήση των τελειών αυτών σε καινοτόμες οπτοηλεκτρονικές εφαρμογές απαιτεί μελέτη των μηχανισμών ακτινοβόλου επανασύνδεσης των φορέων του ενδιαφέροντος αυτού κβαντικού συστήματος. Για το λόγο αυτό δείγματα QDs μελετήθηκαν σε πειράματα χρονοαναλυμένης φωτοφωταύγειας (time – resolved photoluminescence – TRPL) και μετρήθηκε ο χρόνος ζωής των φορέων.

Στα πειράματα TRPL, δείγματα (211)B InAs/GaAs QDs διεγέρθηκαν με τη βοήθεια ενός παλμικού λέιζερ τιτανίου – ζαφειριού με εύρος παλμού 4psec, μήκος κύματος 780nm, και συχνότητα παλμών ίση με 80MHz. Με τη βοήθεια κάμερας υπερταχείας λειτουργίας ανιχνεύθηκαν τα φάσματα εκπομπής μεμονωμένων QDs και μελετήθηκε η χρονική απόκριση των κυριότερων φασματικών γραμμών. Στο Σχ. 5.8 φαίνεται η χαρακτηριστική καμπύλη μείωσης της έντασης εκπομπής της γραμμής του εξιτονίου μιας απομονωμένης (211)B InAs QD.



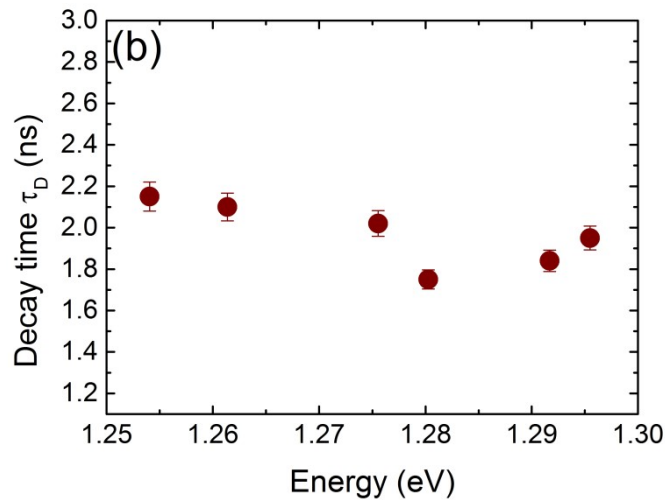
Σχ. 5.8: Καμπύλη μείωσης έντασης σε πειράματα TRPL σε χαμηλή θερμοκρασία (T=8K) σε (211)B InAs, τα οποία υποδεικνύουν χρόνο ζωής εξιτονίου ίσο με 2 ns. Αναδημοσίευση από [37].

Η ένταση της PL στα παραπάνω πειράματα μειώνεται εκθετικά με το χρόνο. Η μείωση αυτή μπορεί να περιγραφεί μέσω της σχέσης:

$$I = I_0 \cdot e^{-\frac{t}{\tau_D}}$$

Όπου I_0 είναι η ένταση της PL τη χρονική στιγμή $t = 0s$, ενώ τ_D είναι ο χρόνος ζωής του εξιτονίου. Από την μελέτη της μεταβολής της έντασης του εξιτονίου σε διάφορες SQD μπορούμε να εξάγουμε χρόνους ζωής στην περιοχή των 1.8 – 2.2 ns. Η τιμή του χρόνου ζωής

του εξιτονίου είναι ανεξάρτητη από την ενέργεια του εξιτονίου, όπως φαίνεται στο Σχ. 5.9, υποδηλώνοντας μια ασθενή εξάρτηση του χρόνου ζωής από το μέγεθος των QDs.



Σχ. 5.9.: Μεταβολή του χρόνου ζωής του εξιτονίου σε σχέση με την ενέργεια εκπομπής του εξιτονίου. Αναδημοσίευση από [37].

Οι τιμές αυτές δεν διαφέρουν πολύ από τις τιμές του χρόνου ζωής των φορέων που έχουν μετρηθεί σε (100) InAs QDs, οι οποίες εκπέμπουν στην ίδια ενεργειακή περιοχή. Συγκεκριμένα στη βιβλιογραφία έχουν αναφερθεί τιμές χρόνου ζωής 1-2ns σε (100) InAs τελείες που εκπέμπουν στα 1.3eV³⁸⁻⁴⁰. Το γεγονός αυτό υποδηλώνει ότι η ισχύς του ταλαντωτή παραμένει μεγάλη στις (211)B InAs QDs, παρά το γεγονός ότι οι δομές αυτές αναμένεται να περιέχουν ένα πολύ ισχυρό πεδίο της τάξης των 1 MV/cm⁴¹, το οποίο γενικά μειώνει το ρυθμό ακτινοβόλου επανασύνδεσης, σύμφωνα με το φαινόμενο Stark.

Ακολουθώντας την καθιερωμένη ανάλυση για τη μελέτη των φασμάτων της TRPL, συσχετίζουμε το χρόνο ζωής των φορέων με τους χρόνους ακτινοβόλου και μη ακτινοβόλου επανασύνδεσης τ_R και τ_{NR} , μέσω της σχέσης^{42,43}:

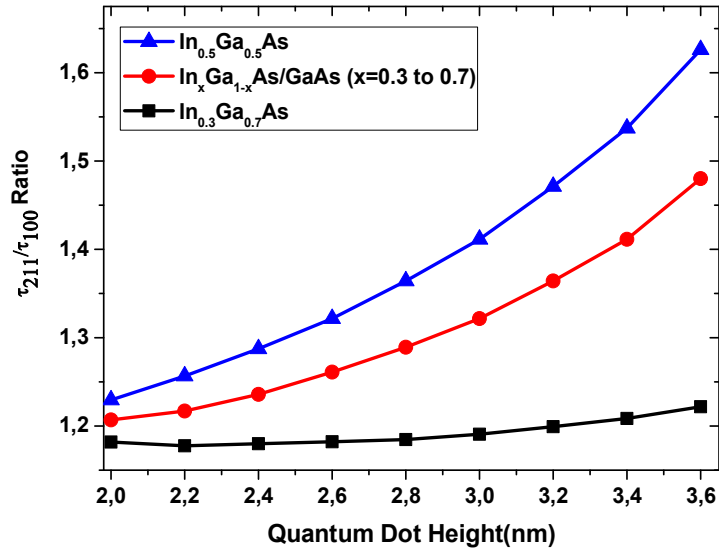
$$\frac{1}{\tau_D} = \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_{NR}}$$

Στην ανάλυση αυτή, η διαδικασία χαλάρωσης των φορέων θεωρείται πολύ γρηγορότερη από τα φαινόμενα επανασύνδεσης των φορέων, και επομένως δεν λαμβάνεται υπόψη στον υπολογισμό του χρόνου ζωής. Επιπρόσθετα, με δεδομένη την καλή κρυσταλλική ποιότητα των δειγμάτων και το γεγονός ότι τα πειράματα TRPL πραγματοποιούνται σε πολύ χαμηλές θερμοκρασίες (T=8K), οι διαδικασίες μη ακτινοβόλου επανασύνδεσης θεωρούνται αμελητέες. Άλλο ένα φαινόμενο, το οποίο καταδεικνύει την υψηλή κρυσταλλική ποιότητα των (211)B InAs QDs, είναι και η επιμήκυνση του χρόνου ζωής, η οποία παρατηρείται καθώς αυξάνεται η

ένταση διέγερσης των τελειών. Η επιμήκυνση αποδίδεται στην διέγερση φορέων σε ανώτερες ενεργειακά στάθμες της QD. Οι φορείς αυτοί αποδιεγείρονται μέχρι να φτάσουν στη θεμελιώδη τους κατάσταση και επανασυνδέονται. Η παρατήρηση του φαινομένου αποτελεί ένδειξη του πολύ γρηγορότερου ρυθμού ακτινοβόλου επανασύνδεσης σε σύγκριση με τις μη ακτινοβόλες διαδικασίες.

Με δεδομένο, επομένως, ότι οι μη ακτινοβόλες διαδικασίες είναι αμελητέες, ειδικά σε χαμηλές θερμοκρασίες, η συμπεριφορά των (211)B InAs QDs είναι δυνατό να ερμηνευθεί με τη βοήθεια του θεωρητικού μοντέλου που παρουσιάζεται στην παράγραφο 5.2.9. Τα αποτελέσματα των υπολογισμών φαίνονται στο Σχ. 5.10, στο οποίο απεικονίζεται η μεταβολή του λόγου $\frac{\tau_{211}}{\tau_{100}}$ των χρόνων ακτινοβόλου επανασύνδεσης των φορέων σε $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QDs αναπτυσσόμενες σε υποστρώματα (211)B και (100) GaAs. Εξετάστηκαν δομές όπου το ποσοστό του In ήταν σταθερό στο χώρο της QD και ίσο με $x = 0.3$ και 0.5 , ενώ εξετάστηκε δομή, όπου το ποσοστό του In μεταβάλλεται βαθμιαία από 0.3 έως 0.7 . Σε όλες τις εξεταζόμενες ετεροδομές ο λόγος $\frac{\tau_{211}}{\tau_{100}}$ που υπολογίστηκε ήταν στην περιοχή των $1.1 - 1.6$, αναδεικνύοντας τη μικρή διαφορά ανάμεσα στους χρόνους ακτινοβόλου επανασύνδεσης σε QDs που αναπτύσσονται στις δύο διαφορετικές αυτές διευθύνσεις.

Μια δεύτερη παρατήρηση στα αποτελέσματα του γραφήματος είναι ότι ο λόγος $\frac{\tau_{211}}{\tau_{100}}$ αυξάνεται τόσο με αύξηση του ύψους της τελείας όσο και του ποσοστού του In στη τελεία. Η εξάρτηση από το ύψος της τελείας και το ποσοστό του In είναι μια ακόμη συνέπεια του πιεζοηλεκτρικού πεδίου στο εσωτερικό των QDs. Σε κβαντικές τελείες μεγάλου ύψους, το πιεζοηλεκτρικό πεδίο ωθεί τους φορείς στις αντίθετες πλευρές της QD μειώνοντας την μεταξύ τους επικάλυψη και αυξάνοντας το χρόνο ζωής του εξιτονίου. Συνεπώς, η επίδραση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου είναι εντονότερη σε τελείες μεγάλου ύψους και σε αυτές θα περίμενε κανείς να υπάρχει σημαντική διαφοροποίηση ανάμεσα στις (211)B InAs και στις αντίστοιχες (100) δομές. Αντίθετα, σε InAs QDs μικρού ύψους, όπως οι οπτικά ενεργές τελείες των δειγμάτων που μελετήθηκαν, οι χρόνοι ακτινοβόλου επανασύνδεσης αναμένονται να παρουσιάζουν μικρότερη εξάρτηση από τη διεύθυνση επίταξης.



Σχ. 5.10: Μεταβολή του θεωρητικά υπολογιζόμενου λόγου $\frac{\tau_{211}}{\tau_{100}}$ των χρόνων ακτινοβόλου επανασύνδεσης, σε συνάρτηση με το ύψος μιας κόλουρης πυραμιδικής $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QD τετραγωνικής βάσης σε σχέση με το ύψος της, για διάφορες τιμές του ποσοστού του ινδίου x .

Παρόμοια είναι η εξήγηση για την επίδραση του ποσοστού του In στο χρόνο ζωής των τελειών. Καθώς το ποσοστό του In αυξάνει, αυξάνεται δραστικά η ένταση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου στο χώρο της τελείας, εξαιτίας της αυξημένης συμβολής των πιεζοηλεκτρικών φαινομένων δεύτερης τάξης. Ο διαχωρισμός των φορέων γίνεται εντονότερος, ο ρυθμός ακτινοβόλου επανασύνδεσης μειώνεται και ο χρόνος ζωής αυξάνεται. Αντίθετα σε τελείες με μικρά ποσοστά In, η ένταση του πιεζοηλεκτρικού πεδίου είναι μειωμένη, ο διαχωρισμός των φορέων περιορισμένος και ο χρόνος ζωής ανεξάρτητος του ύψους, όπως φαίνεται στην περίπτωση των $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ QDs.

ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΚΕΣ ΑΝΑΦΟΡΕΣ

- [1] J. H. Davies, *J. Appl. Phys.* **84**, 1358 (1998).
- [2] M. Tadic, F.M. Peeters and K.L. Janssens, *Phys. Rev. B* **65**, 165333 (2002).
- [3] O. Stier, M. Grundmann and D. Bimberg, *Phys. Rev B*, **59**, 5688 (1999)
- [4] C. Pryor, J. Kim, L.W. Wang, A.J. Williamson and A. Zunger, *J. Appl. Phys.* **83**, 2548 (1998)

- [5] E.O. Kane, *Phys. Rev. B* 31, 7865 (1985)
- [6] O.L. Lazarenkova, P. von Allmen, F. Oyafuso, S. Lee and G. Klimeck, *Appl. Phys. Lett.* 85, 4193 (2004)
- [7] M. A. Migliorato, A.G. Cullis, M. Fearn and J.H. Jefferson, *Phys. Rev. B* 65, 115316 (2002)
- [8] M. Califano and P. Harrison, *J. Appl. Physics* 91, 389 (2002)
- [9] A.D. Andreev, J. R. Downes, D.A. Faux and E.P. O'Reilly, *J. Appl. Physics* 86, 297 (1999)
- [10] J.R. Downes, D.A. Faux and E.P. O'Reilly, *J. Appl. Physics* 81, 6700 (1997)
- [11] C. Pryor, *Phys. Rev. B* 57, 7190 (1998)
- [12] G. Bester, X. Wu, D. Vanderbilt and A. Zunger, *Phys. Rev. Lett.* 96, 187602 (2006)
- [13] G. Bester, A. Zunger, X. Wu and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. B* 74 081305 (2006)
- [14] M. Grundmann, O. Stier and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* 52, 11969 (1995)
- [15] J.L. Sanchez-Rojas, A. Sacedon, F. Gonzalez – Sanz, E. Calleja and E. Munoz, *Appl. Phys. Lett.* 65, 2042 (1994)
- [16] S. Sanguinetti, M. Gurioli, E. Grilli, M. Guzzi and M. Henini, *Appl. Phys. Lett.* 77, 1982 (2000)
- [17] M. Gurioli, S. Sanguinetti and M. Henini, *Appl. Phys. Lett.* 78, 931 (2001)
- [18] I. Vurgaftman, J.R. Meyer and L.R. Ram-Mahan, *J. Appl. Physics* 89, 5815 (2001)
- [19] C. Pryor, *Phys. Rev. B* 57, 7190 (1998)
- [20] R.H. Henderson and E. Towe, *J. Appl. Physics* 79, 2029 (1996)
- [21] R.H. Henderson and E. Towe, *J. Appl. Physics* 78, 2447 (1995)
- [22] N. Vukmirovic, D. Injin, V. Jovanovic, Z. Ikonic and P. Harrison, *Phys. Rev. B* 72, 075356 (2005)
- [23] C. Pryor, *Phys. Rev. B* 57, 7190 (1998)
- [24] H. Jiang and J. Singh, *Phys. Rev. B* 56, 4096 (1997)
- [25] H. Fu, L.W. Wang and A. Zunger, *Phys. Rev. B* 57, 9971 (1998)

- [26] L.W. Wang, and A. Zunger, in *Semiconductor for Nanoclusters: Studies in Surface Science and Catalysis*, Vol. 103, edit. R. V. Kamat and D. Meisel, Elsevier, New York, pp. 161–207 (1996).
- [27] J. Shumway, A. Franceschetti and A. Zunger, 2001, *Phys. Rev. B* **63**, 155316 (2001)
- [28] G. Bester and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **71**, 45318 (2005)
- [29] O. Stier, *Electronic and Optical Properties of Quantum Dots and Wires*, PhD thesis, Technische Universität Berlin (2001)
- [30] A. Schliwa, *Electronic Properties of Self Organized Quantum Dots*, PhD thesis, Technische Universität Berlin (2007)
- [31] A. Schliwa, M. Winkelkemper and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **76**, 205324 (2007)
- [32] S. Rodt, A. Schliwa, K. Potechke, F. Guffarth and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **71**, 155325 (2005).
- [33] M. Califano, A. Franceschetti and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **75**, 115401 (2007)
- [34] D.R. Penn, *Phys. Rev.* **128**, 2093 (1962)
- [35] L.W. Wang and A. Zunger, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1039 (1994)
- [36] G.A. Narvaez, G. Bester and A. Zunger, *Physical Review B* **72**, 245318 (2005)
- [37] Σ. Γερμάνης, Διδακτορική Διατριβή, Τμήμα Επιστήμης και Τεχνολογίας Υλικών, Πανεπιστήμιο Κρήτης (2015)
- [38] L. Ya Karachinsky, S. Pellegrini, G. S. Buller, a. S. Skolnik, N. Yu Gordeev, V. P. Evtikhiev, and V. B. Novikov, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 79 (2004).
- [39] C. Bardot, M. Schwab, M. Bayer, S. Fafard, Z. Wasilewski, and P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* **72**, 035314 (2005).
- [40] S. M. Ulrich, M. Benyoucef, P. Michler, N. Baer, P. Gartner, F. Jahnke, M. Schwab, H. Kurtze, M. Bayer, S. Fafard, Z. Wasilewski, and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **71**, 235328 (2005).
- [41] S. Germanis, A. Beveratos, G. E. Dialynas, G. Deligeorgis, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, and N. T. Pelekanos, *Phys. Rev. B* **86**, 1 (2012).
- [42] M Gurioli, A. Vinattieri, M Colocci, C. Deparis, J. Massies, G. Neu, A. Bosacchi, and S. Franchi, *Phys. Rev. B* **44**, 3115 (1991).
- [43] J. Simon, N. Pelekanos, C. Adelman, E. Martinez-Guerrero, R. Andre, B. Daudin, Le Si Dang, and H. Mariette, *Phys. Rev. B* **68**, 035312 (2003).

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6: ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ – ΜΕΛΛΟΝΤΙΚΕΣ ΠΡΟΟΠΤΙΚΕΣ

Οι δομικές και οπτικές ιδιότητες των (211)B InAs QDs μελετήθηκαν εκτενώς στα πλαίσια της παρούσας εργασίας. Οι τελείες αυτές συνδυάζουν το πλεονέκτημα της ώριμης τεχνολογίας επεξεργασίας του GaAs, με την ιδιαιτερότητα της παρουσίας ενός ισχυρού πιεζοηλεκτρικού πεδίου στο εσωτερικό τους. Στην εργασία αυτή μελετήθηκαν οι οπτικές ιδιότητες των τελειών αυτών. Οι (211)B InAs QDs, που μελετήθηκαν, παρουσιάζουν δύο σημαντικές ιδιαιτερότητες, καθώς εμφανίζουν αμελητέο διαχωρισμό λεπτής υφής, μικρότερο από 10meV, ενώ παράλληλα παρουσιάζουν μεγάλη αντιδέσμια ενέργεια διεξιτονίου, η οποία μπορεί να φτάσει ακόμα και τα 15meV. Τα δύο παραπάνω φαινόμενα αποτελούν μια ξεκάθαρη ένδειξη της ύπαρξης ενός ισχυρού εσωτερικού ηλεκτρικού πεδίου, και καθιστούν τις δομές αυτές υποψήφιες για χρήση σε πηγές μεμονωμένων και συζευγμένων φωτονίων σε σχετικά υψηλές θερμοκρασίες. Επιπρόσθετα οι (211)B InAs παρουσιάζουν ενισχυμένη μετατόπιση λόγω φαινομένου Stark, όταν ασκηθεί στα άκρα τους εξωτερική τάση, εξαιτίας του ισχυρού εσωτερικού τους πεδίου. Για το λόγο αυτό παρουσιάζονται ως εξαιρετικές υποψήφιες δομές για την κατασκευή εκπομπών μεμονωμένων φωτονίων μεταβλητού μήκους κύματος. Τα αποτελέσματα αυτά καθιστούν τις πιεζοηλεκτρικές QDs ως ένα ιδανικό σύστημα για την κατανόηση κβαντομηχανικών φαινομένων σε νανοκλίμακα και δημιουργούν νέα δεδομένα για τις εφαρμογές, στις οποίες μπορούν να χρησιμοποιηθούν οι QDs.

Όσον αφορά τις μελλοντικές προοπτικές, οι θεωρητικοί υπολογισμοί ανέδειξαν τη σημασία του ύψους και της σύστασης των InAs QDs τόσο στο μέγεθος του πιεζοηλεκτρικού πεδίου, όσο και στις ιδιότητες τους. Για το λόγο αυτό παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον η κατασκευή τελειών μεγαλύτερου ύψους και με μεγάλη περιεκτικότητα σε In. Κβαντικές τελείες με αυτά τα μορφολογικά και δομικά χαρακτηριστικά παρουσιάζουν, όπως προέκυψε από τους θεωρητικούς υπολογισμούς, μεγάλες εντάσεις πιεζοηλεκτρικού πεδίου, υψηλές αντιδέσμιες ενέργειες διεξιτονίου και ακόμη μεγαλύτερες μετατοπίσεις λόγω φαινομένου Stark. Επομένως, θα μπορούσε κανείς να παρατηρήσει σε τέτοιες δομές εκπομπή μεμονωμένων φωτονίων ακόμη και σε θερμοκρασία δωματίου.

Όπως αναδείχθηκε στην παρούσα εργασία, μια από τις πιο σημαντικές ιδιότητες των (211)B InAs QDs είναι ότι εμφανίζουν σε αρκετές περιπτώσεις μεγάλες αντιδέσμιες ενέργειες διεξιτονίου, ως αποτέλεσμα του ισχυρού πιεζοηλεκτρικού τους πεδίου, κατά κύριο λόγο. Η ένταση του πιεζοηλεκτρικού αυτού πεδίου σε τέτοιες δομές είναι ακόμη υπό διερεύνηση. Μια

μέθοδος για τον ποσοτικό προσδιορισμό της έντασης του ηλεκτρικού αυτού πεδίου καθώς και για τον έλεγχο της ενεργειακής διαφοράς εξιτονίου και δειξιτονίου είναι να ενσωματωθούν οι κβαντικές τελείες σε μια δίοδο. Εφαρμόζοντας εξωτερική τάση στα άκρα της διόδου και διεγείροντας οπτικά τις QDs, είναι εφικτή η μεταβολή των ενεργειών εκπομπής εξιτονίου και δειξιτονίου και ο υπολογισμός της έντασης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου. Επιπρόσθετα σε τέτοιες δομές είναι δυνατή η παρατήρηση της εκπομπής μεμονωμένων φωτονίων σε υψηλές θερμοκρασίες με ηλεκτρική έγχυση φορέων.

Τα τελευταία χρόνια έχει επιτευχθεί η κατασκευή δομών, οι οποίες αποτελούνται από ηλεκτρονικά συζευγμένες QDs. Οι δομές αυτές ονομάζονται μοριακές QD και σε αυτές οι κβαντικές τελείες είναι κάθετα ή πλευρικά τοποθετημένες¹⁻⁵. Οι μοριακές QDs αποτελούν μια νέα κατηγορία ημιαγωγικών δομών με ιδιαίτερες ηλεκτρονικές ιδιότητες. Η μελέτη της επίδρασης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου σε τέτοιου είδους δομές παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον και θα πρέπει να μελετηθεί.

Η εφαρμογή εξωτερικού μαγνητικού πεδίου σε δομές μεμονωμένων InAs QDs έχει μελετηθεί διεξοδικά σε δομές που αναπτύσσονται σε υπόστρωμα (100)GaAs. Τα φάσματα εκπομπής των τελειών αυτών έχουν μελετηθεί σε διαφορετικές δομές και κάτω από διαφορετικές εντάσεις μαγνητικού πεδίου. Η μελέτη ανέδειξε ότι ιδιότητες που σχετίζονται με το spin όπως ο παράγοντας g του εξιτονίου εξαρτάται σε πολύ μεγάλο βαθμό από τα μορφολογικά χαρακτηριστικά των QDs. Επιπρόσθετα, η επίδραση των μαγνητικών πεδίων σε QDs επιτρέπει μεταβάσεις από και προς απαγορευμένες καταστάσεις (όπως οι σκοτεινές εξιτονικές καταστάσεις)⁶. Θεωρείται, λοιπόν, εξαιρετικά σημαντική η μελέτη των πιεζοηλεκτρικών (211)B InAs QDs κάτω από ισχυρά μαγνητικά πεδία, ώστε να διερευνηθούν οι ιδιότητες που προκύπτουν από τη συνύπαρξη ηλεκτρικού και μαγνητικού πεδίου στις δομές αυτές, καθώς και οι πιθανές εφαρμογές τους σε σπιντρονικές εφαρμογές.

Ένα ακόμη πεδίο μελλοντικής έρευνας της επίδρασης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου στις οπτικές ιδιότητες των εξιτονικών συμπλόκων είναι και η μελέτη δομών νιτρίδιων. Τέτοιες δομές, οι οποίες βασίζονται στα InN, GaN, AlN καθώς και στα τριμερή και τετραμερή τους κράματα, αποτέλεσαν αντικείμενο εκτεταμένης μελέτης τα προηγούμενα χρόνια, με αποτέλεσμα την επιτυχή ανάπτυξη οπτοηλεκτρονικών συσκευών⁷. Τα νιτρίδια παρουσιάζουν εξαιρετικά ισχυρά πιεζοηλεκτρικά πεδία, πολύ μεγαλύτερα από αυτά των δομών (211)B InAs/GaAs, και ταυτόχρονα υψηλές δέσμιες ενέργειες εξιτονίου. Οι δύο αυτές παράμετροι

καθιστούν τις QDs νιτριδίων ως ένα υποψήφιο σύστημα για τη μελέτη της επίδρασης του πιεζοηλεκτρικού πεδίου στις ιδιότητες των SQDs, αλλά και για την υλοποίηση οπτοηλεκτρονικών συσκευών όπως εκπομπούς μεμονωμένων φωτονίων σε υψηλές θερμοκρασίες⁸. Παρόλα αυτά, η ηλεκτρονιακή δομή των QDs νιτριδίων έχει μελετηθεί σε πολύ μικρότερο βαθμό σε σχέση με τις αντίστοιχες δομές αρσενιδίων, κυρίως εξαιτίας της χαμηλής κρυσταλλικής ποιότητας των δειγμάτων. Η βελτίωση της ποιότητας των δειγμάτων στο μέλλον θα επιτρέψει την μελέτη των ιδιοτήτων των εξιτονίων αλλά και των εξιτονικών συμπλόκων στις δομές αυτές.

BIBΛΙΟΓΡΑΦΙΚΕΣ ΑΝΑΦΟΡΕΣ

¹ H.J. Krenner, M. Sabathil, E.C. Clark, A. Kress, D. Schuh, M. Bichler, G. Abstreiter and J.J. Finley, *Physical Review Letters* 94, 057402 (2005)

² H.J. Krenner, E.C. Clark, T. Nakaoka, M. Bichler, C. Scheurer, G. Abstreiter, and J.J. Finley, *Physical Review Letters* 97, 076403 (2006)

³ E.A. Stinaff, M. Scheibner, A. S. Bracker, I.V. Ponomarev, V.L. Korenev, M. E. Ware, M. F. Doty, T. L. Reinecke and D. Gammon, *Science* 311, 636 (2006)

⁴ R. Songmuang, S. Kiravittaya and O. G. Schmidt, *Applied Physics Letters* 82, 2892 (2003)

⁵ L. Wang, A. Rastelli, S. Kiravittaya, R. Songmuang, O. G. Schmidt, B. Krause and T. H. Metzger, *Nanoscale Research Letters* 1, 74 (2006)

⁶ M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff and F. Schafer, *Physical Review B* 65, 195315 (2002)

⁷ S. Nakamura and G. Fasol, *The Blue Laser Diode* (Springer Verlag, Berlin, 2000)

⁸ S. Kako, C. Santori, K. Hishino, S. Gotzinger, Y. Yamamoto and Y. Arakawa, *Nature Materials* 5, 887 (2006)

A. ΔΗΜΟΣΙΕΥΣΕΙΣ ΣΕ ΔΙΕΘΝΗ ΕΠΙΣΤΗΜΟΝΙΚΑ ΠΕΡΙΟΔΙΚΑ

1. *Piezoelectric InAs/GaAs quantum dots with reduced fine-structure splitting for the generation of entangled photons*, S. Germanis, A. Beveratos, G.E. Dialynas, G. Deligeorgis, P.G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, N.T. Pelekanos, Physical Review B, 86(3), 035323 (2012)
2. *Piezoelectric InAs (211)B quantum dots grown by molecular beam epitaxy: Structural and optical properties*, G.E. Dialynas, S. Kalliakos, C. Xenogianni, M. Androulidaki, T. Kehagias, P. Komninou, P.G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, N.T. Pelekanos, Journal of Applied Physics, 108(10), 10352(2010)
3. *InAs nanostructures on polar GaAs surfaces*, G.E. Dialynas, A. Pantazis, Z. Hatzopoulos, M. Androulidaki, K. Tsagaraki, G. Konstantinidis, C. Xenogianni, E. Trichas, S. Tsintzos, P.G. Savvidis, N.T. Pelekanos, International Journal of Nanotechnology, 6(1-2), 124(2009)

B. ΔΗΜΟΣΙΕΥΣΕΙΣ ΠΡΑΚΤΙΚΩΝ ΣΥΝΕΔΡΙΩΝ ΣΕ ΔΙΕΘΝΗ ΕΠΙΣΤΗΜΟΝΙΚΑ ΠΕΡΙΟΔΙΚΑ

1. *Single dot spectroscopy on InAs/GaAs piezoelectric quantum dots*, G.E. Dialynas, N. Chatzidimitriou, S. Kalliakos, S. Tsintzos, P.G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, N.T. Pelekanos, phys. stat. sol. (a), 205: 2566-2568 (2008)
2. *Anti-binding of biexcitons in (211)B InAs/GaAs piezoelectric quantum dots*, G.E. Dialynas, C. Xenogianni, S. Tsintzos, E. Trichas, P.G. Savvidis, G. Constantinidis, J. Renard, B. Gayral, Z. Hatzopoulos, N.T. Pelekanos, “, Physica E 40(6) 2113- 2115 (2008)

Γ. ΔΗΜΟΣΙΕΥΣΕΙΣ ΣΕ ΠΡΑΚΤΙΚΑ ΣΥΝΕΔΡΙΩΝ

1. *A novel (211)B InAs quantum dot system with negligible fine structure splitting for the generation of entangled photon pairs*, S. Germanis, A. Beveratos, G. E. Dialynas, A. Stavriniadis, Z. Hatzopoulos, G. Konstantinidis, N.T. Pelekanos, Book of Abstracts of the 5th International Conference on Micro-Nanoelectronics, Nanotechnologies and MEMS, Kokkini Hani, October 2012.
2. *Polarization Resolved Single Dot Spectroscopy of (211)B InAs Quantum Dots*, S. Germanis, G.E. Dialynas, G. Deligeorgis, P.G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, N.T. Pelekanos, , AIP Conference Proceedings **1399**, 417 (2011)
3. *New (211)B InAs quantum dots with ultra-small FSS for entangled photon sources*, S. Germanis, A. Beveratos, G.E. Dialynas, G. Deligeorgis, Z. Hatzopoulos, N. T. Pelekanos, Proceedings of Optics of Excitons in Confined Systems 2011, Paris, September 2011.
4. *Polarization resolved single dot spectroscopy on (211)B InAs/GaAs quantum dots*, S. Germanis, G.E. Dialynas, G. Deligeorgis, P.G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, N.T. Pelekanos, Proceedings of International Conference on Physics of Semiconductors 2010, ICPS 10, Seoul.
5. *Giant piezoelectric field in (211)B InAs/GaAs quantum dots: an opportunity for novel photonic devices*, G.E. Dialynas, S. Kalliakos, S. Germanis, P.G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, N.T. Pelekanos, ICO-Photonics-2009 Conference on “Emerging Trends and Novel Materials in Photonics”, Delphi, Greece, October 2009.
6. *Large anti-binding of bi-excitons in (211)B InAs/GaAs piezoelectric quantum dots*, G. E. Dialynas, N. Chadzidimitriou, S. Kalliakos, S. Tsintzos, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, N.

T. Pelekanos, Abstract Book of International Conference on the Physics of Semiconductors 2008, ICPS 08, Rio de Janeiro.

7. *Negative bi-exciton binding energy in (211)B InAs/GaAs piezoelectric quantum dots*, G.E. Dialynas, C. Xenogianni, E. Trichas, P.G. Savvidis, G. Constantinidis, Z. Hatzopoulos, N.T. Pelekanos, Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference 2007 Technical Digest, #JTUA6, Baltimore (2007).