

ШИРИНА ЭКСИТОННОЙ ЛИНИИ НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЙ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ СТРУКТУР $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ С ОДИНОЧНЫМИ КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ

А. С. Игнатъев, М. В. Карачевцева, В. Г. Мокеров, Г. З. Немцев,
В. А. Страхов, Н. Г. Яременко

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021,
Санкт-Петербург, Россия
(Получена 4 марта 1993 г. Принята к печати 5 июля 1993 г.)

Проведены исследования низкотемпературной фотолюминесценции гетероструктуры $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ с тремя одиночными квантовыми ямами шириной в 20, 37 и 63 Å, выращенной методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Экспериментальные результаты сопоставлены с аналогичными данными для других гетеросистем. По интенсивности люминесценция из ям превосходила излучение из слоев GaAs на 2—3 порядка, полуширина экситонной линии из ямы в 37 Å составляла 1.4 мэВ, что находится на уровне лучших опубликованных данных для ям с сопоставимыми размерами. Проведен расчет зависимости полуширины линии экситонной люминесценции структур $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ от ширины квантовой ямы для механизмов уширения, связанных с флуктуациями состава и «островковыми» флуктуациями ширины ямы. Анализ экспериментальных данных позволил сделать вывод о высоком качестве квантовых ям с ширинами 37 и 63 Å, в которых доминирующим механизмом уширения экситонной линии является неоднородность состава твердого раствора с характерным пространственным размером флуктуаций (8 ± 10) Å и дисперсией $\sigma \approx 1 \cdot 10^{-3}$. Обнаружены экситонные пики, обусловленные рекомбинацией экситонов, связанных на нейтральных примесях.

В последние годы появился интерес к гетероструктурам с квантовыми ямами (КЯ структурам) $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$, содержащим напряженные псевдоморфные слои твердого раствора. Упругие напряжения существенно изменяют электронную зонную структуру твердого раствора, что расширяет область практических применений таких систем. Кроме того, использование напряженных слоев снимает трудности, связанные с согласованием слоев, и увеличивает возможность выбора материалов, составляющих гетероструктуру. Уже сейчас, благодаря использованию современных методов выращивания структур (молекулярно-пучковой и МОС гидридной эпитаксий), получены хорошие результаты в создании и использовании таких систем как $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$, GaAsP/GaAs и др. Структуры $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ с квантовыми ямами успешно конкурируют с традиционными изопериодическими структурами в создании быстродействующих транзисторов, модуляторов, резонансных туннельных диодов, лазерных диодов и т. д.

Среди работ, посвященных изучению особенностей электронной структуры системы $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$, значительное место занимают фотолюминесцентные исследования. Использование фотолюминесценции (ФЛ) как метода диагностики структур с квантовыми ямами основано на том, что существует связь между характеристиками ФЛ и параметрами ям. Одной из основных характеристик ФЛ является полуширина спектра, которая обычно служит для оценки качества структур с квантовыми ямами. Исследования низкотемпературной ФЛ показали, что КЯ структуры $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ обладают более узкой экситонной линией люминесценции по сравнению с системами $\text{AlGaAs}/\text{GaAs}$,

GaAs 300 Å
InGaAs 20 Å
GaAs 300 Å
InGaAs 40 Å
GaAs 300 Å
InGaAs 60 Å
GaAs buffer 0.8 μm
GaAs substrate

Рис. 1. Схематическое изображение структуры $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ с тремя одиночными квантовыми ямами.

InGaAs/InP , $\text{InGaAs}/\text{AlInAs}$ и отличаются от них характером зависимости полуширины линии от размеров ям.

Цель данной работы — исследование низкотемпературной фотолюминесценции структур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с одиночными квантовыми ямами, выяснение доминирующего механизма уширения экситонной линии в этих структурах

и сопоставление полученных результатов с опубликованными данными для этой и других систем.

Структура $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$, выращенная методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) на установке «Riber», содержала три одиночные квантовые ямы, которые формировались слоями твердого раствора $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с расчетным содержанием $\text{In } x = 0.12$ и заданными толщинами 20, 40, 60 Å. На полуизолирующей подложке GaAs (100) с разориентацией 3° сначала выращивался нелегированный буферный слой GaAs толщиной 0.8 мкм, затем напряженные слои $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, разделенные слоями GaAs (рис. 1). Перед началом роста каждого слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ структура выдерживалась в атмосфере мышьяка. Буферный слой выращивался при температуре подложки 620°C , остальные слои — при 500°C .

Возбуждение люминесценции осуществлялось непрерывным аргоновым лазером с длиной волны 488 нм. Излучение лазера модулировалось механическим прерывателем с частотой 1000 Гц и фокусировалось на образец в пятно диаметром ≈ 200 мкм. Образец находился в оптическом криостате, позволяющем менять температуру от жидкого гелия до комнатной. Спектральные измерения производились с помощью монохроматора МДР-23 с разрешением 2 Å. В качестве приемника использовался ФЗУ-62.

Энергии переходов E_{mc-nb} между двумерными подзонами электронов и дырок, определяющие положение пиков собственной люминесценции в квантовых ямах, рассчитывались с помощью уравнения Шредингера для прямоугольной потенциальной ямы конечной глубины. Влияние напряженности решетки на ширину зоны $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ учитывалось в рамках модели [1], предполагающей чисто упругую деформацию решетки. Параметры бинарных соединений, необходимые для расчета, взяты из работы [2]. Температурная зависимость этих параметров и эффективной массы не учитывалась.

На рис. 2 приведены результаты измерений низкотемпературной фотолюминесценции КЯ структуры $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ при малом уровне возбуждения. Спектр содержит три пика, энергетическое положение которых соответствует переходам между нижними подзонами размерного квантования для электронов в зоне проводимости и тяжелых дырок в валентной зоне в трех ямах. Сравнение положения пиков с расчетными зависимостями энергии переходов от ширины ямы $E_{fc-fbb}(L_z)$ позволяет уточнить состав и толщины слоев твердого раствора (рис. 3). Измерения, проведенные в различных точках структуры, показали, что толщины слоев практически не меняются по площади структуры и составляют 20, 37 и 63 Å, что с точностью до одного монослоя совпадает с оценками толщин слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ по скорости роста. В то же время состав тройного соединения заметно различается в различных точках структуры, причем наблюдается тенденция уменьшения x от центра структуры к периферии. На площади ≈ 1 см² величина x менялась в пределах $0.12 \div 0.13$,

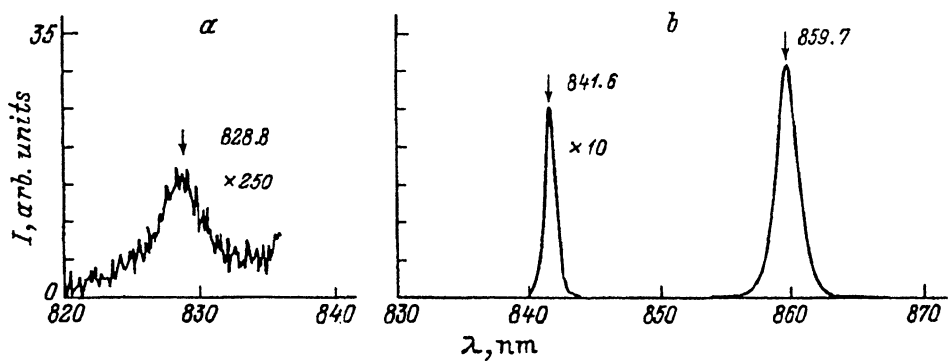


Рис. 2. Спектр фотолюминесценции $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ структуры с тремя квантовыми ямами: $a - L_z = 20 \text{ \AA}$ ($T = 40 \text{ K}$), $b - L_z = 37$ и 63 \AA ($T = 5, 6 \text{ K}$).

что соответствует изменению ширины запрещенной зоны тройного соединения с напряженной решеткой на 10 мэВ, т. е. менее чем на 1%. Примерно такая же неоднородность приведена в работе [3] для ненапряженных изопериодических структур $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$, выращенных молекулярной эпитаксией. Неоднородность этих же структур, полученных методами жидкостной и газовой эпитаксий, существенно выше.

Фотолюминесценция из 37\AA -ямы по интенсивности превосходила излучение из GaAs — слоев примерно на 2 порядка, из 63\AA -ямы — более чем на 3 порядка. Полуширины линий равнялись соответственно 1.4 и 2.8 мэВ. Интенсивность ФЛ из 20\AA -ямы была низкой. Положение пика, соответствующего излучению

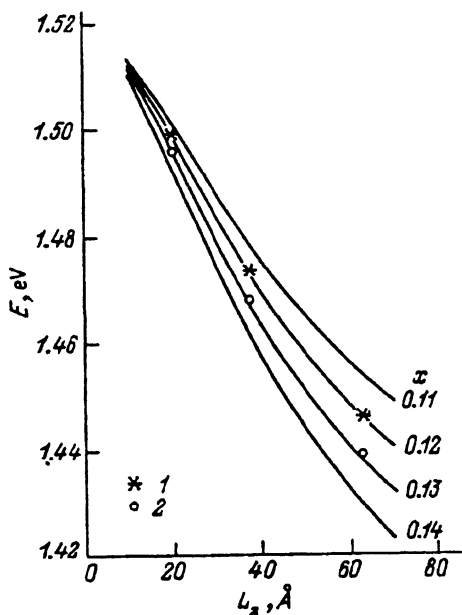


Рис. 3. Энергии переходов E_{1e-1hh} структур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с различным содержанием In в зависимости от ширины квантовых ям. Сплошные линии — расчет, 1, 2 — экспериментальные значения в разных точках поверхности структуры.

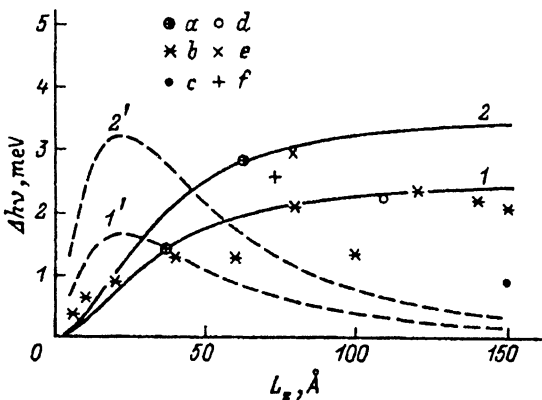


Рис. 4. Зависимость полуширины экситонной линии ($\Delta h\nu$) КЯ структуры $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ от ширины ямы L_z . Сплошные линии — расчет для механизма уширения, связанного с флуктуациями состава: $d_k = 8$ (кривая 1) и 10 \AA (кривая 2); пунктирные — расчет для механизма уширения, связанного с «островками» флуктуациями ширины ямы в один монослой ($2\delta_1 = 2.8 \text{ \AA}$), по формуле (5) при $\delta_2 = 60$ (кривая 1') и 120 \AA (кривая 2'). Расчет проведен для $T = 2 \text{ K}$, $x = 0.13$. Экспериментальные точки: $a - x = 0.13$ (данная работа); $b - x = 0.11$, [9]; $c - x = 0.12$, [12]; $d - x = 0.14$, $e - x = 0.15$, $f - x = 0.17$ [7].

из этой ямы, перекрывалось акцепторной полосой люминесценции барьерного слоя GaAs и его удалось обнаружить лишь при более высокой температуре, когда примесное излучение из GaAs было погашено. Поэтому спектры двух более широких ям приведены при температуре 5.6 К, а самой узкой ямы — при $T = 40 \text{ K}$. Полуширина спектра излучения из 20 \AA -ямы, измеренного при $T = 40 \text{ K}$, составляет 4.9 мэВ. Хотя с понижением температуры спектр должен быть несколько уже, очевидно, что эта яма существенно уступает по качеству более широкой ямам, выращенным в том же эксперименте.

На рис. 4 приведены, насколько нам известно, лучшие данные из опубликованных работ по низкотемпературным исследованиям ФЛ структур с напряженными слоями $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ близких составов, выращенных методом молекулярной эпитаксии. Полученные нами значения $\Delta h\nu$ для 63 \AA -ямы находятся на уровне типичных, а для 37 \AA -ямы — на уровне лучших значений.

Для сравнения отметим, что полуширины низкотемпературных спектров ФЛ других систем с квантовыми ямами сопоставимых размеров имеют большие значения. Для экситонных линий структур InGaAs/InP приводятся значения $\Delta h\nu = 3.3 \text{ мэВ}$ ($L_z = 60 \text{ \AA}$) [4]; для $\text{AlGaAs}/\text{GaAs}$ — 7.2 и 5 мэВ ($L_z = 40$ и 70 \AA соответственно) [5]. Еще более широкие спектры наблюдаются в системе $\text{InGaAs}/\text{AlInAs}$: $\Delta h\nu = 20 \text{ мэВ}$ ($L_z = 60 \text{ \AA}$) [6]. Важно отметить, что для всех перечисленных систем характерно сильное уширение линии ФЛ с уменьшением ширины ямы. Как видно из рис. 4, для КЯ структур $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ такого уширения не наблюдается. Таким образом, проведенное сопоставление спектров ФЛ различных КЯ систем, с одной стороны, подтверждает преимущества $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ структур, а с другой — свидетельствует о сложности и неоднозначности механизмов, определяющих ширину линии в этой системе.

Известно, что ширина экситонной линии и ее зависимость от размера ям в КЯ структурах на основе твердых растворов определяется влиянием нескольких факторов, главными из которых считаются флуктуации состава твердого раствора, флуктуации ширины ямы, примеси и структурные дефекты на границе раздела, эффект заполнения зоны. Низкая концентрация примеси в материале ямы и барьера позволяет не учитывать влияние эффекта заполнения зоны в нашем случае.

Нами проведен расчет зависимости полуширины линии экситонной люминесценции КЯ структур $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ от ширины ямы для случаев, когда уширение связано с локальными неоднородностями состава или флуктуациями ширины ямы. Оба механизма рассчитаны в рамках единой модели [7] в предположении, что пространственные размеры «островков» δ_2 и флуктуаций состава (или кластеров) d_k меньше диаметра экситона d_e (при расчетах считалось $d_e = 300 \text{ \AA}$).

Если E_g — ширина зоны тройного соединения; x_0 — средний по слою состав тройного соединения; x — средний состав в пределах объема экситона; флуктуации состава малы, $|x - x_0| \ll x_0$; η — доля объема экситона вне ямы, то в структурах нашего типа, когда материалом ямы является тройное соединение, а материалом барьера — бинарное, распределение вероятности флуктуаций состава представляется функцией Гаусса

$$P = \exp\left(-\frac{(x - x_0)^2}{2\sigma^2}\right)$$

с дисперсией σ , равной

$$\sigma = \left(\frac{x_0(1 - x_0)d_k^3}{2d_e^3(1 - \eta)}\right)^{1/2}. \quad (1)$$

Соответствующая полуширина линии $\Delta h\nu$ имеет вид

$$\Delta h\nu = (\Delta h\nu)_a \frac{\left.\frac{\partial E_{1e-1hh}}{\partial x}\right|_{x_0}}{\left.\frac{\partial E_g}{\partial x}\right|_{x_0}} \frac{1}{\sqrt{1 - \eta}}, \quad (2)$$

где $(\Delta h\nu)_a$ — полуширина линии объемного твердого раствора, равная

$$(\Delta h\nu)_a = 2 \left(0.7x_0(1 - x_0)\frac{d_k^3}{d_e^3}\right)^{1/2} \left.\frac{\partial E_g}{\partial x}\right|_x. \quad (3)$$

Следует отметить, что в [7] в этой формуле в основании степени ошибочно приводится вдвое больший коэффициент. Согласно (3), с увеличением L_z ширина экситонной линии стремится к ширине линии объемного тройного твердого раствора. С уменьшением L_z энергия перехода приближается к ширине зоны барьера, образованного бинарным соединением. В системах, в которых материалом ямы является бинарное соединение, а материалом барьера — тройное ($\sqrt{1 - \eta}$ заменяется на $\sqrt{\eta}$), анализ зависимости $\Delta h\nu$ (L_z) дает обратный результат для предельных размеров ям: с уменьшением ширины ямы $\Delta h\nu \rightarrow (\Delta h\nu)_a$, а с ростом L_z $\Delta h\nu \rightarrow 0$. Таким образом, механизм уширения экситонной линии за счет композиционной неоднородности по-разному проявляется в КЯ системах, различающихся положением тройного соединения в структуре.

При расчете уширения линии, обусловленного островковыми флуктуациями границ раздела, делались следующие предположения: качество обеих границ раздела одинаково и может быть описано флуктуациями одного размера; высота островков $2\delta_1$, равная одному монослою, считается постоянной по

структуре ($\pm\delta_1$ — отклонение границы раздела от средней по слою); наименьший диаметр островка $\delta_2 \leq d_c$; средние по структуре размеры островков и расстояния между ними равны и, следовательно, равны занимаемые ими доли общей площади (по 0.5). При этих условиях приведенное в [7] выражение для распределения вероятности флуктуаций размеров ям упрощается и может быть записано в виде

$$P = \exp \left[-\frac{2d_c^2}{\delta_2^2} (\ln 2 + C \ln C + (1 - C) \ln (1 - C)) \right], \quad (4)$$

где C — доля площади, занимаемая островками в пределах каждого экситона. При этом отклонение эффективной ширины ямы L_{ze} в пределах размера экситона от средней по структуре ширины ямы L_z равно

$$\Delta L_z = L_{ze} - L_z = 4\delta_1 (C - 0.5).$$

В этом случае возможна линейная интерполяция зависимости $\Delta L_z/\delta_1$ от d_c/δ_2 , полученной численным решением уравнения (4) при $P = 0.5$, и полуширина линии экситонной люминесценции будет определяться выражением

$$\Delta h\nu = 3.2 \frac{\delta_2}{d_c} \delta_1 \left. \frac{\partial E_{ic-1hh}}{\partial L_z} \right|_{L_z}. \quad (5)$$

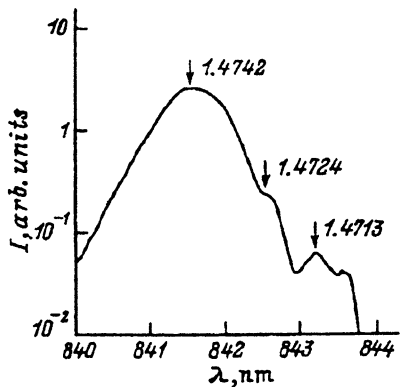
Зависимость $\Delta h\nu(L_z)$ носит немонотонный характер, поскольку в ямах конечной глубины при $L_z \rightarrow 0$ энергия основного перехода приближается к ширине зоны барьера и перестает зависеть от размера ямы.

На рис. 4 приведены теоретические кривые полуширины линии для обоих механизмов уширения, рассчитанные нами в рамках модели [7]. В качестве подгоночных параметров использованы характерные пространственные размеры островков δ_2 и флуктуаций состава d_k . Результаты работы [8] хорошо описываются кривой 1, рассчитанной нами для уширения экситонной линии за счет флуктуации состава при $d_k = 8$ Å. Авторами сделан вывод о доминирующей роли флуктуаций состава, хотя соответствующий расчет отсутствует. Полученные нами значения полуширины линии для 37Å-ямы ложатся на эту же кривую, а для 63Å-ямы — на кривую 2 с параметром $d_k = 10$ Å. Согласно (1), соответствующие значения σ , характеризующие неоднородность состава твердого раствора в пределах возбуждающего пятна, составляют $(1 \div 1.5) \cdot 10^{-3}$.

Как видно из рисунка, значения полуширин, полученные разными авторами, в соответствии с механизмом композиционного уширения линии при $L_z > 50$ практически не зависят от размеров ям и лежат в пределах $(1 \div 3)$ мэВ. Этим значениям полуширины линии, согласно (2), (3), соответствуют размеры флуктуаций состава $d_k = (5 \div 10)$ Å (при $x = 0.13$), которые могут служить для оценки однородности слоев $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}$ с напряженными решетками. Для сравнения отметим, что типичные значения полуширины линии для толстых ненапряженных слоев $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$, согласованных с подложкой InP , составляют $(2 \div 5)$ мэВ [10]. Оценка по формуле (3) характерных размеров флуктуаций состава, соответствующих этим полуширинам, дает примерно такие же значения $d_k = (5.0 \div 9.0)$ Å. Из этого следует, что упругие напряжения, вызванные несоответствием параметров решеток твердого раствора $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}$ и GaAs , не приводят к увеличению композиционной неоднородности твердого раствора.

На основании приведенных расчетов нельзя сделать вывод о доминирующем механизме уширения линии ФЛ для 20Å-ямы, так как отсутствуют данные

Рис. 5. Спектр фотолюминесценции $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ одиночной квантовой ямы $L_z = 37 \text{ \AA}$ при $T = 5, 6 \text{ К}$. Рядом со стрелками указаны значения $h\nu$, эВ.



о ее параметрах при гелиевой температуре. Очевидно, что полуширина линии 20\AA -ямы не может быть объяснена влиянием только композиционной неоднородности твердого раствора. Расчетные кривые для островковых флуктуаций ширины ямы имеют максимум полуширины вблизи $L_z \approx 20 \text{ \AA}$ и в принципе качественно объясняют увеличение полуширины линии для этой ямы. Однако вряд ли островковые флуктуации являются единственным механизмом, определяющим параметры ФЛ в этом случае. Судя по низкой интенсивности и большой полуширине, экситонная рекомбинация, характерная для качественных ям, не является основным механизмом люминесценции в этой яме. В квантовых ямах с несовершенными границами, как правило, доминирует излучение, связанное с захватом носителей на потенциале примесей и дефектов, расположенных в барьере и в области интерфейса.

В спектре ФЛ 37\AA -ямы удалось обнаружить слабые пики, отстоящие от основного на 1.8 и 2.9 мэВ в сторону меньших энергий. Наиболее отчетливо тонкая структура проявляется на графике, построенном в полулогарифмическом масштабе (рис. 5). Дополнительные пики в длинноволновой части спектра ранее наблюдались в высококачественных КЯ структурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ и объяснялись рекомбинацией связанных экситонов [8, 10, 11] или влиянием крупномасштабных изменений ширины ямы в один монослой [12]. В нашем случае появление дополнительных пиков нельзя объяснить рекомбинацией экситонов в местах уширения ямы. Согласно расчету энергии переходов для двух ям с ширинами, отличающимися на один монослой (37 и 40 \AA), и при $x = 0.13$ должны отличаться на 3.9 мэВ , что существенно больше наблюдаемых в эксперименте расстояний между пиками. Энергетическое положение пиков позволяет считать, что пики с энергиями 1.4724 и 1.4713 эВ , скорее всего, обусловлены рекомбинациями экситонов, связанных на нейтральных донорах (D^0X) и акцепторах (A^0X) соответственно.

Таким образом, в данной работе приводятся результаты исследования низкотемпературной ФЛ структур $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ с одиночными квантовыми ямами. Проведен расчет полуширины экситонной линии для механизмов, связанных с флуктуациями состава твердого раствора и ширины ямы в КЯ структурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$. Анализ экспериментальных данных позволил сделать вывод о высоком качестве квантовых ям с ширинами 37 и 63 \AA , в которых доминирующим механизмом уширения экситонной линии ФЛ является неоднородность состава твердого раствора с характерным пространственным размером флуктуаций $(8 \div 10) \text{ \AA}$ и дисперсией $\sigma \approx 1 \cdot 10^{-3}$.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] F. H. Pollak. Surf. Sci., 37, 863 (1973).
- [2] S. H. Pan, H. Shen, Z. Hang, F. H. Pollak, W. Zhuang, Q. Xu, A. P. Roth, R. A. Masut, C. Lacelle, D. Morris. Phys. Rev. B, 38, 3375 (1988).
- [3] A. F. S. Penna, J. Shah, T. V. Chang, M. S. Burroughs, R. E. Nahory, M. Tamago, H. M. Cox, Sol. St. Comm., 51, 425 (1984).
- [4] W. T. Tsang, E. F. Schubert. Appl. Phys. Lett., 49, 220 (1986).

- [5] H. Kawai, K. Kaneko, N. Watanabe. *J. Appl. Phys.*, **56**, 463 (1984).
[6] D. F. Welch, G. W. Wicks, L. F. Eastman. *Appl. Phys. Lett.*, **46**, 991 (1985).
[7] Y. Singh, K. K. Bajaj. *J. Appl. Phys.*, **57**, 5433 (1985).
[8] P. B. Kirby, J. A. Constable, R. S. Smith. *Phys. Rev. B*, **40**, 3013 (1989).
[9] K.-H. Goetz, D. Bimberg, H. Jurgensen, J. Selder, A. V. Solomonov, G. F. Glinski, M. Razëghi. *Appl. Phys.*, **54**, 4543 (1983).
[10] P. B. Kirby, J. A. Constable, R. S. Smith. *J. Appl. Phys.*, **69**, 517 (1991).
[11] P. B. Kirby, M. B. Simpson, J. D. Wilcox, R. S. Smith, T. M. Kerr, B. A. Miller, C. E. C. Wood. *Appl. Phys. Lett.*, **53**, 2158 (1988).
[12] R. L. S. Devine, W. T. Noore. *J. Appl. Phys.*, **62**, 3999 (1987).
-

Редактор В. В. Чалдышев