

ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ МНОЖЕСТВЕННЫХ КВАНТОВЫХ ЯМ GaAs/Al_xGa_{1-x}As В СТРУКТУРАХ ДЛЯ ИНФРАКРАСНЫХ ФОТОПРИЕМНИКОВ

Б. Р. Варданян, Р. Р. Резванов, М. В. Чукичев, А. Э. Юнович

Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, 119899, Москва, Россия
(Получена 18 мая 1993 г. Принята к печати 24 августа 1993 г.)

В спектрах фото- и катодолюминесценции множественных квантовых ям GaAs/Al_xGa_{1-x}As ($x = 0.30 \div 0.35$), выращенных МОС гидридной эпитаксией и предназначенных для ИК фотоприемников, наблюдаются дополнительные линии и уширение спектральных полос. Показано, что эти изменения в спектрах люминесценции могут быть объяснены прежде всего флуктуациями ширины квантовых ям. На спектры влияют и примесные состояния доноров. Обсуждается влияние факторов, проявляющихся в спектрах люминесценции, на спектры ИК поглощения.

1. Введение

В работах [1, 2] было показано, что многослойные гетероструктуры с множественными квантовыми ямами (МКЯ) на основе GaAs/Al_xGa_{1-x}As, изготовленные методом МОС гидридной эпитаксии, могут быть использованы для создания ИК фотоприемников в диапазоне длин волн 8÷10 мкм. В [2] цитировались две работы [3, 4], в которых также показывалась эта возможность, и даны ссылки на предшествовавшие работы. Однако в [3, 4] не сообщалось о люминесцентном анализе структур. Из совместного анализа спектров катодолюминесценции (КЛ) и фотопроводимости (ФП) в [1, 2] следовало, что возможно объяснить наблюдаемые спектры простой моделью прямоугольных потенциальных ям. Согласовать данные разных опытов оказалось возможным, учитывая роль доноров, которыми легированы квантовые ямы.

В настоящей работе проведено исследование спектров КЛ и фотолюминесценции (ФЛ) структур с легированными МКЯ при изменении глубины потенциальных ям в пределах $V_{oc} = 0.24 \div 0.29$ эВ вариацией состава Al_xGa_{1-x}As ($x = 0.30 \div 0.35$). Спектры проанализированы с учетом флуктуаций ширины и глубины МКЯ и влияния легирования. Обсуждается возможное влияние этих факторов на ИК фотопроводимость.

2. Исследованные образцы и методика эксперимента

Структуры с МКЯ на основе гетеропереходов GaAs/Al_xGa_{1-x}As были изготовлены в АО «Сигма Плюс» [1, 2] методом газовой эпитаксии из металлоорганических соединений (МОС гидридной эпитаксии) при температуре 700 °С и давлении в реакторе 65 мм рт. ст. На n^+ -подложке из GaAs ($n = 2 \cdot 10^{18}$ см⁻³) выращивалось от 64 до 70 периодов сверхрешетки — МКЯ с шириной ям $L_z = 3 \div 6$ нм (GaAs) и шириной барьеров $L_B = 23 \div 50$ нм (Al_xGa_{1-x}As). Ямы легировались Si до $(5 \div 10) \cdot 10^{17}$ см⁻⁸; барьеры нелегированы, с остаточной концентрацией $N_{D2} = (0.8 \div 2) \cdot 10^{16}$ см⁻³. Верхний контактный

Параметры образцов МКЯ GaAs/Al_xGa_{1-x}As и характерные положения максимумов в спектрах КЛ при T = 4.5 К

№ образца	x	L _z , Å	E _{g2} , эВ		ħω _{1m} , эВ (эксперимент)	Δ(ħω) _{1/2} , мэВ	ΔE _{D2} , эВ	(ΔE _{1c} ⁺ + ΔE _{1vb}) [*] , эВ (эксперимент)	ΔE _{1c} ⁺ + ΔE _{1vb} , ** эВ	L _z , Å (экс-перимент)	(ΔE _{1c} ⁺ + ΔE _{1vb}) ^{***} , эВ	V _{0c} эВ
			эксперимент	теория								
1	0.3	30	1.885	1.924	1.660	13	0.039	0.142	0.169	34	0.151	0.243
2	0.3	41	1.883	1.924	1.662	21	0.041	0.144	0.127	34.9	0.151	0.243
3	0.3	60	1.900	1.924	1.638	22	0.024	0.120	0.078	39.5	0.129	0.243
4	0.35	30	1.952	1.998	1.581	34	0.46	0.070	0.186	60.4	0.065	0.288
5	0.35	30	1.953	1.998	1.682	34	0.045	0.164	0.186	34	0.163	0.288

Примечание. * По формуле (1). ** По формуле (5). *** По формуле (5) при L_z = L_z.

слой (0.6 ÷ 3 мкм) легировался до N_D = (2 ÷ 3) · 10¹⁸ см⁻³. Концентрации n и молярная доля Al_x в барьерах были измерены на профилометре «Polaron-200». Были исследованы две серии образцов (см. таблицу).

Для исследований КЛ была использована электронная пушка с энергией электронов 15 ÷ 50 кэВ и средним током в пучке 0.005 ÷ 0.15 мкА. Излучение от образцов в металлическом криостате выводилось через кварцевое окно и направлялось на входную щель спектрометра ДФС-12 с фотоумножителем ФЭУ-83 на выходе. Для исследований ФЛ при T = 80 К применялся автоматизированный спектральный комплекс КСВУ-12; возбуждение осуществлялось He-Ne-лазером с длиной волны 0.63 мкм и плотностью мощности возбуждения ≈ 300 мВт/см².

3. Экспериментальные результаты

3.1. В спектрах КЛ при 4.5 К, как и в [1, 2], наблюдались линии и полосы в трех частях спектра с основным максимумом в области энергий ħω_{1m} = 1.58 ÷ 1.70 эВ, дополнительными слабыми максимумами в коротковолновой части и широкими полосами в длинноволновой части спектра (рис. 1—3; см. таблицу).

В первой серии для образца 1 при T = 4.5 К в спектрах КЛ наблюдался один основной максимум ħω_{1m} = 1.660 ± 0.001 эВ; для образца 2 — двойная линия, один из максимумов совпадает с 1, а другой смещен в длинноволновую область, ħω_{1m} = 1.638 ± 0.004 эВ. Ширина полос на половине интенсивности для 1 равна Δ(ħω)_{1/2} = 12 ÷ 13 мэВ; для 2 — ≈ 21 мэВ и 12 ÷ 13 мэВ соответственно для двух компонент. При возбуждении различных точек поверхности образца положение максимумов менялось в пределах ± 0.003 эВ.

В спектрах ФЛ при T = 80 К для этих образцов наблюдалась только одна полоса — для 1 ħω_{1m} = 1.656 ± ± 0.004 эВ, для 2 ħω_{1m} = 1.626 ± ± 0.004 эВ; ширина полос ≈ 17 мэВ.

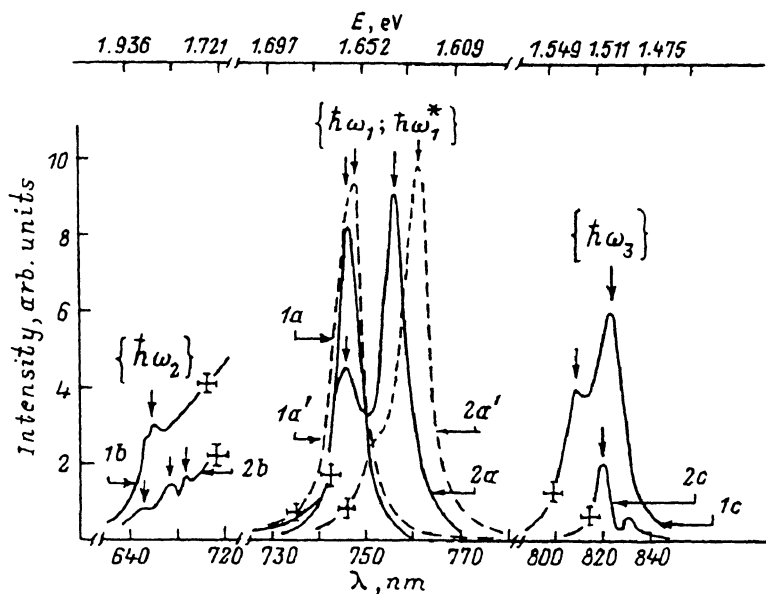


Рис. 1. Спектры люминесценции образцов первой серии; сплошные линии соответствуют катодолуминесценции при $T = 4.5$ К для образцов 1 (1a, 1b, 1c); 2 (2a, 2b, 2c). Штриховые линии — спектры фотолуминесценции при $T = 80$ К для образцов 1 (1a), 2 (2a). a, b, c — разные части спектров.

В спектрах КЛ в области высоких энергий наблюдались слабые максимумы при $\hbar\omega_{2m} = 1.883 \div 1.885$ эВ с интенсивностью в $5 \div 7 \cdot 10^3$ раз меньшей основного максимума. Для 2 наблюдалась структура вблизи 1.836 и 1.809 эВ (рис. 1). Эти пики связаны с излучательными переходами в барьерах. В области низких энергий для обоих образцов наблюдались широкие полосы с максимумами $\hbar\omega_{3m} = 1.509 \div 1.530$ эВ с шириной ≈ 0.07 эВ. Эти полосы, как показали исследования в растровом электронном микроскопе [5], обусловлены люминесценцией контактного слоя и подложки.

При изменении T от 4.5 до 90 К (рис. 2) полоса КЛ сдвигалась в область низких энергий на $6 \div 12$ мэВ. Для образца 2, с двойной линией, с увеличением T при данном уровне возбуждения уменьшалась интенсивность компоненты с более низкой энергией. Интенсивность пика КЛ с энергией $\hbar\omega_{1m} = 1.626$ эВ сравнительно велика. Отсюда понятно, почему при уровне возбуждения, меньшем на 2 порядка, в спектрах ФЛ при 80 К наблюдается только длинноволновая компонента.

3.2. Для образцов 3—5 второй серии спектры также имели три участка — основной, коротковолновый и длинноволновый. Основной максимум был шире, $\Delta(\hbar\omega)_{1/2} = 0.034 \div 0.039$ эВ. В образце 3 можно было заметить раздвоение максимума (рис. 3, см. таблицу). Различие в положении коротковолнового максимума коррелировало с изменением состава твердого раствора в барьерах от $x = 0.30$ до $x = 0.35$ (см. таблицу).

Спектры ФЛ при $T = 80$ К имели вид полос с шириной $\Delta(\hbar\omega)_{1/2} = 38 \div 44$ мэВ; они были сдвинуты относительно низкотемпературных спектров на $5 \div 12$ мэВ в сторону низких энергий.

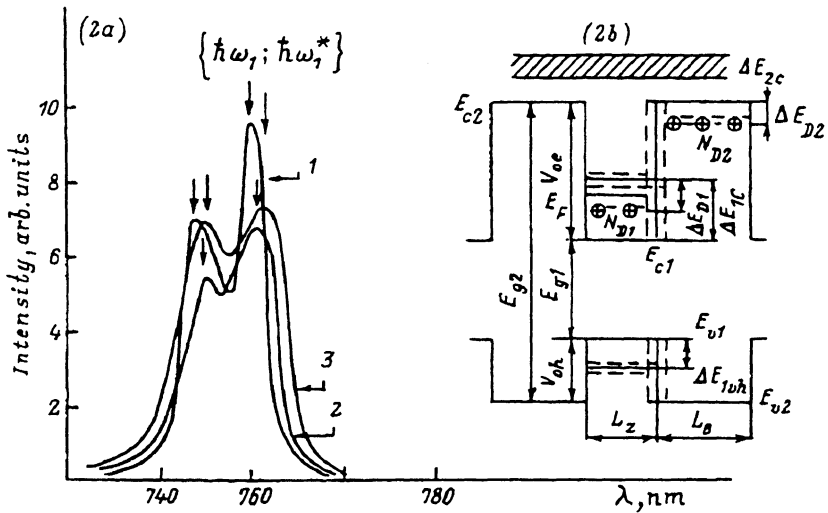


Рис. 2. Зависимость спектров катодолуминесценции от температуры при T, K : 1 — 5, 2 — 52, 3 — 86 для образца 2 (2a). На вставке: 2b — энергетическая диаграмма.

4. Обсуждение результатов

4.1. Рассмотрим возможные механизмы, влияющие на положение линий в спектрах люминесценции образцов. Положение основной линии должно зависеть от величины барьера на гетерограницах и от ширины потенциальных ям (рис. 2, б). На положение линий может влиять и легирование ям донорами. Диаграмма на рис. 2, б соответствует модели прямоугольных ям с идеальными гетерограницами. Линия $\hbar\omega_{1m}$ соответствует переходам из уровней размерного квантования в зоне проводимости ΔE_{1c} на уровни тяжелых дырок ΔE_{1vb} ; на переходы могут также влиять уровни или хвосты плотности состояний, отщепленные от ΔE_{1c} . В такой модели

$$\hbar\omega_{1m} = E_{g1} + \Delta E_{1c} + \Delta E_{1vb} \tag{1}$$

или, с учетом доноров,

$$\hbar\omega_{1m} = E_{g1} + \Delta E_{1c} + \Delta E_{1vb} + \Delta E_{D1}, \tag{2}$$

где ΔE_{D1} — сдвиг, обусловленный легированием ям.

Выращивание структур проводилось так, чтобы их можно было использовать для ИК фотоприемников в области длин волн $8 \div 12$ мкм с фоточувствительностью, обусловленной переходами из основного уровня ΔE_{1c} в континуум [1, 2]. Поэтому L_z мало, и в яме должен быть лишь один уровень размерного квантования; второй уровень, размытый в мини-зону, является резонансным и сливается с континуумом выше потенциального барьера V_{oc} .

Положение слабой высокоэнергетической линии должно зависеть от состава твердого раствора, т. е. от V_{oc} . Величина V_{oc} в [1] была рассчитана в предположении, что максимум $\hbar\omega_{2m}$ определяется значением E_{g2} и энергией ионизации доноров в барьере ΔE_{D2} , рассчитанной по водородоподобной модели, $\Delta E_{D2} = 10$ мэВ:

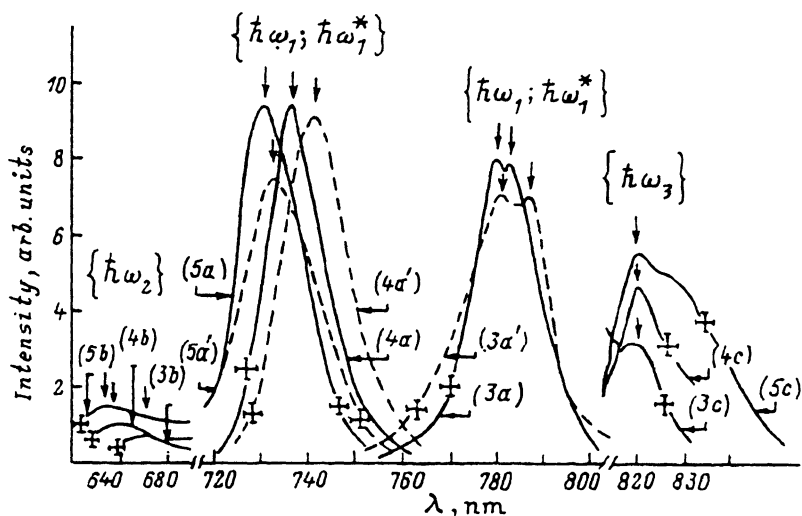
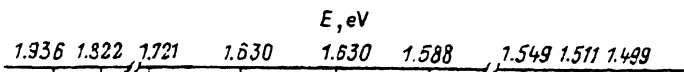


Рис. 3. Спектры люминесценции образцов второй серии; сплошные линии — катодолуминесценции при $T = 4.5 \text{ K}$ для образцов 3 (3a, 3b, 3c), 4 (4a, 4b, 4c), 5 (5a, 5b, 5c). Штриховые линии — фотолуминесценция при $T = 80 \text{ K}$ для образцов 3 (3a), 4 (4a), 5 (5a). a, b, c — разные части спектров.

$$\hbar\omega_{2m} = E_{g2} - \Delta E_{D2}. \quad (3)$$

Экспериментальные данные [6] дают значения $\Delta E_{D2} = 20 \div 80 \text{ мэВ}$. В отличие от [1, 2] примем за исходный параметр состава x и рассчитаем E_{g2} по формулам из [7] квадратичной интерполяцией [$E_{g1}(\text{GaAs}) = 1.518 \text{ эВ}$ и $E_{g2,\Gamma}(\text{AlAs}) = 3.13 \text{ эВ}$ при $T = 4.5 \text{ K}$]:

$$E_{g2}(x, T = 4.5 \text{ K}) = 1.518 + 1.612x - 0.37x(1 - x) \quad (\text{эВ}). \quad (4)$$

Тогда из экспериментальных значений $\hbar\omega_{2m}$ и формулы (3) следует, что $\Delta E_{D2} = 0.025 \div 0.045 \text{ эВ}$ (см. таблицу); это согласуется с [6]. В таблице приведены рассчитанные по формуле (4) значения $V_{oc} = \Delta E_{1c} = (0.60 \pm 0.02) \Delta E_g$ в соответствии с [8].

Уровни ΔE_{1c} и ΔE_{1vh} рассчитывались по известным формулам:

$$\cos(k_1 L_z) + K \cdot \sin(k_1 L_z) = 0,$$

$$k_1 = (2m_1^* E)^{1/2} / \hbar; \quad k = (1/2) \left\{ \left[\frac{m_1^* (V_0 - E)}{m_2^* E} \right]^{1/2} - \left[\frac{m_2^* E}{m_1^* (V_0 - E)} \right]^{1/2} \right\} \quad (5)$$

(см. [1, 2] и ссылки там же; эффективные массы известны).

В таблице результаты расчетов $(\Delta E_{1c} + \Delta E_{1vh})^{**}$ [по формуле (4) была рассчитана величина V_{oc}] сопоставлены с результатами расчетов по формуле (1) в предположении, что для $(\Delta E_{1c} + \Delta E_{1vh})^*$ величина L_z соответствует заданным технологически. Различие $7 \div 27 \text{ мэВ}$ больше погрешностей расчетов и экспериментов и требует объяснения.

Если вариации состава $\delta x \leq \pm 0.01$, то их влияние на ширину линии мало, $\Delta(h\nu)_{1/2} \leq \pm 4$ мэВ. Если же вариации ширины ямы δL_z порядка одного атомного слоя на обеих гетерограницах $\delta L_z = \pm a_0/2$ ($a_0 = 5.66$ Å), то при величине $L_z = 40$ Å ширина спектральных линий соответствует $\Delta(h\nu)_{1/2} \approx 20 \div 25$ мэВ.

Флуктуации ширины ям могут иметь характер случайных островков с размерами меньше боровского радиуса или террас с размерами больше боровского радиуса [9]. В первом случае флуктуации обуславливают уширение, а во втором — дублетное или триплетное расщепление линий в спектрах исследованных образцов. В таблице приведены значения ширины ям L'_z , которые отличаются от заданных L_z . Расчет $h\nu_{1m}$ при таких L'_z дается в таблице значениями $(\Delta E_{1c} + \Delta E_{1vb})$.*** Они отличаются от рассчитанных по формуле (2) не более чем на 10 мэВ. Это различие можно объяснить влиянием доноров в ямах, если считать, что $\Delta E_{D1} \approx 10$ мэВ. В [9] влияние доноров не рассматривалось, поскольку МКЯ были нелегированы. Для образцов 1, 2 величина ΔE_{D1} того же порядка, что и ширина линий; для образцов 3—5 ΔE_{D1} заметно меньше $\Delta(h\nu)_{1/2}$, и для них влияние доноров проявляется в уширении длинноволновой части линии. Для 1 с шириной ямы $L'_z = 7a_0$ (33.9 Å) экспериментальное значение $\Delta(h\nu)_{1/2} = 13$ мэВ можно объяснить малыми размерами островков, гетерограница имеет флуктуации $\pm a_0/2$. Для образца 2 дублет можно связать с различием в ширинах ям порядка постоянной решетки a_0 : $L'_z = 6a_0$ и $7a_0$ (33.9 и 39.55 Å) и террасами, большими боровского радиуса. Для образца 3 дублетное расщепление, обусловленное крупномасштабными флуктуациями типа террас, сравнительно мало из-за большой ширины ям $L'_z = 60$ и 62.8 Å ($\Delta L'_z = a_0/2$). Для образцов 4; 5 островковые неоднородности на гетерограницах преобладают над неоднородностями типа террас; необходимо предположить, что $\Delta L'_z = \pm 2(a_0/2)$. Дублетное расщепление не наблюдается, а ширина линий $\Delta(h\nu)_{1/2}$ велика.

Рассмотренная модель качественно объясняет как температурную зависимость структуры спектров, так и их отличие в ФЛ и КЛ. При низких T и малых уровнях возбуждения уровни с меньшей энергией в более широких ямах заполнены электронами с большей вероятностью; с увеличением T и плотности возбуждения уровни заполняются с большей энергией в более узких ямах.

4.2. Флуктуации ширины ям должны влиять на спектры поглощения и фотопроводимости, соответствующие переходам из основных уровней во вторую мини-зону. Если эти переходы соответствуют $h\nu_m = 0.12$ эВ, то уширение линий $\Delta(h\nu)_{1/2} = 30 \div 40$ мэВ составит около трети $h\nu_m$ и должна существенно уменьшаться фоточувствительность в максимуме. Будет существенно и уширение второй мини-зоны, резонансной с континуумом. По данным [10, 11], эта зона имеет ширину $30 \div 80$ мэВ, что больше экспериментальных значений ширины спектров оптического поглощения [11]. Ширину второй мини-зоны можно рассчитать по формулам

$$-1 < \cos(k_1 L_z) \cos(k_2 L_B) + k \cdot \sin(k_1 L_z) \cdot \sin(k_2 L_B) \leq +1,$$

$$k_1 = (2m_1^* E)^{1/2} / \hbar; \quad k_2 = [2m_2^* (E - V_{od})]^{1/2} / \hbar,$$

$$k = (1/2) \left\{ \left[\frac{m_1^* (E - V_{od})}{m_2^* E} \right]^{1/2} + \left[\frac{m_2^* E}{m_1^* (E - V_{od})} \right]^{1/2} \right\}. \quad (6)$$

Из расчетов для наших образцов следует, что флуктуации ширины ям порядка $2 \div 3$ атомных слоев должны приводить к изменению ширины мини-зон от 7

до 20 мэВ. Соответственно должны ухудшаться и фотоэлектрические параметры, как это и наблюдалось для фотоприемников, изготовленных из структур второй серии. Таким образом, наблюдаемые особенности в спектрах КЛ и ФЛ могут служить для предсказания свойств ИК фотоприемников на основе МКЯ.

5. Выводы

1. Структуры с МКЯ на основе гетеропереходов $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, выращенные методом МОС гидридной эпитаксии и легированные в ямах Si, обнаруживают в спектрах КЛ при 4.5 К линии и полосы, обусловленные переходами между уровнями размерного квантования в ямах, между уровнями доноров и валентной зоной в барьерах, межзонные переходы в контактном слое и подложке. В спектрах КЛ и ФЛ при 80 К наблюдаются лишь полосы, обусловленные переходами в ямах, контактном слое и подложке.

2. Основные линии, обусловленные переходами между уровнями размерного квантования электронов и тяжелых дырок, имеют энергию в максимуме $1.58 \div 1.70$ мэВ. Наиболее чувствительным параметром при согласовании расчетов в модели прямоугольных потенциальных ям с экспериментом является ширина ям. Наблюдаемые дублетные расщепления и уширение основных линий можно объяснить изменениями ширины ям и их флуктуациями в пределах $1 \div 3$ атомных слоев. Необходимо учитывать сдвиги в спектрах, обусловленные влиянием уровней или хвостов плотности состояний доноров порядка 10 мэВ. Зависимость спектров КЛ и ФЛ от T в интервале $4.5 \div 80$ К и от интенсивности возбуждения можно объяснить изменениями заполнения уровней в ямах различной ширины.

3. Уширение спектральных полос люминесценции показывает, что флуктуации ширины ям могут существенно увеличивать ширину спектров и, следовательно, уменьшать фоточувствительность, обусловленную переходами из первых уровней размерного квантования в континуум.

Авторы выражают глубокую благодарность В. А. Горбылеву, И. Д. Залевскому, А. И. Петрову за предоставление выращенных ими образцов и обсуждение результатов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] V. A. Gorbylev, I. D. Zalevsky, V. B. Kulikov, A. I. Petrov, M. V. Chukichev, A. E. Yunovich. Abstracts Int. Conf. on Narrow Gap Semicond., 145. Southampton (July 1992).
- [2] В. А. Горбылев, И. Д. Залевский, А. И. Петров, А. А. Чельный, Г. Х. Аветисян, В. Б. Куликов, М. В. Чукичев, А. Э. Юнович. ФТП, 9, 1453 (1993).
- [3] J. Y. Andersson, L. Lundquist, Z. F. Paska. Appl. Phys. Lett., 58, 2264 (1991).
- [4] B. F. Levine, C. G. Bethea, G. Hasnain, O. V. Shen, E. Pelve, S. J. Hsieh. Appl. Phys. Lett., 56, 851 (1990).
- [5] Б. Р. Варданян, А. Р. Гареева, В. И. Петров, А. Р. Сафина, А. Э. Юнович (в печати).
- [6] P. K. Bhattacharya, U. Das, M. J. Ludowise. Phys. Rev. B, 29, 6623 (1984).
- [7] Landolt-Bornstein. Intrinsic Properties of Group IV Elements and III—V; II—VI and I—VII Compounds, 22, subvol. a, 136 (1987).
- [8] W. I. Wang, E. E. Mendes, F. Stern. Appl. Phys. Lett., 45, 639 (1984).
- [9] M. A. Herman, D. Bimberg, J. Christen. J. Appl. Phys., 70, R1 (1991).
- [10] E. Rosencher, E. Martinet, F. Luc, Ph. Bois, E. Bockenhoff. Appl. Phys. Lett., 59, 3255 (1991).
- [11] R. Sizmann, P. Helgesen, S. Lovold. Abstracts Int. Conf. on Narrow Gap Semicond., 72. Southampton (July 1992).