

©1994 г.

**ТЕМПЕРАТУРНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ
ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ
СТРУКТУР $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ С КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ**

*М.В.Карачевцева, А.С.Игнатьев, В.Г.Мокеров, Г.З.Немцов,
В.А.Страхов, Н.Г.Яременко*

Институт радиотехники и электроники Российской академии наук,
141120, Фрязино, Россия
(Получена 4 ноября 1993 г. Принята к печати 7 февраля 1994 г.)

В работе проведены температурные исследования фотолюминесценции структур $In_{0.13}Ga_{0.87}As/GaAs$ с квантовыми ямами, полученных методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Зависимость интенсивности фотолюминесценции от уровня возбуждения при разных температурах свидетельствует об экситонной рекомбинации при $T < 20$ К и рекомбинации свободных носителей при $T > 50$ К. Гашение фотолюминесценции в области температур (15–50) К обусловлено активационными процессами с энергиями активации 6.4 и 5.7 мэВ для ям с ширинами 37 и 63 Å соответственно. По энергетическому положению максимума фотолюминесценции при разных температурах получена температурная зависимость ширины запрещенной зоны ненапряженного твердого раствора $In_{0.13}Ga_{0.87}As$ и ее аппроксимация функцией Варни. Получены также зависимости коэффициента прогиба c от температуры и коэффициентов α и θ в функции Варни от состава твердого раствора.

Последнее время интенсивно ведутся работы по исследованию и практическому использованию гетероструктур, содержащих эпитаксиальные слои тройного твердого раствора $In_xGa_{1-x}As$ различного состава. Современные методы эпитаксии позволяют на основе этого материала создавать качественные структуры как с ненапряженными, изопериодическими слоями ($In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP$), так и с напряженными слоями, различающимися по параметру решетки ($InGaAs/GaAs$, $InGaAs/AlInAs$ и др.). В нашей работе [1] сообщалось о получении методом молекулярной эпитаксии высококачественных структур $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ с одиночными квантовыми ямами (КЯ структур) и исследовании в них низкотемпературной (при $T \approx 5$ К) фотолюминесценции (ФЛ). Там же приведены расчетные зависимости для различных механизмов уширения экситонной линии, позволяющие определить качество границ раздела и неоднородность твердого раствора. В данной работе обсуждаются результаты температурных исследований ФЛ в тех же структурах. Анализ температурных зависимостей

параметров ФЛ (интенсивности I и положения максимума $h\nu_{\max}$) даёт возможность получить информацию о механизмах излучательной и безызлучательной рекомбинации, температурном изменении ширины запрещенной зоны и других важных характеристиках тройного твердого раствора.

При исследовании структур на основе $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ часто возникают трудности, связанные с ограниченностью и противоречивостью сведений о фундаментальных свойствах этого соединения и в первую очередь о ширине запрещенной зоны E_g . Опубликованные данные о зависимости ширины зоны от состава $E_g(x)$ относятся к отдельным температурам (как правило, температурам жидкого гелия, азота и комнатной) [2–8]. Это затрудняет проведение расчетов и интерпретацию результатов исследований при других температурах. Кроме того, сведения, приводимые различными авторами, различаются и подчас противоречат друг другу. Так, например, значения $E_g(x)$ при 77 К, полученные по формуле из работы [5], в области составов $x > 0.1$ оказываются выше, чем при 2 К из работы [7]. Поэтому представляет интерес, используя измерения температурной зависимости параметров ФЛ структур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$, получить ширину запрещенной зоны $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ для произвольных составов и температур.

Исследованная гетероструктура была выращена методом молекулно-пучковой эпитаксии на установке «Riber» и содержала две одиночные квантовые ямы с ширинами L_z , равными 37 и 63 Å. Ямы были сформированы слоями $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с содержанием индия $x = 0.13$, расположенным между слоями GaAs толщиной 300 Å. 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 виде пятна диаметром ≈ 200 мкм. Образец находился в оптическом кристалте, позволяющем изменять температуру от жидкого гелия до комнатной. Спектральные измерения проводились с помощью монохроматора МДР-23 с разрешением 2 Å. В качестве приемника использовался ФЭУ-62. Измерения проводились в диапазоне температур (5÷140) К и плотностей возбуждения $P = (10 \div 10^3)$ Вт/см².

На рис. 1 приведены зависимости интенсивности ФЛ от плотности возбуждения при разных температурах. Для обоих типов ям эти зависимости достаточно хорошо описываются степенной функцией $I \sim P^y$, показатель которой y изменяется с температурой (рис. 2). При низких температурах показатель степени близок к единице, что соответствует рекомбинации свободных экзитонов [9]. Рост показателя степени с повышением температуры свидетельствует о смене преобладающего механизма рекомбинации: при $T > 50$ К показатель степени приближается к 2 и фотoluminesценция в основном определяется рекомбинацией свободных носителей в яме.

Температурные зависимости интенсивности ФЛ для двух ям приведены на рис. 3. При низких температурах ($T \leq 15$ К) интенсивность ФЛ почти не зависит от температуры. С ростом температуры интенсивность начинает уменьшаться, причем характер зависимости говорит о том, что в интервале температур (15÷50) К доминирующим механизмом безызлучательной рекомбинации является термоактивацион-

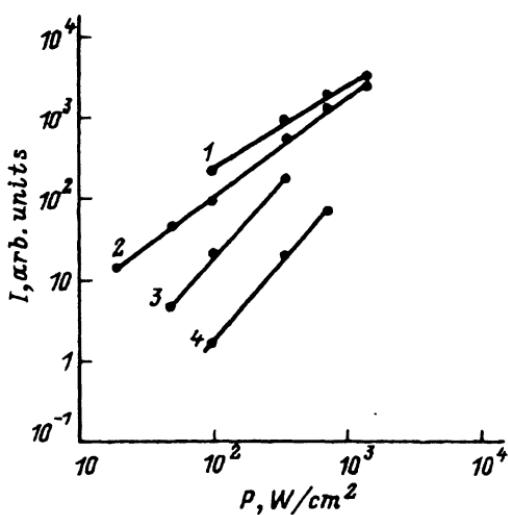


Рис. 1. Зависимость интенсивности фотолюминесценции I из квантовой ямы с $L_z = 63 \text{ \AA}$ структуры $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ от плотности возбуждения P при температурах T , К: 1 — 7, 2 — 30, 3 — 60, 4 — 90.

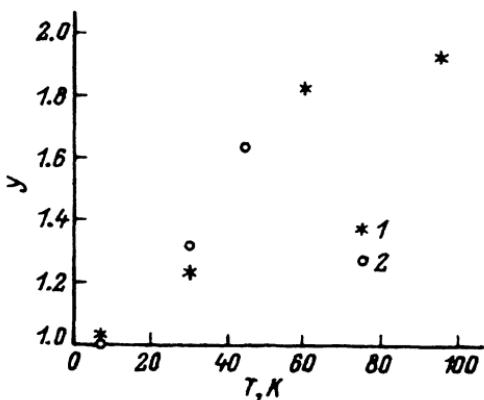


Рис. 2. Зависимость от температуры показателя степени y ($I \sim P^y$) КЯ структуры $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$: 1 — $L_z = 63 \text{ \AA}$, 2 — $L_z = 37 \text{ \AA}$.

ный процесс. В этом интервале температур интенсивность ФЛ может быть представлена в виде

$$I = \frac{I_0}{1 + (\tau_r/\tau_\infty) \exp(-\Delta E/kT)}, \quad (1)$$

где I_0 — интенсивность фотолюминесценции при $T = 0 \text{ K}$, ΔE — энергия активации безызлучательного процесса, τ_r и τ_∞ — времена жизни безызлучательной рекомбинации при данной температуре и $T \rightarrow \infty$.

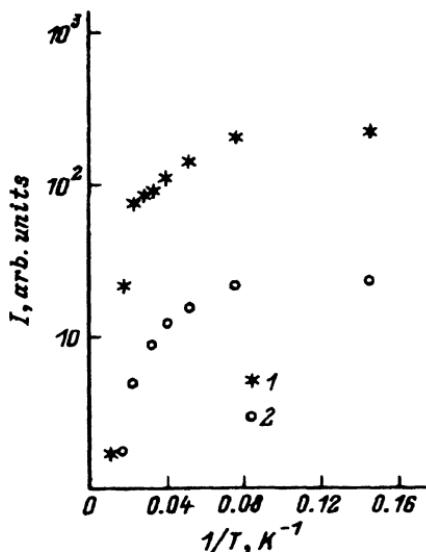


Рис. 3. Температурная зависимость интенсивности фотолюминесценции I КЯ структуры $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$: 1 — $L_z = 63 \text{ \AA}$, 2 — $L_z = 37 \text{ \AA}$.

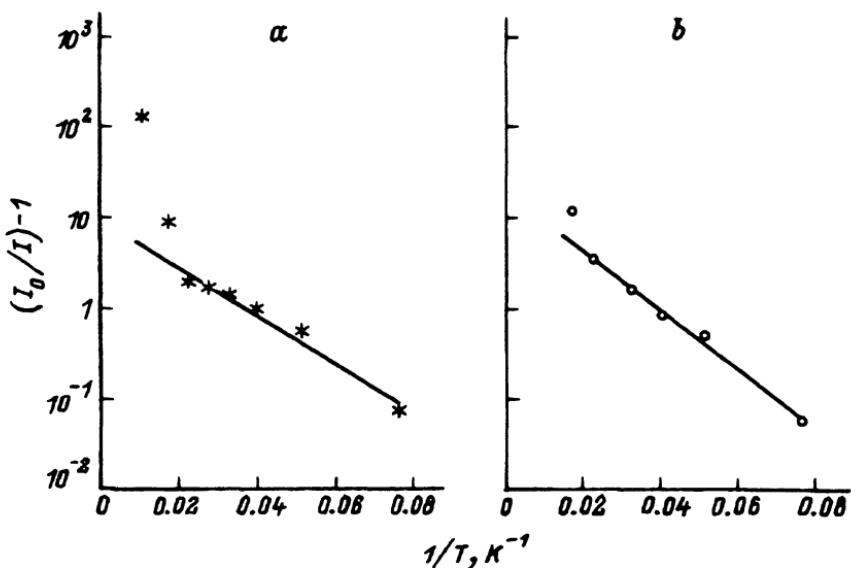


Рис. 4. Температурная зависимость величины $[(I_0/I)-1]$ для двух квантовых ям: *a* — $L_z = 63 \text{ \AA}$, *b* — $L_z = 37 \text{ \AA}$.

Для оценки энергии активации удобно построить зависимость в координатах $\ln[(I_0/I)-1]$ от $1/T$ (рис. 4). Полученные энергии активации составляли 6.4 и 5.7 мэВ для ям с ширинами 37 и 63 Å соответственно. Скорее всего, наблюдаемый термоактивационный процесс связан с диссоциацией свободных экситонов. Если учесть, что в водородоподобной модели энергия термической активации составляет $3/4$ от энергии связи [7], то соответствующие значения энергии связи экситона хорошо согласуются с результатами работы [10], в которой рассчитаны параметры экситона в КЯ структурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$. Согласно [10], энергия связи свободных экситонов в интервале $L_z = (30 \div 70) \text{ \AA}$ практически не зависит от ширины ямы и при $x = 0.13$ составляет ≈ 8 мэВ.

В области более высоких температур ($T > 50$ K), где люминесценция вызвана в основном рекомбинацией свободных носителей, ее интенсивность ослабляется в результате теплового выброса дырок и электронов с уровней размерного квантования в свободные зоны, а также за счет других безызлучательных процессов.

На рис. 5 приведены зависимости энергетического положения максимума фотolumинесценции $h\nu_{\max}$ от температуры. Положение максимума определяется энергией перехода носителей между уровнями размерного квантования в зоне проводимости и валентной зоне:

$$h\nu_{\max} = E_g + \Delta + E_{1e} + E_{1hh}, \quad (2)$$

где Δ — изменение ширины зоны за счет упругих напряжений решетки (расчет в модели [11] при $x = 0.13$ дает $\Delta = 60.9$ мэВ), E_{1e} и E_{1hh} — энергии первых подзон электронов и тяжелых дырок в квантовых ямах, которые вычислялись с помощью уравнения Шредингера для прямоугольной потенциальной ямы конечной глубины. В области темпера-

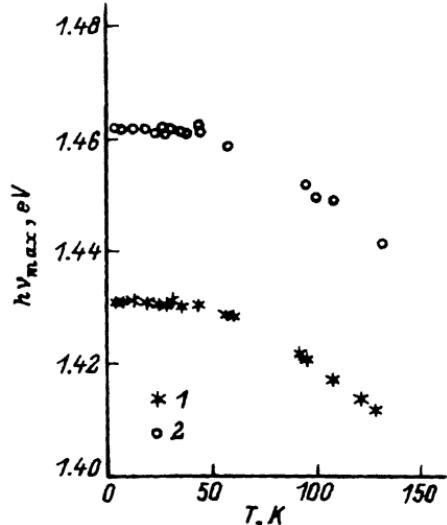


Рис. 5. Температурная зависимость энергии в максимуме фотолюминесценции ($h\nu_{\max}$) КЯ структуры $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$: 1 — $L_z = 63 \text{ \AA}$, 2 — $L_z = 37 \text{ \AA}$.

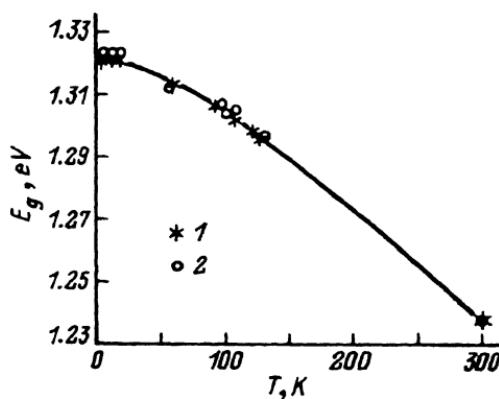


Рис. 6. Температурная зависимость ширины зоны E_g ненапряженного твердого раствора $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}$ по измерениям фотолюминесценции для двух квантовых ям: 1 — $L_z = 63 \text{ \AA}$, 2 — $L_z = 37 \text{ \AA}$; сплошная линия — аппроксимация функцией Варшни (3).

тур, соответствующих экситонной рекомбинации, правая часть выражения (2) уменьшается на величину энергии связи экситона E_{ex} . Численным решением системы уравнений Шредингера и уравнения (2) можно найти значения E_g , соответствующие экспериментальному положению максимума ФЛ при каждой температуре. На рис. 6 представлена полученная таким образом зависимость $E_g(T)$ и результат аппроксимации этой зависимости функцией Варшни, которой обычно описывается температурное изменение ширины зоны бинарных полупроводников [3]

$$E_g(T) = E_g(0) - \alpha \frac{T^2}{T + \theta}. \quad (3)$$

При построении аппроксимационной кривой исключена область смешанного механизма рекомбинации и использовались экспериментальные данные при $T < 20 \text{ K}$ и $T > 50 \text{ K}$, где люминесценция в основном обусловлена рекомбинацией свободных экситонов либо свободных носителей соответственно. Кроме того, добавлена точка при $T = 300 \text{ K}$ из работы [2]. Полученные значения параметров аппроксимации $E_g(T)$ для $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}$ составляли $E_g = 1.321 \text{ эВ}$, $\alpha = 4.1 \cdot 10^{-4} \text{ эВ/град}$, $\theta = 139 \text{ K}$.

Температурную зависимость для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ произвольного состава можно получить, используя зависимость ширины зоны тройного твердого раствора от состава, которая, как правило, выражается квадратичным полиномом

$$E_g = a + bx + cx(1-x), \quad (4)$$

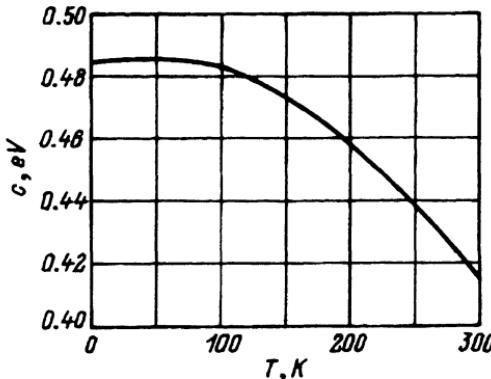


Рис. 7. Температурная зависимость параметра прогиба c , расчет.

где коэффициенты a и b определяются ширинами зон бинарных соединений $a = E_{\text{GaAs}}$; $b = E_{\text{InAs}} - E_{\text{GaAs}}$; c — параметр прогиба, равный учетверенному отклонению от линейности при $x = 0.5$. Величина c зависит от разупорядоченности решетки и разности электроотрицательностей взаимозамещающих атомов в твердом растворе. Ширины зон бинарных соединений и их зависимости от температуры достаточно хорошо изучены. В то же время, как уже отмечалось выше, значения параметра прогиба с приводятся в литературе только для отдельных температур и к тому же существенно отличаются в разных работах.

На рис. 7 представлены результаты проведенного нами расчета температурной зависимости $c(T)$. При расчете использованы уравнение (4) при $x = 0.13$ и соотношения Варши для InAs, GaAs и $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}$. Параметры $E_g(0)$, α и θ для бинарных соединений взяты из [3], для тройного твердого раствора использованы приведенные выше значения, полученные из наших измерений температурной зависимости фотолюминесценции. Из рисунка видно, что при низких температурах параметр прогиба почти не меняется. Оценки показывают, что температурное изменение параметра прогиба имеет смысл учитывать при относительно высоких температурах ($T > 100$ К) и средних значениях состава, где отклонения от линейности существенны. С ростом температуры от 100 до 300 К максимальное (при $x = 0.5$) изменение ширины зоны твердого раствора за счет температурной зависимости параметра прогиба составляет примерно 15 мэВ ($\simeq 25\%$ от общего температурного изменения ширины зоны), при $x = 0.13$ эта поправка на порядок меньше.

Для сравнения с результатами других авторов приведем зависимости $E_g(x)$ при температурах 2 и 77 К, используя полученные значения $c(T)$:

$$E_g(x) = 1.519 - 1.584x + 0.485x^2, \quad \text{при } T = 2 \text{ К},$$

$$E_g(x) = 1.508 - 1.582x + 0.485x^2, \quad \text{при } T = 77 \text{ К}.$$

Эти выражения находятся в хорошем согласии с данными из работ [6,7]. Считая соотношение Варши справедливым для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ любого состава и используя полученные значения $c(T)$, можно рассчитать параметры α и θ в зависимости от состава. Как видно из рис. 8, расчетные кривые $\alpha(x)$ и $\theta(x)$ хорошо аппроксимируются квадратичными

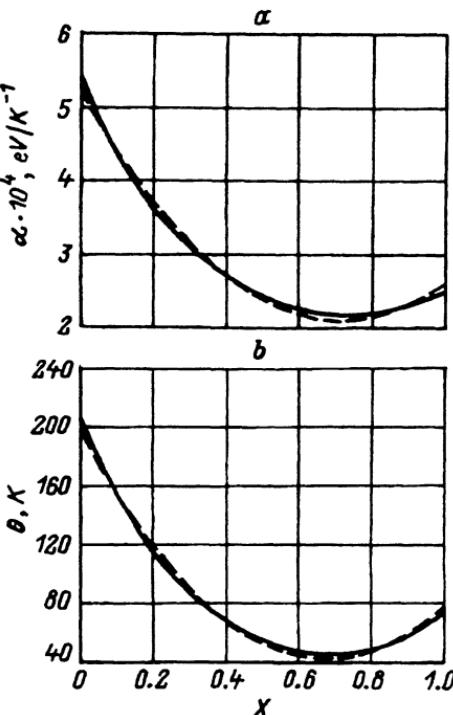


Рис. 8. Сплошные линии — расчетные зависимости от состава твердого раствора $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ параметров в функции Варшни: а — $\alpha(x)$, б — $\theta(x)$. Пунктир — аппроксимация этих зависимостей квадратичными полиномами (5) и (6).

функциями вида

$$\alpha = (5.2 - 8.6x + 6.0x^2) \cdot 10^{-4} \text{ эВ/К}, \quad (5)$$

$$\theta = (196 - 455x + 337x^2) \text{ К}. \quad (6)$$

Из расчета следует, что параметры α и θ наиболее сильно зависят от состава при малых содержаниях индия и имеют минимальные значения вблизи $x = 0.7$.

Таким образом, с помощью измерений фотолюминесценции КЯ структуры $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ получена температурная зависимость ширины запрещенной зоны ненапряженного твердого раствора $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}$ и показана возможность аппроксимации этой зависимости функцией Варшни. Это позволило провести расчеты параметров $c(T)$, $\alpha(x)$ и $\theta(x)$ для определения ширины запрещенной зоны $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ произвольного состава в диапазоне температур $T = (0 \div 300)$ К.

Список литературы

- [1] А.С. Игнатьев, М.В. Каракаевцева, В.Г. Мокеров, Г.З. Немцев, В.А. Страхов, Н.Г. Яременко. ФТП, **28**, 125 (1994).
- [2] R.E. Nahory. Appl. Phys. Lett., **33**, 659 (1978).
- [3] X. Кейси, M. Паниш. Лазеры на гетероструктурах (М., 1981) т. 2.
- [4] S. Adachi. J. Appl. Phys., **53**, 8775 (1982).
- [5] Y.T. Leu, F.A. Thien, H. Scheiber, B.I. Milleer, J. Bachmann. J. Electron. Mater., **8**, 663 (1979).
- [6] D.J. Arent, K. Denefle, C. Van Hoof, J. De Boeck, G. Borfhs. J. Appl. Phys., **66**, 1739 (1989).

- [7] K.H. Goetz, D. Bimberg, H. Jurgensen, J. Selder, A.V. Solomonov, G.F. Glinskii, M. Razeghi. *J. Appl. Phys.*, **54**, 4543 (1983).
- [8] H. Peyre, F. Alsina, J. Camassel, J. Pascual, R.W. Glew. *J. Appl. Phys.*, **73**, 3760 (1993).
- [9] A. Chiari, M. Colocci, F. Fermi, Li. Yuzhang, R. Guerzoli, A. Vinattieri, Weihua Zhuang. *Phys. St. Sol.*, **144**, 421 (1988).
- [10] И.А. Авруцкий, В.А. Сычугов, Б.А. Усиевич. *ФТП*, **25**, 1787 (1991).
- [11] F.H. Pollak, *Surf. Sci.*, **37**, 863 (1973).

Редактор Т.А. Полянская

Temperature Investigations of Photoluminescence of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ structures with quantum wells

M.V.Karachevtseva, A.S.Ignatiev, V.G.Mokerov, G.S.Nemtsev, V.A.Strakhov and N.G.Yaremenko

Institute of Radio Engineering and Electronics, Russian Academy of Sciences, 141120, Fryazino, Russia

The photoluminescence (PL) temperature investigations of $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}/\text{GaAs}$ single quantum-well structure have been carried out. The photoluminescence-excitation dependence under different temperatures has revealed exciton recombination for $T < 20$ K and free carrier recombination for $T > 50$ K. Photoluminescence decay in (15–50) K region is due to activation processes with energy 6.4 meV for well width 37 Å and 5.7 meV for well width 63 Å. The temperature dependence of the $\text{In}_{0.13}\text{Ga}_{0.87}\text{As}$ unstrained alloy band gap and its function Varshni approximation have been received from the PL peak energy position. The bowing coefficient vs temperature and the α - and θ -parameters in the Varshni function vs content of solution have been received as well.
