

GaAs в GaSb — напряженные наноструктуры для оптоэлектроники среднего инфракрасного диапазона

© В.А. Соловьев[¶], А.А. Торопов, Б.Я. Мельцер, Я.В. Терентьев, Р.Н. Кютт, А.А. Ситникова, А.Н. Семенов*, С.В. Иванов, Motlan[†], E.M. Goldys[†], П.С. Копьев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

*Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет „ЛЭТИ“, 197376 Санкт-Петербург, Россия

[†]Division on Information and Communication Sciences, Macquarie University, North Ryde, NSW 2109, Australia

(Получена 11 декабря 2001 г. Принята к печати 18 декабря 2001 г.)

Впервые сообщается о получении методом молекулярно-пучковой эпитаксии нового типа гетероструктур GaAs/GaSb, содержащих ультратонкие (0.8–3 монослоя) слои GaAs в GaSb, и исследовании их методами рентгеновской дифрактометрии, просвечивающей электронной микроскопии и фотолюминесценции. В таких структурах, в отличие от изученных к настоящему времени структур с самоорганизующимися квантовыми точками, слой GaAs в GaSb находится под воздействием растягивающих упругих напряжений (рассогласование решеток 7%). В структурах GaAs/GaSb обнаружена интенсивная фотолюминесценция в области волн вблизи 2 мкм при низких температурах. Показано образование квантово-размерных островков при номинальной толщине слоя GaAs 1.5 монослоя и более. Установлено, что предложенные структуры имеют зонную диаграмму типа II.

1. Введение

Значительный интерес к гетероструктурам с квантовыми точками (КТ) обусловлен, с одной стороны, уникальностью их фундаментальных свойств, а с другой — возможностью применения в оптоэлектронике, в частности, для создания низкопороговых полупроводниковых лазеров [1]. К настоящему времени процессы самоорганизации квантовых точек неплохо изучены для целого ряда полупроводниковых гетеропар с большим (вплоть до 7%) рассогласованием параметров решеток, включая InAs/GaAs [2], (Ga,In,Al)Sb/GaAs [3,4], InAs/InP [5] и InP/InGaP [6]. При этом в разных системах возможно формирование гетеропереходов со структурой зон как типа I [2,5,6], так и типа II [3,4]. Общей особенностью всех перечисленных гетероструктур является то, что тонкий слой узкозонного полупроводника, помещенный в матрицу относительно широкозонного материала с меньшим параметром решетки, испытывает сжимающие напряжения. Длина волны генерации лазеров на основе таких материалов не может превышать длину волны, соответствующую краю поглощения широкозонной матрицы (GaAs или InGaP) и во всех случаях оказывается менее 1.55 мкм. Таким образом, важной задачей является расширение диапазона длин волн излучения лазерных гетероструктур с КТ в область 2 мкм и более. Заметим, что существенное подавление каналов ожереккомбинации в гетероструктурах с КТ типа II делает их особенно перспективными для использования в лазерах среднего инфракрасного (ИК) диапазона (2–5 мкм), где традиционные типы гетеролазеров имеют существенные ограничения, обусловленные сильными ожер-

процессами [7]. В данной статье мы впервые сообщаем о получении нового типа решеточно-рассогласованных гетероструктур типа II GaAs/GaSb, характеризующихся интенсивной фотолюминесценцией (ФЛ) в спектральном диапазоне 1.7–2.3 мкм.

2. Образцы

Образцы представляли собой ультратонкие слои GaAs, выращенные псевдоморфно в матрице GaSb методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ). Толщина слоев GaAs варьировалась от 1 до 3 монослоев (МС), т. е. находилась в диапазоне толщин, типичных для формирования самоорганизующихся КТ за счет 7%-го рассогласования параметров решеток GaAs и GaSb [3]. В отличие от ранее изученных систем с КТ, в данном случае слой более широкозонного полупроводника (GaAs, постоянная решетки $a = 5.6532 \text{ \AA}$, ширина запрещенной зоны $E_g = 1.52 \text{ эВ}$), вставленный в матрицу из узкозонного материала (GaSb, $a = 6.0959 \text{ \AA}$, $E_g = 0.81 \text{ эВ}$), оказывается подверженным растягивающим напряжениям. Таким образом, предложенные структуры могут быть использованы в качестве модельных структур для экспериментального исследования процессов роста тонкого слоя с деформациями растяжения в методе МПЭ, тем более что формирование самоорганизующихся КТ в обращенной системе (тонкий слой GaSb в матрице GaAs) достаточно хорошо изучено [3,4]. Следует также отметить, что в известной нам литературе есть лишь одна работа по исследованию излучательных свойств близких структур, опубликованная недавно [8], в которой авторы наблюдали интенсивную люминесценцию из слоев AlAs монослойной толщины в AlSb.

[¶] E-mail: vasol@beam.ioffe.rssi.ru

Образцы, содержащие одиночные слои GaAs в GaSb или сверхрешетки (СР, SL) GaAs/GaSb, были выращены на подложках GaSb(001) при температуре 520°C. Установка для МПЭ Riber 32 была оборудована стандартными эффузионными ячейками, обеспечивающими молекулярные потоки Ga, Al и As₄, в то время как для получения потока Sb₂ был использован крекинговый источник RB-075-Sb. Структуры содержали буферный слой GaSb толщиной 0.5 мкм, а также ограниченный с двух сторон тонкими (30 нм) Al_{0.5}Ga_{0.5}Sb-барьерами слой GaSb толщиной 0.3 мкм, в центре которого располагались либо одиночные слои GaAs разной толщины, либо СР. Наблюдение за состоянием поверхности образца на всех стадиях роста осуществлялось с использованием системы дифракции быстрых электронов (ДБЭ). Во время роста ультратонких слоев GaAs в ДБЭ наблюдалась картина поверхностной реконструкции (2 × 4), соответствующая As-стабилизированной поверхности. При этом для исключения перемешивания потоков мышьяка и сурьмы до и после роста слоев GaAs делались паузы длительностью 10 с. Время роста слоев GaAs варьировалось от 2 до 5 с для различных структур, что соответствовало толщине слоя 1.2–3 МС. Часть структур была выращена без вращения подложкодержателя, чтобы обеспечить плавное изменение толщины слоя GaAs по площади структуры. Десятипериодная СР, содержащая слои GaAs толщиной 1.2 МС и слои GaSb толщиной 4 нм, была выращена в тех же условиях, что и структуры с отдельными слоями GaAs.

3. Структурные и оптические исследования

Структура, включающая СР, исследовалась методом высокоразрешающей рентгеновской дифракции. На рис. 1 представлена ($\theta-2\theta$)-кривая качания, измеренная с использованием рефлекса (004). На кривой качания хорошо различимы как рефлекс нулевого порядка от СР, так и сателлиты высших порядков. Оценка периода СР и номинальной толщины слоев GaAs, проведенная на основе положения этих пиков, дает величины 4.3 нм и 1.2 МС соответственно, которые совпадают с технологически заданными значениями. Кроме того, путем подгонки расчетной кривой качания к экспериментальной (рис. 1) можно получить оценку величины среднего уширения толщины слоя вдоль направления роста, обусловленного эффектами взаимодиффузии или сегрегации сурьмы в процессе МПЭ [9]. Теоретическое моделирование кривых качания при подгонке осуществлялось в рамках полукинематического приближения, описанного ранее [10]. Определенная таким образом величина среднего уширения слоев GaAs в исследуемой структуре составляла 4–5 МС. Полученный результат позволяет исключить как формирование квантовых ям (КЯ) с идеальными резкими границами, так и образование массива трехмерных КТ. Скорее, исходя из данных рентгеновской

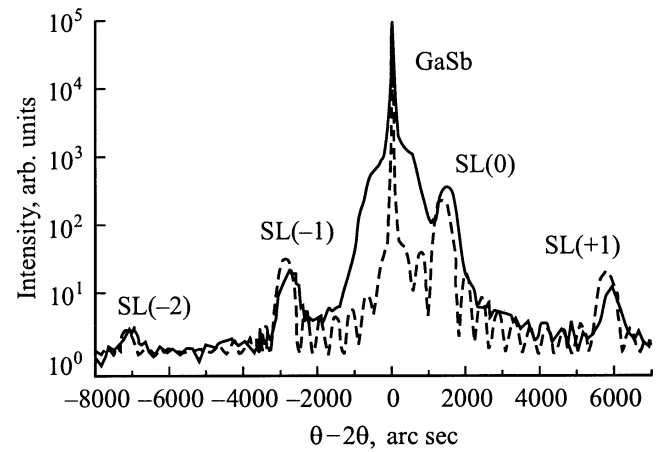


Рис. 1. Экспериментальная (сплошная линия) и расчетная (штриховая) двухкристалльные ($\theta-2\theta$)-кривые качания вблизи рефлекса (004) GaSb для структуры, содержащей десятипериодную сверхрешетку GaAs(1.2 МС)/GaSb(4 нм). Расчетная кривая получена в предположении гауссова распределения атомов мышьяка в направлении роста с полушириной этого распределения 4.5 МС.

дифракции, можно предположить, что СР содержит слои трехкомпонентного твердого раствора GaAsSb, возможно, неоднородные по площади вследствие нанометровых флуктуаций состава или толщины.

Ряд структур с одиночными слоями GaAs был изучен методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) в геометрии поперечного сечения на установке Philips EM-420 с ускоряющим напряжением 100 кэВ. Известно, что дифракционные рефлексы (200) чувствительны к изменению химического состава материалов с кубической гранцентрированной решеткой и могут эффективно использоваться для визуализации пространственных флуктуаций состава [11]. На рис. 2 представлены темнопольные ПЭМ-изображения образцов со слоями GaAs различной толщины в матрице GaSb. Все изображения были получены в одинаковых условиях. На всех изображениях слои GaAs присутствуют в виде темных линий. На рис. 2 отчетливо видна трансформация морфологии GaAs-вставки с увеличением толщины. Изображение вставки толщиной менее 0.8 МС выглядит как темная линия без каких-либо заметных следов кластеризации (рис. 2, a). С увеличением номинальной толщины слоя GaAs на ПЭМ-изображении появляются двумерные островки, окруженные достаточно сильными полями напряжений (рис. 2, b). Размеры этих островков заметно увеличиваются в направлении роста (о чем свидетельствует увеличение темного гало вблизи островков) при дальнейшем увеличении толщины GaAs-вставки, свидетельствуя о начале процесса формирования трехмерных КТ при толщине вставки ~ 1.5 МС (рис. 2, c). Наконец, на рис. 2, d видны протяженные дефекты вблизи некоторых островков, что свидетельствует

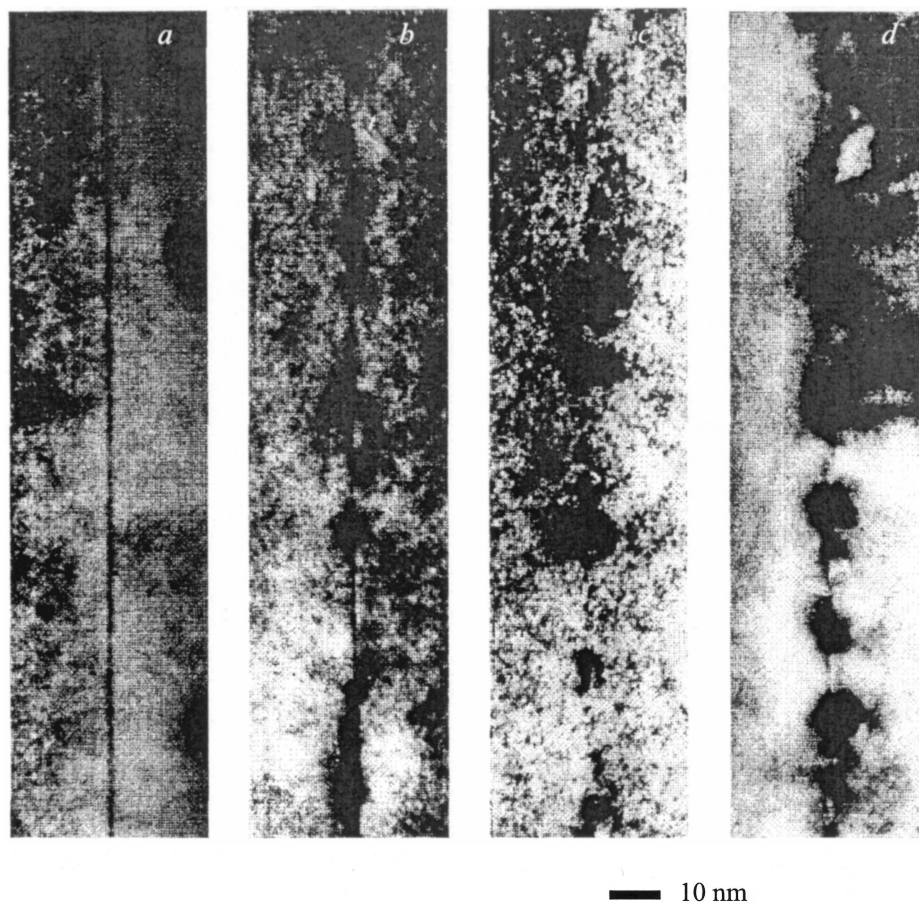


Рис. 2. ПЭМ-изображения поперечных сечений структур, содержащих одиночные слои GaAs с номинальной толщиной: 0.8 мкм (a), 1.2 мкм (b), 1.5 мкм (c), 2 мкм (d).

о начале процесса релаксации упругих напряжений в структуре с толщиной слоя GaAs ~ 2 мкм.

В исследованных структурах была обнаружена интенсивная фотолюминесценция (ФЛ) при низких температурах. Исследования ФЛ проводились в диапазоне температур 8–300 К с применением гелиевого криостата замкнутого типа или азотного криостата. Для возбуждения ФЛ использовались непрерывные инжекционные лазеры с длиной волны излучения 0.8 и 1.3 мкм.

На рис. 3 приведены спектры ФЛ для структур с одиночными слоями GaAs разной толщины, измеренные при температуре 80 К и относительно низком уровне возбуждения, ~ 1 Вт/см². На всех спектрах наблюдается два относительно узких коротковолновых пика, представляющих собой ФЛ из буферного слоя GaSb. Один из них, с энергией фотона ~ 0.8 эВ, обусловлен межзонными излучательными переходами, в то время как пик с энергией фотона 0.775 эВ соответствует переходам между донором и глубоким собственным акцептором в GaSb. В спектрах присутствует еще один пик, положение максимума которого коррелирует с толщиной GaAs-вставки. Следует отметить хорошее соответствие между данными ФЛ и ПЭМ. С увеличением толщины вставки от 1.2

до 3.5 мкм пик сдвигается в длинноволновую сторону от 1.7 до 2.3 мкм. При этом пик уширяется, а его интенсивность в максимуме значительно снижается. Мы полагаем, что наблюдаемое уширение пика ФЛ обуслов-

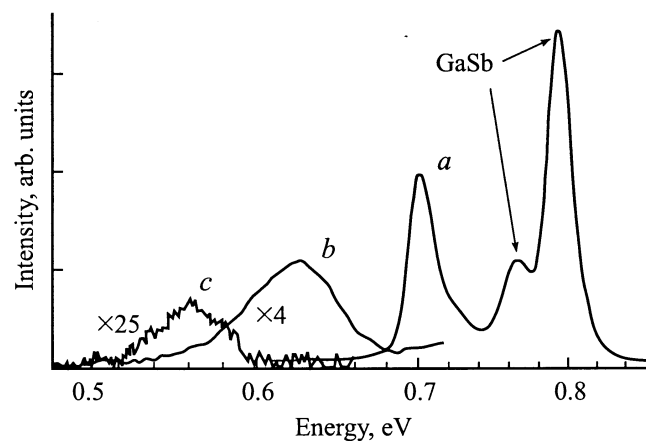


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции при температуре 80 К и низком уровне возбуждения для структур, содержащих отдельные слои GaAs с номинальной толщиной: 1.2 мкм (a), 1.8 мкм (b), 3 мкм (c).

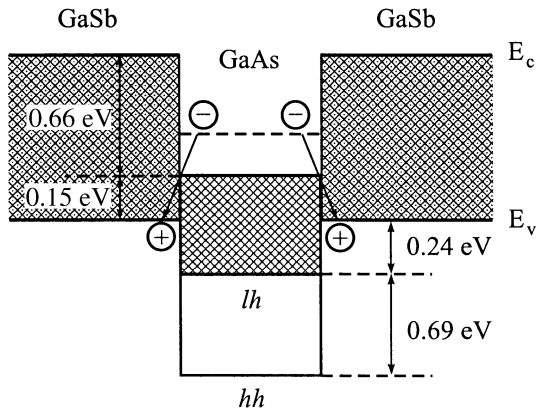


Рис. 4. Схематическое изображение зонной диаграммы структуры с КЯ GaAs/GaSb и возможных оптических переходов в ней. lh — легкие дырки, hh — тяжелые дырки.

лено флуктуациями размеров КТ, наблюдаемых методом ПЭМ в образцах с толщинами GaAs, превышающими 1.5 МС (рис. 2, *c*). Интегральная интенсивность пика ФЛ слабо изменяется вплоть до величины номинальной толщины GaAs-вставки ~ 2 МС, а затем резко уменьшается с дальнейшим увеличением толщины, что, вероятно, обусловлено повышением плотности дислокаций (см. рис. 2, *d*), являющихся эффективными центрами безызлучательной рекомбинации.

Следует отметить, что для всех исследованных структур энергия излученного фотона оказывается значительно меньше ширины запрещенной зоны GaSb, что свидетельствует о типе II гетеропереходов GaAs/GaSb. Для оценки разрывов зон на границе мы воспользовались моделью van der Walle [12], позволяющей учесть влияние упругих напряжений на зонную структуру. Результаты расчетов, проведенных для случая псевдоморфного двумерного роста, а также возможные оптические переходы в исследуемой структуре представлены на рис. 4. Сильные растягивающие напряжения, вызванные 7%-м рассогласованием решеток GaAs и GaSb, приводят к сжатию запрещенной зоны GaAs до величины ~ 0.4 эВ, заметно меньшей значения запрещенной зоны окружающего GaSb. Тем не менее зонная диаграмма оказывается типа II, причем в равновесии электроны находятся в GaAs, а дырки — в GaSb.

Несмотря на то что основные закономерности формирования квантовых точек в рассматриваемой системе и в ранее исследованных системах представляются схожими, есть и различия. Обычно в спектрах ФЛ структур с самоорганизующимися КТ помимо пика, связанного с массивом КТ, наблюдается еще один пик, обусловленный излучением из так называемого смачивающего слоя. В нашем случае при низком уровне возбуждения такой пик в спектрах ФЛ отсутствовал. Однако с увеличением мощности накачки спектр ФЛ трансформируется. Соответствующие спектры ФЛ образца с одиночной вставкой толщиной 1.2 МС показаны на рис. 5. Очевидный эф-

фект заключается в длинноволновом сдвиге спектра ФЛ, обусловленном нагревом образца, что подтверждается аналогичным сдвигом пиков, соответствующих объемному GaSb. Кроме того, при достаточно больших уровнях накачки появляется дополнительный пик, перекрывающийся с основным пиком и находящийся по отношению к нему выше по энергии на 25–30 мэВ. Аналогичное поведение спектра ФЛ наблюдалось также и в образце со СР, но различие в энергиях пиков было меньше (~ 15 мэВ). Заметим, что возбуждение второй полосы ФЛ связано с повышением мощности накачки, а не с сопутствующим повышением температуры образца, что становится очевидным при сравнении верхней кривой ФЛ рис. 5 с соответствующей спектральной кривой рис. 3, измеренной в том же образце при практически той же температуре, но при слабом уровне возбуждения. Мы полагаем, что наличие в спектрах ФЛ двух полос люминесценции связано с пространственными неоднородностями в плоскости роста слоя GaAsSb. Нижний по энергии пик ФЛ обусловлен рекомбинацией носителей, локализованных в обогащенных мышьяком квантово-размерных островках, в то время как ФЛ при больших энергиях связана с рекомбинацией неравновесных носителей, находящихся в окружающем островки слое. Во многих аспектах этот слой похож на смачивающий слой, наблюдающийся в большинстве изученных к настоящему времени систем с самоорганизующимися КТ. Однако, в отличие от них, в данном случае перенос носителей из смачивающего слоя к местам локализации носителей происходит достаточно быстро, чтобы не позволить наблюдению стационарной ФЛ из смачивающего слоя при относительно малых уровнях возбуждения.

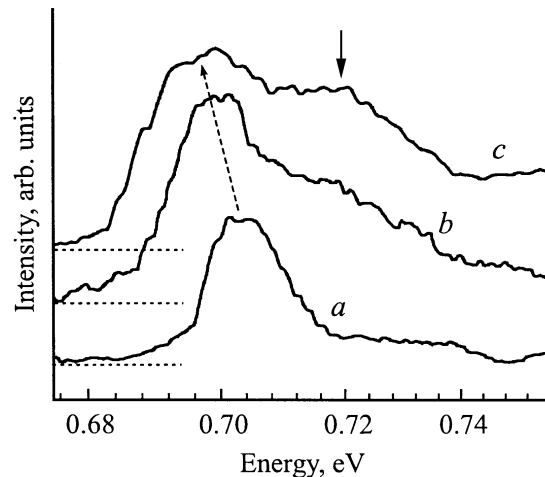


Рис. 5. Спектры фотолюминесценции для структуры со слоем GaAs толщиной 1.2 МС. Мощность накачки и оценка температуры образца за счет нагрева его излучением по сдвигу линий, соответствующих GaSb: *a* — 70 Вт/см², 20 К; *b* — 300 Вт/см², 80 К; *c* — 400 Вт/см², 90 К. Стрелками отмечены особенности в спектрах.

4. Заключение

В работе представлены результаты структурных и оптических исследований нового типа гетероструктур, содержащих ультратонкие напряженные слои GaAs в матрице GaSb. Предложенные структуры характеризуются разрывом зон типа II на гетеропереходах GaAs/GaSb и интенсивной фотолюминесценцией в спектральном диапазоне 1.7–2.3 мкм, в зависимости от номинальной толщины GaAs-вставки. Установлено, что в процессе эпитаксиального роста данных структур слой GaAs трансформируется в слой тройного соединения GaAsSb с образованием КТ при номинальной толщине слоя GaAs ~ 1.5 МС и более.

Работа была поддержана грантом РФФИ (№ 01-02-17933а), программой Министерства науки „Физика твердотельных наноструктур“ (№ 1035 и № 2014), а также грантом (№ CRDF RPI-2265).

Список литературы

- [1] Y. Arakawa, H. Sakaki. Appl. Phys. Lett., **40**, 939 (1982).
- [2] A. Madhukar, Q. Xie, P. Chen, A. Konkar. Appl. Phys. Lett., **64**, 2727 (1994).
- [3] F. Hatami, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, J. Bhrrer, F. Heinrichsdorff, M. Beer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Gsele, J. Heydenreich, U. Richter, S.V. Ivanov, B.Ya. Meltser, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Appl. Phys. Lett., **67**, 656 (1995).
- [4] E.R. Glaser, B.R. Bennett, B.V. Shanabrook, R. Magno. Appl. Phys. Lett., **68**, 3614 (1996).
- [5] H. Marchand, P. Desjardins, S. Guillon, J.-E. Paultre, Z. Bougrioua, R.Y.-F. Yip, R.A. Masut. Appl. Phys. Lett., **71**, 527 (1997).
- [6] N. Carlsson, W. Seifert, A. Petersson, P. Castrillo, M.E. Pistol, L. Samuelson. Appl. Phys. Lett., **65**, 3093 (1994).
- [7] G.G. Zegrya, A.D. Andreev. Appl. Phys. Lett., **67**, 2681 (1995).
- [8] E.R. Glaser, T.A. Kennedy, B.R. Bennett, B.V. Shanabrook. Phys. Rev. B, **59**, 2240 (1999).
- [9] R.N. Kyutt, A.A. Toropov, S.V. Sorokin, T.V. Shubina, S.V. Ivanov, M. Karlsteen, M. Willander. Appl. Phys. Lett., **75**, 373 (1999).
- [10] R.N. Kyutt, A.A. Toropov, T.V. Shubina, S.V. Sorokin, S.V. Ivanov, M. Karlsteen, M. Willander. Appl. Surf. Sci., **166**, 278 (2000).
- [11] E. Bithnel, W. Stobbs. Phil. Mag. A, **60**, 39 (1989).
- [12] C.G. van der Walle. Phys. Rev. B, **39**, 1871 (1989).

Редактор Л.В. Шаронова

GaAs in GaSb — the strained nanostructures for mid-infrared optoelectronics

V.A. Solov'ev, A.A. Toropov, B.Ya. Meltser, Ya.V. Terent'ev, R.N. Kyutt, A.A. Sitnikova, A.N. Semenov*, S.V. Ivanov, Motlan†, E.M. Goldys†, P.S. Kop'ev

Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

*St. Petersburg State Electrotechnical University „LETI“,
197376 St. Petersburg, Russia

†Division of Information and Communication Sciences,
Macquarie University, North Ryde,
NSW 2109 Australia

Abstract We report for the first time on the molecular beam epitaxial growth as well as X-ray diffraction, transmission electron microscopy and photoluminescence studies of novel GaAs/GaSb heterostructures with ultrathin (0.8–3 monolayers) GaAs layers embedded within unstrained GaSb. In such structures the GaAs layer is subjected to a tensile stress because of 7% lattice mismatch with respect to GaSb, in contrast to the situation of usually observed self-organized growth of compressively strained quantum dots. The structures display an intensive photoluminescence in the 2 μm wavelength range at low temperatures. The formation of quantum-size islands in the structures takes place at a nominal thickness of a GaAs layer above 1.5 monolayers. The GaAs/GaSb structures are shown to possess a type II band alignment.