

Зависимость длины волны излучения квантовых ям InGaAsN от состава четверного соединения

© А.Е. Жуков[¶], А.Р. Ковш, Е.С. Семенова, В.М. Устинов, L. Wei*, J.-S. Wang*, J.Y. Chi*

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

* Industrial Technology Research Institute, Chutung, Hsinchu 310, Taiwan, Republic of China

(Получена 27 декабря 2001 г. Принята к печати 28 декабря 2001 г.)

Экспериментально исследована зависимость спектрального положения линии фотолюминесценции квантовых ям InGaAsN от химического состава четверного соединения. Предложено эмпирическое выражение, позволяющее с хорошей точностью описать наблюдаемые закономерности и предсказать требуемый состав соединения для достижения заданной длины волны.

Интерес к светоизлучающим приборам на подложках GaAs, способным работать в диапазоне длин волн ≈ 1.3 мкм при комнатной температуре, обусловлен их потенциально более хорошими приборными характеристиками по сравнению с традиционными гетероструктурами на основе InP, а также большей технологической легкостью создания вертикально-излучающей структуры [1]. В течение последних двух лет вертикально-излучающие лазеры диапазона 1.3 мкм были реализованы с использованием различных подходов к созданию активной области: массива квантовых точек InAs/InGaAs [2], квантовой ямы InGaAsN [3,4], а также квантовой ямы GaAsSb [5,6].

В случае использования квантовых ям InGaAs продвинулся в интересующий диапазон длин волн 1.3 мкм позволяет добавление относительно малого количества азота (несколько процентов). Как было показано [7], сильное сужение ширины запрещенной зоны в четверном соединении $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}_{1-y}\text{N}_y$ обусловлено взаимодействием между состояниями зоны проводимости InGaAs-матрицы и состояниями азота, локализованными в узкой резонансной зоне. Параметрами, управляющими длиной волны излучения, являются содержание индия x и азота y в четверном соединении, а также ширина квантовой ямы. Увеличение каждого из этих параметров должно приводить к длинноволновому сдвигу максимума излучения. Однако опубликованные к настоящему времени данные обнаруживают значительный разброс, как видно из таблицы. В связи с этим представляется, что исследование зависимости длины волны излучения квантовых ям InGaAsN от химического состава четверного соединения не потеряло актуальности. Следует отметить, что энергия оптического перехода может быть вычислена исходя из определенных представлений о зонной структуре четверного соединения (см., например, [8]). Однако практическое использование результатов подобных расчетов затруднено отсутствием обобщающих формул.

В настоящей работе мы приводим результаты систематического исследования зависимости длины волны

излучения квантовых ям InGaAsN, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) на подложках GaAs, от содержания индия и азота, а также приводим эмпирические формулы, позволяющие в простом аналитическом виде описать наблюдаемые закономерности.

Исследуемые структуры состояли из одиночной квантовой ямы InGaAsN толщиной 6.2 нм или слоя GaAsN толщиной 0.2 мкм в матрице GaAs, ограниченной тонкими (50 нм) слоями $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$. Структуры были выращены в установке МПЭ Riber Epineat, оснащенной высокочастотным плазменным источником активного азота Applied-EPI UNI-Bulb. Для всех структур температура осаждения активной области составляла 450°C , скорость роста 0.35 нм/с. Измерение спектров фотолюминесценции (ФЛ) проводилось при комнатной температуре (20°C). Фотолюминесценция возбуждалась Ar^+ -лазером (100 мВт) и детектировалась охлаждаемым InGaAs-диодом. Структурные свойства исследовались методом двухкristальной рентгеновской дифракции на установке Bede D1.

Мы полагаем, что значительный разброс данных по зависимости длины волны от состава InGaAsN во многом обусловлен неточной оценкой содержания азота и индия в квантовой яме. Прямое определение химического состава квантовой ямы InGaAsN методом рентгеновской дифракции невозможно, поскольку добавление как азота, так и индия приводит к изменению напряжения GaAs. Более того, остается открытым вопрос о влиянии индия в слоях InGaAsN на эффективность встраивания атомарного азота из плазменного источника по сравнению со случаем GaAsN. Обычно при рассмотрении четверных

Взаимосвязь между содержанием индия x , азота y , шириной квантовой ямы L в четверном соединении $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}_{1-y}\text{N}_y$ и длиной волны излучения λ вертикально-излучающего лазера

$x, \%$	$y, \%$	L, nm	$\lambda, \mu\text{m}$	Reference
30	2	7	1.2	Larson [11]
35	1.8	6.5	1.28	Steinle [4]
34	1	6	1.295	Choquette [3]

[¶] E-mail: zhukov@beam.ioffe.rssi.ru

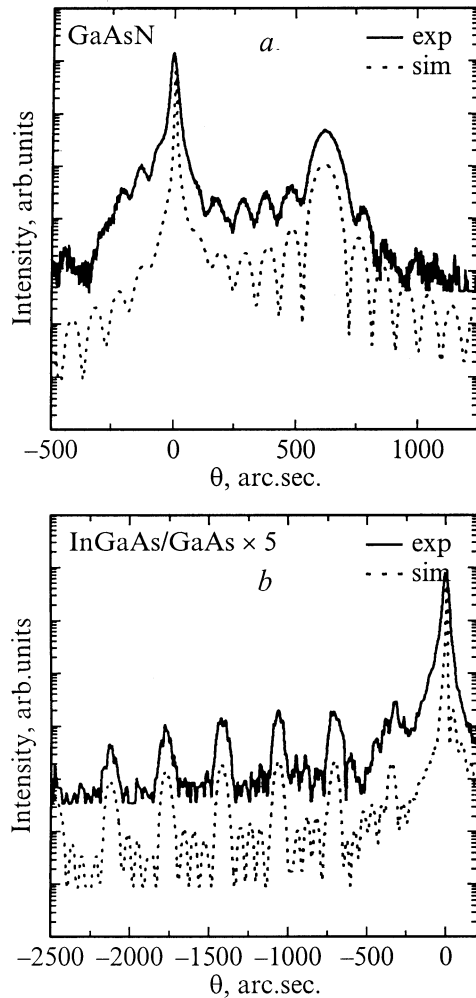


Рис. 1. Двухкристалльные рентгеновские кривые качения вблизи рефлекса GaAs(004) для эпитаксиального слоя GaAs_{0.988}N_{0.012} толщиной 0.2 мкм (а) и пятипериодной сверхрешетки In_{0.35}Ga_{0.65}As (6 нм)/GaAs (48 нм) (b). Сплошные линии — экспериментальные результаты, штриховые линии — моделирование.

квантовых ям считается, что при условии сохранения полной скорости роста молярная доля азота в InGaAsN соответствует концентрации азота в GaAsN (см., например, [9]). Однако некоторые экспериментальные факты позволяют усомниться в справедливости данного предположения. Так, в частности, было показано, что коэффициент встраивания азота в InAs много меньше, чем в GaAs [10]. Данный факт указывает на то, что эффективность встраивания азота в слои InGaAs может зависеть от молярной доли индия в соединении. С другой стороны, предлагаемая нами далее модель позволяет избежать вопроса о точном определении молярной доли азота в квантовой яме и напрямую связать длину волны излучения квантовой ямы InGaAsN с параметрами, которые можно определить посредством предварительных калибровок. В наших дальнейших рассуждениях под содержанием азота в квантовой яме InGaAsN мы будем понимать молярную долю азота, определенную посред-

ством рентгеновской дифракции от тройного соединения GaAsN, выращенного при тех же ростовых условиях и условии сохранения общей скорости роста.

При выращивании квантовых ям InGaAs(N) потоки атомов In и Ga выбирались таким образом, чтобы обеспечить сохранение полной скорости роста неизменной. Химический состав слоев GaAs_{1-y}N_y измерялся по отстоянию дифракционного пика GaAsN от пика GaAs(004), считая постоянную решетки кубического GaN равной 0.452 нм. Содержание индия и толщина квантовой ямы In_xGa_{1-x}As определялись с помощью моделирования спектров рентгеновской дифракции от структур, содержащих периодическую последовательность из пяти квантовых ям, разделенных барьерами GaAs толщиной 45 нм. На рис. 1 показаны примеры экспериментальных спектров и результаты моделирования.

Зависимость положения пика ФЛ от содержания азота *y*, экспериментально измеренная в слоях GaAs_{1-y}N_y, приведена на рис. 2. Ширина запрещенной зоны тройного соединения такого типа обычно описывается квадратичной зависимостью вида

$$E_{\text{GaAsN}} = E_{\text{GaN}} \times y + E_{\text{GaAs}} \times (1 - y) - C_{\text{GaN-GaAs}} \times y \times (1 - y), \quad (1)$$

где E_{GaN} и E_{GaAs} — ширины запрещенных зон бинарных соединений, образующих твердый раствор, $C_{\text{GaN-GaAs}}$ — параметр изгиба запрещенной зоны, описывающий взаимодействие бинарных компонент в твердом растворе. Пример аппроксимации экспериментальной зависимости выражением вида (1) показан на рис. 2. Как видно, в слу-

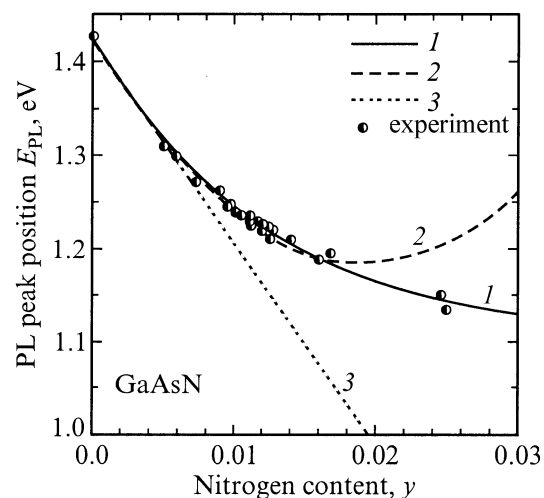


Рис. 2. Зависимость энергии оптического перехода от содержания азота в слоях GaAs_{1-y}N_y. Символы — экспериментальные результаты; 1 — аппроксимация выражением (2); 2 — аппроксимация выражением (1), варьируя как параметр изгиба запрещенной зоны, так и ширину запрещенной зоны GaN; 3 — аппроксимация выражением (1), варьируя только параметр изгиба запрещенной зоны.

чае тройного соединения GaAsN приведенная формула позволяет описать зависимость положения пика ФЛ от состава лишь в области очень малого содержания азота (менее процента), недостаточного для достижения длины волны 1.3 мкм в квантовых ямах InGaAsN. В области большего содержания азота положение пика ФЛ более слабо зависит от состава, имея тенденцию к насыщению. Это означает, что параметр изгиба запрещенной зоны не является постоянным во всем диапазоне составов, так как зависит от содержания азота в тройном соединении.

Как показано на рис. 2, экспериментальные данные в диапазоне $y = 0-2\%$ формально могут быть описаны квадратичной зависимостью вида (1), если рассматривать E_{GaN} в качестве второго подгоночного параметра. При этом, однако, теряется физический смысл как E_{GaN} , так и $C_{\text{GaN-GaAs}}$. Кроме того, предсказываемое увеличение энергии оптического перехода при y , больших чем 2.5%, экспериментально не наблюдается.

Для описания экспериментальной зависимости положения пика фотолюминесценции слоев $\text{GaAs}_{1-y}\text{N}_y$ от содержания азота мы предлагаем использовать выражение

$$E_{\text{GaAsN}} = E_{\text{GaAs}} - \Delta \times [1 - \exp(-y/y_0)], \quad (2)$$

где Δ и y_0 — подгоночные параметры, совместно описывающие изменение ширины запрещенной зоны в области малых составов ($E_{\text{GaAsN}} \approx E_{\text{GaAs}} - (\Delta/y_0) \times y$) и уменьшение влияния азота в области больших составов ($E_{\text{GaAsN}} \rightarrow E_{\text{GaAs}} - \Delta$). Наилучшее соответствие во всем исследованном диапазоне составов обеспечивают параметры $\Delta = 321$ мэВ и $y_0 = 1.21\%$ (рис. 2).

На рис. 3, *a* точками показана зависимость положения пика ФЛ от содержания азота y в диапазоне 0–2.8% для квантовых ям $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}_{1-y}\text{N}_y$ с мольной долей In x 21, 27 или 35%. Для всех случаев ширина квантовой ямы составляла 6.2 нм. Квадратами показана аналогичная зависимость, взятая из работы [8]. Мы обнаружили, что, как и в случае объемных слоев GaAsN, экспериментальные результаты могут быть удовлетворительно описаны выражением вида (2), если ширину запрещенной зоны GaAs заменить на энергию оптического перехода свободной от азота квантовой ямы InGaAs, а параметры Δ и y_0 полагаются зависящими от содержания индия:

$$E_{\text{InGaAsN}} = E_{\text{InGaAs}} - \Delta(x) \times [1 - \exp(-y/y_0(x))]. \quad (3)$$

Результаты аппроксимации приведены на рис. 3, *a* сплошными линиями, а значения подгоночных параметров в зависимости от x показаны точками на рис. 3, *b*.

Как следует из рис. 3, *b*, экстраполяция значений Δ и y_0 в область малого содержания In в квантовой яме приводит к значениям, совпадающим с полученными для случая толстых слоев GaAsN. Это означает, что параметры Δ и y_0 слабо зависят от эффектов размерного квантования, обусловленных шириной квантовой ямы, и отражают зависимость ширины запрещенной зоны от состава азотсодержащего соединения. Следует

отметить, что параметр Δ остается практически неизменным для всех исследованных значений концентрации индия, находясь в диапазоне 310–320 мэВ. В то же время параметр y_0 сильно возрастает с увеличением содержания индия до 2.8% при $x = 35\%$, что отражает уменьшение влияния азота на положение линии ФЛ в индийсодержащих структурах. Данный эффект был описан в [7,8] в терминах уменьшения параметра изгиба зоны при увеличении содержания индия. С другой стороны, уменьшение параметра y_0 может быть также объяснено уменьшением реальной концентрации азота вследствие уменьшения эффективности встраивания атомарного азота при возрастании мольной доли индия. Таким образом, предлагаемая эмпирическая зависимость учитывает суммарное влияние обоих эффектов.

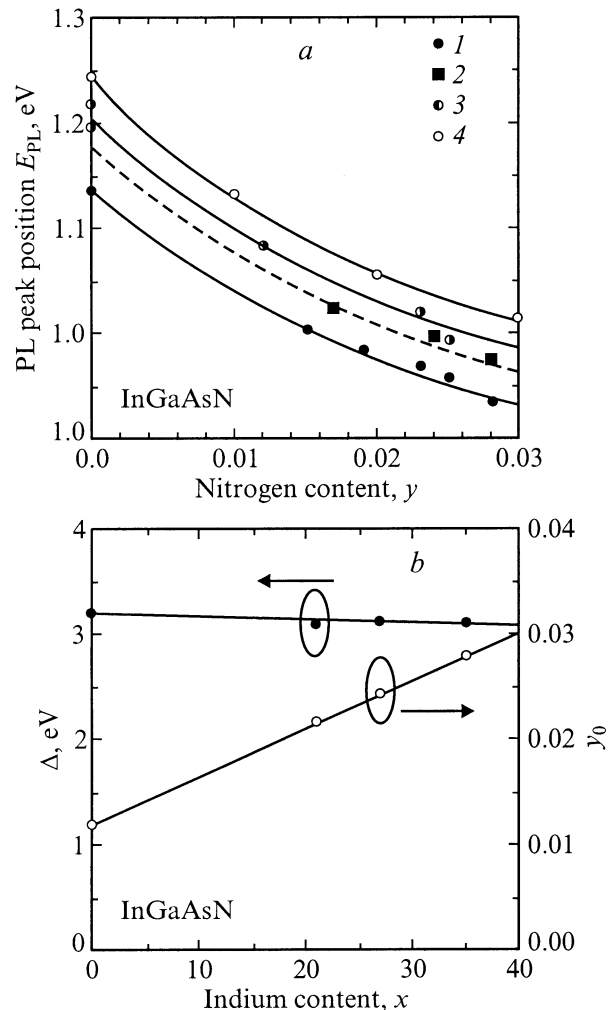


Рис. 3. *a* — экспериментальная зависимость энергии оптического перехода от содержания азота в квантовых ямах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}_{1-y}\text{N}_y$ шириной 6.2 нм для различных значений содержания индия, x : 1 — 0.35, 2 — 0.30 [8], 3 — 0.27, 4 — 0.21 и аппроксимация выражением (3) (линии), *b* — зависимость параметров Δ и y_0 от содержания индия для экспериментально исследованных составов (точки) и линейная интерполяция (линии).

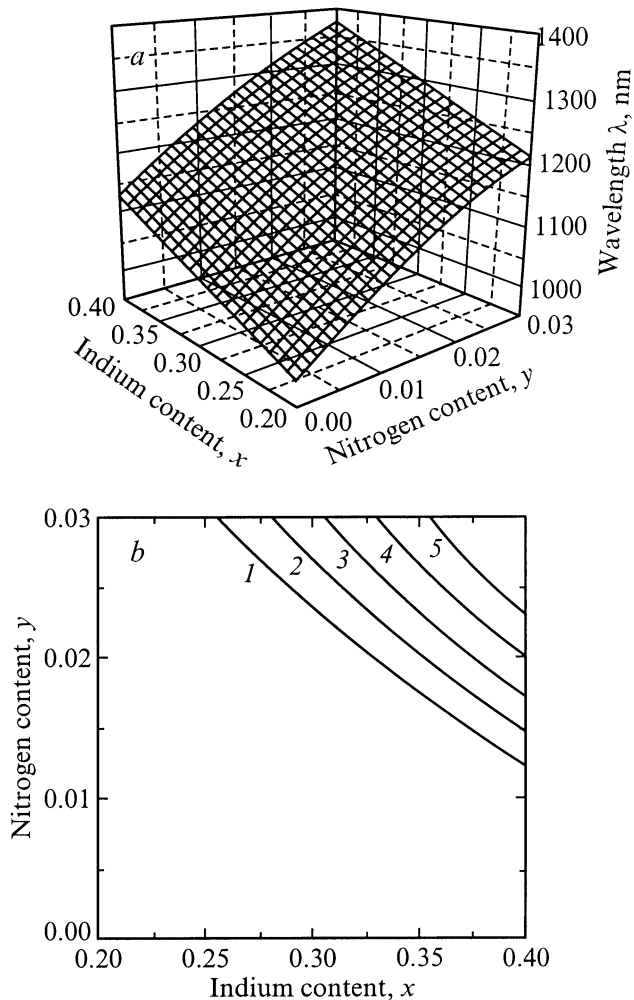


Рис. 4. *a* — зависимость длины волны излучения в квантовых ямах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}_{1-y}\text{N}_y$ от химического состава; *b* — взаимосвязь между содержанием азота и индия в квантовой яме, необходимым для достижения заданной длины волны излучения λ , мкм: 1 — 1.25, 2 — 1.27, 3 — 1.29, 4 — 1.31, 5 — 1.33.

Для проверки предлагаемого подхода к описанию зависимости положения излучения квантовых ям InGaAsN от состава нами были проанализированы экспериментальные данные для квантовых ям $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}_{1-y}\text{N}_y$, взятые из работы [8]. Эти данные представлены на рис. 3, *a* в виде квадратов. Исходя из зависимостей параметров Δ и y_0 от мольной доли индия, показанных на рис. 3, *b*, мы определили значения данных величин, соответствующие 30-процентному содержанию индия, как 312 мэВ и 2.56%. Пунктирная линия, показанная на рис. 3, *a*, получена при подстановке данных величин в выражение (3). Как видно, наблюдается хорошее согласие полученной зависимости с независимыми экспериментальными данными, что подтверждает правомочность предлагаемого нами эмпирического подхода.

Трехмерный график зависимости положения линии ФЛ от состава квантовой ямы $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}_{1-y}\text{N}_y$,

вычисленный согласно (3), представлен на рис. 4, *a*. Значения параметров Δ и y_0 экстраполированы в области несколько больших и меньших составов по индию ($x = 20\text{--}40\%$) по отношению к области экспериментальных значений (27–35%). Как видно, с помощью изменения химического состава квантовой ямы $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}_{1-y}\text{N}_y$ длина волны излучения может перекрыть широкий спектральный диапазон от 1.1 до 1.37 мкм.

На рис. 4, *b* показано соотношение между концентрациями азота и индия, необходимыми для достижения заданной длины волны. Как видно, для получения длины волны в диапазоне 1.28–1.33 мкм, практически важном для волоконно-оптической связи, содержание как индия, так и азота в квантовой яме достаточно высоко. Отметим, что к настоящему времени не до конца выяснено, какой состав является более предпочтительным с точки зрения приборных характеристик лазеров 1.3-мкм диапазона: увеличение содержания индия позволяет снизить требуемую концентрацию азота и позволяет таким образом избежать возможного повреждения поверхности ионами азота, однако ограничено формированием дислокаций несоответствия и переходом к островковому росту. С другой стороны, использование слишком сильно напряженных квантовых ям может привести к проблеме срока жизни приборов на их основе.

Таким образом, нами экспериментально исследована фотолуминесценция эпитаксиальных слоев GaAsN и квантовых ям InGaAsN как функция содержания азота и индия. Предложено эмпирическое выражение, позволяющее описать зависимость длины волны излучения в широком диапазоне составов (0–40% по индию, 0–3% по азоту), учитывая непараболическую зависимость энергии оптического перехода азотсодержащих соединений от концентрации азота и уменьшение влияния азота на ширину запрещенной зоны при увеличении содержания индия.

Работа выполнена при поддержке совместной программы ФТИ и ITRI „Research and development of advanced light sources for application in the next generation of optoelectronic systems“, а также программ NATO Science for Peace Program (grant SfP-972484) и „Физики твердотельных наноструктур“.

Список литературы

- [1] V.M. Ustinov, A.E. Zhukov. *Semicond. Sci. Technol.*, **15**, R41 (2000).
- [2] J.A. Lott, N.N. Ledentsov, V.M. Ustinov, N.A. Maleev, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, M.V. Maximov, B.V. Volovik, Zh.I. Alferov, D. Bimberg. *Electron. Lett.*, **36**(16), 1384 (2000).
- [3] K.D. Choquette, J.F. Klem, A.J. Fischer, O. Blum, A.A. Allerman, I.J. Fritz, S.R. Kurtz, W.G. Breiland, R. Sieg, K.M. Geib, J.W. Scott, R.L. Naone. *Electron. Lett.*, **36**(16), 1388 (2000).

- [4] G. Steinle, H. Riechert, A.Yu. Egorov. *Electron. Lett.*, **37** (2), 93 (2001).
- [5] F. Quochi, J.E. Cunningham, M. Dinu, J. Shah. *Electron. Lett.*, **36** (25), 1469 (2000).
- [6] T. Anan, M. Yamada, K. Nishi, K. Kurihara, K. Tokutome, A. Kamei, S. Sugou. *Electron. Lett.*, **37** (9), 405 (2001).
- [7] W. Shan, W. Walukiewicz, J.W. Ager III, E.E. Haller, J.F. Geisz, D.J. Friedman, J.M. Olson, S.R. Kurtz. *Phys. Rev. Lett.*, **82** (6), 1221 (1999).
- [8] H. Riechert, A.Yu. Egorov, G. Dumitras, B. Borchert. *Abstracts Int. Conf. on Physics of Semiconductors* (ICPS 25, Osaka 2000) p. ca314UO4 (2000).
- [9] H.P. Xin, K.L. Kavanagh, C.W. Tu. *J. Cryst. Growth*, **208**, 145 (2000).
- [10] J.S. Wang, H.H. Lin, L.W. Sung, G.R. Chen. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **19** (1), 202 (2001).
- [11] M.C. Larson, C.W. Coldren, S.G. Spruytte, H.E. Petersen, J.S. Harris. *IEEE Photon. Tech. Lett.*, **12** (12), 1598 (2000).

Редактор Л.В. Беляков

Emission wavelength of InGaAsN quantum well as a function of elemental composition

A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, E.S. Semenova, V.M. Ustinov, L. Wei, J.-S. Wang*, J.Y. Chi**

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

* Industrial Technology Research institute Chutung,
Hsinchu 310, Taiwan, Republic of China

Abstract Photoluminescence peak position of InGaAsN quantum wells as a function of elemental composition has been studied. An empiric equation describing the experimental dependence with a good accuracy is proposed. This equation allows to predict a certain content of quantum well so that one could obtain the wavelength required.