

Взаимное расположение краев энергетических зон в гетероструктурах GaAs/GaAsN/InGaAs

© А.Ю. Егоров[†], В.А. Одноблюдов, Н.В. Крыжановская, В.В. Мамутин, В.М. Устинов

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

(Получена 21 мая 2002 г. Принята к печати 22 мая 2002 г.)

Методом молекулярно-пучковой эпитаксии выращены тройные гетероструктуры GaAs/GaAsN/InGaAs на подложках GaAs и исследованы их оптические свойства. Сопоставление спектров фотолюминесценции, измеренных экспериментально, с известными значениями параметров зонной диаграммы соединений (In,Ga)As, позволило оценить взаимное расположение краев энергетических зон в гетероструктурах GaAs/GaAsN и InGaAs/GaAsN. Показано, что гетеропереход GaAs/GaAsN является гетеропереходом I рода, а гетеропереход $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAsN}$ может быть переходом I или II рода в зависимости от x .

1. Введение

В течение последних лет соединения (In,Ga)AsN являются предметом интенсивных теоретических и экспериментальных исследований. Интерес к этим полупроводниковым соединениям обусловлен возможностью создания лазеров ближнего инфракрасного диапазона (1.3–1.55 мкм) на подложках арсенида галлия и необычной для соединений $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$ зависимостью ширины запрещенной зоны от состава твердого раствора GaAsN. Несмотря на явный прогресс в создании приборных структур с соединениями InGaAsN в качестве активной области, до настоящего времени существуют открытые вопросы в области фундаментальных свойств используемого материала. Одним из нерешенных вопросов является взаимное расположение краев зон в гетеропереходах GaAs/GaAsN и InGaAs/GaAsN. Существуют различные теоретические модели, описывающие поведение края валентной зоны соединений GaAsN [1–3] (рис. 1). Так, согласно модели [1], на границе соединений GaAs/GaAsN образуется гетеропереход II рода, в то время как другие приведенные модели демонстрируют существование гетероперехода I рода.

В настоящей работе мы приводим результаты экспериментальных исследований, согласно которым гетеропереход GaAs/GaAsN является гетеропереходом I рода, а гетеропереход $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAsN}$ может быть переходом I или II рода в зависимости от x .

2. Экспериментальные результаты

Тройные гетероструктуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии с твердотельными источниками на подложках GaAs ориентации (001). В качестве источника азота использовался плазменный источник с радиочастотным разрядом Unibulb EPL. Состав и толщина выращенных слоев определялись на основе данных фотолюминесценции и рентгеновского анализа

и контролировались с точностью $\pm 1\%$. Последовательность слоев исследуемых гетероструктур приведена на рис. 2.

Фотолюминесцентные исследования асимметричных тройных гетероструктур проводились при различных температурах наблюдения 300, 77 и 18 К. Фотолюминесценция (ФЛ) возбуждалась аргоновым лазером с длиной волны 514 нм. Плотность возбуждения составляла 100 Вт/см². Исследовались две гетероструктуры. Гетероструктура № 1 — GaAs/GaAs_{0.98}N_{0.02}/In_{0.45}Ga_{0.55}As/GaAs. Толщина слоев GaAs_{0.98}N_{0.02} и In_{0.45}Ga_{0.55}As — 20 и 1.8 нм соответственно. Гетероструктура № 2 — GaAs/GaAs_{0.98}N_{0.02}/In_{0.64}Ga_{0.36}As/GaAs. Толщина слоев GaAs_{0.98}N_{0.02} и In_{0.64}Ga_{0.36}As — 20 и 1.4 нм соответственно. Толщина всех слоев, составляющих структуры, не превышает критическую.

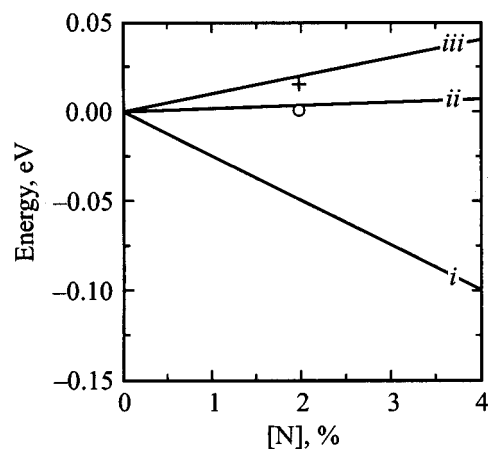


Рис. 1. Положение края валентной зоны соединений GaAsN в зависимости от концентрации азота, предсказываемое различными теоретическими моделями и экспериментально определенное для соединения с концентрацией азота 2%. *i* — расчет согласно диэлектрической модели (dielectric model) [1], *ii* — расчет согласно модели сильной связи (tight-binding calculation) [2], *iii* — расчет согласно [3] (LDA calculation). Символами показано экспериментально определенное положение края валентной зоны GaAsN для упругонапряженного слоя GaAsN на GaAs (+) и ненапряженного GaAsN (o).

[†] E-mail: anton@beam.ioffe.rssi.ru

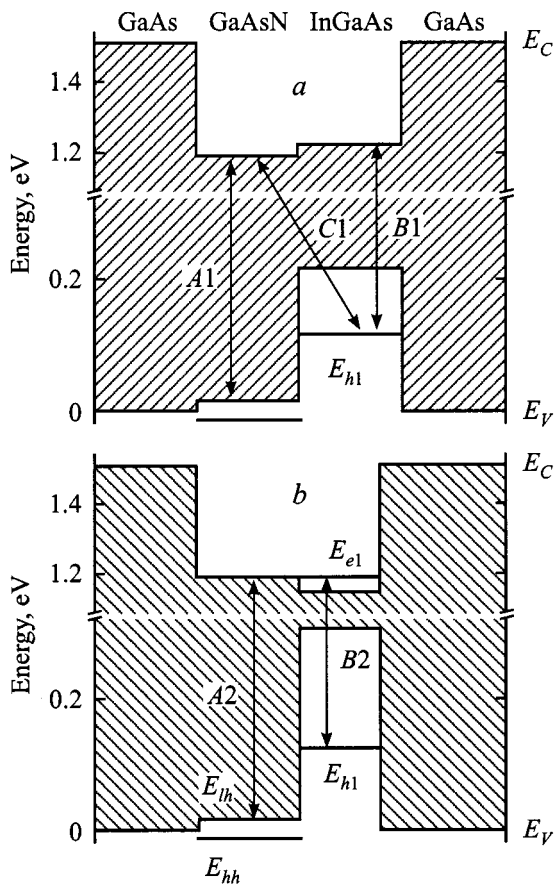


Рис. 2. Энергетическая зонная диаграмма гетероструктур GaAs/GaAsN/InGaAs. *a* — гетероструктура № 1 — GaAs/GaAs_{0.98}N_{0.02}/In_{0.45}Ga_{0.55}As/GaAs. Толщина слоев GaAs_{0.98}N_{0.02} и In_{0.45}Ga_{0.55}As — 20 и 1.8 нм соответственно. *b* — гетероструктура № 2 — GaAs/GaAs_{0.98}N_{0.02}/In_{0.64}Ga_{0.36}As/GaAs. Толщина слоев GaAs_{0.98}N_{0.02} и In_{0.64}Ga_{0.36}As — 20 и 1.4 нм соответственно. E_{e1} , E_{h1} — уровни размерного квантования электронов и дырок. Положение края валентной зоны напряженного GaAsN определяется значением энергии легких дырок, E_{lh} [5]. Отщепленный уровень E_{hh} — энергия тяжелых дырок [5].

Спектры ФЛ гетероструктуры № 1 приведены на рис. 3. При комнатной температуре в спектре доминирует пик A1, соответствующий переходам между валентной зоной и зоной проводимости слоя GaAsN (соответствие установлено на основании изучения спектров ФЛ слоев GaAsN с толщиной 0.2 мкм, выращенных на GaAs). Также наблюдается пик B1 (проявляется в виде плеча на низкоэнергетичном краю спектра), очевидно соответствующий излучению от слоя InGaAs. При температуре жидкого азота в спектре доминирует пик B1, который мы связываем с излучением из InGaAs. Таким образом, с понижением температуры наблюдения отмечается сдвиг максимума спектра ФЛ в сторону меньших энергий в противоположность обычному поведению ФЛ, обусловленному увеличением ширины запрещенной зоны с понижением температуры. При пони-

женной температуре наблюдения (18 К) в спектрах ФЛ наблюдалось два пика (верхняя часть рис. 3): пик B1, соответствующий излучению из InGaAs, и пик C1 с более низкой энергией. Разница в энергии между пиками B1 и C1 составляла 34 ± 2 мэВ. При увеличении плотности возбуждения при температуре наблюдения 18 К спектр ФЛ уширялся, максимум сдвигался в область более высоких энергий. На высокоэнергетичном краю спектра проявлялось плечо, по энергии соответствующее излучению от слоя GaAsN. Таким образом, по-видимому, при криогенных температурах наблюдается излучательная рекомбинация носителей, локализованных в слое InGaAs, а также наблюдаются излучательные переходы с энергией, меньшей, чем излучательные переходы в слое InGaAs. При комнатной температуре носители заряда делокализуются из слоя InGaAs и преимущественно рекомбинируют в слое GaAsN.

Спектры ФЛ гетероструктуры № 2 приведены на рис. 4. При комнатной температуре в спектре отчетливо наблюдаются два пика сравнимой интенсивности. Более яркий пик A2 соответствует излучению слоя GaAsN, другой пик, B2, мы приписываем излучению,

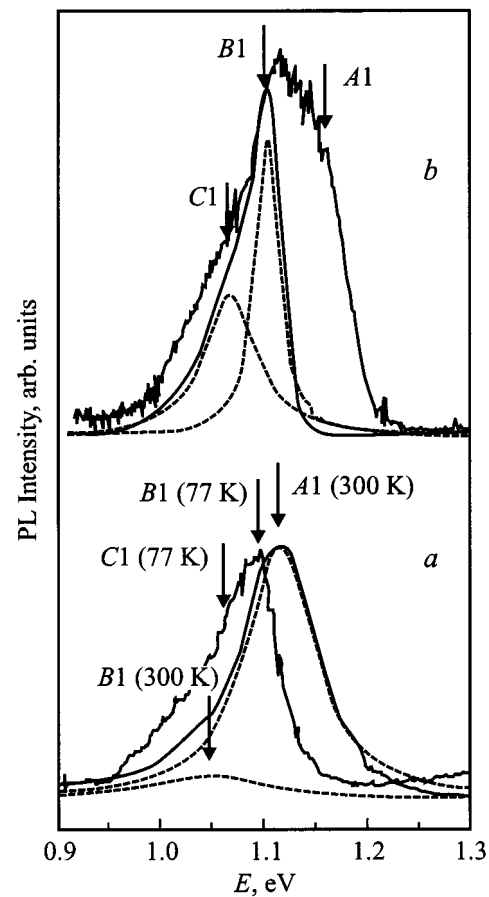


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции гетероструктуры № 1 — GaAs/GaAs_{0.98}N_{0.02}/In_{0.45}Ga_{0.55}As/GaAs. Температура наблюдения 300 и 77 К (*a*), 18 К (*b*). Толщина слоев GaAs_{0.98}N_{0.02} и In_{0.45}Ga_{0.55}As — 20 и 1.8 нм соответственно. Пунктиром показано разложение спектра ФЛ на составляющие пики.

связанному со слоем InGaAs. При температуре наблюдения 77 К наблюдается один симметричный пик *B2*, который, по-видимому, соответствует слою InGaAs. При понижении температуры наблюдения (18 К) также наблюдается один симметричный пик *B2* — переходы в слое InGaAs. При существенном увеличении плотности возбуждения при температуре наблюдения 18 К на высокоэнергетичном краю спектра ФЛ наблюдается плечо *A2*, соответствующее излучению слоя GaAsN. Других модификаций спектра помимо закономерного сдвига максимума спектра ФЛ в сторону больших энергий при этом не наблюдалось. Таким образом, при криогенных температурах носители заряда полностью локализованы в слое с меньшей шириной запрещенной зоны, InGaAs. При комнатной температуре температурное размытие уровня Ферми приводит к заселению состояний в слое GaAsN. Существенное отличие между спектрами ФЛ гетероструктур № 1 и № 2 состоит в том, что пик с энергией, меньшей, чем возможная энергия пространственно прямых переходов составляющих слоев, наблюдается только в гетероструктуре № 1. Единственное существенное отличие в конструкции ис-

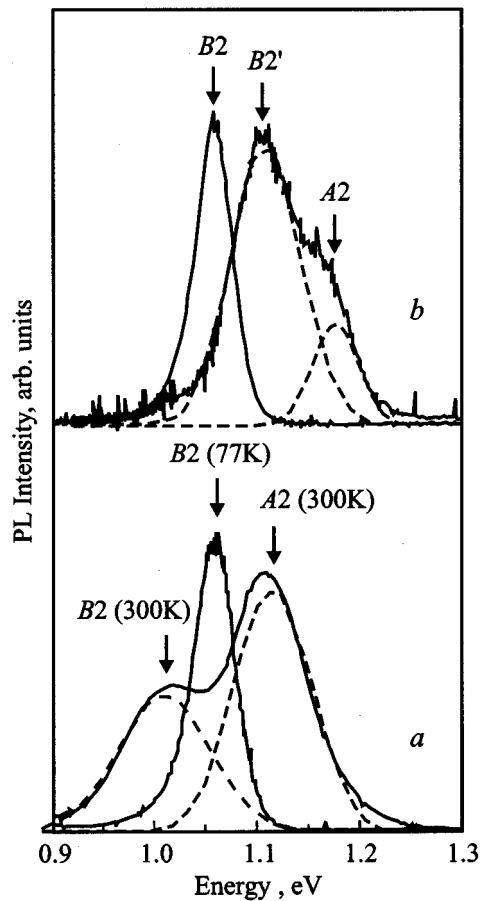


Рис. 4. Спектры фотолуминесценции гетероструктуры № 2 — GaAs/GaAs_{0.98}N_{0.02}/In_{0.64}Ga_{0.36}As/GaAs. Температура наблюдения 300 и 77 К (*a*), 18 К (*b*). Толщина слоев GaAs_{0.98}N_{0.02} и In_{0.64}Ga_{0.36}As — 20 и 1.4 нм соответственно. Пунктиром показано разложение спектра ФЛ на составляющие пики.

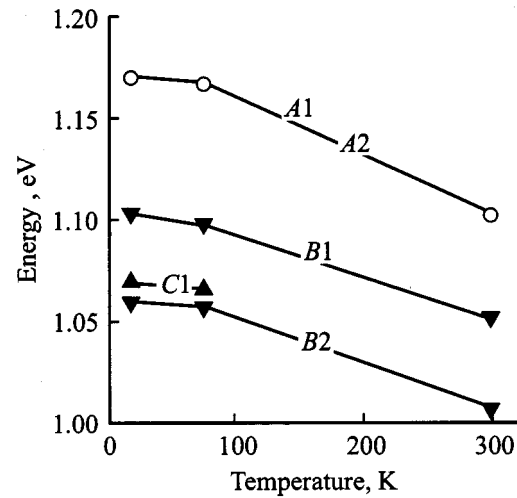


Рис. 5. Температурные зависимости энергии излучательных переходов гетероструктур № 1 и № 2. *A1* и *A2* — пространственно прямые переходы между валентной зоной и зоной проводимости слоя GaAsN в гетероструктурах № 1 и № 2 соответственно. *B1* — пространственно прямые переходы между дырками, локализованными на уровне размерного квантования слоя InGaAs, и электронами, локализованными в зоне проводимости слоя InGaAs, гетероструктура № 1. *B2* — пространственно прямые переходы между дырками и электронами, локализованными на уровнях размерного квантования слоя InGaAs, гетероструктура № 2. *C1* — пространственно не прямые переходы между дырками, локализованными на уровне размерного квантования в слое InGaAs, и электронами, локализованными в зоне проводимости слоя GaAsN, гетероструктура № 1.

следуемых гетероструктур — это состав слоя InGaAs. В одном случае концентрация индия составляла 45%, в другом — 64%.

Температурная зависимость энергетического положения пиков, составляющих спектры ФЛ, приведена на рис. 5. Численные значения энергии излучательных переходов приведены в таблице. После детального анализа

Энергии излучательных переходов в гетероструктурах № 1 и № 2

| Температура наблюдения, К | <i>A1</i> , эВ | <i>B1</i> , эВ | <i>C1</i> , эВ | <i>A2</i> , эВ | <i>B2</i> , эВ |
|---------------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| 18 | 1.170 | 1.103 | 1.069 | 1.170 | 1.06 |
| 77 | 1.167 | 1.098 | 1.066 | 1.167 | 1.057 |
| 300 | 1.102 | 1.051 | | 1.102 | 1.008 |

спектров ФЛ и разделения спектров ФЛ на пики, соответствующие различным излучательным переходам, наблюдается закономерное поведение энергии переходов при понижении температуры наблюдения, т.е. с понижением температуры энергия переходов увеличивается, что обусловлено увеличением ширины запрещенных зон, составляющих гетероструктуру соединений.

3. Обсуждение

Обсуждение полученных экспериментальных результатов будем проводить на основе зонной диаграммы выращенных гетероструктур, которая представлена на рис. 2. Зонная диаграмма отражает ситуацию, которая имеет место при температуре 18 К. В качестве основы для построения зонной диаграммы взята ширина запрещенной зоны GaAs, 1.514 эВ. Ширины запрещенной зоны соединений InGaAs определены как 1.008 и 0.838 эВ для соединений с концентрацией индия 45 и 64% соответственно. Разрывы зоны проводимости гетероперехода InGaAs/GaAs установлены как 58.2 и 54.5% от разницы в ширине запрещенной зоны для соединений с концентрацией индия 45 и 64% соответственно [4]. Расстояние между уровнями размерного квантования для слоев InGaAs определено из спектров ФЛ. Ширина запрещенной зоны GaAsN — 1.170 эВ (определена из спектров ФЛ). Положение края зоны проводимости для соединения GaAsN является первым ключевым моментом диаграммы. Для гетероструктуры № 1 положение края зоны проводимости GaAsN относительно края зоны проводимости InGaAs установлено на основе следующих экспериментальных фактов.

— Наблюдаемая энергия перехода, который мы идентифицируем как переход в слое InGaAs исследуемых гетероструктур, существенно меньше, чем в случае гетероструктур GaAs/InGaAs/GaAs. Соответствие удастся установить, если мы наблюдаем переходы между уровнем размерного квантования для дырок и краем проводимости InGaAs ($B1$). Мы считаем, что положение уровня размерного квантования для дырок в обоих исследуемых гетероструктурах совпадает с положением уровня дырок квантовой ямы GaAs/InGaAs/GaAs в силу незначительного изменения высоты потенциального барьера при замене с одной стороны слоя GaAs на слой GaAsN (см. рис. 1).

— Наиболее вероятная причина появления низкоэнергетичного перехода, наблюдаемого при криогенных температурах, с энергией, меньшей, чем ширина запрещенной зоны GaAsN и ширина запрещенной зоны InGaAs, определяющаяся расстоянием между краем зоны проводимости и первым уровнем размерного квантования тяжелых дырок, — это пространственно не прямые переходы с участием электронов, локализованных в слое GaAsN, и дырок, локализованных на уровне размерного квантования в слое InGaAs.

— Сдвиг максимума ФЛ в сторону больших энергий, при повышении температуры наблюдения до 300 К, объясняется преимущественной рекомбинацией неравновесных носителей заряда через слой GaAsN, вследствие существования гетероперехода II рода на границе GaAsN/InGaAs в гетероструктуре № 1.

Таким образом, разница в энергии между пространственно прямыми переходами ($B1$) между уровнем размерного квантования для дырок и краем зоны проводимости в слое InGaAs и пространственно непрямыми

переходами между уровнем размерного квантования для дырок в слое InGaAs и краем зоны проводимости в слое GaAsN составляет 34 мэВ и определяет взаиморасположение краев зоны проводимости обоих соединений.

Теперь вычитанием энергии ширины запрещенной зоны соединения из энергии положения края зоны проводимости определяется положение края валентной зоны соединения GaAsN. Для гетероструктуры № 2 концентрация индия в слое InGaAs была увеличена до 64%. Увеличение концентрации индия привело к уменьшению ширины запрещенной зоны соединения и понижению края зоны проводимости. Это в свою очередь привело к изменению типа гетероперехода на границе раздела соединений GaAsN/InGaAs. Гетероструктура № 2 имеет гетеропереход I рода со слабой энергией локализации электронов в области квантовой ямы InGaAs. Это приводит к отчетливому проявлению пиков $B2$ в спектре ФЛ, зарегистрированных при комнатной температуре (рис. 4). Для гетероструктуры № 2 переходы с наименьшей энергией — это пространственно прямые переходы между уровнями размерного квантования квантовой ямы InGaAs. Положение уровня размерного квантования для электронов совпадает, во втором случае, с краем зоны проводимости слоя GaAsN в силу малой глубины и ширины образующейся квантовой ямы. Уровень размерного квантования для дырок такой же, как и в первом случае.

При криогенных температурах, когда отсутствует температурное размытие уровня Ферми, все носители локализованы в области квантовой ямы InGaAs, спектр ФЛ имеет симметричную форму. Особенности спектра, указывающие на существование пространственно не прямых переходов, отсутствуют.

Следует отметить, что именно совокупность экспериментальных фактов, наблюдаемых при исследовании гетероструктур № 1 и № 2, приводит к построению зонных диаграмм, представленных на рис. 2. Четкое соответствие между энергией переходов и взаимным расположением краев зон соединений, представленных на рис. 2, наблюдается только при значениях разрывов зоны проводимости гетероперехода InGaAs/GaAs, указанных выше, что является вторым ключевым моментом построения диаграммы. При других значениях разрывов зоны проводимости гетероперехода InGaAs/GaAs однозначного соответствия всех энергий установить не удастся.

4. Заключение

Сопоставление спектров фотолюминесценции, измеренных экспериментально с известными значениями параметров зонной диаграммы соединений (In, Ga)As, позволило оценить взаимное расположение краев энергетических зон в гетероструктурах GaAs/GaAsN и InGaAs/GaAsN. Показано, что гетеропереход GaAs/GaAsN является гетеропереходом I рода,

а гетеропереход $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAsN}$ может быть переходом I или II рода в зависимости от x . Экспериментально определено, что край валентной зоны соединения $\text{GaAs}_{0.98}\text{N}_{0.02}$, выращенного на GaAs, расположен на 15 ± 5 мэВ выше края валентной зоны соединения GaAs (см. рис. 1). При условии отсутствия механических напряжений разница в положении краев валентных зон соединений GaAs и $\text{GaAs}_{0.98}\text{N}_{0.02}$ близка к нулю, 0 ± 5 мэВ, если учесть влияния механических напряжений на положение края валентной зоны для соединения GaAsN на основании работы [5].

Работа была поддержана программой NATO CFP, программой Министерства науки „Физика твердотельных наноструктур“, Российским фондом фундаментальных исследований и Civilian Research and Development Foundation (RE-2221).

Список литературы

- [1] S. Sakai, Y. Ueta, Y. Terauchi. Jap. J. Appl. Phys., **32**, 4413 (1993).
- [2] A. Lindsay, E.P. O'Reilly. Sol. St. Commun., **112**, 443 (1999).
- [3] L. Bellaiche, S.-H. Wei, A. Zunger. Phys. Rev. B, **54**, 17 568 (1996).
- [4] G. Ji, D. Huang, U.K. Reddy, T.S. Henderson, R. Houdre, H. Morkoc. J. Appl. Phys., **62**, 3366 (1987).
- [5] А.Ю. Егоров, Е.С. Семёнова, В.М. Устинов, Y.G. Hong, С. Ту. ФТП, **9** (36), 1056 (2002).

Редактор Л.В. Беляков

Band-edge line-up in GaAs/GaAsN/InGaAsN heterostructures

A.Yu. Egorov, V.A. Odnobludov, N.V. Krizhanovskaya, V.V. Mamutin, V.M. Ustinov

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

Abstract The triple GaAs/GaAsN/InGaAs heterostructures have been grown by molecular beam epitaxy and their optical properties are investigated. The comparison of experimental photoluminescence spectra with the well known band structure of (In,Ga)As compounds allows us to draw conclusion about the band-edge line-up in GaAs/GaAsN/InGaAs heterostructures. It is found that a heterojunction between GaAs and GaAsN is characterized by a I-type behavior. Both of the types of the heterojunction can be formed at the interface of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAsN}$ heterostructures. The heterojunction type depends on the indium mole fraction, x .