

Рост методом молекулярно-пучковой эпитаксии и фотолюминесцентные свойства квантовых ям InAsSb/AlSbAs

© В.А. Соловьев[¶], Я.В. Терентьев, А.А. Торопов, Б.Я. Мельцер, А.Н. Семенов, А.А. Ситникова, С.В. Иванов, J.R. Meyer*, П.С. Копьев

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

* Naval Research Laboratory, Washington, DC 20375 USA

(Получена 16 мая 2002 г. Принята к печати 17 мая 2002 г.)

Гетероструктуры с одиночными квантовыми ямами $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x/\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ были получены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках GaSb (001) и исследованы методами рентгеновской дифрактометрии, просвечивающей электронной микроскопии и фотолюминесценции. В структурах обнаружена интенсивная люминесценция при температуре 80 К с полушириной пика 30–50 мэВ и длиной волны в диапазоне 2–4.5 мкм в зависимости от толщины квантовой ямы, которая варьировалась от 4 до 20 нм соответственно. Проведен расчет края фундаментального поглощения таких квантовых ям в широком диапазоне составов x и y . Получено хорошее соответствие между экспериментальными и теоретическими зависимостями ширины запрещенной зоны InAsSb/AlSbAs-квантовой ямы от ее толщины.

1. Введение

Полупроводниковая система InAsSb/AlSbAs представляется перспективной для конструирования лазеров среднего инфракрасного диапазона (длины волн 2–5 мкм [1,2]), поскольку в ней сочетаются малая ширина запрещенной зоны твердого раствора InAsSb (< 0.4 эВ) и большой разрыв зоны проводимости на интерфейсе. Кроме того, при достаточно большом содержании сурьмы в InAsSb и мышьяка в AlSbAs эти твердые растворы образуют между собой гетеропереход типа I, в отличие от бинарных соединений InAs и AlSb, образующих гетеропереход типа II [3]. Варьируя состав InAsSb и AlSbAs, можно выращивать псевдоморфные квантово-размерные структуры на подложках как GaSb, так и InAs.

В данной статье мы сообщаем о систематическом исследовании морфологии и фотолюминесцентных (PL) свойств структур с одиночными квантовыми ямами (QW) $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x/\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ в широком диапазоне составов x и y , полученных методом молекулярно-пучковой эпитаксии (MBE) на подложках GaSb (001). Проведен теоретический расчет края фундаментального поглощения QW в рамках приближения эффективной массы и с учетом действия упругих напряжений в слоях по методу Van de Walle [4]. Результат расчета хорошо коррелирует с фотолюминесцентными измерениями.

2. Рост методом молекулярно-пучковой эпитаксии

Образцы выращивались на подложках GaSb (001) в MBE установке Riber 32P с использованием стандартного источника мышьяка, обеспечивающего поток молекул As_4 , и крекингового источника сурь-

мы, имеющего дополнительную высокотемпературную зону для разложения молекул Sb_4 и создающего поток, состоящий в основном из молекул Sb_2 . Для снижения плотности дефектов в активной области структуры вначале выращивалась буферная область при температуре подложки $T_S = 500^\circ\text{C}$, состоящая из слоя GaSb толщиной 0.5 мкм, посередине которого располагалась десятипериодная сверхрешетка $10 \times [\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb} (5 \text{ нм})/\text{GaSb} (5 \text{ нм})]$. Рост InAs(Sb)-квантовой ямы, заключенной между нижним и верхним AlSbAs-барьерами, толщиной 23 и 38 нм соответственно, а также верхнего 5 нм GaSb-слоя проходил при более низкой температуре (420°C), так как, согласно результатам работы [5], эта температура является оптимальной для получения слоев InAs и InAsSb с высокими люминесцентными характеристиками. Ширина QW варьировалась в диапазоне 4–20 нм. Все эпитаксиальные слои преднамеренно не легировались.

Ранее нами был обнаружен эффект непреднамеренного встраивания атомов сурьмы в слои InAs (причем Sb-источник находился при рабочей температуре, но с закрытой заслонкой), характерный для используемой конфигурации источников летучих компонентов и обусловленный, по-видимому, значительно большим коэффициентом встраивания молекул Sb_2 по сравнению с As_4 [6]. Было также показано, что содержание сурьмы в образующемся твердом растворе $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ составляет величину $x = 0.05$ при $T_S = 480^\circ\text{C}$. В данной работе для оценки содержания сурьмы в QW была использована тестовая структура, выращенная на InAs (001) подложке и состоящая из двух слоев InAs. При этом буферный слой толщиной 0.25 мкм был выращен при температуре подложки 480°C , а другой слой InAs толщиной 0.15 мкм — при 420°C . Рентгено-дифракционная (XRD) кривая качания и спектр PL этой структуры представлены на рис. 1, *a* и *b* соответственно. На XRD

[¶] E-mail: vasol@beam.ioffe.rssi.ru

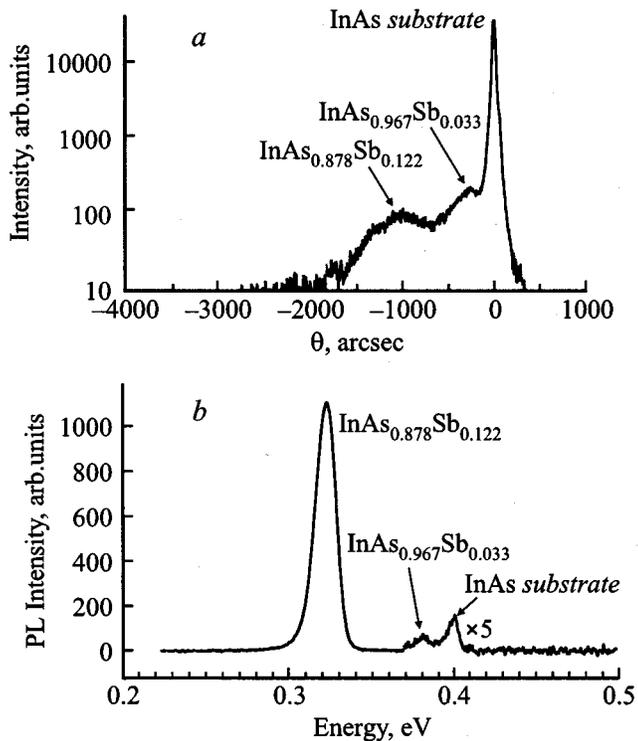


Рис. 1. Рентгенодифракционная двухкристалльная ($\theta-2\theta$) кривая качания (a) и спектр PL при температуре 77 К (b) для структуры, содержащей два слоя InAsSb.

кривой качания помимо пика от подложки ($\theta = 0$) присутствуют два пика, расположенные вблизи углов $\theta_1 = -1000''$ и $\theta_2 = -250''$ и обусловленные дифракцией от слоев $\text{InAs}_{1-x_1}\text{Sb}_{x_1}$ и $\text{InAs}_{1-x_2}\text{Sb}_{x_2}$, выращенных при температуре подложки 420 и 480°C соответственно. Моделирование кривых дифракционного отражения дает значения $x_1 = 0.122$ и $x_2 = 0.033$ в предположении полностью релаксированных слоев. В спектре PL (рис. 1, b) наряду с пиком от подложки (энергия фотона $E_{\text{PL}} = 0.403$ эВ) наблюдаются также два пика с энергиями $E_{\text{PL1}} = 0.324$ эВ и $E_{\text{PL2}} = 0.382$ эВ. Оценка содержания сурьмы в InAs-слоях по данным PL с учетом прогиба зон (параметр прогиба $C = 0.67$ эВ [7]) дает значения $x_1 = 0.114$ и $x_2 = 0.035$, в хорошем согласии с результатом анализа XRD.

Таким образом, на основании приведенных данных можно утверждать, что InAs(Sb) QW, выращиваемые при $T_S = 420^\circ\text{C}$, содержат $\sim 12\%$ сурьмы. Отметим, что твердый раствор $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ является полностью согласованным по параметру решетки с GaSb при $x \approx 0.09$. Следовательно, параметр решетки для материала QW оказывается большим, и QW испытывает напряжения сжатия. Известно, что в многослойных гетероструктурах возможна эффективная компенсация упругих напряжений в целом по структуре за счет попеременного выращивания слоев с противоположным типом напряжений (сжатия и растяжения) [8]. В нашем случае такая

компенсация напряжений возможна при использовании в качестве барьеров вместо соединения AlSb тройного твердого раствора $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$, параметр решетки которого уменьшается с увеличением содержания As. Заметим, что при $y \approx 0.08$ этот твердый раствор становится полностью решеточно-согласованным с GaSb. Добавление мышьяка в AlSb приводит также к повышению разрывов зон на интерфейсах QW и постепенному преобразованию гетероперехода InAsSb/AlSbAs из типа II в тип I, как уже отмечалось выше. Для экспериментального определения влияния содержания As в барьерных слоях на энергию оптического излучения из QW были выращены структуры с разным составом $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ в диапазоне $y = 0.02-0.35$. Изменение состава твердого раствора осуществлялось путем варьирования лишь потока сурьмы при постоянных значениях потоков Al, Ga и As, а также температуры роста [6]. Оценка среднего значения величины y проводилась на основании данных по угловому положению соответствующего пика на рентгенодифракционной кривой качания, предполагая отсутствие какой-либо релаксации упругих напряжений в эпитаксиальных слоях.

3. Структурные исследования

Ряд выращенных структур с различными толщинами QW был изучен методом просвечивающей электронной микроскопии (ТЕМ) 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 гранецентрированной решеткой и могут эффективно использоваться для визуализации пространственных флуктуаций состава [9]. На рис. 2 представлены темнопольные ТЕМ изображения образцов с QW различной толщины, которые демонстрируют хорошее качество и планарность слоев.

4. Оптические исследования

Фотолюминесцентные исследования полученных структур были проведены при температуре 80 К. Для возбуждения PL был использован InGaAs-лазерный диод, работающий в непрерывном режиме на длине волны 1.05 мкм, а также линия 514 нм аргонового лазера. Плотность мощности накачки на образце составляла ~ 2 Вт/см². Сигнал PL регистрировался InSb охлаждаемым фотоприемником. В структурах наблюдалась интенсивная PL при возбуждении аргоновым лазером с энергией квантов, превышающей край Г-зоны AlSbAs-барьеров (рис. 3). Спектры PL содержали два относительно узких пика, один из которых (вблизи 0.78 эВ) соответствует краевой PL в GaSb. Положение другого пика с полушириной 30–50 мэВ варьировалось в диапазоне длин волн 2–4.5 мкм в зависимости от

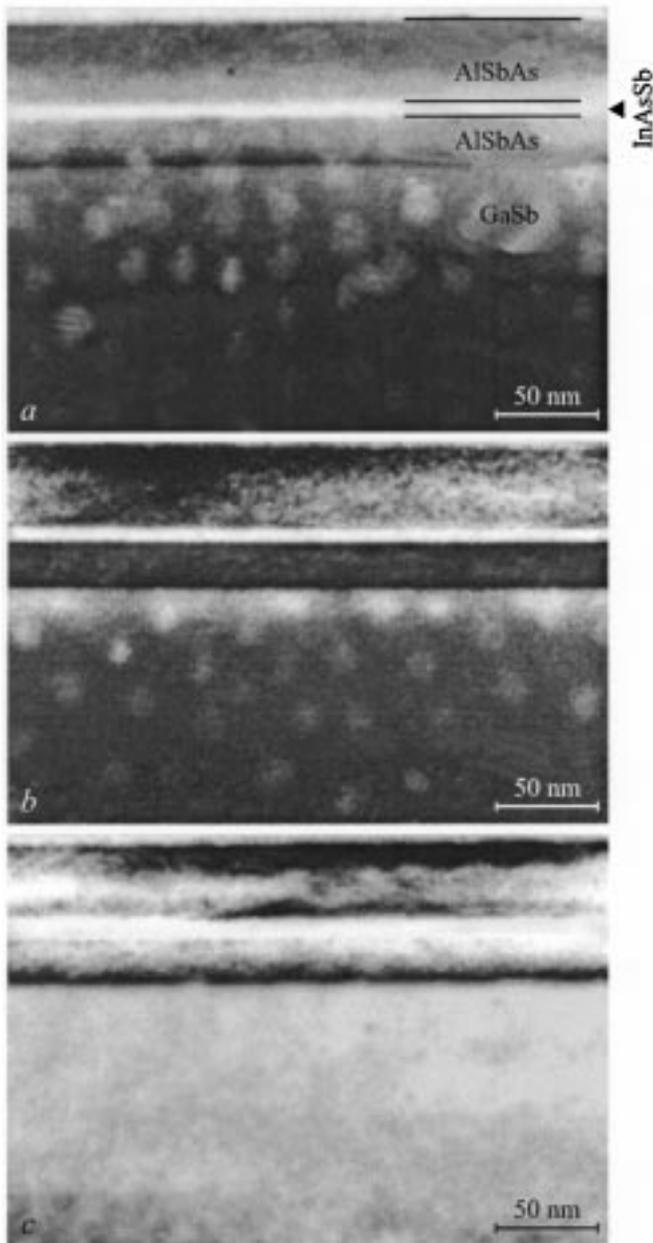


Рис. 2. Темнопольные ТЕМ изображения поперечного сечения структур, содержащих InAsSb QW с толщиной: 4,8 (а), 6,2 (b), 10 нм (с). Дефекты в виде светлых пятен на изображениях являются артефактами, образующимися при ионном травлении во время подготовки образца.

толщины QW. Следует отметить, что интенсивность пика PL, обусловленного излучением из QW, резко падала при накачке структуры лазерным диодом с длиной волны 1,05 мкм, что свидетельствовало о подбарьерном режиме возбуждения, т.е. прямой накачке тонкой QW.

Наряду с экспериментальными исследованиями были проведены расчеты энергий ширины запрещенной зоны для квантовых ям InAsSb/AlSbAs в широком диапазоне составов QW и барьеров, а также толщины QW. Расчеты

проводились в рамках приближения эффективной массы с использованием двухзонной модели. Для учета влияния упругих напряжений на зонную структуру твердых растворов применялась теория Van de Walle [4].

Согласно расчетам, разрыв зоны проводимости на интерфейсе составляет более 1,5 эВ для всего исследуемого в этой работе диапазона составов твердых растворов [7]. Для валентной зоны ситуация является более сложной, поскольку разрыв валентной зоны оказывается существенно меньшим, а сама величина и даже знак разрыва валентной зоны зависят от состава как $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x$, так и $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$. На рис. 4 приведены зависимости энергии потолка зоны тяжелых (сплошные линии) и легких (прерывистые линии) дырок в твердом растворе $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ в зависимости от y . При расчете подразумевался псевдоморфный рост структуры на подложке GaSb. На этом же рисунке показаны соответствующие значения для твердого раствора $\text{InAs}_{0,88}\text{Sb}_{0,12}$. Как видно из рисунка, тип зонной структуры меняется при $y \approx 0,05-0,06$. При $y > 0,06$ $\text{InAs}_{0,88}\text{Sb}_{0,12}$ / $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ QW демонстрирует зонную диаграмму типа I, т.е. электроны и дырки пространственно локализованы в одном и том же слое $\text{InAs}_{0,88}\text{Sb}_{0,12}$. При $y < 0,05$ разрыв валентной зоны меняет знак и квантовая яма становится типа II. В этом случае электроны локализованы в слое $\text{InAs}_{0,88}\text{Sb}_{0,12}$, а дырки — в окружающих слоях $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$. Заметим, что в обоих случаях материал слоя с более высокой энергией потолка валентной зоны ($\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ при $y < 0,05$ или $\text{InAs}_{0,88}\text{Sb}_{0,12}$ при $y > 0,06$) оказывается под воздействием сжимающих упругих напряжений, и поэтому нижним состоянием оказывается зона тяжелых дырок.

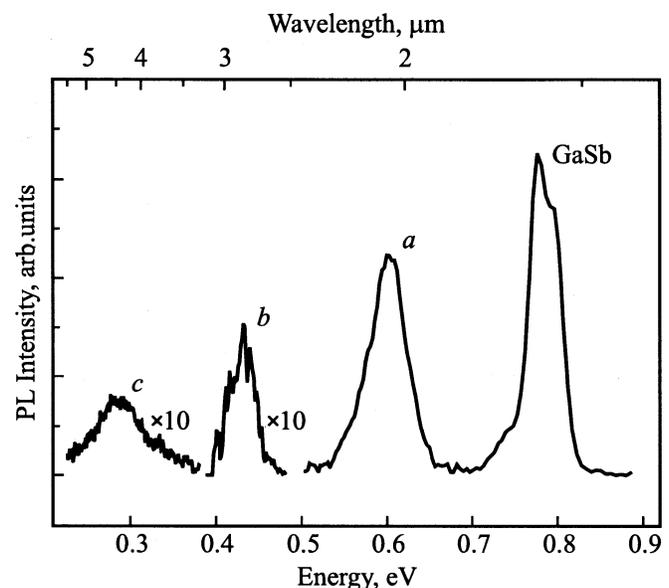


Рис. 3. Спектры PL для $\text{InAs}_{0,88}\text{Sb}_{0,12}$ / $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ QW структур с толщиной ямы и составом барьеров y соответственно: 4,2 нм и 0,3 (а), 6,2 нм и 0,2 (b), 14 нм и 0,03 (с).

На рис. 5 представлены расчетные зависимости ширины запрещенной зоны (E_g) от толщины $\text{InAs}_{0.88}\text{Sb}_{0.12}/\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ QW для крайних значений состава $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ барьеров: $y = 0.02$ (гетеропереход II-го типа, пунктирная линия) и $y = 0.3$ (гетеропереход I-го типа, сплошная линия). Было установлено, что, несмотря на изменение структуры зон от типа II к типу I, а также незначительное улучшение дырочного ограничения с увеличением содержания мышьяка в $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ -барьерах, соответствующий сдвиг энергии оптического перехода оказывается меньшим экспериментально наблюдаемой полуширины пика PL. Оценка экспериментальных значений ширины запрещенной зоны QW, по данным PL, проводилась в соответствии с подходом, изложенным в работе [10], в котором было получено полуэмпирическое выражение: $E_g = E_{\text{PL}} + 0.6\Delta E_{\text{PL}}$, где E_{PL} и ΔE_{PL} — спектральное положение и полуширина пика PL соответственно. Полученные таким образом значения E_g для структур с малым ($0.02 < y < 0.04$, квадраты) и большим ($0.2 < y < 0.3$, кружки) содержанием As в барьерах представлены также на рис. 5. В целом эти данные хорошо согласуются с расчетными зависимостями, демонстрируя в среднем несколько меньшие значения E_g для образцов с малой величи-

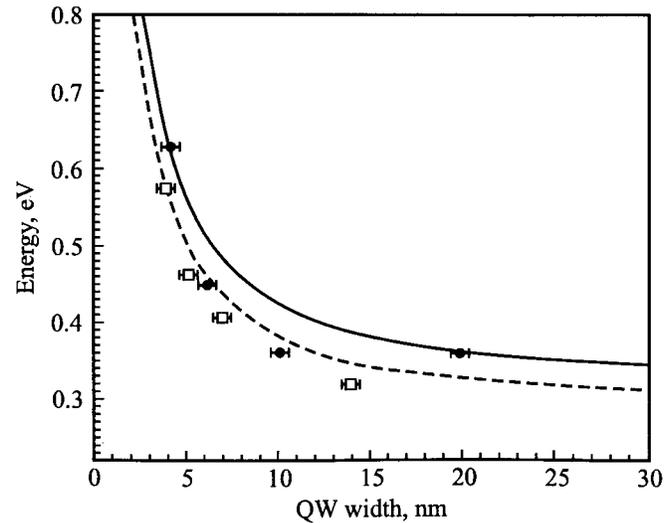


Рис. 5. Расчетные (кривые) и экспериментальные (точки) зависимости ширины запрещенной зоны одиночной $\text{InAs}_{0.88}\text{Sb}_{0.12}/\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ QW от толщины ямы. Расчет проведен для значений y : 0.02 (пунктирная кривая) и 0.3 (сплошная кривая). Экспериментальные данные приведены для образцов с малым ($0.02 < y < 0.04$, квадраты) и большим ($0.2 < y < 0.3$, кружки) содержанием As в барьерах.

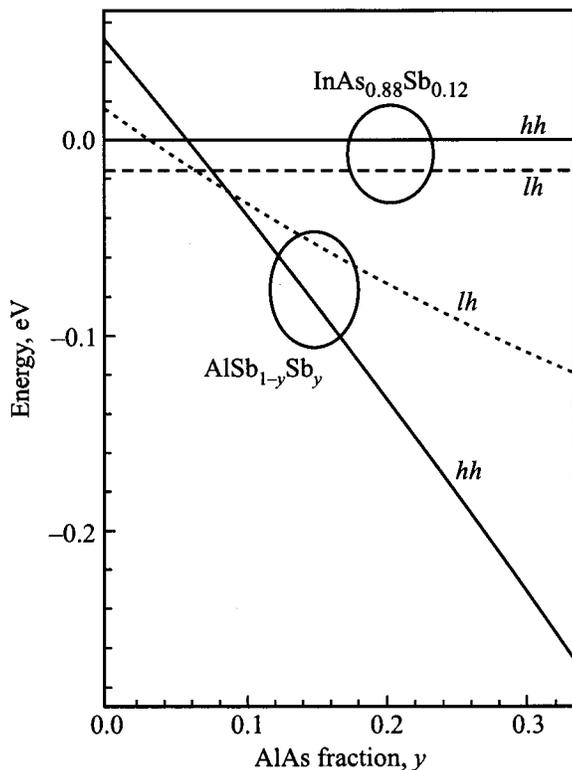


Рис. 4. Расчетные зависимости положения потолка валентной зоны твердого раствора $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ от состава y для тяжелых (сплошная линия) и легких (пунктирная линия) дырок. Горизонтальными линиями отмечены соответствующие значения для $\text{InAs}_{0.88}\text{Sb}_{0.12}$. Напряжения приводят к снятию вырождения в валентной зоне $\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$, за исключением случая согласования периодов решеток при $y \approx 0.08$.

ной y . Следует также отметить, что интенсивность PL для образцов с большим содержанием As в барьерах была в среднем в 3 раза большей, чем для образцов с малой величиной y . Полученные результаты свидетельствуют о том, что наблюдаемая в данных структурах PL обусловлена межзонными оптическими переходами в $\text{InAs}_{0.88}\text{Sb}_{0.12}/\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ QW, а также о правильности представлений о структуре зон и трансформации типа гетероперехода в исследуемых гетероструктурах.

5. Заключение

В работе представлены результаты структурных и оптических исследований $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x/\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ QW гетероструктур, выращенных методом MBE на $\text{GaSb}(001)$ подложках. Исследованные структуры характеризуются интенсивной фотолюминесценцией в спектральном диапазоне 2–4.5 мкм, в зависимости от толщины квантовой ямы. Проведенный расчет разрывов зон на интерфейсе $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x/\text{AlSb}_{1-y}\text{As}_y$ свидетельствует о трансформации гетероперехода из типа II в тип I с увеличением содержания As в барьерах, что косвенно подтверждается экспериментальными данными по PL.

Авторы выражают признательность М.В. Байдаковой за проведение рентгено-дифракционных измерений.

Работа была поддержана грантами РФФИ (№ 01-02-17933) и CRDF (№ RP1-2265).

Список литературы

- [1] S.J. Eglash, H.K. Choi. Appl. Phys. Lett., **64**, 833 (1994).
- [2] H.K. Choi, G.W. Turner, Z.L. Liau. Appl. Phys. Lett., **65**, 2251 (1994).
- [3] B. Brar, H. Kroemer, J. Ibbetson, J.H. English. Appl. Phys. Lett., **62**, 3303 (1993).
- [4] Van de Walle. Phys. Rev. B, **39**, 1871 (1989).
- [5] A. Wilk, F. Genty, B. Fraisse, G. Boissier, P. Grech, M.El. Gazouli, P. Christol, J. Qswald, T. Simecek, E. Hulicius, A. Joullie. J. Cryst. Growth, **223**, 341 (2001).
- [6] A.N. Semenov, V.A. Solov'ev, B.Ya. Mel'tser, V.S. Sorokin, S.V. Ivanov, P.S. Kop'ev. Proc. 9th Int. Symp. „Nanostructures: Physics and Technology“, St. Petersburg, Russia, 78 (2001).
- [7] I. Vurgaftman, J.R. Meyer, L.R. Ram-Mohan. J. Appl. Phys., **89**, 5815 (2001).
- [8] D.C. Houghton, M. Davies, M. Dion. Appl. Phys. Lett., **64**, 505 (1994).
- [9] E. Bithnel, W. Stobbs. Phil. Mag. A, **60**, 39 (1989).
- [10] K.P. Q'Donell, P.J. Parbrook, F. Yang, X. Chen, C. Trager-Cowan. Physica B, **191**, 45 (1993).

Редактор Л.В. Беляков

Molecular beam epitaxy growth and photoluminescence properties of InAsSb/AlSbAs quantum wells

V.A. Solov'ev, Ya.V. Terent'ev, A.A. Toropov,
B.Ya. Meltser, A.N. Semenov, A.A. Sitnikova,
S.V. Ivanov, J.R. Meyer*, P.S. Kop'ev

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

* Naval Research Laboratory,
Washington, DC 20375 USA

Abstract Heterostructures with a single InAs_{1-x}Sb_x/AlSb_{1-y}As_y quantum well (QW) subjected to compressive stress have been grown by molecular beam epitaxy on GaSb (001) substrates and studied by *x*-ray diffraction, transmission electron microscopy and photoluminescence (PL) spectroscopy. An intense PL with the peak wavelength ranging from 2 to 4.5 μm (FWHM is of 30–50 meV) as the QW width varies from 4 to 20 nm, respectively, has been observed at 80 K. The band gap energies of the InAsSb/AlSbAs QWs calculated over wide ranges of *x* and *y* alloy compositions in the effective mass approximation, stresses concentrated in the QW and barriers being into account, are in good agreement with experimental values.