

# Применение спектроскопии фотолюминесценции для исследования поперечного скола многослойных гетероструктур

© С.М. Планкина<sup>1</sup>, О.В. Вихрова<sup>2</sup>, Б.Н. Звонков<sup>2</sup>, А.В. Нежданов<sup>1</sup>, И.Ю. Пашенькин<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия

<sup>2</sup> Научно-исследовательский физико-технический институт Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия

E-mail: plankina@phys.unn.ru

(Получена 27 апреля 2017 г. Принята к печати 12 мая 2017 г.)

Показана возможность комплексного применения фотолюминесценции и спектроскопии комбинационного рассеяния в режиме латерального сканирования поперечных сколов гетероструктур для контроля распределения напряжений, определения толщины эпитаксиальных слоев и состава твердых растворов. Указанным способом исследованы свойства лазерной гетероструктуры с квантовыми ямами InGaAs/GaAsP. Продемонстрирована возможность дифференцированно регистрировать фотолюминесцентное излучение от различных слоев структуры. Установлено, что определение состава твердого раствора  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$  по частотному положению InP-подобной моды и по энергии фотолюминесценции дает близкие значения.

DOI: 10.21883/FTP.2017.11.45101.15

## 1. Введение

Многослойные гетероструктуры на основе арсенида галлия представляют значительный интерес для развития оптоэлектроники и полупроводниковой спиновой электроники, и при их изготовлении все чаще применяется инженерия упругих напряжений. В состав подобных структур могут входить как напряженные, так и частично релаксированные (метаморфные) слои твердых растворов, например,  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ,  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ ,  $\text{GaAs}_x\text{Sb}_{1-x}$ . Возможность включения метаморфных слоев в лазерные GaAs-структуры позволяет увеличить длину волны излучения и согласовать параметр решетки активного слоя с параметром подложки для уменьшения проникновения прорастающих дислокаций в активную область лазера [1]. Для оптимизации технологического процесса требуется контроль кристаллического качества, состава слоев (для твердых растворов) и механических напряжений в структуре. Наилучшим образом для таких задач подходит неразрушающий и чрезвычайно информативный метод конфокальной спектроскопии комбинационного рассеяния света (микро-КРС), который в режиме латерального сканирования поперечного скола позволяет исследовать все слои структуры. Авторами работы [2] были проведены комплексные исследования тонких напряженных кремниевых слоев на релаксированном буферном слое SiGe методами просвечивающей электронной микроскопии, спектроскопии комбинационного рассеяния света и вторичной ионной масс-спектрометрии (ВИМС). Согласие профиля распределения Ge, полученного из данных спектроскопии КРС, с результатами ВИМС и подтверждение полученных результатов методом просвечивающей электронной микроскопии продемонстрировали возможность микро-КРС в изучении кристаллического качества структур, определении толщины слоев и состава твердых растворов по направле-

нию роста структуры. В работе [3] было показано, что латеральное разрешение метода микро-КРС при сканировании поперечного скола многослойных структур на основе GaAs соответствует разрешению, определенному из критерия Рэлея. При использовании лазерного излучения с  $\lambda = 473$  нм оно составляет около 300 нм.

Для сопровождения технологических разработок приборных структур на основе  $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$  широко используется спектроскопия фотолюминесценции (ФЛ). Цель данной работы заключается в изучении новых возможностей комплексного применения спектроскопии фотолюминесценции и конфокальной спектроскопии комбинационного рассеяния в режиме латерального сканирования для исследования поперечных сколов многослойных гетероструктур.

## 2. Методика эксперимента

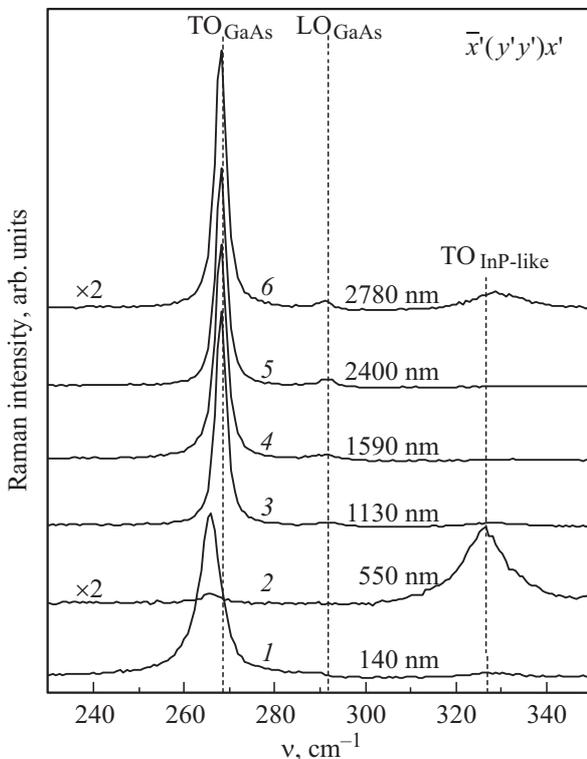
Отработка метода спектроскопии фотолюминесценции в режиме латерального сканирования проводилась с использованием лазерной структуры, выращенной методом МОС-гидридной эпитаксии в горизонтальном реакторе при атмосферном давлении. Структура, изготовленная при температуре 650°C на подложке  $n^+$ -GaAs (100), включала в себя следующие слои: буферный  $n^+$ -GaAs и контактный  $p^+$ -GaAs слои, ограничивающие слой  $n$ -InGaP:Si и  $p$ -InGaP:Zn, волновод GaAs и активную область, содержащую шесть квантовых ям (КЯ)  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  шириной 10 нм ( $x = 0.15$ ), разделенных барьерами GaAs/GaAsP толщиной 50 нм. Слои GaAsP были введены в структуру для компенсации напряжений сжатия, присутствующих в квантовых ямах  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ . Слои  $n$ -типа были легированы кремнием, слои  $p$ -типа — цинком, а контактный слой  $p^+$ -GaAs — углеродом.

Исследования спектров комбинационного рассеяния и фотолюминесценции проводились на установке

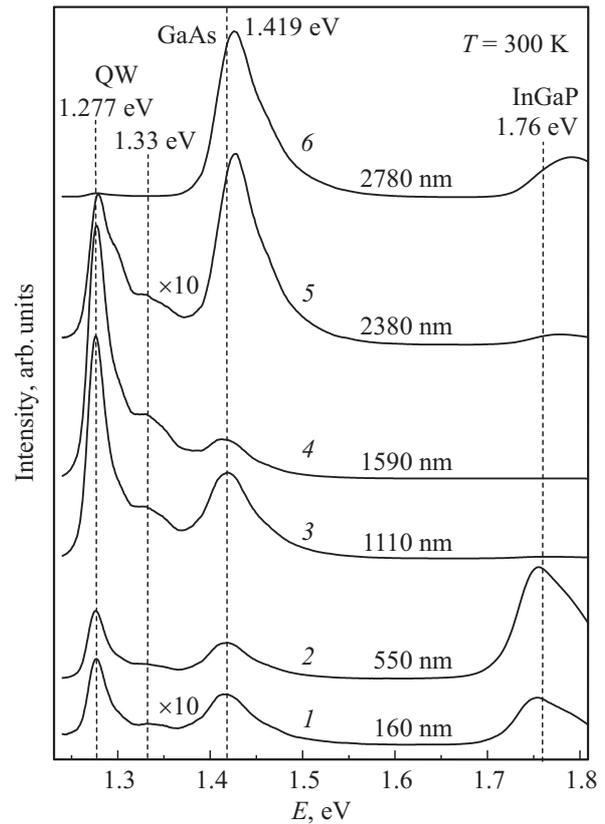
NTEGRA SPECTRA производства NT-MDT при комнатной температуре с использованием лазера с длиной волны 473 нм. Излучение фокусировалось 100× объективом с апертурой  $NA = 0.95$  в пятно диаметром  $\sim 1$  мкм, мощность пучка составляла  $\sim 0.5$  мВт. Спектры комбинационного рассеяния регистрировались в геометрии обратного рассеяния в конфигурации  $\bar{x}'(y'y')x'$ , где  $x'$  и  $y'$  — направления  $[110]$  и  $[\bar{1}10]$  соответственно. Латеральное сканирование поперечного скола гетероструктуры (плоскости  $(110)$ ) проводилось с шагом 60–80 нм вдоль направления роста  $z$  ( $[001]$ ). Светоизлучающие характеристики исследовались также спектроскопией фотолюминесценции при  $T = 77$  К с использованием в качестве источника возбуждения He–Ne-лазера (632.5 нм) мощностью 30 мВт в обычной геометрии от поверхности  $(001)$ .

### 3. Экспериментальные результаты и обсуждение

Спектры КРС от различных слоев лазерной структуры представлены на рис. 1. Так как за нулевую точку оси  $z$ , вдоль которой проводится сканирование, принята поверхность, указанные около кривых координаты фактически соответствуют расстоянию от центра лазерного пучка до поверхности структуры. На всех спектрах доминируют разрешенные правилами отбора поперечные



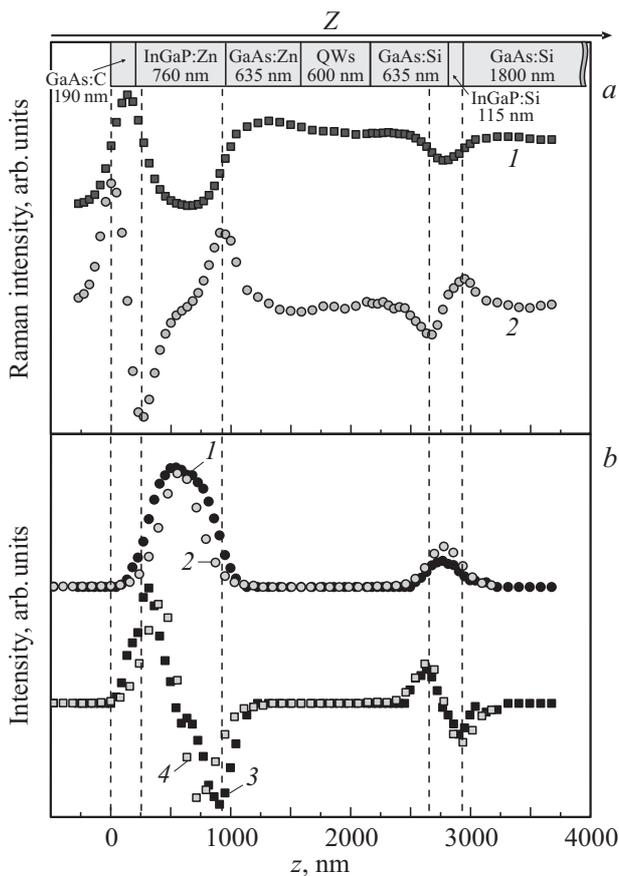
**Рис. 1.** Спектры КРС от различных слоев структуры: 1 — GaAs:C, 2 — InGaP:Zn, 3 — GaAs:Zn, 4 — КЯ, 5 — GaAs:Si, 6 — InGaP:Si. Около кривых приведено расстояние до поверхности структуры.



**Рис. 2.** Спектры фотолюминесценции от различных слоев структуры: 1 — GaAs:C, 2 — InGaP:Zn, 3 — GaAs:Zn, 4 — КЯ, 5 — GaAs:Si, 6 — InGaP:Si. Около кривых приведено расстояние до поверхности структуры.

моды: на частоте  $\sim 268$   $\text{cm}^{-1}$  — TO-мода GaAs [4], на частоте  $326$   $\text{cm}^{-1}$  — InP-подобная TO-мода твердого раствора InGaP [5,6]. Запрещенные в данной геометрии продольные фоновые моды слабоинтенсивные, и их появление связано только с конечностью входной апертуры спектрометра. Изменения частотного положения фоновых мод, заметные на рис. 1, будут обсуждаться далее. Ширина TO-моды GaAs на полувысоте ( $\Delta\nu$ ) в волноводных слоях GaAs составляет  $\sim 2.7$   $\text{cm}^{-1}$ . Такое низкое значение характерно для объемного кристалла и свидетельствует о высоком структурном совершенстве эпитаксиальных слоев.

На рис. 2 приведены спектры ФЛ от различных слоев структуры. Пики ФЛ, наблюдаемые при  $T = 77$  К и обусловленные межзонными переходами в слоях InGaP и GaAs, воспроизводятся при  $T = 300$  К в области энергий 1.756 и 1.419 эВ соответственно. Пики при  $h\nu = 1.277, 1.330$  эВ связаны с переходами в квантовых ямах InGaAs/GaAsP. Спектральная ширина на половине высоты полос от InGaP, GaAs и квантовых ям InGaAs/GaAsP составляет 25, 30 и 16 мэВ соответственно. Наблюдаемые спектры комбинационного рассеяния и фотолюминесценции от поперечного скола структуры свидетельствуют о хорошем кристаллическом качестве эпитаксиальных слоев.



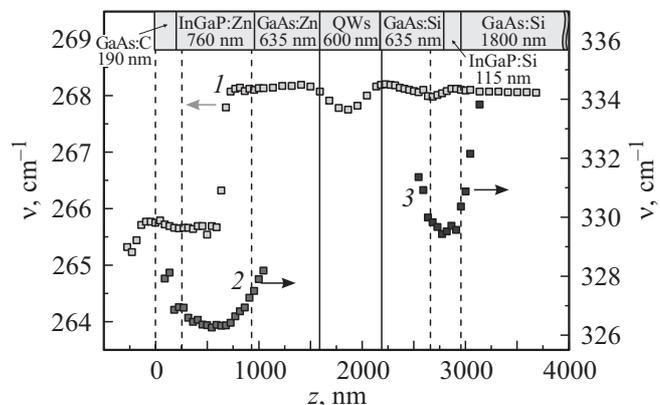
**Рис. 3.** Распределение по координате сканирования: *a* — интенсивности ТО-моды GaAs (*1*) и ее первой производной (*2*); *b* — интенсивности InP-подобной ТО-моды твердого раствора InGaP (*1*) и ее первой производной (*3*), интенсивности фотолюминесценции от твердого раствора InGaP (*2*) и ее первой производной (*4*). На вставке приведена схема образца с указанием технологических размеров слоев.

На рис. 3 приведены зависимости от координаты сканирования интенсивностей ТО-моды GaAs (рис. 3, *a*, кривая *1*) и InP-подобной ТО-моды InGaP (рис. 3, *b*, кривая *1*), а также линии фотолюминесценции, связанной с межзонными переходами в твердом растворе InGaP (рис. 3, *b*, кривая *2*). Кроме того, построены первые производные интенсивностей по координате (кривая *2* на рис. 3, *a*; кривые *3, 4* на рис. 3, *b*). Ранее было показано, что латеральное разрешение метода микро-КРС составляет 300 нм [3], а распределение интенсивности фоновых мод по координате позволяет определить толщину слоев [7]. Максимумы интенсивности относятся к центрам соответствующих слоев, а экстремумы первой производной интенсивности ТО-моды GaAs находятся на границе слоя GaAs с воздухом ( $z = 0$  нм) и ограничивающими слоями InGaP ( $z = 270, 900, 2700$  и 2950 нм). Каких-либо заметных изменений интенсивности на границе активного слоя с волноводными слоями не наблюдается. Вертикальные пунктирные линии на графиках соответствуют экстремумам первой производной интенсивности ТО-моды GaAs и фактически

обозначают реальные границы слоев. На вставке к рис. 3 приведена схема образца с указанием технологических толщин слоев, рассчитанных по средней скорости роста. Толщины слоев, определенные по расстоянию между экстремумами производной, несколько отличаются от технологических (см. вставку на рис. 3). Однако суммарная толщина слоев, выращенных после буферного слоя (GaAs:C, InGaP:Zn и GaAs:Zn, QWs, GaAs:Si и InGaP:Si), определенная по экстремумам первой производной, совпадает (с точностью до погрешности определения координаты экстремума) с технологической толщиной и составляет  $\sim 2950$  нм. Распределения по координате сканирования интенсивности фоновых мод (ТО-моды GaAs и InP-подобной ТО-моды твердого раствора InGaP) и интенсивности фотолюминесценции, связанной с межзонными переходами в твердом растворе InGaP, хорошо согласуются друг с другом и с геометрией структуры.

Иная картина наблюдается для распределения интенсивности ФЛ от активной области. Излучение от квантовой ямы ( $h\nu = 1.277$  эВ) регистрируется, когда центр лазерного пятна находится в контактном слое GaAs:C и слое твердого раствора InGaP (кривые *1* и *5* на рис. 2), т.е. на расстоянии  $\sim 1$  мкм от квантовых ям, при низких уровнях возбуждения. Исследование зависимости ФЛ от уровня возбуждения показывает, что даже при уменьшении мощности лазера на 2 порядка величины, полученный по первой производной интенсивности фотолюминесценции КЯ размер значительно превышает технологическую толщину активного слоя. Очевидно, этот эффект обусловлен диффузией неравновесных носителей из широкозонных слоев в узкозонные квантово-размерные области с последующим излучением. Эта особенность может влиять на латеральное разрешение метода спектроскопии фотолюминесценции при исследовании квантово-размерных структур.

На рис. 4 приведены зависимости частотного положения поперечных мод GaAs и InGaP от координаты сканирования. Вертикальные пунктирные линии,



**Рис. 4.** Распределение по координате сканирования частотного положения ТО-моды GaAs (*1*) и InP-подобной моды твердого раствора InGaP: Zn (*2*) и InGaP: Si (*3*). На вставке приведена схема образца с указанием технологических размеров слоев.

как и на рис. 3, соответствуют экстремумам первой производной интенсивности ТО-моды GaAs и фактически обозначают реальные границы слоев. Вертикальные сплошные линии обозначают границу активной области лазерной структуры в соответствии с расчетными технологическими размерами. На распределении по координате сканирования частотного положения ТО-моды GaAs (кривая 1) наблюдается низкочастотный сдвиг ( $\sim 2 \text{ см}^{-1}$ ) в области контактного слоя GaAs:C, связанный с уменьшением параметра решетки и появлением локальных напряжений растяжения в результате замещения мышьяка углеродом [3,8]. При этом ширина ТО-моды на полувысоте заметно выше ( $\sim 5.5 \text{ см}^{-1}$ ), чем в случае волноводного слоя GaAs. В активной области наблюдаются низкочастотный сдвиг ( $\sim 0.5 \text{ см}^{-1}$ ) и уширение ТО-моды до  $\sim 4.5 \text{ см}^{-1}$ , предположительно, из-за напряжений растяжения, действующих на слой GaAs, встроенный между КЯ InGaAs и барьерами GaAsP.

На распределении частотного положения InP-подобной моды твердого раствора InGaP (рис. 4, кривые 2 и 3) наблюдаются более значительные (от 2 до  $4 \text{ см}^{-1}$ ), чем для ТО-моды GaAs, сдвиги в высокочастотную сторону от центра слоев к гетерограницам. Очевидно, что слои твердого раствора InGaP не согласованы с GaAs по параметру решетки и испытывают напряжения сжатия. InP-подобная ТО-мода твердого раствора InGaP уширена до  $11 \text{ см}^{-1}$ , что может быть обусловлено двумя факторами: деформационными полями и частичным упорядочением твердого раствора [9].

В процессе эпитаксиального роста изначально задавался состав слоев  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ , соответствующий максимальному согласованию параметров решетки твердого раствора и GaAs, т.е.  $x_{\text{In}} \approx 0.49$ . Оценка состава твердого раствора  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$  по частотному положению InP-подобной моды [5] в центре слоев, где они, предположительно, релаксировали, дает  $x_{\text{In}} \approx 0.53$  для слоя, легированного Si (кривая 3), и  $x_{\text{In}} \approx 0.57$  для слоя, легированного Zn (кривая 2). Энергия ФЛ, связанная с межзонными переходами в твердом растворе, изменяется по направлению роста структуры в диапазоне от 1.792 до 1.775 эВ в слое InGaP:Si и от 1.764 до 1.752 эВ — в слое InGaP:Zn. Оценка состава твердого раствора по средним значениям энергии ФЛ дает близкие значения —  $x_{\text{In}} \approx 0.56$  и  $x_{\text{In}} \approx 0.58$  соответственно.

#### 4. Заключение

Показано, что исследование фотолюминесценции в режиме латерального сканирования поперечных сколов образцов позволяет дифференцированно регистрировать излучение от различных слоев сложных приборных гетеронаноструктур. Изменения в спектрах фотолюминесценции (появление пиков, изменение их интенсивности и энергии излучения) хорошо согласуются с геометрией структуры и свойствами слоев. Показано, что комплексное применение фотолюминесценции и спектроскопии

комбинационного рассеяния в режиме латерального сканирования поперечных сколов позволяет контролировать толщину эпитаксиальных слоев, распределение напряжений в гетероструктурах, состав твердых растворов.

Работа выполнена в рамках реализации государственного задания — проект № 8.1751.2017/ПЧ Министерства образования и науки России, при поддержке РФФИ (гранты 16-07-01102\_а, 17-37-80008\_мол\_эв\_а).

#### Список литературы

- [1] M. Arai, K. Nakashima, T. Fujisawa, T. Tadokoro, W. Kobayashi, M. Yuda, Y. Kondo. IEEE J. Select. Topics Quant. Electron., **15** (3), 724. (2009).
- [2] S. Nakashima, T. Yamamoto, A. Ogura, K. Uejima, T. Yamamoto. Appl. Phys. Lett., **84** (14), 2533 (2004).
- [3] S.M. Plankina, O.V. Vikhrova, Yu.A. Danilov, B.N. Zvonkov, N.Yu. Konnova, A.V. Nezhdanov, I.Yu. Pashen'kin. Semiconductors, **50** (11), 1539 (2016).
- [4] П.Ю. М. Кардона. Основы физики полупроводников, пер. с англ.: И.И. Решиной, под ред. Б.П. Захарчени (М., Физматлит, 2002) гл. 7, с. 342.
- [5] H. Lee, D. Biswas, M.V. Klein, H. Morkoç, D.E. Aspnes, B.D. Choe, J. Kim, C.O. Griffiths. J. Appl. Phys., **75**, 5040 (1994).
- [6] M. Zachau, W.T. Masselink. Appl. Phys. Lett., **60**, 2098 (1992).
- [7] A.V. Kudrin, S.M. Plankina, O.V. Vikhrova, A.V. Nezhdanov, A.I. Mashin, Yu.N. Drozdov, A.V. Shvetsov. Micron, **93**, 38 (2017).
- [8] Б.Н. Звонков, О.В. Вихрова, Ю.А. Данилов, Ю.Н. Дроздов, М.Н. Дроздов, И.Л. Калентьева, А.В. Кудрин. ФТП, **46**, 1527 (2012).
- [9] А.М. Минтаиров, Б.Н. Звонков, Т.С. Бабушкина, И.Г. Малкина, Ю.Н. Сафьянов. ФТТ, **37** (12), 3607 (1995).

Редактор А.Н. Смирнов

#### Study of the cleaved edge cross section of the multilayer heterostructures by photoluminescence spectroscopy

S.M. Plankina<sup>1</sup>, O.V. Vikhrova<sup>2</sup>, B.N. Zvonkov<sup>2</sup>, A.V. Nezhdanov<sup>1</sup>, I.Yu. Pashen'kin<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

<sup>2</sup> Physicotechnical Research Institute of the Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

**Abstract** It is shown that complex application of confocal micro-Raman spectroscopy and photoluminescence spectroscopy by line scanning the cleaved edge of the heterostructures enables monitoring the stress profile, determination of epitaxial layer thickness and solid solution composition. In this way properties of laser structure with InGaAs/GaAsP quantum wells were studied. It is shown that it's possible to register photoluminescence radiation from various layers of structure separately. Determination of  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$  solid solution composition by frequency position of TO InP-like mode and by photoluminescence energy gives close results.