

Особенности электролюминесценции в гетероструктурах с квантовыми точками InSb в матрице InAs

© Я.А. Пархоменко, Э.В. Иванов, К.Д. Моисеев[†]

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

(Получена 2 апреля 2013 г. Принята к печати 8 апреля 2013 г.)

Изучены электрические и электролюминесцентные свойства одиночной узкозонной гетероструктуры на основе p - n -перехода в арсениде индия, содержащей одиночный слой квантовых точек InSb в матрице InAs. Наличие квантовых точек существенно влияло на форму обратной ветви вольт-амперных характеристик гетероструктуры. При приложении обратного смещения спектры электролюминесценции гетероструктуры с квантовыми точками при комнатной температуре помимо полосы отрицательной люминесценции с максимумом на длине волны $\lambda = 3.5$ мкм содержали также полосу излучения положительной люминесценции при 3.8 мкм, которая обусловлена излучательными переходами с участием локализованных состояний квантовых точек на гетерогранице II типа InSb/InAs.

1. Введение

Полупроводниковые наногетероструктуры с квантовыми точками относятся к новому классу материалов, которые могут представлять интерес для приложений в нанoeлектронике, спинтронике и оптоэлектронике [1,2]. В квантовой точке локализация волновой функции происходит во всех трех направлениях и, следовательно, возрастает величина силы осциллятора для внутризонных и экситонных переходов. В ансамблях квантовых точек уменьшается скорость термической генерации носителей заряда вследствие дискретности энергетического спектра. Локализованные состояния, обусловленные квантовыми точками, должны характеризоваться большим временем жизни неравновесных носителей заряда по сравнению с системами более высокой размерности вследствие снижения эффективности процесса рассеяния на фононах. Поэтому наличие по крайней мере одного слоя квантовых точек толщиной в несколько нанометров даже со сравнительно небольшой поверхностной плотностью нанообъектов может существенно влиять на свойства объемной матрицы, в которую они помещены.

Ранее были предприняты попытки получить гетероструктуры со слоями квантовых точек InSb в матрице InAs, выращенные методами молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) и газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений (МОГФЭ). Были получены методом МПЭ многослойные гетероструктуры со вставками (мини-слоями) бинарного соединения InSb, попеременно разделенными слоями InAs толщиной в несколько нанометров, однако отсутствие надежных данных по результатам исследований структурных свойств этих гетероструктур не позволяет с полной уверенностью интерпретировать вставки InSb как квантовые точки [3]. По-видимому, указанные гетероструктуры содержат тройной твердый раствор $\text{InAs}_{1-x}\text{Sb}_x$, что и подтверждают наблюдаемые спектры фотолюминесценции.

Только в 2012 г. появились первые данные по квантовым точкам InSb, выращенным в матрице InAs как методом МПЭ, так и МОГФЭ [4]. Спектры фотолюминесценции, полученные при низких температурах ($T = 77$ К), для структур, выращенных методом МПЭ и содержащих 20 слоев квантовых точек, содержали одиночную полосу излучения с максимумом интенсивности вблизи длины волны $\lambda = 4$ мкм. Кроме того, гетероструктуры, выращенные методом МОГФЭ и содержащие одиночный слой квантовых точек InSb в матрице InAs, обладали лучшими оптическими характеристиками. При этом увеличение слоев квантовых точек влияло только на интенсивность фотолюминесценции и почти не отражалось на спектральном положении полосы излучения. До настоящего времени электролюминесцентные свойства таких гетероструктур не были изучены. В настоящей работе представлены результаты исследований электрических и электролюминесцентных свойств гетероструктур на основе одиночного слоя квантовых точек InSb, расположенного вблизи перехода n -InAs/ p -InAs.

2. Технология изготовления структур и методика экспериментов

Были выращены два типа образцов: образец 1 (n -InAs/ p -InAs) — n - p -гомопереход в арсениде индия, полученный в результате наращивания эпитаксиального слоя p -InAs непосредственно на нелегированную подложку n -InAs; образец 2 (n -InAs/QDs-InSb/ p -InAs) — гетероструктура, содержащая одиночный слой квантовых точек (QDs) InSb, помещенный в матрицу InAs вблизи p - n -перехода как результат наращивания эпитаксиальным слоем p -InAs. Оба образца были выращены на подложках n -InAs(001), преднамеренно не легированных, с концентрацией электронов $2 \cdot 10^{16}$ см⁻³. Образец 1 был выбран в качестве реперного, относительно которого были рассмотрены особенности электрических и

[†] E-mail: mkd@iropt2.ioffe.rssi.ru

люминесцентных свойств гетероструктур с квантовыми точками. В образце 2 слой квантовых точек InSb с размерами 3–4 нм в высоту и 14–20 нм в диаметре с поверхностной плотностью $\sim 10^{10} \text{ см}^{-2}$ был получен методом жидкофазной эпитаксии при температуре 430°C. Методика получения квантовых точек и их структурные свойства описаны в предыдущих работах [5,6]. Нарастивание эпитаксиальных слоев p-InAs для обоих образцов было выполнено методом МОГФЭ при температуре 470°C. При этом осаждение арсенида индия при выращивании образца 2 осуществлялось непосредственно после осаждения слоя квантовых точек, т.е. гетероструктура была получена в одном ростовом цикле. Легирование акцепторной примесью цинка до концентрации дырок $\sim 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ проводилось в процессе осаждения эпитаксиального слоя InAs из газовой фазы. Наличие зарощенных массивов квантовых точек InSb в матрице InAs для образца 2 подтверждено исследованиями, проведенными с помощью просвечивающего электронного микроскопа [7].

Из эпитаксиальных структур методом стандартной фотолитографии и селективного влажного травления были подготовлены чипы мезодиодов размерами $500 \times 500 \text{ мкм}$ с круглой мезой диаметром 300 мкм и центральным точечным контактом диаметром 50 мкм. Мезодиоды монтировались на стандартных корпусах ТО-18 подложкой n-InAs к металлическому корпусу. Вольт-амперные характеристики (ВАХ) исследовались с помощью оригинальной автоматизированной установки, которая была сопряжена с персональным компьютером.

Электролюминесценция (ЭЛ) возбуждалась прямоугольными импульсами тока с коэффициентом заполнения 50% и частотой повторения 512 Гц. Амплитуда импульсов тока варьировалась в интервале $\pm(20-150) \text{ мА}$. Были изучены спектры ЭЛ, возникающие как при прямой, так и при обратной полярности приложенного внешнего смещения. В случае прямой полярности отрицательный потенциал внешнего смещения прикладывался к подложке n-InAs, а положительный — к накрывающему слою p-InAs. При обратной полярности, наоборот, к подложке n-InAs прикладывался положительный потенциал, а к слою p-InAs — отрицательный. В ходе экспериментов регистрировалось излучение, выходящее из структуры со стороны накрывающего слоя p-InAs. Спектральные характеристики были измерены с помощью автоматизированной установки на базе монохроматора ДК-480 с дифракционной решеткой 150 штр/мм. Для регистрации излучения на выходе монохроматора использовался фотovoltaический детектор InSb (Judson Co), работавший при температуре жидкого азота. Сигнал с фотодиода поступал на вход трансимпедансного преусилителя РА-9-44, а затем преобразовывался с помощью селективного усилителя SR-810 по схеме синхронного детектирования. Результирующий оцифрованный сигнал передавался в компьютер, который осуществлял управление процессом измерений.

3. Электрические свойства гетероструктур с квантовыми точками InSb, вставленными в переход n-InAs/p-InAs

Вольт-амперные характеристики образца 1 (n-InAs/p-InAs) свидетельствовали о ярко выраженном диодном поведении структур: резкое возрастание тока в прямой ветви и степенная зависимость в обратной (пунктирные кривые на рис. 1). Напряжение отсечки в прямой ветви составляло $U \approx 0.1 \text{ В}$ при температуре $T = 300 \text{ К}$ и $U \approx 0.4 \text{ В}$ при 77 К, тогда как напряжение теплового пробоя при обратном смещении достигало 3 В при комнатной температуре и превышало 5 В при температуре жидкого азота. Сравнительно большую величину напряжения пробоя p–n-перехода в обратной ветви ВАХ можно объяснить низкой концентрацией легирующей примеси, потому что при осаждении слоя p-InAs, легированного цинком, при температурах эпитаксиального роста происходит диффузия атомов мелкой

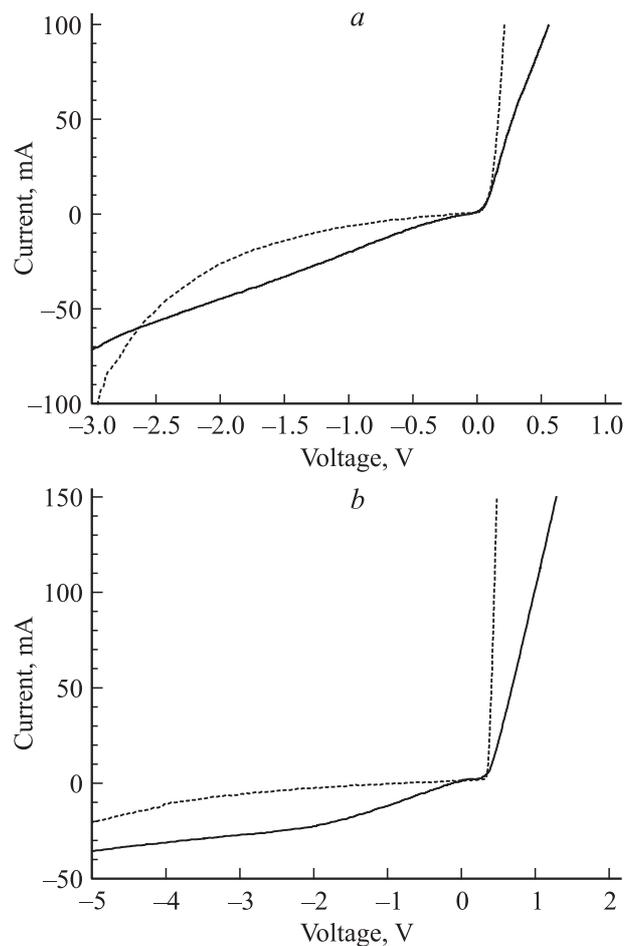


Рис. 1. Вольт-амперные характеристики гетероструктур p-InAs/n-InAs (пунктирная линия) и p-InAs/QDs-InSb/n-InAs (сплошная линия), измеренные при $T = 300 \text{ К}$ (a) и $T = 77 \text{ К}$ (b).

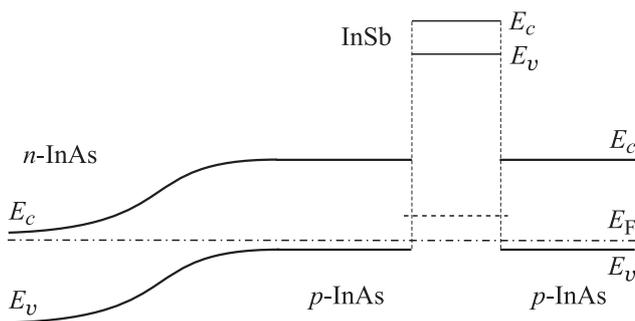


Рис. 2. Схематическая зонная энергетическая диаграмма одиночной гетероструктуры II типа p -InAs/QDs-InSb/ n -InAs в термодинамическом равновесии. Штриховая линия — возможное положение локализованных состояний для дырок в слое квантовых точек InSb. E_c — зона проводимости, E_v — валентная зона, E_F — уровень Ферми.

акцепторной примеси в глубь нелегированной подложки n -InAs. При этом возникает область компенсированного полупроводника, которая обладает большим сопротивлением. Таким образом, в образце 1 был сформирован „классический“ p - n -переход с достаточно большой областью пространственного заряда, центр которой расположен в подложке на глубине $\sim (2-5)$ мкм от металлургической границы подложка/эпитаксиальный слой [8].

Наличие одиночного слоя квантовых точек InSb, расположенного в матрице InAs непосредственно на металлургической границе подложка/эпитаксиальный слой, приводило к изменению вида ВАХ гетероструктуры по отношению к вольт-амперным характеристикам p - n -перехода (сплошные кривые на рис. 1). В прямой ветви ВАХ структуры n -InAs/QDs-InSb/ p -InAs наблюдалось увеличение наклона за счет включения дополнительного последовательного сопротивления, обусловленного присутствием в гетероструктуре слоя квантовых точек. При комнатной температуре происходил пятикратный рост последовательного сопротивления относительно структуры n -InAs/ p -InAs, а при температуре жидкого азота даже девятикратный, как результат присутствия слоя квантовых точек. При этом величина напряжения отсечки в прямой ветви ВАХ была практически одинаковой для обеих исследованных структур как при 300 К, так и при 77 К. Следует отметить, что при комнатной температуре наблюдался излом в прямой ветви ВАХ, что указывало на проявление вклада туннельной составляющей протекающего тока через локализованные состояния дырок (сплошная линия на рис. 1, а). Согласно схематической зонной диаграмме, в матрице InAs на гетерогранице InSb/InAs слой квантовых точек InSb формирует квантовые состояния для дырок (рис. 2). В силу особенности разьединенного гетероперехода II типа в системе InSb/InAs квантование реализуется только для дырочного спектра. В зависимости от полярности и величины приложенного внешнего смещения локализо-

ванные дырочные уровни могут давать свой вклад в общий ток через гетероструктуру.

Присутствие слоя квантовых точек приводило также к существенному росту величины обратного тока. Для комнатной температуры данный параметр возрастал в 1.5–3 раза в зависимости от конкретного значения напряжения в диапазоне от 0 до -2.5 В, а для температуры жидкого азота — до 25 раз в исследованном диапазоне обратных смещений. Для образца n -InAs/QDs-InSb/ p -InAs туннельный характер обратной ветви ВАХ отчетливо наблюдался только при низких температурах, когда параметр теплового размытия не превышал 7 мэВ (kT при 77 К).

4. Электролюминесцентные свойства гетероструктур с квантовыми точками InSb, вставленными в переход n -InAs/ p -InAs

При приложении прямого смещения к структуре n -InAs/ p -InAs (образец 1) в спектрах ЭЛ при комнатной температуре присутствовала одиночная симметричная полоса излучения с максимумом интенсивности в районе $\lambda = 3.5$ мкм (0.355 эВ) и полушириной (шириной на полувысоте) 360 нм (37 мэВ), которая соответствовала межзонным излучательным переходам, характерным для объемного арсенида индия (рис. 3, а). При приложении обратного смещения спектр ЭЛ обращался по фазе, т. е. наблюдалась отрицательная люминесценция, интенсивность которой была примерно в 20 раз меньше, чем интенсивность ЭЛ при прямом смещении для тех же значений тока накачки. При этом форма полос излучения, положения максимумов, а также значения полуширины для соответствующих спектров положительной и отрицательной люминесценции совпадали.

Аналогичное поведение электролюминесцентных характеристик наблюдалось также при низких температурах (рис. 3, б). При приложении прямого смещения спектр ЭЛ при $T = 77$ К содержал две близко расположенные полосы излучения с максимумами интенсивности при $\lambda_1 = 3.06$ мкм (0.406 эВ) и $\lambda_2 = 3.13$ мкм (0.396 эВ). Общая полуширина спектра ЭЛ составляла ~ 240 нм (29 мэВ). Наблюдаемые полосы излучения могут быть приписаны межзонным рекомбинационным переходам в арсениде индия: λ_1 — переходу с энергией фотона, близкой к энергии запрещенной зоны (0.408 эВ), а λ_2 — излучательным переходам с участием примесных уровней природных акцепторных состояний, образованных структурными дефектами кристаллической решетки нелегированного арсенида индия [9]. При обратном смещении, как и в случае комнатной температуры, при $T = 77$ К наблюдалась отрицательная люминесценция: одиночная полоса с максимумом в окрестности $\lambda = 3.05$ мкм (0.407 эВ) и полушириной 240–250 нм (29 мэВ).

Следует отметить, что при температуре жидкого азота различие в интенсивности для люминесценции при прямом (I_{for}) и обратном (I_{rev}) смещениях было гораздо более существенным, чем при комнатной температуре. Интенсивность полосы излучения ЭЛ при 77 К при прямом смещении была на порядок выше, чем при комнатной температуре для тех же условий накачки, тогда как значения интенсивности отрицательной люминесценции были, напротив, в 3 раза меньше. В результате с понижением температуры образца соотношение интенсивностей I_{for}/I_{rev} возрастало с 20 (300 К) до 600 (77 К). Такая сильная разница в интенсивностях указывает на сравнительно слабую степень легирования и малую концентрацию неосновных носителей в области пространственного заряда в переходе n -InAs/ p -InAs. Данное предположение подкрепляют результаты измерений вольт-амперных характеристик исследуемого образца.

Для структуры n -InAs/QDs-InSb/ p -InAs (образец 2) при прямом смещении спектры ЭЛ практически не отличались по форме и интенсивности от соответствующих

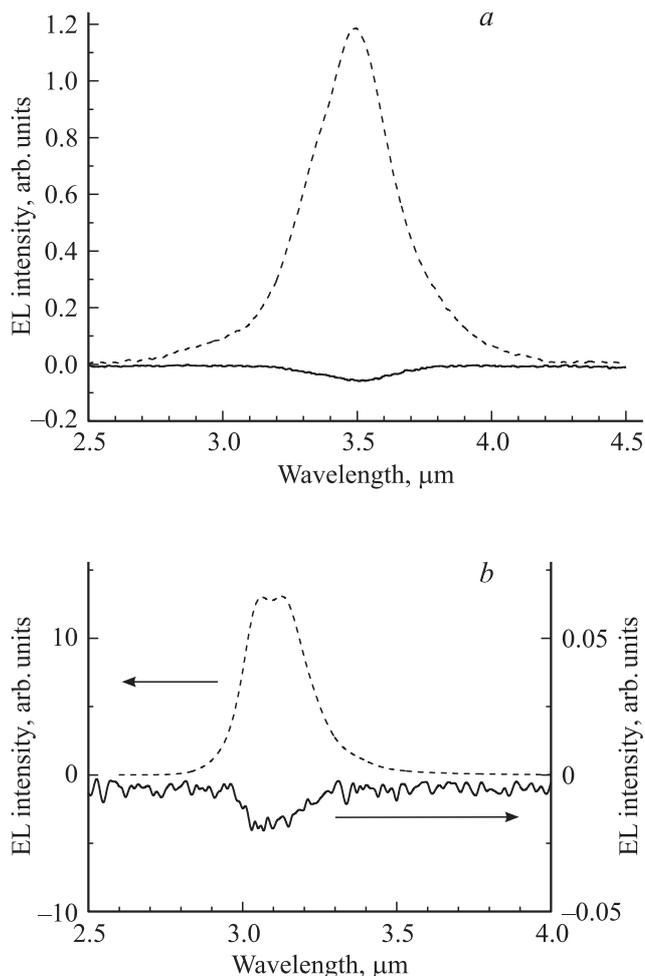


Рис. 3. Спектры электролюминесценции (EL) для гетероструктуры p -InAs/ n -InAs при $T = 300$ (a), 77 К (b) при приложении прямого (штриховая линия) и обратного (сплошная линия) внешнего смещения. Ток накачки 25 мА.

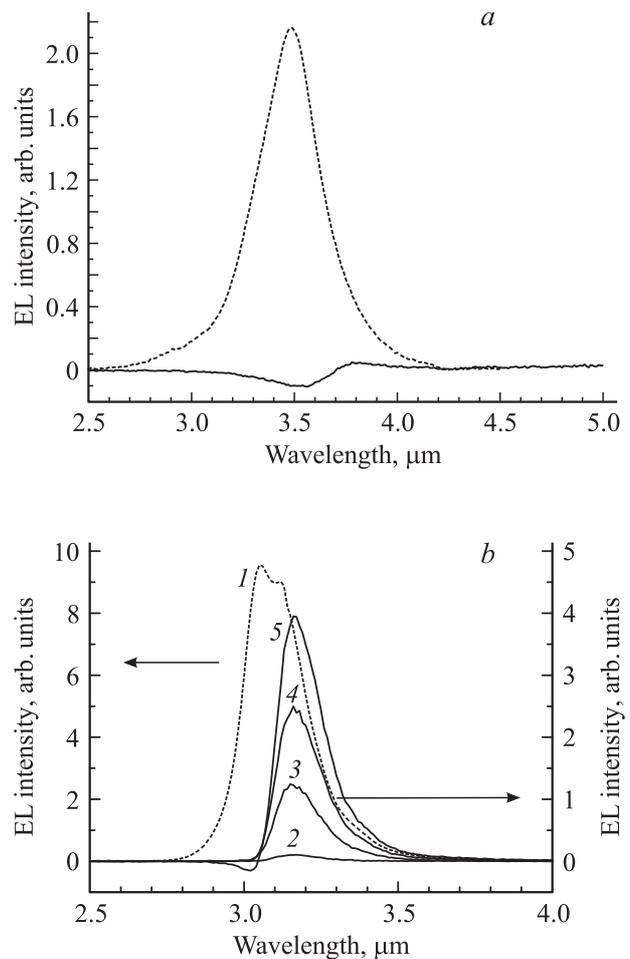


Рис. 4. Спектры электролюминесценции (EL) для гетероструктуры p -InAs/QDs-InSb/ n -InAs при $T = 300$ (a) и 77 К (b) при приложении прямого (пунктирная линия) и обратного (сплошная линия) внешнего смещения. Ток накачки: a — 50 мА; b — 25 (1, 2), 50 (3), 75 (4), 100 мА (5).

спектров, наблюдавшихся для структуры n -InAs/ p -InAs (пунктирные кривые на рис. 4). При комнатной температуре спектры ЭЛ также содержали одиночную симметричную полосу излучения с максимумом интенсивности в районе $\lambda = 3.5$ мкм (0.355 эВ) и полушириной 360 нм (37 мэВ), а при $T = 77$ К также присутствовали две близко расположенные полосы излучения с максимумами интенсивности при $\lambda_1 = 3.06$ мкм (0.406 эВ) и $\lambda_2 = 3.13$ мкм (0.396 эВ), что соответствовало объемным излучательным переходам в подложке InAs.

При приложении к данной гетероструктуре обратного смещения в спектрах электролюминесценции наблюдались качественные изменения (сплошные кривые на рис. 4). Значительные различия проявляются уже при комнатной температуре, а именно спектр ЭЛ при обратном смещении становится двухполярным (см. рис. 4, a). Помимо полосы отрицательной люминесценции в окрестности $\lambda = 3.5$ мкм (0.355 эВ) в спектре одновременно присутствует менее интенсивная поло-

жительная полоса излучения с максимумом в районе $\lambda_{\text{int}} = 3.8$ мкм (0.327 эВ). Ранее похожие спектры были представлены в работе [10]: для ступенчатого гетероперехода II типа InAs/AlSb в интервале 3.9–4.3 мкм наблюдалась достаточно интенсивная положительная полоса ЭЛ при $T = 300$ К. В указанной работе факт существования в окрестности 4.1 мкм люминесценции, которая остается положительной независимо от приложенного смещения, объяснялся наличием поверхностных акцепторных состояний на гетерогранице подложка/эпитаксиальный слой, обусловленных диффузией атомов Mn к поверхности подложки *p*-InAs.

При температуре $T = 77$ К спектры ЭЛ, возбуждаемой при обратном смещении, имели более сложную зависимость от тока накачки, чем при комнатной температуре (рис. 4, *b*). При токах накачки менее 75 мА спектр ЭЛ представлял собой одиночную полосу излучения „положительной“ полярности асимметричной формы с резким коротковолновым краем и пологим длинноволновым склоном. Максимум данной полосы находился вблизи длины волны $\lambda_3 = 3.17$ мкм (0.391 эВ), а полуширина составляла приблизительно 170 нм (20 мэВ). В отличие от структуры *n*-InAs/*p*-InAs (образец 1), для которой при температуре жидкого азота при подаче обратного смещения наблюдалась одиночная полоса отрицательной люминесценции, в гетероструктуре *n*-InAs/QDs-InSb/*p*-InAs (образец 2) спектр регистрируемого излучения был положительным. Следует отметить, что при этом интенсивность ЭЛ оказалась примерно на порядок выше, чем интенсивность отрицательной люминесценции для структуры *n*-InAs/*p*-InAs при аналогичных условиях накачки. При токах накачки выше 75 мА в спектре ЭЛ при обратных смещениях возникала дополнительная слабая полоса люминесценции отрицательной полярности с максимумом интенсивности в районе $\lambda_1 = 3.05$ мкм (0.407 эВ). Очевидно, она обусловлена экстракцией носителей из области, примыкающей к обратному смещенному *p*-*n*-переходу в объеме InAs.

При обратном смещении зависимость интенсивности положительной полосы люминесценции (λ_3) от тока накачки сохраняла линейный характер вплоть до 75 мА (рис. 5). При более высоких значениях тока происходил сверхлинейный рост интенсивности ЭЛ, тогда как при прямом смещении в области токов выше 50 мА наблюдался сублинейный характер зависимости интенсивности ЭЛ от тока с выходом на насыщение при токах накачки > 150 мА. Отметим также пороговый характер зависимости интенсивности ЭЛ от тока для случая обратного смещения наблюдался сублинейный (пороговый ток $I_{\text{th}} = 25$ мА), что может быть связано с заполнением дырочных состояний на интерфейсе, обусловленных квантовыми точками InSb в матрице InAs (см. рис. 2).

Мы полагаем, что при больших значениях внешнего обратного смещения происходит перераспределение падающего напряжения в гетероструктуре и часть

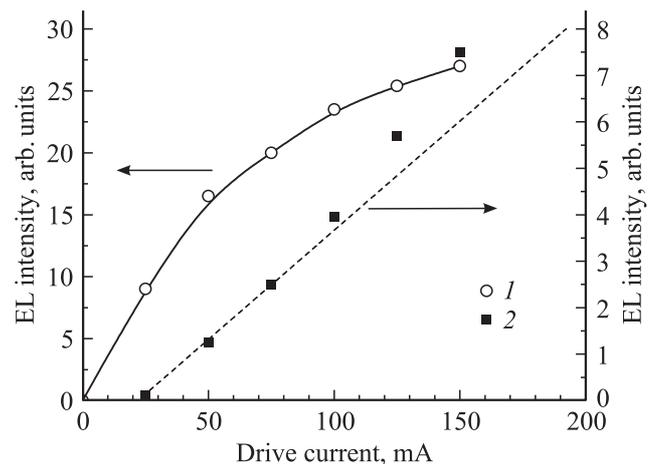


Рис. 5. Зависимости интенсивности электролюминесценции (EL) от тока через образец, полученные для гетероструктуры *p*-InAs/QDs-InSb/*n*-InAs при приложении прямого (1) и обратного (2) смещения и $T = 77$ К. Штриховая прямая — линейная аппроксимация зависимости интенсивности интерфейсной люминесценции от тока в области малых токов.

его увеличивает область обратного смещенного перехода *p*-InAs/*n*-InAs. Остальная часть напряжения падает на интерфейсе InSb/InAs, вблизи которого расположены поверхностные локализованные дырочные уровни, обусловленные наличием слоя квантовых точек InSb. Это выражается в появлении особенностей на вольт-амперных характеристиках образцов (см. рис. 1). Следует подчеркнуть, что данная часть внешнего напряжения является прямым смещением для электронов и дырок, локализованных в потенциальных ямах вблизи разьединенного гетероперехода II типа InSb/InAs. Поэтому в случае низких температур (77 К) приложенного к структуре *n*-InAs/QDs-InSb/*p*-InAs обратного смещения может быть недостаточно для получения интенсивной отрицательной люминесценции. Однако этого достаточно для появления дополнительного канала инжекции носителей на локализованные состояния на интерфейсе. В результате вклад интерфейсных локализованных уровней в излучательную рекомбинацию может быть сопоставим, а иногда может преобладать над объемной составляющей.

5. Заключение

На примере гетероструктуры, содержащей одиночный слой квантовых точек InSb, помещенный в узкозонную матрицу InAs, была показана определяющая роль объекта пониженной размерности в формировании электрических и электролюминесцентных свойств гетероструктуры. Показано, что существенное изменение физических характеристик наблюдается как при температуре жидкого азота, так и при комнатной температуре. Это связано с особенностями разьединенного гетероперехода II типа, а также с сильным термическим разогре-

вом электронов, локализованных вблизи гетерограницы II типа InSb/InAs, при повышении температуры. При этом такая степень локализации носителей заряда на данной гетерогранице является достаточной для обнаружения интерфейсной люминесценции, вызванной излучательными переходами на состояния, обусловленные наличием одиночного слоя квантовых точек InSb в матрице InAs.

Работа частично поддержана грантом Президента для научных школ (№ НШ-3008.2012.2), а также в рамках проекта РФФИ (№ 11-02-00234а) и программы Отделения физических наук РАН.

Список литературы

- [1] *Selected Topics in Electronics and Systems*, v. 25: *Quantum Dots*, ed. by E. Borovitskaya, M.S. Shur (Singapore, World Scientific, 2002).
- [2] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (Chichester, John Wiley & Sons, 1999).
- [3] O.G. Lyublinskaya, V.A. Solov'ev, A.N. Semenov, B.Ya. Meltser, Ya.V. Terent'ev, L.A. Prokopova, A.A. Toropov, A.A. Sitnikova, O.V. Rykhova, S.V. Ivanov, K. Thonke, R. Sauer. *J. Appl. Phys.*, **99**, 093 517 (2006).
- [4] A. Karim, O. Gustafsson, L. Hussain, Q. Wang, B. Noharet, M. Hammar, J. Anderson, J. Song. *SPIE Proc.*, **8439**, 84391J (2012).
- [5] К.Д. Моисеев, Я.А. Пархоменко, Е.В. Гушина, А.В. Анкудинов, М.П. Михайлова, Н.А. Берг, Ю.П. Яковлев. *ФТП*, **43** (8), 1142 (2009).
- [6] N.A. Bert, V.N. Nevedomsky, P.A. Dement'ev, K.D. Moiseev. *Appl. Surf. Sci.*, **267**, 77 (2013).
- [7] K.D. Moiseev, Ya.A. Parkhomenko, V.N. Nevedomsky. *Thin Sol. Films*, в печати (2013).
<http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2013.02.118>
- [8] М.М. Григорьев, П.А. Алексеев, Э.В. Иванов, К.Д. Моисеев. *ФТП*, **47** (1), 30 (2013).
- [9] Y. Lacroix, C.A. Tran, S.P. Watkins, M.L.W. Thewalt. *J. Appl. Phys.*, **80**, 6416 (1996).
- [10] М.П. Михайлова, Э.В. Иванов, К.Д. Моисеев, Ю.П. Яковлев, E. Hulicius, A. Hospodkova, J. Pangrac, T. Šimeček. *ФТП*, **44** (1), 69 (2010).

Редактор Л.В. Шаронова

Peculiarities of electroluminescence in heterostructures with InSb quantum dots buried in InAs matrix

Ya.A. Parkhomenko, E.V. Ivanov, K.D. Moiseev

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

Abstract Electrical and electroluminescent properties of a single narrow-gap heterostructure based on InAs $p-n$ junction and containing a single layer of InSb quantum dots buried into the InAs matrix were studied. Presence of the quantum dots determined a shape of the backward branch in current-voltage characteristics of the heterostructure. At room temperature under the reverse bias applied electroluminescence spectra of the heterostructure with the quantum dots, in addition to the negative luminescence emission band with the maximum wavelength $\lambda = 3.5 \mu\text{m}$, contained the emission band of the positive luminescence at $3.8 \mu\text{m}$ which is induced by radiative transitions on localized states of the quantum dots at the type II InSb/InAs heterointerface.