

К. т. н. Е. В. АНДРОНОВА, к. т. н. Е. А. БАГАНОВ,
к. т. н. В. В. КУРАК

УДК: 621.362:621.383

Украина, Херсонский национальный технический университет
E-mail: vk_74@mail.ru

Дата поступления в редакцию
30.05 2011 г.

ИССЛЕДОВАНИЕ СПЕКТРОВ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ НИЗКОРАЗМЕРНЫХ СТРУКТУР InSb, СФОРМИРОВАННЫХ В МАТРИЦЕ GaSb

Исследованы эпитаксиальные структуры, состоящие из матрицы GaSb, в объеме которой методом импульсного охлаждения насыщенного раствора-расплава сформированы низкоразмерные структуры из InSb.

В настоящее время одним из направлений развития электроники является создание нового класса полупроводниковых материалов и приборов на основе низкоразмерных структур (НС), важнейшие характеристики которых, в том числе и оптические, определяются эффектами размерного квантования.

При формировании НС методами жидкофазной эпитаксии (ЖФЭ) требуется сравнительно низкая температура насыщения жидкой фазы для обеспечения незначительной равновесной концентрации растворенного вещества. Из-за повышенной вязкости раствора-расплава при низкой температуре его, как правило, не удается полностью удалить с поверхности структуры после завершения процесса выращивания. То есть методами ЖФЭ получить НС без покрывающего эпитаксиального слоя весьма проблематично. Однако это легко реализуется при использовании традиционных технологий — молекулярно-лучевой эпитаксии или осаждения из паров металлоорганических соединений.

Наличие покрывающего слоя на поверхности низкоразмерных структур, полученных ЖФЭ, затрудняет применение методов непосредственного наблюдения и исследования параметров НС, таких как, например, туннельная микроскопия. В то же время, влияние характерных размеров НС на энергетическое положение, полуширину и ряд других параметров полос фотолюминесценции (ФЛ) позволяет использовать ФЛ в качестве косвенного метода неразрушающего контроля таких структур [1].

Целью настоящей работы являлась оценка параметров НС InSb, сформированных методом импульсного охлаждения насыщенного раствора-расплава в матрице GaSb, на основе анализа спектров ФЛ.

Методика эксперимента

Выращивание НС InSb в матрице GaSb осуществляли на подложках антимонида галлия с ориентацией (111) [1, 2]. Температура насыщения раствора сурьмы в расплаве галлия составляла 300°C. Структуру InSb с эффективной толщиной около 5 нм формиро-

вали на буферном эпитаксиальном слое намеренно не легированного *p*-GaSb. После этого осуществляли кристаллизацию тонкого (около 0,2 мкм) покрывающего слоя нелегированного антимонида галлия, выполняющего роль широкозонного оптического окна для вывода люминесцентного излучения.

ФЛ образцов возбуждалась лучом гелий-неонового лазера ЛГ-126 ($\lambda_{\text{изл}} = 1,15$ мкм), прошедшим через механический модулятор с частотой модуляции порядка 2 кГц. Сигнал ФЛ диспергировался односторонним монохроматором МДР-3 с дифракционной решеткой разрешением 300 штрих/мм и регистрировался в режиме синхронного детектирования охлаждаемым фотоспротивлением PbS. Ширина входной и выходной щели монохроматора устанавливалась равной 0,1 мм. Измерение спектров ФЛ проводили в волновом диапазоне 1,3—2,8 мкм при значениях температуры 77, 100, 120 и 300 К, а также в диапазоне интенсивности возбуждающего излучения от 6 до 12 мВт. Мощность возбуждающего излучения определялась измерителем мощности лазерного излучения ИМО-3. Диаметр светового зонда составлял до 500 мкм.

Результаты и обсуждение

Спектры ФЛ полученных структур представлены на **рис. 1**. Энергетическое положение наблюдаемых полос ФЛ в общем случае можно объяснить реализацией излучательных переходов в объемном антимониде галлия, в твердых растворах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$, а также в низкоразмерных структурах InSb. В связи с этим для идентификации полос ФЛ анализировали значения полуширины полос 1—5, их поведение при изменении температуры и интенсивности возбуждающего излучения. Измерение спектров ФЛ полученных структур при различных значениях температуры и интенсивности возбуждающего излучения позволило выделить группы полос ФЛ со сходным характером зависимости интенсивности (**рис. 2**).

В [3] показано, что твердые растворы $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ имеют при 77 К полуширину полос излучения 50—120 мэВ. Поскольку полуширина полос 1, 2, 3, 4 и 5 полученных структур составляет 25, 40, 20, 20 и 9 мэВ, соответственно, понятно, что полосы не связаны с излучательной рекомбинацией в твердом растворе $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$. Кроме того, интенсивность ФЛ твердых растворов $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ на два порядка ниже,

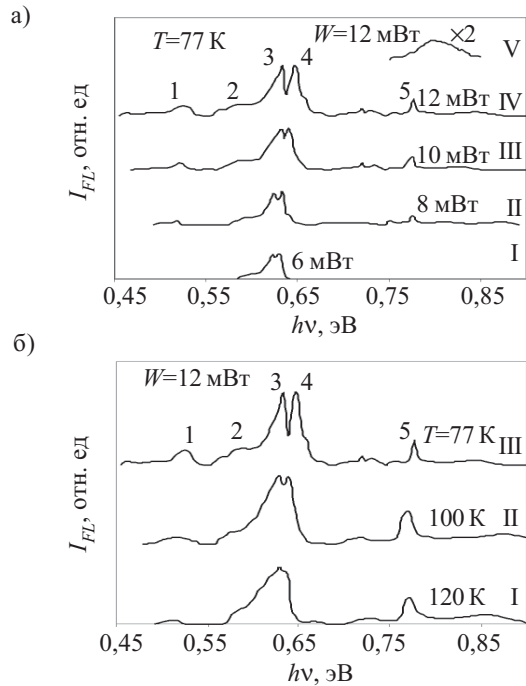


Рис. 1. Спектры ФЛ структур $p\text{-GaSb}/i\text{-InSb}/p\text{-GaSb}$ (кривые I—IV) и $p\text{-GaSb}$ (кривая V), полученные при различных значениях мощности возбуждающего излучения (а) и при различной температуре измерения (б)

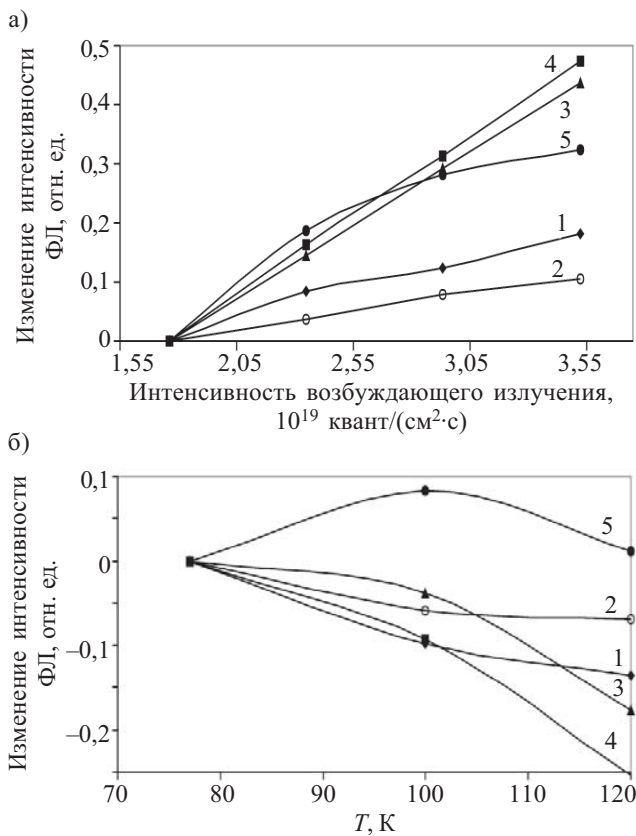


Рис. 2. Зависимости изменения интенсивности ФЛ полос 1—5, представленных на рис. 1, от интенсивности возбуждающего излучения (а) и от температуры (б)

чем GaSb, что объясняется замещением атомов галлия атомами индия в узлах кристаллической решетки и, таким образом, уменьшением количества природных акцепторов $V_{\text{Ga}}\text{GaSb}$, являющихся основными центрами излучательной рекомбинации в GaSb при 77 К [3 — 5]. Поэтому полосы 1—5 (см. рис. 1), у которых интенсивность ФЛ сравнима или в несколько раз больше, чем у антимонида галлия, также нельзя объяснить излучательными переходами в твердом растворе $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$.

Излучательные переходы в антимониде галлия могут происходить через центры рекомбинации с различной энергией активации:

- 0,011—0,017 эВ, соответствующие неконтролируемому «фоновым» примесям Si, Ge и Mn;
- 0,03—0,035 эВ и 0,07—0,09 эВ, соответствующие первому и второму зарядовому состоянию природных структурных дефектов $V_{\text{Ga}}\text{GaSb}$;
- 0,1 эВ, соответствующие дефектам $V_{\text{Ga}}\text{Te}$;
- 0,06 эВ, соответствующие дефектам $V_{\text{Ga}}\text{GaSbTeSb}$ [4—8].

Из наблюдаемых полос ФЛ полученных структур только полоса 5 по энергетическому положению может, в принципе, соответствовать излучательным переходам в антимониде галлия с уровня первого зарядового состояния структурных дефектов $V_{\text{Ga}}\text{GaSb}$. Однако полуширина полосы 5, равная 9 мэВ, не соответствует полуширине $3kT$, указанной для таких переходов в [6, 9] (здесь k — постоянная Больцмана, T — температура). Поэтому, учитывая, что при используемых технологических режимах происходит кристаллизация InSb с толщиной эпитаксиальных слоев несколько нанометров, можно сделать вывод, что полосы ФЛ 1—5 связаны с наличием НС InSb в матрице GaSb.

Согласно [10, 11], в системах с рассогласованием по периоду решетки рост сплошных упругонапряженных эпитаксиальных слоев возможен лишь до некоторой критической толщины, которая в случае кристаллизации InSb на подложке GaSb составляет порядка 3 нм. При толщине слоев больше критической в условиях наличия растворителя энергетически выгодным является островковый рост [12]. Поскольку на плоскости (111) тангенциальный рост преобладает над нормальным, при превышении критической толщины наиболее вероятным будет формирование эпитаксиального слоя InSb в виде плоских дисков.

В связи с этим попытаемся объяснить природу наблюдаемых на спектрах ФЛ полос, рассматривая квантоворазмерные структуры InSb как плоские диски радиусом R_d и высотой H_d (где $R_d > H_d$), заключенные в матрицу GaSb.

Трехмерную волновую функцию электрона, находящегося в потенциальной яме, образованной такой структурой InSb, можно с учетом радиальной симметрии представить в виде [13]

$$\psi_e(x, y, z) = \psi_1(z) \cdot \psi_2(r), \quad (1)$$

где $\psi_1(z)$ и $\psi_2(r)$ — соответственно нормальная (в направлении высоты островка H_d) и латеральная (в направлении радиуса островка R_d) составляющие вол-

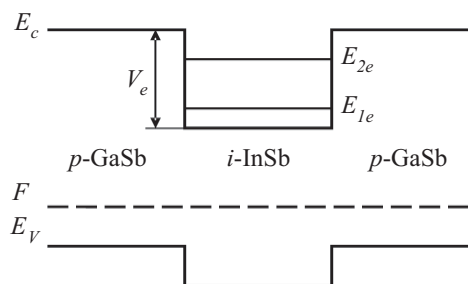


Рис. 3. Зонные диаграммы гетеросистем с НС InSb, сформированными в матрице *p*-GaSb

новой функции. Волновая функция дырок не рассматривалась в связи с отсутствием для них потенциальной ямы в структуре *p*-GaSb/*i*-InSb/*p*-GaSb (рис. 3).

Тогда уравнение Шредингера согласно [13] имеет вид

$$\left. \begin{aligned} \left[\frac{d^2}{dz^2} + \frac{2m_{e1}^*}{\hbar^2} (E_N - U^{(1)}(z)) \right] \psi_1(z) &= 0, \\ \left[\frac{d^2}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d}{dr} + \frac{2m_{e2}^*}{\hbar^2} (E_L - U^{(2)}(r)) \right] \psi_2(r) &= 0, \\ U^{(1)}(z) &= V_e H(|z| - H_d/2), \\ U^{(2)}(r) &= [V_e - E_N] H(r - R_d), \\ m_{e1}^* &= m_{1e}^* + (m_{2e}^* - m_{1e}^*) H(|z| - H_d/2), \\ m_{e2}^* &= m_{1e}^* + (m_{2e}^* - m_{1e}^*) H(r - R_d), \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

где $H(x)$ — функция Хевисайда;

V_e — величина потенциального барьера гетероперехода InSb–GaSb.

Для нормальной составляющей волновой функции решение уравнения Шредингера (2) преобразуется в трансцендентное уравнение для энергии квантования E_N

$$k_{11} \operatorname{tg} \left(k_{11} H_d - \frac{M\pi}{2} \right) = k_{21}, \quad (3)$$

$$\text{где } k_{11} = \sqrt{\frac{2m_{1e}^* E_N}{\hbar^2}}, \quad k_{21} = \sqrt{\frac{2m_{2e}^* (U^{(1)} - E_N)}{\hbar^2}}, \quad M = 0, 1, 2, \dots$$

Для латеральной составляющей энергия квантования E_L находится из уравнения

$$\begin{aligned} k_{22} \cdot J_0(k_{12} R_d) K_1(k_{22} R_d) &= \\ &= k_{12} \cdot J_1(k_{12} R_d) K_0(k_{22} R_d), \end{aligned} \quad (4)$$

$$\text{где } k_{12} = \sqrt{\frac{2m_{1e}^* E_L}{\hbar^2}}, \quad k_{22} = \sqrt{\frac{2m_{2e}^* (U^{(2)} - E_L)}{\hbar^2}};$$

J_0, J_1 — функции Бесселя первого рода;

K_0, K_1 — модифицированные функции Ганкеля.

Решения уравнений (3) и (4) представляют собой разрешенные энергетические уровни E_N , описываемые нормальной составляющей волновой функции

ψ_1 (рис. 4, а), и уровни E_L , описываемые латеральной составляющей волновой функции ψ_2 (рис. 4, б), соответственно. Энергия уровней E_N отсчитывается от дна зоны проводимости антимида индия, а энергия уровней E_L — от энергии квантования E_N .

Предположим, что полоса ФЛ *l* связана с рекомбинацией в структурах, образовавшихся в результате латеральной коалесценции дискообразных НС. Вклад латерального квантования в таких структурах мал, и рекомбинация происходит с энергетического уровня E_N . Поскольку в антимида галлия одним из каналов излучательной рекомбинации является переход со дна зоны проводимости на уровни мелких «фоновых» акцепторов с энергией активации 9 мэВ (Ge, Si) [6, 9], полоса *l* связана с излучательными переходами электронов с энергетического уровня E_N на эти уровни. При увеличении мощности возбуждающего излучения также происходит рекомбинация носителей с квантового уровня E_N на уровни, расположенные вблизи потолка валентной зоны GaSb (см. рис. 3), что выражается в уширении полосы ФЛ *l* в коротковолновую область спектра. Исходя из решения уравнения Шредингера для нормальной составляющей волновой функции, находим, что полоса *l* соответствует высоте квантоворазмерных структур InSb $H_d \approx 5$ нм.

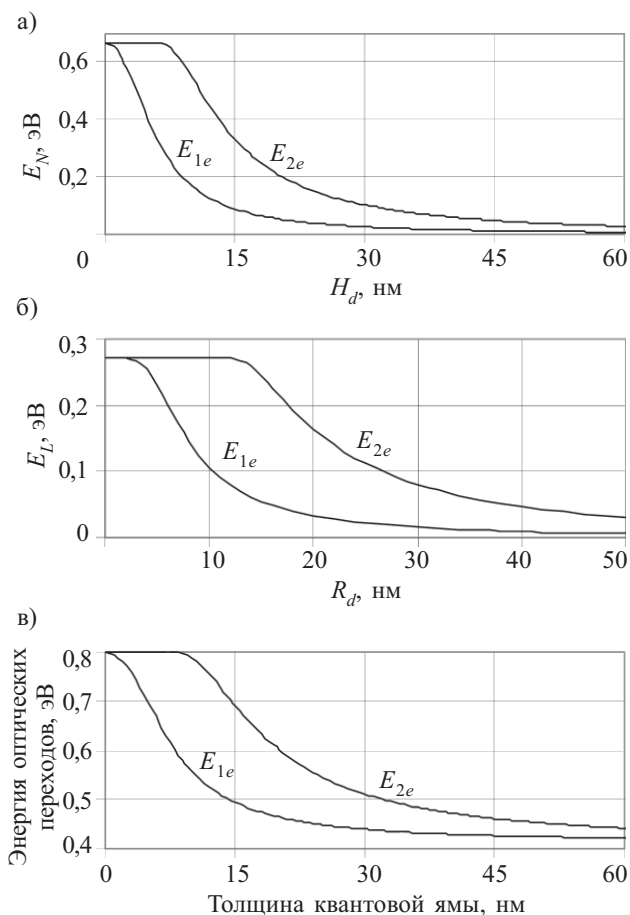


Рис. 4. Энергия квантования (а, б) и энергия оптических переходов (в) для нормальной (а) и латеральной (б) составляющих волновой функции, а также для волновой функции одномерной квантовой ямы (в)

Как видно из рис. 2, полосы ФЛ 3 и 4 имеют сходный характер зависимости интенсивности ФЛ как от интенсивности возбуждающего излучения, так и от температуры, т. е. излучательные переходы происходят с участием общего энергетического уровня. Предположительно полосы 3 и 4 соответствуют излучательным переходам электронов с энергетического уровня E_L в некоалесцировавших квантоворазмерных структурах на уровень мелких «фоновых» акцепторов (полоса 3) и в валентную зону GaSb (полоса 4). Из сопоставления энергетического положения полос 3, 4 и решения уравнения (4) находим значение R_d , равное 10 нм (см. рис. 4, б).

Наличие полосы ФЛ 2 с полушириной 40 мЭВ можно объяснить излучательными переходами в экситонах с энергией связи 17 мЭВ, которые образованы электронами, находящимися в потенциальной яме InSb, и дырками в валентной зоне GaSb.

Полоса ФЛ 5 соответствует рекомбинации носителей заряда с уровня квантования электрона в квантовой яме, которую образует смачивающий слой InSb [14], на уровень потолка валентной зоны антимонида галлия. Расчет энергии уровней квантования в смачивающем слое проводился аналогично расчету для нормальной составляющей волновой функции ψ_1 , но с учетом механических напряжений, вызванных несоответствием периодов решетки слоя и подложки. Сравнение энергетического положения полосы 5 (см. рис. 1) и результатов расчета энергии квантования (см. рис. 4, в) показывает, что толщина смачивающего слоя составляет порядка 2 нм. При повышении температуры наблюдается несимметричное уширение полосы 5 в коротковолновую область. Аналогичное изменение формы полосы ФЛ смачивающего слоя описано в [15, 16].

Выводы

Таким образом, анализ спектра ФЛ эпитаксиальных структур показывает, что наблюдаемые полосы ФЛ связаны с излучательными переходами, реализующимися при участии квантовых состояний наноразмерных структур InSb. Удовлетворительное совпадение энергетического положения полос ФЛ с результатами расчета энергии возможных оптических переходов в НС дискообразной формы дает основание полагать, что НС InSb в матрице GaSb представляют собой плоские диски радиусом около 10 нм и высотой около 5 нм, формирующиеся на смачивающем слое антимонида индия толщиной примерно 2 нм.

Используемый в работе новый метод в сочетании с определенными технологическими условиями позволил получить вместо «классической» пленки, которая представляет собой твердый раствор двух соединений, островковую структуру из наноразмерных включений на поверхности подложки.

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

1. Марончук И. Е., Марончук А. И., Шорохов А. В. Наноразмерные слои GaAs, полученные при импульсном охлаждении насыщенного раствора-расплава // Письма в ЖТФ. — 1997. — Т. 23, вып. 17. — С. 82—86. [Maronchuk I. E., Maronchuk A. I., Shorokhov A. V. // Pis'ma v ZhTF. Vol. 23. N 17. P. 82]

2. Maronchuk I. Ye., Kurak V. V., Andronova E. V., Baganov Ye. A. Obtaining GaSb/InAs heterostructures by liquid phase epitaxy // Semiconductor Science and Technology — 2004. — Vol. 19. — P. 747—751.

3. Гайсинская Л. Б., Миргаловская М. С., Стрельникова И. А., Юнович А. Э. Излучательная рекомбинация в гетеропереходах GaSb-Ga_{1-x}In_xSb // Физика и техника полупроводников. — 1975. — Т. 9, вып. 3. — С. 474—477. [Gaisinskaya L. B., Mirgalovskaya M. S., Strel'nikova I. A., Yunovich A. E. // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. 1975. Vol. 9. N. 3. P. 474]

4. Моисеев К. Д., Торопов А. А., Терентьев Я. В. и др. Фотолуминесценция твердых растворов Ga_{1-x}In_xAs_ySb_{1-y} (0,08 < X < 0,22), изопериодных с InAs // Физика и техника полупроводников. — 2000. — Т. 34, вып. 12. — С. 1432—1437. [Moiseev K. D., Toropov A. A., Terent'ev Ya. V. i dr. // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. Vol. 34. N. 12. P. 1432]

5. Бирюлин Ю. Ф., Гермогенов В. П., Отман Я. И. и др. Влияние изовалентного легирования индием на «природные» акцепторы в антимониде галлия // Физика и техника полупроводников. — 1987. — Т. 21, вып. 6. — С. 1118—1124. [Biryulin Yu. F., Germogenov V. P., Otman Ya. I. i dr. // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. 1987. Vol. 21. N. 6. P. 118]

6. Gladkov P., Monova E., Weber J. Photoluminescence characterization of Te-doped GaSb layers grown by liquid-phase epitaxy from Bi melts // Semicond. Sci. Technol. — 1997. — Vol. 12. — P. 1409—1415.

7. Аверкиев Н. С., Филипченко А. С., Чайкина Е. И. Природа линий излучения нелегированного антимонида галлия // Физика и техника полупроводников. — 1982. — Т. 16, вып. 7. — С. 1273—1275. [Averkiev N. S., Filipchenko A. S., Chaikina E. I. // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. 1982. Vol. 16. N 7. P. 1273]

8. Виноградова Г. И., Гоголадзе Д. Т., Лошинский А. М. и др. Влияние легирования расплава-раствора гадолинием и алюминием на электрические и люминесцентные свойства эпитаксиальных слоев GaSb // Физика и техника полупроводников. — 1989. — Т. 23, вып. 9. — С. 1651—1653. [Vinogradova G. I., Gogaladze D. T., Loshinskii A. M. i dr. // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. 1989. Vol. 23. N. 9. P. 1651]

9. Зимогорова Н. С., Крячко И. В., Маткова И. И. и др. Некоторые особенности электролюминесценции эпитаксиальных гетероструктур в системе Al-Ga-Sb // Физика и техника полупроводников. — 1983. — Т. 17, вып. 3. — С. 517—520. [Zimogorova N. S., Kryachko I. V., Matkova I. I. i dr. // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. 1983. Vol. 17. N. 3. P. 517]

10. Леденцов Н. Н., Устинов В. М., Щукин В. А. и др. Гетероструктуры с квантовыми точками: получение, свойства, лазеры. Обзор // Физика и техника полупроводников. — 1998. — Т. 32, № 4. — С. 385—410. [Ledentsov N. N., Ustinov V. M., Shchukin V. A. i dr. // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. 1998. Vol. 32. N. 4. P. 385]

11. Shchukin V. A., Ledentsov N. N., Kop'ev P. S., Bimberg D. Spontaneous ordering of arrays of coherent strained islands // Phys. Rev. Letters. — 1995. — Vol. 75, N 16. — P. 2968—2971.

12. Okajima K., Tekeda K., Oyama N. et al. Phenomenological theory of semiconductor epitaxial growth with misfit-dislocations // Jpn. J. Appl. Phys. — 2000. — Vol. 39, N 9. — P. L917—L920.

13. Зегря Г. Г., Константинов О. В., Матвеевцев А. В. Структура энергетических квантовых уровней в квантовой точке, имеющей форму сплюснутого тела вращения // Физика и техника полупроводников. — 2003. — Т. 37, вып. 3. — С. 334—338. [Zegrya G. G., Konstantinov O. V., Matveentsev A. V. // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. 2003. Vol. 37. N 3. P. 334]

14. Bennet B. R., Shanabrook B. V., Thibado P. M. et al. Stranski-Krastanov growth of InSb, GaSb, and AlSb on GaAs, structure of the wetting layer // Journal of Crystal Growth. — 1997. — Vol. 175/176. — P. 888—893.

15. Хабаров Ю. В. Исследования физических явлений в полупроводниковых наноструктурах с использованием планарно-неоднородных слоев. Фотолуминесценция // Физика и техника полупроводников. — 2003. — Т. 37, вып. 3. — С. 339—345. [Khabarov Yu. V. // Fizika i tekhnika poluprovodnikov. 2003. Vol. 37. N 3. P. 339]

16. Kamath K., Chervela N., Linder K. K. et al. Photoluminescence and time-resolved photoluminescence characteristics of In_xGa_(1-x)As/GaAs self-organized single- and multiple-layer quantum dot laser structures // Appl. Phys. Lett. — 1997. — Vol. 71, N 7. — P. 927—929.