

ВЛИЯНИЕ ГИДРОГЕНИЗАЦИИ НА ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЮ СТРУКТУР GaAs/AlGaAs С КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ

Ю. А. Бумай, Б. С. Явич, М. А. Сеницын,
А. Г. Ульяшин, Н. В. Шлопак, В. Ф. Воронин

Белорусская государственная политехническая академия, 220027, Минск, Беларусь
(Получена 9 августа 1993 г. Принята к печати 30 августа 1993 г.)

Проведены исследования влияния обработки в водородной плазме тлеющего разряда на фотолюминесценцию при 78 К выращенных методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений слоев нелегированного $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$, легированного кремнием $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$ ($n = 10^{17} \text{ см}^{-3}$), нелегированного GaAs, нелегированных многослойных структур с набором квантовых ям GaAs/ $\text{Al}_{0.23}\text{Ga}_{0.77}\text{As}$ шириной 2, 3.6, 5.4 и 23 нм и нелегированных двойных гетероструктур GaAs/AlGaAs с раздельным электрическим и оптическим ограничением при активной области 20 нм. В результате гидрогенизации наблюдалось уменьшение интенсивности ФЛ нелегированных слоев $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ и GaAs и ее усиление в случае слоев легированного кремнием $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$. Обнаружено сильное увеличение интенсивности фотолюминесценции квантовых ям GaAs/AlGaAs после обработки в водородной плазме. Наблюдаемый эффект наиболее сильно проявляется для узких квантовых ям и связан с пассивацией водородом безызлучательных дефектов на гетерограницах. В случае двойной гетероструктуры с раздельным ограничением, содержащей переходные слои с градиентом состава в области гетерограниц, после гидрогенизации наблюдается сильное сужение спектра фотолюминесценции активной области GaAs.

Введение атомарного водорода приводит к значительному изменению электрических и оптических свойств полупроводников благодаря способности водорода пассивировать имеющиеся в материалах примеси и дефекты [1]. Значительное число исследований влияния гидрогенизации на слои AlGaAs и многослойные структуры GaAs/AlGaAs, полученные в основном методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), выполнено с использованием низкотемпературной фотолюминесценции (ФЛ) [2-6]. В работе [2] исследовалось влияние внедренного водорода на ФЛ нелегированных эпитаксиальных слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x = 0 \div 0.32$) и структур GaAs/AlGaAs с квантовыми ямами (КЯ). После гидрогенизации наблюдалось сильное увеличение сигнала ФЛ как отдельных слоев AlGaAs, так и структур с КЯ, связанное с увеличением времени жизни носителя заряда в AlGaAs в результате пассивации водородом центров безызлучательной рекомбинации (DX-центров). Причем влияние гидрогенизации на ФЛ слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ усиливалось с повышением содержания Al в твердом растворе. Например, в $\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$ наблюдалось 35-кратное увеличение ФЛ в результате гидрогенизации, в то время как в GaAs ($x = 0$) интенсивность ФЛ повысилась всего лишь в 2 раза. В отличие от результатов, изложенных в [2], в работе [3] не обнаружено существенного влияния гидрогенизации на интенсивность ФЛ нелегированного $\text{Al}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{As}$, выращенного методом МЛЭ. В то же время для GaAs наблюдалось как увеличение интенсивности ФЛ при малых дозах внедренного из плазмы водорода ($\sim 10^{17} \text{ см}^{-2}$), так и ее уменьшение при больших дозах ($\gg 10^{17} \text{ см}^{-2}$). Увеличение интенсивности ФЛ объяснялось пассивацией глубоких центров в GaAs, а уменьшение

связывалось с образованием во время гидрогенизации новых центров безызлучательной рекомбинации. Сильное увеличение интенсивности интегральной ФЛ прямозонного $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{As}$ и полосы ФЛ, обусловленной экситонной рекомбинацией в непрямозонном $\text{Al}_{0.43}\text{Ga}_{0.57}\text{As}$ в результате гидрогенизации, наблюдалось в [4]. Авторы [4] связывают этот эффект с пассивацией водородом DX -центров в материале. В работе [5] в результате обработки в водородной плазме в легированном кремнием $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ ($n = 10^{18} \text{ см}^{-3}$) наблюдалась преимущественная пассивация центров безызлучательной рекомбинации по сравнению с центрами излучательной рекомбинации, приводящая к возрастанию интенсивности ФЛ. В [6] исследовалась водородная пассивация глубоких рекомбинационных центров в p - n -переходах, содержащих шесть идентичных нелегированных КЯ $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$, выращенных методом газовой эпитаксии из металлоорганических соединений (МОС гидридной эпитаксии) на подложках n^+ - GaAs . В результате гидрогенизации исследуемые структуры проявляли различную степень увеличения квантового выхода ФЛ, хотя существенных отличий в форме как спектров ФЛ, так и спектров нестационарной емкостной спектроскопии глубоких уровней для данных структур не наблюдалось. На основании этого авторы [6] сделали вывод, что наблюдаемое увеличение интенсивности излучательной рекомбинации связано с пассивацией центров безызлучательной рекомбинации на границах гетеропереходов.

В настоящей работе представлены результаты исследования влияния обработки в водородной плазме на ФЛ гетероструктур с различными КЯ $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$ и отдельных компонент этих структур — слоев нелегированного AlGaAs и GaAs , полученных методом МОС гидридной эпитаксии.

1. Образцы и методика эксперимента

Для исследования использовались эпитаксиальные слои n -типа проводимости специально нелегированного $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ и легированного кремнием $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$ ($n \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$), нелегированного GaAs толщиной $2 \div 3$ мкм, нелегированные структуры $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$, содержащие четыре КЯ шириной $d = 23, 5.4, 3.6$ и 2.0 нм, разделенные между собой барьерами $\text{Al}_{0.23}\text{Ga}_{0.77}\text{As}$ толщиной 30 нм, а также двойные нелегированные гетероструктуры $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$ с отдельным электрическим и оптическим ограничением, содержащие активную область GaAs шириной 20 нм, прилегающие к ней волноводные слои $\text{Al}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}$ шириной по 0.3 мкм и широкозонные области $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ по 1 мкм. Все исследуемые образцы были получены методом МОС гидридной эпитаксии на подложках полуизолирующего GaAs . Гидрогенизация осуществлялась путем экспозиции образцов в течение 30 мин в водородной плазме тлеющего разряда на постоянном токе в установке для реактивного ионного травления. Образцы во время гидрогенизации помещались непосредственно на катод, подогреваемый до 200°C . Плотность мощности газового разряда в месте расположения образцов была однородной и не превышала 0.1 Вт/см^2 . Напряжение между электродами во время разряда составляло 300 В . Измерения ФЛ до и после гидрогенизации проводились при температуре 78 К в нескольких точках образца с использованием He-Ne -лазера непрерывного действия для возбуждения и фотоэлектронного умножителя для регистрации интенсивности I ФЛ. Плотность мощности возбуждающего излучения поддерживалась постоянной (30 Вт/см^2).

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведены спектры ФЛ эпитаксиальных слоев специально нелегированного $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ до и после гидрогенизации. В спектрах ФЛ наблю-

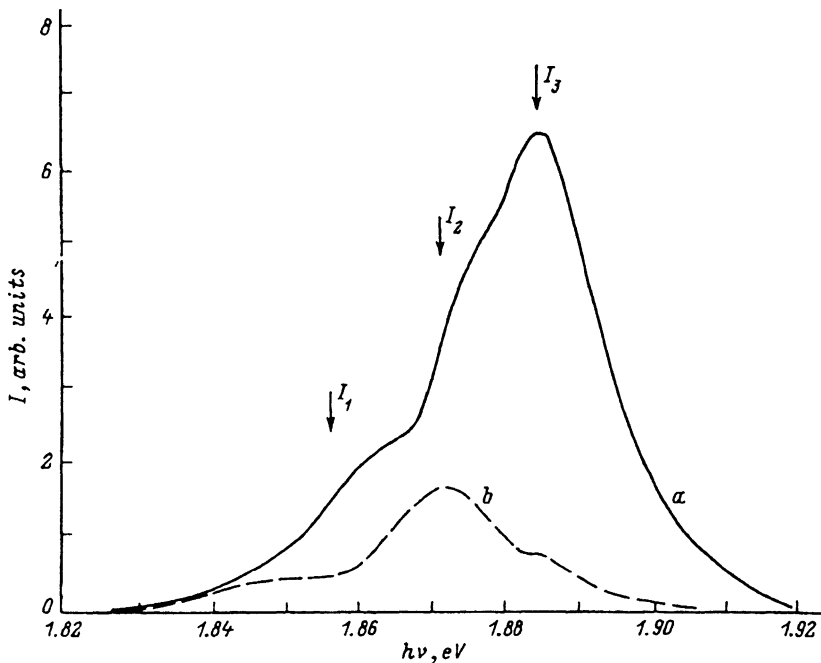


Рис. 1. Спектры ФЛ нелегированного эпитаксиального слоя $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ при 78 К до (а) и после (б) гидрогенизации.

дается полоса I_3 с максимумом на 1.885 эВ, обусловленная межзонной излучательной рекомбинацией, и примесные полосы I_1 (1.855 эВ) и I_2 (1.871 эВ), связанные с электронными переходами на мелкие акцепторные уровни. После гидрогенизации происходит сильное уменьшение интенсивности интегральной ФЛ (\approx в 7 раз) в основном за счет уменьшения интенсивности полосы межзонной излучательной рекомбинации I_3 . Такого рода изменения могут быть обусловлены эффектом пассивации водородом центров излучательной рекомбинации — преимущественно мелких остаточных доноров. Тот факт, что интенсивности полос ФЛ I_1 и I_2 , связанных с остаточными мелкими акцепторами, изменяются гораздо слабее, можно объяснить меньшей эффективностью пассивации атомарным водородом мелких акцепторов в материале n -типа проводимости в связи с их нейтральным зарядовым состоянием. Не исключено также, что снижение интегральной интенсивности ФЛ материала может быть частично связано и с уменьшением времени жизни неравновесных носителей в результате обработки в плазме.

Более сильное уменьшение квантового выхода ФЛ (30÷50 раз) наблюдалось в результате гидрогенизации нелегированного эпитаксиального GaAs. Уменьшение интенсивности ФЛ в данном случае может быть связано как с пассивацией атомарным водородом центров излучательной рекомбинации [7, 8], так и с образованием дополнительных центров безызлучательной рекомбинации, генерируемых водородом при используемом режиме обработки в водородной плазме [3, 9].

Для сравнения влияния гидрогенизации на структуры различного качества проведена обработка в плазме водорода эпитаксиальных слоев легированного кремнием $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$ ($n \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$), характеризующихся более низкой (примерно на 2 порядка) интенсивностью ФЛ по сравнению с рассмотренным выше нелегированным материалом $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$. Спектры ФЛ исследуемых

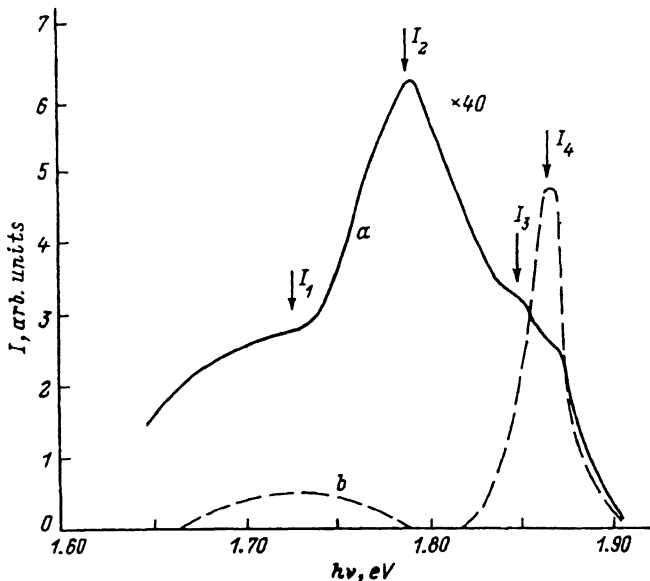


Рис. 2. Спектры ФЛ легированного кремнием эпитаксиального слоя $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$ ($n \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$) при 78 К до (а) и после (б) гидрогенизации.

слоев до и после гидрогенизации приведены на рис. 2. Спектр ФЛ исходного образца является довольно широким, и в нем можно выделить четыре полосы ФЛ, соответствующие межзонной (I_4 : 1.865 эВ) и примесной ($I_1 - I_3$: 1.730, 1.790 и 1.840 эВ) рекомбинации. Полосы примесной рекомбинации $I_1 - I_3$ обусловлены электронными переходами соответственно на глубокую акцепторную примесь, примесно-вакансионные комплексы акцепторного типа и мелкую акцепторную примесь (вероятно, Si_{As}). Квантовый выход ФЛ в исходном образце определяется в основном полосой I_2 . В результате гидрогенизации, как видно из рисунка, происходит смена основного канала излучательной рекомбинации. Интенсивность полосы I_4 , обусловленной межзонной рекомбинацией, увеличивается примерно в 60 раз и она становится доминирующей. В результате этого происходит сильное сужение спектра ФЛ. Аналогичный эффект наблюдался ранее для прямозонного AlGaAs , выращенного методом МЛЭ [4], и обусловлен, по мнению авторов [4], преимущественной пассивацией водородом DX -центров, на которых неравновесные носители рекомбинируют главным образом безызлучательно. Полосы I_3 и I_2 , связанные с мелкими акцепторами и вакансионными комплексами акцепторного типа, становятся неразличимыми на фоне полосы межзонной рекомбинации, а интенсивность полосы I_1 возрастает примерно в 10 раз. Такое поведение спектра легированной структуры после гидрогенизации можно объяснить увеличением времени жизни носителей заряда в материале в результате пассивации безызлучательных дефектов, что привело к такому же эффекту, как и увеличение уровня возбуждения.

Таким образом, эффект увеличения интенсивности ФЛ AlGaAs в результате гидрогенизации является наиболее существенным для материалов с высоким содержанием центров безызлучательной рекомбинации как следствие их пассивации.

На рис. 3 приведены спектры ФЛ многослойной структуры $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$ с набором КЯ до и после гидрогенизации. Как в исходном, так и в обработанном образцах наблюдается серия узких полос ФЛ из всех КЯ ($I_1 - I_4$) и прямо-

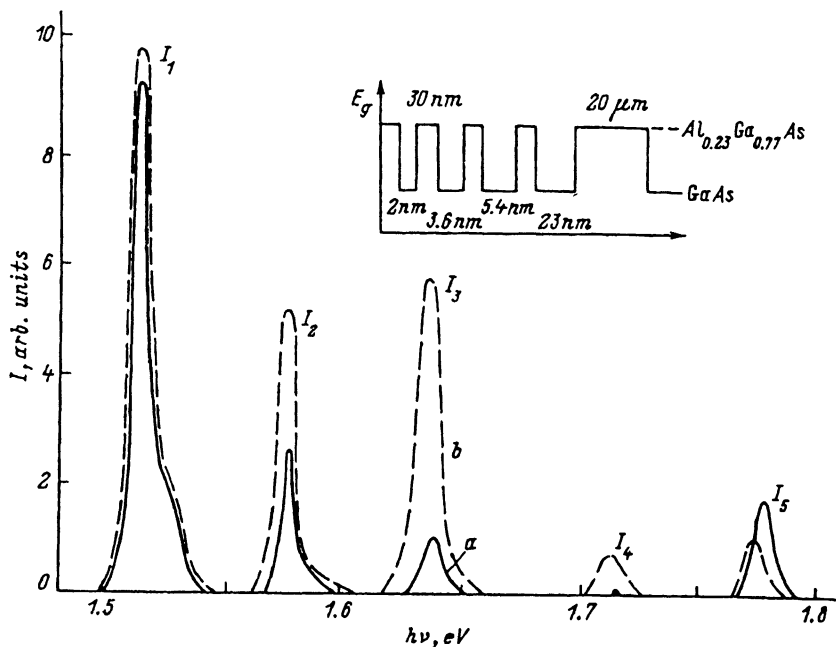


Рис. 3. Спектры ФЛ при 78 К многослойной структуры GaAs/Al_{0.23}Ga_{0.77}As, изображенной сверху, до (a) и после (b) гидрогенизации. Полосы I₁—I₅ соответствуют ФЛ КЯ шириной d = 23, 5.4, 3.6, 2 нм и материала Al_{0.23}Ga_{0.77}As.

зонного материала Al_{0.23}Ga_{0.77}As I₅. Основные линии ФЛ КЯ соответствуют переходам из первой подзоны электронов в первую подзону тяжелых дырок ($1e - 1hh$), а дополнительные линии, наблюдаемые со стороны высоких энергий полос ФЛ I₁ и I₂ от КЯ шириной 23 и 5.4 нм, обусловлены переходами электронов в первую подзону легких дырок ($1e - 1lh$). Переходы $1e - 1lh$ не наблюдаются для КЯ 3.6 и 2.0 нм, так как первые подзоны легких дырок в данном случае не заполнены. Из рисунка видно, что интегральная интенсивность ФЛ многослойной структуры GaAs/AlGaAs после гидрогенизации значительно увеличивается. Отношения K интенсивностей полос I₁—I₄ после гидрогенизации к их интенсивностям до гидрогенизации сильно увеличиваются с уменьшением размера КЯ (см. рис. 4), а интенсивность полосы I₅ нелегированного Al_{0.23}Ga_{0.77}As после гидрогенизации уменьшается в 1.90 раза. Увеличение интенсивности полосы I₄ от КЯ шириной 2.0 нм, расположенной наиболее близко к поверхности, свидетельствует о несущественном радиационном повреждении структуры при обработке в водородной плазме и, следовательно, ее слабом влиянии на скорость поверхностной рекомбинации при используемом режиме гидрогенизации.

Следует отметить, что усиление ФЛ КЯ, наблюдавшееся в работе [2], связывалось с увеличением времени жизни и диффузионной длины неравновесных носителей заряда в верхнем слое AlGaAs толщиной 2 мкм вследствие пассивации водородом DX-центров. Это привело к увеличению числа генерируемых в этом слое неравновесных носителей, а также носителей, достигающих КЯ и рекомбинирующих там. Причем интенсивность ФЛ в слое AlGaAs также увеличивалась, хотя и в меньшей степени, чем в КЯ. В нашем случае наблюдается усиление интенсивности ФЛ в КЯ и ее ослабление в AlGaAs, а генерация неравновесных носителей излучением He—Ne-лазера, как и в работе [2], происходит в основном в слое AlGaAs, расположенном за КЯ (верхняя

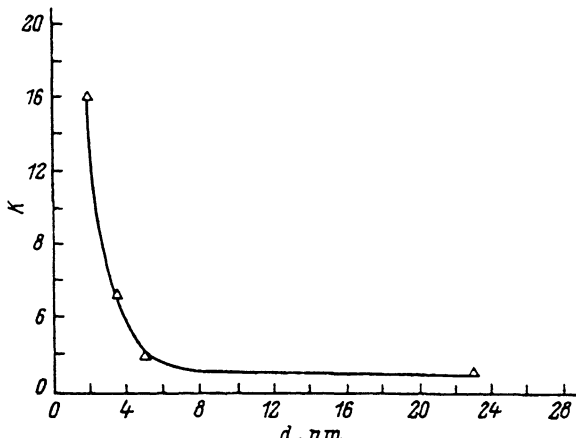


Рис. 4. Зависимость коэффициента увеличения интенсивности ФЛ КЯ в результате гидрогенизации от ширины КЯ для многослойной структуры, изображенной на рис. 3.

часть структуры, содержащая КЯ, имеет толщину только 0.16 мкм). Поэтому более вероятно, что уменьшение интенсивности ФЛ AlGaAs связано с водородной пассивацией излучательных центров в этом материале. К тому же увеличение интенсивности ФЛ КЯ шириной 23 нм, заполняемой в основном неравновесными носителями из находящегося за ней слоя AlGaAs, вряд ли бы наблюдалось при появлении в этом слое новых каналов безызлучательной рекомбинации, связанных с водородом. Таким образом, увеличение интенсивности ФЛ в КЯ и ее уменьшение в материале структуры AlGaAs, а также уменьшение интенсивности ФЛ в случае отдельных нелегированных слоев GaAs и AlGaAs позволяет нам сделать вывод, что водород пассивирует дефекты на гетерограницах, являющиеся центрами безызлучательной рекомбинации, что коррелирует с результатами работы [6]. Несомненно также, что этот эффект должен иметь наибольший вклад для тонких КЯ, для которых влияние гетерограниц на рекомбинационные процессы наиболее существенно.

На рис. 5 представлены спектры ФЛ, полученные до и после гидрогенизации двойной гетероструктуры GaAs/AlGaAs с отдельным ограничением электрическим и оптическим, содержащей активную область GaAs шириной 20 нм. В отличие от предыдущего случая область генерации неравновесных носителей излучением He—Ne-лазера для данной структуры строго ограничена размерами волноводной части структуры. В спектре ФЛ исходной структуры наблюдаются две полосы, I_1 и I_2 , соответствующие рекомбинационному излучению от активной области GaAs и материала $Ga_{0.24}Al_{0.76}As$ (суммарной толщины 0.6 мкм). Полоса I_1 , соответствующая области GaAs, имеет полуширину 54 мэВ и напоминает спектр вырожденного материала. Однако оценочные расчеты показывают, что такая ситуация не может иметь места при используемом уровне возбуждения и объясняется, вероятнее всего, влиянием переходных слоев с градиентом состава в области гетерограниц, обусловленных вариацией стехиометрии во время эпитаксиального роста. К тому же из рисунка видно, что данная полоса имеет особенность со стороны высоких энергий, связанную с наличием таких слоев. Возрастание интенсивности полосы I_1 и ее сужение (до 27 мэВ) после гидрогенизации может быть обусловлено пассивацией центров безызлучательной и излучательной рекомбинации в области переходных слоев гетеропереходов, так как обычно слои с резким градиентом состава характеризуются повышенным содержанием дефектов. Сильное уменьшение интенсивности полосы ФЛ I_2 слоев

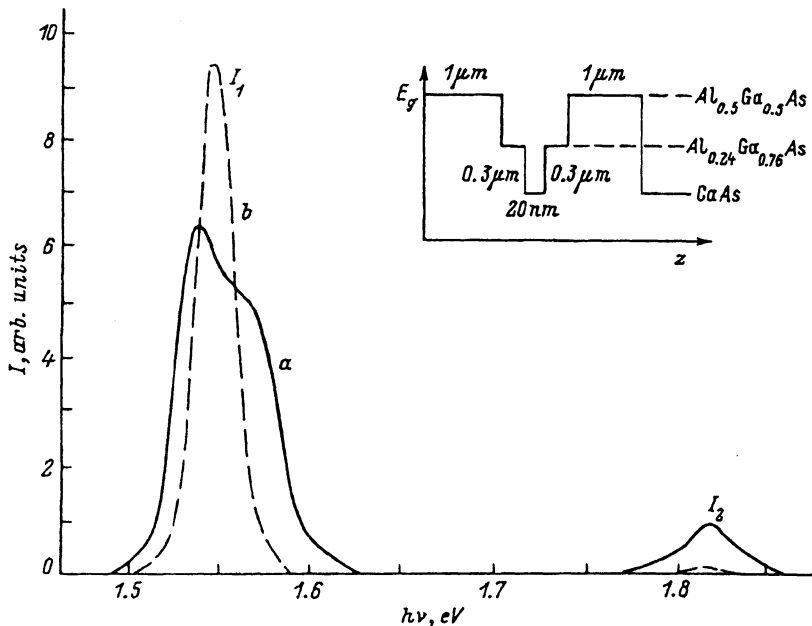


Рис. 5. Спектры ФЛ при 78 К двойной гетероструктуры GaAs/AlGaAs с раздельным ограничением, изображенной в верхней части рисунка, до (a) и после (b) гидрогенизации.

Al_{0.24}Ga_{0.76}As после гидрогенизации можно объяснить, как и в случае предыдущей структуры, пассивацией центров излучательной рекомбинации в данном материале и связанным с этим увеличением вероятности попадания неравновесных носителей заряда из волноводных слоев в активную область.

Из вышесказанного следует, что пассивация водородом дефектов гетерограниц, в первую очередь безызлучательных, может представлять интерес для технологии изготовления оптоэлектронных приборов AlGaAs/GaAs вследствие общеизвестной роли гетерограниц как источника дефектов в гетероструктурах [10]. Необходимо отметить, что пассивация водородом глубоких центров и поверхностных состояний, связанных с гетерограницами, наблюдалась также в напряженных гетероструктурах GaAs/Si [11] и КЯ InGaAs/GaAs [12] и, таким образом, этот эффект является общим явлением для структур с гетеропереходами.

Таким образом, в настоящей работе показано, что гидрогенизация может значительно повысить интенсивность ФЛ многослойных структур GaAs/AlGaAs, выращенных методом МОС гидридной эпитаксии. Наиболее сильное увеличение интенсивности ФЛ после гидрогенизации наблюдается для более узких КЯ. Эффект увеличения ФЛ в многослойных структурах GaAs/AlGaAs объясняется пассивацией дефектов гетерограниц в основном безызлучательных.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Hydrogen in Semiconductors (ed. by M. Stutzmann, J. Chevallier). Amsterdam (1991). [Physica B, 170 (1991)].
- [2] L. Pavesi, F. Martelli, D. Martin, F. K. Reinhart. Appl. Phys. Lett., 54, 1522 (1989).
- [3] A. Frova, M. Capizzi. Thin Sol. Films, 193—194, 211 (1990).
- [4] L. Pavesi, F. Martelli, D. Martin, F. K. Reinhart. Appl. Phys. Lett., 55, 475 (1989).
- [5] А. М. Васильев, П. С. Копьев, В. С. Лысенко, А. Н. Назаров, Г. А. Наумовец, В. Б. Попов, А. С. Ткаченко, В. М. Устинов. Письма в ЖТФ, 16, вып. 20, 1 (1990).

- [6] A. Y. Polyakov, A. V. Pachomov, M. V. Tishkin, O. M. Borodina, A. V. Govorkov, B. M. Leiferov, E. M. Omeljanovsky. *Sol. St. Commun.*, **76**, 761 (1990).
- [7] N. Pan, S. S. Bose, M. S. Feng, M. A. Plano, M. H. Kim, B. Lee, G. E. Stillman. *Inst. Phys. Conf. Ser. N 91: Chap. 4*, 419 (1988).
- [8] N. Pan, S. S. Bose, M. H. Kim, G. E. Stillman, F. Chambers, G. Devane, C. R. Ito, M. Feng. *Appl. Phys. Lett.*, **51**, 596 (1987).
- [9] R. A. Gottscho, B. L. Preppernau, S. J. Pearton, A. B. Emerson, K. P. Giapis. *J. Appl. Phys.*, **68**, 440 (1990).
- [10] М. М. Соболев, А. В. Гитцович, М. И. Папенцев, И. В. Кочнев, Б. С. Явич. *ФТП*, **26**, 1760 (1992).
- [11] S. J. Pearton, C. S. Wu, M. Stavola, F. Ren, J. Lopata, W. C. Dautremont-Smith, S. M. Vernon, V. E. Haven. *Appl. Phys. Lett.*, **51**, 496 (1987).
- [12] M. Gal, A. Tavendale, M. J. Johnson, B. F. Usher. *J. Appl. Phys.*, **66**, 968 (1989).

Редактор Л. В. Шаронова
