

©1994 г.

ИНТЕРФЕЙСНАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ GaAs/GaAlAs-СТРУКТУР: СВЯЗЬ С УСЛОВИЯМИ ФОРМИРОВАНИЯ ГЕТЕРОГРАНИЦЫ

В.Н.Бессолов, В.В.Евстропов, М.В.Лебедев, В.В.Россин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021, Санкт-Петербург, Россия
(Получена 22 декабря 1993 г. Принята к печати 27 декабря 1993 г.)

Изучалась фотолюминесценция одиночных гетероструктур GaAs/GaAlAs в зависимости от условий формирования гетерограницы (температуры эпитаксии, концентрации доноров в GaAs, движущей силы кристаллизации). В спектрах фотолюминесценции наряду с полосами объемной люминесценции GaAs и GaAlAs присутствует полоса, обусловленная наличием гетерограницы (полоса интерфейсной люминесценции).

Показано, что существование интерфейсной люминесценции пороговым образом зависит от температуры формирования гетерограницы: интерфейсная люминесценция появляется, если температура выше некоторой T_{cr}^F , и исчезает, если ниже. При этом пороговая температура T_{cr}^F уменьшается с уменьшением движущей силы кристаллизации при формировании гетерограницы и зависит от совершенства узкозонной области (GaAs) гетероструктуры.

Пороговый характер возникновения и исчезновения интерфейсной люминесценции объясняется с помощью двух модельных представлений. Во-первых, предполагается, что интерфейсная люминесценция обусловлена аннигиляцией интерфейсного экситона, образованного двумерным электроном на гетерогранице и трехмерной дыркой, и, во-вторых, предполагается, что смена механизмов формирования гетерограницы при фазовом переходе огрубления поверхности подложки приводит к скачкообразному уменьшению неоднородностей в плоскости гетерограницы, что способствует образованию интерфейсного экситона.

1. Введение

Как известно, в спектрах фотолюминесценции гетероструктур GaAs/GaAlAs наряду с максимумами, характерными для объемной люминесценции GaAs и GaAlAs, наблюдается специфическая полоса, обусловленная наличием гетерограницы — интерфейсная люминесценция [1-4]. Свойства интерфейсной люминесценции существенно отличаются от свойств объемной люминесценции GaAs и GaAlAs. Главное отличие — максимум полосы интерфейсной люминесценции существенно сдвигается в коротковолновую область спектра при увеличении интенсивности возбуждения [1-4].

Предложено несколько интерпретаций интерфейсной люминесценции. Одна из них основана на рекомбинации электронов (дырок), находящихся в двумерной яме на гетерогранице, с трехмерными дырками (электронами), находящимися в объеме GaAs [1,2]. Другая основана на аналогии с донорно-акцепторной рекомбинацией [4]. Авторы более поздних исследований [5,6], однако, склоняются в пользу первой интерпретации.

Интерфейсная люминесценция наблюдалась в GaAlAs/GaAs-гетероструктурах, выращенных различными способами: молекулярно-пучковой эпитаксией [4,5], газофазной эпитаксией из металлоорганических соединений [6], жидкостной эпитаксией [1,3]. Кроме того, она наблюдалась так же в гетероструктурах InGaAs/InP [7]. Эти факты позволяют сделать вывод о том, что интерфейсная люминесценция характеризует фундаментальные свойства гетерограницы.

Как известно, условия формирования гетероперехода оказывают существенное влияние на структуру гетерограницы. Температура эпитаксии и движущая сила кристаллизации (скорость роста слоя, величина начального пересыщения и т.д.) при формировании гетерограницы определяют протяженность переходной области между слоями и ее морфологию [8,9]. Кроме того, обнаружено, что в GaAs при определенной температуре эпитаксии происходит смена механизма роста слоя, определяемого по морфологии поверхности [10]. Тем не менее при выяснении природы интерфейсной люминесценции до сих пор не уделялось внимания ее связи с условиями формирования гетерограницы.

Данная работа посвящена установлению связи свойств интерфейсной люминесценции с условиями формирования гетерограницы GaAs/GaAlAs.

Один из основных результатов работы — обнаружена пороговая зависимость существования интерфейсной люминесценции от температуры формирования гетерограницы. Установлена также пороговая зависимость интерфейсной люминесценции от движущих сил кристаллизации при формировании гетерограницы и от совершенства узкозонной области гетероструктуры.

2. Эксперимент

Объектом исследований служили гетероструктуры GaAlAs/GaAs. Тонкие ($\approx 500-5000 \text{ \AA}$) слои GaAlAs выращивались методом жидкостной эпитаксии. В качестве подложек служили химически полированные пластины GaAs, разориентированные от плоскости (100) в направлении [110] на $0.15'-3^\circ$, на которых предварительно были выращены методами газофазной эпитаксии слои GaAs толщиной 5–10 мкм различного типа проводимости и уровня легирования $|N_D - N_A| \approx 10^{13}-10^{18} \text{ см}^{-3}$.

Изучалось влияние температуры эпитаксии и движущей силы кристаллизации на свойства и условия возникновения интерфейсной люминесценции в гетероструктурах.

Для выяснения влияния температуры эпитаксии слои GaAlAs выращивались при различной температуре ($600 \leq T \leq 920^\circ \text{C}$).

Изменение движущей силы кристаллизации при формировании гетерограницы происходило либо путем изменения начального пересыщения раствора-расплава, либо путем изменения скорости роста.

Выращивание слоев с различным пересыщением осуществлялось в изотермических условиях из переохлажденного раствора-расплава. При этом после образования слоя GaAlAs на одном участке подложки и существенного обеднения раствора-расплава подложка сдвигалась так, что под раствором-расплавом оказывался другой участок подложки, формирование гетерограницы на котором происходило при более низком начальном пересыщении. Выращивание слоев из одного раствора-расплава с различной скоростью роста осуществлялось по методике, рассмотренной в [11].

Исследовались спектры фотолюминесценции выращенных GaAlAs/GaAs-гетероструктур. Фотолюминесценция возбуждалась He-Ne-лазером ($h\nu = 1.95$ эВ) и регистрировалась при гелиевых температурах методом счета фотонов.

3. Экспериментальные результаты

В зависимости от условий выращивания в спектрах фотолюминесценции GaAlAs/GaAs-структур наряду с объемными полосами донорно-акцепторной рекомбинации (DA) и объемными линиями связанных экситонов (BE) может присутствовать полоса интерфей-

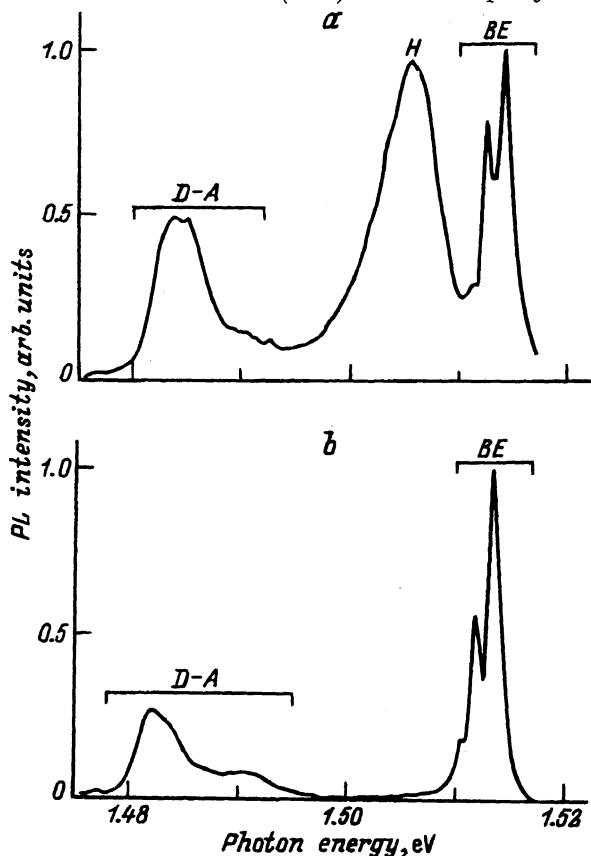


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции при 1.7 К двух гетероструктур n -GaAs/ N -GaAlAs, выращенных на одной подложке ($\Delta\nu = 1.7$ мэВ) из одного раствора-расплава при двух различных температурах формирования гетерограницы T^F : $a - T^F = 850^\circ\text{C}$, $b - T^F = 825^\circ\text{C}$.

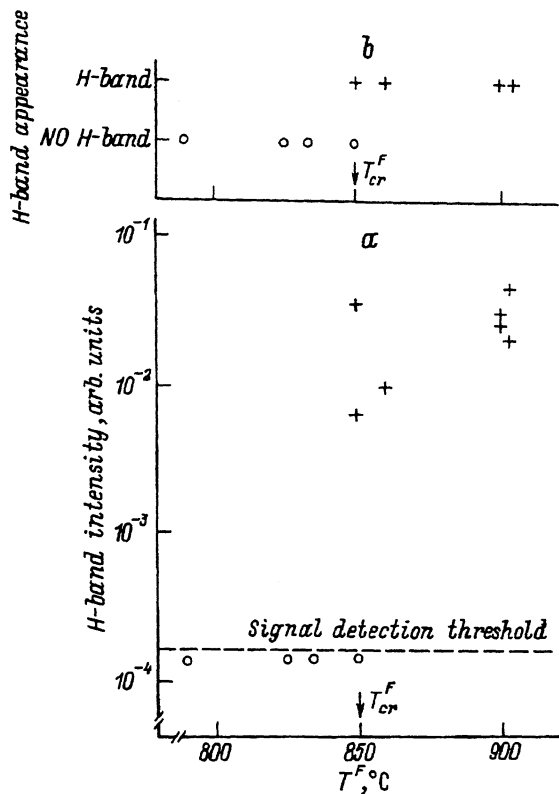


Рис. 2. Зависимость интенсивности интерфейсной люминесценции от температуры T^F формирования гетерограницы $n\text{-GaAs}/N\text{-GaAlAs}$ ($\Delta\nu = 1.7$ мэВ) при уровне возбуждения $I = 4$ Вт/см² (a) и ее схематическое представление (кружки — интенсивность H -линии ниже пороговой; крестики — интенсивность H -линии выше пороговой) (b).

ной люминесценции (H) (рис. 1). Интерфейсная люминесценция наблюдалась как в $n\text{-GaAs}/N$, $P\text{-GaAlAs}$, так и в $p\text{-GaAs}/N$, $P\text{-GaAlAs}$ -гетероструктурах.

Появление интерфейсной люминесценции пороговым образом зависит от температуры формирования гетерограницы T^F . В гетеропереходах, сформированных при температурах выше некоторой температуры T_{cr}^F , интерфейсная люминесценция присутствует. Если гетерограница формируется при $T^F < T_{cr}^F$, то интерфейсная люминесценция отсутствует (рис. 2, a) в том смысле, что ее интенсивность резко (по крайней мере на 1.5 порядка) спадает до неизмеряемой величины, которая ниже порога чувствительности измерительной аппаратуры (рис. 2, b).

Пороговая температура формирования гетерограницы T_{cr}^F существенно зависит от движущей силы кристаллизации. Так, например, увеличение начального пересыщения раствора-расплава ΔT приводит к увеличению T_{cr}^F (рис. 3). С другой стороны, увеличение скорости роста слоя V_g при формировании гетерограницы при фиксированной температуре $T^F \approx T_{cr}^F$ приводит к скачкообразному исчезновению интерфейсной люминесценции в спектрах гетерограницы (рис. 4).

Пороговая температура формирования гетерограницы T_{cr}^F зависит от степени совершенства подложки GaAs, которое оценивается по полуширине ($\Delta\nu$) линии связанного экситона (BE) $n\text{-GaAs}$. Так, например,

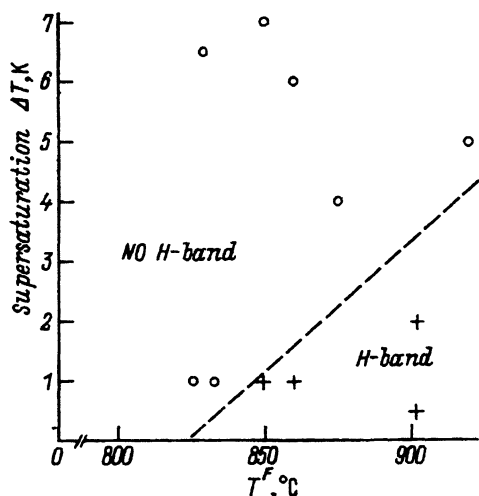
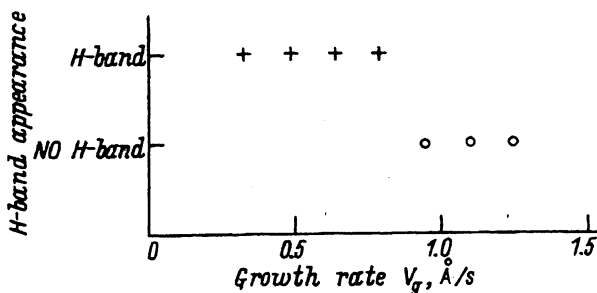


Рис. 3. Схематическое изображение проявления интерфейсной люминесценции при различных температурах T^F и начальных переохлаждениях раствора-расплава ΔT при формировании гетерограницы $n\text{-GaAs}/N\text{-GaAlAs}$ ($\Delta\nu = 1.7$ мэВ) (кружки — интенсивность H -линии ниже пороговой; крестики — интенсивность H -линии выше пороговой; пунктир — условная линия, разделяющая эти две области).

Рис. 4. Схематическое представление проявления интерфейсной люминесценции в зависимости от скорости роста слоя V_g при формировании гетерограницы $n\text{-GaAs}/N\text{-GaAlAs}$ ($\Delta\nu = 1.7$ мэВ) при уровне возбуждения $I = 4$ Вт/см² (кружки — интенсивность H -линии ниже пороговой; крестики — интенсивность H -линии выше пороговой).



при $\Delta\nu = 1.7$ мэВ величина $T_{cr}^F = 850$ °С (рис. 2), в то время как при $\Delta\nu = 0.4\text{--}0.8$ мэВ величина T_{cr}^F находится в пределах 770–800 °С.

Отметим, что при формировании гетерограницы на различных участках одной подложки из одного раствора-расплава как при различных температурах T^F , так и при различных скоростях роста и начальных пересыщениях раствора-расплава реализовывались случаи, когда на одних участках подложки (выращенных при температурах, больших T_{cr}^F) наблюдалась интерфейсная люминесценция, а на других (выращенных при температурах, меньших T_{cr}^F) — интерфейсная люминесценция не наблюдалась.

4. Природа интерфейсной люминесценции: модельные представления

Наша интерпретация порогового поведения интерфейсной люминесценции основывается на использовании и согласовании между собой двух модельных представлений. Во-первых, об интерфейсном экситоне (который не образуется при наличии сильных неоднородностей в области гетерограницы) и, во-вторых, о смене механизмов формирования гетерограницы при фазовом переходе огрубления поверхности подложки (что приводит к скачкообразному уменьшению неоднородностей, препятствующих образованию интерфейсного экситона).

4.1. *Интерфейсный экситон.* Свойства интерфейсной люминесценции хорошо согласуются с представлением о том, что она обусловлена аннигиляцией интерфейсного экситона, образованного двумерным электроном (для n -GaAs/ N , P -GaAlAs-гетерограницы), находящимся в двумерном канале на гетерогранице, с трехмерной дыркой, находящейся в объеме GaAs вблизи гетерограницы (рис. 5). Для гетерограницы p -GaAs/ N , P -GaAlAs интерфейсный экситон образован соответственно двумерной дыркой и трехмерным электроном. Эта модель аналогична модели поверхностного экситона, предложенного для объяснения поверхностной люминесценции в CdS [12] и в кремниевых МДП структурах [13]. Предлагалась она и для объяснения интерфейсной люминесценции в InGaAs/InP-структурах [7].

Такая модель удовлетворяет главной особенности интерфейсной люминесценции — большому сдвигу ее спектральной полосы в коротковолновую сторону при увеличении интенсивности возбуждения. Действительно, увеличение интенсивности приводит к уменьшению интерфейсного изгиба зон в GaAs и соответственно к увеличению энергии фотона, рождающегося при аннигиляции экситона. Слияние же полосы интерфейсной люминесценции с объемной полосой связанных экситонов в GaAs, наблюдаемое при очень больших интенсивностях возбуждения, соответствует практически полному спрямлению интерфейсного барьера в GaAs.

Необходимым условием существования интерфейсного экситона (т.е. наличие в спектрах фотолюминесценции гетероструктур полосы

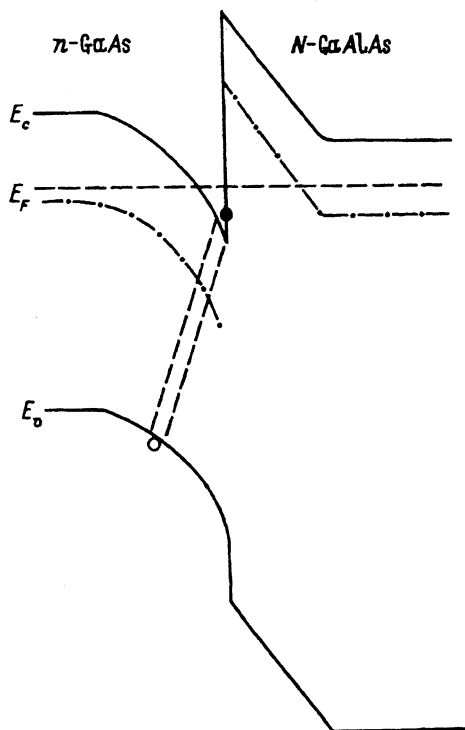


Рис. 5. Схематическое изображение энергетической диаграммы гетероперехода n -GaAs/ N -GaAlAs и интерфейсного экситона.

интерфейсной люминесценции) является однородность состава в плоскости гетерограницы. Флуктуации потенциала, возникающие из-за неоднородностей, приводят к пространственному разделению электрона и дырки в ямах и горбах рельефа потенциала. Если характерная величина флуктуаций потенциала превышает энергию кулоновской связи электрона и дырки, то интерфейсный экситон не образуется. Рассмотрим возможные причины, приводящие к появлению неоднородностей состава, а следовательно, и флуктуаций потенциала в области гетерограницы, сформированной жидкостной эпитаксией.

4.2. Флуктуации состава на гетерогранице: зависимость от температуры формирования гетерограницы. Рассмотрим процесс формирования гетерограницы GaAs/GaAlAs при жидкостной эпитаксии.

Как известно [10], при эпитаксиальном росте GaAs обнаружена пороговая температура T_{cr} , выше которой происходит резкое изменение состояния растущей поверхности — фазовый переход огрубления поверхности. При низких температурах ($T < T_{cr}$) поверхность кристалла является атомно-гладкой и рост происходит путем движения эшелона моноатомных ступеней поверхности, т.е. по тангенциальному механизму. При повышении температуры роста над критической ($T > T_{cr}$) ступени поверхности размываются и исчезают; при этом тангенциальный механизм роста уступает место нормальному.

При формировании гетерограницы по тангенциальному механизму роста движущиеся ступени захватывают атомы Ga и Al из раствора-расплава. При этом из-за флуктуаций распределения Ga и Al в растворе-расплаве и неоднородного распределения ступеней на поверхности подложки возможен неоднородный захват Al при формировании гетерограницы [14], т.е. флуктуации состава в плоскости гетерограницы.

При формировании гетерограницы по нормальному механизму роста захват атомов Ga и Al из раствора-расплава будет осуществляться изломами, которые в большом количестве находятся на поверхности подложки при $T > T_{cr}$. При достаточно малой скорости роста слоя (т.е. меньшей или по крайней мере сравнимой со скоростью диффузии атомов Ga и Al в приповерхностной области твердой фазы) успевают установиться термодинамически равновесная концентрация Al в растущей поверхности; при этом будет происходить практически полная гомогенизация в плоскости гетерограницы, и поэтому флуктуации состава будут значительно меньшими по сравнению с тангенциальным механизмом формирования гетерограницы.

Отметим также, что при фиксированной температуре увеличение движущей силы кристаллизации (т.е. скорости роста или начального пересыщения раствора-расплава) в процессе формирования гетерограницы должно приводить к увеличению неоднородностей гетерограницы, так как захват Al становится все более неравновесным.

Итак, при температурах формирования гетерограницы, меньших пороговой, в плоскости гетерограницы должны проявляться флуктуации содержания Al, а при температурах выше пороговой гетерограница должна быть существенно более однородной.

Таким образом, при эпитаксиальном выращивании GaAlAs/GaAs-гетероструктур интерфейсная люминесценция должна наблюдаться в структурах, выращенных при температурах выше T_{cr} (сформирован-

ных по нормальному механизму роста). Если же температура формирования меньше T_{cr} (тангенциальный механизм формирования гетерограницы), то интерфейсная люминесценция не должна проявляться из-за подавления интерфейсного экситона флуктуациями состава на гетерогранице.

5. Обсуждение результатов

Факт возникновения и исчезновения интерфейсной люминесценции при незначительном изменении условий выращивания позволяет предположить фазовый переход при формировании гетерограницы.

При увеличении температуры формирования гетерограницы выше некоторой пороговой на поверхности подложки GaAs происходит фазовый переход огрубления поверхности. Соответственно должна происходить смена механизма формирования гетерограницы от тангенциального к нормальному и, следовательно, скачкообразное уменьшение размеров флуктуаций состава и возникновение условий для формирования интерфейсного экситона (рис. 2). Отметим, что температура фазового перехода огрубления поверхности при жидкостной эпитаксии GaAs [¹⁰] ($T_{cr} = 765^\circ\text{C}$) практически совпадает с температурой T_{cr}^F для структур, выращенных на подложках с $\Delta\nu = 0.4$ мэВ ($T_{cr}^F \cong 770^\circ\text{C}$).

Увеличение движущей силы кристаллизации (т.е. скорости роста слоя или начального пересыщения раствора-расплава) при формировании гетерограницы должно приводить к увеличению критической температуры появления интерфейсной люминесценции, поскольку при больших скоростях формирования гетерограницы равновесие не успевает установиться [¹⁴] и состав в плоскости интерфейса будет флуктуирующим. Действительно, интерфейсная люминесценция наблюдается у гетерограниц, образованных при малых движущих силах кристаллизации и не наблюдается у гетерограниц, образованных при больших движущих силах (рис. 3 и 4).

Одним из интересных следствий является то, что более качественная с точки зрения оптоэлектронных свойств гетерограница формируется при температурах выше пороговой; при этом, однако, не следует забывать, что эта температура не должна быть очень высокой, так как повышенная вероятность генерации дефектов и сегрегации при высоких температурах могут привести к ухудшению свойств всей гетероструктуры. Интерфейсная люминесценция, по-нашему мнению, может служить индикатором качества гетерограницы.

Наша интерпретация интерфейсной люминесценции как аннигиляции интерфейсного экситона базируется на модели Юаня с соавт. [¹], отличаясь от нее тем, что конкретизирует механизм удержания дырки в приинтерфейсной области.

Следует отметить, что наша интерпретация возникновения и исчезновения интерфейсной люминесценции может быть расширена для гетерограниц, полученных методами молекулярно-пучковой эпитаксии и газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений. Возникновение интерфейсной люминесценции в таких гетероструктурах так же возможно, если флуктуации состава в плоскости гетерограницы меньше некоторой пороговой величины. Однако характер изменения флук-

туаций состава может быть обусловлен не только сменой механизма роста.

6. Заключение

Впервые показано, что незначительное изменение условий формирования гетерограницы GaAs/GaAlAs при жидкостной эпитаксии приводит к пороговому появлению и исчезновению интерфейсной люминесценции, что объясняется сменой механизмов формирования гетерограницы при фазовом переходе огрубления поверхности подложки GaAs.

Интерфейсная люминесценция в таких структурах проявляется в тех случаях, когда температура формирования гетерограницы выше некоторой критической T_{cr}^F , которая в свою очередь зависит от движущей силы кристаллизации и степени совершенства подложки GaAs.

Интерфейсная люминесценция обусловлена аннигиляцией интерфейсного экситона, который не образуется при больших флуктуациях состава в области гетерограницы. Эти флуктуации малы при нормальном механизме формирования гетерограницы и велики при тангенциальном.

Авторы благодарны профессору Б.В. Паренкову за внимание к данной работе. Эта работа была частично поддержана грантом фонда Сороса, присужденным Американским Физическим Обществом.

Список литературы

- [1] Y.R. Yuan, K. Mohammed, M.A. Pudensi, J.L. Merz. Appl. Phys. Lett., **45**, 739 (1984).
- [2] V. Kukushkin, K.V. Klitzing, K. Ploog. Phys. Rev. B, **37**, 8509 (1988).
- [3] Г.Т. Айтиева, В.Н. Бессолов, А.С. Волков, В.В. Евстропов, К.В. Киселев, Г.Г. Кочиев, А.Л. Липко, Б.В. Паренков. ФТП, **20**, 1313 (1986).
- [4] А.М. Васильев, П.С. Копьев, В.П. Кочерешко, Н.Н. Леденцов, Б.Я. Мельцер, И.Н. Уральцев, В.М. Устинов, Д.В. Яковлев. ФТП, **20**, 353 (1986).
- [5] Q.X. Zhao, J.P. Bergman, P.O. Holtz, V. Monemar, C. Hallin, M. Sundaram, J.L. Merz, A.C. Gossard. Semicond. Sci. Techn., **5**, 884 (1990).
- [6] J.L. Bradshaw, W.J. Choyke, R.P. Devaty, R.L. Messham. J. Luminesc., **47**, 249 (1991).
- [7] P.W. Yu, C.K. Peng, H. Morkoc. Appl. Phys. Lett., **54**, 1546 (1989).
- [8] J.A. Chen, C.K. Wang, H.H. Lin, W.S. Wang, S.C. Lee. J. Appl. Phys., **68**, 2140 (1990).
- [9] M. Tanaka, H. Sakaki, J. Yoshino. Japan. J. Appl. Phys., **25**, L155 (1986).
- [10] U. Morlock, H.J. Queisser. Phil. Mag. A, **64**, 165 (1991).
- [11] В.Н. Бессолов, М.В. Лебедев. Письма ЖТФ, **17(7)**, 17 (1991).
- [12] В.А. Киселев, Б.В. Новиков, Е.А. Убушиев, С.С. Утнасунов, А.Е. Чередниченко. Письма ЖЭТФ, **43**, 371 (1986).
- [13] Н.С. Аверкиев, Г.Е. Пикус. ФТП, **21**, 1493 (1987).
- [14] T. Nishinaga, K. Mochizuki, H. Yoshinaga, C. Sasaoka, M. Washiyama. J. Cryst. Growth, **98**, 98 (1989).

Редактор В.В. Чалдышев

Interface Luminescence of GaAs/GaAlAs Structures Relation to Heterostructure Forming Condition

V.N.Bessolov, V.V.Evstropov, M.V.Lebedev, V.V.Rossin

A.F.Ioffe Physico-Technical Institute, the Russian Academy of Science, 194021, St.Petersburg, Russia

Photoluminescence of single GaAs/GaAlAs heterostructures was studied as a function of conditions occurring at formation of the interface (epitaxy temperature, donor concentration in GaAs, and the crystallization driving force). Photoluminescence spectra contained, apart from the bulk luminescence bands of GaAs and GaAlAs, a band related to the interface (interface luminescence band). It has been shown that initiation of the interface luminescence critically depends on the interface forming temperature T^F : it can be observed for growth temperatures above T_{cr}^F and vanishes below this threshold. This temperature threshold is lowered down with decreasing the crystallization driving force acting during formation of the interface and depends on crystal perfection of the heterostructure narrow-gap region (GaAs). This threshold-like behavior of the interface luminescence can be explained assuming that (i) the interface luminescence is due to annihilation of the interface excitons formed by a 2D electrons at the interface and a 3D holes, and (ii) a change of growth mechanisms at the roughening phase transition causes a drastic decrease in the number of inhomogeneities in the interface plane, favoring formation of the interface excitons.
