

# Фотолюминесценция локализованных экситонов в квантовых точках InGaN

© С.О. Усов<sup>¶</sup>, А.Ф. Цацульников, В.В. Лундин, А.В. Сахаров, Е.Е. Заварин, Н.Н. Леденцов

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

(Получена 17 мая 2007 г. Принята к печати 28 мая 2007 г.)

Спектры фотолюминесценции образцов, содержащих ультратонкие слои InGaN в матрицах AlGaIn и GaN, экспериментально исследованы в интервале температур от 80 до 300 К. Показано, что температурные зависимости описываются в рамках модели Елисеева и параметр дисперсии энергии локализации экситонов зависит от среднего состава индия в твердых растворах InGaN, входящих в активную область исследуемых образцов. Из анализа низкоэнергетической части формы линии спектра была также определена энергия Урбаха, характеризующая энергию локализации экситонов в хвостах плотности состояний. Показано, что полученные значения дисперсии энергии локализации экситонов и энергии Урбаха, используемые для оценки эффектов локализации экситонов, линейно зависят от длины волны пика фотолюминесценции в диапазоне от ультрафиолетовой до зеленой части спектра.

PACS: 78.55.-m, 78.67.Hc, 78.55.Cr

## 1. Введение

Исследование оптических свойств квантово-размерных гетероструктур на основе твердых растворов InGaN имеет важное значение в современной полупроводниковой оптоэлектронике для создания светоизлучающих приборов ультрафиолетового и видимого диапазона. Важной особенностью структур, содержащих ультратонкие слои InGaN в активной области, является наличие обогащенных индием малых областей (квантовых точек — КТ), образующихся в результате фазового распада твердого раствора. Излучение, обусловленное наличием таких областей, вызвано рекомбинацией локализованных экситонов в минимумах флуктуаций потенциала, образующих особенности вблизи краев зон проводимости и валентной зоны [1].

В работе проведено исследование структур, выращенных на подложках сапфира и карбида кремния и содержащих тонкие слои твердых растворов InGaN. Одна группа образцов содержит слои InGaN, разделенные барьерами AlGaIn, и излучает в ультрафиолетовой (УФ) части спектра. Вторая группа образцов представляет собой светодиодные структуры, которые содержат в активной области сверхрешетку InGaN/GaN и излучают в синей и зеленой части спектра.

Настоящая работа посвящена исследованию спектров излучения гетероструктур, содержащих обогащенные индием области в тонких слоях InGaN, и определению параметров и механизмов локализации носителей. Для количественной оценки локализации экситонов были рассчитаны параметр  $\sigma$ , характеризующий дисперсию энергии локализации экситонов, пропорциональный сдвигу Стокса, а также энергия Урбаха для исследуемых образцов. В данной работе параметр  $\sigma$  был определен в рамках модели Елисеева [2], которая, как было показано, удовлетворительно

описывает экспериментальные температурные зависимости положения максимума ФЛ для рассматриваемых структур.

## 2. Описание образцов

Квантово-размерные гетероструктуры на основе твердых растворов InGaN, исследованные в данной работе, были выращены при различных условиях на сапфировых подложках методом газофазной эпитаксии из металлорганических соединений (MOCVD) на установке AIX2000HT. В табл. 1 приведены описания особенностей образцов *A*, *B*, *C*, *D*, *E*, *F* и *G*, температуры роста квантовых ям и барьеров. Образцы *A*, *B* и *C* содержат в активной области 5 слоев InGaN толщиной 3 нм, которые разделены барьерами AlGaIn толщиной 9 нм. При выращивании образца *A* использовался субмонослойный режим осаждения [3]. Активная область во всех структурах осаждалась на буферном слое GaN толщиной около 3 мкм. Условия роста *n*-GaN, *p*-GaN областей и буферных слоев в образцах *D*, *E*, *F* и *G*, представляющих собой светодиодные структуры, были выбраны аналогичными. Результаты исследования образца *C* (табл. 1), полученные методом просвечивающей электронной микроскопии, подтвердили наличие обогащенных индием областей эллипсоидальной формы с латеральными размерами 8–10 и высотой 3–4 нм [4,5].

## 3. Спектры фотолюминесценции в структурах, содержащих ультратонкие слои InGaN

Спектры фотолюминесценции были измерены в точном криостате microCrio102 в интервале температур от 80 до 300 К. Фотолюминесценция возбужда-

<sup>¶</sup> E-mail: S.Usov@mail.ioffe.ru

Таблица 1. Структура и условия роста исследуемых образцов

Образец	Количество КЯ	Материал КЯ/барьера	$T$ роста КЯ, °С	$T$ роста барьера, °С	Особенности
A	5	InGaN/AlGaN	840	940	С субмонослойным режимом роста на $Al_2O_3$
B	5	InGaN/AlGaN	890	940	Без субмонослойного режима роста на $Al_2O_3$
C	5	InGaN/AlGaN	865	940	Без субмонослойного режима роста на $Al_2O_3$
D	1	InGaN/GaN	830	930	Светодиод на $Al_2O_3$
E	5	InGaN/GaN	1 КЯ — 830 4 КЯ — 825	1 КЯ — 930 4 КЯ — 925	Светодиод на $Al_2O_3$
F	5	InGaN/GaN	1 КЯ — 800 4 КЯ — 825	1 КЯ — 900 4 КЯ — 925	Светодиод на $Al_2O_3$
G	5	InGaN/GaN	1 КЯ — 830 4 КЯ — 825	1 КЯ — 930 4 КЯ — 925	Светодиод на SiC

Таблица 2. Положение максимума ФЛ исследуемых образцов при 300 К

Образец	Положение максимума ФЛ при комнатной температуре, эВ	Диапазон излучения
A	3.13	УФ
B	3.12	УФ
C	3.06	УФ
D	2.78	Синий
E	2.77	»
F	2.6	Зеленый
G	2.55	»

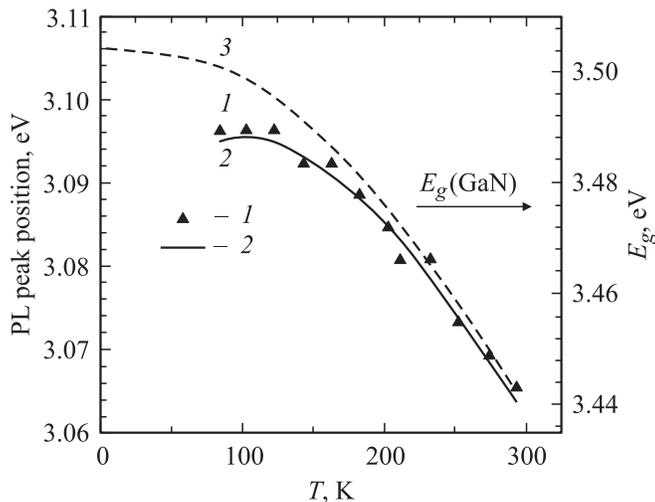
лась He–Cd-лазером с длиной волны 325 нм. Сигнал ФЛ собирался с использованием микроскопа ЛОМО ЛЮМАМ-И2 с объективом  $\times 10$  и диаметром апертуры 50 мкм и регистрировался с помощью монохроматора и фотоэлектронного умножителя Hamamatsu. В табл. 2 приведены значения положений максимумов ФЛ при температуре 300 К для исследуемых образцов.

#### 4. Обсуждения и результаты

Исследования структур, содержащих ультратонкие слои InGaN в широком температурном интервале, проведенные в работах [2,6] показали, что экспериментальные температурные зависимости положения максимума энергии ФЛ слоев твердых растворов InGaN от 10 К до комнатной температуры имеют S-образный вид, связанный с эффектом локализации экситонов в

квантовых точках. При температурах меньше температуры максимальной локализации экситона  $T_{\max}$  экситоны могут рекомбинировать, находясь в локальных минимумах потенциала. С ростом температуры слабо локализованные носители термически возбуждаются и могут либо рекомбинировать безызлучательно, либо перейти на более глубокие локализованные состояния, при этом энергия пика ФЛ уменьшается с ростом температуры [7]. В результате термического перераспределения носителей носители начинают заполнять более высокие энергетические состояния, и, следовательно, энергия пика ФЛ начинает увеличиваться и наблюдается максимум при температуре, равной температуре делокализации экситона  $T_{\text{del}}$  [7]. При дальнейшем увеличении температуры происходит сдвиг пика ФЛ в сторону меньших энергий (красный сдвиг), связанный с температурной зависимостью ширины запрещенной зоны. Такая зависимость положения пика ФЛ при высоких температурах ( $> 150$  К) может быть описана с помощью функции типа Варшни, причем параметры, характеризующие квантовые гетероструктуры, заметно отличаются от параметров объемного материала.

Для описания температурных зависимостей положений максимумов ФЛ исследуемых образцов была использована известная модель, предложенная Елисеевым [2]. На рис. 1 представлена экспериментальная температурная зависимость пика ФЛ образца C (кривая 1), которая хорошо описывается в рамках модели Елисеева (кривая 2). В области низких температур фотолюминесценция обусловлена рекомбинацией локализованных экситонов. При температуре, большей, чем температура делокализации экситона  $T_{\text{del}}$  (около 150 К), поведение максимума ФЛ определяется не только локализованными экситонами, в хвостах плотности состо-



**Рис. 1.** Экспериментальные (1) и рассчитанные (2) в соответствии с моделью Елисеева температурные зависимости положений максимума ФЛ для образца *C*. Изменение ширины запрещенной зоны GaN с температурой (3).

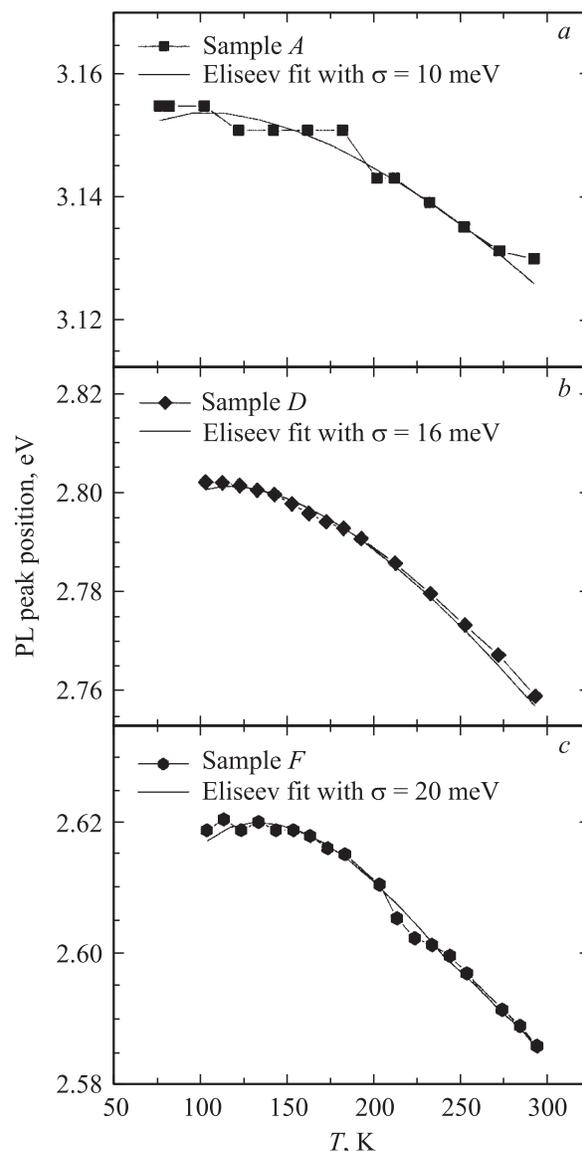
ний, но и значительным вкладом делокализованных экситонов. В области высоких температур ( $> 150$  К) поведение зависимости максимума ФЛ от температуры для образца *C* аналогично поведению температурной зависимости ширины запрещенной зоны GaN (рис. 1, кривая 3). Температурная зависимость положения пика ФЛ в модели Елисеева описывается выражением

$$E_{\text{PL}}(T) = E(T) - \sigma^2/(kT), \quad (1)$$

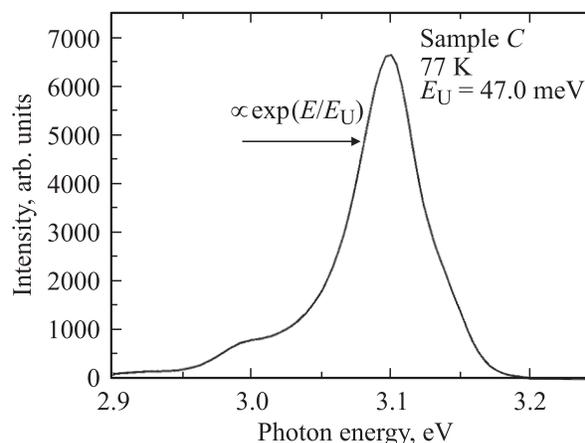
где  $E(T)$  — температурное изменение ширины запрещенной зоны,  $\sigma^2/kT$  — температурная зависимость сдвига максимума ФЛ (энергия Стокса), а плотность состояний локализованных экситонов описывается функцией Гаусса [2,8].

На рис. 2 представлены экспериментальные температурные зависимости положения максимума ФЛ для образцов *A*, *G* и *D*, а также зависимости, рассчитанные в соответствии с моделью Елисеева. Полученные расчетные параметры  $\sigma$ , характеризующие дисперсию энергии локализации экситонов, изменяются в интервале от 10 до 20 мэВ при изменении длины волны в диапазоне от ультрафиолетового до зеленого.

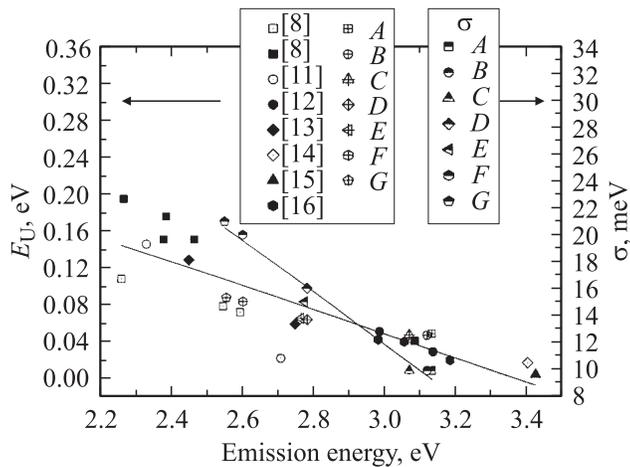
Экспериментальные спектры ФЛ исследованных образцов имеют несимметричную форму (рис. 3), причем низкоэнергетическая сторона спектра связана главным образом с локализованными состояниями экситонов, распределение которых по энергии описывается урбаховским хвостом плотности состояний [7,9,10]. На рис. 3 приведен спектр ФЛ образца *C*, в котором плотность состояний урбаховского хвоста для локализованных экситонов описывается экспоненциальной функцией:  $\rho(E) \propto \exp(E/E_U)$ , где  $E_U$  — характерная энергия Урбаха, определяющая типичную среднюю энергию локализации экситонов в модели хвостов плотности



**Рис. 2.** Экспериментальные и рассчитанные в соответствии с моделью Елисеева температурные зависимости положений максимума ФЛ для образцов *A* (a), *D* (b), *F* (c).



**Рис. 3.** Определение энергии Урбаха по форме линии спектра ФЛ для образца *C*.



**Рис. 4.** Зависимость дисперсии энергии локализации экситонов  $\sigma$  и энергии Урбаха  $E_U$  от положения максимума ФЛ для исследуемых образцов и образцов из ряда работ [8,11–16].

состояний [7,9]. Величина энергии Урбаха, определенная по низкоэнергетической части экспериментального спектра ФЛ для образца C, составляет 47.0 мэВ. Зависимости параметров  $\sigma$  и энергии Урбаха  $E_U$  от длины волны излучения в исследуемых образцах приведены на рис. 4. Значение  $\sigma$  изменяется в интервале от 10 до 20 мэВ при изменении положения максимума ФЛ от 392 нм (3.16 эВ) до 480 (2.58 эВ) в исследуемых образцах, что может быть связано с увеличением флуктуаций потенциала и степени фазового распада твердого раствора в слоях InGaN. Рассчитанные в данной работе значения  $E_U$  (рис. 4) находятся в хорошем согласии с результатами, приведенными в [8,11–16]. Следует также отметить, что рост энергии Урбаха при изменении положения максимума ФЛ от УФ до зеленого соответствует увеличению средней энергии локализации экситонов в КТ InGaN.

## 5. Заключение

Таким образом, в работе проведено исследование образцов, содержащих ультратонкие слои InGaN в матрицах GaN и AlGaN. Проведен анализ температурных зависимостей положения максимума ФЛ в рамках модели Елисеева в интервале температур от 80 до 300 К. Из анализа формы линии спектров ФЛ определена энергия Урбаха для исследуемых структур в рамках модели хвостов плотности состояний. Показано, что параметры  $\sigma$ , характеризующие дисперсию энергии локализации экситонов, и энергия Урбаха значительно различаются для образцов, излучающих в ультрафиолетовой, синей и зеленой части спектра, и практически линейно зависят от длины волны пика ФЛ. Поведение температурной зависимости положения пика ФЛ при  $T > T_{del}$  может быть описано зависимостью, аналогичной температурному поведению ширины запрещенной зоны, но поскольку  $E_U > kT$ , это означает, что локализованные экситоны определяют

температурное поведение максимума ФЛ исследуемых структур вплоть до комнатной температуры.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 07-02-01246а) и программой президиума РАН „Квантово-размерные наноструктуры“.

## Список литературы

- [1] J. Christen, D. Bimberg. Phys. Rev. B **42**, 7213 (1990).
- [2] P.G. Eliseev. J. Appl. Phys. **93**, 5404 (2003).
- [3] D.S. Sizov, V.S. Sizov, G.E. Onushkin, V.V. Lundin, E.E. Zavarin, A.F. Tsatsul'nikov, N.N. Ledentsov. 13<sup>th</sup> Int. Symp. „Nanostructures: Physics and Technology“ (St. Petersburg, June 20–25, 2005) p. 294.
- [4] S.O. Usov, A.F. Tsatsul'nikov, V.V. Lundin, A.V. Sakharov, E.E. Zavarin, D.S. Sizov, Yu.G. Musikhin, N.A. Bert, E.M. Arakcheeva, N.N. Ledentsov. 14<sup>th</sup> Int. Symp. „Nanostructures: Physics and Technology“ (St. Petersburg, June 26–30, 2006) p. 281.
- [5] S.O. Usov, A.F. Tsatsul'nikov, V.V. Lundin, A.V. Sakharov, E.E. Zavarin, D.S. Sizov, Yu.G. Musikhin, N.A. Bert, E.M. Arakcheeva, N.N. Ledentsov. Semicond. Sci. Technol., **22**, 528 (2007).
- [6] Yong-Hoon Cho, G.H. Gainer, A.J. Fischer, J.J. Song, S. Keller, U.K. Mishra, S.P. DenBaars. Appl. Phys. Lett., **73**, 1370 (1998).
- [7] R.J. Potter, N. Balkan. J. Phys.: Condens. Matter, **16**, S3387 (2004).
- [8] R.W. Martin, P.G. Middleton, K.P. O'Donnell, W. Van der Stricht. Appl. Phys. Lett., **74**, 263 (1999).
- [9] H.P.D. Schenk, M. Leroux, P. Mierry. J. Appl. Phys., **88**, 1525 (2000).
- [10] M. Oueslati, M. Zouaghi, M.E. Pistol, L. Samuelson, H.G. Grimmeiss, M. Balkanski. Phys. Rev. B, **32**, 8220 (1985).
- [11] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, S. Nakamura. Appl. Phys. Lett., **69**, 4188 (1996).
- [12] A. Satake, Y. Masumoto, T. Miyajima, T. Asatsuma, F. Nakamura, M. Ikeda. Phys. Rev. B, **57**, R2041 (1998).
- [13] S. Nakamura. IEEE J. Select. Topics Quant. Electron., **3**, 712 (1997).
- [14] E.I. Schubert, I.D. Goeofert, W. Grieshaber, J.M. Redwing. Appl. Phys. Lett., **71**, 921 (1997).
- [15] J.F. Muth, J.H. Lee, I.K. Shmagin, R.M. Kolbas, H.C. Casey, B.P. Keller, U.K. Mishra, S.P. DenBaars. Appl. Phys. Lett., **71**, 1572 (1997).
- [16] M.D. Mc Cluskey, C.G. Van de Walle, C.P. Master, L.T. Romano, N.M. Johnson. Appl. Phys. Lett., **72**, 2725 (1998).

Редактор Л.В. Беляков

## Photoluminescence of the localized excitons in InGaN quantum dots

*S.O. Usov, A.F. Tsatsul'nikov, V.V. Lundin,  
A.V. Sakharov, E.E. Zavarin, N.N. Ledentsov*

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

**Abstract** The photoluminescence spectra of the samples with ultrathin InGaN insertions in AlGaN and GaN matrices were experimentally investigated in the temperature range from 80 to 300 K. The temperature dependences of the photoluminescence peak position are shown to be satisfactorily described by the model suggested by Eliseev. The dispersion parameter of exciton localization energy is found to depend on average indium composition of InGaN solid solutions of active region. The Urbah energy was obtained from analysis of the low energy part shape, using density of states tail model. The dispersion parameter of exciton localization energy and Urbah energy, used for characterization of exciton localization, are shown to be linearly depend on photoluminescence wavelength in the spectral range from ultraviolet to green.