

Влияние сегрегационных эффектов на спектры электролюминесценции квантово-размерных гетероструктур InGaAs/GaAs, полученных методом МОС-гидридной эпитаксии

© Р.Х. Акчурина, А.Ю. Андреев*, Л.Б. Берлинер, О.И. Говорков⁺, В.П. Дураев⁺, А.А. Малдзы[¶], А.А. Мармалюк*, А.А. Падалица*, А.В. Петровский*, Д.Р. Сабитов*, А.В. Сухарев*

Московская академия тонкой химической технологии им. М.В. Ломоносова,
119571 Москва, Россия

* ООО „Сигм Плюс“,
117342 Москва, Россия

⁺ ФГУП „НИИ „Полюс“ им. М.Ф. Стельмаха“,
117342 Москва, Россия

(Получена 28 декабря 2007 г. Принята к печати 14 марта 2008 г.)

Поверхностная сегрегация в процессе эпитаксиального роста напряженных квантово-размерных гетероструктур InGaAs/GaAs в значительной мере искажает номинальный концентрационный профиль квантовых ям. Учет влияния на сегрегацию условий роста и упругих напряжений, возникающих в процессе эпитаксии, позволил с высокой точностью смоделировать концентрационный профиль и рассчитать длину волны электролюминесценции реальных гетероструктур с квантовыми ямами InGaAs/GaAs. Показано, что наблюдаемый эффект длинноволнового смещения длины волны межзонного перехода в практически важном случае гетероструктур с двумя близко расположенными квантовыми ямами обусловлен влиянием упругих напряжений в процессе роста.

PACS: 78.60.Fi, 78.67.De, 68.65.Fg, 81.07.St

1. Введение

Известно, что при формировании квантово-размерных гетероструктур (ГС) InGaAs/GaAs большое влияние на концентрационный профиль квантовых ям (КЯ) оказывает сегрегация атомов индия в процессе роста, приводящая к значительному уширению номинально резких гетерограниц [1]. Одной из причин такой сегрегации является воздействие упругих напряжений, возникающих в ГС вследствие решеточного рассогласования сопрягающихся эпитаксиальных слоев. Авторами [2] было показано, что под действием упругих напряжений в ГС профиль распределения атомов индия в ГС может существенно искажаться. В данной работе на основе детального анализа концентрационных профилей индия в квантово-размерных ГС InGaAs/GaAs, выращенных методом МОС-гидридной эпитаксии, уточнены факторы, определяющие специфику наблюдаемых сегрегационных явлений.

2. Объекты исследования

Для изучения влияния упругих напряжений на процесс сегрегации атомов индия был исследован ряд ГС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с одной и двумя КЯ различного состава. Номинальные (задаваемые) составы и толщины КЯ варьировались в диапазоне $x = 0.08-0.35$ и $60-150 \text{ \AA}$ соответственно.

ГС формировались методом МОС-гидридной эпитаксии на установке „СИГМОС-130“ с горизонтальным

кварцевым реактором и вращающимся графитовым подложкодержателем. Температура роста составляла 720°C при давлении в реакторе $8 \cdot 10^3 \text{ Па}$. В качестве источников элементов III и V групп использовались $\text{Ga}(\text{C}_2\text{H}_5)_3$, $\text{In}(\text{CH}_3)_3$ и AsH_3 ; газом-носителем служил водород. Эпитаксиальный рост осуществлялся на подложках $n\text{-GaAs}(100)$.

Для исследования излучательных характеристик ГС проводились электролюминесцентные измерения при комнатной температуре на установке RPM-Sigma фирмы Nanometrics.

Для каждой ГС были измерены глубинные оже-профили распределения атомов индия и галлия при помощи оже-спектрометра PHI-551 со скользящим падением пучка. На основе полученных данных была проведена процедура реконструкции, позволяющая учесть аппаратную функцию оже-спектрометра и восстановить истинное распределение элементов. Процедура реконструкции основана на MRI-модели [3], учитывающей три основных механизма искажения реального концентрационного профиля элементов при оже-профилировании: перемешивание атомов на поверхности при травлении (atom mixing), шероховатость поверхности (surface roughness) и вклад в оже-спектр от глубоко залегающих слоев (information depth). Важной особенностью использованной модели является то, что в качестве ее параметров принимаются реальные величины, которые могут быть измерены в независимом эксперименте, а не эмпирические значения. На рис. 1 представлен типичный реконструированный оже-профиль атомов индия для ГС с двумя близко расположенными КЯ.

[¶] E-mail: alinamaldzhy@yandex.ru

3. Расчетная модель

Для количественной оценки процесса сегрегации удобно использовать простую полуэмпирическую модель [4]. Авторами этой модели введен параметр сегрегации, характеризующий вероятность атома, находящегося в приповерхностной области в газовой фазе, остаться в ней, не встраиваясь в кристаллическую решетку:

$$R = e^{-\frac{a}{\lambda}}, \quad (1)$$

где $a = 5.653 \text{ \AA}$ — постоянная кристаллической решетки GaAs, λ — длина сегрегации, которая определяется на основе анализа экспериментальных данных. Доля атомов индия относительно общего содержания компонентов III группы в твердой x_s^n и газовой x_v^n фазах при выращивании n -го монослоя определяется соотношениями

$$x_s^n = (x + x_v^{n-1})(1 - R), \quad x_v^n = (x + x_v^{n-1})R. \quad (2)$$

Разбивая КЯ на воображаемые монослои с толщиной, равной $a/2$, концентрационный профиль индия с учетом сегрегационных явлений можно выразить формулой

$$x_n = \begin{cases} x(1 - e^{-n\frac{a}{\lambda}}), & \text{при } n \leq N, \\ x(1 - e^{-N\frac{a}{\lambda}})(1 - e^{-\frac{a}{\lambda}})e^{-(n-N)\frac{a}{\lambda}}, & \text{при } n > N, \end{cases} \quad (3)$$

где n — номер монослоя, N — количество монослоев в КЯ. На рис. 2 представлен концентрационный профиль индия для ГС с двумя КЯ, рассчитанный с использованием модели [4]. Профили обеих КЯ, согласно рис. 2, очень близки.

Сравнение рис. 1 и 2 показывает, что расчет по модели [4] не позволяет выявить экспериментально наблюдаемое различие профилей распределения индия в двух номинально идентичных, последовательно выращенных КЯ. По всей видимости, в этом случае параметры поверхностной сегрегации для верхней и нижней КЯ не совпадают, и это приводит к их различию. Для более детального изучения эффекта поверхностной сегрегации при выращивании напряженных ГС была построена серия зависимостей степени уширения интерфейсов КЯ от номинального значения мольной доли атомов индия в них (рис. 3, 4), с использованием реконструированных оже-профилей.

На рис. 3 представлены зависимости ширины нижнего и верхнего (относительно поверхности ГС) интерфейсов КЯ от номинального состава ГС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с одиночной КЯ. Толщина КЯ варьировалась в диапазоне 60–110 Å. За ширину нижнего интерфейса КЯ принималось расстояние, на котором мольная доля InAs в КЯ возрастала от 0 до 90% от максимального значения. Ширина верхнего интерфейса определялась как расстояние, на котором мольная доля InAs в КЯ падала от 100 до 10% от максимального значения. Для определения характера указанной зависимости была проведена линейная интерполяция данных (штриховая

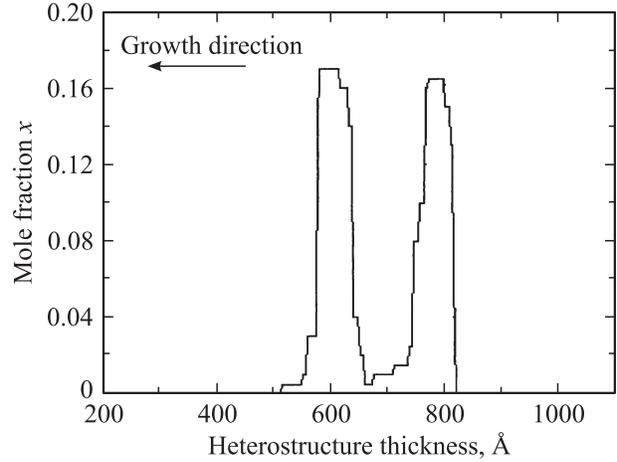


Рис. 1. Оже-профиль распределения атомов индия в гетероструктуре $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{As}/\text{GaAs}$ с двумя квантовыми ямами, разделенными барьером GaAs шириной 100 Å.

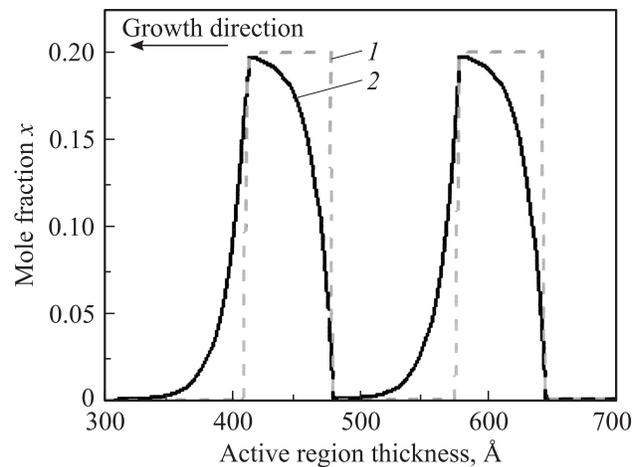


Рис. 2. Концентрационный профиль атомов In в гетероструктуре $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{GaAs}$ с двумя квантовыми ямами толщиной 66 Å, барьерным слоем GaAs толщиной 100 Å: 1 — номинальный профиль, 2 — рассчитанный по модели [4].

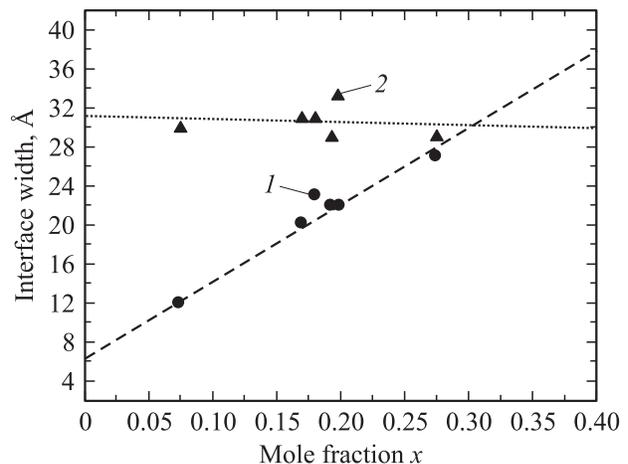


Рис. 3. Зависимости ширины нижних (1) и верхних (2) интерфейсов одиночной квантовой ямы в гетероструктурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ от содержания In.

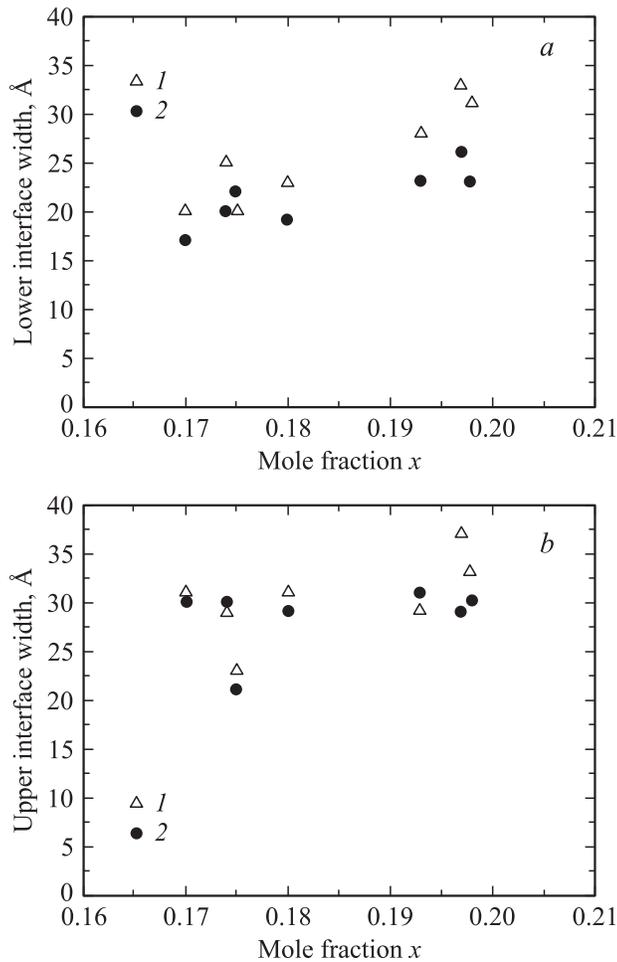


Рис. 4. Зависимости ширины нижних (а) и верхних (б) интерфейсов первой (1) и второй (2) (по направлению роста) квантовых ям в гетероструктуре $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с двумя квантовыми ямами. Номинальная толщина квантовых ям и барьерного слоя 66 Å и 100 Å соответственно.

и пунктирная линии). Из представленных зависимостей видно различие в характере уширения интерфейсов с изменением номинального состава КЯ: ширина нижнего интерфейса растет с увеличением мольной доли InAs в КЯ, тогда как ширина верхнего интерфейса одиночной КЯ практически от нее не зависит и даже имеет небольшую тенденцию к снижению. Следует отметить, что в соответствии с моделью [4], согласно (2), ширина верхнего и нижнего интерфейсов не должна зависеть от номинального значения мольной доли InAs в КЯ и должна быть равной.

На рис. 4 показаны зависимости ширины нижних и верхних интерфейсов в ГС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с двумя близко расположенными КЯ. Видно, что хотя общий характер зависимости уширения интерфейсов сохранился как для первой, так и для второй КЯ, однако абсолютное значение уширения для интерфейса второй КЯ несколько меньше. Этот факт может быть связан с различными начальными условиями роста КЯ: первая КЯ начинает

формироваться на подложке, свободной от напряжений, в то время как вторая растет на упругонапряженном (из-за наличия ниже лежащей КЯ [2]) барьерном слое. Согласно модели [4], параметры сегрегации для обеих КЯ одинаковы и ширины интерфейсов должны совпадать.

Основной причиной, приводящей к несоответствию экспериментальных результатов и результатов расчета по модели [4], по-видимому, является неполный учет влияния упругих напряжений, возникающих по мере формирования напряженных КЯ, на особенности сегрегационного процесса. В данной работе предложено дополнить рассматриваемую модель учетом влияния на длину сегрегации λ следующих величин:

— номинального значения x ;

— периода кристаллической решетки на поверхности роста a_{surf} как параметра, характеризующего изменение свойств поверхности роста в процессе эпитаксии и позволяющего учесть различие условий роста в случае нескольких близко расположенных КЯ.

Зависимость λ от указанных параметров определялась в рамках линейного приближения. При этом следует отметить, что для длин сегрегации нижнего λ^{low} и верхнего λ^{up} интерфейсов целесообразно вводить различные зависимости. Это обусловлено отличием условий роста: с подачей (λ^{low}) и без подачи (λ^{up}) индийсодержащего компонента в реакционную зону. С учетом сказанного выражения для определения длин сегрегации имеют вид

$$\lambda^{\text{low}} = \lambda_0 + k_{\text{In}} x - k_a \frac{a_{\text{surf}} - a_{\text{GaAs}}(T)}{a_{\text{GaAs}}(T)}, \quad (4)$$

$$\lambda^{\text{up}} = \lambda_1 - k_{a1} \frac{a_{\text{surf}} - a_{\text{GaAs}}(T)}{a_{\text{GaAs}}(T)}, \quad (5)$$

где λ_0 , λ_1 , k_{In} , k_a , k_{a1} — подгоночные постоянные; $a_{\text{GaAs}}(T)$ — период решетки GaAs при температуре роста. Значения коэффициентов подбирались исходя из сравнения расчетных концентрационных профилей индия с экспериментально наблюдаемыми.

Для расчета периода решетки на поверхности роста (a_{surf}) в процессе эпитаксии использовалась модель [5], основанная на разбиении ГС на виртуальные тонкие слои, между которыми рассматривается механическое взаимодействие. Она позволяет рассчитать радиус изгиба напряженной ГС, распределение по толщине периодов решетки и упругих напряжений в слоях.

Исходя из соотношений (3) следует, что значение λ должно быть строго больше нуля. Чтобы избежать решений, не имеющих физического смысла, предлагается наложить дополнительное условие на λ^{low} :

$$\lambda^{\text{low}} \geq \lambda_0. \quad (6)$$

Введение зависимости λ от величины постоянной решетки на поверхности роста a_{surf} приводит к необходимости корректировки формул (2), поскольку для каждого последующего монослоя n существует своя

вероятность сегрегации R_n , определяемая параметрами предыдущего монослоя $n-1$ (величиной a_{surf}). В результате выражение для расчета концентрационного профиля In в КЯ можно записать в виде

$$x_s^n = (x + x_v^{n-1})(1 - R_n). \quad (7)$$

Кроме того, после выращивания каждого монослоя происходит изменение соотношения доли атомов индия относительно общего содержания компонентов III группы в газовой x_v^{n-1} и твердой x_s^{n-1} фазах вследствие изменения R_n . Из выражений (1) и (2) следует:

$$x_v^{n-1} = x_s^{n-1} \frac{R_n}{1 - R_n}. \quad (8)$$

4. Результаты и их обсуждение

Решающим критерием соответствия расчетного и экспериментального концентрационных профилей служило значение длины волны в пике сигнала электролюминесценции ГС с КЯ. Для расчетного профиля КЯ, полученного в соответствии с (3)–(8), определялось положение уровней размерного квантования и вычислялось теоретическое значение энергии межзонного перехода. Рассчитанное значение длины волны рекомбинационного излучения сравнивалось с экспериментальным.

Поскольку энергетический профиль КЯ определяется не только концентрационным профилем, но и распределением электростатического потенциала [6], для нахождения энергетического спектра ГС с КЯ предварительно необходимо самосогласованно решить уравнение Пуассона и уравнение непрерывности [7]. Полученные в результате распределения электростатического потенциала концентрации неравновесных носителей в районе КЯ использовались для согласованного решения уравнений Пуассона и Шредингера, позволяющих определить положение уровней размерного квантования [6]. Следует отметить, что вследствие значительных упругих напряжений в КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ валентная зона сильно расщеплена и фактически только одна из зон (тяжелых дырок) участвует в излучательных переходах. В качестве напряжения смещения выбиралось такое значение, при котором квазиуровни Ферми неравновесных носителей заряда достигали края первых подзон электронов и дырок в КЯ. В вычислениях учитывалось влияние механизмов внутризонной релаксации в КЯ, которые приводят к коротковолновому смещению длины волны максимума спектра спонтанного излучения относительно длины волны, соответствующей переходу между краями первых подзон электронов и дырок [8].

Составление расчетных и экспериментальных данных по концентрационным профилям и спектрам электролюминесценции позволило определить следующие значения постоянных в уравнениях (4)–(5):

$$\lambda_0 = 8.1 \text{ \AA}, \quad \lambda_1 = 14.2 \text{ \AA},$$

$$k_{\text{In}} = 30.3 \text{ \AA}, \quad k_a = 18.2 \cdot 10^5 \text{ \AA}, \quad k_{a1} = 5.8 \cdot 10^4 \text{ \AA}.$$

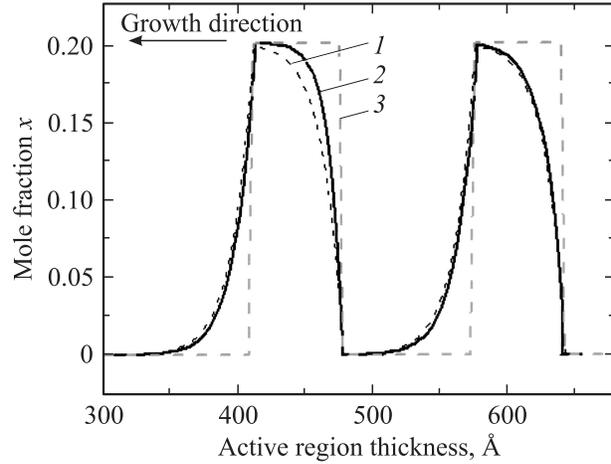


Рис. 5. Концентрационные профили атомов In в гетероструктуре $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{GaAs}$ с двумя квантовыми ямами толщиной 66 \AA и барьерным слоем GaAs толщиной 100 \AA : 1 и 2 — оригинальная [4] и модифицированная модели соответственно, 3 — номинальный профиль.

Результаты расчетов для некоторых образцов с использованием двух моделей: оригинальной [4] и модифицированной, обсуждаемой в данной работе, представлены на рис. 5 и 6.

На рис. 5 показаны номинальный концентрационный профиль (3) распределения атомов индия для ГС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с двумя КЯ и профили, рассчитанные по оригинальной (1) и модифицированной (2) моделям. Учет изменения λ в процессе роста приводит к сужению нижнего интерфейса КЯ, а верхние интерфейсы практически совпадают, поскольку в барьерном слое λ в меньшей мере зависит от упругих напряжений. В результате расчетные концентрационные профили индия в смежных КЯ заметно различаются, при этом профиль второй КЯ значительно ближе к номинальному.

При такой конфигурации квантово-размерной активной области длины волн, соответствующие межзонному переходу в верхней и нижней КЯ, не будут совпадать. В связи с тем что профиль верхней КЯ ближе к номинальному, уровни размерного квантования в ней расположены ближе к дну зоны проводимости и валентной зоны, а энергетическое расстояние между ними оказывается меньше. Расчет показал, что в зависимости от номинального значения мольной доли атомов индия в КЯ разница длин волн для верхней и нижней КЯ может достигать 20 нм . В электролюминесцентных измерениях при комнатной температуре максимум спектра будет соответствовать межзонному переходу в верхней КЯ [9], а также возможно появление локального максимума, соответствующего нижней КЯ. В рамках модели [4] такого эффекта наблюдаться не должно, поскольку концентрационные профили обеих КЯ различаются незначительно.

В качестве примера на рис. 6 приведены результаты реконструкции глубинных оже-профилей для ГС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с одной (а) и двумя (б) КЯ с рас-

Сравнение экспериментальных и расчетных данных по положению пика (максимума) спектра электролюминесценции в квантово-размерных гетероструктурах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$

Образец	Кол-во КЯ	Толщина КЯ, Å	Мольная доля InAs в КЯ	Толщина барьера GaAs, Å	Расчетная длина волны ЭЛ по модели [4], нм	Расчетная длина волны ЭЛ по модифицированной модели, нм	Положение максимума спектра ЭЛ, нм
1	1	124	0.27	—	1035.4	1056.3	1055
2	1	87	0.08	—	894.8	900.6	900
3	2	64	0.17	100	931.3	950.7	952
4	2	85	0.18	100	951.0	965.3	966
5	2	66	0.20	100	946.8	962.9	963

считанными по модифицированной модели профилями. В таблице представлены параметры образцов, экспериментальные и расчетные значения пиковых длин волн электролюминесценции (ЭЛ). Видна высокая степень совпадения экспериментальных и расчетных концентрационных профилей, а также точность теоретического расчета положения максимума спектра электролюминесценции (± 2 нм).

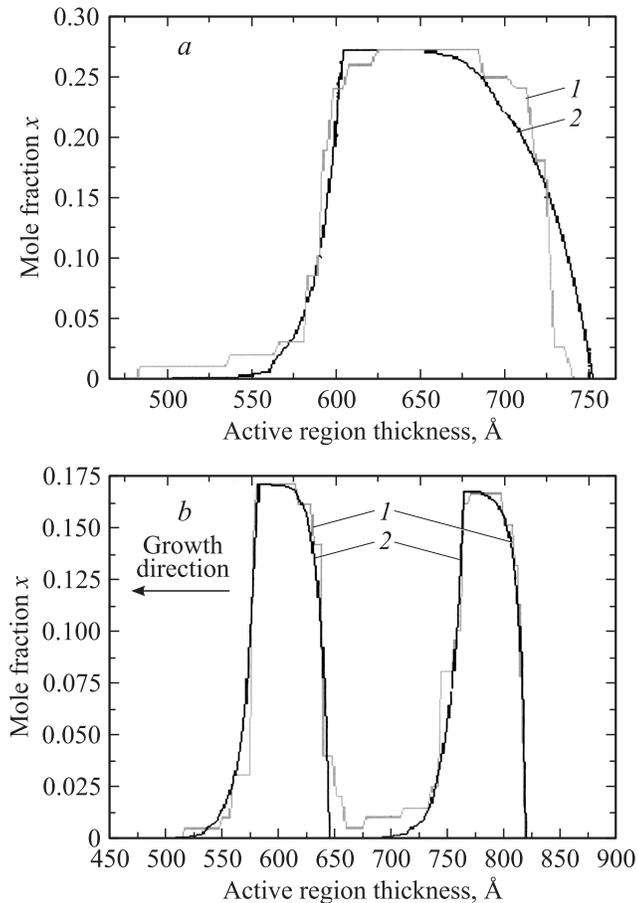


Рис. 6. Реконструированные оже-профили (1) и расчетные (2) концентрационные профили атомов индия для гетероструктур: *a* — $\text{In}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{As}/\text{GaAs}$ с одиночной квантовой ямой толщиной 124 Å; *b* — $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{As}/\text{GaAs}$ с двумя квантовыми ямами толщиной 63 Å, разделенными барьером GaAs толщиной 100 Å.

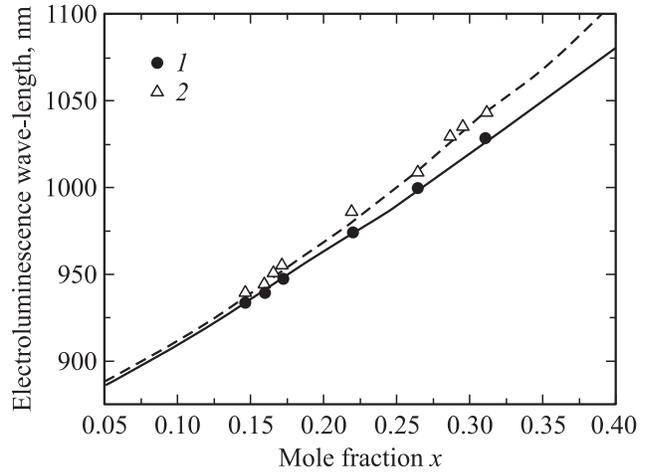


Рис. 7. Зависимости положения пика электролюминесценции гетероструктур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с одной (1) и двумя (2) квантовыми ямами от x . Толщина квантовой ямы 66 Å, толщина барьерного слоя GaAs для структуры с двумя квантовыми ямами 100 Å. 1, 2 — экспериментальные данные; сплошная и штриховая линии — расчет для структур с одной и двумя квантовыми ямами соответственно.

Для ГС с двумя КЯ в таблице (образцы 3–5) в качестве длины волны электролюминесценции указано значение, соответствующее межзонному переходу в верхней КЯ (профиль ближе к номинальному). Из результатов проведенных оценок следует ожидать, что при выращивании напряженных квантово-размерных структур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ с двумя КЯ должно наблюдаться длинноволновое смещение положения максимума спектра электролюминесценции по сравнению с ГС, содержащей одну КЯ.

Для подтверждения этого эффекта был исследован ряд дополнительно выращенных ГС с одной и двумя КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ различного состава и одинаковой номинальной толщины (66 Å). Для ГС с двумя КЯ толщина барьера GaAs составляла 100 Å. На рис. 7 отмечены экспериментальные значения положения максимумов спектров электролюминесценции, а также представлены расчетные зависимости для ГС с одной и двумя КЯ. Видно, что экспериментальные данные хорошо согласуются с расчетами и подтверждают тенденцию длинноволно-

вого смещения спектра электролюминесценции в ГС с двумя КЯ, увеличивающегося с ростом номинального значения x .

Таким образом, развитие модели [4] с учетом влияния упругих напряжений на длину сегрегации λ позволяет более точно описать наблюдаемые экспериментально закономерности изменения спектров излучения ГС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$.

5. Заключение

Детальное исследование реальных профилей напряженных КЯ $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ показало, что параметры сегрегационного процесса зависят, как минимум, от двух величин номинального значения мольной доли InAs в КЯ и относительного изменения периода решетки на поверхности кристаллизации в процессе роста эпитаксиальных слоев. Учет этих зависимостей и соответствующая модификация оригинальной модели сегрегации [4] позволили добиться высокой степени соответствия расчетных и экспериментальных профилей распределения атомов In в ГС $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$, а также обеспечили возможность расчета длины волны электролюминесценции с точностью не менее 2 нм. Для ГС с двумя близко расположенными квантовыми ямами расчет подтвердил наличие эффекта длинноволнового смещения длины волны межзонного перехода, который обусловлен влиянием механических напряжений в процессе роста.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант 06-02-16270).

Список литературы

- [1] A.A. Marmalyuk, O.I. Govorkov, A.V. Petrovsky et al. *J. Cryst. Growth*, **237–239**, 264 (2002).
- [2] R.Kh. Akchurin, A.Y. Andreev, O.I. Govorkov, A.A. Marmalyuk, A.V. Petrovsky. *Appl. Surf. Sci.* **188** (1–2), 209 (2002).
- [3] S. Hofmann. *Surf. Interf. Anal.*, **21**, 673 (1994).
- [4] K. Muraki, S. Fukatsu, Y. Shiraki, R. Ito. *Appl. Phys. Lett.*, **61**, 557 (1992).
- [5] K.J. Nakajima. *Cryst. Growth*, **126**, 511 (1993).
- [6] I.-H. Tan, G.L. Snider, L.D. Chang, E.L. Hu. *J. Appl. Phys.*, **68**, 4071 (1990).
- [7] D.W. Winston, R.E. Hayes. *Proc. Int. Symp. on Compound Semicond.* (San-Diego CA, 1994) p. 747.
- [8] *Quantum well lasers*, ed. by P.S. Zory, jr. (Academic Press, 1993).
- [9] В.П. Дураев, А.А. Мармалюк, А.В. Петровский и др. *Квант. электрон.* (принята к печати).

Редактор Т.А. Полянская

Influence of the segregation effects on electroluminescence spectrum of $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ MQW heterostructures obtained by MOCVD

R.Kh. Akchurin, A.Yu. Andreev*, L.B. Berliner, O.I. Govorkov⁺, V.P. Duraev⁺, A.A. Maldzhy, A.A. Marmalyuk*, A.A. Padaliitsa*, A.V. Petrovsky*, D.R. Sabitov*, A.V. Sukharev*

Moscow State Academy of Fine Chemical Technology, 119571 Moscow, Russia

* Sigm Plus Co,

117342 Moscow, Russia

⁺ POLYUS Research & Development Institute,

117342 Moscow, Russia

Abstract Surface segregation during $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ quantum wells heterostructures epitaxial growth noticeably changes the quantum wells nominal concentration profiles. Concentration profiles were precisely designed taking into account growth conditions and elastic strain influence on the segregation and stimulated luminescence wavelength were calculated. It was shown that longwave shift effect in the case of two closely set quantum wells concerned with concentration profiles alteration induced by elastic strain. The calculated results are in good agreement with electroluminescence experimental data.