Письма в ЖЭТФ, том 81, вып. 2, с. 70 – 73 © 2005 г. 25 января

Кинетика фотолюминесценции вюрцитных GaN квантовых точек в матрице AlN

Д. Д. Ри[1)], *В. Г. Мансуров, А. Ю. Никитин, А. К. Гутаковский, К. С. Журавлев, П. Тронк*[2)+]

Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

[+]*Laboratoire d'Optique Physique, Ecole Superieure de Physique et Chimie Industrielles, 75005 Paris, France*

Поступила в редакцию 7 декабря 2004 г.

Исследована фотолюминесценция (ФЛ) квантовых точек GaN в матрице AlN. Обнаружено, что максимум линии ФЛ не сдвигается в зависимости от мощности лазерного возбуждения. Из спектров нестационарной ФЛ было установлено, что кинетика затухания носит неэкспоненциальный характер и закон затухания зависит от спектрального диапазона. Экспериментальные данные объяснены в рамках модели, учитывающей сильное встроенное электрическое поле в вюрцитных структурах и транспорт носителей заряда между ними.

PACS: 78.55.Cr, 78.67.Hc

В последнее время интенсивно исследуются квантовые ямы (КЯ) и квантовые точки (КТ) на основе III-нитридов. Особый интерес представляют структуры, выращенные в фазе вюрцита. Это связано с наличием встроенного электрического поля вдоль оси (0001), вызванного спонтанной и пьезоэлектрической поляризацией материала КЯ (или точки) и барьера. Приводимые в литературе значения напряженности электрического поля для КТ GaN в матрице AlN варьируются от 3.8 МВ/см [1] до 7 МВ/см [2]. Такое сильное поле оказывает существенное влияние на оптические свойства структур с КТ.

Основным проявлением внутреннего электрического поля является квантоворазмерный эффект Штарка: в КТ большого размера (высота точек более 3 нм при среднем значении поля 5 МВ/см [3]) энергия рекомбинационного излучения меньше энергии ширины запрещенной зоны объемного ненапряженного GaN. В КТ малого размера энергия размерного квантования достаточно велика, поэтому энергия рекомбинационного излучения превышает энергию запрещенной зоны объемного GaN. В результате при изменении размеров КТ энергия рекомбинационного излучения варьируется в широком диапазоне от 2.3 до 4.2 эВ [3 – 6]. Кроме того, разноименные носители заряда пространственно разделяются электрическим полем, что приводит к увеличению времени их жизни.

Экранируя встроенное электрическое поле неравновесными носителями заряда, можно изменять энергетический спектр КТ, следовательно, и спектр эмиттируемого света и время жизни неравновесных носителей заряда [3]. Теоретические расчеты, выполненные в работе [1], показывают, что экранирование встроенного электрического поля двумя парами свободных носителей заряда приводит к смещению линии фотолюминесценции (ФЛ) GaN/AlN КТ на несколько десятков миллиэлектронвольт. Экспериментально обнаруженное смещение линии нестационарной ФЛ КТ при комнатной температуре [7] и при температуре жидкого гелия [8] составляет почти 1 эВ. Насколько нам известно, такой энергетический сдвиг является наибольшим для полупроводников и полупроводниковых структур. Объяснить такое большое смещение только экранированием встроенного электрического поля, очевидно, нельзя. Оценки показывают, что для обеспечения наблюдаемого сдвига за счет экранирования электрического поля в каждой КТ должно быть несколько десятков электрон-дырочных пар, что неизбежно вызовет быструю (от 0.1 до 1 нс) оже-рекомбинацию. Между тем смещение ФЛ наблюдается на протяжении нескольких миллисекунд после возбуждающего импульса.

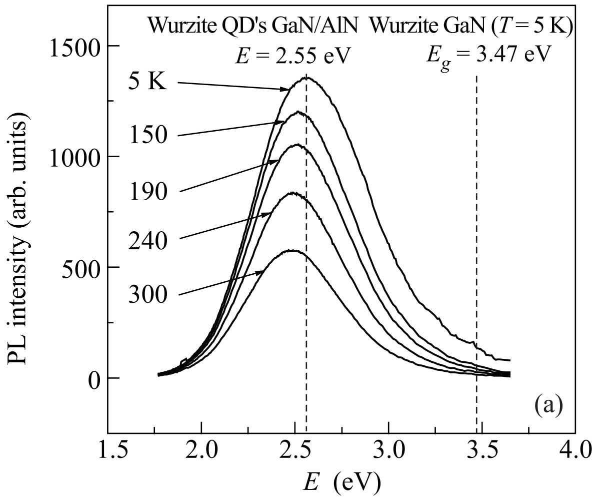
В данной работе для выяснения механизмов, определяющих спектр рекомбинационного излучения GaN КТ в матрице AlN при различных уровнях возбуждения, исследовалась стационарная и нестационарная ФЛ КТ.

Структуры с самоорганизованными GaN/AlN КТ были выращены методом МЛЭ на сапфировой подложке в направлении (0001). В качестве источника активного азота использовался NH_3. Данная последовательность слоев была реализована: на подложке

[1)]e-mail: redim@gorodok.net

[2)]P. Tronc.

сапфира был выращен буферный слой AlN (100 нм), затем на поверхности AlN формировались 3D островки GaN. С помощью дифракции быстрых электронов на отражение было установлено, что формирование островков происходит при чрезвычайно тонких покрытиях, соответствующих 2 монослоям GaN, без формирования двумерного слоя GaN. Эти данные были подтверждены при исследовании образцов методом высокоразрешающей просвечивающей электронной микроскопии. Также была определена высота (4–6 нм) и диаметр (15–20 нм) КТ (см. вставку к рис.1b). Плотность КТ не превышала 10^{11} см$^{-2}$.



Место для тонового рисунка

Рис.1. Стационарные спектры ФЛ. (a) Измеренные при различных температурах; (b) зависимость максимума линии ФЛ от температуры. На вставке к рисунку показано изображение КТ GaN в матрице AlN, полученное просвечивающим (TEM) микроскопом

Слой GaN КТ покрывался слоем 10 нм AlN. Для увеличения интенсивности излучения данная процедура повторялась 10 раз. Тем не менее, количество слоев с КТ было достаточно мало́, чтобы минимизировать эффекты, связанные с неравномерностью возбуждения КТ, которые обсуждались в работе [9].

Возбуждение стационарной фотолюминесценции проводилось He-Cd-лазером с длиной волны 325 нм (3.81 эВ) и второй гармоникой Ar^{+}-лазера с длиной волны 244 нм (5.08 эВ). Диаметр пятна возбуждающего света на образце равнялся примерно 0,25 мкм. Нестационарная ФЛ возбуждалась излучением импульсного азотного лазера (длина волны 337 нм, длительность импульса на полувысоте 7 нс) с частотой повторения импульсов 1 кГц. Плотность энергии в импульсе лазерного излучения составляла 0.02 мДж/см^2, диаметр пучка равнялся около 5 мм. Отметим, что энергия излучения всех используемых лазеров меньше ширины запрещенной зоны AlN (6.2 эВ).

На рис.1 представлены спектры стационарной ФЛ, измеренные при различных температурах, а также температурная зависимость положения максимума энергии ФЛ. Видно, что максимум ФЛ при 5 К находится вблизи 2.55 эВ, что примерно на 0.9 эВ ниже ширины запрещенной зоны объемного ненапряженного GaN (3.47 эВ). Ширина линии ФЛ на полувысоте составляет около 0.7 мэВ. Данная линия не наблюдалась в пленках GaN и AlN. С ростом температуры от 5 К до 300 К интенсивность ФЛ спадает примерно в 2.5 раза, что незначительно, форма и полуширина линии практически не изменяются (рис.1a), а максимум ФЛ сдвигается в область низких энергий примерно на 80 мэВ в соответствии с уменьшением ширины запрещенной зоны объемного GaN (рис.1b). Полученные данные свидетельствуют о том, что излучательная рекомбинация неравновесных носителей заряда проходит в GaN КТ.

Излучение GaN КТ ниже ширины запрещенной зоны объемного GaN обусловлено квантовым эффектом Штарка [10]. В работе [3] приведена зависимость энергии оптического перехода от высоты КТ при различных значениях электрического поля в КТ. Согласно этой зависимости, наблюдаемое излучение с энергией вблизи 2.55 эВ в КТ высотой 5 нм, равной средней высоте исследованных нами КТ, соответствует электрическому полю 5.5 МВ/см. Уширение линии ФЛ связано с флуктуациями размеров КТ. В выращенных структурах с КТ высота изменялась от 4 до 6 нм, что соответствует энергии рекомбинационного излучения в диапазоне от 2.2 эВ до 3.0 эВ при вышеуказанном значении поля. Слабый спад интенсивности ФЛ с температурой подтверждает наличие сильной локализации носителей заряда в КТ. Действительно, под действием встроенного электрического поля электроны и дырки смещаются к вершине и основанию КТ, соответственно, вследствие чего носители испытывают дополнительную локализацию у барьеров. С увеличением температуры степень локализации уменьшается, что приводит к увеличению вероятности захвата носителей заряда безызлучательными центрами, присутствующими в КТ.

На рис.2 представлены спектры стационарной ФЛ, измеренные при 13 К и различной мощности лазерного возбуждения.

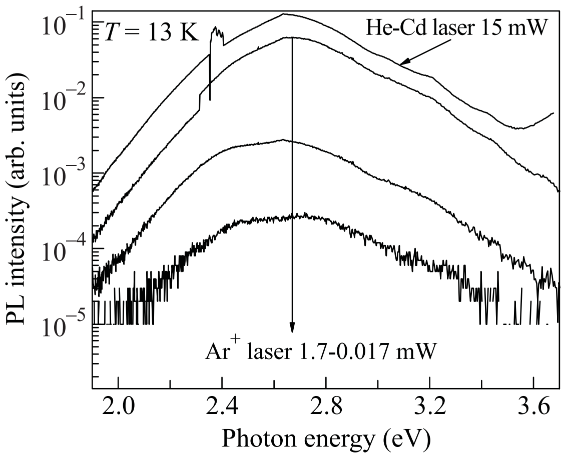


Рис.2. Стационарные спектры ФЛ, измеренные при различной мощности накачки при 13 К

Из рисунка видно, что спектр ФЛ КТ занимает весь диапазон видимого излучения. Заметное свечение в области энергий фотонов $h\nu > 3$ эВ связано с рекомбинацией в КТ сверхмалого размера, которые по данным электронной микроскопии также присутствуют в исследованных образцах. При изменении мощности накачки спектр ФЛ изменяется незначительно. Стоит отметить увеличение относительной интенсивности ФЛ в низкоэнергетической области спектра при понижении мощности накачки. При комнатной температуре такое относительное увеличение интенсивности ФЛ в “красной” области спектра выражено сильнее и спектр ФЛ смещался в “красную” сторону примерно на 200 мэВ при уменьшении мощности накачки от 10 до 0,01 мВт.

На рис.3a приведены спектры нестационарной ФЛ КТ при $T = 5$ К. Из этого рисунка видно, что при малых временах задержки после импульса возбуждения спектр ФЛ широкий, он перекрывает весь видимый диапазон. С течением времени после возбуждающего импульса линия ФЛ *сужается* и максимум смещается в низкоэнергетическую сторону от 3.0 до 2.2 эВ. Основной сдвиг линии ФЛ происходит за первые 10 мкс после импульса возбуждения. Уменьшение ширины спектра ФЛ свидетельствует о более быстрой рекомбинации неравновесных носителей заряда в КТ малого размера, чем в КТ большого размера.

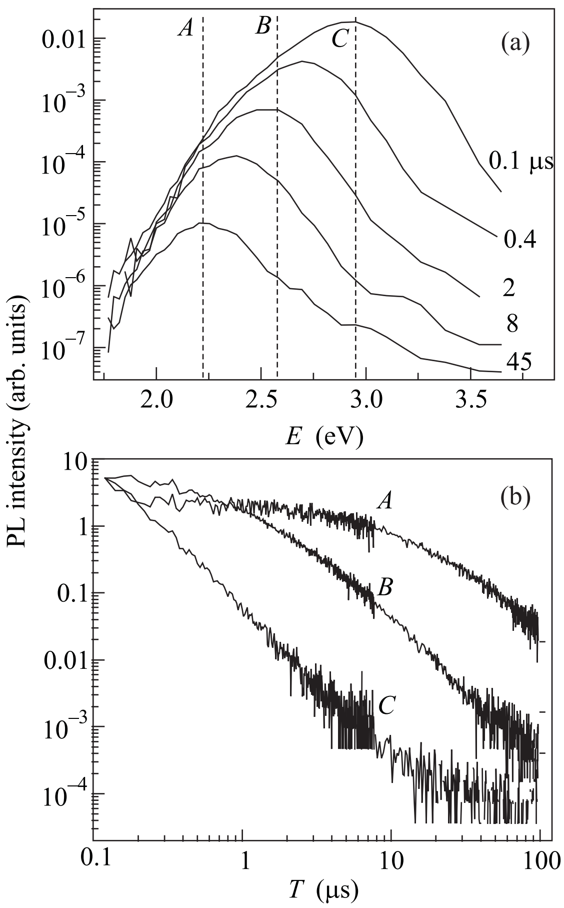


Рис.3. Спектры нестационарной ФЛ. (a) Измеренные в различные моменты времени после импульса возбуждения; (b) кривые затухания ФЛ в различных точках спектра

На рис.3b представлен закон затухания ФЛ в различных точках спектра. Видно, что во всех спектральных точках закон носит неэкспоненциальный характер и сильно изменяется по спектру. В высокоэнергетической части спектра закон затухания хорошо аппроксимируется законом $1/t^{\gamma}$ с $\gamma = 2$, который свидетельствует о значительной дисперсии времен жизни неравновесных носителей заряда в КТ. Наиболее интересным экспериментальным наблюдением является неизменность интенсивности ФЛ в течение порядка 10 мкс после импульса возбуждения на низкоэнергетическом крыле линии ФЛ (кривая A на рис.3b). Закон затухания ФЛ КТ практически не изменяется при повышении температуры измерений до 300 К. Измеренный нами закон затухания ФЛ КТ отличается от данных, приведенных в работе [2], в которой на основе измерений кинетики ФЛ в узком временном диапазоне (до 1 нс) был сделан вывод об экспоненциальности затухания ФЛ КТ. Тем не менее, в этой работе также было отмечено увеличение времени затухания ФЛ в "красной" области спектра. Обнаруженное нами достаточно длительное отсутствие затухания "красной" ФЛ означает, что концентрация неравновесных носителей заряда в "больших" КТ остается постоянной в течение этого времени. Следовательно, убыль из-за рекомбинации неравновесных носителей заряда в "больших" КТ покрывается за счет поступления носителей заряда извне. Следует заметить, что за это же время интенсивность ФЛ на высокоэнергетическом крыле линии затухает почти полностью (кривая C на рис.3b), то есть в "малых" КТ практически не остается неравновесных носителей заряда.

Представленные выше экспериментальные данные свидетельствуют о том, что огромное смещение линии нестационарной ФЛ в красную сторону со временем после возбуждающего импульса в первую очередь связано с зависимостью времени жизни неравновесных носителей заряда в КТ от высоты точек. Данная зависимость появляется вследствие наличия встроенного электрического поля в вюрцитных структурах с КТ. Этот вывод согласуется с данными теоретических расчетов [1], из которых следует, что при изменении высоты КТ на 1 нм время жизни неравновесных носителей заряда в КТ меняется более чем на порядок, а также экспериментальными данными по времени жизни в КТ, полученных другими авторами [7].

Необычный закон затухания ФЛ в "красной" области спектра, очевидно, связан с переходом носителей заряда из КТ малого размера в более крупные КТ. Достаточно большая плотность КТ в наших структурах дает основание для такого предположения. В пользу этого предположения свидетельствует также корреляция между временем начала затухания ФЛ "больших" КТ со временем полного опустошения "малых" КТ. Неизменность закона затухания ФЛ при повышении температуры свидетельствует о туннельном механизме перехода экситонов между КТ. В то же время приток носителей заряда с каких-либо локальных центров в матрице AlN привел бы к примерно одинаковому увеличению времени затухания ФЛ КТ с большими и малыми размерами. Следует отметить, что переход экситонов между КТ наблюдался ранее в других типах КТ, например, между InAs КТ в матрице AlAs [11].

Таким образом, в данной работе исследована ФЛ самоорганизованных КТ GaN в матрице AlN. Была обнаружена линия ФЛ ниже ширины запрещенной зоны GaN, связанная с рекомбинацией в КТ. В нестационарном спектре максимум линии смещается в красную сторону примерно на 1 эВ за несколько десятков микросекунд. Это смещение связано с зависимостью скорости рекомбинации носителей заряда от размера точки в сильном внутреннем электрическом поле. Длительное затухание низкоэнергетической области нестационарного спектра также обусловлено переносом неравновесных носителей из малых в большие КТ GaN.

1. V. Ranjan, G. Allan, C. Priester et al., Phys. Rev. **B68**, 115305 (2003).
2. J. Simon, N. T. Pelekanos, C. Adelman et al., Phys. Rev. **B68**, 035 312 (2003).
3. F. Widmann, J. Simon, B. Daudin et al., Phys. Rev. **B58**, R15989 (1998).
4. B. Damilano, N. Grandjean, F. Semond et al., Appl. Phys. Lett. **75**, 962 (1999).
5. P. Ramval, S. Tanaka, S. Nomura et al., Appl. Phys. Lett. **73**, 1104 (1998).
6. C. Adelmann, E. Sarigiannidou, D. Jalabert et al., Appl. Phys. Lett. **82**, 4154 (2003).
7. S. Kalliakos, T. Bretagnon, P. Lefebvre et al., J. Appl. Phys. **96**, 180 (2004).
8. K. S. Zhuravlev et al., *Proc. of the 27th Intern. Conf. on Physics of Semiconductors*, Flagstaff, USA, 2004 (принято в печать).
9. S. Kalliakos, These *Effects de fortes photo-excitations sur les puits et boites quantiques a base de nitrures d'elements lll (phase wurzite)*, 2003, p. 77.
10. G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, 1991, p. 308.
11. T. C. Шамирзаев, A. M. Гилинский, A. K. Бакаров и др. Письма в ЖЭТФ **77**, 459 (2003).