

УДК 621.375:625.325

ГЛОБАЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ ДИПОЛЬНОГО МАТРИЧНОГО ЭЛЕМЕНТА К ИЗМЕНЕНИЯМ ПАРАМЕТРОВ ПОВЕРХНОСТНОЙ СЕГРЕГАЦИИ ИНДИЯ В INGAN/GAN КВАНТОВОЙ ЯМЕ

М. В. Клименко

Лаб. «Фотоника», Харьковский национальный университет радиоэлектроники, Харьков, пр Ленина, 14
e-mail: mikhail-klimenko@yandex.ru

Поступила в редакцию 20 апреля 2009 г.

В работе исследовано влияние поверхностной сегрегации индия на дипольный матричный элемент InGaN/GaN гетероструктуры с квантовой ямой. Методом глобального анализа чувствительности было количественно оценено влияние поверхностной сегрегации индия на каждом из фронтов квантовой ямы. Совместно с поверхностной сегрегацией в работе рассматриваются пьезоэлектрические эффекты, характерные для полупроводниковых квантовых ям с кристаллической решеткой вюрцита. Показано, что совместное влияние пьезоэлектрических эффектов и поверхностной сегрегации индия приводит к изменению правил отбора для оптических переходов в исследуемой структуре. Полученные данные открывают возможность измерения поверхностной сегрегации индия методами оптической спектроскопии.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: поверхностная сегрегация индия, полупроводниковые нитриды, пьезоэлектрическая поляризация, дипольный матричный элемент, глобальный анализ чувствительности

В роботі досліджується вплив поверхневої сегрегації індія на дипольний матричний елемент InGaN/GaN гетероструктури з квантовою ямою. Методом глобального аналізу чутливості був кількісно оцінений вплив поверхневої сегрегації індія на кожному з фронтів квантової ями. Разом з поверхневою сегрегацією індія в роботі розглядаються п'єзоелектричні ефекти, що характерні для квантових ям з кристалічною решіткою вюрциту. Було показано, що сумісний вплив п'єзоелектричних ефектів та поверхневої сегрегації індія призводять до зміни правил відбору для оптичних переходів в структурі, що досліджується. Отримані дані відкривають можливість вимірювання поверхневої сегрегації індія методами оптичної спектроскопії.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: поверхнева сегрегація індія, напівпровідникові нітриди, п'єзоелектрична поляризація, дипольний матричний елемент, глобальний аналіз чутливості

In this paper, influence of the indium surface segregation on dipole matrix element for InGaN/GaN heterostructure is under investigation. The global sensitivity analysis has been applied for quantitative estimation of the indium surface segregation effect at each interface of the quantum well. Together with the indium surface segregation, the piezoelectric effects are considered. It has been shown that joint action of the piezoelectric fields and the indium surface segregation leads to changes in the selection rules for optical transitions. Results give the method to apply the optical spectroscopy for observation of the indium surface segregation.

KEY WORDS: indium surface segregation, semiconductor nitrides, piezoelectric polarization, dipole matrix element, global sensitivity analysis

Полупроводниковые гетероструктуры на основе полупроводниковых нитридов III-V группы, являются подходящими активными средами для полупроводниковых лазеров, излучающих в диапазоне длин волн 350-500 нм [1]. Однако, в настоящее время, существует ряд проблем, осложняющих прогнозирование их свойств и, следовательно, проектирование. Эффектами, которые приводят к трудностям прогнозирования параметров гетероструктур на нитридах, являются поверхностная сегрегация индия [2], наличие пьезоэлектрической [3] и спонтанной поляризации [1]. В случае приложения в оптоэлектронике, особый интерес представляет прогнозирование оптических спектральных характеристик. В одночастичном приближении, оптический отклик полупроводниковой гетероструктуры может быть описан с применением «Золотого правила Ферми», позволяющего вычислить вероятность процессов рассеяния во втором порядке теории возмущения. Согласно этому правилу, в дипольном приближении, вероятность оптического перехода пропорциональна квадрату модуля дипольного матричного элемента (МЭ) и функциям распределения носителей заряда [4]. МЭ накладывает правила отбора на энергетические переходы [4]. В этой работе мы пользуемся приближением, согласно которому функции распределения частиц не подвержены воздействию рассматриваемых эффектов, а определяются только температурой (система, представляющая собой электронно-дырочную плазму, находится в состоянии термодинамического квазиравновесия). Для того, чтобы количественно оценить влияние поверхностной сегрегации индия на оптические свойства гетероструктур, в этой работе проводится глобальный анализ чувствительности [5] МЭ к вариациям параметров сегрегации. Метод глобального анализа чувствительности в настоящее время широко

применяется во многих отраслях знаний, включая механику, финансы, экономику и пр., благодаря тому, что был строго математически сформулирован и описан в 2000х годах [5]. До этого времени этот метод также применялся широко, однако использовался под разными названиями и в разных формулировках.

ПОВЕРХНОСТНАЯ СЕГРЕГАЦИЯ ИНДИЯ И ЕЕ ПАРАМЕТРИЗАЦИИ

На рис.1а изображено распределение индия в полупроводниковой структуре с тремя квантовыми ямами, полученное в [2] методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). Номинальное значение ширины каждой квантовой ямы составляет 5 нм.

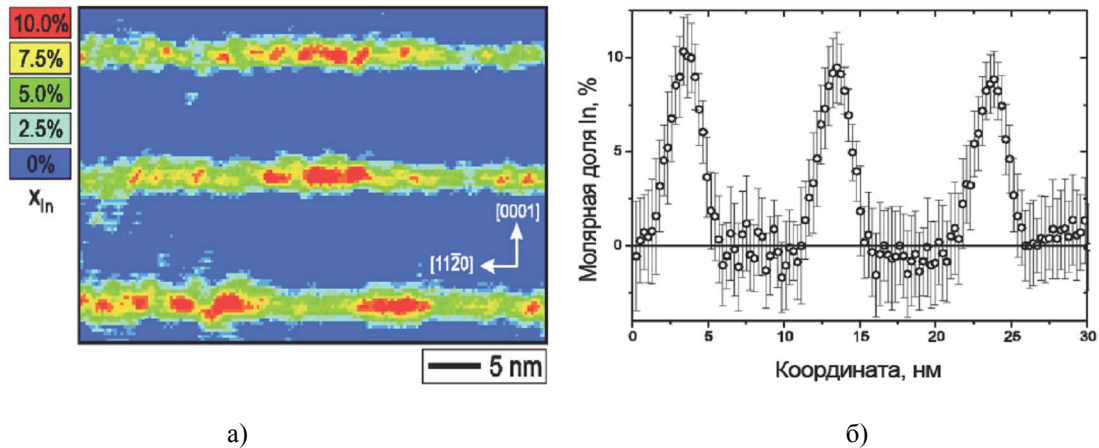


Рис.1 а) Распределение индия в $In_{0.1}Ga_{0.9}N/GaN$ гетероструктуре с тремя квантовыми ямами; б) поперечное распределение среднего значения концентрации индия (данные взяты из работы [2])

Неоднородное распределение индия в пределах номинальной ширины квантовой ямы, называемое поверхностной сегрегацией индия, в $In_xGa_{1-x}N/GaN$ гетероструктурах возникает вследствие большой разницы между энтальпиями образования химической связи в GaN и InN полупроводниковых материалах [6]. Величина сегрегации зависит от метода выращивания кристалла. Однако, основываясь на исследованиях, проведенных в работе [7], можно сделать вывод, что оба наиболее распространенных способа изготовления квантоворазмерных гетероструктур - молекулярно-пучковая эпитаксия и метод осаждения из газообразной фазы - приводят к поверхностной сегрегации, хотя и в различной степени. В случае молекулярно-пучковой эпитаксии поверхностная сегрегация выражена более ярко, однако, в случае осаждения из газообразной фазы - при наличии меньшей сегрегации больше проявляются эффекты кластеризации индия.

Если усреднить концентрацию индия вдоль направления [1120], получим поперечное распределение средней концентрации индия, изображенное на рис. 1(б).

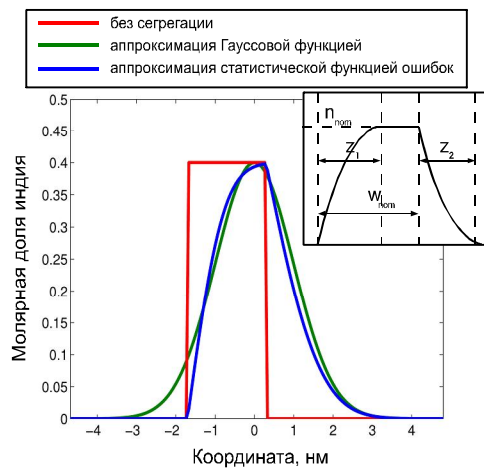


Рис. 2. Различные подходы к аппроксимации поперечного распределения индия в гетероструктуре с квантовой ямой

Существует несколько подходов к моделированию поперечного распределения индия в полупроводниковой структуре с сегрегацией. В некоторых работах используется функция Гаусса для аппроксимации потенциала квантовой ямы с учетом неравномерного распределения индия. В этом

случае, ширина функции Гаусса является подгоночным параметром, определяемым из эксперимента или дополнительных вычислений. Аппроксимация с использованием функции Гаусса приводит к симметричному профилю распределения индия, как показано на рис.2. Однако, как показывают результаты ПЕМ экспериментов, поверхностная сегрегация индия обладает ярко выраженной асимметрией - расслоение индия на переднем фронте квантовой ямы обычно меньше чем на заднем. В связи с этим, мы используем более сложный подход к моделированию распределения индия в InGaN/GaN структурах, основанных на законе Фика [8]. В этом случае распределения индия описывается выражением [6]:

$$n_{In}(z) = \begin{cases} 0, & z < z_1 \\ n_{nom} \operatorname{erf}\left(\frac{z-z_1}{L_1}\right), & z_1 \leq z < z_2 \\ n_{nom} \operatorname{erf}\left(\frac{z-z_1}{L_1}\right) \left[1 - \operatorname{erf}\left(\frac{z-z_2}{L_2}\right)\right], & z_2 \leq z \end{cases} \quad (1)$$

Выражение (1) приводит к асимметричному распределению индия. Формула (1) рассматривается нами, как аппроксимационная формула с двумя свободными параметрами L_1 и L_2 , называемыми длинами поверхностной сегрегации и определяемыми на основе экспериментальных данных. Поскольку, в отличие от Гауссовой функции, формула (1) содержит большее число параметров, она позволяет точнее аппроксимировать распределение индия. В общем случае, параметры L_1 и L_2 неравны друг другу.

Оказывая влияние на потенциал, пьезоэлектрические эффекты и сегрегация, действуя совместно, обуславливают некоторое изменение спектра энергетических состояний, волновых функций носителей заряда и, следовательно, спектральных оптических характеристик. Поскольку последние можно получить экспериментально, то существует возможность наблюдать эти неоднородности методами оптической спектроскопии. Однако, как и в случае пьезоэлектрических эффектов, для интерпретации экспериментальных спектроскопических данных необходимо построить теорию, связывающую неоднородности полупроводникового раствора (сегрегацию и кластеризацию индия) с оптическими спектральными характеристиками.

Существует несколько экспериментальных методов, позволяющих наблюдать поверхностную сегрегацию индия в InGaN/GaN структурах, альтернативных оптической спектроскопии. Это такие методы, как метод ПЕМ [8], [9], метод дифракции отраженных электронных пучков высоких энергий (ДОЭПВЭ) [10] и дифракция рентгеновских пучков (ДРЛ) [11]. Однако, все перечисленные выше методы имеют существенные недостатки в случае их применения к рассматриваемым структурам. ПЕМ может обуславливать дополнительные наведенные деформационные эффекты в кристаллической решетке. Такие деформационные эффекты обусловлены длительным воздействием пучка электронов на кристаллическую решетку [12]. Величина деформации зависит от интенсивности и длительности электронного пучка. Этот эффект приводит к появлению систематической погрешности в измеряемых характеристиках. ДОЭПВЭ измерения проводятся в процессе роста полупроводниковой структуры методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Этот подход не может применяться повторно, когда структура уже изготовлена. ДРЛ метод характеризуется низкой чувствительностью для неоднородностей меньше одного нанометра. Толщины квантовых ям в исследуемых структурах составляют от 0.5 до 10 нм. Еще одним недостатком этого метода является сложность интерпретации измеряемых данных. В ДРЛ измеряемыми данными является угловое распределение интенсивности дифрагированных рентгеновских лучей. Эти экспериментальные данные необходимо обработать с помощью сложной математической модели, чтобы получить измеряемые параметры, такие как состав исследуемого раствора и толщины слоев структуры. В отличие от ДРЛ, методы ПЕМ и ДОЭПВЭ дают более наглядные и доступные прямой интерпретации данные. Оптическая лазерная спектроскопия лишена большинства описанных выше недостатков, однако, она требует наличия теоретической модели, позволяющей интерпретировать ее данные. Данная работа направлена на разработку такой модели.

В этой работе мы рассмотрим $\text{In}_{0.37}\text{Ga}_{0.63}\text{N}/\text{GaN}$ гетероструктуру с квантовой ямой, толщина которой составляет 2 нм. Такая структура может быть применена в полупроводниковых лазерах для генерации в ультрафиолетовом диапазоне частот.

ГЛОБАЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ

Анализ чувствительности позволяет выяснить, насколько чувствительны оптические свойства системы по отношению к параметрам поверхностной сегрегации. В случае, если чувствительность будет низкой, можно в теоретических моделях вместо потенциального рельефа сложной формы использовать приближение "резкого гетероперехода." Кроме того, можно оценить какой из параметров сегрегации

сильнее влияет на оптические свойства. Может возникнуть ситуация, когда сегрегация поверхности одной из стенок квантовой ямы имеет большее влияние по сравнению с другой. Это позволит изменить технические требования к выращиванию рассматриваемых полупроводниковых гетероструктур с целью оптимизации технологии роста.

Глобальный анализ чувствительности применяется для исследования чувствительности выходных параметров математической модели по отношению к изменениям входных параметров. В рамках этой работы, мы применили глобальный анализ чувствительности для исследования математической модели МЭ. При этом МЭ рассматривался только для центра зоны Бриллюэна, т.е. соответствующего волновым векторам $|\vec{k}| = 0$. Полученные результаты должны отражать поведение системы в целом, поскольку носители заряда в прямозонном полупроводнике сосредоточены в большинстве именно в окрестности этой точки k -пространства.

Как правило, глобальный анализ чувствительности проводится с применением метода Монте-Карло и состоит из следующих этапов [5]:

1) Составление $N \times M$ матрицы входных параметров, генерируемых случайным образом. В этой работе мы используем генератор случайных чисел с равномерным распределением. N - число численных экспериментов Монте-Карло, а M - число входных параметров, по отношению к которым исследуется чувствительность. В нашем случае, входными параметрами являются длины сегрегации L_1 и L_2 ($M=2$).

2) Матрица случайно генерируемых параметров N раз передается в исследуемую математическую модель S - проводится N численных экспериментов.

$$\begin{bmatrix} L_1^{(1)} & L_2^{(1)} \\ L_1^{(2)} & L_2^{(2)} \\ \vdots & \vdots \\ L_1^{(N)} & L_2^{(N)} \end{bmatrix} \xrightarrow{S} \begin{bmatrix} \mu_{11}^{(1)} & \mu_{12}^{(1)} \\ \mu_{11}^{(2)} & \mu_{12}^{(2)} \\ \vdots & \vdots \\ \mu_{11}^{(N)} & \mu_{12}^{(N)} \end{bmatrix} \quad (2)$$

Выходными данными исследуемой математической модели являются МЭ μ_{11} и μ_{12} для оптических переходов в центре зоны Бриллюэна, где $|\vec{k}| = 0$, и для случая ТЕ поляризации электромагнитного поля.

3) После серии численных экспериментов Монте-Карло, получим матрицу выходных данных, в которой колонки соответствуют каждому выходному параметру, а строки - реализациям численных экспериментов. Результаты могут быть визуализированы в виде множества точек на графике, где по оси абсцисс отложен один из входных параметров, а по оси ординат - один из выходных параметров. Полученное "облако точек" аппроксимируем линейной функцией, воспользовавшись методом линейной регрессии. Производная линейной функции позволит получить коэффициент чувствительности, позволяющий численно оценить чувствительность системы к заданному входному параметру:

$$S_{L_m}^{\mu_{ij}} = \frac{\sigma_{L_m}}{\sigma_{\mu_{ij}}} \frac{\partial \mu_{ij}}{\partial L_m} \quad (3)$$

где σ_{L_m} и $\sigma_{\mu_{ij}}$ - среднеквадратические отклонения, которые в этой работе равны $\sigma_{L_m} = 0.08$ нм и $\sigma_{\mu_{ij}} = 0.1$.

ДИПОЛЬНЫЙ МАТРИЧНЫЙ ЭЛЕМЕНТ

МЭ определяет правила отбора на оптические переходы в полупроводниках в дипольном приближении. Он необходим для вычисления спектральных оптических характеристик полупроводниковых структур с использованием «Золотого правила Ферми» [4].

Для кристаллов со структурой кристаллической решетки типа вюрцита, дипольный матричный элемент может быть выражен через интегралы перекрытия огибающих функций электронов и дырок [4]. Огибающие функции и зонная структура энергетического спектра вычислялись с помощью шестизонной модели для валентной зоны и параболического приближения для зоны проводимости. Формула для дипольного матричного элемента для ТЕ поляризации в этом случае имеет вид [4]:

$$\mu_{ij}^U(k) = \langle \psi_i | ex | \psi_j \rangle^2 = \frac{|\langle S | x | X \rangle|^2}{4} \left[\langle \phi_e | g_m^{(1)} \rangle^2 + \langle \phi_e | g_m^{(2)} \rangle^2 \right] \quad (4)$$

$$\mu_{ij}^L(k) = \left| \langle \psi_i | ex | \psi_j \rangle \right|^2 = \frac{\left| \langle S | x | X \rangle \right|^2}{4} \left[\langle \phi_e | g_m^{(4)} \rangle^2 + \langle \phi_e | g_m^{(5)} \rangle^2 \right] \quad (5)$$

где: $\mu_{ij}^L(k)$ и $\mu_{ij}^U(k)$ - квадраты модулей дипольных матричных элементов, соответствующих переходам между i -й подзоной зоны проводимости и j -й подзоной валентной зоны для двух различных проекций спина; ψ_i - волновая функции носителя заряда для i -й подзоны; S , X и Z амплитудные множителя Блоха для различных типов симметрии, определяемыми на основе представления группы преобразований симметрии для гексагональной решетки; ϕ_e - огибающая функция для электрона в однозонном приближении; $g_m^{(j)}$ - огибающая функция для дырок в шестизонном приближении, соответствующая m -й подзоне и j -му типу валентной зоны.

АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ

Результаты глобального анализа чувствительности для переходов между первой подзоной зоны проводимости E1 и первыми двумя подзонами валентной зоны (H1 и H2) представлены на рис. 3.

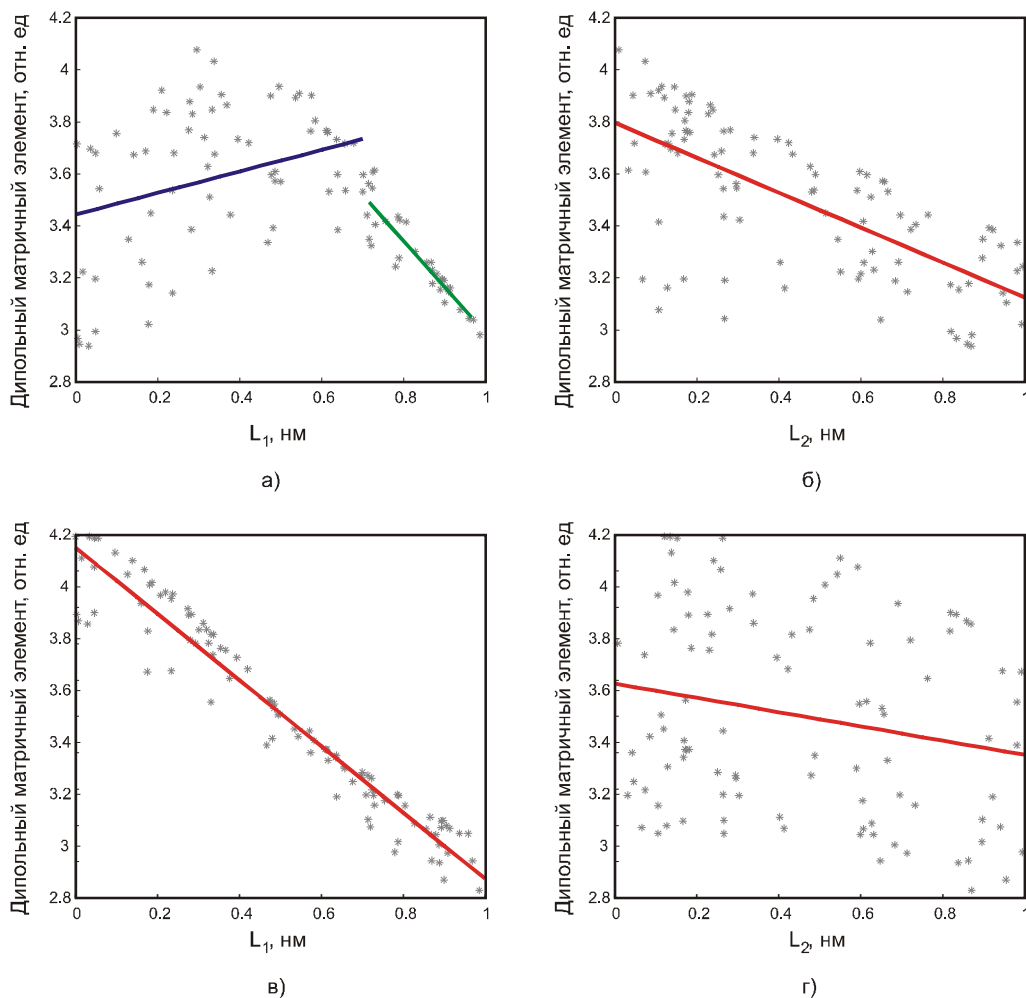


Рис. 3. Результаты глобального анализа чувствительности для дипольных матричных элементов μ_{11} (а и б) и μ_{12} (в и г), и различных параметров сегрегации L_1 (а и в) и L_2 (б и г)

Данные на рисунке содержат точки – результаты серии численных экспериментов и линейные аппроксимации, полученные методом линейной регрессии. Коэффициенты чувствительности для всех случаев представлены в таблице 1.

Таблица 1 – Коэффициенты чувствительности ($\times 10^{-8}$)

	L_1	L_2
μ_{11}	0.030 для $0 \leq L_1 < 0.7$ -0.147 для $0.7 \leq L_1 \leq 1.0$	-0.047
μ_{12}	-0.149	-0.033

На основе полученных результатов можно сделать вывод, что наиболее чувствительным к изменениям длины поверхностной сегрегации является дипольный матричный элемент для перехода между первой подзоной зоны проводимости E1 и второй подзоной валентной зоны H2. На рис.4 изображены огибающие функции, соответствующие состояниям в рассматриваемых подзонах при $|\vec{k}| = 0$. Как следует из результатов, наиболее чувствительными к сегрегации являются дипольные матричные элементы, которые соответствуют переходам с участием четных состояний. Это объясняется тем, что огибающие функции для четных состояний имеют максимумы плотности вероятности, расположенные ближе к стенкам квантовой ямы, где и происходит поверхностная сегрегация. Кроме того, вследствие асимметрии внутренних полей структуры, обусловленных наличием пьезоэлектрической поляризации, для второго четного состояния при отсутствии сегрегации характерна асимметрия огибающей функции – один из пиков на 40% выше второго. Поверхностная сегрегация приводит к выравниванию пиков, что приводит к изменению интеграла перекрытия огибающих функции и, следовательно, к изменению дипольного матричного элемента, согласно формулам.

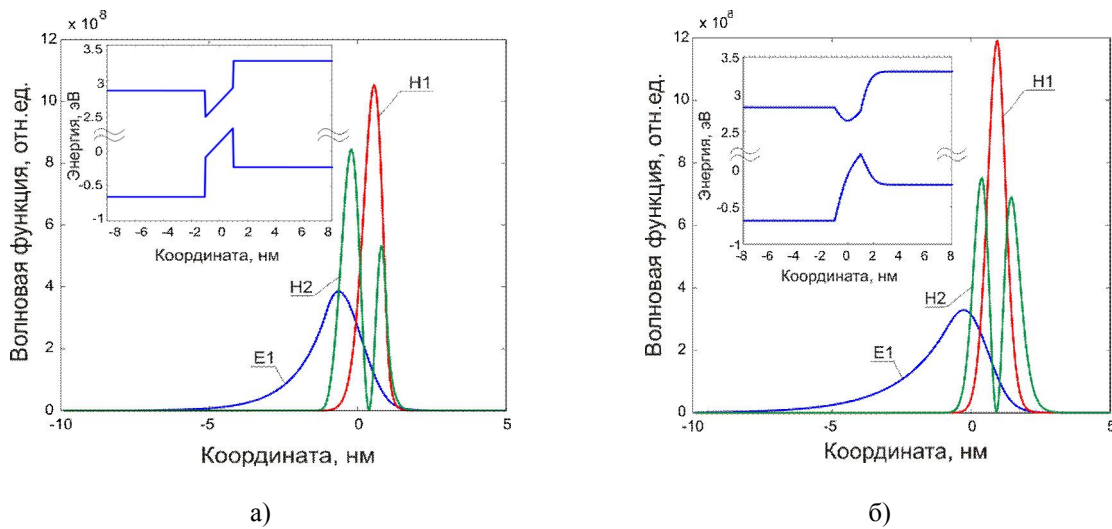


Рис. 4. Огибающие функции электронов и дырок а) без учета поверхностной сегрегации индия и б) с учетом поверхностной сегрегации индия

К большим изменениям в дипольном матричном элементе приводят вариации длины сегрегации L_1 . То, что одинаковая поверхностная сегрегация индия для разных фронтов квантовой ямы в разной степени влияет на дипольный матричный элемент, объясняется асимметрией внутренних электростатических полей структуры, обусловленной наличием пьезоэлектрических эффектов. Благодаря наличию пьезоэлектрических эффектов чувствительность дипольного матричного элемента и, следовательно, оптических характеристик к поверхностной сегрегации довольно высокая. В случае, если бы потенциальный профиль квантовой ямы был симметричным чувствительность была бы гораздо ниже.

Интересной особенностью характеризуется коэффициент чувствительности МЭ для перехода E1-H1 к изменениям длины сегрегации L_1 (рис 4 (а)). В этом случае, коэффициент чувствительности обладает ярко выраженной зависимостью от самого входного параметра, т.е. от длины сегрегации L_1 . Для длин $0 \leq L_1 < 0.7$, коэффициент чувствительности равен 0.030, а для $0.7 \leq L_1 \leq 1.0$ - $s_{L_1}^{\mu_{11}} = -0.147$. Такое поведение коэффициента чувствительности объясняется изменением глубины квантовой ямы с ростом длины сегрегации L_1 при достаточно больших значениях L_1 .

ВЫВОДЫ

В работе исследовано влияние поверхностной сегрегации индия в InGaN/GaN гетероструктуре с квантовой ямой методом глобального анализа чувствительности. Показано, что поверхностная сегрегация индия переднего и заднего фронтов квантовой ямы в различной степени влияет на дипольный матричный элемент.

Переходы между разными подзонами по разному подвержены воздействию сегрегации индия. Другими словами, поверхностная сегрегация индия изменяет правила отбора на оптические переходы между подзонами. Это позволяет использовать методы оптической спектроскопии для измерения сегрегации вместо других экспериментальных техник, содержащих принципиальные недостатки, описанные выше.

Поверхностная сегрегация индия изменяет потенциальный рельеф гетероструктуры, действуя совместно с пьезоэлектрическими эффектами и эффектами спонтанной поляризации. Рассмотрение поверхностной сегрегации отдельно, без учета этих эффектов, приводит к качественно неверному результату.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Piprek J., *Nitride semiconductor device*. – Wiley-VCH Verlag GmbH & Co., 2007
2. Witzigmann B., et al, Microscopic analysis of optical gain in InGaN/GaN quantum wells // *Appl. Phys. Lett.* – 2006. –v. 88. – P. 021104 1–3
3. Fiorentini V., Bernardini F. and Ambacher O., Evidence for nonlinear macroscopic polarization in III-V nitride alloy heterostructures // *Appl. Phys. Lett.* – 2002. –v. 80. – P. 12041206 1–3
4. Chuang S.L., *Physics of optoelectronics devices*. – John Wiley and Sons., 1995
5. Saltelli A. et al, *Global sensitivity analysis: the primer*. - John Wiley and Sons., 2008
6. Mayrock O., Wünsche H.-J. and Hennenberger F., Polarization charge screening and indium surface segregation in (In, Ga)N/GaN single and multiple quantum wells // *Phys. Rev. B* – 2000. – v.62. – P. 1687016880 1–6
7. Potin V., et al, Comparison of the indium distribution in InGaN/GaN quantum well structures grown by molecular beam epitaxy and metalorganic vapor phase epitaxy // *J. Crystal Growth* – 2004. – v.262. – P. 145150 1–4
8. Biswas D., Kumar S. and Das T., Band offsets of InGaN/GaN quantum wells reestimated // *Thin Solid Films* – 2007. – v.515. – P. 4488-4491
9. Stanley I., Coleiny G. and Venkat R., Theoretical study of In desorption and segregation kinetics in MBE growth of InGaAs and InGaN // *J. Crystal Growth* – 2003. – v.251. – P. 2328-2331
10. Martini S., et al, Influence of indium segregation on the RHEED oscillations during the growth of InGaAs layers on a GaAs (0 0 1) surface // *J. Crystal Growth* – 2003. – v.251. – P. 101105 1-3
11. Pereira S., et al, Strain and composition distributions in wurtzite InGaN/GaN layers extracted from x-ray reciprocal space mapping // *Appl.Phys.Lett.* – 2002. – v.80. – P. 39133915 1-6
12. Li T., et al, Indium redistribution in an InGaN quantum well induced by electron-beam irradiation in a transmission electron microscope // *Appl.Phys.Lett.* – 2005. – v.86. – P. 241911 1-6