

УДК 621.375:625.325

**СПЕКТРАЛЬНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПОГЛОЩЕНИЯ В INGAN/GAN
ГЕТЕРОСТРУКТУРАХ С ОДИНОЧНОЙ КВАНТОВОЙ ЯМОЙ****М. В. Клименко**

Лаб. «Фотоника», Харьковський національний університет радіоелектроніки, Харків, пр. Леніна, 14

e-mail: mikhail-klimenko@yandex.ru

Поступила в редакцію 20 августа 2010 г.

В работе исследовано влияние пьезоэлектрического эффекта, эффекта спонтанной поляризации, экранирования электронно-дырочной плазмы и поверхностной сегрегации индия на спектральные характеристики поглощения и усиления с учетом коллективных эффектов. В результате исследования, было установлено, что поверхностная сегрегация индия приводит к сдвигу красной границы поглощения в область высоких частот. Величина сдвига зависит от молярной доли индия и почти не зависит от ширины квантовой ямы. Коллективные эффекты приводят к сдвигу спектральных характеристик в область малых частот, вследствие эффектов обмена, и к появлению экситонных пиков, вследствие кулоновского взаимодействия между электронами и дырками. Пьезоэлектрическая поляризация приводит к ослаблению экситонных резонансов и общему уменьшению поглощения и усиления.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: полупроводниковые нитриды, пьезоэлектрическая поляризация, поверхностная сегрегация индия, полупроводниковые уравнения Блоха, спектральная характеристика поглощения

У роботі досліджено сумісний вплив п'єзоелектричного ефекту, екранування електронно-діркової плазми та поверхневої сегрегації індію на спектральні характеристики поглинання та підсилення з урахуванням колективних ефектів. В результаті дослідження, було встановлено, що поверхнева сегрегація індію призводить до зміщення червоної границі поглинання в область великих частот. Величина зміщення залежить від молярної частки індію та майже не залежить від ширини квантової ями. Колективні ефекти призводять до зміщення спектральних характеристик підсилення в область низьких частот, внаслідок ефектів обміну, та появи екситонних піків, внаслідок кулонівської взаємодії між електронами та дірками. П'єзоелектрична поляризація призводить до зменшення екситонних резонансів та зменшення коефіцієнта поглинання та підсилення.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: напівпровідникові нітриди, п'єзоелектрична поляризація, поверхнева сегрегація індію, напівпровідникові рівняння Блоха, спектральна характеристика поглинання

In this paper, we have investigated joint influence of piezoelectric polarization, charge screening and surface segregation on absorption and gain spectra including into consideration many-body effects. As a result of investigations, it has been determined that the indium surface segregation leads to blue shift of absorption red edge. This shift is strongly dependent on the indium molar fraction, and it is almost independent on the quantum well width. Many-body effects leads to red-shift of spectra due to exchange interactions. Also, these effects lead to appearing of excitonic peaks in absorption spectra due to Coulomb interactions between electrons and holes. The piezoelectric polarization causes decreasing of exciton resonances and lowering of absorption and gain coefficients.

KEY WORDS: semiconductor nitrides, piezoelectric polarization, indium surface segregation, semiconductor Bloch equations, absorption spectrum

ВВЕДЕНИЕ

Создание компактных высокоэффективных полупроводниковых оптоэлектронных приборов, которые генерируют электромагнитное излучение высокой интенсивности в диапазоне длин волн 300-500 нм, является чрезвычайно актуальной задачей в связи с существующим огромным спросом на эти приборы в экспериментальной физике, медицине и промышленности [1]. Проектирование и совершенствование этих оптоэлектронных приборов сталкивается с трудностями, которые обусловлены сильной зависимостью их оптических характеристик от условий процесса эпитаксиального роста [2], которые описываются температурой подложки и парциальными давлениями молекулярных пучков компонентов [3]. Такая зависимость связана с наличием ряда физических эффектов, присущих в большей мере в полупроводниковых нитридах и почти не проявляющихся в гетероструктурах на основе арсенидов. К ним относятся случайные изменения молярных долей компонентов в плоскости квантовой ямы [2] и поверхностная сегрегация [4], результаты экспериментального исследования которых опубликованы в работах [5]-[10]. Эти эффекты совместно с разрывами энергетических зон определяют потенциальный рельеф гетероструктуры. В настоящее время невыясненным остается вопрос, как воздействие поверхностной сегрегации на спектральные характеристики поглощения и усиления зависит от ширины квантовой ямы и содержания индия в ней. Ответы на эти вопросы позволят с большой точностью предсказывать оптические характеристики проектируемых приборов, что необходимо в процессе их конструирования и дальнейшего совершенствования.

ОПТИЧЕСКИЙ ОТКЛИК INGAN/GAN ГЕТЕРОСТРУКТУР С КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ

Построенная математическая модель основана на решении системы полупроводниковых уравнений Блоха [11]. В приближении термодинамического квазиравновесия система уравнений будет содержать только уравнения, описывающие недиагональные элементы матрицы плотности P_k :

$$i\hbar \frac{dp_k}{dt} = [E_{c,k} - E_{v,k} - E_{ia}^{cv}(k)]p_k + (n_{c,k} - n_{v,k}) \left[d_k^{cv} E(t) + \sum_{q \neq k} V_{|k-q|} P_q \right] + i\gamma p_k, \quad (1)$$

где \hbar - постоянная Планка; $E_{c,k}$ и $E_{v,k}$ - зонная структура зоны проводимости и валентной зоны соответственно; $E_{ia}^{cv}(k)$ - энергия обменного взаимодействия; $n_{c,k}$ и $n_{v,k}$ - функции распределения электронов и дырок соответственно, d_k^{cv} - дипольный матричный элемент; $E(t)$ - амплитуда электромагнитного поля; $V_{|k-q|}$ - Фурье-трансформанта кулоновского потенциала взаимодействия; γ - уширение спектральной линии за счет дефазировки.

Элементы матрицы плотности p_k представляют собой микроскопическую поляризацию, которая связана со спектральной характеристикой поглощения следующим выражением:

$$\alpha(\omega) = \frac{1}{V} \frac{\omega}{cn} \text{Im} \left\{ \frac{F[\sum_k \Omega_k p_k(t) + c.c.]}{F[E(t)]} \right\} \quad (2)$$

где ω - циклическая частота; V - объем активной области; n - показатель преломления; $F[\bullet]$ - оператор Фурье преобразования; Ω_k - частота Раби.

Частота Раби, также как и энергия перехода перенормируется вследствие действия коллективных эффектов. Выражение для частоты Раби с учетом перенормировки имеет вид:

$$\Omega_k = \frac{d_k^{cv} E(t)}{\hbar} + \frac{1}{\hbar} \sum_{k' \neq k} V_{|k-k'|} p_{k'} \quad (3)$$

В выражениях (1) и (3) присутствует зависимость кулоновского потенциала взаимодействия от волновых векторов. В этой работе кулоновский потенциал вычислялся с учетом экранирования, обусловленного действием электронно-дырочной плазмы:

$$V_{|k-k'|} = \frac{V_{|k-k'|}^{bare}}{\varepsilon(k, \omega)} \quad (4)$$

где $V_{|k-k'|}^{bare}$ - кулоновский потенциал в пустом пространстве; $\varepsilon(k, \omega)$ - диэлектрическая проницаемость плазмы.

В этой работе для учета экранирования кулоновского потенциала электронно-дырочной плазмой мы использовали формулу Линдхарда [12]. Эта формула позволяет вычислить продольную диэлектрическую функцию электронного газа в приближении случайных фаз. Детали вычисления кулоновского потенциала с учетом экранирования приведены в [12].

Особенностью полупроводниковых нитридов, обладающих кристаллической структурой вюрцита, является наличие внутренних электростатических полей, обусловленных пьезоэлектрической и спонтанной поляризацией [13]. Эти поля оказывают воздействие на зонную структуру энергетического спектра, дипольные матричные элементы и, следовательно, оптические характеристики. В этой работе зонная структура, представленная в уравнении (1) выражениями $E_{c,k}$ и $E_{v,k}$, вычислялась с использованием кр-метода в приближении огибающей функции [14].

Обыкновенное дифференциальное уравнение (1) является частью системы уравнений, записанных для каждой точки зоны Бриллюэна. Эти уравнения связаны друг с другом через члены, содержащие кулоновский потенциал. В этой работе система уравнений решалась методом Рунге-Кутты 4-го порядка.

Для корректного решения данной системы необходимо правильно выбрать границы вычислительного домена времени и волновых векторов. Граница множества волновых векторов должна

быть выбрана таким образом, чтобы охватить все заселенные состояния носителей заряда, подчиняющихся распределению Ферми-Дирака. В этом случае границы домена зависят от температуры и концентрации неравновесных носителей заряда. Выбор шага дискретизации по волновым векторам определяет точность вычисления интегралов (сумм) по волновым векторам в уравнении (1). Границы временного интервала, на котором ищется решение уравнения (1), должно быть выбрано таким образом, чтобы микроскопическая поляризация, возникшая вследствие действия оптического излучения, успела полностью затухнуть. Скорость затухания оптических возбуждений определяется временем дефазировки и зависит от интенсивности неупругих рассеяний в полупроводниковой среде. Шаг дискретизации по времени должен быть намного меньше периода колебаний Раби. Таким образом, временной шаг определяется частотой Раби.

В этой работе граница расчетного временного интервала равна 2,5 пс. Множество волновых векторов ограничено значением 2.0 nm^{-1} . Шаг дискретизации по времени составляет 0.5 фс. Шаг дискретизации по волновым векторам равен 5 мкм^{-1} .

Разработанный нами алгоритм состоит из двух вложенных циклов. На каждом временном шаге находятся последовательно решения для всех возможных волновых векторов. Число точек в k -пространстве определяет число уравнений в системе. В этой работе система уравнений состоит из 400 обыкновенных дифференциальных уравнений. Оптическое возбуждение, описываемое функцией $E(t)$, было выбрано в виде Гауссова импульса. Начальные условия для представленной системы имеют вид $p_k = 0$.

СПЕКТРАЛЬНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПОГЛОЩЕНИЯ

На Рис. 1 приведены результаты математического моделирования спектральных характеристик поглощения в квантовой яме при различных значениях напряженности внутренних электростатических полей. Рассматриваемые поля образованы вследствие пьезоэлектрической поляризации, спонтанной поляризации и наличия легирования. Для того, чтобы яснее понять механизмы воздействия внутренних полей на спектральные характеристики поглощения, были проведены вычисления для случая, когда неоднородное уширение отсутствует. Этот случай соответствует идеализированной гетероструктуре, которая не содержит флуктуаций ширины квантовой ямы и ее химического состава.

Из представленных данных следует, что наличие внутренних полей приводит к сдвигу красной границы поглощения в область малых энергий. Величина спектрального сдвига зависит от напряженности полей.

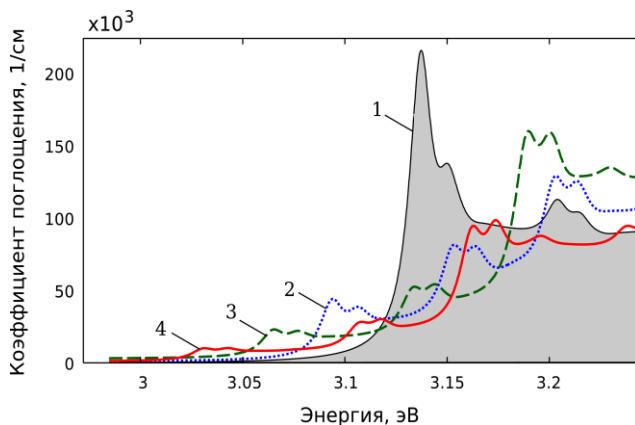


Рис. 1. Спектральные характеристики поглощения для напряженности внутренних электрических полей 1 — 0 МВ/см; 2 — 0,45 МВ/см; 3 — 0,57 МВ/см; 4 — 0,69 МВ/см в 4 нм In(0,1)Ga(0,9)N/GaN квантовой яме

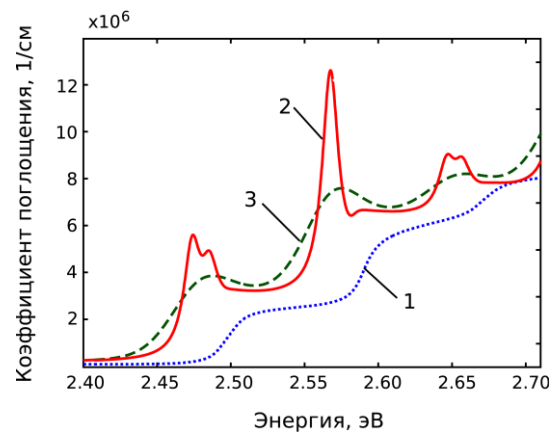


Рис. 2. Спектральные характеристики поглощения для 2 нм In(0,37)Ga(0,63)N/GaN квантовой ямы: 1 — без учета коллективных эффектов; 2 — с учетом коллективных эффектов; 3 — с учетом коллективных эффектов и неоднородного уширения

Спектральные характеристики, приведенные на Рис.2, отображают влияние коллективных эффектов на процессы поглощения и усиления в исследуемых гетероструктурах. Чтобы оценить влияние коллективных эффектов, представленные данные вычислены двумя способами: с помощью "Золотого правила Ферми" в одночастичном приближении и с помощью полупроводниковых уравнений Блоха с учетом коллективных эффектов. Результаты получены для случая квантовой ямы толщиной 2 нм, образованной парой полупроводниковых материалов In(0,37)Ga(0,63)N/GaN. Коллективные эффекты

рассмотрены в приближении Хартри-Фока с учетом экранирования [12], при котором учитываются экситонные эффекты и перенормировка ширины запрещенной зоны вследствие эффектов обмена. Корреляции высших порядков, влияющие на ширину спектральной линии, в этом случае аппроксимируются постоянным (не зависящим от времени и волнового вектора) временем дефазировки. В случае, когда концентрация неравновесных носителей заряда в квантовой яме мала, коллективные эффекты приводят к появлению пиков на спектральных характеристиках, соответствующих поглощению оптического излучения экситонами [11]. Экситонные пики сдвинуты относительно края поглощения спектральной характеристики, полученной в одночастичном приближении. По величине этого сдвига можно оценить энергию связи экситона. В данном случае энергия сдвига первого пика составляет 34 мэВ, что согласуется с данными для энергии связи экситона, опубликованными в [15], где вычисленная энергия связи экситона составила 30 мэВ.

Как следует из результатов моделирования спектра энергетических состояний электронов и дырок в InGaN/GaN квантовой яме, разность энергий тяжелых и легких дырок в центре зоны Бриллюэна составляет около 10 мэВ. Этот малый энергетический зазор между подзонами тяжелых и легких дырок обуславливает группу из двух близкорасположенных экситонных пиков на спектральных характеристиках на Рис. 1 и Рис. 2. Однако, из-за неоднородного уширения структура экситонных пиков для InGaN/GaN гетероструктур с квантовыми ямами не наблюдается.

Вычисленные спектральные характеристики поглощения, представленные на Рис. 3, свидетельствуют, что влияние поверхностной сегрегации индия сильнее проявляется в структурах с большими значениями молярной доли индия.

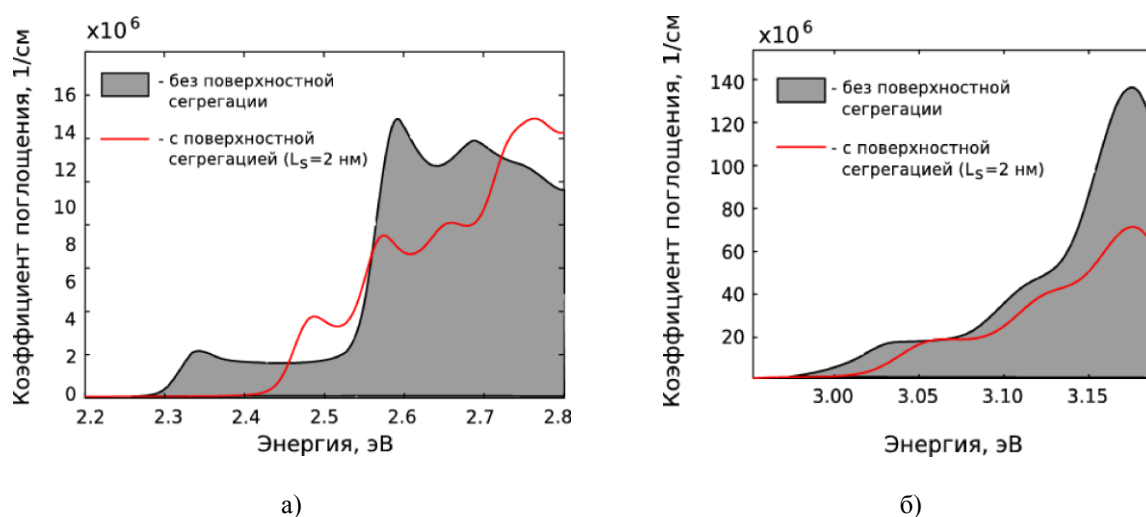


Рис. 3. Спектральная характеристика поглощения для а) 2 нм In(0,37)Ga(0,63)N/GaN и б) 4 нм In(0,1)Ga(0,9)N/GaN одиночной квантовой ямы, характеризующейся полушириной спектральной линии неоднородного уширения, равной 31 мэВ и 38 мэВ соответственно

Для гетероструктуры с малым содержанием индия учет поверхностной сегрегации индия не приводит к заметным изменениям формы спектральной характеристики, а лишь обуславливает сдвиг красной границы поглощения в область высоких энергий на 15 мэВ. Для гетероструктуры с молярной долей индия 0,37 сдвиг спектральной характеристики составляет 112 мэВ. При этом наблюдается значительное изменение формы спектральной характеристики. Таким образом, пренебрежение эффектами поверхностной сегрегации индия приводит к большим погрешностям в случае, когда молярная доля индия достаточно велика. В случае, если молярная доля индия составляет 0.1 или меньше, пренебрежение поверхностной сегрегацией не приводит к существенным погрешностям. Это подтверждается экспериментальными данными. В работе [16] построена математическая модель оптического отклика для 4 нм In(0.1)Ga(0.9)N/GaN одиночной квантовой ямы без учета поверхностной сегрегации индия. Сравнение вычисленных в этой работе спектральных характеристик с экспериментальными данными показало хорошее совпадение.

ВЫВОДЫ

В этой работе было установлено, что влияние поверхностной сегрегации на оптические характеристики сильно проявляется только при совместном действии с пьезоэлектрической поляризацией. Пьезоэлектрическая поляризация локализует электроны и дырки в окрестности

гетеропереходов - там, где происходит поверхностная сегрегация. При этом отсутствие симметрии потенциала приводит к тому, что возле одного гетероперехода находится большое количество электронов, а возле другого - дырок. Если квантовая яма симметричная, поверхностная сегрегация индия приводит к симметричному уширению волновых функций электронов и дырок, в результате чего интеграл перекрытия их волновых функций почти не изменяется. В этом случае, дипольный матричный элемент и оптические характеристики являются нечувствительными к поверхностной сегрегации. Установлено, что влияние внутренних электростатических полей совместно с поверхностной сегрегацией индия на спектральные характеристики поглощения и усиления сильно зависит от содержания индия в квантовой яме. Поверхностная сегрегация индия приводит к сдвигу красной границы поглощения в область высоких энергий, в то время как пьезоэлектрическая поляризация обуславливает сдвиг в область малых энергий. В работе показано, что влияние поверхностной сегрегации на оптические спектральные характеристики ослабевает при уменьшении молярной доли индия и почти не зависит от ширины квантовой ямы. Поэтому в InGaN/GaN гетероструктурах с квантовыми ямами с содержанием индия меньше 10 % поверхностной сегрегацией можно пренебречь. Для структур с большим содержанием индия пренебрежение поверхностной сегрегацией приведет к большим погрешностям.

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. – Vol. 88. – P. 021104 1–3.
3. Stanley I. Theoretical study of In desorption and segregation kinetics in MBE growth of InGaAs and InGaN [Текст] / I. Stanley I., G. Coleiny, R. Venkat // Journal of Crystal Growth - 2003. - Vol. 251. - P. 23–28.
4. 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. – Vol.62. – P. 1687016880 1–6.
5. Potin V. Comparison of the In distribution in InGaN/GaN quantum well structures grown by molecular beam epitaxy and metalorganic vapor phase epitaxy [Текст] / V. Potin, E. Hahn, A. Rosenauer, D. Gerthsen, B. Kuhn, F. Scholz, A. Dussaigne, B. Damilano, N. Grandjean// Journal of Crystal Growth - 2004. - Vol. 262. - P. 145–150.
6. Biswas, D. Band offsets of InXGa1–XNGaN quantum wells reestimated [Текст] / D. Biswas, S. Kumar, T. Das // Thin Solid Films - 2007. - Vol. 515. - P. 4488 – 4491.
7. Martini S. Influence of indium segregation on the RHEED oscillations during the growth of InGaAs layers on a GaAs[001] surface [Текст] / S. Martini, A.A. Quivy, T.E. Lamas, M.J. da Silva, E.C.F. da Silva // Journal of Crystal Growth - 2003. - Vol. 251. - P. 101–105.
8. Pereira S. Strain and composition distributions in wurtzite InGaN/GaN layers extracted from x-ray reciprocal space mapping [Текст] / S. Pereira, M.R. Correia, E. Pereira, K.P. O'Donnell, E. Alves, A.D. Sequeira, N. Franco, I.M. Watson, C.J. Deatcher // Appl. Phys. Lett. - 2002. - Vol.80. - P. 3913–3915.
9. Wang H. Cathodoluminescence study on in composition inhomogeneity of thick InGaN layer [Текст] / H. Wang, D.S. Jiang, U. Jahn, J.J. Zhu, D.G. Zhao, Z.S. Liu, S.M. Zhang, H. Yang // Thin Solid Films - 2010. - Vol. 518. - P. 5028–5031.
10. Li T. Indium redistribution in an InGaN quantum well induced by electron-beam irradiation in a transmission electron microscope [Текст] / T. Li, E. Hahn, D. Gerthsen, A. Rosenauer, A. Strittmatter, L. Reißmann, D. Bimberg // Appl. Phys. Lett. - 2005. - Vol.86. - P. 241911-1-3.
11. Chow W.W. Semiconductor Laser: Fundamentals. Physics of the gain materials [Текст] / W.W. Chow, S.W. Koch, - Berlin: Springer, 1999. - 245 p.
12. Haug, H. Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors [Текст] / H. Haug, S.W. Koch. - New Jersey: World Scientific, 2004. - 453 p.
13. Fiorentini V., Bernardini F. and Ambacher O., Evidence for nonlinear macroscopic polarization in III-V nitride alloy heterostructures // Appl. Phys. Lett. – 2002. –Vol. 80. – P. 12041206 1–3.
14. Chuang S.L., Physics of optoelectronics devices. – John Wiley and Sons., 1995.
15. Jho Y.D. Field-dependent carrier decay dynamics in strained In(x)Ga(1-x)N/GaN quantum wells / Y.D. Jho, J.S. Yahng, E. Oh, D.S. Kim [Текст] // Phys. Rev. B - 2002. - Vol. 66. - P. 035334-1-11.
16. Hader J. Influence of internal fields on gain and spontaneous emission in InGaN quantum wells [Текст] / J. Hader, J.V. Molonet, S.W. Koch // Appl. Phys. Lett. - 2006. - Vol. 89. - P. 171120-1-3.