Изменение концентрации центров безызлучательной рекомбинации в структурах GaAs/AlGaAs с квантовыми ямами при обработке в плазме CF₄

© Т.С. Шамирзаев[¶], А.Л. Соколов, К.С. Журавлев, А.Yu. Kobitski, H.P. Wagner*, D.R.T. Zahn*

Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия * Institute fur Physik, TU Chemnitz, D-09126 Chemnitz, Germany

(Получена 12 марта 2001 г. Принята к печати 25 мая 2001 г.)

Изучено влияние низкоэнергетической плазмы CF₄ на стационарную фотолюминесценцию и кинетику фотолюминесценции структур GaAs/AlGaAs с квантовыми ямами. Установлено, что возрастание интенсивности фотолюминесценции квантовых ям, расположенных под областью индуцированных плазмой приповерхностных повреждений, сопровождается повышением времени затухания интенсивности фотолюминесценции при температурах выше 30 К. Показано, что 40-секундная экспозиция структуры в плазме приводит к 30-кратному уменьшению концентрации центров безызлучательной рекомбинации в квантовой яме, лежащей ниже области приповерхностных повреждений.

Сухое травление низкоэнергетической плазмой широко используется для селективного удаления масок с поверхности структур на основе соединений А^ШВ^V при изготовлении низкоразмерных структур и приборов микроэлектроники. В процессе производства для гарантированного удаления маски с поверхности структуры их перетравливают, при этом поверхность структуры бомбардируется ионами плазмы, что приводит к повреждению нижележащих слоев и существенным изменениям их электрических и оптических свойств [1-12]. Было установлено, что концентрация дефектов, образующихся при экспозиции структур в низкоэнергетической плазме, максимальна в приповерхностной области толщиной от нескольких десятков до нескольких сотен ангстрем и монотонно спадает в глубину, оказывая влияние на электрические свойства слоев, лежащих на расстоянии до 1000 Å от поверхности. Удобный способ для изучения дефектов, генерированных в приповерхностной области при обработке в плазме, основанный на изучении фотолюминесценции (ФЛ) структур GaAs/AlGaAs с квантовыми ямами, расположенными на различной глубине от поверхности структуры, был предложен в работах [13,14]. Было показано, что обработка таких структур низкоэнергетической плазмой приводит к уменьшению интенсивности ФЛ из квантовых ям, расположенных в приповерхностной области структуры, из-за образования и диффузии точечных дефектов, являющихся центрами безызлучательной рекомбинации.

В наших предыдущих работах было обнаружено, что обработка структур GaAs/AlGaAs с квантовыми ямами в низкоэнергетической плазме (CF₄, Ar, Kr) приводит не только к уменьшению интенсивности ФЛ в приповерхностной области структуры, но и к ее возгоранию в квантовых ямах, расположенных глубже поврежденной области [10,12]. Было сделано предположение о том, что

это возгорание обусловлено пассивацией дефектов центров безызлучательной рекомбинации, введенных в структуру в процессе эпитаксии, в результате образования комплексов этих дефектов с быстро диффундирующими дефектами, индуцированными плазмой.

В данной работе с целью количественной оценки изменения концентрации центров безызлучательной рекомбинации в квантовых ямах, расположенных глубже области, поврежденной при обработке в плазме, изучена температурная зависимость пикосекундной кинетики ФЛ в структурах GaAs/AlGaAs с квантовыми ямами, экспонированных в низкоэнергетической плазме CF₄.

Исследуемые в работе структуры GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке полуизолирующего GaAs ориентации (100). Структуры состояли из 6 квантовых ям, представляющих собой слои GaAs толщиной 2.2, 2.8, 3.4, 4.2, 5.6 и 8.5 нм, разделенных барьерами Al_{0.3}Ga_{0.7}As толщиной 25 нм. Толщина квантовых ям возрастала по мере увеличения глубины залегания. Для предотвращения диффузии примесей и точечных дефектов из подложки в структуру квантовые ямы выращивались на буферном слое, состоящем из слоя GaAs толщиной 1 мкм и слоя Al_{0.3}Ga_{0.7}As толщиной 0.5 мкм, внутри которого была помещена короткопериодная сверхрешетка GaAs/AlAs. Для предотвращения окисления верхнего слоя Al_{0.3}Ga_{0.7}As структура была закрыта слоем GaAs толщиной 10 нм. Обработка производилась в плазме CF₄ в течение 40 с при давлении 0.07 Торр, плотности мощности 1 Вт/см² и потенциале автосмещения, равном примерно -300 В. Измерения стационарной ФЛ проводились на установке, описанной в работе [10]. Стационарная ФЛ возбуждалась излучением Не-Ne-лазера с длиной волны 632.8 нм и плотностью мощности 20 Вт/см². Коэффициент поглощения для данной длины волны в GaAs и Al_{0.3}Ga_{0.7}As при 4.2 K равен $3 \cdot 10^4$ и $1 \cdot 10^4$ см⁻¹ соответственно, поэтому в использу-

[¶] E-mail: timur@thermo.isp.nsc.ru

Fax: 8 (3832) 332771



Рис. 1. Спектры фотолюминесценции структур до (сплошная линия) и после (штриховая) 40-секундной экспозиции в плазме CF_4 . Температура измерения T = 6 К.

емых структурах в каждой квантовой яме поглощалось $\sim 3\%$ возбуждающего излучения, что обеспечивало их однородное возбуждение. Нестационарная ФЛ возбуждалась импульсным лазером на красителе, накачка которого осуществлялась Ar⁺-лазером с синхронизованными модами. Система возбуждения генерировала импульсы длительностью 20 пс с частотой повторения 4 МГц на длине волны 580 нм, энергия в импульсе составляла 0.2 нДж. Сигнал фотолюминесценции анализировался спектрометром CROMEX 250IS и детектировался стриккамерой Нататази C4334. Временное разрешение системы регистрации составляло 50 пс. Образцы помещались в криостат замкнутого цикла типа CTI-Cryogenics.

Спектры фотолюминесценции структур до и после экспозиции в плазме CF₄, измеренные при температуре 6 K, приведены на рис. 1. Спектры состоят из 7 линий, из которых линии с номерами 1-6 соответствуют переходам между первым электронным уровнем и первым уровнем тяжелых дырок (1e-1h) в квантовых ямах различной толщины. Расщепление линий обусловлено флуктуациями ширины квантовых ям [15]. Линия с максимумом 1.515 эВ обусловлена рекомбинацией экситонов в буферном слое GaAs. Из рисунка видно, что в спектре исходной структуры интенсивность ФЛ в 5 первых квантовых ямах приблизительно одинакова, в то время как интенсивность линии ФЛ наиболее удаленной от поверхности структуры 6-й квантовой ямы меньше примерно на порядок величины. Низкая интенсивность ФЛ в 6-й квантовой яме связана, по-видимому, с высокой концентрацией образующихся при росте структуры дефектов, являющихся центрами безызлучательной рекомбинации. После экспозиции структуры в течение 40 с в низкоэнергетической плазме CF4 наблюдается незначительное уменьшение интенсивности ФЛ ближайшей к поверхности квантовой ямы, а интенсивность ФЛ наиболее удаленной от поверхности квантовой ямы существенно возрастает и становится примерно равной интенсивности ФЛ первых 5 квантовых ям.

Кинетика линии ФЛ 6-й квантовой ямы, измеренная при 20 К, для структур до и после обработки в плазме приведена на рис. 2. Видно, что характерные значения времени жизни ФЛ в обеих структурах составляют $\tau \approx 600$ пс. На рис. 3 приведены температурные зависимости времени затухания ФЛ 6-й квантовой ямы, исходной и экспонированной в плазме структуры. При повышении температуры время затухания ФЛ в исходной структуре повышается незначительно, в то время как в экспонированной структуре время затухания ФЛ сначала при повышении температуры до 150 К возрастает более чем на порядок величины, а затем несколько уменьшается.



Рис. 2. Кинетика фотолюминесценции 6-й квантовой ямы до (1) и после (2) обработки структуры в плазме. Температура измерения T = 20 К. t — время.



Рис. 3. Зависимости времени затухания фотолюминесценции 6-й квантовой ямы исходной (1) и экспонированной в плазме CF₄ (2) структур. Штриховые линии — расчетные зависимости.

Физика и техника полупроводников, 2002, том 36, вып. 1

Известно, что время затухания ФЛ в квантовых ямах определяется соотношением между вероятностями излучательной и безызлучательной рекомбинации свободных носителей заряда и экситонов. При низких температурах безызлучательная рекомбинация подавлена, а носители заряда большей частью связаны в экситоны, поэтому время жизни ФЛ определяется временем жизни экситонов, аннигиляция которых является основным каналом рекомбинации. При повышении температуры, с одной стороны — термическая ионизация экситонов приводит к повышению концентрации электронно-дырочных пар, имеющих время жизни, существенно превышающее время жизни экситонов, с другой стороны — возрастает вероятность безызлучательной рекомбинации. Следовательно, температурная зависимость времени затухания ФЛ зависит от концентрации центров безызлучательной рекомбинации в квантовой яме. Так, при пренебрежимо малой концентрации центров безызлучательной рекомбинации в квантовой яме повышение температуры приводит к монотонному возрастанию величины времени затухания ФЛ от значения, равного времени жизни экситонов, до значения, равного времени жизни свободных носителей заряда. Повышение концентрации центров безызлучательной рекомбинации приводит к тому, что величина времени затухания ФЛ при низких температурах определяется темпом излучательной рекомбинацией экситонов и электронно-дырочных пар, а при высоких температурах — темпом их безызлучательной рекомбинации. Наконец, при высокой концентрации центров безызлучательной рекомбинации время затухания ФЛ во всем диапазоне температур равно времени жизни безызлучательной рекомбинации.

Повышение интенсивности линии ФЛ 6-й квантовой ямы в стационарном спектре ФЛ свидетельствует об уменьшении концентрации центров безызлучательной рекомбинации в окрестности этой ямы. Для количественной оценки изменения концентрации этих центров после обработки структуры в плазме мы использовали методику, развитую в недавно опубликованной работе [16]. Авторы этой работы получили следующую формулу, связывающую время затухания интенсивности ФЛ (τ) в квантовой яме с температурой измерения (T) и полной вероятностью безызлучательной рекомбинации (R_{nr}):

$$\tau(T) = \left[p_0 + n_c(T) \right] / \left[p_0 R_r(T) + n_c(T) R_{nr}(T) \right], \quad (1)$$
$$R_r(T) = B n_c(T) + R_x,$$
$$R_{nr}(T) = R_0 + R_s \exp(-E_A/kT),$$
$$n_c(T) = \left[m_e m_h / (m_e + m_h) \right] (kT/\pi\hbar^2) \exp(-E_x/kT),$$

где R_r — вероятность излучательной рекомбинации, R_x — вероятность рекомбинации экситонов, B — коэффициент излучательной рекомбинации для свободных носителей заряда, R_0 — не зависящая от температуры вероятность безызлучательной рекомбинации, пропорциональная концентрации центров безызлучательной

Физика и техника полупроводников, 2002, том 36, вып. 1

рекомбинации, n_c — отношение произведения концентрации электронов и дырок к концентрации экситонов, E_x — энергия ионизации экситона, E_A — энергия температурной активации безызлучательной рекомбинации, p_0 — концентрация свободных дырок, $m_e = 0.065m_0$ и $m_h = 0.5m_0$ — эффективные массы электрона и дырки соответственно.

Рассчитанные по формуле (1) температурные зависимости времени затухания ФЛ 6-й квантовой ямы исходной и экспонированной структур приведены на рис. 3. Наилучшее совпадение экспериментальных данных и расчетных кривых было получено при следующих фиксированных для обеих зависимостей параметрах расче-Ta: $E_x = 8 \text{ M3B}, E_A = 90 \text{ M3B}, B = 10^{-10} \text{ cm}^2 \cdot \text{c}^{-1}, p_0 = 5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}, R_s = 1.2 \cdot 10^{10} \text{ c}^{-1}, R_x = 1.8 \cdot 10^9 \text{ c}^{-1}.$ Значение параметра R₀, пропорционального концентрации центров безызлучательной рекомбинации, изменялось от $1.17 \cdot 10^9$ с⁻¹ в исходной структуре до $4.2 \cdot 10^7$ с⁻¹ в структуре, экспонированной в плазме CF₄, что свидетельствует об уменьшении концентрации центров безызлучательной рекомбинации почти в 30 раз. Необходимо отметить, что полученное значение расчетного параметра R_x хорошо согласуется со значением, приводимым в работе [16].

Аналогичные расчеты, проведенные для температурной зависимости времени затухания ФЛ в 5-й квантовой яме, показали, что концентрация центров безызлучательной рекомбинации в этой яме при экспонировании структуры в плазме изменяется не более чем в 2 раза.

Таким образом, в работе изучено влияние обработки низкоэнергетической плазмой CF_4 на стационарную $\Phi Л$ и кинетику $\Phi Л$ в структурах GaAs/AlGaAs с квантовыми ямами. Показано, что повышение интенсивности $\Phi Л$ в квантовой яме, лежащей ниже области приповерхностных нарушений, индуцированных плазменной обработкой структуры, сопровождается возрастанием времени затухания $\Phi Л$, тем более значительным, чем выше температура измерения. Установлено, что концентрация центров безызлучательной рекомбинации в этой квантовой яме уменьшается почти в 30 раз при 40-секундной экспозиции структуры в плазме.

Список литературы

- [1] S.J. Fonash. Sol. St. Technol., 28, 201 (1985).
- [2] S.J. Pearton, U.K. Chakrabarti, F.A. Baiocchi. Appl. Phys. Lett., 55, 1633 (1989).
- [3] W. Beinstingl, R. Christanell, J. Smoliner, C. Wirner, E. Gornik, G. Weimann, W. Schlapp. Appl. Phys. Lett., 57, 177 (1990).
- [4] K.L. Seaward, N.J. Moll, W.F. Stickle. J. Electron. Mater., 19, 385 (1990).
- [5] C. Juang, J.K. Hsu, I.S. Yen, H.S. Shiau. J. Appl. Phys., 72, 684 (1990).
- [6] S.J. Yun, S.J. Park, M.C. Paek, J.Y. Lee. J. Electrochem. Soc., 137, 2634 (1990).

- [7] K. Ohtsuka, T. Ohishi, Y. Abe, H. Sugimoto, T. Matsui. J. Appl. Phys., 70, 2361 (1991).
- [8] К.С. Журавлев, В.А. Колосанов, В.Г. Плюхин, Т.С. Шамирзаев. ЖТФ, 64, 185 (1994).
- [9] А.В. Мурель, А.П. Касаткин, В.М. Коган. Изв. РАН. Сер. физ., 56, 161 (1992).
- [10] К.С. Журавлев, В.А. Колосанов, М. Холланд, И.И. Мароховка. ФТП, **31**, 1436 (1997).
- [11] F. Ren, J.W. Lee, C.R. Abernathy, C. Constantine, C. Barratt, R.J. Shul. Appl. Phys. Lett., **70**, 2410 (1997).
- [12] К.С. Журавлев, А.Л. Соколов, К.П. Могильников. ФТП, 32, 1450 (1998).
- [13] H.F. Wong, D.L. Green, T.Y. Liu, D.G. Lishan, M. Bellis, E.L. Hu, P.M. Petroff, P.O. Holtz, J.L. Merz. J. Vac. Sci. Technol. B, 6, 1906 (1988).
- [14] B.S. Ooi, A.C. Bryce, C.D.W. Wilkinson, J.H. Marsh. Appl. Phys. Lett., 64, 598 (1994).
- [15] C.A. Warwick, W.Y. Jan, A. Ourmazd, T.D. Harris. Appl. Phys. Lett, 56, 2666 (1990).
- [16] S. Jin, A. Li. J. Appl. Phys., 81, 7357 (1997).

Редактор Л.В. Шаронова

Reduction in concentration of nonradiative recombination centers in GaAs/AlGaAs quantum well structures after expouse in CF₄ plasma

T.S. Shamirzaev, A.L. Sokolov, K.S. Zhuravlev, A.Yu. Kobitskii, H.P. Wagner*, D.R.T. Zahn*

Institute of Semiconductor Physics, 630090 Novosibirsk, Russia * Institute fur Physik, TU Chemnitz, D-09126 Chemnitz, Germany

Abstract An effect of low-energy plasma treatment on the time-resolved photoluminescence of GaAs/AlGaAs quantum well structures has been studied. We show that the increase in photoluminescence intensity from the quantum wells lying below the damaged region induced by plasma treatment is accompanied by an increase in photoluminescence lifetime at temperatures above 30 K. It has been found that the concentration of nonradiative centers decreased by about 30 times after a 40 s exposure in a CF₄ plasma.