Известия НАН Армении, Физика, т.42, №2, с.83-91 (2007)

УДК 537.311

ВЛИЯНИЕ ВЗАИМНОЙ ДИФФУЗИИ In И Al НА ЭЛЕКТРОННЫЕ СОСТОЯНИЯ И ПОГЛОЩЕНИЕ СВЕТА В КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$

В.Н. МУГНЕЦЯН, А.А. КИРАКОСЯН

Ереванский государственный университет

(Поступила в редакцию 13 октября 2006 г.)

Предложен новый метод теоретического исследования влияния взаимной диффузии в квантовых точках на электронные состояния в них. Суть метода заключается в замене сформировавшегося вследствие диффузии “истинного” ограничивающего потенциала модельным, для которого известны решения уравнения Шредингера и спектр энергии. Используя в качестве модельного потенциал Вуда–Саксона, предложенным методом вычислены положения краев зон проводимости и тяжелых дырок в зависимость от диффузионной длины, а также коэффициент междузонного поглощения света в сферических квантовых точках $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$.

1. Введение

Достижения современных технологий выдвинули на передний край исследований гетероструктуры на основе полупроводниковых соединений III-V, которые успешно применяются при создании структур с квантовыми ямами [1,2].

Помимо эффектов размерного квантования, в низкоразмерных полупроводниковых системах на первый план выходят физические явления, обусловленные большим значением отношения поверхности к объему, одним из которых является диффузия составляющих компонент гетероструктуры. Из-за малых размеров наноструктур, даже малая взаимная диффузия приводит к существенному изменению зонной структуры и, следовательно, физических свойств материала [3]. Изучение взаимной диффузии важно, т.к. оно дает информацию о термической стабильности полупроводниковых гетероструктур, а также данные, на основе которых можно измерить эффекты усиленного перемешивания из-за диффузии примесей или имплантированных ионов [4]. В настоящее время имеются многообещающие результаты, касающиеся применения термически индуцированной взаимной диффузии на послеростовом этапе с целью создания устройств с контролируемыми параметрами [5-11].

Особенно существенно влияние взаимной диффузии на оптические свойства наноструктур, в частности, на фотолюминесцентный спектр. В работах [1,6,7,10] наблюдались значительное голубое смещение пика и сужение ширины спектра фотолюминесценции, особенно ярко выраженные для самоорганизованных квантовых точек (КТ).

Возникновение вследствие диффузии переходного слоя между квантовой ямой (КЯ) и

окружающей средой наводит на мысль о замене ограничивающего яму истинного потенциала модельным потенциалом, для которого известны аналитическое решение уравнения Шредингера и спектр энергии. Это позволяет найти связь между диффузионной длиной и измеряемым на опыте голубым смещением фотолюминесценции [2,4,12]. Знание волновых функций позволяет аналитически вычислить матричные элементы междузонных переходов, оценить эффективные массы электронов и дырок, зависящих в общем случае от концентраций диффундирующих атомов. Одним из таких потенциалов является потенциал Вуда–Саксона, впервые введенный для описания переходного слоя в модели атомного ядра (см., напр., [11]) и имеющий широкое применение [13-15].

В данной работе исследовано изменение ограничивающего сферическую КТ потенциала вследствие диффузии атомов Al или (и) In через поверхность КЯ в гетероструктурах III-V (конкретно в $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$, $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ и $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$) и его влияние на уровни энергии электронов и дырок, а также на спектр поглощения света путем замены “истинного” диффузионного потенциала потенциалом Вуда–Саксона.

2. Диффузия в КТ $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$

Рассмотрим влияние диффузии атомов индия и алюминия на уровни энергий основных состояний электрона и дырки в сферической КТ $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$.

Решение трехмерного уравнения диффузии для концентраций диффундирующих атомов можно записать в виде [16]

$$x(r,L_1)=\frac{x_0L_1}{2\sqrt{\pi}r}\left\{exp\left[-\left(\frac{r+r_0}{L_1}\right)^2\right]-exp\left[-\left(\frac{r-r_0}{L_1}\right)^2\right]\right\}+\frac{x_0}{2}\left[\Phi\left(\frac{r+r_0}{L_1}\right)-\Phi\left(\frac{r-r_0}{L_1}\right)\right], \qquad (1)$$

$$y(r,L_1)=\frac{y_0L_2}{2\sqrt{\pi}r}\left\{exp\left[-\left(\frac{r-r_0}{L_2}\right)^2\right]-exp\left[-\left(\frac{r+r_0}{L_2}\right)^2\right]\right\}+ \\ +\frac{y_0}{2}\left[2+\Phi\left(\frac{r-r_0}{L_2}\right)-\Phi\left(\frac{r+r_0}{L_2}\right)\right], \qquad (2)$$

где $L_1=2(D_1t)^{1/2}$ и $L_2=2(D_2t)^{1/2}$ – диффузионные длины, D_1 и D_2 – коэффициенты диффузии, x_0, y_0 – начальные концентрации атомов индия и алюминия, соответственно, t – время, r_0 – начальный $(t=0)$ радиус КТ. Решения (1) и (2) соответствуют начальным условиям

$$\begin{cases} x(r,0)=x_0, & r<r_0, \\ x(r,0)=0, & r\ge r_0, \end{cases} \qquad \begin{cases} y(r,0)=0, & r<r_0, \\ y(r,0)=y_0, & r\ge r_0. \end{cases} \qquad (3)$$

Если пренебречь влиянием примесей на состояние среды GaAs, а также влиянием примеси одного типа на коэффициент диффузии атомов другой примеси, то в предположении, что концентрации диффундирующих веществ влияют на ширину запрещенной зоны КТ независимо друг от друга, ее для КТ $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$ можно представить в виде (в эВ)

$$E_g(x,y) = E_{g0} - bx + cx^2 + dy\ , \qquad (4)$$

где b = 1.214, $c = 0.264$, $d = 1.247$ [4,17], E_{g0} – ширина запрещенной зоны GaAs, а x и y даются выражениями (1) и (2). Выражения для ограни_чивающих потенциалов для электронов (e) и тяжелых дырок (hh) можно представить в виде

$$V_{e,hh} = Q_{e,hh}[E_g(x,y) - E_{g0}]\,, \qquad (5)$$

где $Q_{e,hh}$ – доля разрыва, приходящаяся на данную зону.

Заменим диффузионный потенциал (5) потенциалом Вуда–Саксона [18]

$$W(r) = -W_0\left\{1 + exp\left[(r-R)/a\right]\right\}^{-1}, \qquad (6)$$

в котором параметры W_0, R и a считаются функциями диффузионных длин L_1 и L_2. При фиксированном значении отношения L_1/L_2 можно в качестве независимого параметра выбрать, например, L_1. Тогда все параметры будут функциями $l = L_1/r_0$:

$$W_0 = V_0 u(l)\,, \quad R = r_0 q(l)\,, \quad a = r_0\alpha(l)\,. \qquad (7)$$

Рис.1 иллюстрирует сравнение потенциалов (5) и (6) для отношения $L_2/L_1 = 0.4$ и при начальных концентрациях примесей $x_0 = 0.4$, $y_0 = 0.2$. Для оценки меры точности замены диффузионного потенциала потенциалом Вуда–Саксона введем величину

$$I(l,x_0,y_0) = \int_0^\infty \left|V(\xi,l,x_0,y_0) - W(\xi,l,x_0,y_0)\right| d\xi \Bigg/ \int_0^\infty \left|V(\xi,l,x_0,y_0)\right| d\xi\,. \qquad (8)$$

Оценки относительной погрешности по формуле (8) при наблюденных в [2,4,12] соотношениях между диффузионными длинами L_1 и L_2 приведены в Табл.1.

Представив волновую функцию в виде $\Psi(r) = \chi(r)/r$, из уравнения Шредингера с потенциалом $W(\xi,l,x_0,y_0)$ получаем [18]

$$\chi(\varsigma) = \varsigma^{\nu}(1-\varsigma)^{\mu}\ {}_2F_1(\mu+\nu, \mu+\nu+1, 2\nu+1; \varsigma)\,, \qquad (9)$$

где $\nu = \alpha\gamma_0\varepsilon^{1/2}$, $\mu = i\alpha\gamma_0\sqrt{u-\varepsilon}$, $\varsigma = \{1 + exp[(\xi - q)/\alpha]\}^{-1}$, $\varepsilon = |E|/W_0$, E – энергия основного состояния, $\gamma_0 = (2mV_0r_0^2/\hbar^2)^{1/2}$, $\xi = r/r_0$, ${}_2F_1(a,b,c;\varsigma)$ – гипергеометрическая функция.

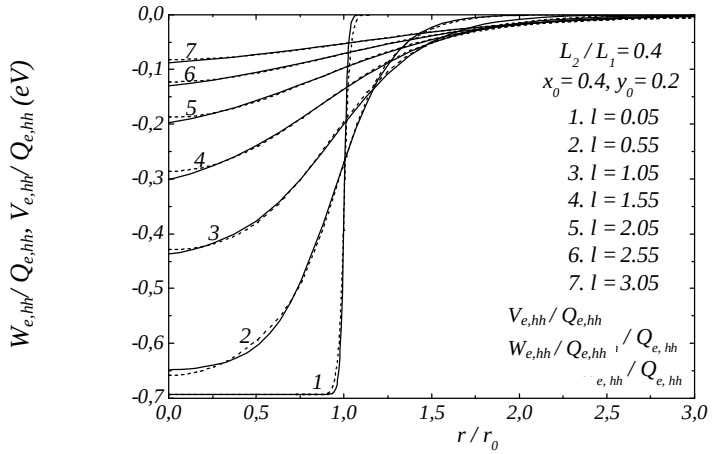

Рис.1. Сравнение диффузионного потенциала (пунктирные линии) с потенциалом Вуда–Саксона (сплошные линии).

Табл.1.

L_2/L_1	x_0	y_0	L_{max}
0.3	0.2	0.1	0.0592
0.3	0.4	0.2	0.0615
0.4	0.2	0.1	0.0551
0.4	0.4	0.2	0.0513
0.5	0.2	0.1	0.0371
0.5	0.4	0.1	0.0392

Уровни энергий электрона и тяжелой дырки получаем из граничного условия $\chi(\varsigma_0) = 0$, где $\varsigma_0 = [1+exp(-q/\alpha)]^{-1}$. Их значения в квантовой точке $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$, вычисленные относительно дна зоны проводимости GaAs, определяются выражениями

$$E_e = Q_e\left\{dy_0 - \left[bx_0 - cx_0^2 + dy_0\right]u(l)\varepsilon(l)\right\},$$

$$E_{hh} = -E_{g0} + Q_{hh}\left\{-dy_0 + \left[bx_0 - cx_0^2 + dy_0\right]u(l)\varepsilon(l)\right\}, \qquad (10)$$

где $E_{g0} = 1.424$ эВ [17] и учтено, что начальная глубина ямы $V_{e,hh}^0 = Q_{e,hh}(bx_0 - cx_0^2 + dy_0)$. В случае КТ $GaAs/Al_yGa_{1-y}As$ соответствующие выражения имеют вид $(l' = L_2/r_0)$:

$$E_e = Q_e dy_0\left[1 - u(l')\varepsilon(l')\right], \quad E_{hh} = -E_{g0} + Q_{hh}dy_0\left[u(l')\varepsilon(l') - 1\right]. \qquad (11)$$

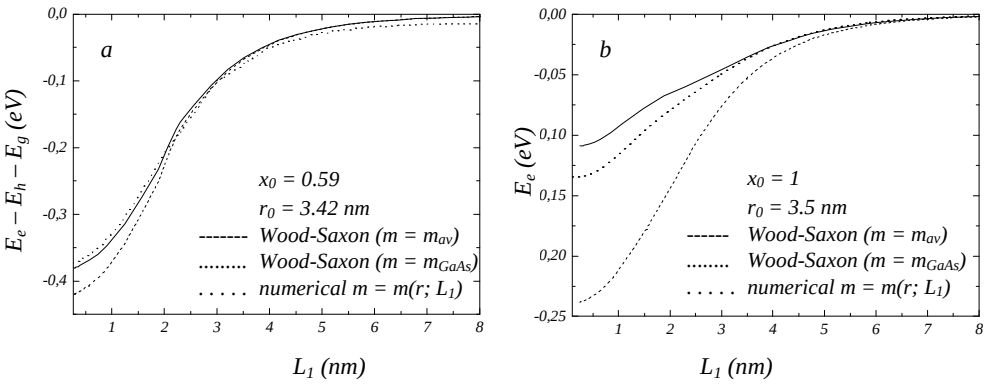

Рис.2. Сравнение результатов, полученных применением потенциала Вуда–Саксона с соответствующими результатами, полученными в работах [3] (a) и [16] (b).

Отметим, что функции $u(l)$, $q(l)$ и $\alpha(l)$ при одновременной диффузии атомов индия и алюминия зависят от отношения диффузионных длин L_1 и L_2, а также от начальных концентраций x_0 и y_0, в отличие от случая диффузии атомов алюминия в $GaAs/Al_yGa_{1-y}As$ или индия в $In_xGa_{1-x}As$, когда они зависят только от L_1 или L_2.

На рис.2a представлены зависимости разности порога поглощения в гетероструктуре $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ и ширины запрещенной зоны $GaAs$ от диффузионной длины с соответствующими результатами работы [3], а на рис.2b – зависимости энергии основного состояния электрона от диффузионной длины с соответствующими результатами работы [16]. На обоих рисунках сплошные линии представляют результаты, полученные с помощью потенциала Вуда–Саксона с использованием усредненной массы, определенной из уравнения

$$m_{av}(l, x_0, y_0) = \int_0^\infty m(\xi, l, x_0, y_0)\left|\chi(\xi, l, x_0, y_0)\right|^2 d\xi \Big/ \int_0^\infty \left|\chi(\xi, l, x_0, y_0)\right|^2 d\xi . \qquad (12)$$

Пунктирные линии соответствуют не зависящим от l значениям масс в $GaAs$: $m_e = 0.0665m_0$ и $m_{hh} = 0.377m_0$ [3], а точечные линии – результатам, полученным в [3] и [16].

Радиус исследованной в [3] КТ $r_0 = (3/4\pi V_{QD})^{1/3} \approx 3.42$ нм, что весьма близко к радиусу КТ, исследованной в [16] (3.5 нм). С учетом этого обстоятельства из рис.2a и 2b можно заметить, что при малых начальных концентрациях примеси (рис.2a) зависимостью массы от положения (r) можно пренебречь. При этом становится малым также различие результатов, соответствующих использованию независящей от l массы в $GaAs$ и усредненной массы НЗ. Из рисунков видно также, что вышеупомянутые различия ничтожны при достаточно большом значении диффузионной длины.

На рис.3a представлены кривые зависимости энергий основных состояний электрона и тяжелой дырки в КТ $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$ радиусом 10.4 нм (эффективный боровский радиус в $GaAs$) от L_1 при одновременной диффузии атомов In и Al для различных значений параметров L_1/L_2, x_0 и y_0. Видно, что кривые зависимостей, соответствующих различным начальным концентрациям индия и алюминия, пересекаются. Такое поведение уровней энергии обусловлено

тем, что при одновременном увеличении начальных концентраций x_0 и y_0 вместе с понижением (повышением) дна зоны проводимости (валентной зоны) в области $r < r_0$ происходит его повышение (понижение) в области $r > r_0$. Из рис.3а следует также, что влиянием отношения L_2 / L_1 на положение энергетических уровней, существенным для промежуточных значений L_1, можно пренебречь для значений $L_1 / r_0 \gg 1$ и $L_1 / r_0 \ll 1$.

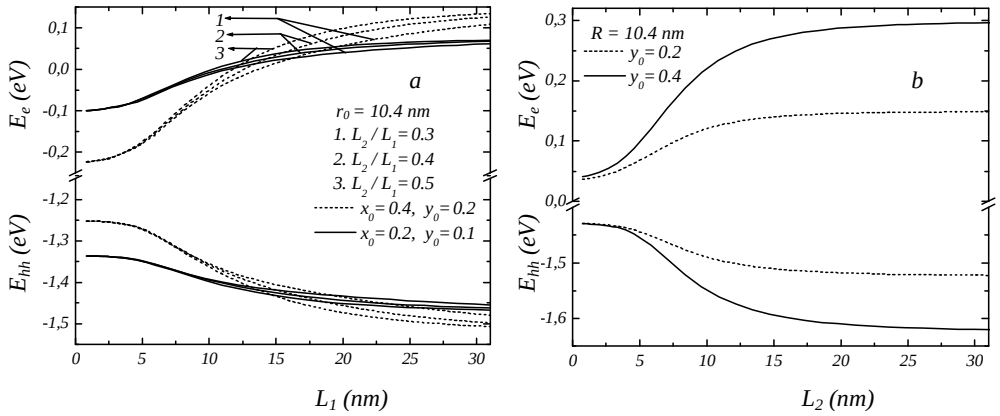

Рис.3. Зависимости энергий основных состояний электрона и тяжелой дырки от диффузионной длины в КТ $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$ (a) и $GaAs/Al_yGa_{1-y}As$ (b).

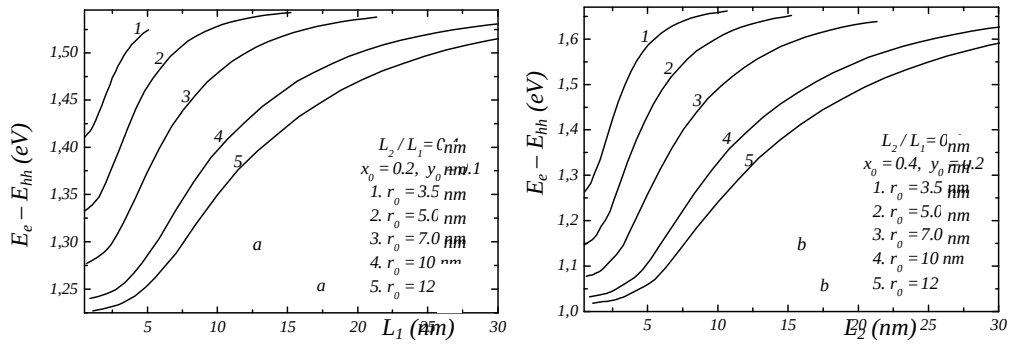

Рис.4. Зависимость порога поглощения от диффузионной длины в КТ $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$.

На рис.3b представлены кривые зависимости энергий основных состояний электрона и тяжелой дырки в КТ $GaAs/Al_yGa_{1-y}As$ радиусом $a_B^* = 10.4$ нм. Эти уровни практически совпадают при $L_2 \to 0$, поскольку, будучи расположенными близко ко дну ямы, нечувствительны относительно изменения высоты барьера вследствие изменения начальной концентрации алюминия y_0.

Наконец, следует отметить, что на обоих графиках очевидно увеличение энергетического расстояния между основными состояниями электрона и дырки, что обуславливает голубое сме-

щение края фотолюминесценции.

На рис.4 представлены зависимости порога поглощения от диффузионной длины в КТ $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$ для различных значений ее радиуса. Кроме очевидного голубого смещения, из рисунка можно также заметить, что порог поглощения, увеличивающийся при начальной стадии диффузии, уменьшается при более высоких значениях диффузионной длины, чем и обусловлено отмеченное в экспериментальных и теоретических работах уменьшение ширины спектров поглощения и люминесценции (см., напр., [1,6,10,16]).

3. Коэффициент поглощения в КТ $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$

Перейдем к вычислению коэффициента поглощения монохроматического излучения с частотой ω системой сферических КТ, который удобно представить в виде

$$\alpha(\omega) = \alpha_0 \left|\left\langle \Psi_c \middle| \Psi_v \right\rangle\right|^2 \Gamma(\omega, \sigma, E_{eh}) , \qquad (13)$$

где

$$\alpha_0 = \frac{4\pi^2 e^2 N_{QD}}{m_0^2 \omega c n} \left|\boldsymbol{M}_{c,v}\right|^2 [f(E_{hh}) - f(E_e)],$$

$\Gamma(\omega, \sigma, E_{eh}) = (2\pi)^{-1/2} \sigma^{-1} exp\left[-(\hbar\omega - E_{eh})^2 / 2\sigma^2\right]$ – распределение Гаусса, $\boldsymbol{M}_{cv}$ – матричный элемент междузонного перехода [19], $\left\langle \Psi_c \middle| \Psi_v \right\rangle$ – интеграл перекрытия, $f(E)$ – функция распределения Ферми–Дирака, N_{QD} – концентрация КТ, m_0 – масса свободного электрона, n – показатель преломления среды. Если предположить, что ширина спектра поглощения обусловлена конечным распределением КТ по размерам, то в качестве σ можно выбрать разность порогов поглощения двух КТ с радиусами $r_0 - \delta r$ и $r_0 + \delta r$.

На рис.5 показаны графики зависимости квадрата модуля интеграла перекрытия от безразмерной диффузионной длины для различных значений радиуса КТ. Из него видно, что увеличение радиуса КТ приводит к увеличению значения квадрата модуля интеграла перекрытия и к уменьшению скорости его изменения с увеличением диффузионной длины. Это обусловлено тем, что в КТ с большим радиусом волновые функции как электрона, так и тяжелой дырки сконцентрированы в основном в области КТ и менее чувствительны к изменениям профиля ограничивающего потенциала КТ.

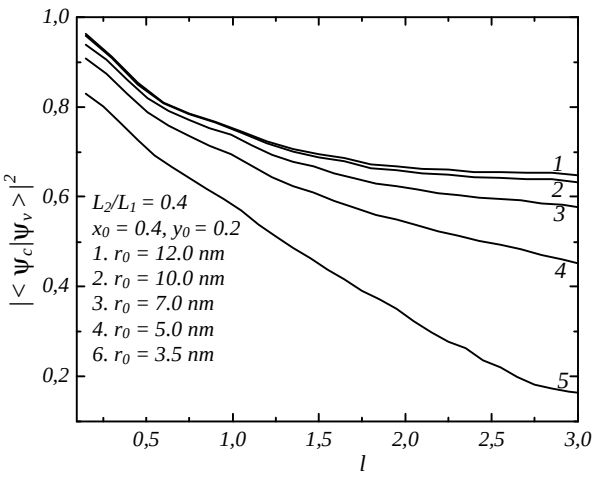

Рис.5. Зависимость квадрата модуля интеграла перекрытия от безразмерной диффузионной длины.

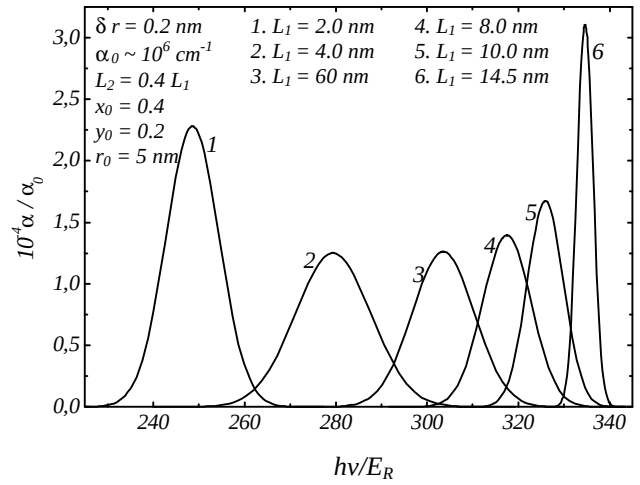

Рис.6. Зависимость безразмерного коэффициента поглощения от безразмерной энергии фотона падающего излучения.

На рис.6 представлены частотные зависимости коэффициента поглощения для различных значений диффузионной длины системой КТ с $r_0 = 5$ нм и $\delta r = 0.2$ нм. Очевидно значительное голубое смещение и сужение спектра, начиная с некоторого значения диффузионной длины (L_1 □ 4 нм), что находится в соответствии с результатами, полученными в ряде экспериментальных работ [1,6,10].

Таким образом, предложенный метод решения уравнения Шредингера с диффузионным потенциалом позволяет непосредственно найти зависимости энергий основных состояний электрона и тяжелой дырки, а также порога поглощения и коэффициента поглощения монохроматического излучения от диффузионной длины. Сравнение с результатами, полученными в

других работах, показывает, что пренебрежение зависимостью эффективной массы НЗ от координаты обоснованно для сравнительно малых значений концентраций примесей и для больших значений диффузионной длины.

Работа выполнена в рамках государственной целевой программы Республики Армения “Полупроводниковая наноэлектроника”.

ЛИТЕРАТУРА

1. **S.Malik, C.Roberts,** et al. Appl. Phys. Lett., **71,** 1987 (1997).
2. **T.E.Schlesinger, T.Kuech.** Appl. Phys. Lett., **49,** 519 (1986).
3. **O.Gunawan, H.S.Djie, B. S. Ooi.** Phys. Rev. B, **71,** 205319 (2005).
4. **W.P.Gillin, D.J.Dunstan, K.P.Homewood, L.K.Howard, B.J.Sealy.** J. Appl. Phys., **73,** 3782 (1993).
5. **R.Leon, S.Fafard, P.G.Piva, S.Ruvimov, Z.Liliental-Weber.** Phys. Rev. B, **58,** R4262 (1998).
6. **C.Lobo, R.Leon, S.Fafard, P.G.Piva.** Appl. Phys. Lett., **72,** 2850 (1998).
7. **Yalin Ji, Wei Lu, Guibin Chen, Xiaoshuang Chen, Qing Wang.** J. Appl. Phys., **93,** 1208 (2003).
8. **X.C.Wang** et al. J. Appl. Phys., **86,** 2687 (1999).
9. **S.Fafard, C.Ni. Allen.** Appl. Phys. Lett., **75,** 2374 (1999).
10. **S.J.Xu, X.C.Wang.** Appl. Phys. Lett., **72,** 3335 (1998).
11. **K.Takeuchi, P.A.Moldauer.** Phys. Lett. B, **28,** 384 (1969).
12. **R.Leon, D.R.M.Williams, J.Krueger, E.R.Weber, M.R.Melloch.** Phys. Rev. B, **56,** R4336 (1997).
13. **Z.Lojewski, B.Nerlo-Pomorska, K.Pomorski, J.Dudek.** Phys. Rev. C, **51,** 601 (1995).
14. **M. N.A.Abdullah, S.K.Das, A.S.B.Tariq.** J. Phys. G, **29,** 1259 (2003).
15. **O.V.Bespalova, E.A.Romanovsky, T.I.Spasskaya**. J. Phys. G, **29**, 1193 (2003).
16. **J.A.Barker, E.P.O’Railly.** Phys. E, **4**, 231 (1999).
17. **S.Adachi.** Appl. Phys., **53,** R1 (1985).
18. З.**Флюгге.** Задачи по квантовой механике, т. 1. М., Мир, 1974.
19. **P.K.Basu.** Theory of Optical Processes in Semiconductors, Bulk and Microstructures. Clarendon Press, Oxford, 1997.

EFFECT OF In AND Al INTERDIFFUSION ON ELECTRONIC STATES AND LIGHT ABSORPTION IN $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$ QUANTUM DOTS

V.N. MUGHNETSYAN, A.A. KIRAKOSYAN

A new method of theoretical investigation of interdiffusion effect on electronic states in quantum dots is proposed. The main point of the method is the replacement of the “veritable” confining potential formed due to diffusion by a modeling potential for which the Schrödinger equation solutions and the energy spectrum are known. In the framework of the proposed method we calculate the edges of conduction and heavy hole bands and the absorption coefficient of interband transitions depending on the diffusion length in spherical $In_xGa_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As$ quantum dots, using the Wood–Saxon potential as modeling one.