

Pozos Cuánticos de AlGaAs/GaAs/AlGaAs Crecidos por MBE:

Análisis Estructural y de Composición

José Vulfrano González-Fernández^{1,2*}, Ramón Díaz de León-Zapata¹, Efrén Flores-García¹ y Jorge Ortega-Gallegos²

¹Instituto Tecnológico de San Luis Potosí, Av. Tecnológico s/n, CP 78376, Soledad de Graciano Sánchez, SLP, México

²Instituto de Investigación en Comunicación Óptica, Universidad Autónoma de San Luis Potosí, Av. Karakorum 1470, CP 78210, San Luis Potosí, SLP, México

*e-mail: fanogf@gmail.com

Resumen

En este trabajo se presentan estudios de composición química y de control de crecimiento de pozos cuánticos semiconductores basados en semiconductores III-V (AlGaAs/GaAs/AlGaAs, utilizando una composición del Al de 33 %) y fabricados en un sistema de epitaxia por haces moleculares. Se utilizó la técnica de difracción de electrones reflejados de alta energía (*in-situ*) para la caracterización por composición química, así como la técnica de espectroscopía por fotoluminiscencia (*ex-situ*) a baja temperatura para el análisis de los niveles de energía de tres diferentes pozos cuánticos no-acoplados. Se obtuvo una buena correlación entre el monitoreo superficial y la caracterización espectroscópica de la muestra estudiada.

Palabras clave: Pozos cuánticos, Semiconductores III-V, Difracción de electrones reflejados de alta energía, Fotoluminiscencia, Composición química.

Abstract

Chemical composition and growth control of semiconductor quantum wells based on III-V semiconductors (AlGaAs/GaAs/AlGaAs, with Al composition of 33 %) synthesized by molecular beam epitaxy system are presented in this work. Reflection high-energy electron diffraction technique (*in-situ*) was used for chemical composition characterization, as well as photoluminescence spectroscopy (*ex-situ*) technique at low temperature for the analysis of energy levels of three different non-coupled quantum wells. A good correlation was obtained between superficial monitoring and spectroscopic characterization of the studied sample.

Key Words: Quantum wells, III-V semiconductors, Reflection high-energy electron diffraction, Photoluminescence, Chemical composition.

1. Introducción

En la actualidad y desde hace varias décadas, los efectos de confinamiento cuántico en los semiconductores han estado presentes en el desarrollo e investigación de ciencias básicas y aplicadas. De manera cotidiana se publican dispositivos semiconductores con complejos sistemas de baja dimensionalidad, como por ejemplo puntos cuánticos (quantum dots (QDs), hilos cuánticos (quantum wires, QWRs) o pozos cuánticos (quantum wells, QWs). Estos constituyen los bloques básicos de los dispositivos nanoelectrónicos en la actualidad. Su funcionamiento se basa en el confinamiento espacial y en términos de energía de los electrones en el semiconductor. Uno de los sistemas cuánticos más utilizados es el de QW debido a su relativa simplicidad, en el que el confinamiento de los electrones es en 2

dimensiones (2D), a diferencia de los sistemas de QDs, QWRs y del semiconductor en bulto (0D, 1D y 3D, respectivamente).

El control de las variables de crecimiento es muy importante cuando se trata de la fabricación de sistemas de baja dimensionalidad, debido a que los efectos de discretización de los niveles de energía se pueden observar cuando el tamaño del sistema cuántico es del orden de algunas monocapas (ml) hasta alrededor de 100 \AA dependiendo de los materiales que se utilicen. Entre más pequeño sea el sistema de confinamiento que utilicemos, más sensible se vuelven las posiciones de los niveles de energía discretizados, por este motivo es muy importante controlar la cantidad de material que se deposite sobre el sustrato (González-Fernández et al., 2016; Harrison & Valavanis, 2016). Otro factor determinante en la calidad de las estructuras es el control de la interfaz entre las capas depositadas, en términos de la interdifusión de materiales, así como lo abrupto de las capas. Estas variables inciden en el semiancho de la forma de línea del espectro de fotoluminiscencia ampliándolo y con el cual normalmente se caracteriza la calidad del sistema cuántico. Los QWs se conforman de tres secciones o capas, de las cuales dos se asumen con mayor energía de banda prohibida que emparedan a otro material con una menor generando dos interfaces importantes que definen la calidad del sistema de confinamiento. La cantidad y posición de estados o niveles de energía que se generen en el sistema, dependen del espesor y de los materiales con que se fabriquen.

Existen diversas técnicas de deposición de materiales semiconductores como epitaxia en fase líquida (liquid phase epitaxy, LPE), depósito químico de vapores metalorgánicos (metal organic chemical vapor deposition, MOCVD), epitaxia por haces moleculares

(molecular beam epitaxy, MBE), entre otros. En general y a nivel de investigación, el sistema de crecimiento más utilizado es el MBE en el que se puede realizar deposiciones controladas con espesores de 1 nm en un ambiente de ultra alto vacío (McCray, 2007). En este trabajo la aleación utilizada para fabricar los QWs es el ternario Arsenuro de Galio con Aluminio (AlGaAs) y el compuesto binario de Arsenuro de Galio (GaAs) que pertenecen al grupo de semiconductores III-V.

Finalmente, se reporta la caracterización de una muestra de tres pozos cuánticos *in-situ* por medio de su conformación superficial dando cuenta de la composición de los materiales depositados, así como la cantidad de estos, y *ex-situ* por medio de espectroscopía por fotoluminiscencia a baja temperatura para observar la contribución a la forma de línea de cada uno de los QWs.

2. Detalles experimentales

a. Muestra

En este trabajo se utilizó una muestra que consiste en la fabricación epitaxial de pozos cuánticos sobre un sustrato cristalino de GaAs (001) con un dopaje *tipo-n* de $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ en un sistema MBE. Los materiales que conforman a los QWs son Al y Ga como cationes y As como anión. Para garantizar la dimerización de las moléculas de Arsénico, el sistema de crecimiento tiene una celda Cracker con la que incluso se puede controlar el flujo molecular más allá de la obturación con la que normalmente cuentan las celdas de efusión. Durante la deposición de los materiales la presión de la cámara de crecimiento se mantuvo constante en 2×10^{-8} torr apoyada por un sistema de criorefrigeración adaptado a la cámara;

adicionalmente, no hubo un dopaje intencional por lo que se considera que las capas están libres de portadores.

La estructura completa (ver Figura 1) consiste en una capa buffer o colchón (1000 Å) de GaAs sin dopar seguida de 1000 Å de AlGaAs que funciona como barrera de confinamiento electrónico y a su vez funciona como una capa espaciadora para evitar efectos de tunelamiento de los electrones entre las capas de menor energía (Bottazzi, Parisini, Tarricone, Magnanini, & Baraldi, 2000; Zory, 1993). Seguido de esta capa, se depositaron en este orden los tres pozos cuánticos de GaAs con espesores de 54, 28 y 20 Å (19, 10 y 7 ml, respectivamente), cada uno de ellos separado por la barrera espaciadora de AlGaAs.

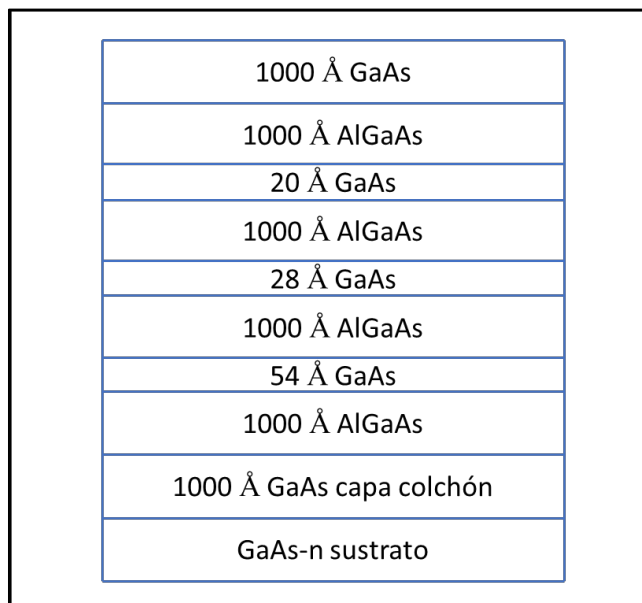


Figura 1. Esquema de la estructura de pozos cuánticos con tres diferentes espesores (54, 28 y 20 Å) emparejados por el ternario AlGaAs, con una composición de Al=33 % crecidos por MBE.

b. Reflexión de electrones difractados de alta energía

El sistema de reflexión de electrones difractados de alta energía (reflection high energy electron diffraction, RHEED) que se utilizó en este trabajo está acoplado al sistema de crecimiento epitaxial de manera que permite el monitoreo *in-situ* y en tiempo real de la información geométrica en la superficie de la muestra debido a las condiciones de alto vacío en el MBE. El haz de electrones del sistema RHEED es de 12 KeV e interactúa con la superficie de la muestra con un ángulo de 4°. Estas condiciones permiten la observación de la reconstrucción superficial de los átomos, permitiendo con esto el análisis del porcentaje de llenado de la deposición de material por capas a través de las oscilaciones RHEED, por lo tanto se puede estimar la cantidad de material, la velocidad de deposición y la composición de las aleaciones. (Ichimiya & Cohen, 2004).

c. Espectroscopía por fotoluminiscencia

El arreglo experimental de fotoluminiscencia (photoluminescence, PL) utilizado para la caracterización espectroscópica de la muestra bajo estudio se muestra en la Figura 2. El montaje consiste en un criostato de nitrógeno líquido estabilizado a una temperatura de 150 °K (no ilustrado en esquema) que contiene la muestra. Como fuente de excitación o bombeo óptico se utilizó un láser de Argón con una emisión en 514 nm y de potencia variable y modulado por un recortador mecánico sintonizado a 200 Hz, cuya frecuencia se referencia a un amplificador tipo lock-in de la marca Princeton con el que se discriminan perturbaciones ajenas a la frecuencia de modulación.

Los fotones que son emitidos por la muestra son focalizados mediante un arreglo de óptico que consta de un espejo colector y una lente (de 10 y 5 cm de diámetro, respectivamente) que focaliza la luz en la entrada de un monocromador, de la marca Acton

de 0.5 m de longitud, que separa la radiación según su longitud de onda. Un filtro óptico de corte permite excluir la luz dispersada del láser en la superficie de la muestra a la entrada del monocromador. El detector colocado a la salida del monocromador es de Germanio. Un software implementado en LabVIEW se encarga de la automatización del proceso experimental de PL.

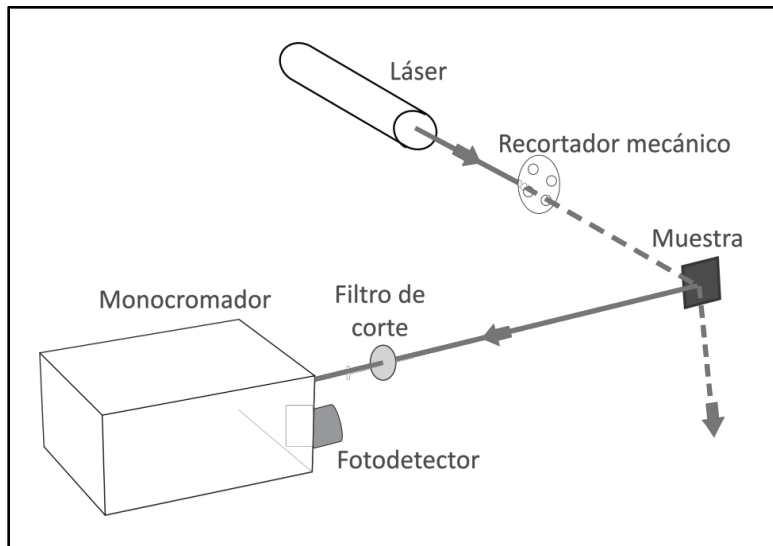


Figura 2. Esquema del sistema utilizado para caracterización por medio de espectroscopía por fotoluminiscencia.

3. Resultados

La composición química del ternario $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ fue calibrada y monitoreada en tiempo real dentro de la cámara de crecimiento del sistema MBE por medio de RHEED. En todo momento se debe mantener el estricto control de la composición del ternario debido a que la masa efectiva depende de la concentración de los materiales, esto implica una diferente solución al sistema cuantizado. Para la muestra analizada en este trabajo, se utilizó una composición del 33% de Aluminio. El procedimiento para acertar en la composición química implica encontrar la velocidad de deposición adecuada del GaAs (V_{GaAs}) manteniendo fija la

temperatura del crisol de Galio. Una vez garantizado el control de la V_{GaAs} , se abre el obturador del aluminio y se verifica su velocidad de deposición (V_{AlGaAs}). La relación entre las velocidades de crecimiento para la obtención de la composición de Aluminio (x) debe cumplir la siguiente expresión (Harvey, Bertness, Hickernell, Wang, & Splett, 2003; Turco, Massies, & Contour, 1987):

$$x = \frac{V_{\text{AlGaAs}} - V_{\text{GaAs}}}{V_{\text{AlGaAs}}}. \quad (1)$$

Las velocidades de crecimiento se obtuvieron eligiendo la sección de área en la pantalla de Fósforo como lo muestra la Figura 3. La razón de cambio de la intensidad en el área seleccionada es proporcional a la velocidad de deposición del material en términos de monocapas.

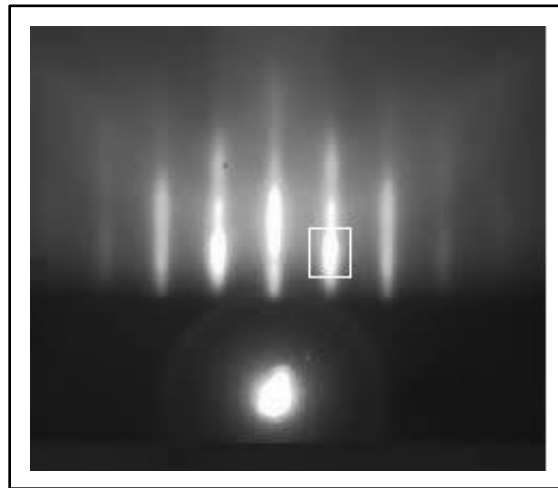


Figura 3. Selección de área en el patrón RHEED para una reconstrucción (2x4), en la dirección [110] del ternario AlGaAs para cálculo de velocidades y composición.

En la Figura 4 se muestra el patrón de oscilaciones RHEED observado en el experimento para el área seleccionada. Las oscilaciones corresponden a la deposición de

AlGaAs en la que por medio del software propio del instrumento se obtiene la velocidad a la que se deposita el material. El procedimiento se repitió para calibrar la velocidad de deposición del GaAs. La claridad de las oscilaciones tiene relación con el acople del parámetro de red del material GaAs con respecto al del AlGaAs. Estos materiales presentan parámetros de red muy cercanos ($a_{\text{GaAs}} = 5.65 \text{ \AA}$ y $a_{\text{AlAs}} = 5.66 \text{ \AA}$) y gracias a esta similitud es posible generar compuestos ternarios en cualquier proporción entre 0 y 1. Lo anterior conduce a estimar un desacople de red del 1.8 %, lo cual es casi imperceptible en deposiciones epitaxiales de semiconductores.

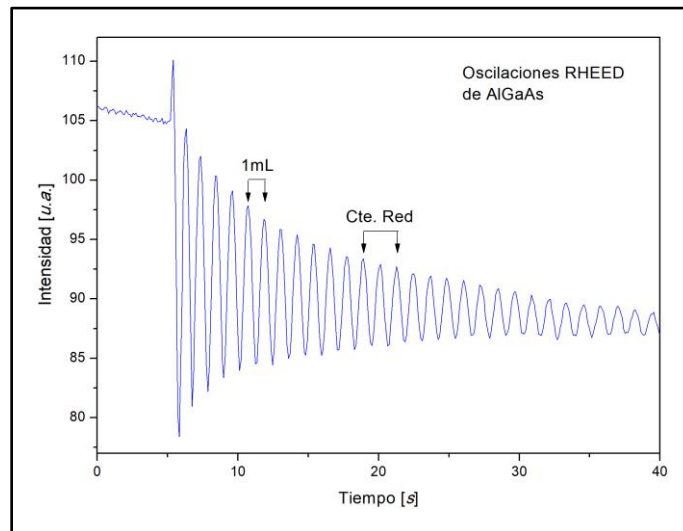


Figura 4. Patrón de oscilaciones de la técnica de RHEED de la deposición de AlGaAs (2x4) para la muestra analizada en la dirección [110]. Se señala un ciclo de oscilación equivalente a 1 ml y dos ciclos como equivalente a una constante de red del material.

De acuerdo a la Ecuación 1, para calcular la composición de aluminio, se parte de la velocidad de deposición del GaAs que correspondió a una $V_{\text{GaAs}} = 1.55 \text{ \AA/s}$ y la velocidad que se obtuvo para el AlGaAs fue de $V_{\text{AlGaAs}} = 2.22 \text{ \AA/s}$, con lo cual se obtuvo una

composición del 33 % de Aluminio. La energía de banda prohibida (Eg) para el ternario es obtenida a partir de la expresión (Adachi, 1994):

$$Eg_{AlGaAs} = Eg_{GaAs} + 1.247x, \quad (2)$$

donde x es el valor de la composición de Aluminio ($x=0.33$); la cantidad resultante tiene unidades de electrón-volts. Siendo que $Eg_{GaAs}[300 \text{ °K}] = 1.424 \text{ eV}$, entonces se tiene que la energía de banda prohibida para el $Al_{0.33}Ga_{0.67}As$ a temperatura ambiente es $Eg_{AlGaAs}[300 \text{ °K}] = 1.836 \text{ eV}$. La Ecuación 2 solo es válida para el régimen de transición directa de energía de banda prohibida que en este caso corresponde a composiciones de Aluminio $x < 45 \%$. Considerando la temperatura que se tomó como referencia en el equipo de espectroscopía (150 °K), la energía de banda prohibida para el $Al_{0.33}Ga_{0.67}As$ correspondiente y en función de la temperatura ($Eg_{AlGaAs}[T, x]$) es obtenida a partir de (Aspnes, 1976):

$$Eg_{AlGaAs}[T, x] = Eg_{AlGaAs}[0 K, x] - \frac{5.41T^2 \cdot 10^{-4}}{T+204}, \quad (3)$$

con

$$Eg_{AlGaAs}[0 K, x] = 1.519 + 1.155x + 0.37x^2, \quad (4)$$

donde T es la temperatura (150 °K), $Eg_{AlGaAs}[0 K, x]$ es la energía de banda prohibida del AlGaAs a 0 °K dada una composición química x . Por lo tanto, se obtiene que bajo estas condiciones de composición y temperatura, la energía de banda prohibida para el $Al_{0.33}Ga_{0.67}As$ a una $T=150 \text{ °K}$ es 1.906 eV . El correspondiente diagrama de la estructura que describe la energía con respecto a la dirección de crecimiento de la muestra es detallado en

la Figura 5. Se observan los diferentes niveles de energía asociados al material binario y ternario, así como las energías de los pozos cuánticos $E_{g_{QW1}}$, $E_{g_{QW2}}$ y $E_{g_{QW3}}$ (1.60, 1.71 y 1.77 eV, respectivamente). Es importante volver a mencionar que estas energías de transiciones interbanda de los QWs corresponden a la condición experimental de la caracterización por fotoluminiscencia a una temperatura de 150 °K. En el diagrama también está colocada la capa colchón de GaAs que sirve para la reducción de estrés entre el sustrato y las capas epitaxiales, así como la capa de cubierta de GaAs para evitar el fenómeno de oxidación que normalmente ocurre al exponer la estructura al ambiente cuando esta tiene una capa final que contenga Aluminio.

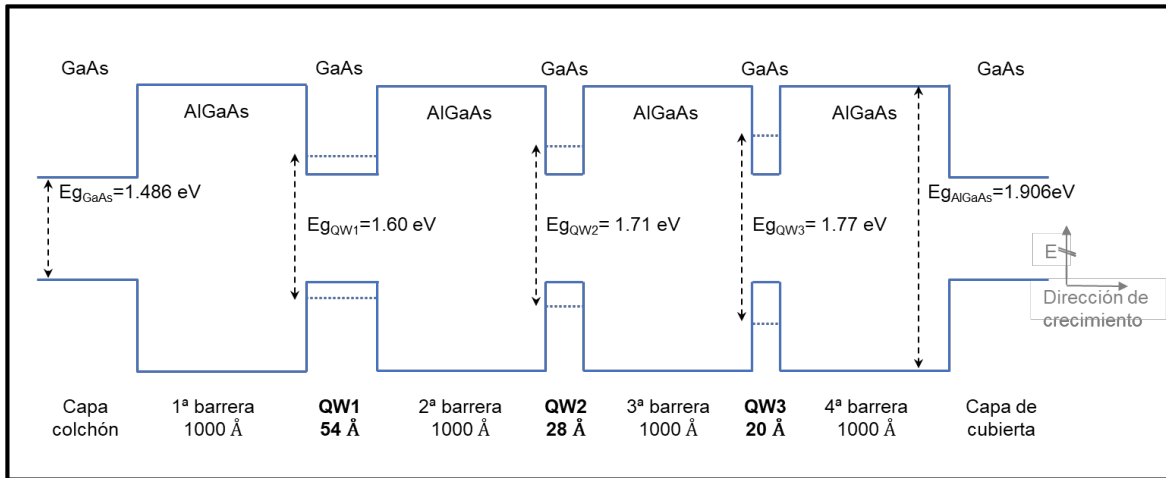


Figura 5. Diagrama descriptivo de las bandas de valencia y conducción de la estructura con tres diferentes QWs de GaAs (54, 28 y 20 Å) separados por barreras de AlGaAs al 33 % con energías asociadas a una temperatura de 150 °K.

La caracterización *ex-situ* de la estructura de los tres pozos cuánticos con diferentes espesores y con barreras espaciadoras de 1000 Å se realizó por medio de espectroscopía por PL a temperatura ambiente y a 150 °K. La medición de PL en condiciones ambientales (no mostrada en este trabajo) arrojó una señal deficiente y

ruidosa, sin embargo al bajar la temperatura y controlarla a 150 °K, la señal de PL mejoró sustancialmente y es mostrada en la Figura 6.

En el espectro se puede notar que los pozos están bien definidos y esto permite garantizar tiempos o velocidades de crecimiento para una estructura QCL completa con las implicaciones de exactitud que demanda. Los últimos tres picos en el espectro corresponden al primer estado cuantizado de energía de cada uno de los QWs. Los espesores de los QWs están dados en Angstroms y se coloca la energía asociada en unidades de eV.

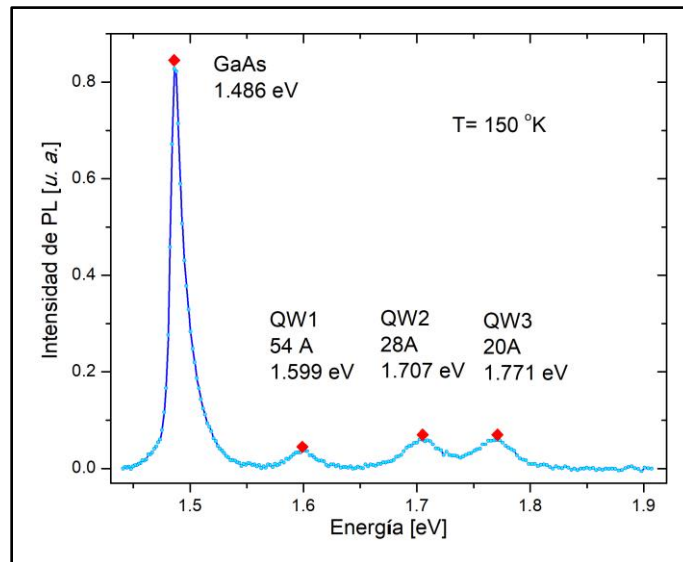


Figura 6. Caracterización por espectroscopía de fotoluminiscencia de tres pozos cuánticos de GaAs con espesores de 54, 28 y 20 Å separados por 1000 Å de AlGaAs. Mediciones realizadas a una temperatura de 150 °K.

El primer pico que se observa corresponde a la energía del gap del GaAs con una energía de 1.486 eV. Enseguida se observan los pozos cuánticos QW1, QW2 y QW3 con espesores de 54, 28 y 20 Å, respectivamente. Las transiciones interbanda de los pozos

cuánticos son 1.599, 1.707 y 1.771 eV con longitudes de onda asociadas de 775, 726 y 700 nm, respectivamente. La caracterización por espectroscopía de PL corresponde a la temperatura indicada de 150 °K.

4. Conclusiones

La importancia de calibrar y controlar los parámetros de crecimiento en un sistema de deposición de películas de baja dimensionalidad, como lo es por medio de MBE, es crucial para obtener estructuras con las dimensiones correctas debido a la alta sensibilidad de los niveles cuantizados respecto a las transiciones energéticas. La técnica de RHEED permite controlar las condiciones de crecimiento in-situ y en tiempo real. Con el apoyo de esta técnica se lograron obtener los tres QW bien definidos y con las características adecuadas de composición y espesores. Por medio de PL a baja temperatura se logró corroborar la presencia y calidad de los pozos en concordancia con los parámetros controlados por RHEED. Ambas técnicas son fundamentales para garantizar la obtención, en general, de estructuras de baja dimensionalidad con la calidad necesaria.

5. Referencias

- Adachi, S. (1994). *GaAs and Related Materials*. World Scientific. <https://doi.org/10.1142/2508>
- Aspnes, D. E. (1976). GaAs lower conduction-band minima: Ordering and properties. *Phys. Rev. B*, 14(12), 5331–5343. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.14.5331>
- Bottazzi, C., Parisini, A., Tarricone, L., Magnanini, R., & Baraldi, A. (2000). Optical properties of $\text{GaSb}/\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{Sb}$ multiple quantum wells. *Physical Review B*, 62(4), 2731–2736. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.62.2731>
- González-Fernández, J. V., Herrera-Jasso, R., Ulloa-Castillo, N. A., Ortega-Gallegos, J., Castro-García, R., Lastras-Martínez, L. F., ... Gozu, S. (2016). Residual electric fields of InGaAs/AlAs/AlAsSb (001) coupled double quantum wells structures assessed by

- photorefectance anisotropy. *International Journal of Modern Physics B*, 30(01), 1550248. <https://doi.org/10.1142/S0217979215502483>
- Harrison, P., & Valavanis, A. (2016). *Quantum Wells, Wires and Dots*. Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd. <https://doi.org/10.1002/9781118923337>
- Harvey, T. ., Bertness, K. ., Hickernell, R. ., Wang, C. ., & Splett, J. . (2003). Accuracy of AlGaAs growth rates and composition determination using RHEED oscillations. *Journal of Crystal Growth*, 251(1–4), 73–79. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(03\)00840-6](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(03)00840-6)
- Ichimiya, A., & Cohen, P. I. (2004). *Reflection high-energy electron diffraction*. Cambridge University Press.
- McCray, W. P. (2007). MBE deserves a place in the history books. *Nature Nanotechnology*, 2(5), 259–261. <https://doi.org/10.1038/nnano.2007.121>
- Turco, F., Massies, J., & Contour, J. P. (1987). Application de la technique des oscillations d'intensité de diffraction électronique en incidence rasante à la croissance des semi-conducteurs III-V par épitaxie par jets moléculaires. *Revue de Physique Appliquée*, 22(8), 827–836. <https://doi.org/10.1051/rphysap:01987002208082700>
- Zory, P. S. (1993). *Quantum well lasers*. Academic Press.