Влияние дрейфа носителей заряда во встроенном квазиэлектрическом поле на спектр излучения варизонных полупроводников

© А.И. Базык, В.Ф. Коваленко, А.Ю. Миронченко, С.В. Шутов

Институт физики полупроводников Херсонского отделения Национальной академии наук Украины, 325008 Херсон, Украина

(Получена 20 декабря 1999 г. Принята к печати 9 июня 2000 г.)

Выполнен расчет формы спектра межзонной фотолюминесценции варизонного полупроводника в условиях переноса неравновесных носителей заряда под действием встроенного квазиэлектрического поля $E = e^{-1} \nabla E_g$. Показано, что деформация коротковолновой области спектра излучения происходит вследствие координатной зависимости вероятности излучательной рекомбинации в широкозонной области кристалла. Результаты расчета подтверждены измерением спектров фотолюминесценции при 300 К нелегированных ($n \le 10^{16}$ см⁻³) варизонных твердых растворов Al_xGa_{1-x}As со значениями *E* в интервале 90 ÷ 650 В/см.

Дрейфовый характер переноса неравновесных носителей заряда (HH3) во встроенном квазиэлектрическом поле кристалла $E = e^{-1}\nabla E_g$ приводит к изменению основных люминесцентных характеристик варизонных полупроводников по сравнению с полупроводниками постоянного состава, в частности к изменению формы спектра излучения. Исследованию люминесцентных свойств варизонных полупроводников посвящено большое количество работ [1–9], однако детально явление излучательной рекомбинации в них изучено только для случая сравнительно небольших градиентов ширины запрещенной зоны, т.е. незначительных скоростей дрейфа HH3 во встроенном поле, когда форма спектра излучения воспроизводит экспоненциально убывающий в глубь кристалла профиль распределения концентрации HH3.

В работах [10–14] показано, что в случае очень больших значений градиента ∇E_g , удовлетворяющих условию

$$d \ll e^{-1} \mu \tau |\nabla E_g|$$

где d — толщина варизонного кристалла; μ , τ — подвижность и время жизни ННЗ, т.е. в случае очень высоких скоростей дрейфа, время пребывания ННЗ в варизонной области существенно меньше их времени жизни τ , поэтому рекомбинация их в этой области не происходит и спектр излучения отсутствует.

В промежуточном интервале изменения ∇E_g , т.е. при средних и больших значениях ∇E_g , как установлено в работах [6,15,16], наблюдается полное или частичное отсутствие излучательной рекомбинации в широкозонном участке варизонного полупроводника, что проявляется в деформации коротковолновой области спектра излучения и смещении его максимума в длинноволновую область. Такая особенность излучательной рекомбинации в варизонных полупроводниках объяснялась уменьшением внутренней квантовой эффективности излучения в широкозонном участке из-за конкурирующего с процессом излучательной рекомбинации процесса уноса ННЗ из этой области в более узкозонные участки за времена дрейфа $t_{\rm dr} < \tau_r$ (τ_r — излучательное время жизни).

Детально эта особенность излучательной рекомбинации в варизонных полупроводниках не исследована.

В настоящей работе проведен расчет формы спектра излучения варизонного полупроводника при условии высокой скорости дрейфа ННЗ во встроенном поле кристалла *E* и выполнено сравнение с экспериментом.

Расчет формы спектра излучения

Для расчета формы спектра межзонного излучения используем подход, рассмотренный в работе [4] для полубесконечного кристалла *n*-типа, ширина запрещенной зоны E_g которого линейно уменьшается по мере удаления от освещаемой поверхности (рис. 1):

$$E_g(z) = E_g(0) - eEz, \tag{1}$$

где $E_g(0)$ — ширина запрещенной зоны при z = 0. Расчет произведен с учетом того, что в широкозонной области полупроводника у ННЗ кроме вероятности прорекомбинировать в ней имеется вероятность уйти из этой области, не прорекомбинировав, за счет дрейфа в поле кристалла (в отличие от расчета в работе [4], где влияние этого фактора на форму спектра не учитывалось).



Рис. 1. Энергетическая диаграмма варизонного полупроводника.

Анализ указанных процессов показывает, что наличие дрейфа ННЗ обусловливает координатную зависимость рекомбинации, которая может быть представлена в виде

$$W(z) = \tau^{-1} \exp\left(-\frac{\tau V_{\rm dr}}{z}\right),\tag{2}$$

где V_{dr} — скорость дрейфа ННЗ в поле *E*. Для излучательной рекомбинации зависимость ее вероятности от координаты $W_r(z)$ имеет аналогичный вид с заменой в соотношении (2) τ на τ_r .

При линейной рекомбинации форма спектра межзонного излучения будет описываться следующим выражением:

$$I(z) = W_r(z)\Delta P(z), \qquad (3)$$

где $\Delta P(z)$ — распределение концентрации ННЗ по координате *z* в направлении действия поля *E*.

Для расчета $\Delta P(z)$ необходимо решить уравнение непрерывности. Следует заметить, что "классическое" уравнение непрерывности [17]

$$D\frac{d^2}{dz^2}\Delta P(z) - \mu E\frac{d}{dz}\Delta P(z) - \frac{\Delta P(z)}{\tau} + G(z) = 0 \quad (4)$$

(здесь D — коэффициент диффузии HH3, G(z) функция генерации HH3), используемое в работе [4] для нахождения $\Delta P(z)$, в рассматриваемом в настоящей работе случае не может быть использовано, так как оно, указывая на одновременность протекания в варизонном полупроводнике диффузии, дрейфа в поле E и рекомбинации HH3, не учитывает вероятности ухода HH3 из широкозонного участка кристалла без рекомбинации. Учет этой вероятности произведем заменой вероятности рекомбинации $W = 1/\tau$ в уравнении (4) вероятностью рекомбинации с учетом ее координатной зависимости W(z). Тогда уравнение непрерывности можно представить в виде

$$D \frac{d^2}{dz^2} \Delta P(z) - \mu E \frac{d}{dz} \Delta P(z) - \frac{\Delta P(z)}{\tau} \times \exp\left(-\frac{\tau V_{\rm dr}}{z}\right) + G(z) = 0.$$
(5)

Для упрощения решения уравнения (5) рассмотрим такие значения ∇E_g , при которых диффузионным потоком можно пренебречь по сравнению с дрейфовым, т.е. при условии $L/l_+ \ll 1$, где L и l_+ — диффузионная и диффузионно-дрейфовая длины ННЗ соответственно. При 300 К и диффузионной длине $L = 5 \cdot 10^{-4}$ см это возможно уже при $\nabla E_g > 50$ эВ/см. Тогда уравнение (5) преобразуется к виду

$$-V_{\rm dr}\frac{d}{dz}\Delta P(z) - \frac{\Delta P(z)}{\tau}\exp\left(-\frac{\tau V_{\rm dr}}{z}\right) + G(z) = 0.$$
 (6)

Для прямозонного полупроводника, согласно [18], при энергии возбуждающих квантов света $h\nu > E_{g0}$, где

 E_{g0} — ширина запрещенной зоны на освещаемой поверхности, в полях $E < e^{-1}\alpha(h\nu - E_{g0})$ функцию генерации ННЗ $G(z, h\nu)$ можно представить в виде

$$G(z,h\nu) = \alpha\beta J_0 \exp(-\alpha z), \qquad (7)$$

где β — квантовый выход внутреннего фотоэффекта; α — коэффициент поглощения возбуждающего излучения, который может быть выражен ступенчатой функцией [2]

$$\alpha(z) = \begin{cases} \alpha_0 & \text{при } h\nu \ge E_g(z), \\ 0 & \text{при } h\nu < E_g(z); \end{cases}$$
(8)

*J*₀ — интенсивность возбуждения.

Общее решение уравнения (6) при граничных условиях

$$V_{\rm dr}\Delta P(0) + S_0\Delta P(0) = \beta J_0, \quad \Delta P(z)\Big|_{z\to\infty} = 0, \quad (9)$$

где S_0 — скорость поверхностной рекомбинации ННЗ, имеет вид

$$\Delta P(y) = e^{-F(y)} \left[C + G_0 \int \exp\left(F(y) - \delta y\right) dy \right], \quad (10)$$

где

$$y = \frac{z}{l_+}, \qquad \delta = \alpha l_+, \qquad G_0 = \beta \alpha J_0 \tau,$$

 $C = \text{const}, \qquad F(y) = \int e^{-\frac{1}{y}} dy.$

Исследование характера зависимости F(y) показало, что в интервале $0 < y \le 10$ она с достаточной точностью может быть аппроксимирована в виде непрерывной последовательности прямолинейных отрезков $F_i(y) = b_i y - q_i$ $(b_i, q_i$ — постоянные для каждого отрезка). Тогда решение (10) преобразуется к виду

$$\Delta P(y) = e^{q-by} \left[C + G_0 \int e^{by-q-\delta y} dy \right]$$
$$= Ce^{q-by} + \frac{G_0}{b-\delta} e^{-\delta y}.$$
(11)

Определив значение С из граничных условий (9)

$$C = \frac{\beta J_0}{e^q (V_{\rm dr} + S_0)} + \frac{G_0}{e^q (\alpha l_+ - b)}$$

и переходя к переменной *z*, решение (11) можно записать в виде

$$\Delta P(z) = \left[\frac{\beta J_0}{V_{\rm dr} + S_0} + \frac{G_0}{\alpha l_+ - b} \right] \\ \times \exp\left(-\frac{bz}{l_+}\right) + \frac{G_0}{b - \alpha l_+} \exp(-\alpha z). \quad (12)$$

Физика и техника полупроводников, 2001, том 35, вып. 1



Рис. 2. Формы спектров излучения варизонных полупроводников, рассчитанные: 1-3 — с учетом координатной зависимости вероятности излучательной рекомбинации по формуле (14); 1'-3' — без учета координатной зависимости по формуле (16) при градиенте ширины запрещенной зоны ∇E_{g} , эВ/см: 1, 1' - 200; 2, 2' - 300; 3, 3' - 500.

Учитывая, что b = F'(y) (b — угол наклона F(y) для данного отрезка прямой), выражение для формы спектра межзонного излучения получим в виде

$$I(z) = \frac{1}{\tau_r} \exp\left(-\frac{\tau_r V_{\rm dr}}{z}\right) \left\{ \left[\frac{\beta J_0}{V_{\rm dr} + S_0} + \frac{\beta J_0 \alpha \tau}{\alpha l_+ - \exp\left(-\frac{l_+}{z}\right)} \right] \times \exp\left[-\frac{z}{l_+} \exp\left(-\frac{l_+}{z}\right)\right] + \frac{\beta J_0 \alpha \tau \exp(-\alpha z)}{\exp\left(-\frac{l_+}{z}\right) - \alpha l_+} \right\}.$$
 (13)

В случае сильно поглощаемого возбуждающего излучения при $\alpha z \gg 1$ имеем

$$I(z) = \frac{1}{\tau_r} \exp\left(-\frac{\tau_r V_{\rm dr}}{z}\right) \left\{ \left[\frac{\beta J_0}{V_{\rm dr} + S_0} + \frac{\beta J_0 \alpha \tau}{\alpha l_+ - \exp\left(-\frac{l_+}{z}\right)} \right] \times \exp\left[-\frac{z}{l_+} \exp\left(-\frac{l_+}{z}\right)\right] \right\}.$$
 (14)

В объеме кристалла на расстояниях от освещаемой поверхности¹ $z > l_+, z > \tau_r V_{dr}$ выражение (14) принимает вид

$$I(z) = \frac{1}{\tau_r} \left(\frac{J_0 \beta}{V_{\rm dr} + S_0} + \frac{J_0 \beta \alpha \tau}{\alpha l_+} \right) \exp\left(-\frac{z}{l_+}\right)$$
(15)

и совпадает с выражением

$$I(z) = C' \exp\left(-\frac{z}{l_+}\right),\tag{16}$$

справедливым для формы спектра излучения без учета координатной зависимости вероятности излучательной рекомбинации, приведенным в работе [4].

Зависимость теоретической формы спектра излучения в эпитаксиальных слоях с параметрами, примерно соответствующими значениям в варизонных твердых растворах $Al_xGa_{1-x}As$, рассчитанная по формулам (14) и (16), от величины встроенного поля E, представлена на рис. 2 (кривые 1-3 и 1'-3' соответственно). Принятые при расчете значения параметров:

$$T = 77 \text{ K}, \quad \alpha = 2.72 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}, \quad D_p = 5 \text{ cm}^2 \text{ c}^{-1},$$

$$\tau = 10^{-9} \text{ c}, \quad \beta = 1, \quad \tau_i = 2.5 \cdot 10^{-9} \text{ c},$$

$$S_0 = 10^5 \text{ cm/c}, \quad J_0 = 10^{20} \text{ cm}^{-2} \text{ c}^{-1}.$$

Как видно из приведенных на рис. 2 кривых 1-3, учет координатной зависимости вероятности излучательной рекомбинации приводит к смещению максимума спектра излучения в длинноволновую область, которое увеличивается с ростом E, тогда как неучет этой зависимости не изменяет положения максимума при увеличении встроенного поля *E* (кривые 1'-3').

Сравнение с экспериментом

С целью экспериментальной проверки правильности теоретических выводов, полученных в настоящей работе, было проведено измерение спектров фотолюминесценции (ФЛ) эпитаксиальных слоев нелегированных ($n \leq 10^{16} \,\mathrm{cm}^{-3}$) варизонных твердых растворов Al_xGa_{1-x}As, выращенных из ограниченного объема раствора-расплава на подложках GaAs с максимальным содержанием AlAs на границе раздела слой-подложка $(x \cong 0.37)$ и практически линейно уменьшающимся (примерно на 80% толщины) — от подложки к поверхности слоя (x = 0). Значения ∇E_g и d для разных структур изменялись в пределах $90 \le \nabla E_g \le 650$ эВ/см, $16 \le d \le 70$ мкм.

ФЛ при 300 К возбуждалась как с узкозонной (при тормозящем действии поля Е), так и с широкозонной (при ускоряющем действии поля Е) стороны слоев с использованием "прямых" и "обратных" наклонных шлифов с углом наклона 5 ÷ 40' [19]. В качестве источника возбуждающего излучения применялся аргоновый лазер с $\lambda = 0.488 \div 0.514$ мкм и интенсивностью возбуждения $J = 2 \cdot 10^{20} \,\mathrm{cm}^{-2} \,\mathrm{c}^{-1}$. Диаметр светового зонда составлял приблизительно 30 мкм. Спектры ФЛ регистрировались с помощью германиевого фотодиода по стандартной методике.

Применение прямого наклонного шлифа, в котором удалена часть эпитаксиального слоя со стороны минимальной ширины запрещенной зоны (E_g^{\min}) , и обратного наклонного шлифа, в котором удалены подложка и часть эпитаксиального слоя со стороны максимальной ширины запрещенной зоны (E_g^{\max}), позволяет возбуждать ФЛ в различных участках по толщине слоя с узкозонной и широкозонной стороны соответственно при сканировании поверхности наклонного шлифа световым зондом.²

¹ В реальных кристаллах толщина *d*, как правило, не превышает нескольких значений l_+ и всегда $d < 10l_+$.

² Детали методики измерения спектров ФЛ варизонных полупроводников с использованием наклонных шлифов приведены в работе [19].

растворов $n-Al_xGa_{1-x}As$ с различными горизонных пердак ускоряющем (1-3) и тормозящем (4) действии встроенного поля E; T = 300 K; ∇E_g , эВ/см: 1, 4 — 160; 2, 4 — 372; 3, 4 — 645. На вставке — схема эксперимента: стрелками показаны направления возбуждения. Нумерация стрелок на вставке соответствует нумерации спектров ФЛ.

На рис. З приведены спектры ФЛ эпитаксиальных слоев с различными значениями E, измеренные с широкозонной (кривые 1-3) и узкозонной (кривая 4) сторон при одном и том же значении состава твердого раствора на освещаемой поверхности, соответствующего ширине запрещенной зоны E_{g0} , как показано на вставке³ к рис. З. При возбуждении с узкозонной стороны положение максимума спектра излучения $h\nu_{m4}$ не зависит от E. В этом случае тормозящее поле E, прижимая ННЗ к освещаемой поверхности, обусловливает совпадение областей генерации ННЗ и их излучательной рекомбинации.

При возбуждении ФЛ со стороны E_g^{max} имеет место смещение коротковолнового максимума спектра излучения $h\nu_{\text{m}I-3}$ в низкоэнергетическую область по сравнению со значением E_{g0} на освещаемой поверхности (кривые 1-3), возрастающее⁴ с увеличением E. Оно соответствует пространственному сдвигу по величине $E_g(z) = h\nu_{\text{m}I-3}$ в узкозонную область кристалла на расстояние $z^* = z' - z_0$ (z' — координата положения максимума $h\nu_{\text{m}I-3} = E_g(z')$, см. вставку на рис. 3) от освещаемой поверхности вследствие координатной

зависимости вероятности излучательной рекомбинации при ускоряющем действии поля Е. Поскольку в широкозонной области кристалла протяженностью z* эта вероятность значительно ниже, чем в узкозонной области (при $z \ge z'$, см. вставку на рис. 3), можно говорить о пространственном разделении областей генерации и излучательной рекомбинации ННЗ на расстояниях, приблизительно равных z*. На рис. 4 представлены зависимости пространственного смещения максимумов измеренных и расчетных спектров излучения в узкозонную область z^* от напряженности ускоряющего поля E. Для измеренных спектров ФЛ величины z* определялись с помощью зависимости (1), в которой полагалось $E_g(z) = h\nu_{m1-3}, E_g(0) = E_{g0} = h\nu_{m4}$. Значения z^* для расчетных спектров брались непосредственно на оси абсцисс рис. 2.

Как видно, экспериментальная зависимость $z^*(E)$, имея в целом тот же характер, что и теоретическая, проявляет особенности своего поведения. Так, при E < 200 В/см сдвиг максимума спектра излучения в реальных кристаллах более существенный по сравнению с расчетным. Это связано с тем, что в исследованных твердых растворах с $\nabla E_g < 200$ В/см значения рекомбинационных параметров (L, τ) более высоки, чем в расчетных [20]. При $\nabla E_g > 200$ В/см величины z^* в реальных кристаллах становятся меньше теоретических; при этом зависимость $z^*(E)$ для измеренных кристаллов с ростом E ослабляется. Такой характер зависимости $z^*(E)$ обусловлен уменьшением рекомбинационных параметров с ростом градиента состава в результате ухудшения структурного совершенства кристаллов [20,21].

Таким образом, приведенные экспериментальные данные подтверждают правильность теоретического рассмотрения, изложенного выше. Коротковолновый участок спектра излучения варизонных полупроводников при средних и больших значениях встроенного поля формируется координатной зависимостью вероятности излучательной рекомбинации.



Рис. 4. Пространственное смещение z^* максимумов расчетных спектров (1) и измеренных спектров ФЛ твердых растворов $Al_xGa_{1-x}As(2)$ в узкозонную область кристалла в зависимости от величины встроенного поля *E*.

Физика и техника полупроводников, 2001, том 35, вып. 1



³ При возбуждении ФЛ со стороны E_g^{\min} значение E_{g0} в слоях с различной величиной E контролировалось по положению максимума $h\nu_{m4} \cong E_{g0}$ полосы ФЛ (рис. 3, кривая 4). При возбуждении со стороны E_g^{\max} координата на освещаемой поверхности обратного шлифа, соответствующая значению E_{g0} , устанавливалась прецизионным перемещением образца на расстояние $z_0 = (E_f(0) - h\nu_{m4})/eE$ от границы слой–подложка, которую находили по скачкообразному изменению спектрального состава и интенсивности ФЛ при сканировании световым зондом поверхности шлифа.

⁴ Наличие дополнительного длинноволнового максимума в измеренных спектрах ФЛ связано с накоплением ННЗ у тыльной узкозонной поверхности [5].

Список литературы

- Ж.И. Алфёров, В.М. Андреев, В.И. Корольков и др. ФТП, 3 (2), 541 (1969).
- [2] Г.В. Царенков. ФТП, **13** (6), 1095 (1979).
- [3] R.G. Roedel, V.G. Keramidas. J. Appl. Phys., 50 (10), 6353 (1979).
- [4] В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека, Л.Г. Шепель. ФТП, 11, 208 (1977).
- [5] В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека, Л.Г. Шепель. ФТП, **12** (12), 1421 (1978).
- [6] В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека, Л.Г. Шепель. ФТП, **12** (9), 1851 (1978).
- [7] А.И. Базык, В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека. УФЖ, **27** (11), 1728 (1982).
- [8] А.И. Базык, В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека и др. ЖПС, 42 (10), 441 (1985).
- [9] А.И. Базык, В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека. УФЖ, 27 (7), 1007 (1982).
- [10] В.В. Гутов, А.Н. Именков, Р.Ф. Казаринов и др. Письма ЖТФ, 1, 386 (1975).
- [11] В.В. Гутов, А.Н. Именков, Б.С. Кондратьев и др. ФТП, 13 (9), 1336 (1979).
- [12] Р.Ф. Казаринов, Р.А. Сурис. ФТП, 9(1), 12 (1975).
- [13] Р.Ф. Казаринов, Г.В. Царенков. ФТП, 10 (2), 297 (1976).
- [14] О.В. Константинов, Г.В. Царенков. ФТП, 10 (4), 720 (1976).
- [15] В.Ф. Коваленко. Автометрия, № 6, 54 (1980).
- [16] А.И. Базык, В.Ф. Коваленко, А.И. Курбангалеев, Г.П. Пека. Оптоэлектрон. и полупроводн. техн., № 15, 42 (1989).
- [17] С.М. Рывкин. Фотоэлектрические явления в полупроводниках (М., Физматгиз, 1963).
- [18] M. Konagai, K. Takahashi. Sol. St. Electron., 19, 259 (1976).
- [19] В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека, Л.Г. Шепель. ФТП, 14 (7), 1350 (1980).
- [20] Ф.П. Кесаманлы, В.Ф. Коваленко, И.Е. Марончук и др. ФТП, **12** (7), 1318 (1978).
- [21] О.К. Городниченко, Н.К. Дряпико, В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека. УФЖ, 27 (2), 267 (1982).

Редактор Т.А. Полянская

Effect of the charge carrier drift on emission spectrum of the graded band-gap semiconductors in the built-in quasi-electric field

A.I. Bazyk, V.F. Kovalenko, A.Yu. Mironchenko, S.V. Shutov

Institute of Physics of Semiconductors, National Academy of Sciences of the Ukraine, 325008 Kherson, the Ukraine

Abstract The shape of band-to-band luminescence spectrum of graded band-gap semiconductor under conditions of nonequilibrium carrier transfer caused by the built-in quasi-electric field $E = e^{-1}\nabla E_g$ has been calculated. It is shown that deformation of the short wave-length part of the spectrum results from the co-ordinate dependence of the radiation recombination probability in the half-band area of a crystal. The results of calculations are confirmed by experimental measurements of photoluminescence spectra of undoped ($n \leq 1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) graded band-gap Al_xGa_{1-x}As solid solutions with *E* varying in 90 ÷ 650 V/cm range at 300 K.