

Роль встроенных электрических полей в формировании излучения квантовых ям InGaN/GaN

© В.В. Криволапчук, В.В. Лундин, М.М. Мездрогина

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: vlad.krivol@mail.ioffe.ru, margaret.m@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 26 июля 2004 г.

В окончательной редакции 9 ноября 2004 г.)

На основании анализа эволюции времяразрешенных спектров фотолюминесценции впервые удалось экспериментально наблюдать коррелированное влияние встроенных электрических полей и долгоживущих локализованных состояний на формирование излучения в квантовых ямах на основе нитридов III группы. Показано, что исследование времяразрешенных спектров фотолюминесценции позволяет классифицировать светодиодные структуры для их использования в коммерческих целях.

Работа выполнена при поддержке программы Президиума РАН „Низкоразмерные квантовые структуры“.

Интенсивные исследования гетероструктур с квантовыми ямами на базе InGaN/GaN привели к созданию ряда коммерчески реализуемых светоизлучающих диодов на их основе для различных областей спектра [1,2]. В то же время известно, что концентрация дефектов в данных материалах остается достаточно большой и, в частности, не удается существенно уменьшить плотность дислокаций, возникающих вследствие наличия напряжений несоответствия из-за разностей параметров кристаллических решеток подложки (как правило, Al_2O_3) и GaN, а также термических напряжений между подложкой и GaN. Одновременно было показано, что в отличие от других полупроводников (GaAs, GaP), в которых дислокации играют роль безызлучательных [1,2] центров рекомбинации и поэтому при увеличении плотности дислокаций (10^4 cm^{-3}) интенсивность излучения стремится к нулю, концентрация центров излучательной рекомбинации в GaN не зависит от концентрации структурных дефектов [2]. Эта существенная особенность GaN и структур на его основе позволяет формировать приборы с высокой эффективностью на базе материалов с большей концентрацией структурных дефектов, чем в других соединениях A^3B^5 . Исследования последних лет показали, что гетероструктуры InGaN/GaN и приборы на их основе обладают рядом интересных свойств, которые, по-видимому, связаны с наличием спонтанного пьезоэлектрического поля [3]. Для увеличения эффективности работы данных приборов необходимо оценить влияние совокупности различных параметров структур на механизмы формирования излучения в них. Поэтому прогресс в данной области будет зависеть от понимания роли совокупного вклада спонтанного пьезоэлектрического поля и локализованных состояний в процесс формирования излучения в таких структурах.

Целью настоящей работы является исследование методами бесконтактной оптической спектроскопии характеристик излучения гетероструктур с квантовыми ямами на основе InGaN/GaN. Для решения поставленной проблемы анализируется возможность корреляции между локализованными состояниями и встроенными

пьезоэлектрическими полями, а также ее роль в формировании эффективного излучения в таких структурах. Для этого изучались стационарные и времяразрешенные спектры фотолюминесценции.

1. Эксперимент

В данной работе исследовались спектры излучения светодиодных структур с квантовыми ямами InGaN/GaN. Объект исследования представлял собой выращенный методом MOCVD на подложке из сапфира набор из пяти квантовых ям ($\sim 25 \text{ nm}$), разделенных барьерами GaN (70 nm). Спектры фотолюминесценции (PL) и электролюминесценции образцов излучались как при стационарном, так и при импульсном возбуждении. При этом регистрировались стационарные и задержанные во времени (времяразрешенные) спектры PL. Оптические измерения проводились на дифракционном спектрометре СДЛ-2 с обратной линейной дисперсией 1.3 nm/mm в области краевой люминесценции GaN. Для измерения задержанных во времени спектров и процессов затухания использовался импульсный азотный лазер типа ЛГИ-21 с длиной волны излучения $\lambda = 3371 \text{ \AA}$ и длительностью импульса (на полуширине) $\tau \approx 10 \text{ ns}$. Задержанные спектры регистрировались при изменении времени задержки t_d в интервале $t_d = 0-80 \mu\text{s}$ и во временном окне длительностью $5-10 \mu\text{s}$. Измерения проводились при температурах $T = 300, 77, 4.2 \text{ K}$. Для корректного сравнения спектров излучения разных структур InGaN/GaN контролируемые параметры — угол падения луча, интенсивность возбуждающего света, температура — были постоянными.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Спектр PL для всех исследованных образцов в случае стационарного возбуждения представляет собой линию в синей области ($\lambda \approx 445 \text{ nm}$) достаточно большой ин-

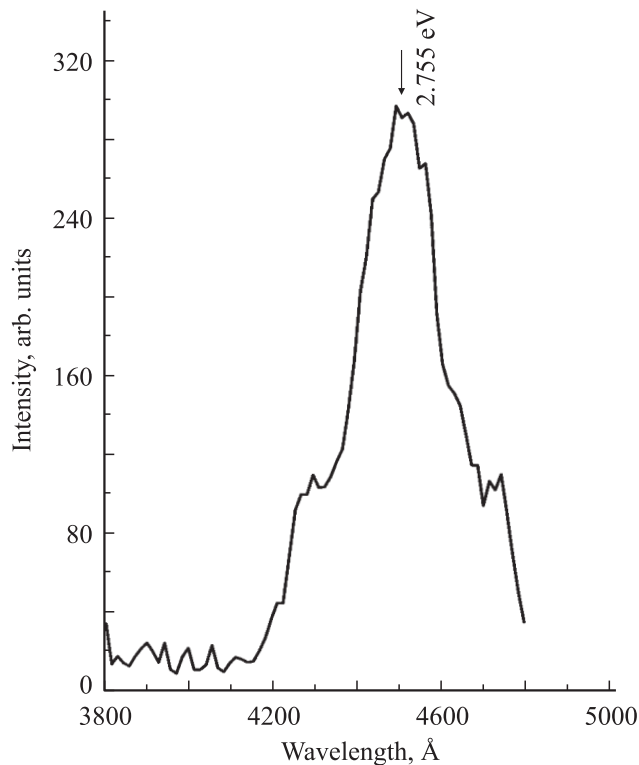


Рис. 1. Спектр фотолюминесценции гетероструктуры InGaN/GaN с квантовыми ямами. $T = 77$ K.

тенсивности, отвечающую излучению из квантовых ям (рис. 1).

При исследовании времяразрешенных спектров PL оказалось, что при сравнимой интенсивности излучения в синей области спектры различных образцов различаются по форме полосы люминесценции при отсутствии задержки во времени ($t_d = 0$). При этом в данной области спектра наблюдается, как правило, только одна достаточно интенсивная и неоднородно уширенная (дисперсия величины FWHM¹ для разных образцов не превышает 10 meV) линия, которая соответствует рекомбинации носителей, находящихся на уровнях размерного квантования.

Переходя к обсуждению спектров PL, рассмотрим факторы, определяющие интенсивность и ширину линии излучения.

В самом общем случае интенсивность излучения I_r при уровне возбуждения $G = f(I_{ex})$ зависит от полного времени жизни неравновесных носителей (экситонов) τ . В свою очередь полное время жизни определяется временем излучательной τ_r и безызлучательной τ_{nr} гибели экситонов (носителей): $1/\tau = 1/\tau_r + 1/\tau_{nr}$. В результате выражение для интенсивности излучения принимает вид $I_r = G/(1 + \tau_r/\tau_{nr})$. Безызлучательное время гибели τ_{nr} определяется захватом (сечение захвата σ_i) экситонов в глубокие состояния (с концентрацией N_i), существование которых обусловлено наличием разнообразных

дефектов: $1/\tau_{nr} = \sum_i v \sigma_i N_i^{nr}$ (v — тепловая скорость, i — тип дефекта). Отсюда следует, что интенсивность PL (при $t_d = 0$) определяется не только концентрацией центров безызлучательной рекомбинации, но и способностью носителей перемещаться по кристаллу и в результате достичь центра безызлучательной рекомбинации.

Поскольку энергия фотовозбуждения $E_{ex} = 3.67$ eV $< E_g$ (E_g — ширина запрещенной зоны), носители рождаются свободными (подвижными). При этом время их релаксации до уровней энергии в яме, которые участвуют в излучении, во всяком случае не больше τ_r . В процессе релаксации подвижные носители захватываются на различные ловушки с характерным временем захвата τ_{trap} . Ловушки являются центрами как излучательной, так и безызлучательной рекомбинации, вследствие чего $\tau_{trap} \neq \tau_{nr}$. В этом случае интенсивность люминесценции будет зависеть от величины отношения времен τ_r/τ_{trap} . Для выяснения вклада свободных и локализованных состояний в формирование линии излучения исследовались спектры возбуждения PL (PLE) образцов различных типов. На рис. 2 представлены типичные спектры PLE, полученные для двух значений энергии в пределах контура линии излучения. Одно значение отвечает максимуму линии PL ($E_1 = 2.715$ eV), а второе — энергии ($E_2 = 2.565$ eV) на длинноволновом крыле линии PL. Как видно из рис. 2, спектры PLE для энергий E_1 и E_2 имеют одинаковый характер спада в сторону высоких энергий (интервал $a-b$ на рис. 2). Этот спад связан с

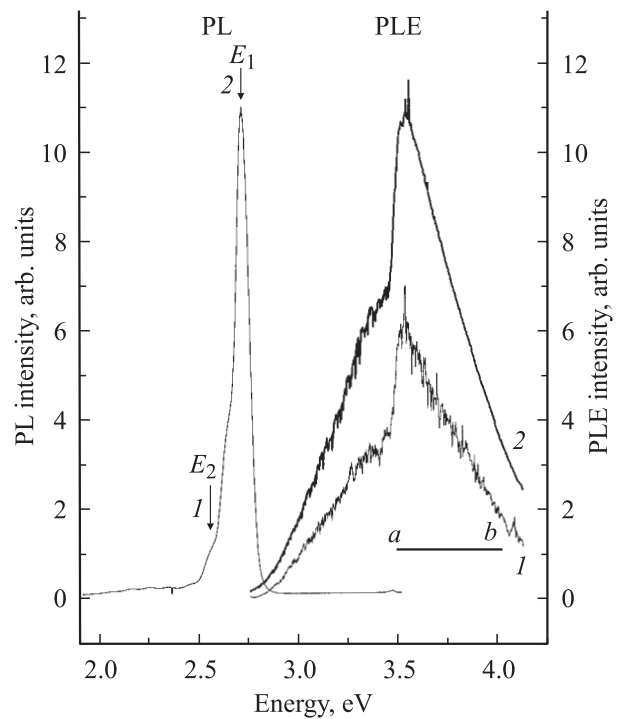


Рис. 2. Спектры возбуждения фотолюминесценции (PLE) гетероструктур InGaN/GaN, полученные для двух значений энергии в пределах контура линии излучения (PL). $E_1 = 2.715$ eV, $E_2 = 2.565$ eV. $T = 77$ K.

¹ FWHM — ширина линии на полувысоте.

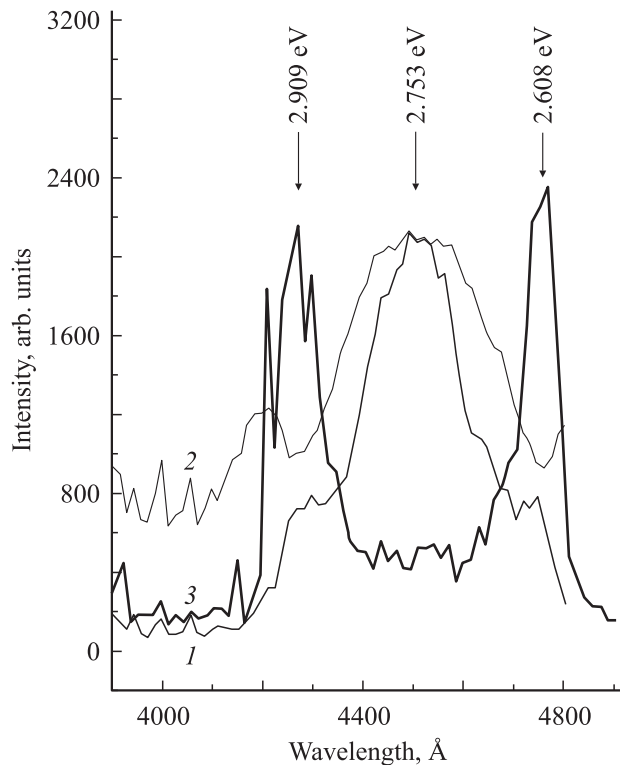


Рис. 3. Времяразрешенные спектры фотолуминесценции ($T = 4.2$ К) при различных значениях времени задержки t_d , μs : 1 — 0, 2 — 20, 3 — 40.

достижением пороговой энергии $h\omega = E_{\text{th}}$, при которой возникают подвижные носители, эффективно захватывающиеся на ловушки [4].

Из вида спектров PLE следует, что основной вклад в излучение вносят локализованные состояния. Поэтому можно ожидать, что форма спектров PL в различных образцах обусловлена особенностями заселения и высвобождения локализованных состояний в каждом конкретном образце. Для выяснения этих особенностей исследовались (как и в работе [5]) времяразрешенные спектры PL.

Оказалось, что вид спектров PL существенно изменяется при регистрации времяразрешенного излучения. На рис. 3 показаны времяразрешенные (при $t_d = 0, 20, 40 \mu\text{s}$) спектры PL при температуре 4.2 К. Существенными являются два обстоятельства: 1) при дальнейшем увеличении времени задержки (вплоть до $80 \mu\text{s}$) уменьшается интенсивность, а вид спектров практически не изменяется; 2) характерный вид спектров практически не меняется при изменении температуры. Следует заметить, что существование излучения на длительном временном интервале ($80 \mu\text{s}$) свидетельствует о наличии неравновесных носителей, захваченных в долгоживущие локализованные состояния. Можно предположить, что для материала n -типа с достаточно высокой концентрацией электронов ($n > 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) такими носителями являются дырки. Феноменологически механизм формирования такого длительного послесвечения линии ана-

логичен механизму, наблюдаемому в случае n -GaAs с метастабильными состояниями (N_{MS}) [6], в процессе которого часть фоторожденных носителей захватывается в метастабильные состояния и затем выбрасывается из этих состояний в валентную зону. В результате взаимодействия дырок, выброшенных в валентную зону, с электронами (свободными или связанными на мелких уровнях) и происходит формирование соответствующей линии излучения в задержанных спектрах, причем масштаб времени задержки t_d определяется временем высвобождения дырки τ_s .

Рассматривая вопрос о форме линии, отметим известную роль сложного пространственного рельефа потенциала U_{ph} , в котором находятся неравновесные носители, участвующие в формировании этого излучения. Этот случайный потенциал обусловлен как флуктуациями толщины квантовых ям и барьера, так и электрическим полем примесей в барьерах. Носители локализируются на флуктуациях потенциала, и разброс в энергии фотонов ΔE_{rad} , испускаемых при излучательной рекомбинации, ответствен за неоднородное уширение линии. Поскольку дублетная структура, состоящая из сравнительно узких линий, появляется в пределах неоднородно уширенной линии излучения (при $t_d = 0$) в результате задержки при $t_d \geq 20 \mu\text{s}$, можно утверждать, что локализованные состояния, ответственные за неоднородное уширение, являются метастабильными. Поэтому по мере опустошения (с характерным временем τ_s) этих локализованных состояний их вклад в ΔE_{rad} уменьшается. В результате в образцах наблюдается сужение линии PL квантовых ям при увеличении времени задержки t_d (при условии $t_d > \tau_s$). В некоторых случаях наблюдается появление в задержанных спектрах (при $t_d \geq 20 \mu\text{s}$) в пределах неоднородно уширенной линии излучения (при $t_d = 0$) дублетной структуры, состоящей из сравнительно узких линий (рис. 3), что также обусловлено существованием метастабильных локализованных состояний. При этом следует выяснить факторы, которые определяют столь различный вклад локализованных состояний в формирование линии излучения из квантовых ям.

Ключом к пониманию этой ситуации является известное свойство нитридов III группы — наличие спонтанных пьезоэлектрических полей [7]. Поэтому прежде чем переходить к анализу особенностей эволюции спектров в образцах с квантовыми ямами, обратимся к общей энергетической схеме квантовых ям при наличии поперечного электрического поля (перпендикулярного слоям) (рис. 4 [8]). На рис. 4 показан профиль квантовой ямы (z — направление роста структуры) для различных величин встроенного электрического поля: a — малая величина поля, b — большая величина поля. Этот рисунок качественно иллюстрирует ситуацию, возникающую в структуре при изменении электрического поля. Если величина напряженности поля F_{pz} достаточно велика, это приводит к центрированию волновых функций вблизи гетерограниц, что порождает изменение (увеличение) вероятности локализации носителей на случайном потенциале U_{ph} гетерограниц. В таком случае дублетная

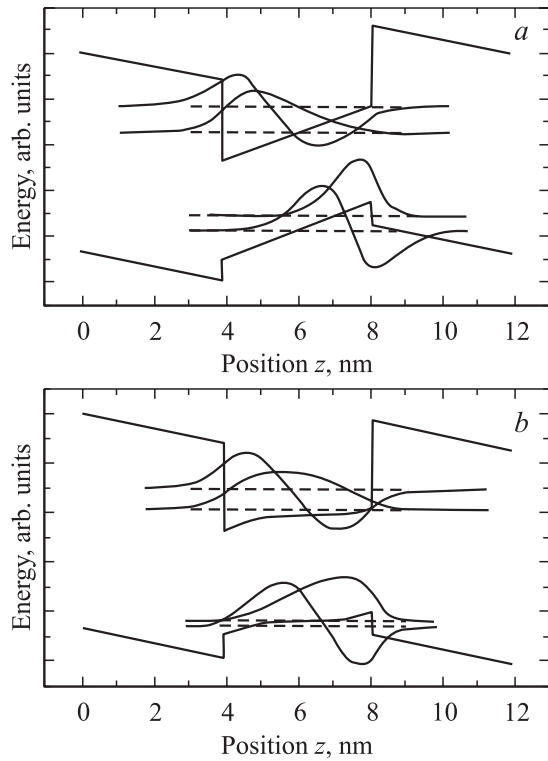


Рис. 4. Энергетическая схема структур с квантовыми ямами и огибающих волновых функций носителей в присутствии встроенных электрических полей различной величины (согласно [8]). *a* — малые значения поля, *b* — большие значения поля.

форма линии излучения в задержанных спектрах (рис. 3) свидетельствует о наличии встроенного электрического поля, а спектральный интервал между линиями дублета отражает эффективную величину этого поля. Величина пьезоэлектрического поля по определению зависит от механических напряжений, существующих в образце. В свою очередь величина механического напряжения (пьезоэлектрического поля) зависит от температуры образца. В этом случае следует ожидать, что изменение величины механического напряжения в зависимости от температуры может привести к изменению задержанных спектров PL. Действительно, в образцах наблюдается увеличение спектрального интервала между компонентами дублета при изменении температуры от 77 до 4.2 К, что свидетельствует об увеличении напряженности встроенного пьезоэлектрического поля $F(pz)$. Поэтому можно утверждать, что при температуре $T = 77$ К величина поля F_{pz} меньше, чем при $T = 4.2$ К (рис. 5).

В этом случае ($T = 77$ К) мы исследовали поведение времяразрешенных спектров в зависимости от интенсивности фотовозбуждения и величины внешнего электрического поля (величины обратного смещения V_b).

Известно, что величину поля в квантовой яме можно изменить, варьируя уровень возбуждения I_{ex} . Это обусловлено изменением величины экранирования поля, возникающим вследствие разной концентрации инжектированных носителей. На рис. 6 показана зависимость спектра PL при разных уровнях фотовозбуждения. Кроме того, исследовались задержанные спектры PL при

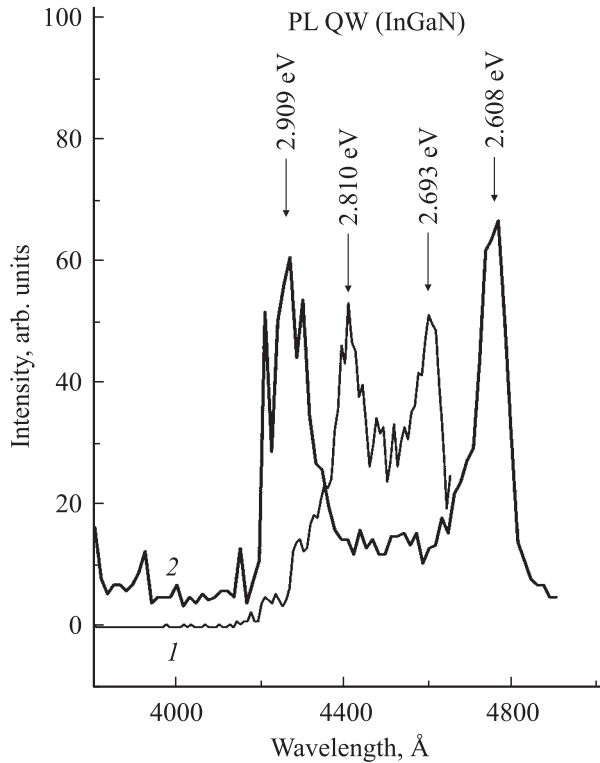


Рис. 5. Изменение величины спектрального интервала между компонентами дублета при варьировании температуры измерения. T , К: 1 — 77, 2 — 4.2. $t_d = 60 \mu s$.

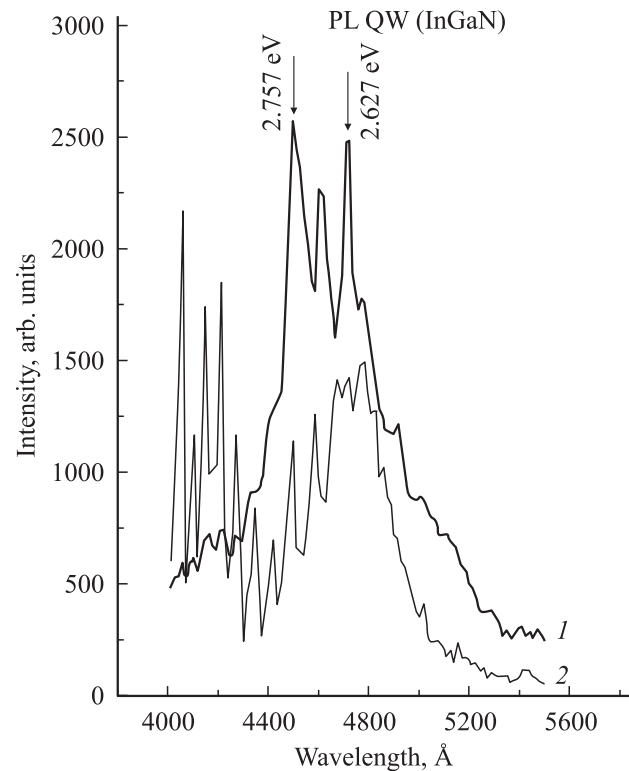


Рис. 6. Зависимость интенсивности компонент спектра фотолуминесценции при большом (1) и малом (2) уровнях возбуждения.

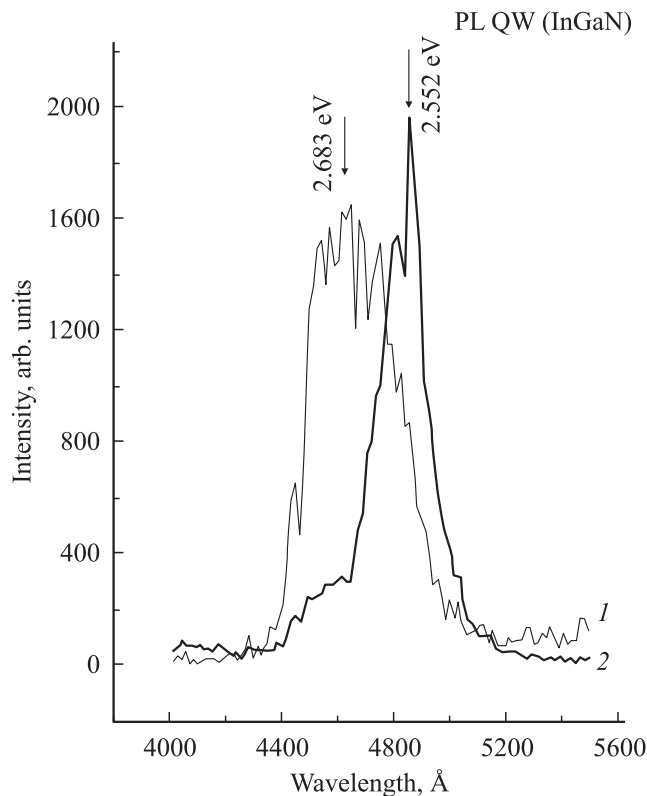


Рис. 7. Эволюция вида времяразрешенных спектров в случае отсутствия (1) и при приложении внешнего электрического поля $V_b = 20$ V (2). $T = 77$ K.

приложении к структуре с квантовыми ямами обратного электрического поля V_b . На рис. 7 представлены задержанные спектры (при $t_d = 20 \mu s$) одного из образцов в случае отсутствия внешнего поля и в поле $V_b = 20$ V. Из рис. 6 и 7 видно, что в обоих случаях изменение эффективного поля внутри структуры с квантовыми ямами приводит к гашению коротковолновой компоненты в задержанных спектрах люминесценции. При этом следует заметить, что такая эволюция формы спектра является функцией как величины приложенного внешнего поля (величина обратного смещения V_b), так и интенсивности фотовозбуждения. Поэтому при диагностике приборных структур с помощью времяразрешенных спектров PL необходимо корректно учитывать эти факторы.

Таким образом, наличие в задержанных спектрах узких долгоживущих компонент дублета и зависимость их от интенсивности возбуждения и величины обратного смещения V_b свидетельствуют об участии в формировании спектра излучения локализованных метастабильных состояний и встроенных электрических полей, т.е. наличие встроенных полей способствует локализации и делокализации носителей на флуктуациях границ, вызванных разными причинами (величинами напряжений встроенных полей, интенсивностью возбуждения, изменениями температуры).

Авторы благодарят А.В. Андрианова за помощь в проведении экспериментов.

Список литературы

- [1] А.В. Андрианов, В.Ю. Некрасов, Н.М. Шмидт, Е.Е. Заварин, А.С. Усиков, Н.Н. Зиновьев, М.Н. Ткачук. ФТП **36**, 6, 679 (2002).
- [2] X.A. Cao, S.F. Leboeuf, L.B. Rowland. Appl. Phys. Lett. **82**, 21, 3614 (2003).
- [3] F. Bernardini, V. Fiorentini. Phys. Rev. B **56**, 16, R10 024 (1997).
- [4] В.Ю. Давыдов, А.А. Клочихин. ФТП **38**, 8, 897 (2004).
- [5] В.В. Криволапчук, М.М. Мездрогина. ФТТ **46**, 12, 2129 (2004).
- [6] А.В. Акимов, А.А. Каплянский, В.В. Криволапчук, Е.С. Москаленко. Письма с ЖЭТФ **46**, 35 (1987).
- [7] Y. Nakamura, Y. Kawakami, S. Fujineta, Sh. Fujineta, S. Nakamura. Phys. Rev. B **55**, 4, R1938 (1997).
- [8] S. Kalliakos, P. Lefebvre, T. Taliercio. Phys. Rev. B **67**, 105 307 (2003).