

Фотолюминесценция GaN: зависимость от интенсивности возбуждения

© В.Н. Бессолов, В.В. Евстропов, М.Е. Компан, М.В. Меш

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

(Получена 4 декабря 2001 г. Принята к печати 9 апреля 2002 г.)

Исследована зависимость интенсивности краевой фотолюминесценции GaN (0001), выращенного методом газофазной гидридно-хлоридной эпитаксии (HVPE), от интенсивности возбуждения. Особенностью является сильная сверхлинейность при малых уровнях возбуждения, а именно сверхквадратичность. При больших уровнях возбуждения зависимость близка к линейной. Предложена модель, объясняющая обнаруженную сверхквадратичность и основанная на идентичности рекомбинационных процессов в приповерхностном слое объемного заряда при оптическом возбуждении и в слое объемного заряда барьера Шоттки или p - n -перехода при прохождении тока. Сверхквадратичная зависимость получена аналитически в предположении, что безызлучательный канал обусловлен многопрыжковым туннелированием вдоль дислокации, представляющей цепочку центров локализации носителей и пересекающей область объемного заряда. Наблюдалась степенная экспериментальная зависимость интенсивности люминесценции от интенсивности возбуждения. Оценен такой параметр дислокации, как расстояние между соседними центрами локализации (~ 4.1 нм), т. е. период потенциала вдоль дислокации.

1. Эпитаксиальные слои нитрида галлия играют все большую роль в создании приборов коротковолновой оптоэлектроники. Квантовый выход люминесценции эпитаксиальных слоев связан с качеством слоя, в том числе через соотношение интенсивностей излучательной и безызлучательной рекомбинации носителей заряда, однако механизмы безызлучательной рекомбинации в эпитаксиальных слоях GaN, выращенных разными методами (газофазной эпитаксии из металлорганических соединений — MOCVD, молекулярно-лучевой эпитаксии — MBE, газофазной гидридно-хлоридной эпитаксии — HVPE), до сих пор не ясны.

Одним из факторов, влияющих на качество эпитаксиальных слоев, является рассогласование параметров решетки эпитаксиального вюрцитного слоя GaN и подложки 6H-SiC ($\sim 4\%$), Al₂O₃ ($\sim 15\%$), Si ($\sim 22\%$). Это приводит к образованию высокой плотности дислокаций несоответствия в слоях GaN при гетероэпитаксии. Известно также, что плотность дислокаций несоответствия увеличивается с ростом рассогласования параметров решетки слоя и подложки и уменьшается с увеличением толщины эпитаксиального слоя. В частности, эпитаксия GaN на сапфировой подложке (Al₂O₃) методом HVPE позволяет получать слои толщиной более 100 мкм, в которых плотность дислокаций несоответствия на поверхности слоя на порядок меньше, чем на гетерогранице [1].

Отметим, что обычно при изучении люминесценции основное внимание уделяется спектральным характеристикам рекомбинационного излучения. Однако в случаях, когда полосы в спектрах широки и бесструктурны, изучение формы полос малоинформативно. Цель данной работы — исследовать безызлучательный канал рекомбинации по характеру зависимости интенсивности люминесценции от интенсивности возбуждающего излучения.

2. Для исследований были выбраны образцы с относительно интенсивной люминесценцией. Это позволило исследовать люкс-ваттные характеристики в диапазоне интенсивностей люминесценции до трех десятичных порядков. Исследованные слои GaN были выращены методом HVPE. Слой GaN на сапфировой подложке имел толщину более 100 мкм и концентрацию электронов $n_n = 5 \cdot 10^{18}$ см⁻³; слой GaN на подложке 6H-SiC был толщиной 3 мкм и имел концентрацию электронов $n_n = 5 \cdot 10^{17}$ см⁻³.

Фотолюминесценция возбуждалась импульсным азотным лазером (длина волны излучения $\lambda = 337$ нм, длительность импульса 6 нс). Возбуждение и регистрация люминесцентного излучения осуществлялись со стороны свободной поверхности слоев. Измерения проводились при комнатной температуре. Предметом интереса была зависимость интенсивности фотолюминесценции (Φ) от интенсивности фотовозбуждения (I).

Измерение зависимостей $\Phi(I)$ в нашем случае представляло определенную методическую трудность, поскольку для наносекундных импульсов ультрафиолетового диапазона отсутствуют стандартные фотоприемники с достаточной линейностью в широком диапазоне интенсивностей. В работе применялся такой методический прием, как одновременная регистрация полосы люминесценции и линии возбуждения в одном масштабе. Для этого на вход монохроматора направлялась часть возбуждающего излучения и его интенсивность предварительно ослаблялась регулируемым ослабителем на эту длину волны до нужной величины. Семейство спектров люминесценции регистрировалось при изменении интенсивности возбуждения (в диапазоне 0.01–7 Вт/см²) известными нейтральными фильтрами и сетками. В результате соотношение интенсивностей возбуждающего и люминесцентного излучения каждый раз регистрировались одним приемником при одних

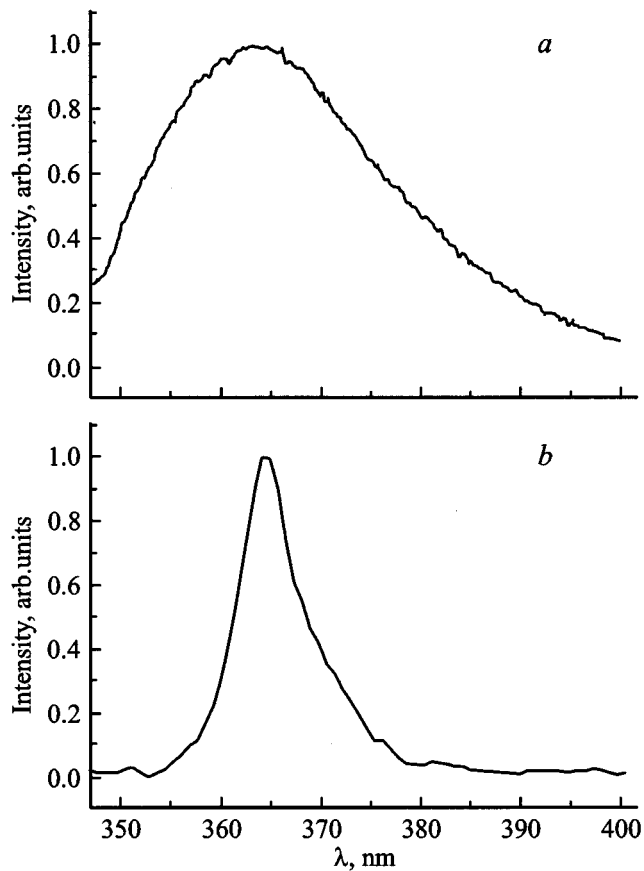


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции слоев GaN, выращенных на подложках из сапфира (а) и карбида кремния (b).

и тех же условиях. При таком методическом приеме минимизировалось возможное влияние нелинейности приемника на получаемые данные.

3. На исследованных образцах наблюдались обычные для нитрида галлия спектры люминесценции. Энергия фотонов, соответствующая максимуму спектра фотолюминесценции, для обоих слоев GaN была $h\nu = 3.397$ эВ. Ширина спектра на полувысоте (FWHM) для слоя GaN/сапфир заметно больше, чем для слоя GaN/SiC (рис. 1), что, по-видимому, вызвано наличием не только межзонной, но и донорно-акцепторной рекомбинации и согласуется с более высоким уровнем легирования слоя GaN на сапфире.

Для обоих слоев зависимость интенсивностей люминесценции от интенсивности возбуждающего излучения сверхлинейна при малых уровнях возбуждения и может быть описана степенной зависимостью $\Phi \propto I^n$, где $n \approx 3.3$. При больших уровнях возбуждения эта зависимость близка к линейной: $n = 1.0$ для слоев на SiC и $n = 0.9$ для слоев на сапфире. В этом случае небольшая сублинейность характеристики $\Phi(I)$ для слоя GaN на сапфире, по-видимому, обусловлена вкладом донорно-акцепторной рекомбинации. Связь между интенсивностями Φ и I может быть аппроксимирована

единой простой формулой, учитывающей наличие двух участков (рис. 2),

$$I = k_1 \Phi^{m_1} + k_2 \Phi^{m_2}, \quad (1)$$

где параметры аппроксимации для слоя GaN на сапфире — $m_1 = 1.1$, $m_2 = 0.3$, $k_1 = 0.4$, $k_2 = 1.3$, а для слоя GaN на SiC — $m_1 = 1.0$, $m_2 = 0.3$, $k_1 = 0.4$, $k_2 = 6.6$. Видно, что верхние участки практически не различаются (m_1 и k_1 почти одинаковы для обоих образцов). Различие зависимостей для двух образцов проявляется только на нижнем сверхлинейном участке в величине коэффициента k_2 . Переход от сверхлинейного участка к практически линейному для слоев на сапфировой подложке происходит при меньшем уровне возбуждения, чем для слоев GaN на SiC (рис. 2).

4. Сверхлинейные зависимости интенсивности люминесценции от интенсивности возбуждения для слоев нитрида галлия наблюдались и ранее. Так, например, катодолуминесцентные исследования GaN толщиной 2 мкм, выращенного методом MOCVD на сапфировой подложке, показали, что интенсивность краевой люминесценции возрастает с уровнем возбуждения по степенному закону $\Phi \propto I^n$ с показателем степени $n = 2$ [2]. Нам неизвестны случаи наблюдения зависимости с показателем степени $n > 2$.

При обсуждении результатов работы будем использовать аналогию между люминесценцией при оптической накачке в приповерхностной области объемного заряда и люминесценцией при токовой накачке в области объемного заряда p - n -перехода. Приведем необходимые для этого данные. При энергии фотонов возбуждающего света ($h\nu = 3.68$ эВ) глубина поглощения света в GaN составляет 0.1 мкм. Ширина области объемного заряда W в нашем случае не менее 0.05 мкм, а диффузионная длина неосновных носителей заряда ~ 0.5 мкм [3].

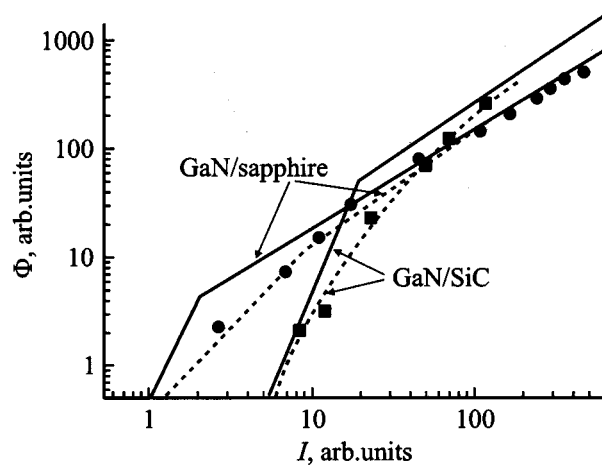


Рис. 2. Экспериментальные зависимости интенсивности люминесценции от интенсивности возбуждения для слоев GaN на сапфире и GaN на SiC (точки). Штриховые линии — аппроксимация по формуле (1), сплошные линии — асимптоты аппроксимирующих кривых.

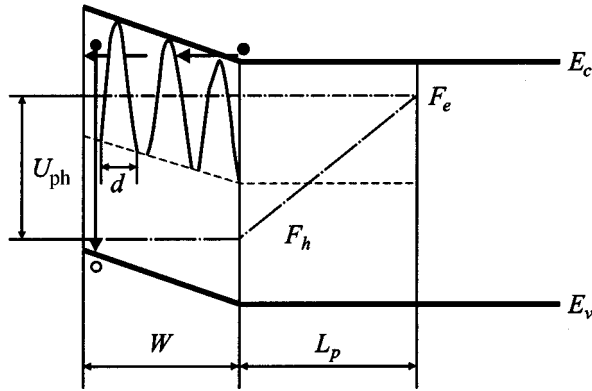


Рис. 3. Энергетическая диаграмма приповерхностного участка *n*-полупроводника при поглощении возбуждающего света внутри фоточувствительной области ($W + L$). Горизонтальные стрелки показывают изоэнергетические туннельные прыжки электрона, вертикальная — рекомбинацию электрона и дырки.

Таким образом, глубина поглощения света оказывается меньше, чем ширина области собирания носителей заряда (фоточувствительной области) $W + L_p$, где L_p — диффузионная длина дырок.

Возбуждающее излучение уменьшает существующий в темноте приповерхностный изгиб зон и создает фотонапряжение U_{ph} , равное разности квазиуровней Ферми для электронов (F_e) и дырок (F_h) (рис. 3). Так как свет целиком поглощается внутри фоточувствительной области $W + L_p$, то энергетическая диаграмма приповерхностной области оказывается точно такой же, как у барьера Шоттки при прямом смещении. Рекомбинационные процессы в приповерхностной области объемного заряда, возникающие при оптической накачке, — такие же, как в области объемного заряда барьера Шоттки и p - n -перехода при прямом смещении. Природа рекомбинационных потоков во всех этих случаях полностью одинакова, и поэтому для получения аналитической зависимости $\Phi(I)$ будем интенсивность оптической накачки I считать аналогом токовой накачки, т. е. аналогом прямого тока J p - n -перехода. В рассматриваемом случае эквивалентный прямой ток J состоит из двух компонент — термоинжекционной и туннельной:

$$J = J_{01} \exp(eU_{ph}/kT) + J_{02} \exp(eU_{ph}/\varepsilon), \quad (2)$$

где $\varepsilon > 2kT$ — характеристическая энергия туннельной компоненты. В свою очередь межзонная люминесценция определяется термоинжекционным процессом и поэтому ее интенсивность Φ выражается термоинжекционной зависимостью от фотонапряжения U_{ph} :

$$\Phi = \Phi_0 \exp(eU_{ph}/kT). \quad (3)$$

Исключая U_{ph} из (2), с помощью (3) получим связь между интенсивностью люминесценции Φ и прямым током J :

$$J = p_1 \Phi + p_2 \Phi^{kT/\varepsilon}, \quad (4)$$

где $p_A = J_{01}/\Phi_0$, $p_2 = J_{02}/\Phi_0^{kT/\varepsilon}$.

Выведенная зависимость (4) дает искомую характеристику $\Phi(I)$, так как прямой ток J эквивалентен интенсивности оптического возбуждения I . Максимальной плотности мощности оптической накачки $I = 7 \text{ Вт/см}^2$ соответствует плотность токовой накачки $J = eI/h\nu \approx 2 \text{ А/см}^2$. Зависимость (4) соответствует экспериментальным характеристикам $\Phi(I)$ (1) как для GaN на сапфире, так и для GaN на SiC, если не учитывать вклад донорно-акцепторной рекомбинации, который приводит к небольшой сублинейности на верхнем участке и расширению спектра фотолюминесценции.

Рассмотрим подробно нижние участки характеристик $\Phi(I)$. Из сравнения (1) и (4) следует, что $kT/\varepsilon = m_2 = 0.3$. Видно, что $\varepsilon = nkT$, где $n = 1/m_2 = 3.3$, т. е. $n > 2$, что свидетельствует в пользу туннельного механизма рекомбинации. Величина $\varepsilon = 82.5 \text{ мэВ}$ одинакова для обоих слоев, что предполагает один и тот же механизм туннелирования.

Согласно хорошо известной модели туннелирования сквозь область объемного заряда [4], ε зависит от W и, следовательно, от концентрации n_n ($\varepsilon \propto 1/W \propto \sqrt{n_n}$). По модели многопрыжкового туннелирования вдоль дислокаций, в которой дислокация смоделирована цепочкой потенциальных ям, разделенных параболическими барьерами, [5] величина ε определяется только типом дислокации, пересекающей область объемного заряда и не зависит от концентрации n_n . Следовательно, одинаковость величины ε для обоих слоев, отличающихся по концентрации n_n , согласуется с моделью туннелирования вдоль дислокации.

Обсудим этот случай — а именно одинаковую величину ε и различие коэффициентов k_2 . Модель предполагает серию изоэнергетических туннельных прыжков электрона с последующей рекомбинацией (рис. 3). Ток по дислокационной линии задается частотой последнего туннельного прыжка, так как для него барьер наиболее высокий и, следовательно, прозрачность барьера наименьшая. Плотность тока пропорциональна плотности дислокаций. Согласно модели [5], величина ε в формуле (2) и, следовательно, в (4) связана с параметром r , характеризующим тип дислокации:

$$\varepsilon = \frac{\hbar}{\pi} \sqrt{\frac{r}{m^*}}, \quad (5)$$

где r — кривизна параболического барьера на вершине, m^* — эффективная масса туннелирующего носителя (для электрона $m^* = 0.2m_0$ [6]). Отсюда можно определить ширину этого барьера d при его высоте, равной половине ширины запрещенной зоны:

$$d = (E_g/r)^{1/2}, \quad (6)$$

где E_g — ширина запрещенной зоны, $E_g = 3.39 \text{ эВ}$ [7]. Значение $\varepsilon = 82.5 \text{ мэВ}$ дает $r = 0.03 \text{ Дж/м}^2 = 0.2 \text{ эВ/нм}^2$ и ширину $d = 4.1 \text{ нм}$. Одинаковые значения ε в обоих типах слоев свидетельствуют об одинаковом типе дислокаций, пересекающих область объемного заряда и обуславливающих туннельный механизм рекомбинации.

Согласно этой модели, для туннельной компоненты тока предэкспоненциальный множитель J_{02} пропорционален плотности дислокаций ρ , пересекающих область объемного заряда, $J_{02} \propto \rho$. Таким образом, из (1) и (4) видно, что $k_2 \propto p_2 \propto \rho$, что позволяет сравнить плотность дислокаций у поверхности слоев. Сравнивая параметры k_2 в выражении (1), описывающем экспериментальные характеристики, получаем, что в нашем случае плотность дислокаций на поверхности слоя GaN/сапфир меньше (в 5 раз), чем плотность дислокаций в слое GaN/SiC. Это, по-видимому, обусловлено большей толщиной слоя GaN на сапфировой подложке, поскольку известно [8], что плотность дислокаций несоответствия на гетерогранице GaN/сапфир больше, чем на гетерогранице GaN/6H-SiC. Такое объяснение согласуется, например, с известным фактом [9], что от толщины эпитаксиального слоя GaN может зависеть спектральное положение полосы краевой фотолюминесценции.

5. Таким образом, в работе обнаружено, что слои нитрида галлия, выращенные на разных подложках (сапфир и SiC) и имеющие различную толщину, имеют схожие функциональные зависимости $\Phi(I)$. При малых интенсивностях возбуждения эта зависимость сверхквадратичная (показатель степени больше 2), а при более высоких — практически линейная. Предложена модель многоэтапной безызлучательной рекомбинации носителей по механизму многопрыжкового туннелирования вдоль дислокации, объясняющая эту зависимость. Модель позволяет сравнивать плотность дислокаций в разных слоях и определять такой параметр дислокаций, как период потенциала вдоль дислокации.

Авторы признательны Ю.В. Жилияеву и В.А. Дмитриеву за предоставление эпитаксиальных слоев нитрида галлия для проведения исследований. Один из авторов (В.Н.Бессолов) считает приятным долгом поблагодарить программу Министерства промышленности и науки Российской Федерации, госконтракт 40.012.1.1.1153 за финансовую поддержку работы.

Список литературы

- [1] E.A. Stach, M. Kelsh, E.C. Nelson, W.S. Wong, T. Sands, N.W. Cheung. *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 1819 (2000).
- [2] S.O. Kucheyev, M. Toth, M.R. Phillips, J.S. Williams, C. Jagadish. *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 2154 (2001).
- [3] Z.Z. Bandic, P.M. Bridger, E.C. Piquette, T.C. McGill. *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 3276 (1998).
- [4] Б.Л. Шарма, Р.К. Пурохит. *Полупроводниковые гетеропереходы* (М., Сов. радио, 1979).
- [5] В.В. Евстропов, М. Джумаева, Ю.В. Жилияев, Н. Назаров, А.А. Ситникова, Л.М. Федоров. *ФТП*, **34**, 1357 (2000).
- [6] A.S. Barker, M. Pegems. *Phys. Rev. B*, **7**, 743 (1973).
- [7] М.Е. Левинштейн, С.Л. Румынцев, М.С. Шур. *Properties of advanced semiconductor materials* (N.Y., John Wiley & Sons Inc., 2001).

- [8] S. Koynov, M. Torf, S. Fisher, B.K. Meyer, P. Radojkovic, E. Hartmann, Z. Liliental-Weber. *J. Appl. Phys.*, **82**, 1890 (1997).
- [9] P.W. Yu, C.S. Park, S.T. Kim. *J. Appl. Phys.*, **89**, 1692 (2001).

Редактор Л.В. Шаронова

GaN photoluminescence: dependence of the intensity on excitation

V.N. Bessolov, V.V. Evstropov, V.E. Kompan, M.V. Meshloffe
Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences
194021 St. Petersburg, Russia

Abstract A new feature has been observed in the dependence on excitation (I) of the edge photoluminescence intensity (Φ) of GaN (0001) grown by HVPE. At low excitation levels the dependence is markedly superlinear, namely, quadratic, approaching a linear one at high excitation levels. A model explaining the observed superquadratic dependence is proposed. According to the model the absorption of the excitation light takes place in the accumulation region of the minority charge carriers. On this supposition, a well-known approach to describing a faster than the quadratic increase with forward current of the luminescence intensity in a p - n -junction can be used. The $\Phi(I)$ dependence is derived analytically under an assumption that the radiationless recombination channel is provided by a multiple-hopping tunneling along a dislocation traversing the space charge region, the dislocation being represented by a chain of localized centers. The observed dependence of the luminescence on excitation intensity is a power function with an exponent of $n \sim 3.3$, a value corresponding to a spacing between neighboring localized centers in the dislocation (or the period of potential along the dislocation), and estimated as ~ 4.1 nm.