

Размерный эффект двухфотонного поглощения рекомбинационного излучения в варизонных твердых растворах $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$

© В.Ф. Коваленко[¶], С.В. Шутов

Институт физики полупроводников Национальной академии наук Украины (Херсонский отдел),
73008 Херсон, Украина

(Получена 25 марта 2002 г. Принята к печати 29 марта 2002 г.)

Изучено влияние размерного эффекта фотолюминесценции на двухфотонное поглощение при переизлучении в нелегированных варизонных твердых растворах $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. Показано, что эффективность двухфотонного поглощения возрастает с увеличением протяженности возбуждаемой области кристалла. Определены условия, влияющие на соотношение вклада частотной и поляризационной составляющих вероятности двухфотонного поглощения в его спектральную зависимость.

1. Введение

Известно [1–3], что процесс переизлучения электро- фотолюминесценции (ФЛ) в варизонных полупроводниках приводит к возрастанию внешнего квантового выхода излучения с увеличением протяженности возбуждаемой области (размерный эффект люминесценции). В работе [4] нами показано, что существенный вклад в переизлучение ФЛ при высоких уровнях возбуждения в таких полупроводниках вносит двухфотонное поглощение.

В настоящей работе изучено влияние размерного эффекта ФЛ на двухфотонное поглощение при переизлучении в варизонных твердых растворах $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$.

2. Методика эксперимента

Исследовались нелегированные (с концентрацией электронов $n \leq 1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$) эпитаксиальные слои (ЭС) твердых растворов $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, выращенные из ограниченного объема раствора–расплава на подложках GaAs. Содержание алюминия уменьшалось от $x \approx 0.36$ на гетерогранице до $x = 0$ на поверхности слоев. Изменение состава по толщине было практически линейным на участке от границы подложка–слой до толщины $\sim 0.7d_0$ (d_0 — общая толщина ЭС). Значения градиента ширины запрещенной зоны ∇E_g слоев на этом участке составляли $350 < \nabla E_g < 400$ эВ/см, величина ∇E_g постепенно уменьшалась к узкозонной поверхности слоя.

Выбранные значения ∇E_g обеспечивали, во-первых, дрейфовый механизм переноса неравновесных носителей заряда (ННЗ) во встроенном квазиэлектрическом поле $F = e^{-1}\nabla E_g$ (e — заряд электрона), во-вторых, равенство протяженности возбуждаемой области кристалла толщине участка, заключенного между тыльной узкозонной и освещаемой широкозонной поверхностями d' , так как значения эффективной длины смещения ННЗ l_+ , определяемые по наклону низкоэнергетического спада спектра излучения [5] ($l_+ \approx 9–12$ мкм), при данных величинах ∇E_g были сравнимы с d' , что способствовало

переносу значительной доли ННЗ к тыльной узкозонной поверхности без их рекомбинации в объеме кристалла.

Изучение влияния размерного эффекта ФЛ на двухфотонное поглощение проводили при изменении протяженности возбуждаемой области кристалла со стороны как широкозонной, так и тыльной, узкозонной, поверхности. Для этого каждая эпитаксиальная структура раскалывалась на две части, удалялся приповерхностный узкозонный участок ЭС толщиной $(0.2–0.3)d_0$ на одной из частей, а затем из обеих частей структуры изготавливали „обратные“ наклонные шлифы [6] для возбуждения ФЛ со стороны широкозонной области слоев. Различные значения протяженности возбуждаемой области d' обеспечивались сканированием световым зондом широкозонной поверхности „обратного“ наклонного шлифа структуры.

ФЛ при 300°C возбуждалась световым зондом диаметром ~ 30 мкм — излучением аргонового лазера (длины волн $\lambda_{\text{exc}} = 0.488–0.514$ мкм). Интенсивность возбуждения J изменялась в пределах $1 \cdot 10^{21} < J < 5 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. Спектры ФЛ регистрировались с помощью спектрометра СДЛ-1, фотоэлектронного умножителя ФЭУ-62 по стандартной методике.

3. Экспериментальные результаты

Спектры ФЛ исследованных твердых растворов содержали полосу краевого излучения, обусловленную межзонными переходами. На рис. 1 и 2 приведены спектры ФЛ $I(h\nu)$ одного и того же слоя без удаления узкозонной области (далее по тексту — с полной толщиной) и с удаленной узкозонной областью при различных значениях d' и $J = \text{const}$. Видно, что ширина полосы определяется протяженностью возбуждаемой области d' : с увеличением d' коротковолновое плечо полосы смещалось в высокоэнергетическую область спектра.

Форма полосы излучения ЭС с полной толщиной была аналогичной наблюдаемой в [4]. Спектр ФЛ слоев с удаленным узкозонным участком имел тонкую структуру — на фоне сплошного спектра наблюдались пички различной интенсивности I , количество которых возрастало по мере увеличения d' . Характер тонкой структуры спектра

[¶] E-mail: mickle@semicond.kiev.ua

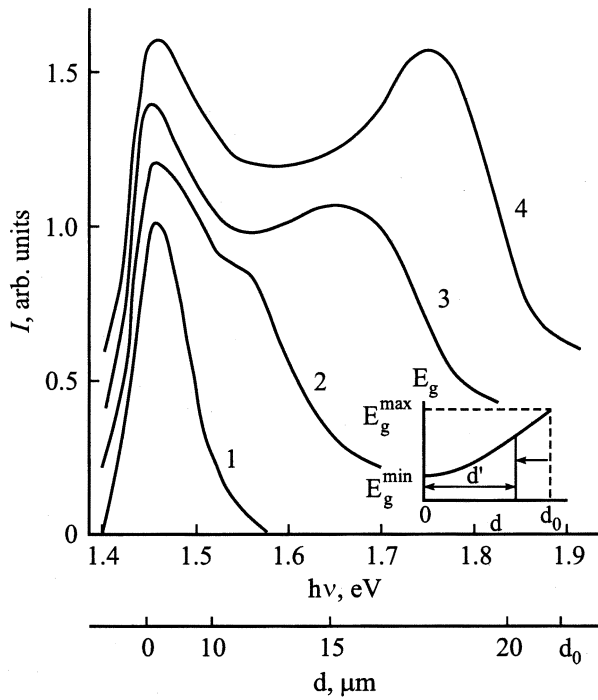


Рис. 1. Форма спектров ФЛ слоя с полной толщиной ($\nabla E_g = 380$ эВ/см) при различных значениях протяженности возбуждаемой области d' , мкм: 1 — 8, 2 — 11, 3 — 15, 4 — 19. Уровень возбуждения $J = 1.6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. Спектры нормированы на 1 и смещены по вертикальной оси произвольным образом. На вставке — изменение ширины запрещенной зоны по толщине слоя от минимального E_g^{min} до максимального E_g^{max} значения, показана возбуждаемая область. Стрелкой показано направление возбуждения.

существенно зависел от уровня возбуждения (рис. 3). При низких значениях J тонкая структура практически отсутствовала. При средних возбуждениях она проявлялась наиболее существенно, а дальнейшее увеличение J приводило к сглаживанию тонкой структуры — уменьшались количество и интенсивность пиков. Спектры слоев с удаленной узкозонной областью отличались также более существенным сдвигом коротковолнового максимума в низкоэнергетическую область спектра с ростом уровня возбуждения (рис. 3). Интегральная интенсивность ФЛ I_Σ возрастала с увеличением d' , за исключением переходной области толщиной ~ 4 мкм у границы раздела слой-подложка, где происходило ее уменьшение по мере приближения к подложке. Удаление узкозонной области ЭС приводило к уменьшению I_Σ , но не изменяло характера зависимости $I_\Sigma(d')$ (рис. 4). С увеличением J интегральная интенсивность ФЛ возрастала по степенному закону:

$$I_\Sigma = C J^{m_\Sigma}, \quad (1)$$

где C — коэффициент пропорциональности [4]. Показатель степени m_Σ зависел от протяженности возбуждаемой области d' аналогично зависимости $I_\Sigma(d')$ —

возрастал с увеличением d' и уменьшался в области гетерограницы. Удаление узкозонной области ЭС приводило к уменьшению m_Σ , но не изменяло характера зависимости $m_\Sigma(d')$ (рис. 4). Из рис. 4 видно, что в слоях с полной толщиной зависимость (1) из сверхлинейной ($m_\Sigma > 1$) при наименьших значениях d' переходит в сверхквадратичную ($m_\Sigma > 2$) с ростом d' , в то же время для слоев с удаленной узкозонной областью эта зависимость сверхквадратична во всем интервале изменения d' .

Спектральная интенсивность ФЛ I_λ также возрастала с увеличением уровня возбуждения:

$$I_\lambda = C_1 J^{m_\lambda}. \quad (2)$$

Степень сверхквадратичности интенсивности I_λ , характеризуемая параметром m_λ зависимости (2), была переменной для различных длин волн одного и того же спектра излучения. Удаление узкозонной области и изменение d' оказывало влияние на характер зависимости $m_\lambda(h\nu)$ (рис. 5). В спектре ФЛ слоев с полной толщиной степень сверхквадратичности I_λ в области

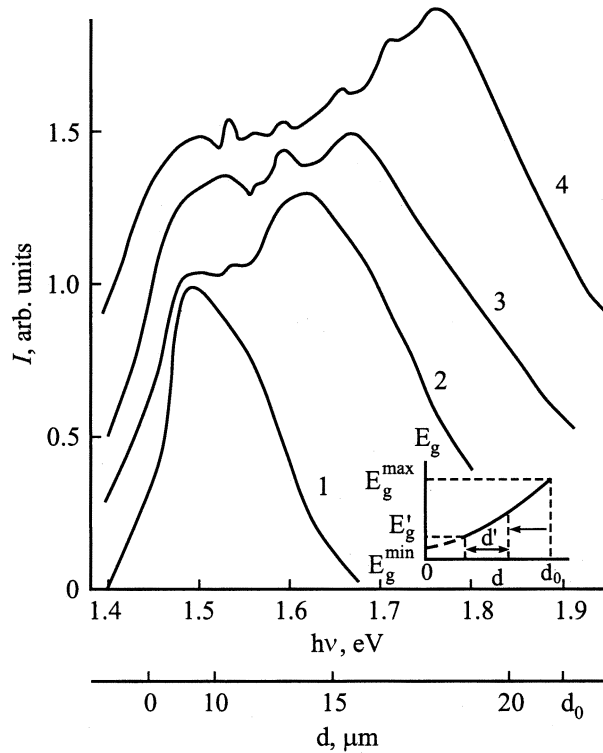


Рис. 2. Форма спектра ФЛ слоя с удаленной узкозонной областью толщиной ~ 10 мкм ($\nabla E_g = 380$ эВ/см) при различных значениях протяженности возбуждаемой области d' , мкм: 1 — 5, 2 — 8, 3 — 10, 4 — 12. Уровень возбуждения $J = 1.6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. Спектры нормированы на 1 и смещены по вертикальной оси произвольным образом. На вставке — изменение ширины запрещенной зоны по толщине слоя от минимального E_g^{min} до максимального E_g^{max} значения, показана возбуждаемая область. Штриховая линия — участок кривой $E_g(d)$, соответствующий удаленной узкозонной области. Стрелкой показано направление возбуждения.

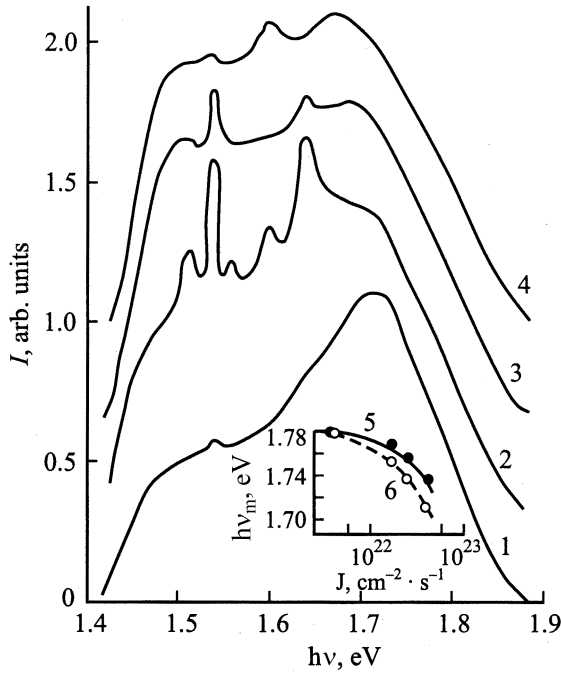


Рис. 3. Зависимость формы спектра ФЛ слоя с удаленной узкозонной областью от уровня возбуждения J , $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$: 1 — $1 \cdot 10^{21}$, 2 — $1.6 \cdot 10^{22}$, 3 — $2.2 \cdot 10^{22}$, 4 — $3.6 \cdot 10^{22}$. На вставке — зависимости положения коротковолнового максимума спектра ФЛ $h\nu_m$ от уровня возбуждения одного и того же слоя с полной толщиной (5) и с удаленной узкозонной областью (6).

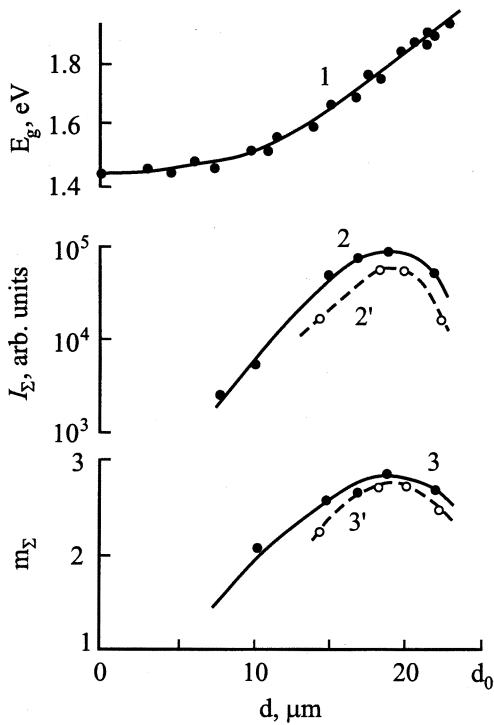


Рис. 4. Изменение ширины запрещенной зоны E_g (1), интегральной интенсивности ФЛ I_Σ (2, 2') и параметра m_Σ (3, 3') по толщине одного из слоев с полной толщиной (2, 3) и с удаленной узкозонной областью (2', 3').

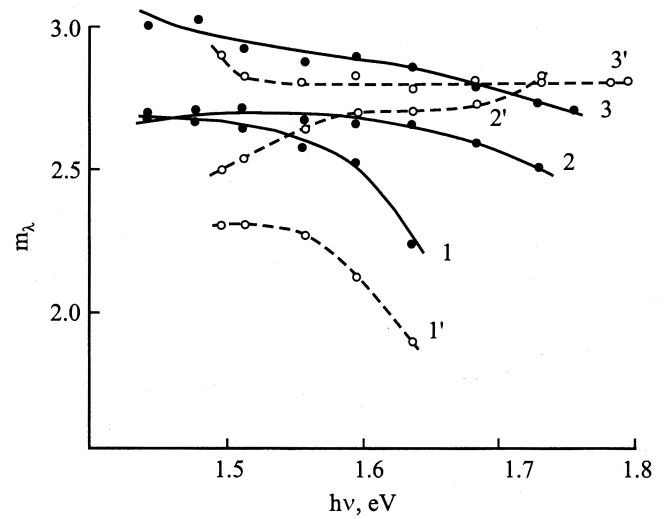


Рис. 5. Спектральные зависимости параметра m_λ при различных значениях протяженности возбуждаемой области в спектрах одного и того же слоя с полной толщиной (1–3) и с удаленной узкозонной областью (1'–3'). d' , мкм: 1 — 11, 2 — 15, 3 — 19, 1' — 8, 2' — 10, 3' — 12.

коротковолнового максимума была минимальной и возрастала с увеличением длины волны излучения. В слоях с удаленной узкозонной областью аналогичная зависимость $m_\lambda(h\nu)$ имела место при малых значениях d' , а с увеличением d' характер зависимости $m_\lambda(h\nu)$ изменялся на противоположный — показатель степени m_λ имел максимум в коротковолновой области и уменьшался с ростом длины волны излучения. При наибольших значениях d' величина m_λ практически не зависела от энергии излучаемых квантов.

4. Обсуждение результатов

Увеличение интегральной интенсивности ФЛ I_λ с ростом d' (размерный эффект ФЛ) связано с переизлучением, особенностями вывода излучения и уменьшением безызлучательных рекомбинационных потерь на тыльной узкозонной поверхности варизонного полупроводника [1–3].

Сверхквадратичная зависимость $I_\Sigma(J)$ свидетельствует о вкладе в измеряемую интенсивность излучения, возникающего в результате рекомбинации ННЗ, генерируемых при двухфотонном поглощении ФЛ в объеме кристалла в процессе многократного переизлучения [4]. Повышение вклада двухфотонного поглощения (увеличение параметра m_λ) с ростом d' обусловлено следующими факторами. С увеличением протяженности возбуждаемой области d' возрастает количество последовательных циклов переизлучения, обеспечивающих достижение ННЗ тыльной узкозонной поверхности, что приводит к уменьшению на ней безызлучательных рекомбинационных потерь [3]. Последнее обстоятельство

повышает внутренний квантовый выход излучения η_{in} в результате насыщения каналов объемной безызлучательной рекомбинации. Это подтверждается возрастанием эффективной длины смещения ННЗ с увеличением J , аналогично наблюдаемому в [4], и сдвигом коротковолнового максимума спектра ФЛ в длинноволновую область, обусловленным координатной зависимостью вероятности рекомбинации ННЗ [7]. Увеличение числа циклов переизлучения и η_{in} приводит к росту плотности фотонов в объеме кристалла и, следовательно, вероятности двухфотонного поглощения ФЛ.

Меньшие значения I_{Σ} и m_{Σ} в слоях с удаленной узкозонной областью обусловлены меньшим внутренним квантовым выходом ФЛ. Вследствие меньшей величины d' в этих слоях тыльной поверхности достигает бо́льшая, чем в ЭС с полной толщиной, часть дрейфующих в поле F ННЗ, что приводит к более высоким безызлучательным потерям. Уменьшение I_{Σ} и m_{Σ} с ростом d' вблизи гетерограницы связано со снижением η_{in} , обусловленным более высокой концентрацией дефектов в этой области [8].

Различный характер зависимостей $m_{\lambda}(hv)$ в спектрах слоев с полной толщиной и удаленной узкозонной областью свидетельствует об особенностях процесса двухфотонного поглощения, обусловленных геометрическим фактором. В ЭС с полной толщиной двухфотонное поглощение возрастает по мере удаления от освещаемой широкозонной поверхности, и оно наиболее существенно в узкозонной области — за счет преобладания частотной зависимости коэффициента двухфотонного поглощения, описываемого выражением [9]

$$K_2(hv) = A\rho [h(\nu_1 + \nu_2) - E_g]^{1/2}, \quad (3)$$

где A — коэффициент, зависящий от ориентации векторов поляризации обоих фотонов, $h\nu_1$ и $h\nu_2$; ρ — плотность потока первичной ФЛ.

В слоях с удаленной узкозонной областью двухфотонное поглощение максимально в широкозонном участке и убывает по мере удаления от освещаемой широкозонной поверхности. Причина такого различия, по нашему мнению, в том, что процесс поглощения фотонов, генерируемых в интервале энергий $E'_g < hv \leq E_g^{\max}$ (E'_g, E_g^{\max} — ширина запрещенной зоны на тыльной поверхности ЭС с удаленной узкозонной областью и широкозонной освещаемой поверхности слоя соответственно), при их переизлучении происходит одинаково как в слое с полной толщиной, так и в слое с удаленной узкозонной областью: механизм поглощения фотонов, распространяющихся в участки кристалла с $E_g < hv$ в направлении дрейфа ННЗ, — однофотонный. Фотоны, распространяющиеся в направлении E_g^{\max} под углами, бо́льшими угла полного внутреннего отражения α_0 , отражаются от широкозонной поверхности обратно в кристалл. После этого может происходить процесс их двухфотонного поглощения в участках слоя с $E_g > hv$ и однофотонного в участках с $E_g < hv$, аналогично

поглощению фотонов, изначально распространявшимся в направлении дрейфа ННЗ. Таким образом, отражение этих фотонов от широкозонной поверхности является однократным, а процесс переизлучения — однопроходным.

Различия в поглощении ФЛ в слоях с полной толщиной и с удаленной узкозонной областью проявляются для фотонов с $h\nu \approx E'_g$. В первом случае поглощение фотонов происходит аналогично рассмотренному выше механизму. В слоях с удаленной узкозонной областью такие фотоны, не попавшие в створ угла α_0 , отражаются как от широкозонной поверхности с $E_g = E_g^{\max}$, так и от тыльной узкозонной с $E_g = E'_g$. Процесс отражения может быть многократным и завершаться двухфотонным поглощением или попаданием фотонов в створ угла α_0 и их выходом за пределы кристалла. Более высокая объемная плотность фотонов в широкозонном участке кристалла, обеспеченная многопроходностью переизлучения, приводит к более высокой вероятности двухфотонного поглощения, что в свою очередь ведет к увеличению концентрации ННЗ на широкозонном участке по сравнению с концентрацией ННЗ на соответствующем участке слоев с полной толщиной при одном и том же значении уровня возбуждения. Последнее обстоятельство приводит к более существенному сдвигу коротковолнового максимума в длинноволновую область с ростом J в спектрах ФЛ ЭС с удаленной узкозонной областью. Природа этого сдвига рассмотрена в [10].

На более узкозонных участках этих слоев вероятность двухфотонного поглощения, по-видимому, в значительной степени определяется поляризациями поглощаемых фотонов. В предположении вертикальных разрешенно-разрешенных переходов, параболичности всех зон с экстремумами при $\mathbf{k} = 0$ вероятность двухфотонного поглощения описывается выражением [11]

$$W \approx A_1 \frac{N_1 N_2 V}{\nu_1 \nu_2 \epsilon_1 \epsilon_2} \sqrt{h\nu_1 + h\nu_2 - E_g} \times \left[\frac{(\mathbf{e}_1 \mathbf{p}_{cm})(\mathbf{p}_{mv} \mathbf{e}_2)}{E_m + h\nu_2 - E_g} + \frac{(\mathbf{e}_2 \mathbf{p}_{cm})(\mathbf{p}_{mv} \mathbf{e}_1)}{E_m + h\nu_1 - E_g} \right]^2, \quad (4)$$

где $A_1 = \text{const}$; N_1, N_2 — объемные плотности фотонов с частотами ν_1 и ν_2 соответственно; ϵ_1, ϵ_2 — диэлектрические проницаемости на частотах ν_1 и ν_2 ; \mathbf{p} — импульс электрона (индекс m относится к промежуточному состоянию, c — к зоне проводимости, v — к валентной зоне); E_m — энергетическое расстояние от дна зоны проводимости до промежуточного состояния m ; V — объем возбуждаемой области. Выражение (4) показывает, что величина W зависит от объемной плотности и частоты поглощаемых фотонов, а также от ориентации их векторов поляризации \mathbf{e}_1 и \mathbf{e}_2 . Мы полагаем, что именно поляризационный фактор обуславливает тонкую структуру спектра ФЛ слоев с удаленной узкозонной областью. Очевидно, механизм действия этого фактора заключается в следующем. Каждое отражение фотона

изменяет его поляризацию. Кроме того, фотоны распространяются в кристалле с переменным показателем преломления, в результате чего траектории их движения являются криволинейными, что обеспечивает непрерывное изменение поляризации. При невысоких значениях J , когда вероятность двухфотонного поглощения W мала, указанные причины приводят к ее немонотонному изменению в направлении дрейфа ННЗ. В областях кристалла, в которых вектор импульса электрона и векторы поляризации поглощаемых фотонов параллельны, вероятность W будет большей, чем на участках, где эти векторы не параллельны, что приведет к „всплескам“ концентрации ННЗ в этих областях, проявляющимся в виде пиков на фоне сплошного спектра ФЛ.

При высоких уровнях возбуждения вероятность W возрастает из-за увеличения объемной плотности фотонов N_1, N_2 , что приводит к увеличению количества областей кристалла с параллельными векторами $\mathbf{p}, \mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2$, частотного фактора и результирующему сглаживанию тонкой структуры спектра.

Отсутствие тонкой структуры спектра ФЛ и преобладание частотной зависимости коэффициента двухфотонного поглощения от протяженности возбуждаемой области d' в слоях с полной толщиной связано, во-первых, с однопроходностью процесса переизлучения в них, во-вторых, с тем, что траектории низкочастотных фотонов, отраженных от широкозонной поверхности и проходящих больший путь, чем в ЭС с удаленной узкозонной областью, становятся более прямолинейными и сориентированными в направлении ∇E_g . Эти обстоятельства исключают локальное увеличение вероятности обусловленного поляризационным фактором двухфотонного поглощения в таких слоях.

Таким образом, в варизонных твердых растворах $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ при дрейфовом механизме переноса ННЗ во встроеном поле F кристалла двухфотонное поглощение ФЛ при переизлучении зависит от геометрического фактора — изменение протяженности возбуждаемой области приводит к изменению эффективности и характера спектральной зависимости двухфотонного поглощения рекомбинационного излучения.

Список литературы

- [1] В.Н. Бессолов, В.Г. Гутов, А.И. Именков, И.В. Попов, Б.В. Царенков, Ю.П. Яковлев. ФТП, **11** (5), 939 (1977).
- [2] R.G. Roedel, V.G. Keramidias. J. Appl. Phys., **50** (10), 6359 (1973).
- [3] А.И. Базык, В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека. УФЖ, **27** (7), 1007 (1982).
- [4] В.Ф. Коваленко, А.Ю. Миронченко, С.В. Шутов. ФТП, **36** (5), 513 (2002).
- [5] Г.П. Пека, В.Ф. Коваленко, А.Н. Смоляр. *Варизонные полупроводники* (Киев, Вища шк., 1989).
- [6] В.Ф. Коваленко, Г.П. Пека, Л.Г. Шепель. ФТП, **14** (7), 1350 (1980).

- [7] А.И. Базык, В.Ф. Коваленко, А.Ю. Миронченко, С.В. Шутов. ФТП, **35** (1), 53 (2001).
- [8] Ф.П. Кесаманлы, В.Ф. Коваленко, И.Е. Марончук, Г.П. Пека, Л.Г. Шерель. ФТП, **12** (7), 1318 (1978).
- [9] В.П. Грибковский. *Теория поглощения и испускания света в полупроводниках* (Минск, Наука и техника, 1975).
- [10] В.Ф. Коваленко, А.Ю. Миронченко, С.В. Шутов. ФТП, **36** (2), 192 (2002).
- [11] В.И. Пономаренко. Квант. электрон., № 1, 13 (1966).

Редактор Л.В. Шаронова

Dimensional effect of two-photon absorption of recombination emission in the graded-gap $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ solid solution

V.F. Kovalenko, S.V. Shutov

Institute of Semiconductor Physics,
Kherson Division of National Academy of Ukraine,
73008 Kherson, Ukraine