

Wyznaczanie wewnętrznej sprawności kwantowej rekombinacji promienistej w monokrystalicznym GaAs z pomiarów fotoluminescencji heterostruktur $\text{GaAs-Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}^*$

1. WSTĘP

Wewnętrzna sprawność kwantowa rekombinacji promienistej η_i jest podstawowym parametrem materiału półprzewodnikowego, stosowanego w technologii przyrządów elektroluminescencyjnych. Teoretyczne wyliczenie tej wielkości jest prawie niemożliwe z powodu trudności w określeniu koncentracji głębokich centrów, które mogą być obecne w półprzewodniku i mogą tworzyć kanały rekombinacji niepromienistej, o tymże ze względu na nieznaną koncentrację czynnych na wychwytywanie nierównowagowych nośników przez takie centra. Również wpływ rekombinacji Auger, która przy dużych koncentracjach nośników odgrywa znaczną rolę, okazuje się trudny do uwzględnienia.

W przypadku eksperymentalnego wyznaczania η_i z pomiarów foto- lub katodoluminescencji trudności nastręcza natomiast, ocena wpływu na ostateczny wynik rekombinacji powierzchniowej i geometrii pomiaru. Dlatego też większość publikowanych dotychczas wartości η_i pochodzi z pomiarów elektroluminescencji złącz p-n. Z praktycznego punktu widzenia znacznie większą wartość przedstawiają jednakże metody pozwalające na określenie η_i bezpośrednio w materiale wyjściowym. Pozwala to bowiem zbadać jego stopień zdefektowania i określić przydatność z punktu widzenia różnorodnych zastosowań.

Autorzy niniejszej pracy, stosując metodę zaproponowaną przez Zh. I. Alferowa i współpracowników [1], określili wewnętrzną sprawność rekombinacji promienistej posługując się specjalnie do tego celu przygotowaną testową heterostrukturą $\text{GaAs-Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. Przedstawiono również teoretyczne uzasadnienie zastosowanej metody wyznaczania η_i .

* Praca przygotowana na Konferencję Naukową no temat "Otrzymywanie i własności fizyczne związków półprzewodnikowych i ich roztworów stałych" /Cetuń, 7-9.X.1975 r./

2. TECHNIKA EKSPERYMENTALNA

Struktury będące przedmiotem badań, przygotowywano metodą epitaksji z fazy ciekłej na podłożach z GoAs typu p, domieszkowanych Zn o koncentracji nośników rzędu $2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, ruchliwości około $70 \text{ cm}^2 \text{ v}^{-1} \text{ s}^{-1}$ i gęstości dyslokacji $2 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-2}$. Nakładane na monokrystaliczne podłoża warstwy $\text{Al}_x \text{Ga}_{1-x} \text{As}$ domieszkowane były krzemem do koncentracji rzędu 10^{19} cm^{-3} . Grubości warstw wahały się w granicach od 40 do 60 μm , natomiast ułamek molowy AlAs zmieniał się od $0,3 \div 0,4$ na granicy warstwa-podłoże do $0,1 \div 0,2$ na powierzchni warstwy.

Luminescencję wzbudzano laserem He-Ne, emitującym promieniowanie o długości fali $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ i intensywności około 10^{16} fotonów/s. Intensywność wzbudzającego promieniowania zmieniano za pomocą filtrów neutralnych; do rejestracji świecenia heterostruktur stosowano standardowy układ detekcji fazoczułej; detektorem analizowanego promieniowania był fotopowielacz M 10 FD 29-Zeiss, z fotokatodą S1; czułość spektralną układu określano za pomocą kalibrowanej lampy wolframowej.

Pomiary prowadzono w temperaturze ciekłego azotu i w temperaturze pokojowej; świecenie rejestrowano z kierunku prostopadłego do próbki.

3. REZULTATY POMIARÓW – ANALIZA WYNIKÓW

Rozpatrzmy obecnie widma fotoluminescencji w badanych strukturach /typowe wyniki pomiarów dla temperatur 77 K i 300 K przedstawione są na rys. 1 i 2/.

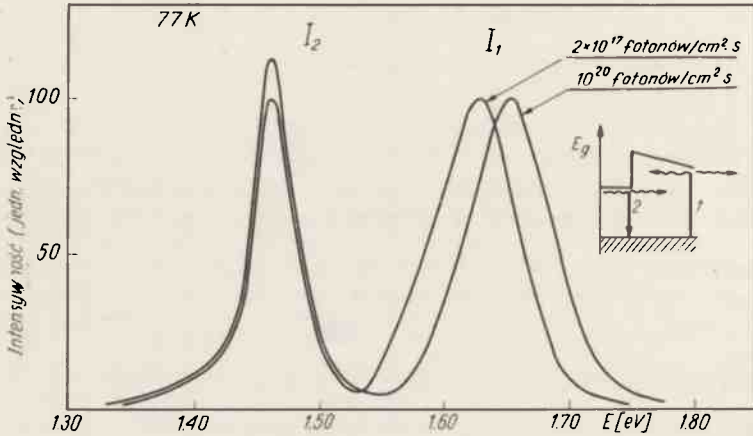
W widmach obserwuje się dwa pasma: I_1 i I_2 , przy czym pasmo wysokoenergetyczne związane jest z luminescencją warstwy epitaksjalnej, a niskoenergetyczne – z podłożem..

W temperaturze 77 K maksimum pasma I_1 przesuwają się w stronę wyższych energii, ze wzrostem intensywności pobudzenia, natomiast w temperaturze pokojowej efektu tego nie zaobserwowano; rezultaty te są zgodne z wynikami przedstawionymi w pracy [2].

Położenie maksimum pasma I_2 nie zależy od intensywności wzbudzenia, zarówno w temperaturze 77 K jak i w 300 K. Dla ustalenia mechanizmu rekombinacji rezultaty fotoluminescencji porównano z wynikami mikroanalizy rentgenowskiej /uzyskany tą metodą rozkład zawartości AlAs w badanej warstwie jest przedstawiony na rys. 3/. Skład $\text{Al}_x \text{Ga}_{1-x} \text{As}$ maleje płynnie z odległością od podłoża, co przyczynia się w konsekwencji do zmniejszania się szerokości przerwy energetycznej E_g ze stałym /w przybliżeniu/ gradientem $0,006 \text{ eV}/\mu\text{m}$. Szerokość przerwy energetycznej określano na podstawie zależności $E_g /x/$, podanej w pracy [3].

Dla rozpatrywanych koncentracji krzemu /rzędu 10^{19} cm^{-3} / obserwuje się istotne zniekształcenie krawędzi pasm w kryształach i znaczny stopień kompensacji, wynikający z amfoterycznego charakteru domieszki. Zgodnie z teorią [4, 5] kształt pasm luminescencji jest w głównej mierze określony przez ogony stanów pasma walencyjnego. Zniekształcenia pasma przewodnictwa nie są w wyżej wymienionej teorii uwzględniane ponieważ efektywna masa elektronu jest znacznie mniejsza niż efektywna masa dziury. Ten model możemy traktować jako pierwsze przybliżenie rozpatrywanego problemu. Ewentualne odstępstwa od niego, które mogą się pojawiać przy bardzo wysokich stopniach kompensacji, nie będą dyskutowane, ponieważ nie mają istotnego wpływu na rezultaty omawianych przez nas badań. Możemy więc ostatecznie przyjąć, że pasmo I_1

pojawia się w wyniku przejść "pasmo przewodnictwa - ogony pasma walencyjnego", a zmiany jego położenia, w zależności od intensywności wzbudzenia, są determinowane przez zmiany położenia quasi-poziomu Fermiego dla elektronów. Naturę pasma I_2 jest szczegółowo zbadana [6]; za jego pojawienie się są odpowiedzialne przejścia "pasmo przewodnictwa - poziom akceptorowy Zn", zachodzące w monokrystalicznym arsenku galu.



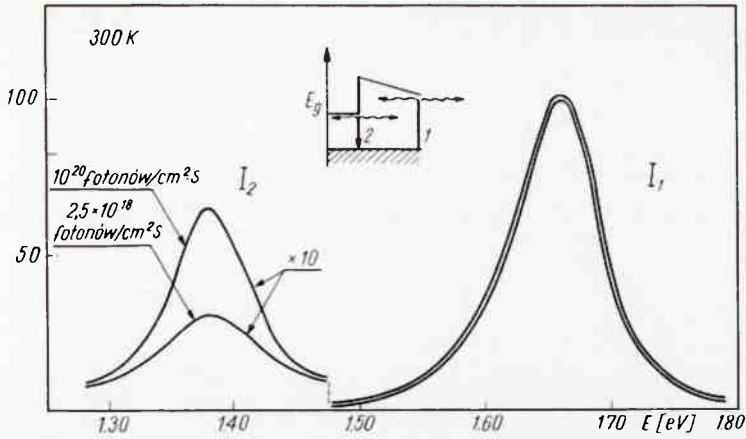
Rys. 1. Widma fotoluminescencji dla różnych poziomów wzbudzenia w temperaturze 77 K. Krzywe unormowane do 100 w maksimum pasma I_1 . Pokazano również schematycznie badaną strukturę: 1 - przejście odpowiedzialne za powstanie pasma I_1 , 2 - przejście odpowiedzialne za powstanie pasma I_2

Obecnie przedstawimy wewnętrzną sprawność kwantowej rekombinacji promienistej w GaAs. Wzbudzające promieniowanie laserowe jest pochłaniane w przypowierzchniowym obszarze / o grubości około $1\ \mu\text{m}$ / warstwy epitaksjalnej, generując świecenie o całkowitej intensywności równej L . W wyniku zjawiska całkowitego wewnętrznego odbicia strukturę opuszcza tylko niewielka część L_1 generowanego promieniowania, zawarta w kącie bryłowym Ω_1 . Zakładając generację izotropową, część ta jest równa:

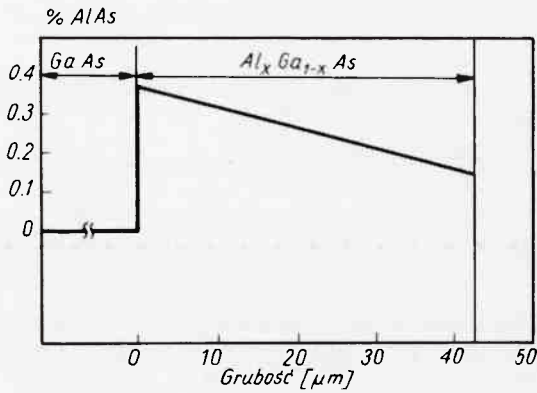
$$L_1 = L \frac{\Omega_1}{4\pi} = L \delta_1. \quad (1)$$

Reszta, tzn. $L / 1 - \delta_1$ / generowanego promieniowania, jest pochłaniana w arsenku galu, który posiada węższą przerwę energetyczną, niż warstwa epitaksjalna. Ze względu na obecność gradientu przerwy energetycznej w warstwie epitaksjalnej, zarówno promieniowanie wzbudzające luminescencję GaAs, jak i sama luminescencja GaAs nie ulegają absorpcji w trakcie przechodzenia przez tę warstwę. Przyjmując wewnętrzną sprawność kwantową rekombinacji promienistej w GaAs równą η_f , otrzymujemy następujący wzór na całkowitą intensywność generowanego promieniowania:

$$L(1 - \delta_1)\eta_f$$



Rys. 2. Widma fotoluminescencji dla różnych poziomów wzbudzenia w temperaturze 300 K. Krzywe unormowane do 100 w maksimum pasma I_1 . Pokazano również schematycznie badaną strukturę: 1 - przejście odpowiedzialne za powstanie pasma I_1 , 2 - przejście odpowiedzialne za powstanie pasma I_2



Rys. 3. Rozkład zawartości AlAs w warstwie epitaksjalnej

Podobnie jak i poprzednio opuszcza strukturę tylko część generowanego promieniowania zawarta w kącie bryłowym Ω_2 , różnym od Ω_1 .

Intensywność tego promieniowania jest równa:

$$L_2 = L(1 - \delta_1) \eta ; \delta_2, \quad (2)$$

gdzie

$$\delta_2 = \frac{\Omega_2}{4\pi}$$

Z (1) i (2) otrzymujemy:

$$L_1 \delta_2 (1 - \delta_1) \eta_i = L_2 \delta_1,$$

skąd

$$\eta_i = \frac{L_2}{L_1} \cdot \frac{\delta_1}{\delta_2 (1 - \delta_1)} \quad (3)$$

Wyrażenie $\frac{\delta_1}{\delta_2 (1 - \delta_1)}$ jest w przypadku rozpatrywanych struktur rzędu jedności,

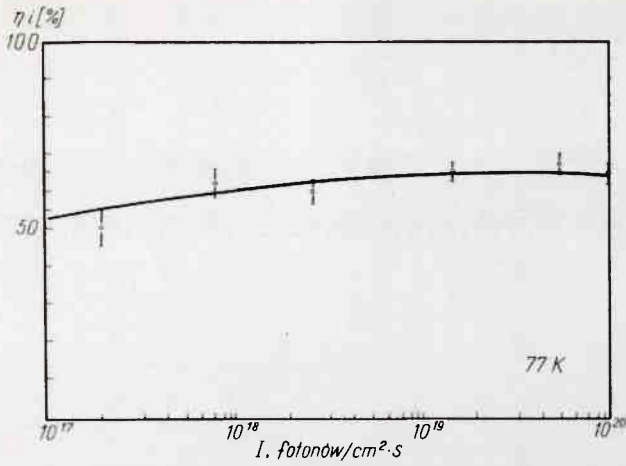
z dokładnością do 1,5% /patrz uwagi końcowe/. Mierzone całkowite intensywności promieniowania I_1 i I_2 są proporcjonalne do L_1 i L_2 , ze stałym współczynnikiem proporcjonalności, zależnym od geometrii pomiaru. Można zatem przyjąć, że:

$$\eta_i = \frac{I_2}{I_1} \quad (4)$$

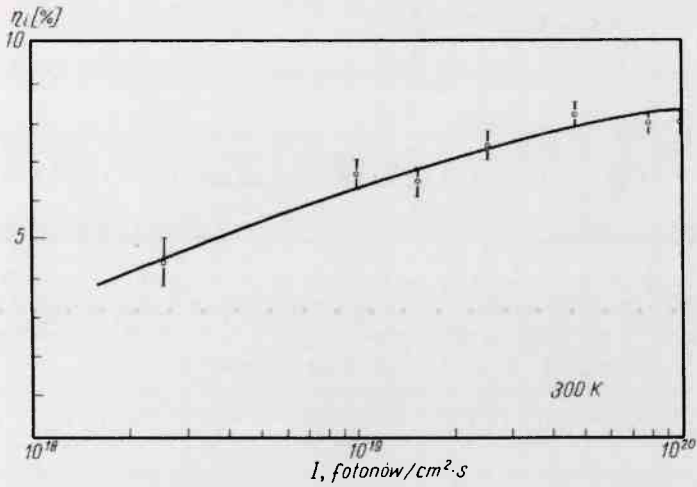
Posługując się zależnością (4) określono η_i , w temperaturze 77 K i 300 K, w zależności od intensywności wzbudzenia /rys. 4 i 5/. Obserwowany na wymienionych rysunkach, wzrost wartości wewnętrznej sprawności kwantowej ze wzrostem intensywności wzbudzenia, świadczy o nasycaniu się kanałów rekombinacji niepromienistej. Otrzymane w ten sposób wartości η_i są nieco mniejsze od rzeczywistych, ponieważ opisywana metoda nie uwzględnia dyfuzji nierównowagowych nośników i samoabsorpcji promieniowania generowanego w arsenku galu.

Dokładność określenia η_i wyznaczono metodą wielokrotnych pomiarów I_1 i I_2 , a następnie statystycznego opracowania wyników. Ze względu na znaczną grubość płytki z GaAs nie uwzględniano wpływu promieniowania odbitego od jej przeciwległej ścianki na wyniki pomiaru. Zmniejszanie się η_i wraz ze wzrostem temperatury może być spowodowane rozplywem nośników generowanych w arsenku galu na znaczne odległości /rzędu długości dyfuzji/ od granicy fazowej $\text{GaAs-Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$.

Wydaje się, że badania takich struktur, a także struktur wielowarstwowych z obszarem aktywnym o węższej przerwie, niż pozostałe warstwy, są celowe ze względu na możliwość poprawy parametrów przyrządów elektroluminescencyjnych, wykonanych na bazie tych struktur.



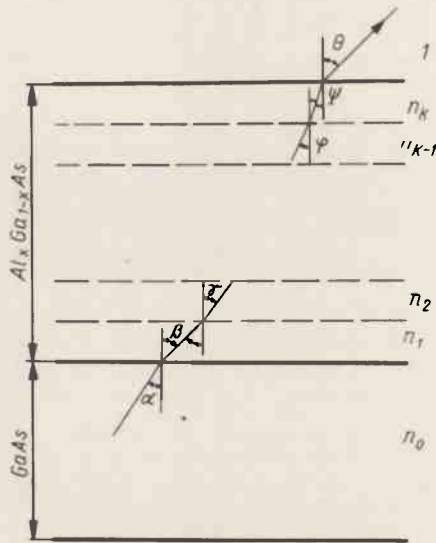
Rys. 4. Zależność wewnętrznej sprawności kwantowej rekombinacji promienistej w GaAs od poziomu wzbudzenia w temperaturze 77 K



Rys. 5. Zależność wewnętrznej sprawności kwantowej rekombinacji promienistej w GaAs od poziomu wzbudzenia w temperaturze 300 K

4. UWAGI KONCOWE

W celu policzenia wielkości $\frac{\delta_1}{\delta_2(1-\delta_1)}$ podzielimy warstwę epitaksjalną $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ na warstewki na tyle cienkie, by w obrębie każdej z nich można było przyjąć stałą wartość współczynnika załamania /rys. 6/.



Rys. 6. Droga promienia świetlnego w warstwie epitaksjalnej

Założymy dalej, że promieniowanie wchodzi w warstwę epitaksjalną z ośrodka o współczynniku załamania n_0 , a wychodzi z niej do powietrza o współczynniku załamania równym 1. Wówczas, zgodnie z prawem załamania,

$$\frac{\sin \alpha}{\sin \beta} = \frac{1}{n_0}$$

$$\frac{\sin \beta}{\sin \delta} = \frac{n_2}{n_1}$$

⋮

$$\frac{\sin \varphi}{\sin \psi} = \frac{n_k}{n_{k-1}}$$

$$\frac{\sin \psi}{\sin \theta} = \frac{1}{n_k}$$

(D1)

Mnożąc powyższe zależności stronami przez siebie otrzymujemy:

$$\frac{\sin \alpha}{\sin \theta} = \frac{1}{n_0} \quad (D2)$$

Kąt wyjścia promienia z warstwy epitaksjalnej zależy zatem jedynie od kąta wejścia promienia w warstwę i współczynników załamania po obu stronach warstwy. Podstawiając w równanie (D2) $\sin \theta = 1$ i uwzględniając zależność n_0 od długości fali, otrzymujemy następujące wyrażenie na wielkość kąta granicznego:

$$\alpha_{gr} = \arcsin \frac{1}{n_0(\lambda, \text{GaAs})} \quad (D3)$$

Odpowiadająca mu wartość kąta bryłowego równa jest:

$$\Omega_2 = 2\pi(1 - \cos \alpha_{gr}). \quad (D4)$$

Analogiczny kąt graniczny Ψ_{gr} dla promieniowania generowanego przy powierzchni warstwy epitaksjalnej równy jest:

$$\Psi_{gr} = \arcsin \frac{1}{n_k(\lambda, \text{AlGaAs})} \quad (D5)$$

a odpowiadająca mu wielkość kąta bryłowego

$$\Omega_1 = 2\pi(1 - \cos \Psi_{gr}). \quad (D6)$$

Podstawiając (D3), (D4), (D5) i (D6) w równanie (3) otrzymujemy:

$$\eta_i = \frac{L_2}{L_1} \cdot \frac{2(1 - \cos \Psi_{gr})}{(1 - \cos \alpha_{gr})(1 + \cos \Psi_{gr})}. \quad (D7)$$

Zamiana D7 równaniem

$$\eta_i = \frac{L_2}{L_1} \quad (D8)$$

proceedzi, w przypadku rozpatrywanych wielkości α_{gr} i Ψ_{gr} , do błędu rzędu 1,5%. Wartości współczynników załamania $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ konieczne dla wyliczenia (D7) zostały wzięte z pracy [7].

Literatura

1. Alfjorov Ž. I., Andreev V. M., Garbuzov D. Z., Rumjancev V. D.: FTP 9, 462, 1972
2. Imenkov A. N., Negreskul V. V., Corenkov B. V., Jakovlev J. P.: FTP 8, 1452, 1974
3. Casey Jr. H. C., Panish M. B.: J. Appl. Phys. 40, 4910, 1969
4. Levanjuk A. P., Osipov V. V.: FTP 7, 1058, 1973
5. Levanjuk A. P., Osipov V. V.: FTP 7, 1069, 1973
6. Cusano D. A.: Solid State Comm. 3, 353, 1964
7. Casey H. C. Jr., Sell D. D., Panish M. B.: Appl. Phys. Letters 24, 63, 1974