

ТУННЕЛЬНАЯ ИЗЛУЧАТЕЛЬНАЯ РЕКОМБИНАЦИЯ В p - n -ГЕТЕРОСТРУКТУРАХ НА ОСНОВЕ НИТРИДА ГАЛЛИЯ И ДРУГИХ СОЕДИНЕНИЙ ТИПА $A^{III}B^V$

*В. Е. Кудряшов, А. Э. Юнович**

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 22 апреля 2003 г.

Дано обобщение экспериментальных результатов о туннельном излучении, полученных как для p - n -гетероструктур на основе GaN, так и для p - n -структур на основе кубических полупроводников $A^{III}B^V$: GaAs, InP, GaSb и (Ga, In)Sb. Туннельное излучение в p - n -гетероструктурах типа InGaN/AlGaIn/GaN в спектральном диапазоне 1.9–2.7 эВ преобладает при малых токах ($J < 0.2$ мА). Положение максимума спектра $\hbar\omega_{max}$ приблизительно равно приложенному потенциалу, $\hbar\omega_{max} = eU$. Спектральная полоса излучения описывается теорией туннельной излучательной рекомбинации. Туннельное излучение обусловлено сильными электрическими полями в GaN-гетероструктурах. Вероятность его выше для структур с пьезоэлектрическими полями. Спектры сопоставлены со спектрами туннельного излучения светодиодов на основе GaAs, InP и GaSb. Экспериментальные результаты для разных полупроводников в широком диапазоне энергий описываются уравнением $\hbar\omega_{max} = eU = 0.5$ –2.7 эВ.

PACS: 73.21.Fg, 73.40.Kp, 73.40.Gk, 78.60.Fi, 78.67.De

1. ВВЕДЕНИЕ

Туннельная излучательная рекомбинация в p - n -переходах в полупроводниках — излучение света с энергиями квантов, меньшими ширины запрещенной зоны — это явление, обратное межзонному оптическому поглощению в сильном электрическом поле (эффекту Франца–Келдыша). Оно было исследовано ранее в кубических полупроводниках типа $A^{III}B^V$ [1, 2]. В работах [3–5] было показано, что полоса туннельного излучения преобладает в спектрах люминесценции светодиодов на основе гетероструктур InGaN/AlGaIn/GaN с одиночными квантовыми ямами InGaIn при малых токах. Модель диагонального туннелирования [1, 2] была применена для описания спектров излучения структур на основе GaN [3, 4]. Спектры и электрические свойства светодиодов были подробно проанализированы в работах [5, 6]. Туннельная излучательная рекомбинация затем была исследована при слабых токах и в других светодиодах на основе GaN [7–9]. Было показано, что она игра-

ет существенную роль в структурах с высокими электрическими полями в активном двумерном слое.

Данная статья продолжает работу [10] и обобщает экспериментальные результаты, полученные для гетероструктур GaN, которые были выращены в различных лабораториях. Они описаны теорией диагонального туннелирования. Обсуждена роль пьезоэлектрических полей. Туннельное излучение в гексагональных GaN-структурах и в p - n -переходах на основе кубических полупроводников $A^{III}B^V$ (GaAs, InP, GaSb) от инфракрасной до фиолетовой области спектра может быть рассмотрено с общей точки зрения.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Были исследованы светодиоды на основе гетероструктур InGaN/AlGaIn/GaN, выращенных по технологии эпитаксии из металло-органических соединений различными группами: Nichia Chemical [3–6], Hewlett-Packard [7, 8], CRHEA–CNRS [9], Uniroyal, LumiLeds [10, 11]. Особое внимание было уделено

*E-mail: yunovich@scon175.phys.msu.su

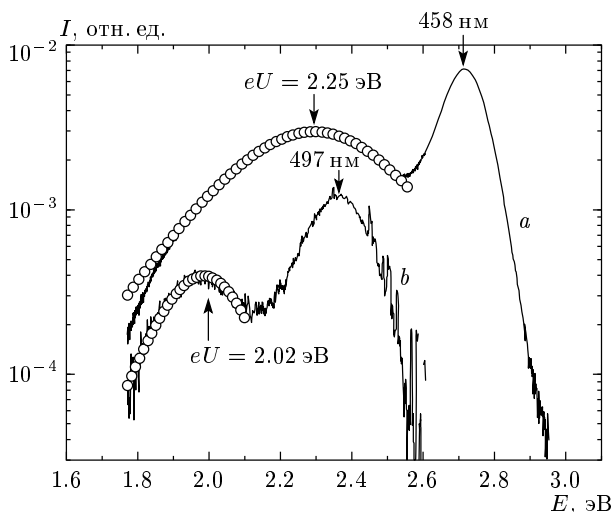


Рис. 1. Спектры электролюминесценции светодиодов на основе гетероструктур типа InGaN/AlGaIn/GaN с квантовыми ямами при малых токах J ; a — голубой светодиод — образец фирмы Nichia Chemical [3–5]; b — зеленый светодиод — образец фирмы Hewlett-Packard [8]. Точками показана аппроксимация спектров формулой (1) с параметрами $E_0 = 77$ мэВ, $E = 0.5$ МВ/см, $E_g^* = 2.7$ эВ, $mkT = 26$ мэВ для голубого светодиода и $E_0 = 260$ мэВ, $E = 2.8$ МВ/см, $E_g^* = 2.7$ эВ, $mkT = 31$ мэВ для зеленого. Стрелками показаны положения максимумов основной и туннельной спектральных полос

спектрам излучения при слабых токах, $J < 0.2$ мА ($j \leq 0.2$ А/см²).

Общий вид спектров светодиодов представлен на рис. 1. При малых токах явно разделяются основная спектральная полоса в области высоких энергий и длинноволновая спектральная полоса. На рис. 2 показано изменение спектров светодиодов в зависимости от приложенного напряжения U [9, 10]. Основная, фиолетовая полоса преобладает при больших токах, $J > 10$ мА. Максимум длинноволновой полосы сдвигается с изменением напряжения, точки на спектрах показывают положение энергии $\hbar\omega = eU$. Интегральная интенсивность Φ длинноволновой полосы экспоненциально зависит от U , как показано на рис. 3. Зависимость максимума длинноволновой полосы от напряжения для разных светодиодов показана на рис. 4. Положение максимума $\hbar\omega_{max}$ приблизительно равно приложенному потенциалу: $\hbar\omega_{max} = eU$. Спектральные полосы в области низких энергий связаны с туннельной излучательной рекомбинацией.

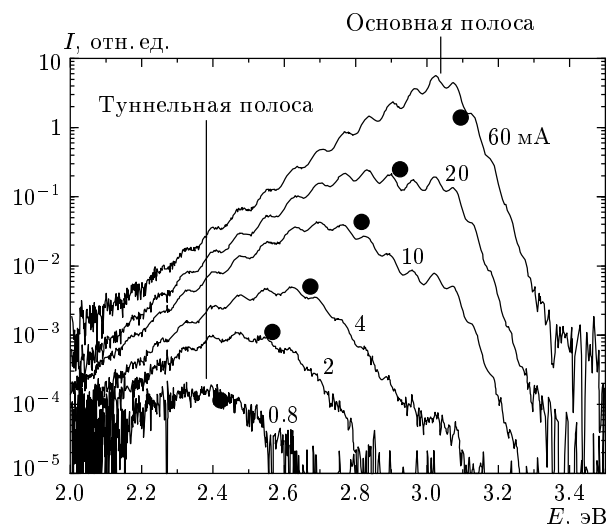


Рис. 2. Изменения спектров электролюминесценции светодиодов на основе гетероструктур типа InGaN/AlGaIn/GaN при изменении тока в широком интервале (образцы лаборатории CRHEA [9, 10]). Точками показаны значения энергии $\hbar\omega = eU$

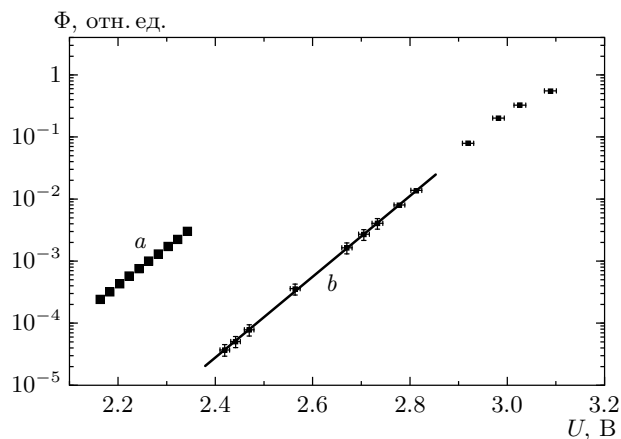


Рис. 3. Интенсивность туннельного излучения $\Phi(U) \propto \exp(eU/E_0)$ в зависимости от напряжения U : a — для спектров образца на рис. 1а с параметром $E_0 = 67$ мэВ, b — для спектров образца на рис. 1б с параметром $E_0 = 71$ мэВ

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Теория туннельной излучательной рекомбинации [1, 2] была разработана для гомогенных p - n -переходов. Спектр туннельного излучения в этой модели в предположении постоянного электрического поля в активной области может быть описан урав-

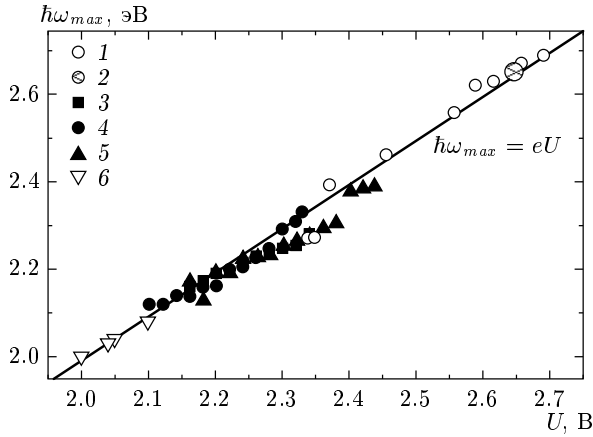


Рис. 4. Положение максимума в спектрах туннельного излучения различных светодиодов на основе гетероструктур типа InGaN/AlGaIn/GaN в зависимости от напряжения U для образцов разных лабораторий: 1 — CRHEA, фиолетовый (2001), 2 — UniRoyal, фиолетовый (2001), 3, 4, 5 — Nichia Chem., синие (1996), 6 — Hewlett-Packard, зеленый (2000)

нением

$$I(\hbar\omega) \propto \frac{\hbar\omega}{\mathcal{E}_g - \hbar\omega} \frac{\hbar\omega - eU}{\exp\left(\frac{\hbar\omega - eU}{mkT}\right) - 1} \times \exp\left(-\frac{4}{3} \left(\frac{\mathcal{E}_g - \hbar\omega}{\mathcal{E}_0}\right)^{3/2}\right), \quad (1)$$

где \mathcal{E}_g — эффективная ширина запрещенной зоны, m — параметр, зависящий от отношения эффективных масс. Знаменатель \mathcal{E}_0 в показателе экспоненты определяется из теории эффекта Франца–Келдыша:

$$\mathcal{E}_0 = \left[\left(\hbar / (2m_{cv}^*)^{1/2} \right) eE \right]^{2/3}, \quad (2)$$

где m^* — эффективная масса, E — электрическое поле, принятое постоянным в области перекрытия волновых функций электрона и дырки. Интегральная интенсивность излучения Φ экспоненциально зависит от приложенного напряжения:

$$\Phi \propto \exp(eU/\mathcal{E}_0). \quad (3)$$

Мы использовали уравнение (1) для случая гетеропереходов в кристаллах типа вюрцита. Обсудим изменения теории, необходимые для гетероструктур типа InGaN/AlGaIn/GaN с квантовыми ямами InGaN, энергетическая диаграмма которых показана на рис. 5. Электрическое поле E в структуре зависит от легирования p - и n -областей (N_A и N_D),

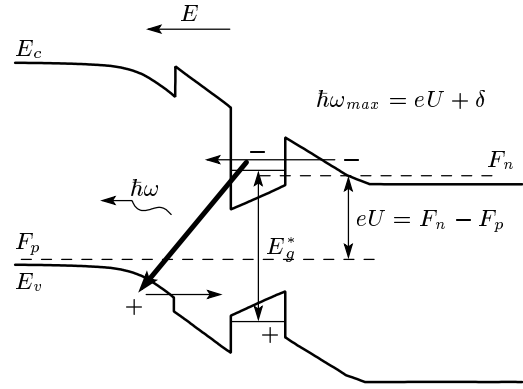


Рис. 5. Энергетическая диаграмма гетероструктуры типа InGaN/AlGaIn/GaN с одиночной квантовой ямой InGaN, учитывающая пьезоэлектрическую поляризацию. Стрелкой показан туннельный переход электронов из квантовой ямы в p -область с излучением кванта $\hbar\omega$ (диагональное туннелирование); разность квазиуровней Ферми $F_n - F_p = eU$

от ширины слоя AlGaIn и барьеров GaN, от ширины ям. Если принять контактную разность потенциалов на структуре ϕ_c порядка $\phi_c \approx 3$ В и полную ширину области пространственного заряда $w \approx 80$ – 100 нм [6–8], то значение электрического поля

$$E_{\phi_c} \approx \phi_c/w \approx (0.4\text{--}0.3)10^6 \text{ В/см}. \quad (4)$$

Ширина w в (4) зависит от распределения заряженных примесей (резкое или плавное) в сложной гетероструктуре. Значение E_{ϕ_c} значительно выше, чем электрические поля в p - n -переходах в Si или GaAs. Заметим, что E стоит в экспоненте в уравнении (1), и что вероятность туннельного излучения критически зависит от этой величины.

Эффективное поле E также зависит от пьезоэлектрических полей и полей спонтанной поляризации E_p в барьерах и ямах. Поляризационные поля в ямах направлены в сторону, противоположную направлению поля p - n -перехода, в структурах, выращенных на Ga-полярных c -плоскостях (0001). Поля в барьерах направлены в ту же сторону, что и поле p - n -перехода (вследствие зарядов на гетерограницах). Туннельные эффекты зависят от перекрытия волновых функций электрона и дырки под барьерами AlGaIn. Это является причиной того, что туннельное излучение более вероятно в структурах с сильными электрическими полями E_p в барьерах, вызванных поляризациями.

Значения электрических полей были оценены для структур InGaN/AlGaIn/GaN в [11–14] как

$E_p \approx 0.5 \cdot 10^6$ В/см, т.е. того же порядка, что значения E в уравнении (4). Экспериментальные данные, показанные на рис. 2, были получены для образцов с сильным легированием Si в ямах со стороны n -области перехода. Этот факт подтверждает модель излучения, вызванного туннелированием электронов под барьер p -области. Эту модель иллюстрирует жирная стрелка из n -области InGaN-ямы в p -область AlGaN-барьера на рис. 5.

Значение приведенной массы в уравнении (1) зависит от кристаллографического направления в гексагональных полупроводниках:

$$m_{cv}^* = (1/m_c^* + 1/m_v^*)^{-1}. \quad (5)$$

Для анализа были приняты значения m_c^* для оси c в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, соответствующие положению основной спектральной полосы в каждом образце; были использованы данные [15] ($m_{c(0001)}^* = (0.20-0.15)m_0$ для $x = 0-0.2$). Значение m_v^* было принято равным m_v^* для верхней валентной зоны $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ в точке Γ ($m_{v1(0001)}^* = 0.27m_0$), туннелированием из низших валентных зон пренебрегалось.

Аппроксимация экспериментальных спектров туннельного излучения уравнением (1) с учетом описанных изменений показана на рис. 1. Коротковолновая (синяя) полоса была выделена из спектров в [5, 6]. Напряжение U в (1) было принято равным измеренному напряжению на структуре $U = V$, что возможно при малых токах. Ширина запрещенной зоны \mathcal{E}_g , подбираемая для аппроксимации, изменялась в пределах значений эффективной ширины запрещенной зоны в ямах, \mathcal{E}_g .

Параметр \mathcal{E}_0 в уравнении (1), подбираемый для хорошей аппроксимации спектров, изменялся в пределах $\mathcal{E}_0 = 0.15-0.4$ эВ. Это значение значительно выше величины $\mathcal{E}_0 \approx 0.07$ эВ, определенной из зависимости интегральной интенсивности от напряжения (уравнение (3) [5-7], см. рис. 3). Это разногласие может быть понято: длинноволновый наклон спектра зависит от туннельного излучения через хвосты зон, не включенных в теорию [1, 2]. Интегральная интенсивность определяется плотностью состояний в зонах и лучше соответствует теории параболических зон в плоскости перехода. Интегральная интенсивность меньше зависит от хвостов плотности состояний.

Электрическое поле E , определенное из описания спектров туннельной излучательной рекомбинации, имеет значения $E = (1.2-5) \cdot 10^6$ В/см, если использовать $\mathcal{E}_0 = 0.15-0.4$ эВ из аппроксимации спектров, и $E = (0.3-0.5) \cdot 10^6$ В/см, если использовать

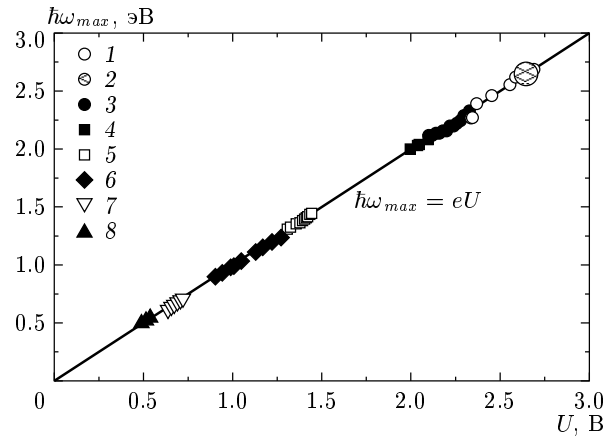


Рис. 6. Положение максимума в спектрах туннельного излучения для светодиодов из разных соединений типа $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$ в зависимости от напряжения U . Образцы соединений: 1 — InGaN (CRHEA, фиолетовый, 2001), 2 — InGaN (UniRoyal, фиолетовый, 2001), 3 — InGaN (Nichia Chem., синий, 1996), 4 — InGaN (Hewlett-Packard, зеленый, 2000), 5 — GaAs [1] (1966), 6 — InP [1] (1966), 7 — GaSb [1, 16] (1969), 8 — InGaSb [17] (1975)

$\mathcal{E}_0 = 0.07-0.08$ эВ из зависимости интегральной интенсивности Φ от напряжения U . Последнее более реалистично и согласуется со значениями, полученными из емкостных измерений и распределения зарядов (формула (4)).

Теория [1, 2] дает зависимость положения максимума туннельной полосы от температуры T . Величина $(\hbar\omega_{max} - eU)$ зависит от статистического множителя $[\exp((\hbar\omega - eU)/mkT) - 1]$ в уравнении (1). Если температура низка, $kT \ll \mathcal{E}_0$, разница $(\hbar\omega_{max} - eU)$ положительна, а если температура высока, $kT \gg \mathcal{E}_0$, то значение $(\hbar\omega_{max} - eU)$ отрицательно. Максимум $\hbar\omega_{max}$ совпадает с eU при $kT = (1/3)\mathcal{E}_0$ [2]. Если использовать значение \mathcal{E}_0 , равное $0.07-0.08$ эВ, то $\hbar\omega_{max} = eU$ при комнатной температуре, $kT = 0.026$ эВ, в хорошем согласии с результатами (рис. 4).

Теоретическое значение электрического поля в структуре не принимает во внимание неоднородности гетеропереходов и флуктуаций потенциалов, обусловленных флуктуациями состава InGaN. Туннелирование более вероятно в «горячих точках» с максимальным электрическим полем. В работах [7, 8] туннельная полоса наблюдалась в образцах с низким квантовым выходом излучения. Этот факт, по-видимому, вызван безызлучательным туннелированием вследствие неоднородностей в образ-

цах с низким квантовым выходом.

В спектрах высокоэффективных светодиодов, выращенных в лаборатории LumiLeds и описанных в [11], туннельной полосы при малых токах найдено не было. Эти образцы имели четыре квантовые ямы InGaN с барьерами GaN, легированными донорами Si. Электроны с доноров компенсируют поляризационные заряды в таких структурах. Эти данные подтверждают модель рис. 5, в которой диагональное туннелирование более вероятно вследствие высоких пьезоэлектрических полей в барьерах.

Интересно сравнить результаты, полученные на GaN-структурах, с ранними результатами по исследованию туннельного излучения в других (кубических) полупроводниках A^{III}B^V: GaAs [1], InP [1], GaSb [1, 16] и (Ga, In)Sb [17]. График зависимости $\hbar\omega_{max}$ от напряжения U (рис. 6) представляет замечательный результат: экспериментальные точки в широкой области от инфракрасного до фиолетового диапазона расположены с хорошей точностью на теоретической прямой $\hbar\omega_{max} = eU$.

4. ВЫВОДЫ

Туннельная излучательная рекомбинация (диагональное туннелирование) — эффект, обратный эффекту Франца–Келдыша, — наблюдается в p - n -гетероструктурах на основе GaN с квантовыми ямами при слабых токах и сильных электрических полях ($E = (0.3-1) \cdot 10^6$ В/см). Вероятность этого эффекта выше, если пьезоэлектрическая и спонтанная поляризации играют существенную роль в гетеропереходах AlGaIn/InGaIn.

Экспериментально наблюдаемые спектры светодиодов на основе GaN при малых токах описываются теорией туннельного излучения. Спектральный максимум туннельной полосы при комнатной температуре приблизительно равен приложенному к структуре InGaIn/AlGaIn/GaN потенциалу: $\hbar\omega_{max} = eU = 1.9-2.7$ эВ.

Туннельная излучательная рекомбинация является фундаментальным явлением для p - n -переходов в гомо- и гетероструктурах в прямозонных полупроводниках типа A^{III}B^V в широкой спектральной области — от инфракрасного до фиолетового диапазона: $\hbar\omega = eU = 0.5-2.7$ эВ.

Авторы благодарны М. Леру (M. Leroux) за обсуждение результатов, Центру Национальных Исследований Франции (CNRS, програм 2001, project 9562) и Московскому комитету по науке и технике (грант ГЛ-120.02) за финансовую поддержку.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. Э. Юнович, А. Б. Ормонт, ЖЭТФ **51**, 1292 (1966).
2. T. N. Morgan, Phys. Rev. **148**, 890 (1966).
3. K. G. Zolina, V. E. Kudryashov, A. N. Turkin, A. E. Yunovich, and S. Nakamura, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **1/11** (1996).
4. К. Г. Золина, В. Е. Кудряшов, А. Н. Туркин, А. Э. Юнович, ФТП **31**, 1055 (1997).
5. В. Е. Кудряшов, К. Г. Золина, А. Н. Ковалев, Ф. И. Маняхин, А. Н. Туркин, А. Э. Юнович, ФТП **31**, 1304 (1997).
6. A. N. Kovalev, F. I. Manyakhin, V. E. Kudryashov, A. N. Turkin, and A. E. Yunovich, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **2/11** (1997).
7. A. E. Yunovich, A. N. Kovalev et al., MRS Symp. Proc. **449**, 1167 (1997).
8. В. Е. Кудряшов, С. С. Мамакин, А. Н. Туркин, А. Э. Юнович, А. Н. Ковалев, Ф. И. Маняхин, ФТП **34**, 861 (2001).
9. P. Vennégués, B. Beaumont, S. Haffouz, M. Vaille, and P. Gibart, J. Cryst. Growth **187**, 167 (1998).
10. A. E. Yunovich, V. E. Kudryashov, A. N. Turkin, M. Leroux, and S. Dalmaso, MRS Symp. Proc. **723**, L11.4, 647 (2002).
11. A. E. Yunovich, S. S. Mamakin, F. I. Manyakhin, N. Gardner, W. Goetz, M. Misra, and S. Stockman, MRS Symp. Proc. , Vol. **711**, K2.4, 71 (2002).
12. P. Lefebvre, J. Allegre, B. Gil, H. Mathieu, N. Grandjean, M. Leroux, J. Massies, and P. Bigenwald, Phys. Rev. B **59**, 15363 (1999).
13. S. F. Chichibu, S. P. DenBaars, K. Wada, S. Nakamura et al., Mater. Sci. Eng. B **59**, 298 (1999).
14. A. Hangleiter, J. S. Im, H. Kollmer, O. Gfroerer, J. Off, and F. Scholz, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **4S11**, G6.20 (1999).
15. B. Gil, *Group III Nitride Semiconductor Compounds: Physics and Applications*, Clarendon Press, Oxford (1998).
16. В. М. Стучебников, А. Э. Юнович, ФТП **3**, 1293 (1969).
17. А. И. Лебедев, И. А. Стрельникова, А. Э. Юнович, ФТП **10**, 1304 (1976).