

ЗАХВАТ И РЕКОМБИНАЦИЯ НЕРАВНОВЕСНЫХ НОСИТЕЛЕЙ В СТРУКТУРАХ С КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ

Козырев С. В., Шик А. Я.

Теоретически рассмотрены процессы перехода неравновесных носителей между квантовой ямой и окружающим ее широкозонным полупроводником. Вычислена зависимость отношения интенсивностей люминесценции из квантовой ямы и широкозонного полупроводника (при генерации в широкозонном полупроводнике) от интенсивности возбуждения, температуры и параметров структуры. Рассчитана кинетика люминесценции (в режиме малых интенсивностей возбуждения) путем введения феноменологических времен, характеризующих процессы диффузии, захвата в квантовую яму и обратного теплового выброса неравновесных носителей.

Среди активно ведущихся исследований электронных свойств двумерных систем значительное место занимают работы по люминесценции гетероструктур с квантовыми ямами (КЯ). В большинстве таких работ неравновесные носители создаются (светом или инжекцией) в широкозонном полупроводнике (ШП), окружающем КЯ, захватываются в нее, релаксируют по энергии и, наконец, рекомбинируют с испусканием фотона. Однако захват носителей в КЯ далеко не всегда бывает полным. Зачастую заметная доля носителей рекомбинирует в ШП, создавая дополнительную коротковолновую полосу люминесценции (см., например, [1-6]). Отношение ее интенсивности к интенсивности излучения из КЯ и сопоставление кинетики люминесценции в обеих спектральных полосах могут нести полезную информацию о процессах захвата в КЯ и о рекомбинационных процессах в исследуемых структурах. Основная цель данной работы — расчет этого отношения, выяснение характера его зависимости от параметров структур, температуры и интенсивности возбуждения, а также анализ кинетики люминесценции с учетом захвата носителей в КЯ.

1. *Равновесная форма одиночной КЯ.* Прежде чем рассматривать неравновесные процессы в КЯ, следует уточнить вид зонной диаграммы исследуемой системы. Обычно используемая модель прямоугольной ямы с горизонтальными «берегами» справедлива далеко не всегда. В частности, при наличии одиночной КЯ в не слишком легированном материале (в дальнейшем для определенности n -типа) часть электронов переходит из ШП в КЯ, что приводит к появлению изгиба зон, схематично показанного на рис. 1. В результате появляется потенциальный барьер δ , препятствующий захвату неравновесных электронов в КЯ и тепловому выбросу дырок из нее. С ростом скорости генерации неравновесных носителей G величина δ уменьшается за счет дополнительной экранировки этими носителями. Это может сказаться на зависимостях концентрации неравновесных носителей в КЯ от температуры и интенсивности возбуждения.

Пусть концентрация доноров в ШП равна N_D . (Если $a^2 \ll \kappa T/4\pi e^2 N_D$, где a — ширина КЯ, T — температура в энергетических единицах, κ — диэлектрическая проницаемость, то уровень легирования самой КЯ не играет роли). Тогда, используя приближение Шоттки для слоев обеднения, окружающих КЯ, имеем

$$(2\kappa N_D \delta / \pi e^2)^{1/2} = n_S^0 + \Delta n_S - \Delta p_S. \quad (1)$$

Здесь правая часть описывает заряд КЯ (на единицу площади), определяемый поверхностными концентрациями равновесных электронов n_S^0 , неравновесных электронов Δn_S и неравновесных дырок Δp_S в КЯ. Задача теории — определить эти величины.

В условиях равновесия $\Delta n_S = \Delta p_S = 0$, а

$$n_S^0 = \frac{m_e T}{\pi \hbar^2} \ln \left[1 + \exp \left(\frac{\zeta + \Delta E_c - E_0^e - \delta_0}{T} \right) \right]. \quad (2)$$

Здесь ζ — положение уровня Ферми в ШП [при полной ионизации доноров $\zeta = T \ln(N_D/N_c)$, N_c — эффективная плотность состояний], ΔE_c — глубина КЯ для электронов (величина разрыва в зоне проводимости), E_0^e — энергия электронного уровня в КЯ. Для точного расчета E_0^e необходимо, вообще говоря, совместное решение уравнений Шредингера и Пуассона в области КЯ (см., например, [7]). Однако в большинстве случаев можно пренебречь изменением формы КЯ под действием самосогласованного электростатического

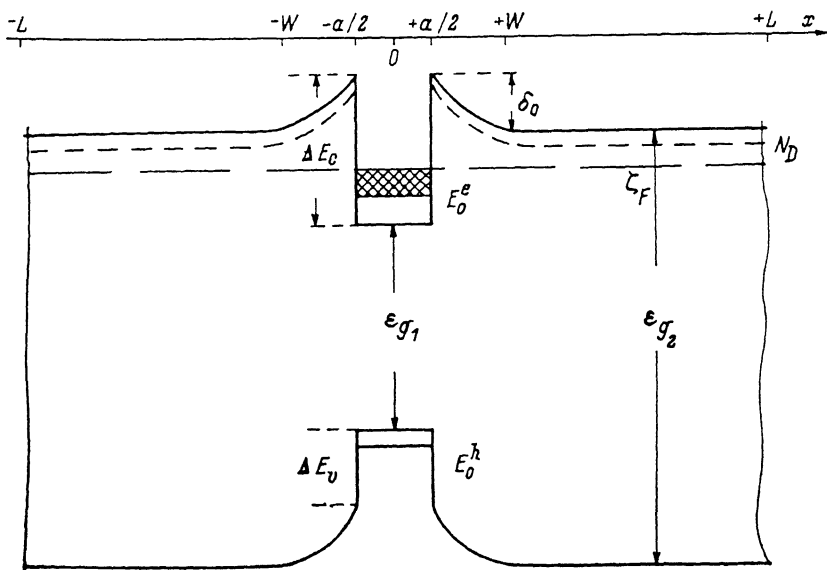


Рис. 1. Энергетическая диаграмма системы.

потенциала и ограничиться приближенным вычислением E_0^e , считая КЯ простой прямоугольной ямой шириной a и глубиной ΔE_c .

При $\Delta n_S = \Delta p_S = 0$ (1) и (2) позволяют определить равновесные значения n_S^0 и δ_0 . Результаты подобных вычислений приведены на рис. 2, где показана зависимость δ_0 (для $m_e = 0.07m_0$, что соответствует электронам в GaAs) от концентрации легирующей примеси N_D^0 при различных энергиях связи уровня $\Delta E_{св}^e = \Delta E_c - E_0^e$.

В реальных экспериментах зачастую используются не структуры с одиночной КЯ типа приведенных на рис. 1, а многослойные структуры со многими КЯ. Если расстояние между КЯ меньше длины экранирования, то изгибы зон в системе будут практически отсутствовать [8]. Для таких структур все последующие выводы остаются справедливыми. Следует лишь полагать в них $\delta = 0$.

2. Основные уравнения. Рассмотрим теперь структуру с КЯ в условиях возбуждения, создающего неравновесные носители с концентрациями Δn и Δp в области ШП. Если его длина $2L$ значительно больше длины экранирования, то большая часть ШП квазинейтральна, т. е. $\Delta n = \Delta p$. Записывая ¹

¹ В [9] обсуждалась возможность такой записи и было показано, что, например, для невырожденного GaAs при 300 К $\gamma^{-1} = 2 \cdot 10^3$ см⁻²·с.

скорость рекомбинации в КЯ (на единицу площади) в виде $\gamma (n_S^0 + \Delta n_S) \Delta p_S$, получаем следующие уравнения баланса электронов и дырок в КЯ:

$$\frac{d\Delta n_S}{dt} = -\gamma (n_S^0 + \Delta n_S) \Delta p_S + 2 \frac{L}{\tau_{\downarrow}^e} \exp\left(-\frac{\delta}{T}\right) \Delta n(W) - \frac{\Delta n_S}{\tau_{\uparrow}^e}, \quad (3)$$

$$\frac{d\Delta p_S}{dt} = -\gamma (n_S^0 + \Delta n_S) \Delta p_S + 2 \frac{l}{\tau_{\downarrow}^h} \Delta p(W) - \frac{\Delta p_S}{\tau_{\uparrow}^h}. \quad (4)$$

Здесь τ_{\downarrow} — время захвата носителей в КЯ, вычислявшееся в [10, 11], τ_{\uparrow} — время теплового выброса из КЯ. Соотношение между τ_{\downarrow} и τ_{\uparrow} определяется из условия равенства потоков захвата и выброса между КЯ и квазинейтральной

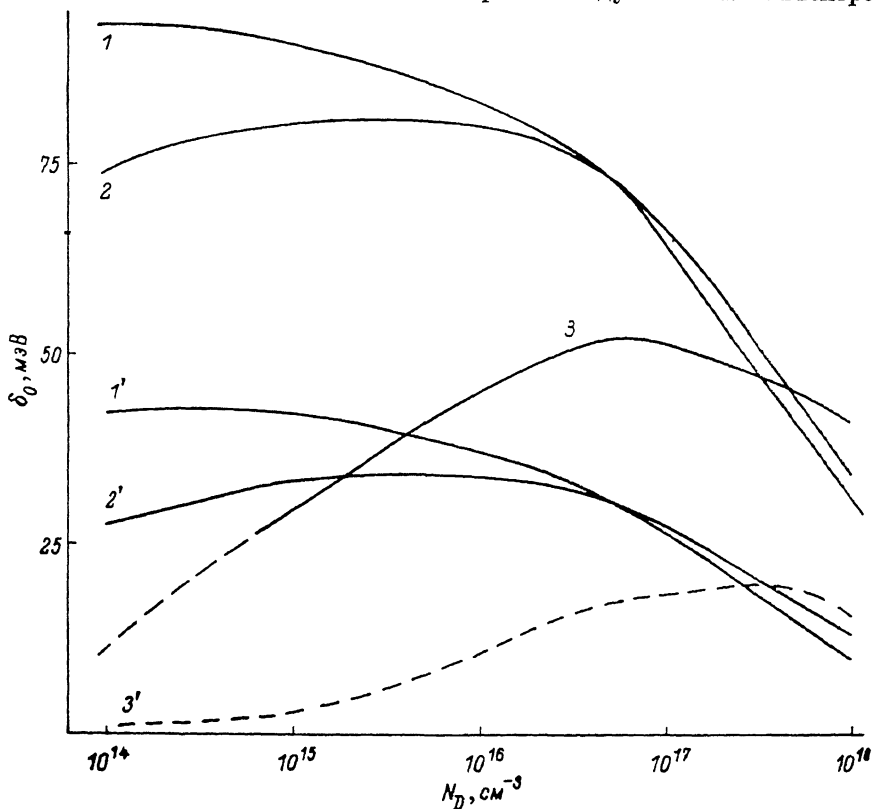


Рис. 2. Зависимость величины потенциального барьера от концентрации примеси N_D .

$E_{\text{св}}^e$, мэВ: 1—3 — 100, 1'—3' — 50. T , К: 1, 1' — 4.2, 2, 2' — 77, 3, 3' — 300.

областью ШП [т. е. двух последних членов в (3) и (4)] в условиях теплового равновесия. Для невырожденных носителей в КЯ оно имеет вид ²

$$\tau_{\uparrow}^e = \tau_{\downarrow}^e \frac{l_e}{2L} \exp\left(-\frac{E_{\text{св}}^e}{T}\right), \quad \tau_{\uparrow}^h = \tau_{\downarrow}^h \frac{l_h}{2L} \exp\left(-\frac{E_{\text{св}}^h + \delta}{T}\right),$$

где $l_e, l_h = \hbar (2\pi m_{e,h} T)^{-1/2}$ — эффективная длина порядка тепловой длины волны Де Бройля, представляющая собой отношение двумерной и трехмерной эффективных плотностей состояний. При наличии вырождения меняется l_e, l_h , а энергия активации $\tau_{\uparrow}^{e,h}$ уменьшается на величину энергии Ферми.

Наконец, для дырок в ШП имеем уравнение непрерывности

$$\frac{\partial \Delta p}{\partial t} = D \frac{\partial^2 \Delta p}{\partial x^2} - \frac{\Delta p}{\tau_p} + G \quad (5)$$

² Входящая сюда величина T , вообще говоря, представляет собой эффективную температуру электронов в КЯ, которая в условиях фотовозбуждения может отличаться от температуры решетки [12, 13].

(D — коэффициент диффузии в ШП, τ_v — время жизни в нем) с условием на границе квазинейтральной области $x=W$, описывающим захват в КЯ и обратный выброс из нее,

$$-\frac{\partial \Delta p}{\partial t} \Big|_{x=W} = -\frac{L}{\tau_{\downarrow}^h} \Delta p(W) + \frac{\Delta p_S}{2\tau_{\downarrow}^h}. \quad (5a)$$

Вид другого граничного условия при $x=L$ мало сказывается на окончательных результатах. Для определенности будем в качестве такого условия брать равенство нулю потока.

Уравнения (1), (3)—(5) представляют собой полную систему для определения неизвестных величин $\Delta n = \Delta p$, $\Delta n_S = \Delta p_S$ и δ . Ее решение и позволяет определить интенсивности рекомбинационного излучения из КЯ — I_{QW} и из ШП — I_V и зависимости этих величин от параметров системы, температуры и интенсивности возбуждения.

3. *Малая интенсивность возбуждения.* Начнем анализ системы (1), (3)—(5) со случая малой интенсивности возбуждения, соответствующей выполнению условий $\Delta n_S, \Delta p_S \ll n_S^0$. При этом рекомбинация в КЯ носит линейный характер и описывается временем жизни $\tau_{QW} = (\gamma n_S^0)^{-1}$, а высоту барьера δ можно считать равной своему равновесному значению δ_0 .

Для стационарного состояния

$$\Delta p(x) = G\tau_v \left[1 - \frac{\operatorname{ch}\left(\frac{L-x}{L_D}\right)}{\operatorname{ch}\frac{L}{L_D} + \frac{\tau_S}{\tau_v} \frac{L_D}{L} \operatorname{sh}\frac{L}{L_D}} \right], \quad (6)$$

где $\tau_S = \tau_{\downarrow}^h (\tau_{\uparrow}^h + \tau_{QW}) / \tau_{\uparrow}^h$ — эффективное время захвата в КЯ. Это дает для искомым интенсивностей I_{QW} и I_V

$$I_V = \frac{\beta_V}{\tau_v} 2 \int_0^L \Delta p(x) dx = \beta_V G (2L) \frac{1 + \left(\frac{\tau_S}{\tau_v} - 1\right) \frac{L_D}{L} \operatorname{th}\frac{L}{L_D}}{1 + \frac{\tau_S}{\tau_v} \frac{L_D}{L} \operatorname{th}\frac{L}{L_D}}, \quad (7)$$

$$I_{QW} = \frac{\beta_{QW}}{\tau_{QW}} \Delta p_S = \beta_{QW} \frac{2L}{\tau_S} \Delta p(W) = \beta_{QW} G (2L) \frac{\frac{L_D}{L} \operatorname{th}\frac{L}{L_D}}{1 + \frac{\tau_S}{\tau_v} \frac{L_D}{L} \operatorname{th}\frac{L}{L_D}}, \quad (8)$$

где β_{QW} и β_V — квантовый выход излучательной рекомбинации из КЯ и ШП. Отметим, что

$$\frac{I_V}{\beta_V} + \frac{I_{QW}}{\beta_{QW}} = 2LG.$$

Из (7) видно, что величина I_V остается конечной даже при очень быстром захвате в КЯ ($\tau_S \rightarrow 0$), поскольку уход носителей из ШП лимитируется диффузионным подводом к КЯ и в случае $L \ll L_D$, часто имеющем место в реальных структурах,

$$I_V \sim \frac{L^2}{D} \tau_v \equiv \frac{\tau_v}{\tau_{\text{дифф}}}.$$

В этом же случае отношение интенсивностей люминесценции КЯ и ШП, согласно (7), (8),

$$\frac{I_{QW}}{I_V} = \frac{\beta_{QW}}{\beta_V} \frac{\tau_v}{\tau_{\text{дифф}} + \tau_S} = \frac{\beta_{QW}}{\beta_V} \frac{\tau_v}{\tau_{\text{дифф}} + \frac{\tau_{\downarrow}^h (\tau_{\uparrow}^h + \tau_{QW})}{\tau_{\uparrow}^h}}. \quad (9)$$

Из всех характерных времен, входящих в (9), наиболее сильно зависит от температуры время теплового выброса из КЯ

$$\tau_{\uparrow}^h \sim \exp\left(\frac{E_{\text{св}}^h + \delta_0}{T}\right),$$

поэтому при низких температурах, когда $\tau_{\uparrow}^h \gg \tau_{QW}$, $I_{QW}/I_V \approx \text{const}(T)$.

В области высоких температур поведение I_{QW}/I_V определяется величиной $\tau_{\downarrow}^h/\tau_{\text{дифф}}$. Если во всей этой области $\tau_{\downarrow}^h/\tau_{\text{дифф}} \ll \tau_{\uparrow}^h/\tau_{QW}$, то отношение интенсивностей по-прежнему слабо зависит от температуры, если же $\tau_{\downarrow}^h/\tau_{\text{дифф}} \gg \tau_{\uparrow}^h/\tau_{QW}$, то $I_{QW}/I_V \sim \exp[(E_{\text{св}}^h + \delta_0)/T]$.

На этой зависимости может сказываться изменение с температурой других параметров в (9). В соответствии с [10] при температурах ниже энергии оптического фона время захвата носителей в КЯ $\tau_{\downarrow} \approx \frac{\tau_{\text{ph}}}{S_n} L$, где τ_{ph} — обычное время испускания оптического фона с энергией порядка глубины КЯ V_0 , S — прозрачность КЯ. Для нерезонансной КЯ [10] $S \sim T/V_0$, поэтому τ_{\downarrow} увеличивается с понижением температуры. Кроме того, от температуры могут зависеть время жизни в ШП τ_V и коэффициент диффузии D , причем эти зависимости резко усиливаются при наличии неоднородностей в ШП [14]. Наконец, температурно зависящими могут оказаться значения квантового выхода $\beta_{V, QW}$.³ Все это может привести к усложнению температурной зависимости I_{QW}/I_V и в определенных случаях сделать ее немонотонной.

4. *Кинетика люминесценции.* Рассчитать кинетику люминесценции путем решения нестационарной системы (1), (3)—(5) в общем виде не удастся даже в пределе малых интенсивностей. Однако существуют по меньшей мере два случая, допускающих точное решение задачи.

Первый из них — случай низких температур, когда процессы теплового выброса из КЯ подавлены (τ_{\uparrow}^h очень велико). При этом наша задача эквивалентна задаче о кинетике поверхностной рекомбинации (см., например, [15, с. 341]), причем роль скорости поверхностной рекомбинации играет величина L/τ_{\downarrow}^h . Характерное время релаксации в этой задаче t_V , описывающее в нашем случае время установления стационарной концентрации в ШП, определяется как $t_V^{-1} \approx \tau_V^{-1} + \tau^{-1}$, где τ — наибольшая из двух величин: времени диффузии носителей в КЯ $\tau_{\text{дифф}} \approx (2/\pi^2) L/D$ и времени захвата в КЯ τ_{\downarrow}^h . Время установления стационарной концентрации в КЯ при этом определяется наибольшим из времен t_V и τ_{QW} .

Другой случай, допускающий точное решение, — случай относительно слабого захвата в КЯ, соответствующий условию $\tau_{\downarrow}^h (\tau_{\uparrow}^h + \tau_{QW}) \tau_V \tau_{\downarrow}^h \gg 1$. [В этом случае, согласно (9), интенсивность люминесценции КЯ существенно меньше интенсивности люминесценции ШП]. При этом «эффективная поверхностная рекомбинация» невелика и распределение неравновесных дырок по ШП мало отличается от однородного. Интегрируя (5) по x и вводя поверхностную концентрацию неравновесных дырок в ШП $P = \int_0^L \Delta p(x) dx$, получим из (4),

(5) систему двух обыкновенных линейных дифференциальных уравнений. Из соответствующего секулярного уравнения определим характерные времена релаксационных процессов

$$t_{1,2}^{-1} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_V} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}^h} + \frac{1}{\tau_{\uparrow}^h} + \frac{1}{\tau_{QW}} \right) \pm \sqrt{\frac{1}{4} \left(\frac{1}{\tau_V} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}^h} - \frac{1}{\tau_{QW}} - \frac{1}{\tau_{\uparrow}^h} \right)^2 + \frac{1}{\tau_{\uparrow}^h \tau_{\downarrow}^h}}. \quad (10)$$

³ Величину β_{QW} и ее температурную зависимость можно определить независимо, возбуждая люминесценцию светом с $\hbar\omega < \varepsilon_{g_2}$, рождающим неравновесные носители только внутри КЯ. Подобные опыты, проведенные в [8], показали наличие резкой зависимости $\beta_{QW}(T)$. Напротив, экспериментальные свидетельствам независимости $\beta_{QW, V}$ от T может служить постоянство полной интенсивности $I_{QW} + I_V$ при изменении температуры.

Естественно, что в этой ситуации в (10) не вошел коэффициент диффузии D , так как «узким» местом является не диффузионная доставка, а захват носителей в КЯ. Если в (10) пренебречь членами с τ_{\downarrow}^h , то получим те же характерные времена, что и в первом случае (при дополнительном условии $\tau^h/\tau_{\text{дифф}} \gg 1$): $t_1 = \tau_{QW}$, $t_2 = (1/t_V + 1/\tau_{\downarrow}^h)^{-1}$.

Поскольку $\tau_{\downarrow}^h \sim L$ и резко меняется с изменением ширины КЯ a [10], величина t_2 даже для КЯ из одного и того же вещества может меняться в широких пределах — от τ_V , имеющего, как правило, порядок 10^{-9} с, до минимально возможного τ_{\downarrow}^h , определяемого временем испускания оптического фонона $\tau_{\text{ph}} \sim 10^{-13}$ с. Именно такой широкий разброс времен существует в экспериментальных работах по низкотемпературной люминесценции структур с КЯ [1, 3, 5, 16].

5. *Большая интенсивность возбуждения.* При $\Delta n_S, \Delta p_S \gg n_S^0$ система (1), (3)—(5) становится нелинейной, резко усложняется и аналитического решения не допускает. Мы упростим задачу, опираясь на то обстоятельство, что неравновесные носители должны заэкранировать потенциал δ , уменьшая его величину до значений порядка T . В соответствии с (1) это означает, что $0 < \Delta p_S - \Delta n_S < n_S^0$, т. е. с ростом интенсивности возбуждения G увеличиваются $\Delta n_S, \Delta p_S$ и остается ограниченной их разность. Это позволяет при больших G в (3)—(5) [но, разумеется, не в (1)] полагать $\Delta n_S \simeq \Delta p_S$. В результате для стационарного случая в приближении $\tau_{\downarrow}^h \gg \tau_{\text{дифф}}$ получим систему

$$\Delta n \xi - \frac{\Delta n_S'}{l_e} \exp\left(-\frac{E_{GS}^-}{T}\right) = \frac{\gamma (\Delta n_S)^2}{2L} \tau_{\downarrow}^e, \quad (11)$$

$$\Delta n - \xi \frac{\Delta n_S^-}{l_h} \exp\left(-\frac{E_{GS}^h}{T}\right) = \frac{\gamma (\Delta n_S)^2}{2L} \tau_{\downarrow}^h, \quad (12)$$

$$G - \frac{\Delta n}{\tau_V} = \frac{\gamma (\Delta n_S)^2}{2L} \quad (13)$$

для трех неизвестных — $\Delta n \simeq \Delta p$, $\Delta n_S \simeq \Delta p_S$ и $\xi = \exp(-\delta/T)$. При необходимости более точного раздельного определения Δn_S и Δp_S это можно сделать с помощью (1), используя величину δ , полученную из решения (11)—(13).

Не останавливаясь на подробном анализе системы (11)—(13), заметим лишь, что для предельно больших интенсивностей ($G \rightarrow \infty$)

$$\frac{I_{QW}}{I_V} = \frac{\beta_{QW}}{\beta_V} \frac{\tau_{\downarrow}^v}{\tau_{\downarrow}^h}, \quad (14)$$

что совпадает с (9) при низких температурах. В отличие от случая малых интенсивностей, где такой ответ существовал лишь при определенных соотношениях между параметрами структуры, здесь он носит универсальный характер. Режим с активационной температурной зависимостью I_{QW}/I_V , соответствующий квазиравновесию дырок между КЯ и ШП, здесь не реализуется. Это объясняется тем, что основным процессом ухода дырок из КЯ при больших интенсивностях является рекомбинация, а не обратный тепловой выброс, поскольку первый процесс пропорционален $(\Delta p_S)^2$, а второй — Δp_S .

В заключение заметим, что наличие потенциального барьера δ качественно не изменяет основных полученных результатов, увеличивая лишь эффективную глубину КЯ для неосновных носителей в режиме малых интенсивностей возбуждения. Это связано с тем, что при малых интенсивностях люминесценция определяется только неравновесными неосновными носителями, которым для захвата в КЯ не надо преодолевать потенциальный барьер, а при больших интенсивностях, когда важен захват и основных носителей, барьер исчезает вследствие экранировки неосновными носителями.

Авторы благодарят Л. П. Никитина и М. Э. Жингарева за полезные обсуждения.

- [1] Göbel E. O., Jung H., Kuhl J., Ploog K. — *Phys. Rev. Lett.*, 1983, v. 51, N 17, p. 1588—1591.
- [2] Sun Y. L., Fischer R., Klein M. V., Morkoc H., Mendez E. E. — *Thin. Sol. Films*, 1984, v. 112, p. 213—218.
- [3] Christen J., Bimberg D., Steckenborn A., Weimann G. — *Appl. Phys. Lett.*, 1984, v. 44, N 1, p. 84—86.
- [4] Le H. Q., Lax B., Maki P. A., Palmateer S. C., Eastman L. F. — *J. Appl. Phys.*, 1984, v. 55, N 12, p. 4367—4372.
- [5] Miyoshi T., Aoyagi Y., Segawa Y., Namba S., Nunoshita M. — *Japan. J. Appl. Phys.* 1985, v. 24, N 1, p. L53—L55.
- [6] Delalande C., Voos M. — *Surf. Sci.*, 1986, v. 174, N 1-3, p. 111—119.
- [7] Bastard G., Mendez E. E., Chang L. L., Esaki L. — *J. Vac. Sci. Techn.*, 1982, v. 21, p. 531—532.
- [8] Вуль А. Я., Кечиянц А. М., Шаронова Л. В., Шик А. Я., Шмарцев Ю. В. Об энергетической диаграмме тонкого гетероперехода. — *ФТП*, 1976, т. 10, в. 9, с. 1790—1791.
- [9] Халфин В. Б., Гарбузов Д. З., Красовский В. В. Времена собственных излучательных переходов в квантово-размерных гетероструктурах. — *ФТП*, 1986, т. 20, в. 10, с. 1816—1822.
- [10] Козырев С. В., Шик А. Я. Захват носителей в квантовые ямы гетероструктур. — *ФТП*, 1985, т. 19, в. 9, с. 1667—1670.
- [11] Brum S. A., Bastard G. — *Phys. Rev. B*, 1986, v. 33, N 2, p. 1420—1423.
- [12] Shah J. — *IEEE J. Quant. Electron.*, 1986, v. 22, N 9, p. 1728—1743.
- [13] Магарилл Л. И., Романов А. А., Шик А. Я. Межзонная люминесценция квантовых гетероструктур. — *ФТП*, 1987, т. 21, в. 3, с. 404—410.
- [14] Шик А. Я. Диффузия неравновесных носителей в неоднородных полупроводниках. — *ФТП*, 1979, т. 13, в. 9, с. 1827—1828.
- [15] Бонч-Бруевич В. Л., Калашников С. Г. *Физика полупроводников. М.*, 1977. 672 с.
- [16] Tanaka S. — *J. Lumin.*, 1984, v. 31/32, p. 400—402.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Получена 17.02.1987
Принята к печати 16.06.1987