

Неравновесная заселенность носителей в структурах с глубокими квантовыми точками InGaN

© Д.С. Сизов[¶], Е.Е. Заварин, Н.Н. Леденцов, В.В. Лундин, Ю.Г. Мусихин, В.С. Сизов, Р.А. Сурис, А.Ф. Цацульников

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

(Получена 5 июня 2006 г. Принята к печати 19 июня 2006 г.)

На примере квантовых точек InGaN теоретически и экспериментально исследовались электронно-оптические свойства ансамблей квантовых точек с различной энергией активации с уровня основного состояния в область непрерывного спектра. Показано, что в зависимости от величины этой энергии возможна как квазиравновесная статистика носителей на уровнях квантовых точек, так и неравновесная статистика при комнатной температуре. В последнем случае положение максимума излучения определяется величиной демаркационного перехода: квантовые точки с энергией перехода выше этой величины обладают квазиравновесной заселенностью носителей, а квантовые точки с энергией ниже этой величины — неравновесной. В теоретическом рассмотрении использовалась модель, основанная на скоростных уравнениях. Ключевыми параметрами, определяющими статистику, являются параметры термического выброса носителей, экспоненциально зависящие от энергии активации. В работе экспериментально показано, что использование стимулированного фазового распада позволяет существенно повысить энергию активации. При этом время термической активации оказывается больше времени рекомбинации электронно-дырочной пары, что подавляет перераспределение носителей между квантовыми точками и приводит к неравновесной заселенности. Подробно исследовано влияние неравновесной заселенности на люминесцентные свойства структур с квантовыми точками.

PACS: 73.21.La, 73.67.Kv, 78.60.Fi, 78.68.Hc, 81.07.Ta

1. Введение

За последнее десятилетие наблюдается большой прогресс в технологии самоорганизующихся полупроводниковых квантовых точек (КТ) [1]. КТ реализованы в различных полупроводниковых системах и уже используются при коммерческом выпуске светоизлучающих приборов, что позволяет не только усовершенствовать их характеристики, но и создавать приборы нового поколения. К примеру, использование квантовых точек InGaAs/GaAs в активной области лазеров с длиной волны излучения 1.3 мкм для оптоволоконных коммуникаций позволяет существенно улучшить температурную стабильность характеристик и снизить пороговую плотность тока по отношению к аналогам с квантовыми ямами (КЯ) в активной области [2]. С использованием КТ стало возможным создание источников одиночных фотонов [3], в том числе и в системе III–N [4]. Кроме того, использование КТ в системе нитридов элементов III группы позволило создать светодиоды и лазеры ультрафиолетового и видимого диапазона с высокой квантовой эффективностью, несмотря на большое содержание дефектов, являющихся центрами безызлучательной рекомбинации [5,6]. Для всех перечисленных приложений важно уметь управлять такими параметрами КТ, как энергия активации носителей в область непрерывного спектра, времена захвата–выброса носителей [7] и времена рекомбинации носителей в КТ.

Для описания электронно-оптических свойств квантовых точек в работе [8] была предложена модель, рассматривающая процессы захвата носителей из области непрерывного спектра на уровни КТ, излучательную рекомбинацию на уровнях КТ, выброс носителей в область непрерывного спектра и транспорт в этой области. Нами показано [9], что для системы InGaAs/GaAs эта модель согласуется с экспериментальными данными по фотолюминесценции (ФЛ) структур, содержащих слои квантовых точек, а также с экспериментальными характеристиками лазерных структур с КТ в активной области. В частности, показано влияние локализации носителей на повышение квантового выхода за счет подавления транспорта носителей к дефектам. Однако в работе [9] предполагалось квазиравновесное распределение носителей как в случае низкого уровня накачки, так и в случае накачек, при которых реализуется лазерная генерация. Из многочисленных экспериментов следует, что в полупроводниковой системе арсенидов элементов III группы при комнатной температуре время выброса носителя с основного состояния КТ в область непрерывного спектра, соответствующую инфинитному движению носителей, оказывается меньше времени рекомбинации электронно-дырочной пары на основных состояниях КТ. Это означает, что при данных условиях распределение носителей квазиравновесно даже при высоких уровнях накачки.

В связи с тем что технология нитридов элементов III группы и особенно получение самоорганизующихся КТ в этой полупроводниковой системе развивается

[¶] E-mail: Dsizov@mail.ioffe.ru

сравнительно недавно, информации о фундаментальных свойствах этих полупроводниковых соединений и, в частности, о механизмах формирования и свойствах КТ в них значительно меньше.

На сегодняшний день широко используется формирование КТ InGaN в результате фазового распада твердого раствора InGaN, который происходит при выращивании тонких слоев InGaN (толщиной 1.4–8 нм) [10,11] между обкладками более широкозонного материала (GaN, AlGaIn) или InGaN с меньшим средним содержанием In [12,13]. В результате этого образуются более узкозонные области с повышенным содержанием InN (около 30%) с латеральным размером 2–5 нм, которые и играют роль КТ. Поскольку фазовый распад не полный, барьеры между КТ также содержат In, т.е. они ниже, чем зоны в GaN. Таким образом, остальная часть этого слоя InGaN может рассматриваться как КЯ, в которую помещены КТ (так называемая остаточная КЯ) с непрерывным спектром. Однако информации о составе барьеров между КТ и о зависимости этого состава от режимов выращивания немного. Это усложняет исследование энергии активации с основного состояния КТ в область непрерывного спектра, в котором возможно движение носителей вдоль слоя КТ.

Кроме того, гетероструктуры GaN со структурой вюрцита и с направлением роста вдоль полярной оси (0001) характеризуются сильными встроенными пьезо- и пирополями, что приводит к заметному влиянию квантово-размерного эффекта Штарка на излучательную рекомбинацию. Известно также, что ансамбли квантовых точек InGaN характеризуются сильным неоднородным уширением электронного спектра.

Эксперименты с временным разрешением позволяют определить времена рекомбинации электронно-дырочной пары на основном состоянии квантовой точки, которые оказываются порядка 1 нс [14]. Эксперименты с возбуждением энергией фотона меньше ширины запрещенной зоны GaN (подбарьерное возбуждение) и резонансным возбуждением на уровне квантовых точек показывают, что среднее значение энергии активации электронов и дырок с основного состояния квантовых точек может составлять как минимум несколько десятков мэВ [14]. Однако есть данные, что энергия активации может быть существенно больше 100 мэВ при соответствующих режимах выращивания структуры [13,15,16].

Авторам известно сравнительно мало данных, касающихся прямого определения времен захвата носителей на уровне квантовых точек, релаксации между уровнями в квантовой точке, а также выброса носителей с уровня квантовых точек в область непрерывного спектра. Как указывалось выше, эти данные важны для разработки различных приборов. Знание параметров захвата и выброса носителей, а также умение получать структуры с заданными параметрами важны как при разработке приборов с инжекцией носителей через область непрерывного спектра (лазеры, светодиоды), так и приборов с туннельной инжекцией (источники одиночных фотонов).

В настоящей работе теоретически и экспериментально исследовалась кинетика перераспределения носителей между КТ и ее влияние на электронно-оптические свойства КТ с различной энергией активации. Статья построена следующим образом. В разд. 2 дается беглое описание исследованных структур. В разд. 3 подробно обсуждается модель, описывающая электронно-оптические свойства структур с квантовыми точками в случае неравновесной статистики носителей на уровнях квантовых точек, что актуально при достаточно большой энергии активации носителей с уровней основных состояний квантовых точек в область непрерывного спектра. Эта ситуация, как будет показано, может быть реализована при соответствующих режимах роста в КТ InGaN даже при комнатной температуре. В разд. 4 обсуждается влияние легирования на эти свойства. В разд. 5 мы описываем детали технологии получения КТ и методик экспериментального исследования. Рассказывается о методе управления неоднородностью состава в слоях КТ InGaN, а следовательно, энергией активации носителей в область непрерывного спектра. В разд. 6 обсуждаются экспериментальные данные, касающиеся исследования неоднородности состава в слоях КТ InGaN. В разд. 7 показаны результаты исследования времени выброса носителей из КТ, полученных при различной величине неоднородностей. В разд. 8 представлены экспериментальные результаты фото- и электролюминесценции и обсуждается влияние значения энергии активации и времени выброса на излучательные свойства КТ.

2. Исследованные структуры

Мы исследовали светодиодные структуры с квантовыми точками InGaN в активной области, а также структуры без $p-n$ -перехода, содержащие квантовые точки InGaN. Среднее содержание InN в слоях КТ, по данным рентгеновской дифрактометрии, было около 10%. Поверхностная концентрация КТ равнялась $\sim 10^{12} \text{ см}^{-2}$. Активная область состояла из пяти слоев квантовых точек InGaN, разделенных барьерами GaN. Толщины слоев КТ составляли 3 нм, а толщины разделительных барьеров — 7 нм. Над активной областью выращивался слой $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ толщиной 20 нм для предотвращения утечки электронов в p -слой в светодиодных структурах, а в структурах без $p-n$ -перехода — для предотвращения утечки носителей на поверхность. В светодиодных структурах далее выращивался слой GaN:Mg p -типа толщиной 200 нм, а в структурах без $p-n$ -перехода — тонкий (10 нм) прикрывающий слой GaN. На рис. 1, а схематически показано взаимное расположение слоев в светодиодной структуре и их толщины.

3. Статистическая модель поведения носителей в сильно неоднородном массиве КТ

Для описания электронно-оптических свойств полупроводниковых структур с квантовыми точками в работах [8,17] была разработана модель, основанная на статистике носителей Шокли–Рида [18]. Рассмотрим некоторые важные следствия модели, в частности, в применении к квантовым точкам InGaN. В рамках модели рассматриваются дискретные уровни квантовых точек, между которыми осуществляется обмен носителями посредством транспорта через область непрерывного спектра. Эту область далее будем называть резервуаром. Роль резервуара может играть матрица, в которой заключены квантовые точки. Во многих случаях квантовые точки оказываются помещены в квантовую яму, которая в свою очередь помещена в матрицу. Тогда, если энергия активации с основного состояния КЯ превышает значение температуры (будем измерять температуру T в единицах энергии), выброс носителей в эту КЯ более вероятен, чем в матрицу, и концентрация носителей, делокализованных в КЯ, больше концентрации носителей, делокализованных в матрице. В этом случае транспорт происходит преимущественно вдоль этой КЯ. В системе квантовых точек InAs в качестве такой КЯ может выступать смачивающий слой (также КЯ), который образуется при зарастивании слоя квантовых точек тонким (~ 10 нм) слоем InGaAs [19].

Schematic of LED structure with InGaN QDs in active area

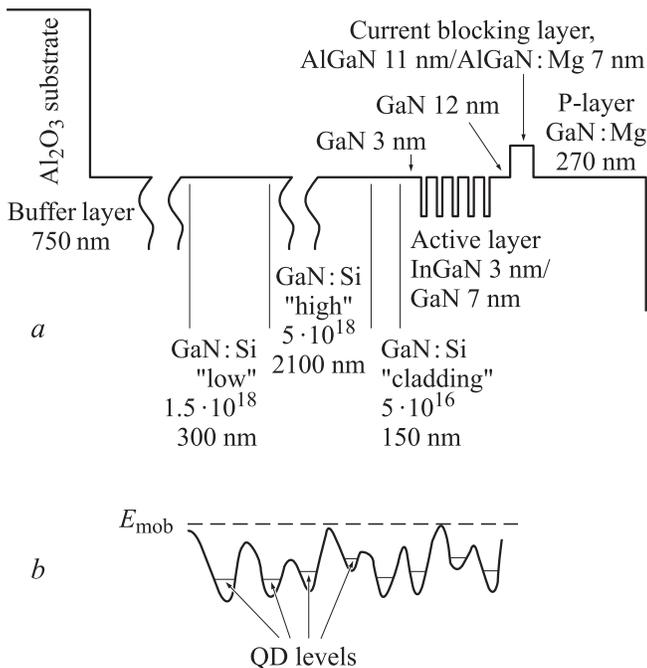


Рис. 1. *a* — схема дизайна светодиодной структуры, *b* — распределение потенциала в латеральном направлении и положение уровней КТ.

Как говорилось во Введении, КТ InGaN также могут рассматриваться как КТ в КЯ. Энергия активации с основного состояния такой КЯ в матрицу GaN, как правило, больше 100 мэВ. Это означает, что вероятность выброса в матрицу столь мала, что транспорт идет преимущественно вдоль КЯ. В этом случае КЯ рассматривается в качестве резервуара. Схематически взаимное расположение уровней в КТ, а также спектра инфинитного движения представлено на рис. 1, *b*.

Будем рассматривать ансамбль квантовых точек, общее количество которых равняется Λ_{QD} . Предполагается, что электроны и дырки, обладающие энергией ниже уровня края непрерывного спектра резервуара ($E_{\text{mob}}^{e,h}$), локализованы в пространстве на уровнях квантовых точек, а в противном случае они делокализованы и могут двигаться на расстояния, много большие, чем расстояние между квантовыми точками. Из каждой квантовой точки возможен выброс носителей в резервуар. Вероятность выброса экспоненциально убывает с увеличением отношения энергии активации к температуре. Будем также полагать, что процессы релаксации в резервуаре быстрее и, вне зависимости от типа накачки, делокализованные носители распределены квазиравновесно на уровнях резервуара и, следовательно, преимущественно заселяют нижние уровни („дно“ резервуара), которыми являются дно зоны проводимости и потолок валентной зоны (если резервуаром является объемный материал), или же нижние энергетические уровни квантовой ямы (если она является резервуаром). В силу неоднородности КТ по размерам и составу спектр основных электронно-дырочных переходов в ансамбле КТ уширен, и величина этого неоднородного уширения в системе КТ InGaN достигает примерно 100 мэВ.

Следующие скоростные уравнения могут быть записаны для электронной и дырочной заселенности на уровне некоторой квантовой точки с номером i :

$$\frac{df_e^i}{dt} = \gamma_n^i [n(1 - f_e^i) - n_1^i f_e^i] - \frac{1}{\tau_r^i} f_e^i f_h^i, \quad (1a)$$

$$\frac{df_h^i}{dt} = \gamma_p^i [p(1 - f_h^i) - p_1^i f_h^i] - \frac{1}{\tau_r^i} f_e^i f_h^i. \quad (1б)$$

Здесь f_e^i, f_h^i — заселенности электронного и дырочного основных состояний квантовой точки, n и p — поверхностные концентрации электронов и дырок в резервуаре, τ_r^i — время излучательной рекомбинации электронно-дырочной пары, $\gamma_{n,p}^i$ — коэффициенты захвата электронов и дырок на уровне квантовой точки из резервуара. Коэффициенты захвата и времена излучательной рекомбинации будем полагать одинаковыми для всех КТ ансамбля. Параметры выброса определяются как

$$n_1^i = N_c \exp\left(-\frac{\Delta E_n^i}{T}\right) \quad \text{и} \quad p_1^i = N_v \exp\left(-\frac{\Delta E_p^i}{T}\right),$$

где $N_{c,v}$ — эффективная плотность состояний электронов и дырок в резервуаре, $\Delta E_{n,p}$ — энергии активации

электронов и дырок, т.е. энергетический зазор между основным состоянием квантовой точки и краем непрерывного спектра (см. рис. 1). Положение энергетического уровня в КТ удобно отсчитывать от дна остаточной КЯ. E_{mob} по сути является энергией основного перехода в КЯ, поэтому удобно ввести относительную величину основного перехода в КТ:

$$E^i = E_{\text{grQD}}^i - E_{\text{mob}}, \quad (2)$$

где E_{grQD}^i — энергия основного электронно-дырочного перехода в КТ. Согласно определению, E^i всегда отрицательна. Будем считать в первом приближении, что спектр электронных состояний и спектр дырочных состояний квантовых точек симметричны с точностью до некоего коэффициента пропорциональности β , описывающего отношение разрывов зон на гетерогранице InGaN/GaN, которое равняется $\beta/(1-\beta)$. Тогда $\Delta E_n^i = -\beta E^i$, а $\Delta E_p^i = -(1-\beta)E^i$.

Энергия активации основного состояния будет также зависеть от наличия или отсутствия захваченной частицы в КТ благодаря влиянию кулоновских сил. Это приводит к изменению энергии активации на ~ 20 мэВ, что значительно меньше общей энергии активации [15], но сравнимо с величиной температуры в энергетических единицах. Однако это не должно существенно сказываться на тех явлениях, которые являются предметом исследования в настоящей работе. Действительно, эта поправка в энергии активации главным образом сказывается на времени выброса носителей из КТ. При исследовании времен выброса мы делаем лишь приблизительную оценку. Что касается спектров излучения, то при квазиравновесной статистике изменение времени выброса даже в e раз не имеет значения. При неравновесной статистике время выброса оказывается больше в равное число раз для всех КТ, участвующих в рекомбинации. В уравнениях (1) влияние этого фактора может быть сведено к сравнимому с единицей поправочному коэффициенту для времени излучательной рекомбинации τ_r^i .

Сначала мы ограничиваемся рассмотрением только основного состояния квантовой точки. В общем случае имеются и возбужденные состояния, тогда имеет смысл рассматривать захват на возбужденные состояния, а также выброс с них. При этом также должна рассматриваться релаксация (возможно, каскадная, через другие возбужденные состояния) на основное состояние и активация с основного состояния на верхнее возбужденное. Однако в количественном рассмотрении мы ограничимся случаем, когда релаксационные процессы быстрые, а накачка достаточно слабая. Благодаря тому что расстояние между основным и первым возбужденным состоянием обычно большие значения температуры в энергетических единицах [14], в этих условиях лишь заселенность основного состояния значительна, а возбужденные состояния заселены слабо. Тогда можно показать, что выражения для таких каскадных процессов

сводятся к (1). Для случая заселенностей, близких к 1, мы ограничимся качественным рассмотрением.

В стационарном случае левая часть уравнений (1) обратится в нуль. Удобно измерять площадь в единицах $\gamma_n \tau_r$,¹ а время в единицах τ_r , тогда система (1а, б) преобразуется в следующую:

$$0 = \tilde{n}(1 - f_e^i) - \tilde{n}_1^i f_e^i - f_e^i f_h^i, \quad (3a)$$

$$0 = \alpha [\tilde{p}(1 - f_h^i) - \tilde{p}_1^i f_h^i] - f_e^i f_h^i, \quad (3б)$$

где $\alpha = \gamma_n/\gamma_h$. Тогда величины \tilde{n}_1^i и \tilde{p}_1^i выражаются аналогично n_1^i и p_1^i , но предэкспоненциальные множители будут равны $\tilde{N}_c = N_c(\gamma_n \tau_r)$ и $\tilde{N}_v = N_v(\gamma_n \tau_r \alpha)$. Еще одно уравнение учитывает зарядовую нейтральность всей системы, включая резервуар:²

$$\frac{1}{S} \sum_{i=1}^{\Lambda_{\text{QD}}} [f_h^i - f_e^i] + \tilde{p} - \tilde{n} = \tilde{N}_0. \quad (4)$$

Здесь суммирование ведется по всем КТ ансамбля, а S — площадь, которую занимает ансамбль. N_0 — равновесный заряд в системе с КТ, который может возникнуть в случае наличия преднамеренного или фонового легирования, о чем будет подробнее говориться в следующем разделе (в уравнении (4) в качестве этой величины выступает \tilde{N}_0 , измеряющееся в соответственных безразмерных единицах). В случае достаточно больших значений полного количества КТ в ансамбле Λ_{QD} , когда уровни электронного спектра ансамбля КТ становятся столь близки по энергетической шкале, что из-за их однородного уширения они перекрываются друг с другом, или в случае, если отдельные дискретные уровни экспериментально не разрешаются, можно перейти к интегрированию:

$$\tilde{N}_{s\text{QD}} \int_{-\infty}^0 \rho(E) [f_h(E) - f_e(E)] dE + \tilde{p} - \tilde{n} = \tilde{N}_0. \quad (5)$$

Здесь $N_{s\text{QD}}$ — поверхностная плотность КТ, которая в (5) измеряется в безразмерных единицах площади. В силу неоднородного уширения спектра состояний в ансамбле КТ удобно ввести $\rho(E)$ — функцию распределения КТ по энергиям электронно-дырочного перехода, которая в данном случае выражается через E . Мы будем полагать, что эта функция имеет максимум конечной ширины, что справедливо для большинства систем с массивами КТ, обладающими неоднородностью по составу и(или) размерам КТ. Важно отметить, что здесь идет речь не об уширении спектра отдельно электронных состояний и отдельно дырочных состояний,

¹ Поскольку захват происходит из двумерного непрерывного спектра состояний остаточной КЯ, параметр захвата γ_n измеряется в $\text{см}^2/\text{с}$.

² В общем случае, при малых заселенностях возможно некоторое отклонение от зарядовой нейтральности [20], но в настоящей работе мы не учитываем этот фактор.

а о распределении КТ по энергии основного электронно-дырочного перехода внутри каждой из этих КТ. Когда мы говорим о функциях заселенности $f_{e,h}(E)$, мы также имеем в виду заселенности электронов и дырок на уровнях КТ с соответствующей энергией перехода $E_{grQD} = E + E_{grQW}$, как следует из (2). Результаты могут различаться в зависимости от того, какой функцией аппроксимируется $\rho(E)$ [7]. Как это будет показано далее, ситуация сильно зависит от формы низкоэнергетического хвоста функции $\rho(E)$ при малых накачках и малых температурах, когда заселены преимущественно глубокие состояния.

Плотность той части тока, которая идет на излучательную рекомбинацию, есть

$$J_r = \frac{e}{S\tau_r} \sum_i f_h^i f_e^i \quad (6)$$

и при достаточно большом числе КТ в ансамбле можно опять перейти к интегрированию:

$$J_r = \frac{e}{\tau_r} N_{sQD} \int_{-\infty}^0 \rho(E) f_h(E) f_e(E) dE, \quad (7)$$

где e — заряд электрона.

При заданном рекомбинационном токе система уравнений (3), (4), (6) описывает заселенности локализованных и делокализованных носителей в массиве КТ. Зная заселенности на уровнях квантовых точек, можно получить выражение для спектра спонтанной рекомбинации:

$$R_{sp}(E) = \rho(E) f_h(E) f_e(E). \quad (8)$$

В данной работе мы рассматриваем массивы КТ с неоднородным уширением, сравнимым со средней величиной энергии активации в область непрерывного спектра, а также с температурой. В качестве иллюстрации рассмотрим массив КТ с $\rho(E)$ в виде функции Гаусса, которая обычно используется для описания неоднородного уширения спектров электронно-дырочных переходов:

$$\rho(E) = \frac{2}{\sigma\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{(E - E_0)^2}{\sigma^2}\right),$$

причем $\sigma = 3T$, а $E_0 = -5T$. Величина $\tilde{N}_{c,v}$ выбирается такой, чтобы она была на порядок больше \tilde{N}_{sQD} . Как и для функции заселенности, в качестве аргумента функции распределения здесь выступает вспомогательная величина, определенная в (2). Согласно (2), если определять ρ в зависимости от энергии электронно-дырочного перехода основного состояния КТ, т.е. $\rho(E_{grQD})$, то положение максимума гауссиана будет соответствовать энергии, равной $E_{grQW} + E_0$, где $E_0 < 0$. Этот случай выбран потому, что, как будет показано далее, он близок к случаю квантовых точек InGaN при комнатной температуре, когда средняя суммарная энергия активации электронов и дырок с основного состояния сравнима

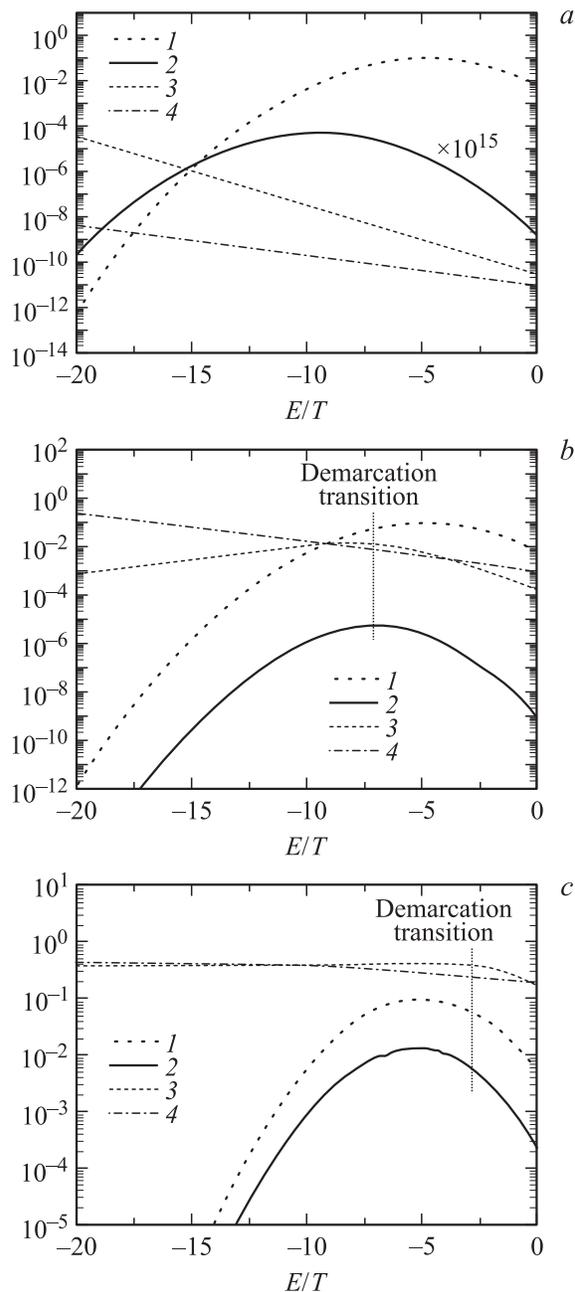


Рис. 2. Расчетные зависимости заселенностей электронных и дырочных уровней КТ в зависимости от энергии основного перехода, распределение концентрации КТ по энергии основного перехода и спектры излучения для нелегированной структуры: *a* — случай Больцмановской статистики, *b* — переходный случай к неравновесной статистике; *c* — случай сильно неравновесной статистики. 1 — $\rho(E)$, 2 — I_r , 3 — f_n , 4 — f_p .

с величиной неоднородного уширения массива КТ и сравнима с величиной температуры. В соответствии с отношением разрывов в валентной зоне и зоне проводимости на гетерогранице InGaN/GaN [21] имеем $\beta = 0.7$.

На рис. 2 представлены расчетные зависимости заселенностей электронных и дырочных уровней КТ в зависимости от энергии перехода, функция $\rho(E)$, а также

спектры излучения. Зависимости получены в результате численного решения системы (3), (4), (6) для случая нелегированной структуры. Величина тока рекомбинации варьировалась, что позволяло наблюдать различные типы статистики носителей. Обсудим следующие интересные случаи.

Случай 1. В пределе малых токов и в отсутствие легирования рекомбинационные члены в (3) малы по сравнению со слагаемыми, отвечающими за захват–выброс носителей. Это так называемый квазиравновесный случай с невырожденной (больцмановской) заселенностью носителей. При этом заселенности электронов и дырок экспоненциально возрастают с увеличением величины энергии активации. Этот случай был подробно рассмотрен в работах [8,9]. Из (3) следует, что заселенности будут выражаться формулами:

$$f_e(E) = \tilde{n}/\tilde{n}_1 = (\tilde{n}/\tilde{N}_c)e^{-\beta E/T},$$

а

$$f_h(E) = \tilde{p}/\tilde{p}_1 = (\tilde{p}/\tilde{N}_v)e^{-(1-\beta)E/T}. \quad (9)$$

Здесь β — фактор, учитывающий разницу в разрывах валентной зоны и зоны проводимости. Это справедливо, если скорость рекомбинации меньше скорости захвата, что согласно (3) означает:

$$\begin{cases} f_e f_h < \tilde{n}_1 f_e, \\ f_e f_h < \alpha \cdot \tilde{p}_1 f_h. \end{cases} \quad (10)$$

Обратим внимание на то, что здесь также фигурирует параметр $\alpha = \gamma_n/\gamma_h$, отвечающий за различие в параметрах захвата для валентной зоны и зоны проводимости. Если вернуться к исходным единицам измерения, а также подставить наибольшую заселенность, то получим достаточное условие быстрого выброса носителей из КТ:

$$\begin{cases} n_1 \gamma_n \tau_r > 1, \\ p_1 \gamma_p \tau_r > 1. \end{cases} \quad (10a)$$

Если хвост функции $\rho(E)$ убывает достаточно быстро с уменьшением E , т.е. $d/dE(\ln(\rho(E)))$, при E ниже некоторого значения E_m оказывается больше величины $1/T$, тогда из (8) и (9) следует, что в спектре излучения имеется максимум. Причем если условие (10) выполняется и для энергий, меньших E_m , этот максимум лежит вблизи E_m , и его положение не зависит от накачки. Этот случай реализуется, если в качестве функции распределения берется функция Гаусса [22]. Результаты численного расчета, иллюстрирующие заселенность и спектр излучения в этом случае, представлены на рис. 2, а. На рисунке можно видеть, что зависимости заселенности от энергии перехода КТ (от энергетического положения уровня КТ) экспоненциальны, что соответствует больцмановской статистике.

Случай 2. В случае более интенсивной накачки или достаточно глубоких КТ в нелегированной структуре рекомбинационный член оказывается больше слагаемого, отвечающего за выброс носителей из КТ, т.е. перестает выполняться условие (10). Согласно (9) и (10), это происходит, если значение E меньше некоторого значения E_d , которое будем называть демаркационным переходом. У КТ с энергиями перехода, меньшими E_d , заселенность, как минимум, одного вида носителей перестает возрастать экспоненциально с уменьшением энергии перехода. Если производная $-\ln(\rho(E))$ мала или сравнима с величиной $1/T$ при значении аргумента E , когда перестает выполняться условие (10) (иными словами, $E_d \geq E_m$), данная особенность заселенности определяет форму спектра и положение максимума на спектре. Связано это с тем, что при $E > E_d$ интенсивность излучения убывает, так как экспоненциально убывает заселенность уровней КТ, а при $E < E_d$ интенсивность рекомбинации в каждой КТ (определяемая произведением $f_e f_h$) постоянна, но убывает функция распределения $\rho(E)$. В самом деле, поскольку выбросы носителей в этой области спектра подавлены, произведение $f_e f_h$ зависит лишь от параметров захвата γ_n, γ_p .

В то же время, если $E_d < E_m$, особенность в спектре заселенности лежит ниже максимума излучения и не играет существенной роли в форме спектра излучения. Учитывая, что в случае выполнения условия (10) зависимости заселенностей от энергии все еще экспоненциальны, подставляя (9) в (10), получим

$$\begin{cases} \tilde{p} < \tilde{n}_1 \tilde{p}_1 = e^{-E/T} (\tilde{N}_c \tilde{N}_v), \\ \tilde{n} < \alpha \cdot \tilde{n}_1 \tilde{p}_1 = \alpha \cdot e^{-E/T} (\tilde{N}_c \tilde{N}_v). \end{cases} \quad (11)$$

Из (2) и (11) получим

$$E_d = E_{grQW} + T \max\left(\ln(\tilde{n}/(\tilde{N}_c \tilde{N}_v \alpha)), \ln(\tilde{p}/(\tilde{N}_c \tilde{N}_v))\right). \quad (12)$$

Обратим внимание на то, что $\ln(\tilde{n}/(\tilde{N}_c \tilde{N}_v \alpha))$ и $\ln(\tilde{p}/(\tilde{N}_c \tilde{N}_v))$ — величины неположительные и выбирается максимальная из них, т.е. минимальная по абсолютной величине. Если теперь вернуться к исходной системе единиц, получим значение энергии, выше которой выполняется условие (11), а ниже которой — не выполняется:

$$E_d = E_{grQW} + T \left(\frac{\max(\ln(n), \ln(p\alpha))}{\gamma_n \tau_r N_v N_c} \right). \quad (12a)$$

Эта величина в общем случае зависит от значения β . Если $\beta < 0.5$ (что относится к исследуемому структурному элементу), концентрация делокализованных дырок будет превосходить концентрацию электронов, поскольку энергия их активации меньше. Поэтому для величин α , слабо отличающихся от единицы, положение максимума будет определяться концентрацией делокализованных дырок. Если спектр функции $\rho(E)$ достаточно широк, а E_d лежит ниже ее максимума, то производная от $\ln(\rho(E))$ меньше $1/T$, и положение максимума близко к E_d .

Как видно из (12), при уменьшении мощности накачки можно добиться сколь угодно низкого значения E_d . При этом с уменьшением значения E_d уменьшается и заселенность вблизи E_d , т.е. заселенность может быть $\ll 1$. Этот случай проиллюстрирован на рис. 2, *b*. На рисунке видно, что с уменьшением энергии перехода ниже E_d дырочная заселенность возрастает с той же скоростью, что убывает электронная, так что их произведение остается постоянным, равным скорости захвата того вида носителей, у которых выше энергия активации, в данном случае у электронов. Следует подчеркнуть, что этот случай реализуется лишь в тех структурах и при тех температурах, когда $E_d > E_m$, а заселенность все еще < 1 . Иными словами, для этого необходимо, чтобы условие (10) не выполнялось при f_e и $f_h \ll 1$ и для КТ с энергией перехода $> E_m$.

Так как максимум спектра излучения лежит вблизи демаркационного перехода, скорость рекомбинации в районе максимума в этом случае близка к скорости захвата. Если заселенности уровней КТ существенно меньше единицы, это означает, что ток на акт излучательной рекомбинации одной КТ будет $\tilde{J}_r \approx e \cdot \min(\tilde{n}, \alpha\tilde{p})$. При $\beta > 0.5$ и $\alpha \approx 1$ минимальной оказывается величина \tilde{n} , так как энергия активации электронов больше, а значит, их концентрация в резервуаре меньше. Тогда $\tilde{J}_r \approx e \cdot \tilde{n}$.

В случае малых накачек отношение концентрации делокализованных и локализованных носителей мало, и условия зарядовой нейтральности достигаются, если концентрация локализованных электронов и дырок близки, т.е. можно считать, что f_e и f_h близки к КТ с энергией перехода, соответствующей максимуму излучения. Тогда отношение концентраций делокализованных электронов и дырок с учетом экспоненциальной зависимости заселенностей при $E > E_d$ равняется $n/p = N_c/\alpha N_v \exp(E_d/T(1-2\beta))$. Но, согласно (7), $J_r(E) = eN_{s,QD}\rho(E)\gamma_n\tau_r \min(n, \alpha p)$. Подставляя в (12а) с учетом отношения делокализованных электронов и дырок, получим связь между положением максимума и интенсивностью излучения в максимуме J_{rd} :

$$E_d \approx E_{geQW} + \frac{T}{2(1-\beta)} \ln \left(\frac{\alpha J_{rd}}{e(\gamma_n\tau_r)^2 \rho_d N_{s,QD} N_c^2} \right),$$

$$J_{rd} = N_{s,QD} \rho_d f_e f_h / \tau_r. \quad (12б)$$

Здесь величина ρ_d — значение функции $\rho(E)$ вблизи максимума излучения, т.е. вблизи $E = E_d$. Предполагается, что $\ln(\rho(E))$ меняется достаточно слабо, и его производная по энергии меньше $1/T$. Иначе реализовывался бы случай 1. Если $d/dE \ln(\rho(E)) \ll 1/T$, то изменение $\rho(E)$ вообще не учитывается. Если $d/dE \ln(\rho(E)) \lesssim 1/T$, то это изменение вносит дополнительный вклад в зависимость (12б), однако вклад качественно не меняет картину. Мы вернемся к этому моменту в разд. 8.

Случай 3. Если же демаркационный переход оказался выше максимума функции $\rho(E)$, а заселенность низкая, то форма спектра излучения основных состояний квантовых точек будет слабо отличаться от формы функции распределения $\rho(E)$, поскольку в этом случае $f_e f_h$ в интервале порядка ширины максимума $\rho(E)$ вблизи максимума меняется слабо. Результаты расчета для этого случая представлены на рис. 2, *с*. Положение максимума совпадает с положением максимума $\rho(E)$ и не изменяется с изменением мощности накачки до тех пор, пока заселенность меньше 1.

Если заселенность основных состояний близка к единице, то вследствие принципа Паули становится значительной заселенность возбужденных состояний (если таковые имеются). Тогда спектр будет представлять собой сумму вкладов рекомбинации основных и возбужденных состояний, что приводит к коротковолновому сдвигу максимума по отношению к случаю слабой заселенности. Эта ситуация может возникать как при $E_d \geq E_m$, так и при $E_d < E_m$ в зависимости от значений параметров выброса и $\gamma_{n,p}$.

Приведенные выше рассуждения для случая 1 верны для функции $\rho(E_{grQD})$, у которой низкоэнергетичный хвост убывает достаточно быстро при энергиях перехода $E < E_m$. Если это условие не выполняется, то случай 1 будет нереализуем (к примеру, в случае функции Лоренца). Для случаев 2 и 3 качественного отличия не будет, поскольку в случае 2 положение максимума определяется особенностями в спектрах заселенности, а в случае 3 положение максимума определяется положением максимума самой функции $\rho(E_{grQD})$.

4. Роль легирования в спектрах излучения при низких температурах

Рассмотрим случай легированных структур. Исследованные структуры преднамеренно не легировались, фоновый уровень легирования составлял $10^{16} - 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Так как толщины слоев достаточно малы, можно считать все доноры в барьере ионизованными и все электроны локализованными в слое квантовых точек — на уровнях квантовых точек, а также на уровнях остаточной квантовой ямы. В этом случае \tilde{N}_0 в уравнении (4) равняется сумме поверхностных концентраций носителей, локализованных в квантовых точках и делокализованных в остаточной квантовой яме — резервуаре в отсутствие накачки (с учетом знака их заряда). Не умаляя общности, можно рассмотреть случай n -легирования. Тогда из (4) следует, что в пределе малых накачек концентрация делокализованных электронов \tilde{n} будет асимптотически стремиться к некоей ненулевой величине \tilde{n}_0 . Величина заселенности электронных уровней квантовых точек f_e также будет ненулевой. Рассмотрим случай, когда мощность накачки столь слаба, что дырочная заселенность оказывается много меньше электронной. Тогда в уравнении (2а) можно пренебречь рекомбинационным

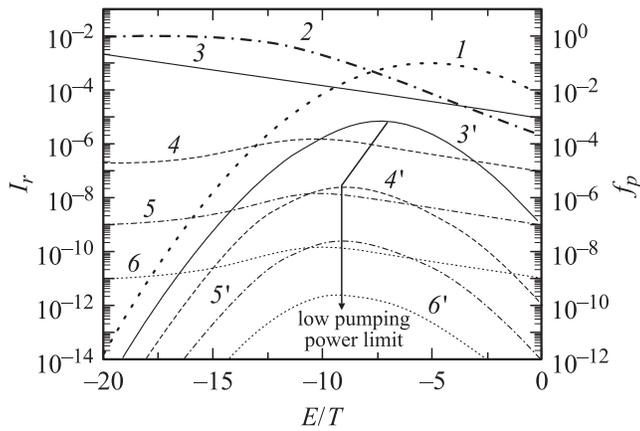


Рис. 3. Расчетные зависимости для случая легированной структуры заселенностей электронных и дырочных уровней КТ в зависимости от энергии основного перехода, распределение концентрации КТ по энергии основного перехода и спектры излучения. 1 — $\rho(E)$, 2 — f_n , 3–6 — f_p , 3'–6' — I_r . Значения p_{deloc} : 3, 3' — 10^{-3} , 4, 4' — 10^{-5} , 5, 5' — 10^{-7} , 6, 6' — 10^{-9} .

членом, и заселенность электронов будет выражаться формулой [8]:

$$f_n = \frac{\tilde{n}_0}{\tilde{n}_0 + \tilde{n}_1}. \quad (13)$$

В пределе самых мелких квантовых точек заселенность уровней электронов равна $\tilde{n}_0/(\tilde{n}_0 + 1) \approx \tilde{n}_0$, а с увеличением глубины локализации будет увеличиваться и асимптотически стремиться к единице. При этом в случае малых мощностей накачки спектральная зависимость заселенности уровней электронов $f_e(E)$ не зависит от заселенности дырочных уровней \tilde{p}_0 , и функция $f_e(E)$ в этом пределе однозначно определяется величиной N_0 , т. е. уровнем легирования. Подставляя (13) в (3б), можно выразить f_p :

$$f_p = \frac{\alpha \tilde{p}}{\alpha(\tilde{p} + \tilde{p}_1) + \frac{\tilde{n}_0}{\tilde{n}_0 + \tilde{n}_1}}. \quad (14a)$$

В случае достаточно малых \tilde{p}

$$f_p = \frac{\alpha \tilde{p}}{\alpha \tilde{p}_1 + \frac{\tilde{n}_0}{\tilde{n}_0 + \tilde{n}_1}}. \quad (14б)$$

Числитель последнего выражения не зависит от энергии, а знаменатель, напротив, зависит от энергии, но не зависит от накачки (которая в свою очередь однозначно определяется величиной \tilde{p}). Это означает, что в пределе малых накачек форма спектральной зависимости заселенности уровней дырок $f_e(E)$ также не зависит от накачки. Следовательно, форма спектра излучения не зависит от мощности накачки, и в выражении (11) положение E_d и положение максимума излучения будут определяться концентрацией дelokализованных электронов, т. е. уровнем легирования. Этот случай проиллю-

стрирован на рис. 3, на котором представлены численные расчеты системы уравнений (3), (4), (6) для случая фонового легирования $N_0 = 10^{-3}$. Несмотря на то что в пределе малых накачек положение максимума не зависит от мощности накачки, заселенность уровней дырок в данном случае не подчиняется бoльцмановской статистике. Так как положение максимума в этом случае связано с особенностью заселенности одного из типов носителей и не связано со свойствами функции распределения квантовых точек в ансамбле, этот случай может реализовываться, даже если хвосты $\rho(E)$ убывают медленно по сравнению с обратной температурой. При увеличении накачки выше некоторого уровня будет наблюдаться коротковолновый сдвиг максимума ФЛ. Природа этого сдвига аналогична коротковолновому сдвигу при увеличении накачки в случае нелегированной структуры — повышение уровня демаркационного перехода или заселение возбужденных состояний.

5. Описание методик экспериментального исследования

Структуры выращивались методом МOCVD на установке AIX2000HT на сапфировых подложках. Активная область выращивалась на слое GaN:Si *n*-типа, который в свою очередь выращивался на нелегированном буферном слое GaN. Дизайн структур описан в разд. 2. В работе рассмотрены два типа структур. У структур первого типа слои квантовых точек выращивались с использованием специальной методики прерывания роста и заравнивания слоем InGaN более низкого состава (в частности, структура А), что стимулировало фазовый распад твердого раствора InGaN в процессе заравнивания [13]. У структур другого типа (в частности, структура В) такой технологический прием не применялся. Как нами ранее показано, использование метода стимулированного фазового распада (СФР) позволяет существенно повысить энергию активации [15,16]. Использование метода СФР повышает содержание In в КТ и должно приводить к более длинноволновому излучению КТ. Однако если структуры с СФР выращивать при более высокой температуре, содержание In понижается, что сдвигает положение максимума излучения в коротковолновую сторону. Таким образом, были получены КТ, у которых при той же длине волны излучения среднее содержание In было меньше за счет меньшего содержания In между КТ. Ростовые режимы подбирались такими, чтобы толщина слоя квантовых точек InGaN была 3 нм.

Структурные свойства квантовых точек InGaN исследовались методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). При исследовании методом ПЭМ структуры обрабатывались сначала механически, а далее при помощи ионного травления пучком ионов Ag^+ с энергией 4кэВ и углом падения 13 градусов. Использовался микроскоп Philips EM420, работающий при

напряжении 100 кВ. Оптические свойства структур исследовались методами электролюминесценции (ЭЛ), фотолюминесценции (ФЛ), спектроскопии фототока (ФТ). ФЛ возбуждалась при помощи импульсного N_2 -лазера, а также при помощи газоразрядной ксеноновой лампы.

При исследовании методом ЭЛ не наблюдалось эффекта неоднородной инжекции, из-за которого, как было показано в [23], мощность накачки и длина волны излучения при низком уровне накачки оказываются неоднородными с масштабом неоднородности порядка 1 мкм. Поэтому можно полагать, что электрическая инжекция в активную область происходила равномерно даже при низких уровнях накачки. ФТ возбуждался при помощи газоразрядной ксеноновой лампы. Более подробно детали методики измерения ФТ описаны в [24].

6. Исследование структурных свойств слоев с квантовыми точками InGaN методом просвечивающей электронной микроскопии

Как было ранее показано, при исследовании структур, выращенных без применения метода СФР (аналогичных структуре В), использование цифровой обработки изображений, полученных с помощью ПЭМ высокого разрешения, позволяет выявить в этих структурах неоднородности с характерным размером 3–5 нм [14,25]. Поверхностная концентрация квантовых точек в каждом слое равняется $\sim 10^{12} \text{ см}^{-2}$. Также подтверждено, что такие неоднородности проявляют свойства квантовых точек. В настоящей работе использовалась методика измерений с более низким разрешением. Изображения, полученные при помощи ПЭМ, представлены на рис. 4. Темный контраст соответствует неоднородностям упругих напряжений в структуре. При такой методике получения изображений ПЭМ, несмотря на наличие квантовых точек, неоднородности в структуре В не различаются. В то же время, как видно из рис. 4, для структуры А внутри слоев квантовых точек InGaN наблюдаются флуктуации напряжений с латеральными размерами порядка нескольких нанометров даже без использования ПЭМ высокого разрешения. Эти флуктуации напряжений связываются с более сильной, чем в структуре В, неоднородностью концентрации InN в

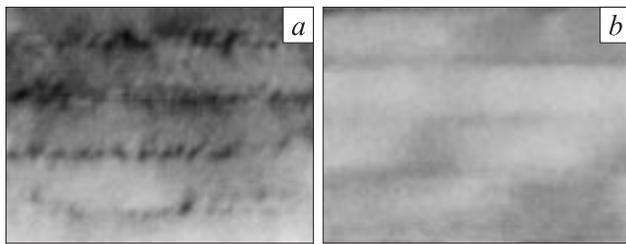


Рис. 4. Изображения ПЭМ: *a* — структуры, выращенной с применением СФР, *b* — без применения СФР.

слоях InGaN КТ благодаря СФР [13]. Как нами также ранее показано, это приводит к увеличению энергии активации носителей с основного состояния квантовых точек [13,15]: чем выше степень фазового распада, тем больше разница концентрации индия внутри квантовой точки и между квантовыми точками. В системе квантовых точек InGaN, как обсуждалось выше, в качестве резервуара выступает остаточная КЯ InGaN. Концентрации InN в КТ и между КТ определяют положение уровней размерного квантования в КТ и положение дна остаточной КЯ, а следовательно, энергетический зазор между основными состояниями квантовых точек и краем непрерывного спектра, т.е. энергию активации. Чем больше неоднородность состава, тем больше энергия активации.

7. Экспериментальное определение параметров выброса носителей из квантовых точек

Как следует из (1), статистика носителей на уровнях КТ определяется такими параметрами ансамбля, как время излучательной рекомбинации, параметры захвата и параметры термического выброса носителей в область непрерывного спектра. В то время как время излучательной рекомбинации и параметры захвата сравнительно слабо зависят от структурных свойств ансамблей КТ, параметры выброса n_1 и p_1 носителей из квантовых точек в КЯ, согласно определению, экспоненциально зависят от энергии активации носителей с уровней квантовых точек в область непрерывного спектра. Согласно соотношению (10) параметры выброса определяют статистику носителей на уровнях КТ. В то же время скорость выброса из КЯ в область матрицы GaN не зависит от того, из какой квантовой точки произошел выброс до этого. Это свойство позволяет оценивать отношения времен выброса к временам рекомбинации в массивах КТ с использованием спектроскопии фототока [24].

Рассмотрим процессы поглощения света в структуре с квантовыми точками совместно с процессами выброса носителей. Как следует из соотношений между спектральной зависимостью коэффициента поглощения света в среде и спектром спонтанного излучения [25], спектр излучения и спектр поглощения в структуре с квантовыми точками в случае малых накачек и статистики Больцмана будут удовлетворять следующему соотношению:

$$I_r(E) = \text{const} \cdot a(E)E^2 \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right). \quad (15)$$

Здесь $I_r(E)$ — спектральная зависимость скорости излучательной рекомбинации, а $a(E)$ — спектральная зависимость вероятности поглощения света при прохождении через слой квантовых точек. Эти две величины будем измерять в одинаковых единицах, $\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$. Для того чтобы соотношение (15) выполнялось, необходимо, чтобы уровни КТ были слабо заселены, т.е. чтобы

накачка была достаточно слабой, а при резонансном возбуждении — еще чтобы и скорость выброса обоих типов носителей была высока, т.е. удовлетворялось условие (10).

Для выявления параметров выброса носителей измерялись ФЛ и ФТ при малой мощности накачки (~ 1 мВт/см²). При вариации мощности накачки в пределах одного порядка изменения положения максимума не наблюдалось. Это означает, что или реализуется случай больцмановской статистики (случай 1 статистики из разд. 3), или реализуется случай, рассмотренный в разд. 4 — неравновесная статистика дырок при наличии фонового легирования n -типа.

Рассмотрим процессы выброса носителей из остаточной КЯ в матрицу. В светодиодной структуре носители, делокализованные в матрицу, находятся в поле p - n -перехода. Если вероятность разделения делокализованных электронов и дырок этим полем много больше вероятности захвата частицы обратно на уровень КТ с последующей рекомбинацией, то эффективность фототока определяется рекомбинацией вдали от активной области и спектрально независима. Нами ранее показано, что такой случай реализуется в светодиодных структурах, аналогичных структурам, исследованным в настоящей работе: форма и интенсивность спектра ФТ не зависят от приложенного внешнего смещения (т.е. от вариации поля p - n -перехода) [26].

При резонансном возбуждении носителей электрон и дырка рождаются внутри одной и той же КТ. Поэтому для квазиравновесного распределения носителей при резонансном возбуждении необходимо малое время активации хотя бы одной из частиц электронно-дырочной пары по сравнению со временем рекомбинации. Тогда электронно-дырочные пары, рожденные при поглощении света слоем квантовых точек, будут успевать распасться до того, как произойдет их рекомбинация. В этом случае фотовозбужденные носители будут вносить вклад в ФТ с одинаковой для всех квантовых точек эффективностью, которая определяется влиянием рекомбинации вдали от активной области. Тогда спектр ФТ будет с точностью до коэффициента равняться спектру поглощения, и его можно сравнить с экспериментальными спектрами излучения. Влияние эффективности ФТ будет заключено в константе в формуле (15).

Иная взаимосвязь реализуется между спектрами поглощения и ФТ, если времена выброса обоих носителей медленнее, чем время рекомбинации электронно-дырочной пары. Рожденные носители могут не успевать активироваться, прежде чем произойдет рекомбинация рожденной электронно-дырочной пары. Вышесказанное, в частности, означает, что на спектр фототока влияет вероятность поглощения и вероятность выброса носителей из КТ, а на эффективность — безызлучательная рекомбинация делокализованных носителей вне зависимости от того, где они были возбуждены. Рассмотренная методика позволяет исследовать кинетику выброса носителей с локализованных уровней КТ, чем аналогична методике

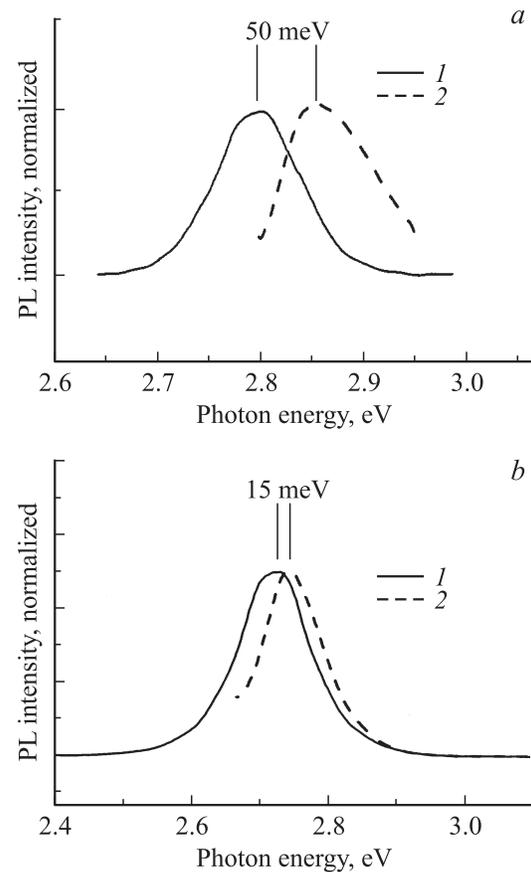


Рис. 5. Сравнение экспериментальных спектров ФЛ со спектрами, полученными из спектров ФТ с помощью выражения (15), для разных структур: *a* — структуры, выращенной с применением СФР, *b* — без применения СФР. 1 — эксперимент, 2 — расчет. $T = 300$ К.

исследования с использованием фототермического возбуждения, предложенной Т.М. Лифшицем, Ш.М. Коганом [27].

На рис. 5 показаны спектры излучения и кривые, полученные из спектров ФТ при помощи (15). Для случая структуры В наблюдается слабое различие между экспериментальным спектром излучения и кривыми, полученными с помощью спектров ФТ (расстояние между максимумами 15 мэВ), как это видно из рис. 5, *b*. В то же время для структуры А, при выращивании которой применялся метод СФР, различие значительно более сильное (рис. 5, *a*): разница между максимумами составляет 50 мэВ.

Как обсуждалось выше, в структурах на основе нитридов элементов III группы вследствие несовершенства кристаллической структуры обычно присутствует фоновое легирование n -типа с концентрацией доноров до 10^{16} см⁻³. Однако эффект, показанный на рис. 5, *a*, не может быть объяснен влиянием фонового легирования на положение максимума: величина фонового легирования создает на электронных уровнях квантовых точек заселенность $\sim 10^{-2}$, слишком малую, чтобы влиять на

поглощение в структуре. Как было показано в разд. 4, фоновое легирование приводит к сдвигу линии излучения в область больших энергий относительно положения максимума, наблюдаемого при больцмановском распределении без легирования. В то же время можно видеть, что линия излучения сдвинута в область меньших энергий относительно кривой, полученной из ФТ. Мы связываем это с тем, что в данной структуре при измерении излучения реализуется 1-й случай статистики, однако время выброса носителей из квантовых точек больше времени рекомбинации экситона (отсутствие квазиравновесия при резонансном возбуждении). Сравнивая второе и третье слагаемое в правой части (1), получим для случая медленного выброса носителей:

$$\begin{cases} n_1 \gamma_n \tau_r < 1, \\ p_1 \gamma_p \tau_r < 1. \end{cases} \quad (16)$$

Такое поведение структуры А можно объяснить более сильными неоднородностями состава в слоях КТ, а значит, большими энергиями активации, вследствие чего значения n_1 и p_1 вблизи максимума излучения на несколько порядков меньше, чем в структуре В. Согласно нашим предварительным исследованиям [15], у структур, выращенных с применением метода СФР, суммарная энергия активации составляет величину ~ 0.5 эВ, в то время как для КТ, выращенных без стимуляции фазового распада, это значение меньше 0.2 эВ, т.е. энергия активации у структуры А, как минимум, на 300 мэВ больше. При этом чем больше энергия активации, тем более высокие температуры нужны для достижения квазиравновесной заселенности. В аналогичных условиях ранее было показано [14], что для КТ, полученных с применением метода СФР, квазиравновесный случай при резонансном возбуждении достигается лишь при температуре ~ 600 К, в то время как для структуры с неглубокими КТ (выращенными без СФР) и аналогичными структуре В) почти квазиравновесный случай наблюдается уже при комнатной температуре.

Согласно данным ФЛ с временным разрешением, при надбарьерном возбуждении время возрастания интенсивности ФЛ составляет примерно 10 пс [14]. Эта величина соответствует вероятности захвата делокализованного носителя на одну из КТ, и вероятность этого события должна быть 10^{11} с^{-1} , т.е. $\gamma_n N_{s\text{QD}} = 10^{11} \text{ с}^{-1}$. Это означает, что $\gamma_n = 0.1 \text{ см}^2/\text{с}$. Тогда вероятность выброса (обратное время выброса) носителя из КТ при $N_c = 10^{12} \text{ см}^{-2}$ будет равняться $P_{\text{ex}} = 10^{11} \exp(-\Delta E/k_B T)$. Для комнатной температуры при общей энергии активации ~ 200 мэВ и меньше даже время выброса электрона будет порядка 100 пс. В то же время при энергии активации ~ 500 мэВ время выброса каждого носителя будет превышать 1 нс. Иными словами, как и наблюдалось в эксперименте, для структуры, выращенной с применением метода СФР, при комнатной температуре выполняется условие (16), и активация электронно-дырочной пары с основного

состояния квантовой точки маловероятно. Для квантовых точек, выращенных без СФР, вероятность выброса как электронов, так и дырок должна быть высока, т.е. выполняется условие (10а).

8. Температурные зависимости фото- и электролюминесценции квантовых точек

Рассмотрим представленные на рис. 6 экспериментальные зависимости положения максимумов ЭЛ исследованных образцов от температуры и мощности накачки. Как видно из рис. 6, в рассмотренном диапазоне температур поведение ЭЛ структуры с мелкими квантовыми точками хорошо описывается моделью, предложенной в [10]. В рамках этой модели функция $\rho(E)$ в системе квантовых точек InGaN представляет собой функцию, убывающую с уменьшением E (увеличением энергии

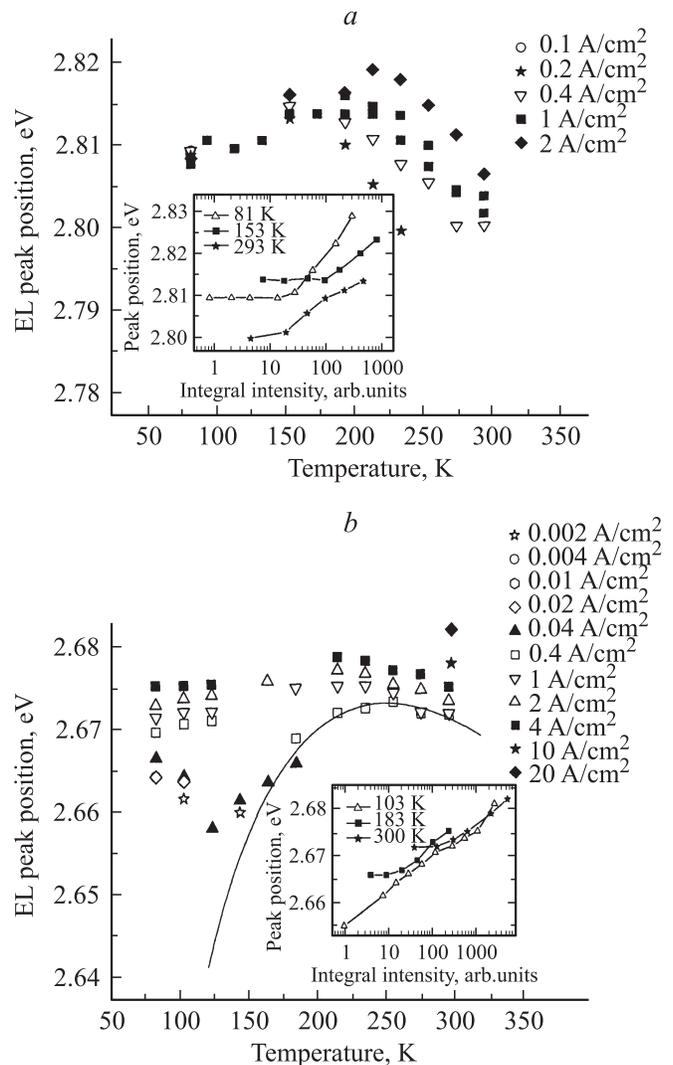


Рис. 6. Зависимости положения максимума ЭЛ от температуры и мощности накачки (на вставках) для структуры, выращенной с применением СФР (а), без применения СФР (б).

активации). Функция $\rho(E)$ зависит от способа получения структуры и в случае структур, рассмотренных в настоящей работе, может быть аппроксимирована функцией Гаусса [22,24], что не противоречит модели, рассмотренной в настоящей работе. Действительно, как показано в предыдущем разделе, в этой структуре при комнатной температуре для КТ с энергией перехода вблизи максимума излучения выполняется условие (10а). Поэтому уменьшение накачки приводит к длинноволновому сдвигу пика излучения, и при достаточно малой мощности накачки (если нет влияния легирования) установится больцмановское распределение носителей в квантовых точках, минуя 2-й случай статистики.

При больцмановской заселенности с уменьшением температуры наблюдается длинноволновый сдвиг положения максимума относительно энергии перехода между краями непрерывного спектра, т.е. относительно основного перехода остаточной КЯ E_{mob} . Анализ, проведенный в работе [22], показывает, что температурная зависимость положения максимума подчиняется закону $E_m = E_{\text{mob}} + E_0 - \sigma^2/T$. Это связано с тем, что с уменьшением температуры заселяются в среднем более глубокие уровни массива КТ, поскольку уменьшается термическая заселенность менее глубоких уровней. Однако энергия основного перехода остаточной КЯ E_{mob} увеличивается с уменьшением температуры в соответствии с законом Варшши. Конкуренция этих факторов дает дугообразную температурную зависимость положения максимума для случая больцмановской заселенности [22]. На вставке к рис. 6, b также представлены зависимости положения максимума от интенсивности излучения. При комнатной температуре при интенсивности излучения более 100 условных единиц наблюдается сдвиг положения максимума с увеличением мощности излучения. Это связано с насыщением заселенности основных состояний и началом заселенности возбужденных состояний (случай 2 статистики при комнатной температуре не реализуется). Действительно, этот сдвиг начинается при уровне накачки более 10 А/см². Зная, что время излучательной рекомбинации в квантовой точке равняется 1 нс, а концентрация квантовых точек составляет примерно 10¹² см⁻², можно оценить, что такая мощность накачки соответствует близкому к единице заполнению уровня основного состояния КТ.

С уменьшением температуры зависимости положения максимума излучения от интенсивности излучения даже при меньших уровнях накачки становятся более сильными, что также согласуется с рассматриваемыми моделями: при меньших температурах заселены более глубокие КТ, концентрация которых значительно меньше. Поэтому для достижения насыщения заселенности основного состояния требуются меньшие накачки. Однако, как видно из рис. 6, b, при токе накачки 0.2 мА и при температуре ниже 120 К наблюдается коротковолновый сдвиг с уменьшением температуры. Этот коротковолновый сдвиг объясняется переходом к неравновесной

статистике при данной мощности накачки. Действительно, согласно определению параметров выброса n_1 и p_1 в разд. 3, уменьшение температуры приводит к уменьшению их величины, и скорость выброса становится меньше скорости рекомбинации. В результате при температуре ниже 120 К реализуется 2-й случай статистики, а положение максимума по энергетической шкале определяется значением E_d по формуле (12) и оказывается выше, чем положение максимума, ожидаемое при больцмановской статистике. Подчеркнем, что при этом заселенность уровней КТ может быть существенно меньше 1. При более сильных токах накачки этот переход соответствует более высоким температурам. Это связано с тем, что скорость рекомбинации с увеличением заселенности электронных и дырочных уровней в квантовых точках растет быстрее, чем скорость выбросов носителей, так как первое пропорционально произведению заселенностей электронов и дырок, в то время как второе — лишь первой степени заселенностей. Кроме того, с увеличением накачки увеличивается концентрация делокализованных носителей, что в соответствии с (12) приводит к тому, что положение максимума сдвигается в коротковолновую сторону.

В отсутствие фонового легирования, при более слабом токе реализовывалось бы больцмановское распределение и при более низких температурах. Однако, как видно из рис. 6, b, такой тенденции нет. Мы связываем это с влиянием фонового легирования, которое стабилизирует положение максимума при низких температурах. Иная картина наблюдается для структуры А, выращенной с использованием стимулированного фазового распада. Эта зависимость представлена на рис. 6, a. Как обсуждалось в предыдущем разделе, энергии активации носителей с основных состояний КТ в этой структуре примерно в 3 раза больше. Это означает, что 2-й случай статистики должен иметь место уже при комнатной температуре — примерно в 3 раза выше, чем у структуры без СФР. Для КТ с энергией перехода вблизи максимума у этой структуры уже не выполняется условие (10а). Как видно из рис. 6, a, при тех же мощностях накачки, что и в случае структуры В, даже при комнатной температуре не выявляется больцмановское распределение: положение максимума сильно зависит от изменения накачки даже при малой мощности накачки, менее 10 А/см², т.е. реализуется случай 2 из разд. 2. На вставке к рис. 6, a виден стабильный сдвиг положения максимума в зависимости от интенсивности излучения при комнатной температуре. Однако величина сдвига положения максимума в случае ЭЛ может сильно зависеть и от квантово-размерного эффекта Штарка. Для более точного измерения взаимосвязи положения максимума и интенсивности излучения исследовалась ФЛ структуры с такой же активной областью, но без верхнего p -слоя. Нормированные спектры ФЛ, а также зависимость положения максимума от интенсивности излучения представлены на рис. 7. Так как сдвиг наблюдается при интенсивности излучения значительно ниже

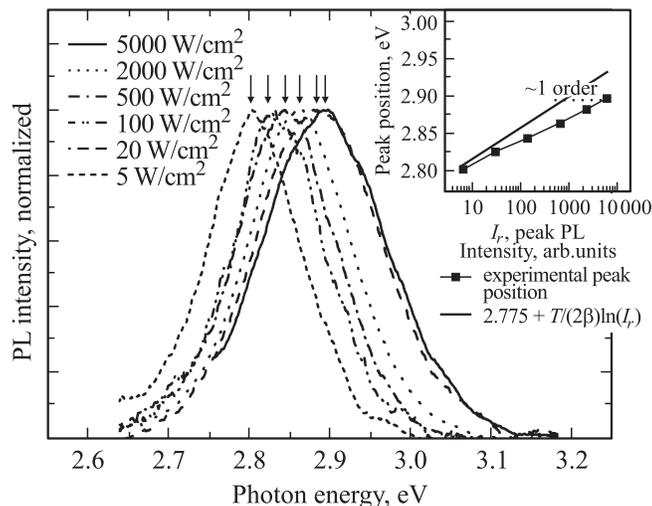


Рис. 7. Спектры ФЛ структуры, выращенной с применением СФР, измеренные при различных мощностях накачки N_2 -лазером, и зависимости спектров ФЛ от интенсивности спектра в максимуме. $T = 300$ К.

интенсивности, соответствующей заполненным основным состояниям, величину этого сдвига можно оценить по формуле (12б) для малой заселенности. На вставке к рис. 7 представлены теоретическая оценка и экспериментальная зависимость положения максимума излучения от интенсивности в максимуме. Видно некоторое различие между экспериментальной зависимостью положения максимума и логарифмической зависимостью в соответствии с (12б). Как обсуждалось выше, эта разница ожидаема, поскольку величина $\rho(E)$ непостоянна. Как показывают исследования электронного спектра хвоста состояний методом ФТ [24], $\rho(E)$ изменяется примерно на порядок в интервале длиной 100 мэВ, и из рис. 7 видно, что эта величина близка к разнице интенсивностей в расчете и в эксперименте. На вставке к рис. 6, а видно, что при температурах 150 и 81 К можно видеть стабильное положение максимума на зависимости от мощности излучения при мощности ниже некоторого значения. Мы связываем эту стабилизацию с тем, что при таких температурах E_d оказывается выше положения максимума основных состояний $E_{grQW} + E_0$ (случай 3 из разд. 2). Такая ситуация реализуется в структурах, выращенных с применением СФР, благодаря большой энергии активации в КТ в этой структуре.

9. Заключение

С помощью статистической модели, учитывающей захват носителей в КТ из области непрерывного спектра, термический выброс носителей с уровней КТ в область непрерывного спектра, транспорт носителей между КТ, а также излучательную рекомбинацию, нами были исследованы свойства неоднородных ансамблей глубоких КТ.

Статистика носителей определяет форму спектров и квантовую эффективность излучения.

В случае, когда скорость термического выброса хотя бы одного вида носителей с уровней основных состояний КТ ансамбля меньше скорости излучательной рекомбинации электронно-дырочной пары, локализованной на основном переходе КТ, имеет место неравновесная заселенность, в противном случае заселенность квазиравновесна.

Параметры, ответственные за скорость термического выброса, экспоненциально зависят от отношения энергии активации к температуре. Кроме того, отношение скоростей выброса и рекомбинации зависит от заселенности уровней. Если энергии активации носителей достаточно малы для того, чтобы время выброса электронов и дырок с уровня КТ в область непрерывного спектра было меньше времени рекомбинации электронно-дырочной пары, заселенность квазиравновесна при любых мощностях накачки. В противном случае возможна неравновесная заселенность. В случае нелегированной структуры, однако, понижение уровня накачки (а значит, понижение заселенности) рано или поздно приводит к квазиравновесной заселенности на уровнях КТ. В легированной структуре квазиравновесие может не устанавливаться даже при сколь угодно малых накачках.

При переходе от сильно неравновесной статистики к квазиравновесной (больцмановской) положение максимума излучения определяется величиной демаркационного перехода: квантовые точки с энергией перехода выше этой величины обладают квазиравновесной заселенностью носителей, а квантовые точки с энергией ниже этой величины — неравновесной. Величина демаркационного перехода, а значит, и положение максимума в этом случае зависят от мощности накачки. В противоположность этому при больцмановской заселенности положение максимума неподвижно при вариации мощности накачки.

Экспериментально показано, что использование метода стимулированного фазового распада позволяет существенно усилить неоднородность состава в слоях КТ InGaN. Благодаря этому значение энергии активации с основных состояний КТ в область непрерывного спектра увеличивается примерно в 3 раза. У структур, полученных без использования метода стимулированного фазового распада, время выброса из КТ в область непрерывного спектра при комнатной температуре меньше 100 пс, что много меньше времени рекомбинации. В то же время использование метода стимулированного фазового распада позволяет сделать величину времени термического выброса больше времени рекомбинации (которое составляет ~ 1 нс), что и является необходимым условием неравновесной статистики.

Экспериментально исследована фото- и электролюминесценция таких структур и показано, что в случае неравновесной статистики при малом уровне накачки

положение максимума действительно зависит от мощности накачки, в то время как в квазиравновесном случае положение максимума излучения стабильно при вариации мощности накачки.

Авторы выражают благодарность А.М. Минтайрову за плодотворные дискуссии.

Работа частично поддержана программой РФФИ. Работа поддержана грантом Collaborative NATO grant СВР.NR.CLG 981516.

Список литературы

- [1] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (Wiley, 1999).
- [2] С.С. Михрин, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, Н.А. Малеев, А.П. Васильев, Е.С. Семенова, В.М. Устинов, М.М. Кулагина, Е.В. Никитина, И.П. Сошников, Ю.М. Шерняков, Д.А. Лившиц, Н.В. Крыжановская, Д.С. Сизов, М.В. Максимов, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов, D. Bimberg, Ж.И. Алфёров. *ФТП*, **36** (11), 1400 (2002).
- [3] C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G.S. Solomon, Y. Yamamoto. *Nature*, **419** (10), 594 (2002).
- [4] Y. Arakawa, S. Kako. *Proc. 6th Int. Conf. on Nitride Semiconductors — ICNS6* (Bremen, Germany, Aug. 28–Sept. 2, 2005) Th-OP5-1.
- [5] S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, S. Nagahara. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**, L797 (1995).
- [6] T. Mukai, M. Yamada, S. Nakamura. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, 3976 (1999).
- [7] P.N. Brunkov, A. Patane, A. Levin, L. Eaves, P.C. Main, Yu.G. Musikhin, B.V. Volovik, A.E. Zhukov, V.M. Ustinov, S.G. Konnikov. *Phys. Rev. B*, **65**, 085 326 (2002).
- [8] L.V. Asryan, R.A. Suris. *Semicond. Sci. Technol.*, **11**, 554 (1996).
- [9] М.В. Максимов, Д.С. Сизов, А.Г. Макаров, И.Н. Каяндер, Л.В. Асрян, А.Е. Жуков, В.М. Устинов, Н.А. Черкашин, Н.А. Берг, Н.Н. Леденцов. D. Bimberg. *ФТП*, **38** (10), 1245 (2004).
- [10] M.S. Jeong, J.Y. Rim, Y.-W. Kim, J.O. White, E.-K. Suh, C.-H. Hong, H.J. Lee. *Appl. Phys. Lett.*, **79** (7), 976 (2001).
- [11] M. Takeguchi, M.R. McCartney, D.J. Smith. *Appl. Phys. Lett.*, **84** (12), 2103 (2004).
- [12] D.S. Sizov, V.S. Sizov, G.E. Onushkin, V.V. Lundin, E.E. Zavarin, A.F. Tsatsul'nikov, N.N. Ledentsov. *Proc. 13th Int. Conf. „Nanostructures: Physics and Technology“* (St. Petersburg, June 20–25, 2005) с. 294.
- [13] D.S. Sizov, V.S. Sizov, V.V. Lundin, E.E. Zavarin, A.F. Tsatsul'nikov, A.S. Vlasov, N.N. Ledentsov, A.M. Mintairov, K. Sun, J. Merz. *Proc. 13th Int. Conf. „Nanostructures: Physics and Technology“* (St. Petersburg, June 20–25, 2005) с. 296.
- [14] I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, A.V. Sakharov, V.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, A.S. Usikov, Zh.I. Alferov, Yu.G. Musikhin, D. Gerthsen. *Phys. Rev. B*, **66**, 155 310 (2002).
- [15] D.S. Sizov, V.S. Sizov, G.E. Onushkin, V.V. Lundin, E.E. Zavarin, A.F. Tsatsul'nikov, A.M. Araktcheeva, N.N. Ledentsov. *Proc. Int. Conf. „Nanomeeting“* (Minsk, Belarus, May 24–27, 2005).
- [16] В.С. Сизов, Д.С. Сизов, Г.А. Михайловский, Е.Е. Заварин, В.В. Лундин, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов. *ФТП*, **40** (5), 589 (2006).
- [17] L.V. Asryan, R.A. Suris. *IEEE J. Select. Topics Quant. Electron.*, **3** (2), 148 (1997).
- [18] S.M. Sze. *Physics of Semiconductor Devices*, 2nd edn (N.Y., Wiley, 1981).
- [19] M.V. Maximov, A.F. Tsatsul'nikov, B.V. Bolovik, D.S. Sizov, Yu.M. Shernyakov, I.N. Kaiander, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, N.A. Maleev, S.S. Mikhlin, V.M. Ustinov, Yu.G. Musikhin, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov, R. Heitz, V.A. Shchukin, N.N. Ledentsov, D. Bimberg. *Phys. Rev. B*, **62** (42), 16 671 (2000).
- [20] S.-H. Wei, A. Zunger. *Appl. Phys. Lett.*, **72** (16), 2011 (1998).
- [21] P.G. Eliseev. *J. Appl. Phys.*, **93**, 5404 (2003).
- [22] Д.С. Сизов, В.С. Сизов, Е.Е. Заварин, В.В. Лундин, А.В. Фомин, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов. *ФТП*, **39** (2), 264 (2005).
- [23] Д.С. Сизов, В.С. Сизов, В.В. Лундин, А.Ф. Цацульников, Е.Е. Заварин, Н.Н. Леденцов. *ФТП*, **39** (11), 1350 (2005).
- [24] Yu.G. Musikhin, D. Gerthsen, D.A. Bedarev, N.A. Bert, W.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, A.V. Sakharov, A.S. Usikov, Zh.I. Alferov, I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg. *Appl. Phys. Lett.*, **80** (12) 2099 (2002).
- [25] H.C. Casey, M.B. Panish. *Heterostructure lasers* (Academic London, 1978).
- [26] Ш.М. Коган. *ФТП*, **11**, 1158 (1977).
- [27] К.А. Булашевич, С.Ю. Карпов, Р.А. Сурис. *Матер. III Всероссийск. конф. „Нитриды галлия, индия и алюминия — структуры и приборы“* (Москва, июнь 4–7, 2004) с. 88.

Редактор Л.В. Беляков

A nonequilibrium population of the carriers in structures with deep quantum InGaN dots

D.S. Sizov, E.E. Zavarin, N.N. Ledentsov, V.V. Lundin, Yu.G. Musikhin, V.S. Sizov, R.A. Suris, A.F. Tsatsul'nikov

loffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia