

# НЕРАВНОВЕСНЫЕ НОСИТЕЛИ В ГЕТЕРОСТРУКТУРАХ GaN/AlN: ДИФфуЗИЯ В БАРЬЕРНЫХ СЛОЯХ И ЗАХВАТ В МОНОСЛОЙНЫЕ КВАНТОВЫЕ ЯМЫ

*В. И. Козловский<sup>a\*</sup>, М. М. Зверев<sup>a</sup>, А. Н. Семенов<sup>b</sup>, Д. В. Нечаев<sup>b</sup>, Д. Е. Свиридов<sup>a</sup>,  
Я. К. Скасырский<sup>a</sup>, В. Н. Жмерик<sup>b</sup>*

<sup>a</sup> Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук  
119991, Москва, Россия

<sup>b</sup> Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук  
194021, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 26 декабря 2024 г.,  
после переработки 26 декабря 2024 г.  
Принята к публикации 3 февраля 2025 г.

Исследуются спектры катодолюминесценции в ультрафиолетовом диапазоне серии гетероструктур с ультратонкими (1.5 монослоя) квантовыми ямами GaN/AlN, в которых при одинаковой общей толщине 1.5 мкм варьировалась толщина барьерных слоев от 3.7 до 250 нм. Все структуры, выращенные методом плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках *c*-сапфира, демонстрировали основной пик катодолюминесценции вблизи значения длины волны 240 нм, который был связан с излучением квантовых дисков, содержащих два монослоя GaN. При этом было обнаружено существенное уменьшение интенсивности излучения с увеличением толщины барьерных слоев (периода повторения). На основе экспериментальных данных и решения уравнения диффузии, учитывающего транспорт неравновесных носителей в барьерных слоях и эффективность их захвата в квантовые ямы, даны качественные оценки длины диффузии и эффективности захвата. Значение первого параметра не превышает 25 нм при комнатной температуре и находится в диапазоне 110–135 нм при температуре 15 К. Эффективность захвата неравновесных носителей в квантовые ямы увеличивается с уменьшением температуры.

DOI: 10.31857/S0044451025060070

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В последние два десятилетия активно развивается полупроводниковая оптоэлектроника ультрафиолетового С-диапазона (УФС) длин волн (менее 280 нм) на основе широкозонных соединений в системе материалов (Al, Ga)N. Фотоприемные и светоизлучающие УФС-приборы необходимы для детекторов УФС-излучения, приборов оптической спектроскопии в этом диапазоне, оптической дезинфекции опасных патогенов, непрямой оптической связи и др. [1–3]. В светоизлучающих приборах важнейшей задачей является повышение их внутреннего квантового выхода, который определяется как отношение числа квантов УФС-излучения к числу со-

здаваемых пар неравновесных носителей. Для решения этой задачи в УФС-эмиттерах с активными (светоизлучающими) областями в виде множественных квантовых ям (МКЯ) в системе (Al, Ga)N, возбуждаемых электронными пучками высокой энергии (5–20 кэВ), необходимо знание нескольких характеристик этих структур [4].

В первую очередь должны быть определены основные характеристики транспорта (диффузии) неравновесных носителей заряда из протяженных областей их возбуждения в широкозонных барьерных слоях с общей толщиной до 2 мкм к квантовым ямам. Транспорт неравновесных носителей, движение которых коррелировано, является амбиполярным и характеризуется диффузионной длиной

$$L_d = \sqrt{D\tau}, \quad (1)$$

где  $D$  — амбиполярный коэффициент диффузии носителей в барьерных слоях, определяемый их по-

\* E-mail: kozlovskiyvi@lebedev.ru

движностью,  $\tau$  — время жизни носителей, определяемое скоростями их излучательной и безызлучательной рекомбинаций [5, 6].

В литературе сообщается о различных значениях  $L_d$  в слоях системы материалов (Al,Ga)N, что обусловлено, в первую очередь, особенностями их структурного строения и различным уровнем дефектности, определяемыми технологическими условиями эпитаксиального роста слоев на, как правило, рассогласованных подложках, их толщиной, уровнем их легирования и т. д. При повышении структурного качества бинарных слоев GaN значения диффузионной длины возрастают от 30 нм до 3 мкм и достигают максимума при их росте на объемных гомоэпитаксиальных подложках с плотностью прорастающих дислокаций порядка  $10^4 \text{ см}^{-2}$  [7, 8]. В слоях GaN, выращенных на гетероэпитаксиальных подложках *c*-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> с помощью газовой фазной эпитаксии из металлоорганических соединений (ГФЭ МО), большинство значений диффузионной длины носителей находятся в диапазоне 100–200 нм.

Для слоев AlGaIn и AlN данных существенно меньше, но в целом, при их росте с помощью ГФЭ МО на *c*-сапфировых подложках с типичной концентрацией прорастающих дислокаций  $10^8$ – $10^9 \text{ см}^{-2}$  наблюдаются близкие значения диффузионной длины в диапазоне 100–200 нм [9–11], хотя сообщается и о наблюдении в слоях AlN, выращенных высокотемпературной газовой фазной эпитаксией, необычно высокой величины диффузионной длины экситонов 1.2 мкм [12]. При росте гетероструктур в системе (Al,Ga)N на подложках *c*-сапфира с помощью низкотемпературной технологии молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) слои имеют относительно высокие концентрации прорастающих дислокаций,  $10^9$ – $10^{10} \text{ см}^{-2}$ , и, как следствие, меньшие значения  $L_d$ . Лишь для слоев Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>N, выращенных с помощью относительно высокотемпературной аммиачной МПЭ, значения  $L_d$  составляют 100–150 нм [13, 14], в то время как для гетероструктур с квантовыми точками GaN/Al<sub>0.27</sub>Ga<sub>0.73</sub>N, выращенных плазменно-активированной МПЭ (ПА МПЭ), оценки показали, что в AlGaIn-слоях  $L_d = 7.5 \text{ нм}$  [15].

Относительно небольшая длина диффузии неравновесных носителей была обнаружена и в гетероструктуре с множественными КЯ GaN/AlN, выращенной ГФЭ МО и содержащей 100 периодов КЯ и барьерных слоев с номинальными толщинами 1 монослой (МС) (для GaN толщина 1 МС равна 0.259 нм) и 10 нм соответственно [16]. Измерения с помощью высокоразрешающего сканирующего просвечивающего электронного микроскопа об-

наружили изменение профиля интенсивности катодолуминесценции (КЛ) в поперечном сечении структуры, что позволило с помощью диффузионной модели оценить  $L_d$  равной 16 нм.

Другой важнейшей характеристикой, определяющей квантовую эффективность УФС-эмиттеров на основе квантоворазмерных гетероструктур, является вероятность захвата квантовыми ямами носителей с их последующей излучательной рекомбинацией [17]. В общем случае скорость (вероятность) данного процесса  $\zeta$  определяется временем захвата носителей  $\tau_c$  из состояний в зоне проводимости (для электронов) и валентной зоны (для дырок) на нижележащие энергетические уровни в квантовой яме. Считается, что определяющую роль в этих процессах играет рассеяние носителей на оптических ЛО-фононах с характерной длиной свободного пробега носителей  $\lambda_{LO}$ . В первых полуклассических работах рассматривались МКЯ GaAs/AlGaAs, для которых зависимости вероятности захвата носителей от ширины ямы  $h_{QW}$  описывались монотонными функциями типа  $1 - \exp(-h_{QW}/\lambda_{LO})$ , и из этой зависимости делался вывод о существовании минимальных толщин ям на уровне нескольких нанометров (6–10 нм), ниже которых вероятность захвата носителей должна резко снижаться [18, 19].

Однако в большинстве современных светоизлучающих приборов используются КЯ с существенно меньшими толщинами, вплоть до субмонослойного уровня (т. е.  $< 1 \text{ нм}$ ) [20], что свидетельствует о неприменимости описанного выше полуклассического описания захвата носителей. Альтернативный подход впервые был развит в теоретических работах [21, 22], показавших, что захват неравновесных носителей в КЯ является квантово-механическим процессом и его эффективность является осциллирующей функцией ширины КЯ. Эти расчеты были экспериментально подтверждены в работе [23], а также в последующих работах [24–26]. В этих работах также было показано, что реальные вероятности захвата носителей в КЯ GaInAs выше вероятностей, предсказанных полуклассической теорией.

Подобные расчеты для КЯ GaN/AlN, проведенные в работе [27], также показали осциллирующий характер зависимости скорости захвата электронов от толщины КЯ, уменьшение толщины которой от 20 нм до 0.5 нм приводило к снижению скорости захвата носителей всего лишь в несколько раз — от  $5 \cdot 10^{11}$  до  $8 \cdot 10^{10} \text{ с}^{-1}$  соответственно. Важно, что рассчитанные скорости захвата электронов в КЯ GaN/AlN более чем на порядок превышали аналогичные значения для КЯ GaAs/AlAs.

Похожие результаты представлены в работах [28–30], где приведены расчеты вероятности захвата носителей в различных гетероструктурах GaAs/AlAs и GaN/AlN из уровней энергии в барьерном слое в локализованные состояния КЯ с различными толщинами как барьерных слоев, так и КЯ. Однако прямых экспериментальных исследований этих процессов не проводилось. До сих пор нет сведений о вероятностях захвата носителей из барьерных слоев AlN ультратонкими КЯ GaN с толщиной менее 1 нм.

Таким образом, приведенные выше данные свидетельствуют о том, что для достижения высокой квантовой эффективности УФС-эмиттеров на основе квантоворазмерных (Al,Ga)N-гетероструктур необходимо стремиться не только к высокому структурному совершенству барьерных слоев с максимальным значением диффузионной длины, но и обеспечить высокую вероятность захвата носителей множественными квантовыми ямами.

В данной работе исследуются гетероструктуры GaN/AlN с множественными квантовыми ямами с одинаковой номинальной толщиной 1.5 мкм, выращенными на подложках *c*-сапфира с использованием ПА МПЭ. Гетероструктуры при одинаковой общей толщине активных областей 1.5 мкм различаются толщиной барьерных слоев AlN и числом КЯ, значения которых варьируются в пределах от 3.7 до 250 нм и от 350 до 6 соответственно. Все структуры демонстрируют КЛ с почти одинаковой длиной волны коротковолнового пика УФС-излучения вблизи 240 нм, но с существенно различной интенсивностью, измерявшейся при комнатной и низкой (15 К) температурах. Эти экспериментальные результаты сравниваются с расчетными данными, полученными при решении диффузионного уравнения с учетом эффективности захвата неравновесных носителей в квантовые ямы. В результате оцениваются значения диффузионной длины неравновесных носителей в барьерных слоях AlN и эффективности их захвата в монослойные КЯ GaN при различных температурах, а также сравнивается степень влияния этих характеристик на квантовую эффективность гетероструктур.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Все образцы выращивались с помощью ПА МПЭ на подложках *c*-сапфира с односторонней полировкой, на обратную сторону которых для обеспечения радиационного нагрева напылялся слой Ti толщи-

ной 200 нм. Этот слой удалялся после ростовых процессов с помощью травления подложек в HF. Зародышевые слои AlN толщиной около 70 нм выращивались с помощью эпитаксии с повышенной миграцией адатомов, а для роста буферных слоев AlN толщиной около 1.6 мкм применялась металл-модулированная эпитаксия при температуре подложки 780–850°C [31]. Затем выращивались МКЯ GaN/AlN при одинаковых технологических условиях и номинальных значениях толщины КЯ 1.5 мкм (0.37 нм) и общей толщины активных (светоизлучающих) областей около 1.5 мкм. В структурах число КЯ варьировалось от 6 до 350, что приводило к соответствующему изменению толщины барьерных слоев AlN от 3.7 до 250 нм, значения толщины которых использовались для обозначения структур как S-A, где A — толщина барьерного слоя в нм. Рост барьерных слоев проводился при температуре 720°C в слегка обогащенных Al условиях, и для связывания избыточного Al перед ростом каждой ямы поверхность структур экспонировалась в потоке активного азота [32]. МКЯ выращивались при неизменной температуре подложки и отношении потоков Ga и активированного азота  $Ga/N_2^* = 2.7$ . Предполагалось, что весь избыточный Ga испарялся с поверхности растущей структуры в процессе роста барьерных слоев AlN.

Топографии поверхности структур изучались в атомно-силовом микроскопе (АСМ) модели Solver P47 Pro, изготовленном NT-MDT. Оптические свойства структур исследовались с помощью измерений спектров фотопропускания и КЛ. Для измерений первых использовался спектрофотометр Hitachi U-3900. Спектры оптического пропускания измерялись на площади  $1 \times 5 \text{ мм}^2$ , и интенсивность пропускания измерялась в относительных единицах вследствие матовой поверхности обратной стороны подложек.

Спектры КЛ измерялись на самодельной лабораторной установке при их непрерывном возбуждении электронным пучком с энергией от 3 до 30 кэВ и максимальным током до 5 мкА. При диаметре электронного пучка 1 мм концентрация неравновесных пар в КЯ не превышала  $10^8 \text{ см}^{-2}$ . Гетероструктуры закреплялись с помощью серебряной пасты на медном держателе, охлаждаемом вплоть до температуры 15 К. Оптическая система была построена по схеме «на отражение» и собирала излучение с облучаемой электронами поверхности в телесном угле, равном примерно 0.1стерадиан. Излучение направлялось на входную щель спектрометра PGS-2, на выходной щели которого сигнал измерялся с помощью фотоэлектронного умножителя ФЭУ-100 с увиоле-

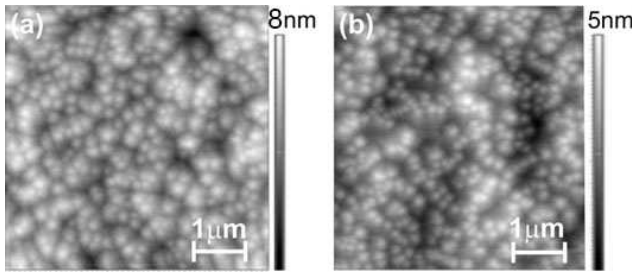


Рис. 1. Изображения поверхностей структур S-3.7 (a) и S-250 (b), полученные с помощью АСМ

вым окном. Для устранения поверхностных разрядов на поверхности высокоомных образцов пятно электронного пучка касалось участка структуры, заземленного с помощью серебряной пасты.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 представлены АСМ-изображения структур S-3.7 и S-250. Несмотря на существенное различие в числе КЯ в этих структурах, изображения их поверхности качественно одинаковы и значения среднеквадратичного отклонения шероховатости поверхности для обеих структур составляли примерно 1 нм. Одинаковые изображения поверхностей всех выращенных структур свидетельствуют об определяющей роли кинетики роста барьерных слоев в формировании морфологии поверхности структур с МКЯ в виде смежных холмиков (hillocks). Более детальные исследования поверхности показывают, что холмики образованы монослойными ступенями роста, в центре которых расположены винтовые прорастающие дислокации, обеспечивающие спиральный ступенчато-слоевой механизм роста гетероструктур с атомно-гладкой топографией поверхности ступеней [33]. Плотность холмиков составляет  $N_g \sim 10^9 \text{ см}^{-2}$ , что соответствует среднему расстоянию между вертикальными прорастающими дислокациями  $2r_{TD} \sim 300 \text{ нм}$ , поскольку  $N_g = 1/(\pi \cdot r_{TD}^2)$ . Предполагая, что прорастающие дислокации являются одним из наиболее важных факторов рассеяния носителей, расстояние между ними можно принять в качестве верхней оценки диффузионной длины носителей.

Для оценки возможного влияния собственного поглощения выходного излучения из МКЯ-структур были измерены их спектры оптического пропускания, которые приведены на рис. 2. Из сравнения этих спектров в спектральном диапазоне вблизи длины волны 240 нм видно, что пропускание для

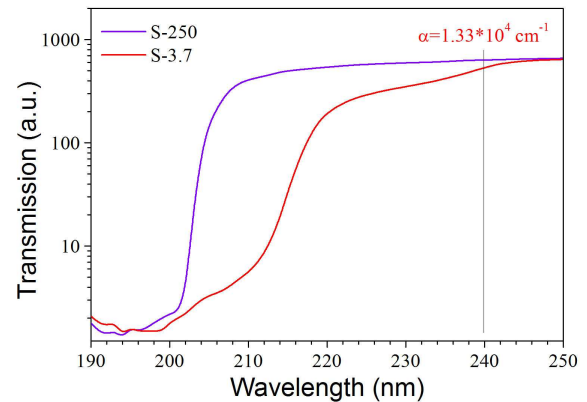


Рис. 2. Спектры пропускания структур GaN/AlN с МКЯ с разными значениями толщины барьерных слоев и числа КЯ

образца S-250 с 6 ямами лишь на 15.5% превышает пропускание в образце S-3.7 с 350 ямами, что соответствует коэффициенту поглощения в одной КЯ  $\alpha = 1.33 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$ . Собственное поглощение излучения в МКЯ-структуре можно оценить по формуле

$$I = I_0 \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \exp[-\alpha(i-1)h_{QW}], \quad (2)$$

где  $I_0$  — суммарная интенсивность всех КЯ внутри структуры. Для структуры S-3.7 с максимальным числом КЯ оценка отношения  $I/I_0$  по формуле (2) дает значение 0.92. Таким образом, даже в этой структуре внутренняя интенсивность излучения КЯ лишь на 8% выше интенсивности выходного излучения. Поэтому в дальнейшем эффект собственного поглощения не учитывался.

На рис. 3a представлены спектры КЛ исследуемой серии образцов при комнатной температуре и энергии электронов 30 кэВ, которая была выбрана для достижения более однородной накачки всех ям в МКЯ-структуре с общей толщиной около 1.5 мкм (для этой энергии глубина проникновения электронного пучка в слой AlN значительно превышает 2 мкм [11]). Все спектры КЛ демонстрируют основной пик с длиной волны  $240 \pm 0.9 \text{ нм}$ , что позволяет говорить не только о воспроизводимой технологии роста, но и об отсутствии эффекта перекрытия волновых функций носителей в соседних КЯ во всех структурах, включая S-3.7, с минимальной толщиной барьерных слоев 15 МС. Это соответствует теоретическим расчетам [34], в соответствии с которыми изменение эффективной ширины запрещенной зоны в сверхрешеточных структурах GaN/AlN (называемых в этом случае цифровыми твердыми



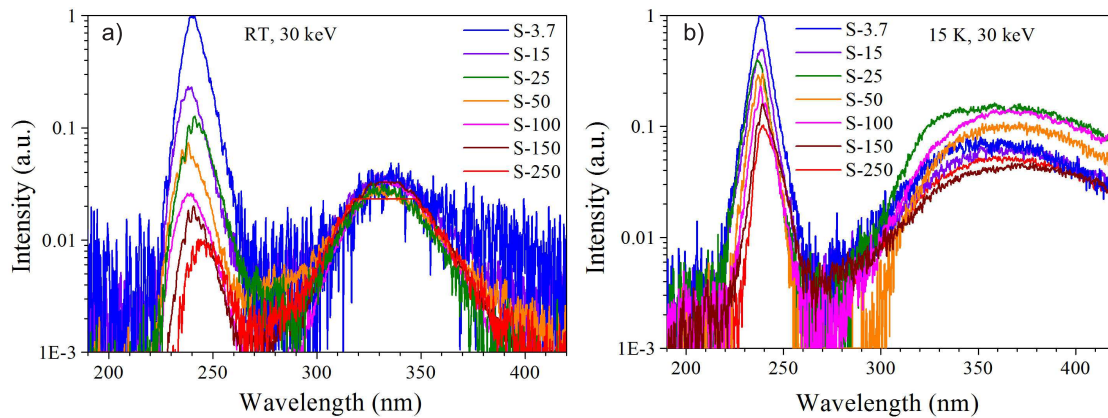


Рис. 3. *a* — Спектры КЛ, измеренные при температуре 300 К и энергии электронов 30 кэВ, для серии гетероструктур GaN/AlN с МКЯ. Спектры были нормированы по интенсивности длинноволновой линии. *b* — Спектры КЛ, измеренные при температуре 15 К и энергии электронов 30 кэВ, для той же серии образцов. Спектры не нормировались

растворами) должно наблюдаться в структурах с ультратонкими (менее 4 МС) барьерными слоями. Следовательно, каждая КЯ во всех образцах в исследуемой серии гетероструктур GaN/AlN может рассматриваться независимо от других.

В спектрах КЛ всех структур также присутствует длинноволновый пик с максимумом вблизи 330 нм. Однако при накачке электронами с энергией 10 кэВ этот пик отсутствует в спектре КЛ (не показано). Это свидетельствует о связи этого пика с возбуждением сапфировой подложки под электронным пучком, достигающим ее лишь при высоких энергиях (более 20 кэВ). Можно предположить, что при одинаковых условиях роста структур интенсивности длинноволновых пиков излучения, связанных с сапфировыми подложками, должны быть одинаковы для всех структур и эта интенсивность может быть использована для нормировки спектров КЛ структур при их возбуждении электронами с энергией 30 кэВ. Такая нормировка была сделана на рис. 3 *a*.

При низкой температуре,  $T = 15$  К, спектр длинноволнового излучения имеет более сложный вид, не повторяющийся от структуры к структуре (рис. 3 *b*). Поэтому в этом случае спектры не нормировались по длинноволновому излучению.

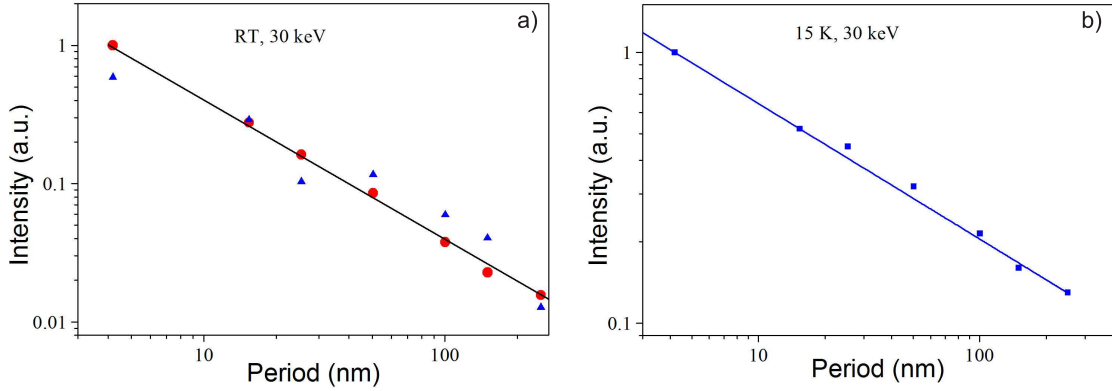
На рис. 4 *a* представлена зависимость интенсивности основной УФС-линии в спектрах КЛ от периода МКЯ-структуры при комнатной температуре. Синими треугольниками показана зависимость без нормировки по интенсивностям длинноволновых линий. Разброс данных связан с неточностью юстировки оптической схемы регистрации спектра, различавшейся для каждой структуры. Меньший

разброс данных получается, если спектры нормировались по интенсивности длинноволновой линии. Этому случаю соответствуют данные, обозначенные красными кружками. Эти данные хорошо ложатся на зависимость  $I \propto P^{-1}$ , представленную на рис. 4 *a* прямой линией в логарифмическом масштабе.

На рис. 4 *b* показана зависимость интенсивности КЛ от периода МКЯ, измеренная при  $T = 15$  К. Здесь интенсивности коротковолновой УФС-линии различных структур не нормировались по интенсивности длинноволновой линии. На данном графике прямая, хорошо описывающая экспериментальные данные (синие квадраты), соответствует зависимости  $I \propto \sqrt{P}$ . В низкотемпературной серии интенсивность пика КЛ в образце S-3.7 всего лишь на порядок больше интенсивности аналогичного пика в образце S-250 с наибольшим периодом, в то время как для спектров КЛ этих образцов, измеренных при комнатной температуре (рис. 4 *a*), это различие достигает почти два порядка.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Анализ спектров КЛ будем проводить в предположении однородной по глубине генерации носителей высокоэнергетическими электронами (около 30 кэВ) и амбиполярной диффузии этих носителей, не приводящей к зарядке КЯ. Однако и в этом предположении показанная на рис. 4 *a* обратно пропорциональная зависимость интенсивности пика КЛ от периода МКЯ-структур не позволяет простым и однозначным образом определить основные параметры, влияющие на эффективность излучательной рекомбинации в гетероструктурах GaN/AlN с МКЯ, —



**Рис. 4.** Зависимости в логарифмическом масштабе интенсивностей УФС пиков КЛ ( $I$ ) от периода МКЯ структур ( $P$ ) при комнатной температуре (а) и  $T = 15$  К (b): экспериментальные данные, полученные при нормировке по интенсивности длинноволновой линии (красные кружки) и без этой нормировки (синие треугольники и квадраты). Прямые на рис. 4 а, b соответствуют зависимостям  $I \propto P^{-1}$  и  $I \propto \sqrt{P}$  соответственно

диффузионную длину носителей в барьерных слоях,  $L_d$ , и эффективность (вероятность) захвата носителей квантовыми ямами,  $\zeta$ . С одной стороны, наблюдение этой зависимости может свидетельствовать о малых значениях  $L_d$ , поскольку для структур с варьируемым периодом  $P = H_b + h_{QW}$ , где  $H_b$  — варьируемая толщина барьерных слоев и  $h_{QW}$  — постоянная толщина КЯ, интенсивность КЛ определяется формулой

$$I_{CL} \propto \frac{2L_d + h_{QW}}{P} \quad (3)$$

во всем диапазоне значений периода  $P > 2L_d$ . Поэтому наблюдение этой зависимости вплоть до очень небольших значений периода (4 нм) может быть истолковано как свидетельство малых значений  $L_d$  в исследуемых структурах. При этом не важно, какова эффективность захвата  $\zeta$  неравновесных носителей в КЯ. С другой стороны, обратно-пропорциональную зависимость от  $P$  можно получить и в случае больших длин диффузии ( $L_d \gg P$ ), если  $\zeta$  мала:

$$I_{CL} \propto \frac{L_d \zeta}{P}. \quad (4)$$

Таким образом, наблюдаемая в исследуемой серии структур обратно пропорциональная зависимость  $I_{CL} \sim P^{-1}$  в широком диапазоне (вплоть до  $P \sim 4$  нм) может трактоваться неоднозначно. Кроме того, приведенная на рис. 4 b зависимость интенсивности КЛ от толщины периода при низкой температуре (15 К) не соответствует обратно пропорциональному закону, что свидетельствует о необходимости более сложного описания данной зависимости.

Для одновременного учета диффузии неравновесных носителей и эффективности их захвата КЯ мы проанализировали решения стационарного уравнения диффузии в виде

$$D_a \frac{d^2 n(z)}{dz^2} - \frac{n(z)}{\tau} - \frac{n(z)}{\tau_c} F_N(z) + \Phi(z) = 0, \quad (5)$$

$$F_N(z) = \sum_{i=1}^N \exp\left(-\frac{(z - P_i - z_0)^4}{w^4}\right),$$

где  $z$  отсчитывается от поверхности в глубину структуры,  $w = 0.5h_{QW}$ , для барьерных слоев AlN коэффициент амбиполярной диффузии  $D_a$  определяется диффузией тяжелых дырок  $D_{hh}$  ( $D_a \simeq 2D_{hh} = 0.6$  см<sup>2</sup>/с [9]),  $F_N(z)$  — функция, описывающая пространственное распределение КЯ от поверхности структуры с координатой центра первой ямы  $z_0$  (показатель степени в этой гипергауссовой функции пропорционален крутизне границ КЯ, и для упрощения вычислений было выбрано его значение равное 4);  $\Phi(z)$  — распределение электронной накачки, которое принималось однородным по всей глубине структуры толщиной 1.5 мкм при энергии электронов накачки 30 кэВ. Поскольку в этой работе анализируется эффективность сбора неравновесных носителей в ямы при малых токах накачки, то абсолютные значения концентрации неравновесных носителей и интенсивности накачки не играют никакой роли и уравнение (5) зависит только от двух параметров —  $\tau$  и  $\tau_c$ .

В уравнении (5) в пределах КЯ рассматриваются лишь те неравновесные электроны (дырки), которые находятся на энергетических уровнях дна зо-

ны проводимости (потолка валентной зоны) барьерных слоев соответственно. Если эти неравновесные носители захватываются на нижележащие энергетические уровни в КЯ, то они больше не участвуют в процессе диффузии. Данный процесс захвата неравновесных носителей характеризуется уменьшением времени жизни диффундирующих неравновесных носителей над КЯ до значения  $\tau\tau_c/(\tau + \tau_c)$ . Эффективность захвата в этом случае можно записать в виде  $\zeta = \tau/(\tau + \tau_c)$ .

Процесс захвата неравновесного носителя в КЯ является квантово-механическим процессом [23]. При малых уровнях накачки основным механизмом захвата является переход носителя из надбарьерных энергетических уровней на вышележащий уровень в КЯ с испусканием фонона. Вероятность этого процесса пропорциональна квадрату интеграла перекрытия волновых функций исходного и конечного состояний носителя. В результате время захвата может зависеть от параметров структуры, в частности от ширины и глубины КЯ. Тем не менее процесс захвата носителей в структурах с МКЯ может быть рассмотрен в рамках классической модели диффузии с введением локального в КЯ времени жизни [23].

Далее предполагаем превышение толщины буферного слоя по сравнению  $L_d$ , отсутствие поверхностной рекомбинации и нахождение первой КЯ на расстоянии половины периода от поверхности структуры. Все эти предположения не являются принципиальными — в частности можно учесть и поверхностную рекомбинацию (хотя для AlN характерна ее низкая скорость [35]), и неоднородность возбуждения согласно ионизационной кривой, и конечную толщину буферного слоя. Однако эти предположения существенно облегчают проведение вычислений согласно уравнению (5).

Из уравнения (5) мы сначала находим концентрацию неравновесных носителей  $n_0(z) = \tau\Phi(z)$  без учета диффузии и захвата носителей в КЯ. Далее находим распределение неравновесных носителей  $n_1(z)$  при заданных значениях  $\tau$  и  $\tau_c$ . Тогда эффективность сбора неравновесных носителей в КЯ находится из формулы

$$\eta = 1 - \frac{\int_0^H n_1(z) dz}{\int_0^H n_0(z) dz}, \quad (6)$$

где  $H$  — толщина активной части структуры. Эффективность сбора неравновесных носителей для структуры S-3.7 с наибольшим количеством КЯ и показывающей максимальную интенсивность излу-

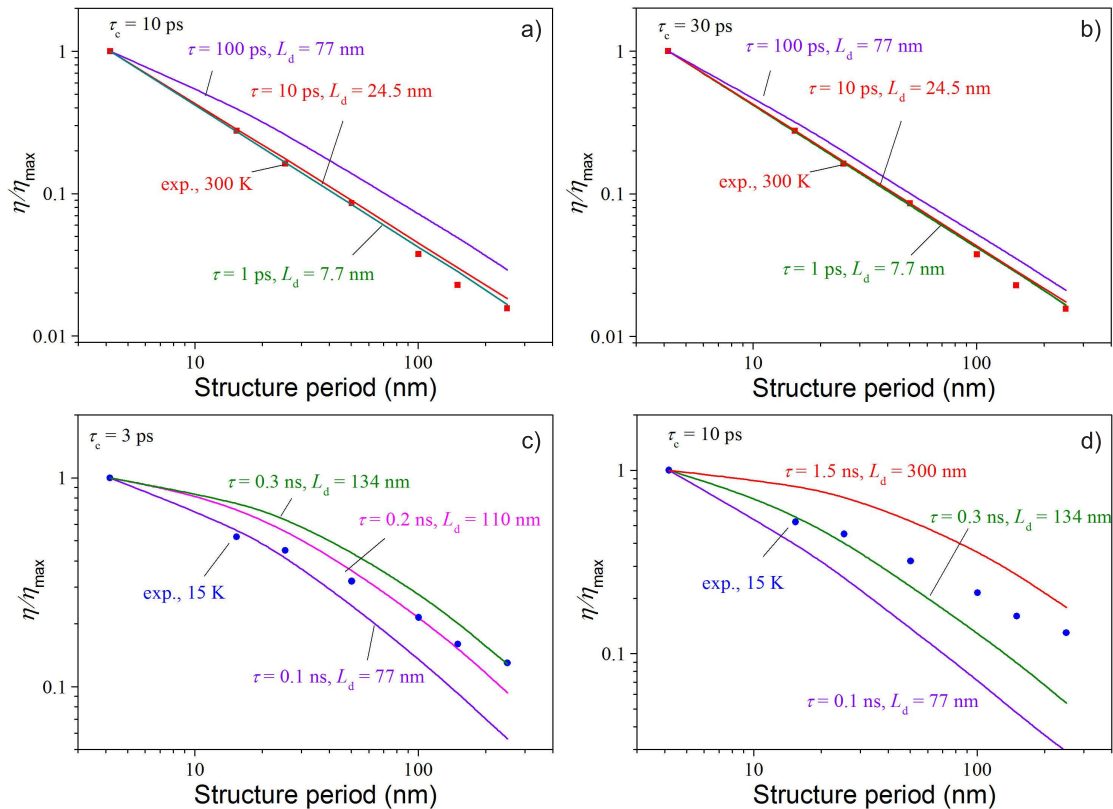
чения на длине волны 240 нм далее обозначаем как  $\eta_{max}$ .

На рис. 5 представлены нормированные зависимости эффективности сбора носителей в КЯ  $\eta/\eta_{max}$  от периода структуры, рассчитанные согласно формуле (6) при разных значениях  $\tau$  и  $\tau_c$ . Здесь также представлены нормированные экспериментальные зависимости в предположении, что внутренний квантовый выход излучения МКЯ зависит только от температуры и одинаков во всех структурах, а сравнительная интенсивность коротковолновой линии излучения определяется только эффективностью сбора носителей в КЯ, значения которой различаются для исследуемых структур.

В расчете предполагалось, что коэффициент диффузии равен  $D = 0.6 \text{ см}^2/\text{с}$  и длина диффузии в барьерном слое AlN изменялась в основном за счет изменения времени жизни носителей в этом слое. Варьирование  $D$  в разумных пределах не дает существенного изменения в расчетных кривых. Из рис. 5 а и б следует, что экспериментальные зависимости, полученные при комнатной температуре, хорошо описываются расчетными зависимостями, полученными при времени захвата  $\tau_c = 10\text{--}30 \text{ пс}$ , когда длина диффузии не превышает 25 нм. Более точную оценку  $L_d$  из этих рисунков получить не удастся.

Экспериментальные зависимости при низкой температуре  $T = 15 \text{ К}$  хуже описываются расчетными кривыми. Тем не менее из рис. 5 с и d следует, что экспериментальные данные находятся между расчетными кривыми, полученными в предположении  $L_d = 110\text{--}134 \text{ нм}$  и  $\tau_c = 3\text{--}10 \text{ пс}$ .

Наблюдаемое возрастание низкотемпературной диффузионной длины примерно в пять раз, по сравнению с ее значением при комнатной температуре, в целом соответствует результатам работы [7], в которой исследовались температурные зависимости диффузионной длины в GaN-слоях, выращенных также ПА МПЭ. Последняя зависимость объяснялась примерно одинаковым, в пять раз, возрастанием таких значений, как время жизни носителей и амбиполярный коэффициент диффузии, что, согласно (1), и определяет наблюдаемую экспериментальную зависимость диффузионной длины. Согласно [7], возрастание времени жизни определяется снижением безызлучательной рекомбинацией носителей с понижением температуры, а возрастание коэффициента диффузии происходит вследствие определяющей роли в транспорте носителей их рассеяния на акустических и полярных оптических фононах. Другой возможной причиной повышения  $L_d$  с понижением температуры является образование элек-



**Рис. 5.** Расчетные зависимости нормированной эффективности сбора носителей в КЯ  $\eta/\eta_{max}$  от периода структуры при разных значениях времени захвата неравновесных носителей в КЯ,  $\tau_c = 3, 10, 30$  пс, и различных длинах диффузии.  $\eta_{max}$  — значение  $\eta$  для структуры с минимальным периодом 3.7 нм. На графиках нанесены также экспериментальные зависимости интенсивности излучения КЯ, нормированные на интенсивность для структуры с минимальным периодом, полученные при  $T = 300$  К (a, b — квадраты) и  $T = 15$  К (c, d — круги)

трически нейтральных экситонов с меньшей вероятностью рассеяния на заряженных дефектах структуры, как было показано для GaN в работе [16]. Похожие температурные зависимости наблюдались для различных нелегированных слоев GaN и в работах [36, 37]. Можно ожидать преобладание этих же механизмов и в наших МКЯ-структурах GaN/AlN с нелегированными слоями. Снижение времен захвата носителей КЯ при низких температурах может быть качественно объяснено уменьшением по мере снижения температуры обратного выброса носителей из уровней КЯ в состояния в валентной зоне.

На рис. 6 представлены ненормированные расчетные зависимости  $\eta(P)$  при комнатной и низкой температурах. Кроме того, на этих рисунках представлены экспериментальные кривые, умноженные на подгоночные коэффициенты для их лучшего соответствия одной из расчетных кривых. На рис. 6 a и b представлены результаты подгонки экспериментальных данных при  $T = 300$  К к расчетным кри-

вым при  $L_d = 24.5$  нм. В принципе, аналогичная подгонка может быть сделана и для кривых, соответствующих  $L_d = 7.7$  нм, но в этом случае необходимо предположить слишком малые значения эффективности сбора носителей даже для структуры с максимальным числом КЯ. Поэтому в этой аппроксимации наиболее правдоподобным выглядит предположение о значениях  $\tau_c = 10$  пс и  $L_d = 25$  нм.

Рисунки 6 c и 6 d показывают, что наилучшая подгонка экспериментальных данных при  $T = 15$  К достигается для расчетных кривых со значениями  $\tau_c = 3\text{--}10$  пс и  $L_d = 110\text{--}134$  нм. Однако при такой подгонке интенсивность излучения структуры с максимальным числом КЯ (350 КЯ) должна снижаться более чем на порядок при переходе от низкой (15 К) к комнатной температуре измерений, в то время как экспериментально наблюдаемое различие не превышает 1.5 раза. Одной из причин этого несоответствия может являться снижение вероятности излучения в КЯ из-за образования при низкой



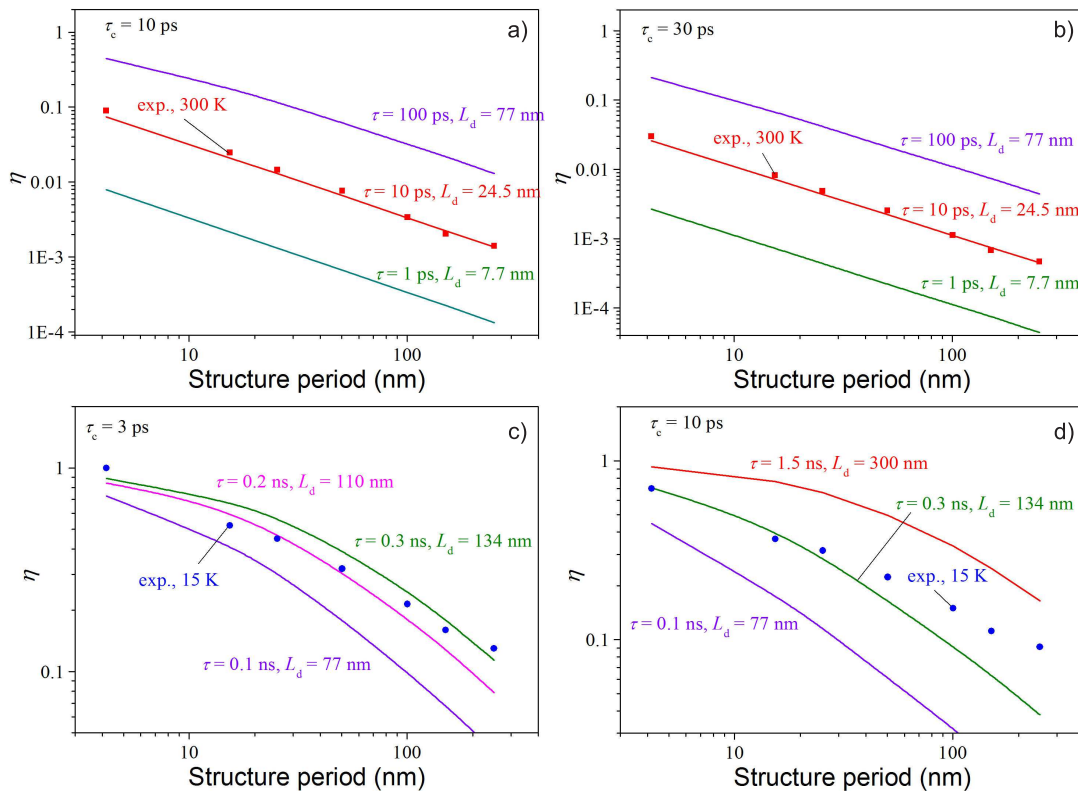


Рис. 6. Расчетные зависимости эффективности сбора носителей в квантовые ямы  $\eta$  от периода структуры при разных значениях времени захвата неравновесных носителей в КЯ,  $\tau_c = 3, 10, 30$  пс, и различных длинах диффузии. На графики нанесены также экспериментальные зависимости интенсивности излучения КЯ при  $T = 300$  К (а, б — квадраты) и  $T = 15$  К (с, д — круги), умноженные на некоторый коэффициент для подгонки к одной из расчетных кривых

температуре долгоживущих так называемых темных экситонов с параллельными спинами электрона и дырки [38, 39], характеризующимися малой скоростью излучательной рекомбинации по сравнению с безызлучательной рекомбинацией.

Отметим также, что установленные в данной работе низкие значения вероятности захвата носителей КЯ в целом соответствуют данным наших прошлых работ, в которых наблюдалось резкое уменьшение интенсивности УФС пиков КЛ при их смещении в более коротковолновую спектральную область за счет уменьшения толщины КЯ от 2 до 1 МС в гетероструктурах GaN/AlN с МКЯ [32]. Это полностью соответствует ожидаемому эффекту снижения вероятности захвата носителей в более тонких ямах.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе исследовались спектры КЛ для серии гетероструктур  $N \times \text{GaN}/\text{AlN}$  с МКЯ с неизменными значениями толщины КЯ 1.5 МС и общей

толщины МКЯ-структур 1.5 мкм, но с варьируемой толщиной барьерных слоев от 3.7 до 250 нм при соответствующем изменении  $N$  от 350 до 6. Спектры КЛ всех структур демонстрировали УФС-пики на неизменной длине волны вблизи 240 нм. Измерения проводились как при комнатной, так и низкой (15 К) температурах в условиях низкого уровня возбуждения, при которых концентрация неравновесных носителей в КЯ не превышала  $10^8 \text{ см}^{-2}$ . Обнаружено существенное уменьшение интенсивности УФС-излучения  $I_{CL}$  с увеличением периода повторения КЯ. При комнатной температуре это изменение соответствовало закону  $I_{CL} \propto P^{-1}$ , а при  $T = 15$  К наблюдалась корневая зависимость  $I_{CL} \propto \sqrt{P}$ . Для объяснения этих зависимостей решалось уравнение диффузии, учитывающее не только диффузионную длину носителей в барьерных слоях, но и не единичную эффективность захвата неравновесных носителей в монослойных КЯ. Сравнение расчетов с экспериментальными данными позволило дать лишь качественные оценки длины диффузии и эффективности захвата при разных температурах. При комнат-

ной температуре диффузионная длина носителей не превышает 25 нм и эффективность сбора неравновесных носителей в КЯ невысока  $\eta \sim 0.1$ . Эти значения обуславливают обратно пропорциональную зависимость  $I_{CL} \propto P^{-1}$  во всем диапазоне варьирования толщины барьерных слоев вплоть до минимальной толщины 3.7 нм. При снижении температуры до 15 К наблюдалось возрастание как длины диффузии неравновесных носителей (до  $\sim 135$  нм), так и эффективности сбора носителей в КЯ (до  $\eta \sim 0.7$ ). Это обуславливает изменение характера зависимости  $I_c(P)$ . Однако при низкой температуре интенсивность УФС КЛ из структуры с 350 КЯ увеличивается всего лишь в 1.5 раза по сравнению с ее интенсивностью при комнатной температуре, что возможно связано с экситонной природой КЛ и заполнением так называемых темных состояний экситонов при низких температурах.

**Финансирование.** Данная работа финансировалась Физическим институтом им. П. Н. Лебедева РАН в рамках Государственного задания по теме FFMR-2024-0017, а также Российским фондом фундаментальных исследований (проекты № 21-52-50004 и № 19-52-12057). Технологическая часть работы финансировалась Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (Соглашение № 075-15-2022-1224, «BiO-LIGHT»).

## ЛИТЕРАТУРА

1. Q. Cai, H. You, H. Guo et al., *Light Sci. Appl.* **10**, 94 (2021).
2. L. Guo, Y. Guo, J. Wang et al., *J. Semicond.* **42**, 081801 (2021).
3. V. K. Sharma and H. V. Demir, *ACS Photonics* **9**, 1513 (2022).
4. V. Jmerik, V. Kozlovsky, and X. Wang, *Nanomaterials* **13**, 2080 (2023).
5. Z. Z. Bandic, P. M. Bridger, E. C. Piquette et al., *Solid-State Electron.* **44**, 221 (2000).
6. S. Yu. Karpov and Y. N. Makarov, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4721 (2002).
7. O. Brandt, V. M. Kaganer, J. Lähnemann et al., *Phys. Rev. Appl.* **17**, 024018 (2022).
8. E. B. Yakimov, *J. Alloys Comp.* **627**, 344 (2015).
9. Y. Talochka, R. Aleksiejūnas, Ž. Podlipskas et al., *J. Alloys Comp.* **969**, 172475 (2023).
10. J. Mickevičius, R. Aleksiejūnas, M. S. Shur et al., *Phys. Status Solidi A* **202**, 126 (2005).
11. F. Tabataba-Vakili, T. Wunderer, M. Kneissl et al., *Appl. Phys. Lett.* **109**, 181105 (2016).
12. T. Matsumoto, S. Iwayama, T. Saito et al., *Opt. Express* **20**, 24320 (2012).
13. O. Lopatiuk-Tirpak, L. Chernyak, B. A. Borisov et al., *Appl. Phys. Lett.* **91**, 182103 (2007).
14. T. Malin, A. Gilinsky, V. Mansurov et al., *Phys. Status Solidi C* **12**, 447 (2015).
15. J. Barjon, J. Brault, B. Daudin et al., *J. Appl. Phys.* **94**, 2755 (2003).
16. B. Sheng, G. Schmidt, F. Bertram et al., *Photonics Res.* **8**, 610 (2020).
17. H. Shichijo, R. M. Kolbas, N. Holonyak, Jr. et al., *Solid State Commun.* **27**, 1029 (1978).
18. J. Y. Tang, K. Hess, N. Holonyak, Jr. et al., *J. Appl. Phys.* **53**, 6043 (1982).
19. O. Brandt, L. Tapfer, R. Cingolani et al., *Phys. Rev. B* **41**, 12599 (1990).
20. V. Jmerik, A. Toropov, V. Davydov et al., *Phys. Status Solidi (RRL)* **15**, 2100242 (2021).
21. С. В. Козырев, А. Я. Шик, *Физика и техника полупроводников* **19**, 1667 (1985) [S. V. Kozzyrev and A. Ya. Shik, *Sov. Phys. Semicond.* **19**, 1024 (1985)].
22. J. A. Brum and G. Bastard, *Phys. Rev. B* **33**, 1420 (1986).
23. P. W. M. Blom, C. Smit, J. E. M. Haverkort et al., *Phys. Rev. B* **47**, 2072 (1993).
24. I. N. Yassievich, K. Schmalz, and M. Beer, *Semicond. Sci. Technol.* **9**, 1763 (1994).
25. J. Brübach, A. Silov, J. E. M. Haverkort et al., *Phys. Rev. B* **61**, 16833 (2000).
26. M. Mösko and K. Kálna, *Semicond. Sci. Technol.* **14**, 790 (1999).
27. N. S. Mansour, K. W. Kim, and M. A. Littlejohn, *J. Appl. Phys.* **77**, 2834 (1995).
28. V. N. Stavrou, C. R. Bennett, M. Babiker et al., *Phys. Low-Dim. Struct.* **1/2**, 23 (1998).
29. M. Babiker, N. A. Zakhleniuk, C. R. Bennett et al., *Turkish J. Phys.* **23**, 2 (1999).
30. N. A. Zakhleniuk, C. R. Bennett, V. N. Stavrou et al., *Phys. Status Solidi A* **176**, 79 (1999).

- 31.** D. V. Nechaev, O. A. Koshelev, V. V. Ratnikov et al., *Superlattices Microstruct.* **138**, 106368 (2020).
- 32.** V. Jmerik, D. Nechaev, A. Semenov et al., *Nanomaterials* **13**, 1077 (2023).
- 33.** V. N. Jmerik, D. V. Nechaev, K. N. Orekhova et al., *Nanomaterials* **11**, 2553 (2021).
- 34.** W. Sun, C.-K. Tan, and N. Tansu, *Sci. Rep.* **7**, 11826 (2017).
- 35.** M. Boroditsky, I. Gontijo, M. Jackson et al., *J. Appl. Phys.* **87**, 3497 (2000).
- 36.** C. Netzel, V. Hoffmann, S. Einfeldt et al., *J. Electron. Mater.* **49**, 5138 (2020).
- 37.** C. Netzel, V. Hoffmann, J. W. Tomm et al., *Phys. Status Solidi B* **257**, 2000016 (2020).
- 38.** A. A. Toropov, E. A. Evropeitsev, M. O. Nestoklon et al., *Nano Lett.* **20**, 158 (2020).
- 39.** E. Evropeitsev, D. Nechaev, V. Jmerik et al., *Nanomaterials* **13**, 2053 (2023).