

УДК 537.533.35; 535.37; 535.08; 53.072

Оценка значений электрофизических параметров полупроводниковых материалов по результатам измерений катодолюминесценции экситонов

А. Н. Поляков, М. Noltemeyer, Т. Hempel, J. Christen, М. А. Степович

Показана возможность использования времяпролетных катодолюминесцентных измерений для оценки коэффициента диффузии и подвижности экситонов в одиночных квантовых ямах прямозонных полупроводниковых гетероструктур. Приведены результаты экспериментальных исследований перспективной для практического использования гетероструктуры ZnMgO/ZnO с ZnO-квантовой ямой. На основе анализа температурной зависимости подвижности экситонов (4,8—180 К) сделаны предположения о механизмах рассеяния, характерных для воздействия гетероперехода на границе квантовой ямы.

PACS: 78.60.Hk, 78.67.De, 71.35.-y, 68.35.-p

Ключевые слова: катодолюминесценция, экситон, квантовая яма, коэффициент диффузии, подвижность, рассеяние, оксид цинка.

Введение

Одной из характерных черт современного этапа развития опто-, микро- и наноэлектроники является широкое применение устройств (сверхвысоко-частотные полевые транзисторы, фотоприемные и светоизлучающие устройства и др.), технология создания которых основывается на применении многослойных материалов и гетероструктур, в том числе и с квантовыми ямами (КЯ). Актуальной задачей как при разработке и совершенствовании подобных гетероструктур, так и при создании полупроводниковых устройств на их основе является изучение влияния границы гетероперехода на процессы, происходящие в КЯ и зачастую определяющие рабочие характеристики таких устройств. Тесно с этим вопросом связана и задача диагностики качества материала границы гетероперехода.

В рамках поиска решения этих задач в данной работе рассматриваются некоторые возможности применения времяпролетных катодолюминесцентных (КЛ) измерений для изучения специфических

механизмов рассеяния, обусловленных влиянием интерфейсов гетеропереходов в многослойных гетероструктурах с КЯ.

Анализ состояния проблемы

Информация о механизмах рассеяния, характерных для исследуемого материала, может быть получена из анализа температурной зависимости подвижности носителей заряда и экситонов. В этом случае могут быть непосредственно выделены рассеяние на ионизированных примесях, фонах, границах доменов и рассеяние за счет влияния границ гетеропереходов (механические шероховатости, дипольные моменты, поляризация). Механизмы рассеяния, характеризующие влияние границы гетероперехода, наиболее выпукло проявляют себя при низких температурах (до десятков К), когда фононы "замерзают". Для носителей заряда при таких температурах доминирует рассеяние на ионизированных примесях, поэтому при анализе результатов таких исследований четко выделить влияние рассеяния на границах становится затруднительно или невозможно. Эта информация может быть получена при изучении (желательно, с последующим определением корреляции с результатами, полученными для носителей заряда) транспорта экситонов, которые испытывают рассеяние на ионах примесей в гораздо меньшей мере из-за своей электрической нейтральности. В силу последнего, электрические измерения, традиционно применяющиеся для анализа рассеяния носителей заряда, в этом случае не могут быть использованы, а так как экситоны рекомбинируют излучательно, то для исследований можно эффективно применять оптические, в том числе КЛ-измерения. Поэтому исследования излу-

Поляков Андрей Николаевич, аспирант.
Степович Михаил Адольфович, заведующий кафедрой.
Калужский государственный университет им. К. Э. Циолковского.
Россия, 248023, Калуга, ул. Степана Разина, 26.
Тел. 8 (4842) 57-61-20. E-mail: andrei-polyakov@mail.ru
Noltemeyer Martin, аспирант.
Hempel Thomas, научный сотрудник.
Christen Jurgen, заведующий кафедрой.
Otto-von-Guericke-Universität-Magdeburg.
Universitätsplatz 2, 39106, Magdeburg, Germany.
E-mail: martin.noltemeyer@ovgu.de

Статья поступила в редакцию 10 июня 2012 г.

© Поляков А. Н., Noltemeyer М., Hempel Т., Christen J., Степович М. А., 2012

чения экситона в КЯ довольно часто применяются для получения информации о многослойных материалах с КЯ. Например, в работе [1] предлагается использовать экситон в КЯ для контроля качества роста эпитаксиальных слоев, а в работах [2—4] описана возможность изучения механизмов рассеяния при помощи фотолюминесцентных исследований.

Большой интерес в настоящее время проявляется в отношении исследований широкозонных полупроводниковых материалов и гетероструктур, в частности, на основе оксида цинка и нитрида галлия, имеющих довольно близкие свойства. Это, безусловно, связано с тем, что в силу свойств этих материалов полупроводниковые устройства, изготовленные на их основе, могут работать, в частности, при высоких напряжениях и в неблагоприятных условиях внешней среды [5—11]. В данной работе в развитие этого направления будут исследованы некоторые свойства гетероструктуры ZnMgO/ZnO с одиночной КЯ (в виде слоя ZnO), которая является перспективным кандидатом для создания нового современного сверхвысокочастотного полевого транзистора.

Схема эксперимента и теоретическая модель

Для КЛ-исследований механизмов рассеяния в многослойных полупроводниковых гетероструктурах может быть использована схема времяпролетных измерений, представленная на рис. 1. В качестве объектов здесь используются полупроводниковые образцы, частично покрытые непроницаемой для КЛ-излучения маской, имеющей круглые отверстия различного диаметра (порядка предполагаемой диффузионной длины экситонов). Ранее такая геометрия образца уже показала свою высокую эффективность в фотолюминесцентных экспериментах по определению температурной зависимости подвижности экситонов в КЯ гетероструктур на основе арсенида галлия, в которых использовалась математическая модель, основанная на численном решении двумерных уравнений диффузии экситонов [2—4]. В данной работе будет описана математическая модель, полученная на основе аналитического решения уравнений диффузии и реализуемая при использовании приведенной схемы эксперимента в КЛ-измерениях и, вообще говоря, отличающаяся от предложенной в [2—4] ввиду некоторых различий в постановке задачи. В частности, при реализации КЛ-измерений ширина области генерации экситонов гораздо меньше диаметра отверстия (в фотолюминесцентных измерениях [2—4] диаметр отверстия меньше диаметра используемого светового пучка), а большее на три порядка время возбуждающего воздействия ведет (с учетом характерных времен

происходящих при взаимодействии электронов пучка с материалом мишени процессов [12]) к установлению в результате диффузии стационарного распределения экситонов иной формы, отличной от характерной для фотолюминесцентных измерений, которая совпадает с гауссовым профилем возбуждающего воздействия.

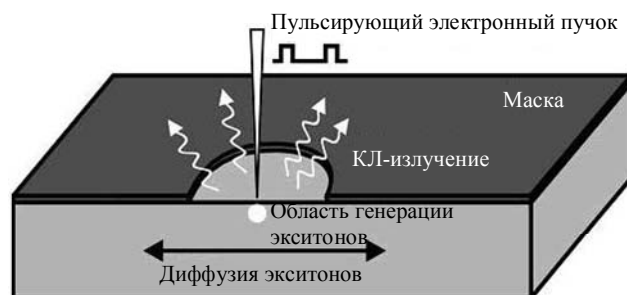


Рис. 1. Схема облучения образца и регистрации КЛ-излучения

Возбуждение КЛ-излучения в рассматриваемом эксперименте осуществляется пульсирующим электронным зондом растрового электронного микроскопа (РЭМ) с длительностью импульса электронного пучка порядка десятков наносекунд. В результате такого воздействия в объеме образца формируется стационарное распределение генерированных частиц (дырок, электронов, экситонов), которому соответствует квазиравновесие между процессами рекомбинации и генерации носителей заряда. Если электронный пучок отклоняется от образца (например при помощи системы бланкирования), то интенсивность КЛ-излучения начинает спадать за счет преобладания процесса рекомбинации. Информация о том или ином механизме рекомбинации может быть получена, если сигнал локальной КЛ регистрируется в области оптического спектра, характерной для его проявления. В случае, если измерения проводятся в открытой области образца (вдали от края маски), то спад кинетики КЛ-экситонов может быть довольно хорошо описан экспоненциальной моделью

$$I(t) = I_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right), \quad (1)$$

где I — интенсивность КЛ;
 I_0 — константа;
 t — время, прошедшее с момента отклонения электронного пучка от образца;
 τ — время жизни экситонов.

Применение методов оценки параметров функциональных зависимостей для анализа экспериментальных данных с использованием этой математической модели дает возможность в этом случае непосредственно получать значение τ по результатам проведенных измерений.

Если измерения осуществляются при возбуждении КЛ в центре одного из отверстий в маске, то спад кинетики КЛ (при корректном выборе диаметра отверстия) происходит быстрее, чем в открытой области образца за счет того, что часть экситонов успевает диффундировать под маску и рекомбинировать там. При двумерном транспорте экситонов (например в КЯ) и низком уровне возбуждения интенсивность КЛ-эмиссии I из области круглого отверстия H в маске радиуса R в зависимости от времени t , прошедшего с момента отклонения электронного пучка, пропорциональна их плотности, просуммированной по области H [13], т. е.

$$I(t) \cong \iint_H c(x, y, t) ds, \quad (2)$$

где $c(x, y, t)$ — концентрация экситонов в точке с координатами (x, y) . Концентрация экситонов $c(x, y, t)$ может быть найдена как решение нестационарного дифференциального уравнения диффузии

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\Delta c - \frac{c}{\tau} \quad (3)$$

с начальным условием

$$c(x, y, 0) = n(x, y). \quad (4)$$

Здесь $\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$ — двумерный оператор

Лапласа, D — коэффициент для экситонов, τ — время жизни экситонов. Функция $n(x, y)$ может быть найдена как решение стационарного дифференциального уравнения, описывающего диффузию экситонов в состоянии квазиравновесия, т. е.

$$D\Delta n - \frac{n}{\tau} = -\Phi(x, y), \quad (5)$$

где $\Phi(x, y)$ — функция источника генерации экситонов, которая определяется характером возбуждения и свойствами материала. В случае узкого электронного пучка область генерации экситонов описывается функцией распределения Гаусса, что дает для правой части (4) выражение вида $G_0\varphi(x, y)$. Здесь $\varphi(x, y)$ — плотность двумерного нормального распределения Гаусса, а G_0 — частота генерации экситонов.

Анализ соотношений (2)—(5) показывает, что затухание кинетики КЛ из отверстия зависит, в общем случае, от его диаметра, времени жизни экситонов τ и коэффициента диффузии экситонов D , характеризующего их движение под маску. Первые две величины могут быть получены непосредственно по результатам экспериментальных измерений. Поэтому, если известно решение диф-

ференциальных уравнений (3)—(5), соотношение (2) может быть использовано для решения обратной задачи определения коэффициента диффузии экситонов D . Проводя измерения при различных температурах, в результате вычислений можно получить зависимость коэффициента диффузии D от температуры, которая при помощи соотношения Эйнштейна дает возможность получить температурную зависимость подвижности экситонов μ .

Таким образом, для того чтобы получить математическую модель кинетики КЛ из круглого отверстия, необходимо найти решение уравнений (3)—(5) и подставить в выражение (1). После чего полученное выражение уже может быть использовано для решения обратной задачи по идентификации коэффициента диффузии экситонов.

Для уравнения (4) с использованием метода функций Грина получено [14] аналитическое решение в виде

$$n(r) = I_0 \left(\frac{r}{\lambda} \right) \int_r^\infty \Phi(r) K_0 \left(\frac{r}{\lambda} \right) r_0 dr_0 + K_0 \left(\frac{r}{\lambda} \right) \int_0^r \Phi(r) I_0 \left(\frac{r}{\lambda} \right) r_0 dr_0, \quad (6)$$

где r — полярный радиус;
 $I_0(x), K_0(x)$ — модифицированные функции Бесселя нулевого порядка первого и второго рода, соответственно;
 $\lambda = \sqrt{D\tau}$ — диффузионная длина экситонов;
 r_0 — переменная интегрирования.

Согласно признаку Абеля—Дирихле, несобственный интеграл в первом слагаемом (6) сходится, причем абсолютно [15]. Функция (6) при $r \rightarrow \infty$ обращается в нуль, а при $r \rightarrow 0$ она принимает вид, совпадающий с выражением для концентрации экситонов в начале координат, которое может быть получено для решения задачи на основе метода функции точечного источника [14, 16]. Таким образом, полученное решение (6) для уравнения (5) полностью соответствует физическому смыслу поставленной задачи.

Решение для нестационарного уравнения диффузии (3) с начальным условием (4) может быть получено аналитически с учетом решения стационарного уравнения диффузии (6) в форме

$$c(r, t) = \frac{\exp(-t/\tau)}{2Dt} \int_0^\infty \exp\left(-\frac{r^2 + \xi^2}{4Dt}\right) I_0\left(\frac{r\xi}{2Dt}\right) n(\xi) d\xi. \quad (7)$$

Проведенное исследование свойств функции (7) в предельных случаях ($t \rightarrow 0, t \rightarrow \infty, r \rightarrow 0$ и $r \rightarrow \infty$) показало, что полученное решение также полностью соответствует физическому смыслу поставленной задачи [16, 17].

Подстановка полученного решения для концентрации экситонов (7) в формулу (2) дает следующее окончательное выражение для зависимости спада кинетики КЛ от времени

$$I(t) \cong \frac{\pi \exp(-t/\tau)}{Dt} \times \int_0^R \int_0^\infty \exp\left(-\frac{r^2 + \xi^2}{4Dt}\right) I_0\left(\frac{r\xi}{2Dt}\right) n(\xi) r \xi dr d\xi, \quad (8)$$

которое в предельном случае $R \rightarrow \infty$ ведет к

$$I(t) \cong 2\pi \exp(-t/\tau) \int_0^\infty n(\xi) \xi d\xi. \quad (9)$$

В полученном выражении (9) произведение интеграла и удвоенного π дает общее число генерированных в объеме образца экситонов, а $\exp(-t/\tau)$ показывает уменьшение их числа в результате рекомбинации. Таким образом, в предельном случае $R \rightarrow \infty$, который соответствует непокрытому маской образцу, полученная формула (8) соответствует классической экспоненциальной модели убывания интенсивности КЛ в результате рекомбинации (1), описанной выше.

Результаты и их обсуждение

В качестве объекта экспериментального исследования выступал образец гетероструктуры ZnMgO/ZnO с КЯ в виде слоя ZnO, выращенный напылением конденсацией из газовой фазы по технологии PVD. Испарение осуществлялось лазерным лучом (PLD). Образец был получен М. Брандтом (Dr. M. Brandt) в лаборатории Университета г. Лейпцига (Leipzig Universität, Германия) под руководством профессора М. Грюндмана (Prof. Dr. rer. nat. M. Grundmann). Образец был выращен на подложке из сапфира, на которой находится сначала буферный слой ZnO, имеющий толщину около 120 нм, затем первый барьерный слой ZnMgO — около 70 нм, слой КЯ (слой ZnO) — 4—5,4 нм и второй барьерный слой ZnMgO — около 15 нм. Поверхность образца частично была покрыта титановой маской толщиной около 160 нм с круглыми отверстиями. Маска была получена по следующей технологии: на поверхность образца помещались полистироновые шарики различного диаметра (0,1—2 мкм), после этого образец покрывался титаном, а затем шарики удалялись.

На рис. 2 представлен интегральный спектр КЛ исследуемого образца гетероструктуры ZnMgO/ZnO, полученный при температуре $T = 4,5$ К и ускоряющем напряжении электронного пучка $V_{Acc} = 5$ кВ. Самый большой пик $\sim 3,77$ эВ принадлежит излучению барьерного слоя ZnMgO. Такая энергия со-

ответствует содержанию около 15 % магния в растворе ZnMgO [17]. Ступенька $\sim 3,38$ эВ характеризует излучение буферного слоя ZnO, а пик $\sim 3,246$ эВ — излучательную рекомбинацию экситонов в квантовой яме ZnO. Ступеньки $\sim 3,174$ и $\sim 3,102$ эВ соответствуют LO-фононным повторениям пика излучения КЯ (~ 72 мэВ).

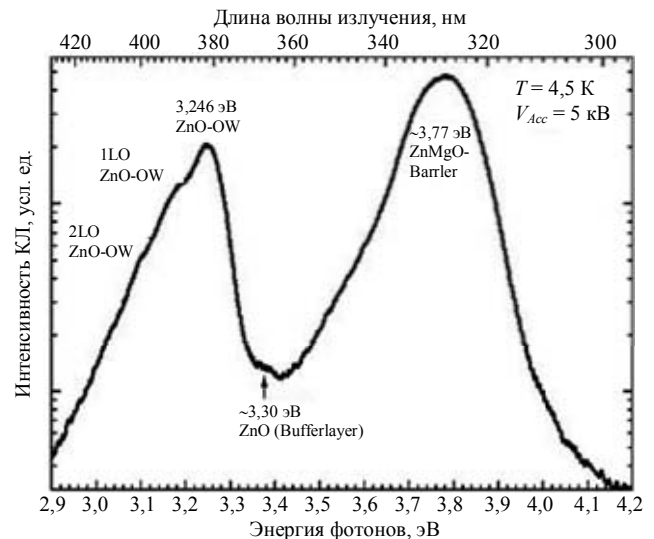


Рис. 2. Интегральный КЛ-спектр исследуемого образца гетероструктуры ZnMgO/ZnO, полученный при температуре $T = 4,5$ К и ускоряющем напряжении электронного пучка $V_{Acc} = 5$ кВ

Экспериментальные КЛ измерения проводились в открытой области образца, а также в практически круглом отверстии в титановой маске радиусом $R = 0,73$ мкм для различных температур в диапазоне 4,8—180 К. Сигнал КЛ регистрировался на частоте, соответствующей излучательной рекомбинации экситонов в КЯ. Характер изменения спада кинетики в открытой области образца с увеличением температуры соответствовал уменьшению времени жизни экситонов τ . Количественные данные о зависимости τ отобразены на рис. 3. Здесь τ убывает от 3,75 нс при 4,8 К до 0,38 нс при 180 К.

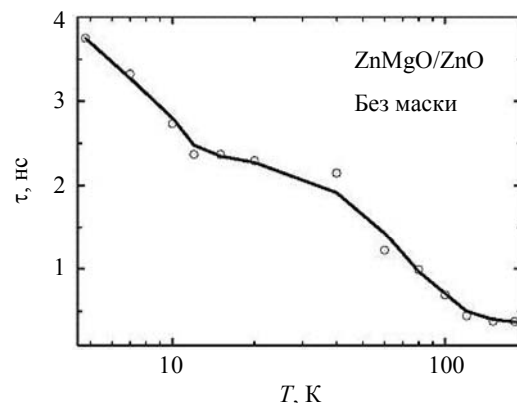


Рис. 3. Характер изменения спада кинетики КЛ-излучения в открытой области образца с увеличением температуры

Значения $\tau(T)$ использовались для оценки значений коэффициента диффузии экситонов $D(T)$ в КЯ. При расчетах использовались экспериментальные данные кинетики КЛ из отверстия радиусом $R = 0,73$ мкм и математическая модель кинетики КЛ, описанная выше. При расчетах принималось, что профиль области возбуждения описывается функцией Гаусса. Диаметр электронного зонда принимался равным $d_b = 10$ нм, что соответствует характеристикам применяемой измерительной аппаратуры. Полученная в результате обработки результатов эксперимента зависимость $D(T)$ представлена на рис. 4. Значения коэффициента диффузии D возрастают от $0,25$ см²/с при $4,8$ К до $1,4$ см²/с при 180 К.

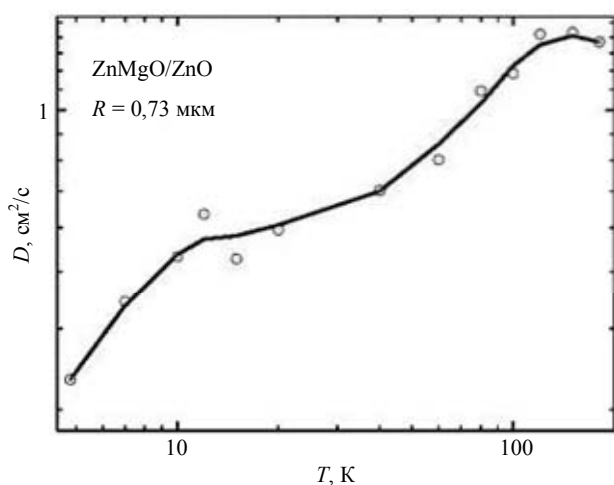


Рис. 4. Зависимость коэффициента диффузии от температуры $D(T)$, полученная по результатам обработки результатов измерений

С использованием соотношения Эйнштейна непосредственно на основе зависимости $D(T)$ была получена зависимость подвижности μ от температуры, которая изображена на рис. 5. В промежутке между температурами $4,8$ и 12 К график имеет плато около 600 см²/Вс, что может означать высокое качество интерфейса гетероперехода. Для более высоких температур значения μ убывают, как $\mu \sim T^{-\frac{2}{3}}$. Это близко к $\mu \sim T^{-\frac{1}{2}}$, что соответствует рассеянию на акустических фононах (пьезоэлектрический механизм) [18]. Кривая $\mu \sim T^{-\frac{1}{2}}$ (см. рис. 5) также хорошо описывает полученные экспериментальные данные и во всем диапазоне измерений ($4,8$ — 180 К) без отделения плато. Понимание природы плато может быть получено после дополнительных исследований на других образцах, полученных как в условиях для изученного образца, так и в иных условиях, которые будут проведены в дальнейших работах.

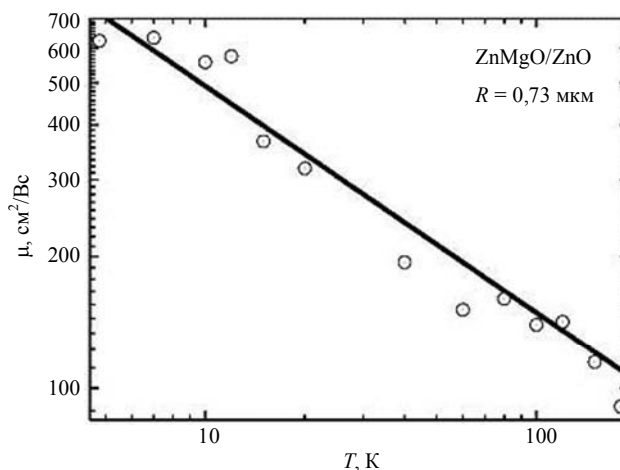


Рис. 5. Зависимость подвижности μ экситонов от температуры T

Заключение

Представлены результаты экспериментальных времяпролетных катодолюминесцентных исследований образца полупроводниковой гетероструктуры ZnMgO/ZnO (с квантовой ямой ZnO), покрытого титановой маской специальной геометрии [19]. Показана возможность применения такой конфигурации образца для оценки коэффициента диффузии и подвижности свободного экситона в квантовой яме. Анализ температурной зависимости подвижности позволил сделать предположение о механизмах рассеяния, характерных для влияния границ гетероперехода квантовой ямы. Полученные результаты могут быть использованы при проектировании и создании полупроводниковых устройств на основе оксида цинка, а описанная схема экспериментальных измерений может быть применена для исследований рассеяния и в других гетероструктурах с квантовыми ямами, полученных на основе иных полупроводниковых материалов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Германской службы академических обменов и Министерства образования и науки РФ.

Литература

1. Петров В. И. // УФН. 1996. Т. 166. № 8. С. 859.
2. Hillmer H., Forchel A., Hansmann S. et al. // Phys. Rev. B. 1989. V. 39. No. 15. P. 10901.
3. Hillmer H., Hansmann S., Forchel A. et al. // Appl. Phys. Lett. 1988. V. 53. No. 20. P. 1937.
4. Hillmer H., Forchel A., Sauer R., Tu C. W. // Phys. Rev. B. 1990. V. 42. No. 5. P. 3220.
5. Properties, processing and application of GaN and related semiconductors / Ed. by J. H. Edgar. — London: INSPEC, 1999.
6. Morkoc H. Nitride semiconductors and devices. — Berlin: Springer-Verlag, 1999.
7. Yu E., Manasreh M. III—V nitride semiconductors: Applications and devices. — N. Y.: Taylor&Francis Group, 2002.

8. Zamfirescu M. et al. // Phys. Rev. B. 2002. V. 65. No. 16. P. 161.
9. Pearton S. J. et al. // Progress in Materials Science. 2005. V. 50. No. 3. P. 293.
10. Zhong L. W. // J. Phys.: Condens. Matter. 2004. V. 16. No. 25. P. R829.
11. Xu C. X. et al. // J. Appl. Phys. 2004. V. 95. V. 2. P. 661.
12. Гуро Г. // УФН. 1960. Т. 72. № 4. С. 711.
13. Петров В. И. // Там же. 1996. Т. 166. С. 859.
14. Поляков А. Н. / Наноинженерия-2010: Сб. тр. третьей всероссийской школы-семинара студентов, аспирантов, молодых ученых по направлению "Наноинженерия". — М., 2010. С. 359.
15. Зорич В. А. Математический анализ. — М.: Наука, 1981.
16. Поляков А. Н., Степович М. А. / Сб. науч. работ лауреатов областных премий и стипендий. Вып. 6. — Калуга: КГУ им. К. Э. Циолковского. 2010. С. 127.
17. Поляков А. Н., Нолтемейер М., Христен Д. и др. / Радиационная физика твердого тела: Труды XX Междунар. совещания. — М., 2010. Т. 1. С. 118.
18. Schmidt R. et al. // Appl. Phys. Lett. 2003. V. 82. No. 14. P. 2260.
19. Ю П., Кордона М. Основы физики полупроводников. — М.: Физматлит, 2002.

Estimation of values of electrophysical parameters of semiconductor materials by results of measurements of excitons cathodoluminescence

A. N. Polyakov, M. A. Stepovich

Kaluga State University named after K. E. Tsiolkovsky
26 Stepan Rasin str., Kaluga, 248023, Russia
E-mail: andrei-polyakov@mail.ru

M. Noltemeyer, T. Hempel, J. Christen

Otto-von-Guericke-Universität-Magdeburg,
2 Universitätsplatz, Magdeburg, 39106, Germany
E-mail: martin.noltemeyer@ovgu.de

Possibility of time-of-flight cathodoluminescence measurements usage for an estimation of diffusion constant and mobility of excitons in single quantum well in direct-gap semiconductor heterostructures is shown. Results of experimental researches of ZnMgO/ZnO heterostructure with ZnO quantum well that is perspective for practical usage are presented. On the basis of the analysis of excitons mobility temperature dependence (4,8—180 K) assumptions of influence of quantum well border heterointerface scattering mechanisms are formulated.

PACS: 78.60.Hk, 78.67.De, 71.35.-y, 68.35.-p

Keywords: cathodoluminescence, exciton, quantum well, diffusion coefficient, mobility, scattering, zinc oxide.

Bibliography — 19 references.

Received June 10, 2012