

УДК 537.533.35; 535.37

## О практической реализации одной схемы времяпролётных измерений в катодолюминесцентной микроскопии

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

*Описана методика времяпролётных катодолюминесцентных исследований полупроводниковых образцов, покрытых светонепроницаемой маской специальной геометрии. Приведены результаты экспериментальных измерений затухания катодолюминесценции для образцов монокристаллического нитрида галлия в широком диапазоне температур (5—300 К). Показана возможность практической реализации данной методики в катодолюминесцентных исследованиях.*

PACS: 78.60.Nk, 78.55.Cr, 71.35.-y

*Ключевые слова:* катодолюминесценция, экситон, коэффициент диффузии, подвижность, рассеяние, нитрид галлия, время жизни.

### Введение

Проблема исследования транспорта экситонов в полупроводниковом материале вызывает интерес как с теоретической точки зрения описания физических процессов, так и с практической точки зрения технологии создания, совершенствования и применения полупроводниковых устройств. Ранее [1—4] нами было показано, что низкотемпературные времяпролётные катодолюминесцентные (КЛ) исследования транспорта экситонов для полупроводниковых образцов, покрытых светонепроницаемой маской специальной геометрии, позволяют получить информацию о действующих в материале механизмах рассеяния, которые затруднительно или невозможно выделить при традиционных электрических исследованиях транспорта носителей заряда (НЗ). Например, из анализа зависимости подвижности экситонов от температуры можно больше узнать о рассеянии на границах гетеропереходов или поверхности образца (влияние механических шероховатостей, дипольных моментов, поляризации). Такие механиз-

мы рассеяния наиболее выпукло проявляют себя при низких температурах (до десятков кельвинов). Для НЗ при таких температурах доминирует рассеяние на ионизированных примесях, в отличие от электрически нейтральных экситонов. Однако к недостаткам используемого нами ранее подхода стоит отнести то, что методика измерений применялась лишь при условии генерации экситонов в узкой (по сравнению с размерами экситонов и размерами образца) области образца, в первую очередь, в квантовой яме (КЯ). Исходя из этих соображений, при анализе результатов эксперимента использовалась математическая модель латеральной двумерной диффузии экситонов (и соответствующая ей модель КЛ).

В данной работе предыдущий результат будет обобщен в виде описания методики проведения измерений и обработки их результатов на случай цилиндрической области генерации и трехмерной диффузии экситонов, что может позволить расширить область применения предлагаемого подхода. Будет показана и доказана возможность реализации предложенной методики и схемы времяпролётных измерений и для объёмных образцов монокристаллических широкозонных полупроводниковых материалов. Среди таких материалов большой интерес в настоящее время проявляется в отношении исследований широкозонных полупроводниковых материалов и гетероструктур 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 том числе, при высоких напряжениях и в неблагоприятных условиях внешней среды [5—11]. В данной работе в развитие этого направления при помощи предложенной

**Поляков Андрей Николаевич**, научный сотрудник<sup>1</sup>.

**Noltemeyer Martin**, докторант<sup>2</sup>.

**Hempel Thomas**, научный сотрудник<sup>2</sup>.

**Jürgen Christen**, заведующий кафедрой<sup>2</sup>.

**Степович Михаил Адольфович**, профессор<sup>1</sup>.

<sup>1</sup>Калужский государственный университет им. К. Э. Циолковского.

Россия, 248023, Калуга, ул. Степана Разина, 26.

Тел. (4842) 57-61-20. E-mail: andrei-polyakov@mail.ru

<sup>2</sup>Otto-von-Guericke-Universität-Magdeburg.

Universitätsplatz 2, 39106, Magdeburg, Germany.

E-mail: martin.noltemeyer@ovgu.de

Статья поступила в редакцию 1 июня 2015 г.

© Поляков А. Н., Noltemeyer М., Hempel Т., Jürgen С., Степович М. А., 2015

методики измерений будут исследованы некоторые свойства образцов монокристаллического нитрида галлия.

### Схема эксперимента и методика измерений

Для экспериментальных времяпролётных исследований диффузии экситонов в рассматриваемых случаях предлагается использовать образцы, покрытые непроницаемой для КЛ-излучения маской, имеющей круглые отверстия различного диаметра. Использование масок различной геометрии не является редкостью для разного рода времяпролётных измерений. Ранее такая геометрия образца была реализована для фотолюминесцентных (ФЛ) [12—14] и КЛ-экспериментов [2—4] по исследованию подвижности экситонов в КЯ материалов на основе арсенида галлия (ФЛ-эксперимент), нитрида галлия [2] и оксида цинка [3, 4] (КЛ-эксперимент). При обработке результатов измерений здесь использовались математические модели, основанные как на численном (ФЛ), так и на аналитическом (КЛ) решениях двумерных уравнений диффузии экситонов.

Эксперимент осуществляется следующим образом. Катодолюминесцентное излучение возбуждается в центре отверстия при помощи пульсирующего электронного пучка с длительностью импульса порядка десятков наносекунд и регистрируется в области спектра, характерной для рекомбинации свободных экситонов. После того, как в образце установится равновесие между процессами генерации и рекомбинации, возбуждение прекращается, т. е. электронный пучок отклоняется системой бланкирования. При корректном выборе диаметра отверстия спад интенсивности КЛ происходит быстрее, чем в открытой области образца за счет того, что часть экситонов диффундирует под маску и рекомбинирует там. Характер спада интенсивности КЛ зависит в общем случае только от известного радиуса отверстия  $R$ , времени жизни экситонов  $\tau$ , которое может быть получено из измерений в открытой области образца вдали от края маски (с использованием при расчетах классической экспоненциальной модели затухания КЛ), а также от коэффициента диффузии  $D$ , характеризующего их движение под маску. Это может позволить при наличии математической модели, описывающей спад интенсивности КЛ, на основе анализа экспериментальных данных получать оценки коэффициента диффузии экситонов путем решения соответствующей обратной задачи.

Проводя измерения при различных температурах, в результате вычислений можно затем получить зависимость коэффициента диффузии  $D$  от температуры, которая при помощи соотношения

Эйнштейна дает возможность получить температурную зависимость подвижности экситонов  $\mu$ , а также и диффузионной длины экситонов  $\lambda$ . Соответствующая математическая модель может быть получена в результате численного или аналитического решения трёхмерных уравнений диффузии экситонов с последующим их интегрированием с учётом геометрии маски и области генерации экситонов.

### Результаты и их обсуждение

В качестве объекта экспериментального исследования выступали образцы монокристаллического нитрида галлия, которые были получены методом химического осаждения из газовой фазы с использованием металлоорганических соединений (metalorganic vapour phase epitaxy — MOVPE) в лабораториях Института Фердинанда Брауна, г. Берлин, Германия (Ferdinand-Braun-Institut). Они были покрыты тонкой (160 нм) золотой маской, полностью непроницаемой для КЛ излучения. Для получения круглых отверстий в маске перед её нанесением на поверхность помещались полистироловые шарики различного диаметра (от десятых долей до единиц микрометра), которые удалялись после напыления золота. На рис. 1 представлена микрофотография поверхности такого образца с круглыми отверстиями в маске. Анализ изображения показывает, что при использовании подобного метода получения образцов отверстия в маске получаются практически правильной круглой формы с довольно ровными краями.

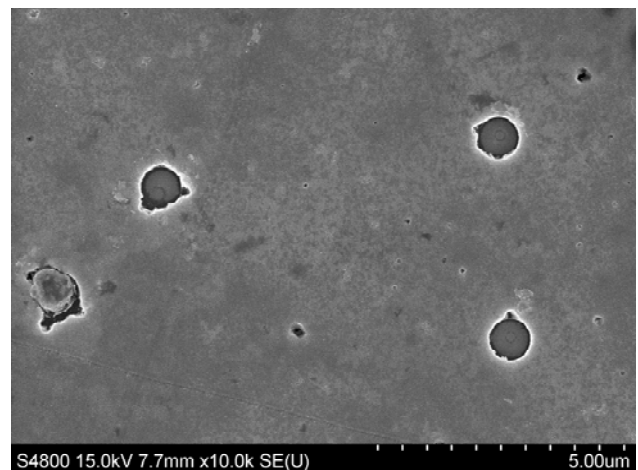


Рис. 1. Микрофотография в обратных электронах образца GaN с круглыми отверстиями в золотой маске

На рис. 2 представлен интегральный спектр КЛ исследуемого образца GaN, полученный при различных температурах в диапазоне от 5 до 300 К и ускоряющем напряжении  $V_{Acc} = 5$  кВ. Анализ спектров КЛ исследуемых образцов, полученных

при различных температурах, показывает наличие как свободных, так и связанных экситонных состояний во всем исследуемом диапазоне температур от 5 до 300 К. Стрелкой помечена слабовыраженная ступенька в коротковолновой области, соответствующая по своему энергетическому положению свободному экситону [15—17]. Ее наличие подтверждает то, что описанные образцы можно использовать для исследований транспорта экситонов.

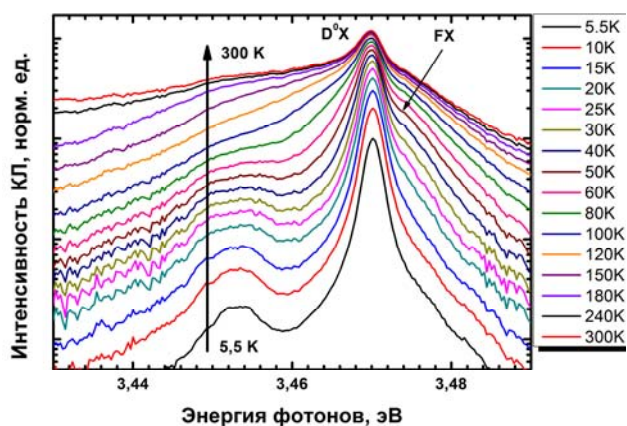


Рис. 2. Спектр катодолуминесценции образца монокристаллического GaN при различных температурах. Стрелкой указан участок, характерный для рекомбинации свободных экситонов

Экспериментальные КЛ-измерения проводились в открытой области образца и в практически круглом отверстии в золотой маске радиусом  $R = 0,6$  мкм для различных температуры в диапазоне 5—300 К. Сигнал КЛ регистрировался на частоте, соответствующей излучательной рекомбинации свободных экситонов. Характер изменения спада интенсивности КЛ в открытой области образца с увеличением температуры соответствовал увеличению времени жизни экситонов  $\tau$ . Количественные данные о зависимости  $\tau$  отображены на рис. 3 (верхняя кривая и круглые точки на ней):  $\tau(T)$  возрастает от 236 пс при 5 К до 461 пс при 300 К при незначительном снижении между 100 и 150 К. Характер же изменения спада интенсивности КЛ в отверстии с увеличением температуры соответствовал увеличению времени жизни экситонов в отверстии  $\tau_h$ . Под временем жизни экситонов в отверстии  $\tau_h$  здесь понимается величина, соответствующая времени жизни экситонов в классической экспоненциальной модели затухания КЛ, если эта модель применяется для описания результатов измерений из отверстия. Количественные данные о зависимости  $\tau_h$  также отображены на рис. 3 (нижняя кривая и квадраты на ней):  $\tau_h(T)$  возрастает от 193 пс при 5 К до 273 пс при 300 К при незначительном снижении между 100 и 150 К.

Таким образом, температурные зависимости времени жизни экситонов  $\tau$  и времени жизни экситонов в отверстии  $\tau_h$  изменяются при повышении температуры качественно одинаково. При этом время жизни экситонов в отверстии  $\tau_h$  всегда значительно меньше времени жизни экситонов  $\tau$  в открытой области образца, что позволяет сделать вывод о возможности использования данных образцов и данных результатов измерений для оценки коэффициента диффузии, а также подвижности и диффузионной длины экситонов.

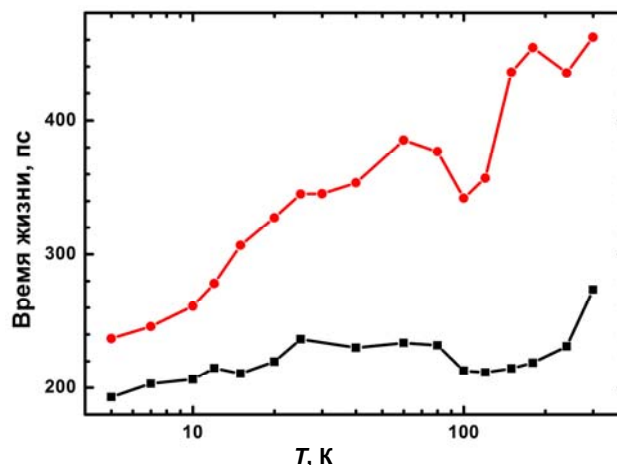


Рис. 3. Температурная зависимость времени жизни  $\tau$  экситонов (верхняя кривая и круглые точки на ней) и времени жизни экситонов в отверстии  $\tau_h$  (нижняя кривая и квадраты на ней) в образце монокристаллического GaN; диаметр отверстия 1,2 мкм

## Заключение

Основные результаты работы, отраженные в данной статье, можно изложить следующим образом.

Описана методика времяпролетных катодолуминесцентных исследований полупроводниковых образцов, покрытых светонепроницаемой маской специальной геометрии. Приведены результаты экспериментальных измерений затухания катодолуминесценции для образцов монокристаллического нитрида галлия в широком диапазоне температур (5—300 К) в открытой области образца и из круглого отверстия в светонепроницаемой маске.

На основе анализа результатов измерений показана возможность практической реализации данной методики в практике катодолуминесцентных исследований объёмных образцов монокристаллических широкозонных полупроводниковых материалов.

Полученные результаты в дальнейшем будут использованы для получения температурных зависимостей коэффициента диффузии, диффузи-

онной длины и подвижности экситонов в нитриде галлия, а также для формулировки предположений о механизмах рассеяния, характерных для данных образцов.

*Исследования проведены при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (государственное задание, проект № 1416), а также Российского фонда фундаментальных исследований и правительства Калужской области (проект № 14-42-03062).*

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Поляков А. Н., Noltemeyer M., Hempel T. и др. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2011. № 11. С. 35.
2. Поляков А. Н., Noltemeyer M., Hempel T. и др. // Прикладная физика. 2012. № 6. С. 41.
3. Поляков А. Н., Noltemeyer M., Hempel T. и др. // Известия РАН. Серия физическая. 2012. Т. 76. № 9. С. 1082.

4. Noltemeyer M. et al. // Journal of Materials Research. 2012. V. 27. Issue 17. P. 2225.
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. No. 2. P. 661.
12. Hillmer H., Forchel A., Hansmann S. et al. // Phys. Rev. B. 1989. V. 39. No. 15. P. 10901.
13. Hillmer H., Hansmann S., Forchel A. et al. // Appl. Phys. Lett. 1988. V. 53. No. 20. P. 1937.
14. Hillmer H., Forchel A., Sauer R., et al. // Phys. Rev. B. 1990. V. 42. No. 5. P. 3220.
15. Monemar B. et al. // MRS Internet J., Nitride Semicond. 1996. V. 1. No. 2. P. 70.
16. Buyanova I. A. et al. // Appl. Phys. Lett. 1996. V. 69. No. 9. P. 1255.
17. Зубрилов А. С. и др. // ФТП. 1999. Т. 33. № 10. С. 1173.

## About the practical implementation of same time-of-flight measurements scheme in cathodoluminescence microscopy

*A. N. Polyakov<sup>1</sup>, M. Noltemeyer<sup>2</sup>, T. Hempel<sup>2</sup>, J. Christen<sup>2</sup>, and M. A. Stepovich<sup>1</sup>*

<sup>1</sup>Tsiolkovsky Kaluga State University  
26 Stepana Rasina str., Kaluga, 248023, Russia  
E-mail: andrei-polyakov@mail.ru

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

*Received June 1, 2015*

***The technique of time-of-flight cathodoluminescence measurements of semi-conductive samples is covered by a lightproof mask with a special geometry. The results of experimental measurements of cathodoluminescence transient for bulk samples of gallium nitride in a wide temperature range (5—300 K) are shown. The results based on the analysis of the measurements show the possibility of practical implementation of this methodology in practice of cathodoluminescent studies.***

PACS: 78.60.Hk, 78.55.Cr, 71.35.-y

**Keywords:** cathodoluminescence, exciton, diffusion coefficient, mobility, scattering, gallium nitride, lifetime.

#### REFERENCES

1. A. N. Polyakov, M. Noltemeyer, T. Hempel, et al., J. Surf. Invest.: X-ray, Synchrotron Neutron Tech., No. 11, 35 (2011).
2. A. N. Polyakov, M. Noltemeyer, T. Hempel, et al., Prikladnaya Fizika, No. 6, 41 (2012).

3. A. N. Polyakov, M. Noltemeyer, T. Hempel, et al., *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* **76**, 1082 (2012).
4. M. Noltemeyer et al., *Journal of Materials Research*. **27**, 2225 (2012).
5. *Properties, Processing and Application of GaN and Related Semiconductors*. Ed. by J. H. Edgar. (London: INSPEC, 1999).
6. H. Morkoc, *Nitride Semiconductors and Devices*. (Berlin: Springer-Verlag, 1999).
7. E. Yu and M. Manasreh, *III-V Nitride Semiconductors: Applications and Devices*. (N.Y.: Taylor&Francis Group, 2002).
8. M. Zamfirescu et al., *Phys. Rev. B*. **65**, 161 (2002).
9. S. J. Pearton et al., *Progress in Materials Science* **50**, 293 (2005).
10. L. W. Zhong, *J. Phys.: Condens. Matter*. **16**, R829 (2004).
11. C. X. Xu et al., *J. Appl. Phys.* **95**, 661 (2004).
12. H. Hillmer, A. Forchel, S. Hansmann, et al., *Phys. Rev.* **39**, 10901 (1989).
13. H. Hillmer, S. Hansmann, A. Forchel, et al., *Appl. Phys. Lett.* **53**, 1937 (1988).
14. H. Hillmer, A. Forchel, R. Sauer, et al., *Phys. Rev. B*. **42**, 3220 (1990).
15. B. Monemar et al., *MRS Internet J., Nitride Semicond.* **1** (2), 70 (1996).
16. I. A. Buyanova et al., *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1255 (1996).
17. A. S. Zubrilov et al., *Semiconductors* **33**, 1173 (1999).