

А.В. ЗІНОВЧУК,¹ В.С. СЛІПОКУРОВ²

¹ Житомирський державний університет імені Івана Франка

(Вул. Велика Бердичівська, 40, Житомир 10008, Україна; e-mail: zinovchuk.a@zu.edu.ua)

² Інститут фізики напівпровідників ім. В.Є. Лашкарьова НАН України

(Просп. Науки, 45, Київ 02000, Україна)

ОЖЕ-РЕКОМБІНАЦІЯ В ПОЛЯРНИХ InGaN/GaN КВАНТОВИХ ЯМАХ

УДК 546.711.49

Проведено розрахунок швидкості оже-рекомбінації в полярних квантових ямах $In_xGa_{1-x}N/GaN$ на основі моделі повних енергетичних зон. Ключовими складовими розрахункової моделі були зонні структури об'ємних бінарних нітридів (GaN та InN), що отримувалися методом емпіричного псевдопотенціалу, та зонні структури квантових ям $In_xGa_{1-x}N/GaN$ (для різних x), що отримувалися методом лінійної комбінації об'ємних зон. Розраховано залежність коефіцієнтів оже-рекомбінації від ширини забороненої зони, товщини квантової ями та концентрації носіїв заряду. Результати розрахунку показують, що оже-коефіцієнти в квантових ямах набагато слабше залежать від ширини заборонної зони, ніж у випадку об'ємних $In_xGa_{1-x}N$ сполук. Залежність оже-коефіцієнтів від товщини ями має сильний осциляційний характер. При високих концентраціях носіїв заряду спостерігається значне спадання оже-коефіцієнтів, що є наслідком впливу статистики Фермі на розподіл носіїв заряду по квантових станах.

Ключові слова: InGaN квантові ями, оже-рекомбінація, поляризація.

1. Вступ

Оже-рекомбінація в нітридних сполуках має важливе значення, оскільки вона розглядається як один з можливих внутрішніх механізмів, відповідальних за зниження ефективності роботи світло-випромінюючих пристроїв на основі InGaN/GaN квантових структур. Експериментальним підтвердженням цьому допущенню є роботи [1–3], де повідомляється про виявлення “гарячих” електронів, збуджених різними типами оже-процесів в активній області світлодіодів InGaN/GaN. Декілька кількісних експериментальних оцінок для коефіцієнта оже-рекомбінації в InGaN/GaN світлодіодах було зроблено шляхом порівняння результатів вимірювань диференціального часу життя носіїв заряду та розрахунку на основі моделі рекомбінаційних коефіцієнтів (ABC-модель) [4–7]. Ці оцінки

показують досить велике розходження в отриманих величинах для оже-коефіцієнтів, що призводить до подальших дискусій щодо важливості оже-рекомбінації в нітридах. В роботі [8] відмічається, що точні значення швидкості оже-рекомбінації залишаються неясними через те, що експериментально важко розрізнити різні механізми втрат носіїв заряду без введення додаткових феноменологічних допущень при інтерпретації отриманих результатів вимірювань.

Крім експериментальних оцінок, було також виконано кілька розрахунків коефіцієнтів оже-рекомбінації в нітридах. Ранні дослідження стосувалися переважно об'ємних InGaN сполук. Розрахунки швидкості прямого механізму оже-рекомбінації передбачають дуже сильну залежність оже-коефіцієнта від ширини забороненої зони InGaN сполуки [9, 10]. Непрямі механізми за участю фонів були досліджені в рамках теорії збурень [11] і золотого правила Фермі другого порядку [12]. Результати досліджень впливу неупорядкованої атомної структури сполук на оже-рекомбінацію представлені в роботах [13, 14]. В об'ємних матеріалах швидкість оже-рекомбінації обмежується за рахунок жорстких умов одночасного ви-

Цитування: Зіновчук А.В., Сліпокуров В.С. Оже-рекомбінація в полярних InGaN/GaN квантових ямах. *Укр. фіз. журн.* **70**, №9, 628 (2025).

© Видавець ВД “Академперіодика” НАН України, 2025. Стаття опублікована за умовами відкритого доступу за ліцензією CC BY-NC-ND (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

конання законів збереження енергії та імпульсу для носіїв заряду. В структурах пониженої розмірності ці умови пом'якшуються. Наприклад, у двовимірних структурах або квантових ямах збереження імпульсу виконується лише для складової, що лежить у площині ями. Це досить сильно впливає на швидкість рекомбінації. Крім того, конкретно для нітридних квантових структур, треба врахувати ще одну особливість, пов'язану з тим, що переважна більшість таких структур для випромінюючих приладів вирощені вздовж полярного кристалографічного напрямку (*c*-напрямок) на сапфірових підкладках. Відомо, що псевдоморфне вирощування в *c*-напрямку призводить до появи сильних спонтанних та п'єзоелектричних поляризаційних полів [15], які можуть впливати на швидкість оже-рекомбінації. Більшість розрахунків швидкості оже-рекомбінації у InGaN/GaN квантових ямах спираються на *kp*-модель зонної структури у наближенні огинаючих функцій [16–18]. Результати робіт [17] і [18] показують, що швидкість оже-рекомбінації є достатньо високою, щоб пояснити падіння ефективності в нітридних світлодіодах. Тим не менш, розрахунки роботи [16] передбачають значення швидкості оже-рекомбінації, які є набагато меншими, ніж у [17] і [18]. Однією із причин такої невідповідності може бути обмеженість *kp*-моделей, які адекватно описують лише край енергетичних зон, тоді як під час рекомбінаційних процесів носії наряді переходять у високоенергетичні стани, що лежать далеко від країв зон. Щоб подолати проблеми з *kp*-моделями, в роботі [19] було використано повну зонну структуру (метод емпіричного псевдопотенціалу). Результати цього розрахунку дають оже-коефіцієнт в InGaN квантових ямах, який є порівняним з величинами, що передбачаються розрахунками для непрямих процесів в об'ємних InGaN сполуках [11]. Однак, робота [19] не враховує полярні властивості нітридних структур і фокусується лише на квантовій ямі зі складом $x = 0,25$ (In_{0,25}Ga_{0,75}N/GaN). Одна із останніх робіт із цієї тематики базується на повністю атомістичному описі рекомбінаційного процесу [20]. Розрахункова модель цієї роботи здатна врахувати вплив локальних флуктуацій розташування атомів індію в квантовій ямі на швидкість рекомбінації. Представлені результати показують, що різні конфігурації розташування атомів індію в квантовій ямі з фіксованим вмістом *x* призво-

дять до випадкових відхилень швидкості оже-рекомбінації в межах від 10^{-32} до 10^{-29} см⁶с⁻¹, що є занадто великою варіацією, зважаючи на наявні експериментальні дані. Тому, потрібні подальші дослідження оже-рекомбінації у In_xGa_{1-x}N/GaN квантових ямах, щоб зрозуміти роль оже-переходів у світловипромінюючих приладах. Особливо це стосується квантових ям з високим вмістом $x > 0,5$, які нещодавно почали використовуватися в світлодіодах з червоним випромінюванням [21] і для яких взагалі відсутні теоретичні оцінки швидкості оже-рекомбінації.

В даній роботі ми провели розрахунок швидкості прямого оже-процесу в полярних In_xGa_{1-x}N/GaN ямах з різним вмістом *x* від 0,1 до 0,6, що відповідає оптичним переходам від фіолетової до червоної ділянки видимого спектра. Наша модель ґрунтується на енергетичній зонній структурі квантових ям, що отримувалася методом лінійної комбінації повних об'ємних зон бінарних GaN та InN які, в свою чергу, описувалися методом емпіричного псевдопотенціалу.

2. Теоретична модель

Згідно з методом лінійної комбінації об'ємних зон, хвильова функція в системах пониженої розмірності представляється у вигляді суперпозиції функцій Блоха об'ємних матеріалів, що входять до складу систем. В роботі [22] показано, для 2D систем типу квантових ям, досить важливим є правильний вибір базисних функцій Блоха для представлення. При належному виборі, рівняння Шредінгера для шуканої хвильової функції 2D структури в базисі функцій Блоха являє собою відокремлену задачу на знаходження власних значень для кожного хвильового вектора, який належить двовимірній зоні Бріллюена системи. Тобто вектор можна вважати “квантовим числом”, що “нумерує” квантові стани в 2D структурах. Для полярної In_xGa_{1-x}N/GaN квантової ями, що вирощена вздовж *z*-напрямку реального простору, рівняння Шредінгера у представленні об'ємних функцій Блоха має вигляд

$$\begin{aligned} \langle n(\mathbf{k}, k_z) | H | n'(\mathbf{k}, k'_z) \rangle = & \\ = \frac{2\pi}{L_z} \sum_{n', k'_z} E_{\text{Bulk}}^{(n)}(\mathbf{k}, k_z) \delta_{k_z, k'_z} \delta_{n, n'} + & \\ + \sum_{G_z} U(k'_z + G_z - k_z) \langle u_{n(\mathbf{k}, k_z - G_z)} | u_{n'(\mathbf{k}, k'_z)} \rangle & \quad (1) \end{aligned}$$

де $E_{\text{Bulk}}^{(n)}(\mathbf{k}, k_z)$ – енергія, пов’язана з функцією Блоха $|n(\mathbf{k}, k_z)\rangle$ об’ємного матеріалу; k_z – компонента хвильового вектора вздовж напрямку квантування; $\mathbf{k}$ – хвильовий вектор у 2D зоні Бріллюена; $U(k_z)$ – фур’є-образ потенціалу квантового обмеження; $\langle u_{n(\mathbf{k}, k_z - G_z)} | u_{n'(\mathbf{k}, k'_z)} \rangle$ – інтеграл перекриття між періодичними частинами функцій Блоха; L_z – довжина квантової структури, що пов’язана з періодичними граничними умовами; G_z – z -компонента тих векторів оберненої ґратки об’ємних матеріалів, які мають нульову компоненту в площині, що паралельна квантовій ямі $\mathbf{G} = (0, G_z)$.

В 2D системах періодичність потенціалу кристалічної ґратки порушується лише в одному z -напрямку. Тому, потенціал квантового обмеження залежить лише від однієї просторової координати z . Як наслідок, фур’є-образ потенціалу також є функцією лише k_z компоненти хвильового вектора. Підсумовування в рівнянні (1) проходить по дискретному набору k'_z компонентів хвильового вектора та номерам об’ємних зон n' . Набір повинен задовольняти умову $k_z \neq k'_z + G_z$ для всіх G_z . У випадку нітридів з кристалічною ґраткою типу вюрциту, $G_z = \pm 2\pi/c$ (де c – стала ґратки в полярному напрямку). Тому значення для k'_z належать інтервалу $[-\pi/c; \pi/c]$. Як вже зазначалося, вектори $\mathbf{k}$ мають належати 2D зоні Бріллюена. Для полярних $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ квантових ям, це буде шестикутник, що лежить в основі 3D зони Бріллюена об’ємних нітридів. Для кожного вибраного значення $\mathbf{k}$, базис представлення $|u_{n'(\mathbf{k}, k'_z)}\rangle$ вибирався шляхом рівномірного розбиття інтервалу дискретизації $[-\pi/c; \pi/c]$: $k_{z,i} = i\pi/N_{k_z}c$ ($i \in [-N_{k_z}; N_{k_z}]$). Число N_{k_z} , по суті, задає розмірність базису представлення. Кількість об’ємних функцій Блоха, включених в базис, рівна $(N_{k_z} + 1)n_b$, де n_b – кількість номерів n' об’ємних зон, що включаються в розрахунок. Оскільки досліджувані $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ квантові ями були вбудовані в матрицю об’ємного GaN, величини $E_{\text{Bulk}}^{(n)}(\mathbf{k}, k_z)$ та $|n(\mathbf{k}, k_z)\rangle$ розглядалися нами як енергії та функції Блоха для об’ємного GaN. Для їх визначення ми використовували метод емпіричного псевдопотенціалу з оптимізованою формою псевдопотенціалів для відповідності відомим на сьогодні експериментальним даним та розрахункам із перших принципів щодо зонної структури бінарних нітридів з ґраткою типу вюрциту [14]. Довжина кван-

тової структури L_z (або довжина періодичності) повинна бути набагато більшою за товщину квантової ями d_{QW} , щоб мінімізувати вплив граничних ефектів. Згідно з вибором базису представлення $L_z = 2N_{k_z}c \gg d_{\text{QW}}$. Остання нерівність накладає обмеження на мінімально допустиму розмірність базису представлення N_{k_z} . Наші тестові розрахунки показали, що, наприклад, для $d_{\text{QW}} = 2,0$ нм можна досягти стабільних результатів, коли $N_{k_z} = 31$, кількість об’ємних зон $n_b = 2$ (дві найнижчі зони провідності) для розрахунку електронних квантових станів та $n_b = 6$ (шість найвищих валентних зон) для розрахунку діркових квантових станів. Вищі числа N_{k_z} збільшують обчислювальне навантаження, але не призводять до помітного покращення якості результатів. Підсумовування по G_z в рівнянні (1) виконувалося лише для трьох найменших за величиною векторів оберненої ґратки $\mathbf{G} = (0, G_z)$. Енергії та хвильові функції носіїв заряду в квантовій ямі при заданому хвильовому векторі $\mathbf{k}$ отримувалися через діагоналізацію гамільтонової матриці з рівняння (1), використовуючи функції пакета лінійної алгебри LAPACK.

Потенціал квантового обмеження $U(z)$ отримувався шляхом ітераційного алгоритму для самоузгодженого розв’язку системи рівнянь Шредінгера–Пуассона [23]. Вхідними параметрами алгоритму були товщина квантової ями d_{QW} , концентрації носіїв заряду в ямі та бар’єрах, а також глибина квантової ями Δ . Параметр Δ визначався складом ями x та величиною розриву зон на гетероінтерфейсі $\text{GaN}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, яка приймалася рівною $\Delta E_c/\Delta E_v = 70:30$ [24]. Квантова яма розміщувалася між двома GaN бар’єрами n та p -типу з незмінними об’ємними концентраціями $n_{br} = 10^{17} \text{ см}^{-3}$ та $p_{br} = 10^{17} \text{ см}^{-3}$, тоді як поверхневі концентрації електронів (n) та дірок (p) в ямі варіювалися в межах від 10^{10} см^{-2} до 10^{14} см^{-2} для дослідження їх впливу на швидкість рекомбінації. Внаслідок полярної природи нітридів, на гетерограницях між ямою і бар’єрами виникають поверхневі заряди, що враховувалися нами як додаткова складова в рівнянні Пуассона. В загальному випадку, ці заряди виникають як в результаті спонтанної, так і п’єзoeлектричної поляризації. Однак, внаслідок дуже малої різниці у величинах констант спонтанної поляризації для GaN та InN, величина поверхневих зарядів, в основному, визначається п’єзoeлектричним відгуком [15]. В умо-

вах псевдоморфного росту вздовж полярного напрямку, п'єзоелектричний відгук на двоосьову деформацію в площині (0001) виражається як $P_z = 2\epsilon_{xx}(e_{31} - e_{33}C_{13}/C_{33})$, де e_{31} , e_{33} – компоненти п'єзоелектричного тензора; C_{31} , C_{33} – компоненти тензора жорсткості; $\epsilon_{xx} = (a_{\text{GaN}} - a_{\text{InGaN}})/a_{\text{InGaN}}$ – компонента тензора деформації в площині квантової ями. Числові значення для параметрів ґратки, пружних та п'єзоелектричних параметрів для $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ визначалися через лінійну інтерполяцію між відповідними значеннями для бінарних сполук [25–27].

На першому етапі розраховувалася енергетична зонна структура квантової ями в початковому наближенні для форми потенціалу квантового обмеження (модель звичайної прямокутної ями скінченної глибини). Далі, визначалися квазірівні Фермі по заданих поверхневих концентраціях електронів та дірок у ямі. Квазірівні Фермі розраховувалися за допомогою чисельного інтегрування функцій розподілу Фермі по 2D зоні Бріллюена. Для відтворення типових умов електричної інжекції носіїв заряду в світлодіодах, вважалося, що поверхневі концентрації електронів та дірок у ямі є рівні ($n = p$). Ця рівність призводить до розщеплення відповідних квазірівнів Фермі. Використовуючи наближення постійних (не залежних від координат) квазірівнів Фермі, отримувалися значення електричного потенціалу квантового обмеження на границях квантової структури, які використовувалися як граничні умови для чисельного розв'язання рівняння Пуассона. Для прискорення роботи самоузгодженого алгоритму та для запобігання отриманню нефізичних розв'язків, до рівняння Пуассона застосовувалася процедура лінеаризації згідно з схемою, що представлена в [23]. Отриманий таким чином потенціал підставляється в рівняння (1), розв'язок якого дає друге наближення для зонної структури квантової ями. Потім обчислюються нові квазірівні Фермі і новий вигляд потенціалу квантового обмеження. Така процедура повторюється до досягнення самоузгодженості.

Далі переходимо безпосередньо до оже-рекомбінації, швидкість якої можна обчислити як

$$R_{n(p)} = 2 \frac{2\pi}{\hbar} \frac{A^3}{(2\pi)^6} \iiint |M(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_1', \mathbf{k}_2')|^2 \times \\ \times f_{n(p)}(E_1) f_{n(p)}(E_2) f_{p(n)}(E_{1'}) (1 - f_{n(p)}(E_{2'})) \times$$

$$\times (1 - \exp[(E_{Fp} - E_{Fn})/k_B T]) \times \\ \times \delta(E_1 + E_2 - E_{1'} - E_{2'}) \times \\ \times \delta(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_{1'} - \mathbf{k}_{2'}) d\mathbf{k}_1 d\mathbf{k}_2 d\mathbf{k}_{1'} d\mathbf{k}_{2'}, \quad (2)$$

де індекс n означає швидкість e - e - h процесу, а p – швидкість h - h - e процесу; $|M|^2 = |M_{\text{dir}}|^2 + |M_{\text{ex}}|^2 - |M_{\text{dir}} - M_{\text{ex}}|^2$ де M_{dir} і M_{ex} – прямий і обмінний матричні елементи кулонівської взаємодії; $f_n(E)$ і $f_p(E)$ – функції Фермі–Дірака; E_{Fn} і E_{Fp} – електронний і дірковий квазірівні Фермі; індекси 1, 2 і 1', 2' позначають початкові і кінцеві стани рекомбінуючих носіїв; A – площа квантової ями. Для обчислення $|M|^2$ в базисі об'ємних функцій Блоха, ми слідували процедурі, що описана в [28] і використовували просту статичну модель екранування кулонівської взаємодії з високочастотною діелектричною проникністю ($\epsilon_\infty = 5,5$) та 2D аналогом довжини екранування Дебая [29].

Інтегрування в рівнянні (2) ведеться по всіх можливих початкових та кінцевих станах частинок, що фактично означає чотирикратне (понижується до трикратного, за рахунок наявності дельта-функції) інтегрування по 2D зоні Бріллюена. Таке інтегрування виконувалося нами за допомогою методу Монте-Карло. Для покращення збіжності процесу чисельного інтегрування ми обмежуємо область інтегрування тільки тими частинами 2D зони Бріллюена, де добуток функцій Фермі–Дірака у рівнянні (2) не є малим, тобто, початкові стани рекомбінуючих частинок належать лише до невеликих частин 2D зони Бріллюена (величина цих частин визначалася за допомогою попередніх тестових обчислень) поблизу основного стану.

Враховуючи наявність e - e - h та h - h - e процесів, загальну швидкість оже-рекомбінації, що припадає на одиницю площі квантової ями, можна записати як $R = R_n + R_p = C_n n^2 p + C_p p^2 n$, де n і p – поверхневі концентрації електронів і дірок, C_n і C_p – 2D оже-коефіцієнти для процесів e - e - h та h - h - e відповідно. Приймаючи умову рівності поверхневих концентрацій електронів і дірок в ямі, швидкість можна записати як $R = C n^3$, де $C = C_n + C_p$. Стандартні 3D оже-коефіцієнти, які часто використовуються під час моделювання рекомбінаційних та транспортних процесів, а також при інтерпретації експериментальних результатів в нітридних квантових структурах, можуть бути перераховані із представлених в даній роботі результатів для 2D аналогів через співвідношення $C_{3D} \approx C \cdot d_{\text{QW}}$.

3. Результати

Всі розрахунки в цій роботі виконувалися при $T = 300$ К в припущенні рівних концентрацій електронів і дірок в ямі. Було виконано три етапи розрахунків: дослідження залежності оже-коефіцієнтів від ефективної ширини забороненої зони квантової ями E_g ; від товщини квантової ями d_{QW} ; від концентрації носіїв заряду n . На першому етапі ми розраховували швидкість оже-рекомбінації в квантових ямах з вмістом атомів індію, що змінювалася від $x = 0,1$ до $0,6$ при фіксованих товщині ями $d_{QW} = 2,0$ нм та концентрації носіїв $n = 10^{12}$ см $^{-2}$. Розрахунок показав, що

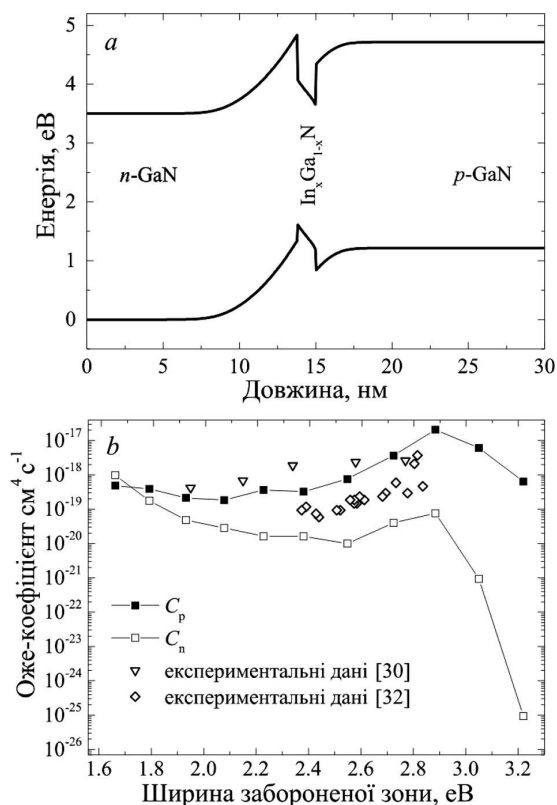


Рис. 1. Потенціал квантового обмеження для полярної $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ квантової ями з $x = 0,3$, отриманий в результаті самоузгодженого розв'язку рівнянь Шредінгера–Пуассона (а). Залежність оже-коефіцієнтів для $e-e-h$ (C_n , відкриті квадрати) і $h-h-e$ (C_p , зашиті квадрати) процесів від ширини забороненої зони для полярних квантових ям $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ ($x = 0,1-0,6$) з $d_{QW} = 2,0$ нм при $T = 300$ К і $n = 10^{12}$ см $^{-2}$ (б). Для порівняння із нашим розрахунком, на рисунку приведені експериментальні результати з робіт [30] і [32]

при $d_{QW} = 2,0$ нм варіація вмісту x від $0,1$ до $0,6$ створює квантові ями з ефективною шириною забороненої зони, що відповідає оптичним переходам з енергіями від $E_g = 1,8$ до $3,2$ еВ, тобто покриває всю видиму спектральну область. На рис. 1 показані залежності оже-коефіцієнтів від E_g для процесів $e-e-h$ (C_n) та $h-h-e$ (C_p). Як видно з рис. 1, для всіх ям з $E_g > 2,0$ еВ процес $h-h-e$ домінує над процесом $e-e-h$ ($C_p > C_n$). Лише для квантових ям з високим вмістом атомів індію, що відповідають червоній частині видимого спектра, обидва процеси мають однаковий порядок. Цей результат свідчить про те, що широко використовуване припущення про провідну роль процесу $e-e-h$ у світловипромінюючих приладах на основі $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ не є виправданим. Аналіз ефективності роботи світловипромінюючих приладів на основі моделі рекомбінаційних коефіцієнтів повинен включати повний оже-коефіцієнт $C = C_n + C_p$, що переважно визначається швидкістю $h-h-e$ процесу. Залежність C_p від E_g має пік $C_p = 1,9 \cdot 10^{-17}$ см 4 с $^{-1}$ при $E_g = 2,9$ еВ. При зменшенні ширини забороненої зони від $2,9$ до $2,6$ еВ (фіолетово-синя ділянка видимого спектра) спостерігається спадання до $C_p = 6,5 \cdot 10^{-19}$ см 4 с $^{-1}$, а при всіх $E_g < 2,6$ еВ (зелено-червона ділянка видимого спектра) C_p має приблизно однакове значення $C_p \approx 2,5 \cdot 10^{-19}$ см 4 с $^{-1}$. Ця тенденція узгоджується з експериментальними оцінками оже-коефіцієнта в нітридах, отриманими із вимірювання диференціального часу життя носіїв [30,31] та кінетики фотолумінесценції [32]. Слід зазначити, що зазначені експериментальні дані не можуть бути відтворені шляхом моделюванням оже-рекомбінації в об'ємних нітридах. Теоретичні оцінки на основі різних моделей [11, 13] передбачають монотонно зростаючий оже-коефіцієнт при переході від широкозонних до вузькозонних квантових ям. Таке порівняння доводить, що квантове обмеження та поляризаційні поля суттєво впливають на рекомбінаційний процес і оцінки на основі об'ємних моделей можуть давати некоректні результати.

На другому етапі нашого дослідження, була розрахована залежність оже-коефіцієнтів від товщини квантової ями при заданому вмісті $x = 0,3$ ($E_g = 2,6$ еВ) та заданій концентрації носіїв $n = 10^{12}$ см $^{-2}$. Розрахунок проводився для товщин d_{QW} від $1,5$ нм до $5,5$ нм. Як видно із рис. 2, а, для обох ($e-e-h$ та $h-h-e$) процесів залежність оже-

коефіцієнтів від товщини ями має осциляційний характер. Як це було відзначено в [33], залежність швидкості рекомбінації від товщини ями суттєво визначається тим, в якому саме кінцевому стані, зв'язаному (дискретний енергетичний спектр) чи незв'язаному (неперервний енергетичний спектр), опиняється частинка після рекомбінації. Для нітридних квантових ям, що розглядаються в цій роботі, ефективна ширина забороненої зони для всіх x від 0,1 до 0,6 є значно більшою за глибину ями як для електронів, так і для дірок. Тому, кінцевими станами оже-процесів в нітридних квантових ямах є незв'язані стани. Аналіз швидкості оже-рекомбінації для таких переходів визначається в основному дискретністю енергетичного спектра дірок внаслідок складної структури валентної зони бінарних нітридів. Дискретність спектра, в свою чергу, безпосередньо визначається товщиною квантової ями. Через дискретність спектра, збереження енергії рекомбінуючих частинок (енергетична дельта-функція в рівняння (2)) задовольняється лише для обмеженого числа переходів. Крім того, переходи із деяких з цих дискретних рівнів в неперервний кінцевий спектр є забороненими за правилами відбору для матричного елемента кулонівської взаємодії. Такі правила відбору виникають внаслідок необхідності збереження симетрії хвильових функцій частинок до і після рекомбінації. Отже, при певних товщинах ям, потенціал квантового обмеження може зменшувати швидкість рекомбінації через накладені обмеження за згаданими правилами відбору. У випадку переходів у зв'язані стани правила відбору взагалі призводять до того, що матричний елемент кулонівської взаємодії стає рівним 0, і швидкість рекомбінації при певних товщинах ям різко спадає. Однак, у випадку переходів у незв'язані стани такого різкого зменшення не відбувається, оскільки електрон або дірка у кінцевому стані розсіюється на високоенергетичні рівні, які сильно розширені за межі квантової ями [34, 35].

На останньому етапі роботи ми розраховували залежність оже-коефіцієнтів від поверхневої концентрації носіїв при заданому вмісті $x = 0,3$ ($E_g = 2,6$ eV) та заданій товщині $d_{QW} = 2,0$ нм. Результати показують, що оже-коефіцієнти майже не залежать від концентрації носіїв при $n < 10^{12}$ см⁻². Однак, при збільшенні концентрації $n > 10^{12}$ см⁻², як C_p , так і C_n , починають доста-

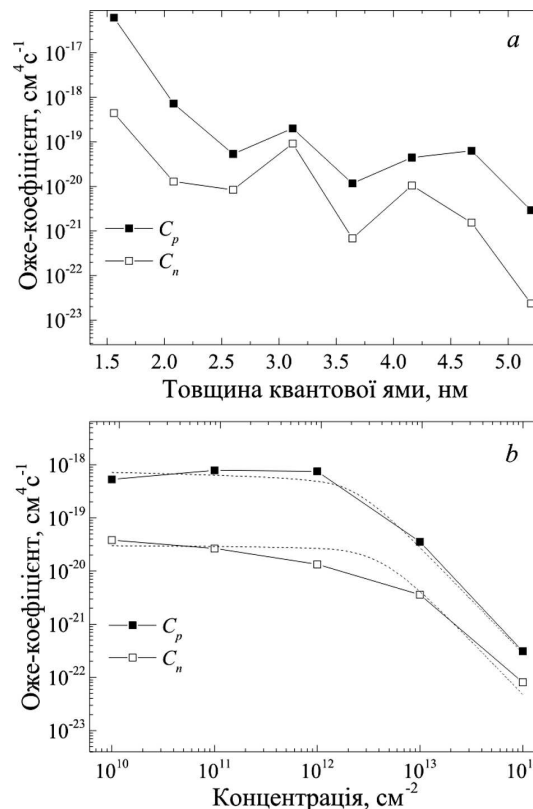


Рис. 2. Залежність оже-коефіцієнтів для e - e - h (C_n , відкриті квадрати) і h - h - e (C_p , заповнені квадрати) процесів від товщини при заданій концентрації носіїв $n = 10^{12}$ см⁻² (a) та від концентрації носіїв при заданій товщині $d_{QW} = 2,0$ нм (b) для полярних квантових ям In_xGa_{1-x}N з $x = 0,3$ при $T = 300$ К. Штрихами на рисунку (b) позначені результати апроксимації отриманих залежностей за формулою $C = C_0 / (1 + n^2/n_0^2)$ (e - e - h процес: $C_0 = 3,0 \cdot 10^{-20}$ см⁴с⁻¹, $n_0 = 4,0 \cdot 10^{12}$ см⁻⁴; h - h - e процес: $C_0 = 7,2 \cdot 10^{-19}$ см⁴с⁻¹, $n_0 = 2,0 \cdot 10^{12}$ см⁻⁴).

тньо сильно спадати. Ми пов'язуємо таке спадання з ефектом заповнення квантових станів, тобто впливом статистики Фермі на процес рекомбінації. Швидкість оже-рекомбінації є прямо пропорційною кубу концентрації носіїв заряду лише у випадку, коли розподіл носіїв по квантових станах описується класичною статистикою Больцмана. При великих концентраціях квазірівні Фермі займають енергетичні положення, що є настільки близькими до країв зон, що класичне наближення перестає бути застосовним. В такому випадку швидкість оже-рекомбінації матиме субкубічну залежність від концентрації носіїв. Для ви-

користання в феноменологічних моделях, що описують ефективність роботи світлодіодів, зручно і далі зберегти кубічну залежність швидкості оже-рекомбінації, а ефект заповнення квантових станів врахувати за допомогою оже-коефіцієнта, який буде залежним від концентрації. Очевидним допущенням буде розглядати цю залежність як обернену пропорційність $C = C_0/(1 + n/n_0)$, де C_0 та n_0 – підгоночні параметри [4]. Однак, аналіз наших результатів показує, що, як C_n , так C_p , спадають з концентрацією більш швидко і не можуть бути наближеними приведеною вище формулою з достатньою точністю. Розраховані залежності оже-коефіцієнтів від концентрації досить адекватно описуються формулою вигляду $C = C_0/(1 + n^2/n_0^2)$. У випадку e - e - h процесу найкраще співпадання спостерігалось при $C_0 = 3,0 \cdot 10^{-20} \text{ см}^4\text{с}^{-1}$ та $n_0 = 4,0 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-4}$, а для h - h - e процесу (який є домінуючим при всіх розглянутих концентраціях носіїв) – $C_0 = 7,2 \cdot 10^{-19} \text{ см}^4\text{с}^{-1}$ та $n_0 = 2,0 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-4}$. Таке квадратичне спадання оже-коефіцієнтів наводить на думку про те, що швидкість оже-рекомбінації в нітридних квантових ямах при переході до виродженого випадку стає майже лінійною функцією концентрації. В таких обставинах знову ж таки постає питання про те, чи є оже-рекомбінація основною причиною спадання ефективності роботи світлодіодів на базі нітридних квантових ям.

4. Висновки

В даній роботі, ми провели чисельне моделювання швидкості оже-рекомбінації в полярних квантових ямах $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$. Розрахункова модель ґрунтувалася на повній енергетичній зонній структурі квантових ям, яка отримувалася методом лінійної комбінації об'ємних зон. Результати показують, що за типових умов електричної інжекції носіїв заряду в світлодіодах, швидкість оже-рекомбінації переважно визначається h - h - e процесом для всіх композицій ями x від 0,1 до 0,6. Це ставить під сумнів широко поширене допущення про домінуючу роль e - e - h процесу в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ світлодіодах. Використання коефіцієнта C_n при аналізі ефективності роботи світлодіодів у рамках феноменологічних моделей рекомбінаційних коефіцієнтів, значно занижує швидкість

оже-рекомбінації і може привести до неправильної інтерпретації експериментальних результатів. Залежність оже-коефіцієнтів від ефективної ширини забороненої зони квантової ями є набагато слабшою, ніж у випадку об'ємних нітридних сполук, що є наслідком сильного впливу квантового обмеження та поляризаційних полів на процес рекомбінації. Дослідження показали, що швидкість оже-рекомбінації є прямо пропорційною кубу концентрації носіїв заряду ($R \sim n^3$) в квантовій ямі лише для концентрацій, що не перевищують 10^{12} см^{-2} . При більш високих концентраціях, кубічна залежність швидкості оже-рекомбінації поступово переходить в майже лінійну ($R \sim n$), що ми пов'язуємо з ефектом заповнення квантових станів. В даній роботі ми розглянули лише прямі процеси оже-рекомбінації. Однак, додаткові обчислення, що виявляють роль непрямих процесів (за участю фононів, чи атомних невпорядкованостей) були б дуже цікаві для вивчення впливу оже-рекомбінації на квантову ефективність світлодіодів на базі InGaIn квантових ям.

1. J. Iveland, L. Martinelli, J. Peretti, J.S. Speck, C. Weisbuch. Direct measurement of auger electrons emitted from a semiconductor light-emitting diode under electrical injection: Identification of the dominant mechanism for efficiency droop. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 177406 (2013).
2. M. Binder, B. Galler, M. Fritsch, J. Off, J. Wagner, R. Zeisel, S. Katz. Investigations on correlation between I-V characteristic and internal quantum efficiency of blue (AlGaIn)N light-emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.* **103**, 221110 (2013).
3. D.J. Myers, A.C. Espenlaub, K. Gelzinyte, E.C. Young, L. Martinelli, J. Peretti, C. Weisbuch, J.S. Speck. Evidence for trap-assisted Auger recombination in MBE grown InGaIn quantum wells by electron emission spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.* **116**, 091102 (2020).
4. A. David, M.J. Grundmann. Droop in InGaIn light-emitting diodes: A differential carrier lifetime analysis. *Appl. Phys. Lett.* **96**, 103504 (2010).
5. B. Galler, P. Drechsel, R. Monnard, P. Rode, P. Stauss, S. Froehlich, W. Bergbauer, M. Binder, M. Sabathil, B. Hahn, J. Wagner. Influence of indium content and temperature on Auger-like recombination in InGaIn quantum wells grown on (111) silicon substrates. *Appl. Phys. Lett.* **101**, 131111 (2012).
6. A. David, N.G. Young, Ch.A. Hurni, M.D. Craven. All-optical measurements of carrier dynamics in bulk-GaN LEDs: Beyond the ABC approximation. *Appl. Phys. Lett.* **110**, 253504 (2017).

7. F. Nippert, S.Yu. Karpov, G. Callsen, B. Galler, Th. Kure, C. Nenstiel, M.R. Wagner, M. Strasburg, H.-J. Lugauer, A. Hoffmann. Temperature-dependent recombination coefficients in InGaN light-emitting diodes: Hole localization, Auger processes, and the green gap. *Appl. Phys. Lett.* **109**, 161103 (2016).
8. J. Piprek, F. Romer, B. Witzigmann. On the uncertainty of the Auger recombination coefficient extracted from InGaN/GaN light-emitting diode efficiency droop measurements. *Appl. Phys. Lett.* **106**, 101101 (2015).
9. K.T. Delaney, P. Rinke, C.G. Van de Walle. Auger recombination rates in nitrides from first principles. *Appl. Phys. Lett.* **94**, 191109 (2009).
10. F. Bertazzi, M. Goano, E. Bellotti. A numerical study of Auger recombination in bulk InGaN. *Appl. Phys. Lett.* **97**, 231118, (2010).
11. F. Bertazzi, M. Goano, E. Bellotti. Numerical analysis of indirect Auger transitions in InGaN. *Appl. Phys. Lett.* **101**, 011111 (2012).
12. E. Kioupakis, P. Rinke, K.T. Delaney, C.G. Van de Walle. Indirect Auger recombination as a cause of efficiency droop in nitride light-emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.* **98**, 161107 (2011).
13. E. Kioupakis, D. Steiauf, P. Rinke, K.T. Delaney, C.G. Van de Walle. First-principles calculations of indirect Auger recombination in nitride semiconductors. *Phys. Rev. B* **92**, 035207 (2015).
14. A.V. Zinovchuk, A.M. Gryshchuk. Alloy-assisted Auger recombination in InGaN. *Opt. Quant. Electron.* **50**, 455 (2018).
15. F. Bernardini, V. Fiorentini. Spontaneous versus piezoelectric polarization in III-V nitrides: Conceptual aspects and practical consequences. *Phys. Stat. Sol. B* **216**, 391 (1999).
16. J. Hader, J.V. Moloney, B. Pasenow, S.W. Koch, M. Sabathil, N. Linder, S. Lutgen. On the importance of radiative and Auger losses in GaN-based quantum wells. *Appl. Phys. Lett.* **87**, 201112 (2005).
17. R. Vaxenburg, A. Rodina, E. Lifshitz, A.L. Efros. The role of polarization fields in Auger-induced efficiency droop in nitride-based light-emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.* **103**, 221111 (2013).
18. R. Vaxenburg, E. Lifshitz, and A.L. Efros. Suppression of Auger-stimulated efficiency droop in nitride-based light emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 031120 (2013).
19. F. Bertazzi, X. Zhou, M. Goano, G. Ghione, E. Bellotti. Auger recombination in InGaN/GaN quantum wells: A full-Brillouin-zone study. *Appl. Phys. Lett.* **103**, 081106 (2013).
20. J.M. McMahon, E. Kioupakis, S. Schulz. Atomistic analysis of Auger recombination in c-plane (In,Ga)N/GaN quantum wells: Temperature-dependent competition between radiative and nonradiative recombination. *Phys. Rev. B* **105**, 195307 (2022).
21. D. Iida, Z. Zhuang, P. Kirilenko, M. Velazquez-Rizo, M.A. Najmi, K. Ohkawa. 633-nm InGaN-based red LEDs grown on thick underlying GaN layers with reduced in-plane residual stress. *Appl. Phys. Lett.* **116**, 162101 (2020).
22. D. Esseni, P. Palestri. Linear combination of bulk bands method for investigating the low-dimensional electron gas in nanostructured devices. *Phys. Rev. B* **72**, 165342 (2005).
23. D. Vasileska, S.M. Goodnick, G. Klimeck. *Computational Electronics: Semiclassical and Quantum Device Modeling and Simulation* (CRC Press, 2010).
24. Z.H. Mahmood, A.P. Shah, A. Kadir, M.R. Gokhale, S. Ghosh, A. Bhattacharya, B.M. Arora. Determination of InN-GaN heterostructure band offsets from internal photoemission measurements. *Appl. Phys. Lett.* **91**, 152108 (2007).
25. P.Y. Prodhomme, A. Beya-Wakata, G. Bester. Nonlinear piezoelectricity in wurtzite semiconductors. *Phys. Rev. B* **88**, 121304(R) (2013).
26. K. Adachi, H. Ogi, A. Nagakubo, N. Nakamura, M. Hirao, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori. Elastic constants of GaN between 10 and 305 K. *J. Appl. Phys.* **119**, 245111 (2016).
27. J. Serrano, A. Bosak, M. Krisch, F.J. Manjon, A.H. Romero, N. Garro, X. Wang, A. Yoshikawa, M. Kuball. InN thin film lattice dynamics by grazing incidence inelastic X-Ray scattering. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 205501 (2011).
28. O. Bonno, J.L. Thobel, F. Dessenne. Modeling of electron-electron scattering in Monte Carlo simulation of quantum cascade lasers. *J. Appl. Phys.* **97**, 043702 (2005).
29. H. Haug, S.W. Koch. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors* (World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2004).
30. A. David, N.G. Young, C. Lund, M.D. Craven. Reduction of efficiency droop in c-plane InGaN/GaN light-emitting diodes using a thick single quantum well with doped barriers. *Appl. Phys. Lett.* **115**, 193502 (2019).
31. D. Schiavon, M. Binder, M. Peter, B. Galler, P. Drechsel, F. Scholz. Wavelength-dependent determination of the recombination rate coefficients in single-quantum-well GaInN/GaN light emitting diodes. *Phys. Stat. Sol. B* **250**, 283 (2013).
32. T.H. Ngo, B. Gil, B. Damilano, K. Lekhal, P. De Mierry. Internal quantum efficiency and Auger recombination in green, yellow and red InGaN-based light emitters grown along the polar direction. *Superlattices and Microstructures* **2103**, 245 (2017).
33. C. Smith, R.A. Abram, M.G. Burt. Theory of Auger recombination in a quantum well heterostructure. *Superlattices and Microstructures* **1** (2), 119 (1985).
34. R.I. Taylor, R.A. Abram, M.G. Burt, C. Smith. A detailed study of Auger recombination in 1.3 μm InGaAsP/InP quantum wells and quantum well wires. *Semicond. Sci. Technol.* **5**, 90 (1990).
35. G.E. Cragg, A.L. Efros. Suppression of Auger processes in confined structures. *Nano Lett.* **10**, 313 (2010).

Received 28.04.25

A.V. Zinovchuk, V.S. Slipokurov

AUGER RECOMBINATION
IN POLAR InGa_N/Ga_N QUANTUM WELLS

Auger recombination rate in polar In_xGa_{1-x}N/GaN quantum wells has been calculated in the framework of the full-band model. The key components of the model are the band structures of bulk binary nitrides (GaN and InN) obtained by the empirical pseudopotential method and the band structures of In_xGa_{1-x}N/GaN quantum wells (with various alloy compositions x) obtained by the linear combination of bulk bands. The dependence of the Auger recombination coefficients on the band gap, quantum well thickness, and carrier concentra-

tion has been calculated. The results obtained show that the band-gap dependences of the Auger coefficients for quantum wells are much weaker than in the case of bulk In_xGa_{1-x}N alloys. The dependence of the Auger coefficients on the quantum well width has a strong oscillatory character. At high carrier concentrations, a significant decrease in the Auger coefficients is observed, which we attribute to the influence of the Fermi statistics on the carrier population distribution over the quantum states.

Keywords: InGa_N quantum well, Auger recombination, polarization.