

УДК 537.533.9:53.043:51-73:519.62

## О МАТЕМАТИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ ДИФФУЗИИ ЭКСИТОНОВ В ПОЛУПРОВОДНИКЕ С УЧЕТОМ ИХ ПЕРЕМЕННОГО ВРЕМЕНИ ЖИЗНИ

© 2023 г. Е. В. Серегина<sup>а</sup>\*, М. А. Степович<sup>б</sup>, М. Н. Филиппов<sup>с</sup>

<sup>а</sup>Московский государственный технический университет им. Н.Э. Баумана  
(национальный исследовательский университет), Калужский филиал, Калуга, 248000 Россия

<sup>б</sup>Калужский государственный университет им. К.Э. Циолковского, Калуга, 248023 Россия

<sup>с</sup>Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова РАН, Москва, 119991 Россия

\*e-mail: evfs@yandex.ru

Поступила в редакцию 22.06.2022 г.

После доработки 14.08.2022 г.

Принята к публикации 14.08.2022 г.

Описана зависимость от времени концентрации неравновесных неосновных носителей заряда, генерированных в однородном полупроводниковом материале остро сфокусированным электронным пучком, электронным зондом, после прекращения облучения мишени. Построена математическая модель нестационарной диффузии заряженных частиц, созданных электронным зондом низкой энергии в полупроводниковой мишени, при наличии двух независимых каналов рекомбинации сгенерированных носителей заряда в материале мишени. Применение низкоэнергетического электронного зонда позволило при моделировании использовать двухмерную математическую модель диффузии. В качестве начального условия в этой модели взято распределение концентрации неравновесных неосновных носителей заряда в условиях квазиравновесия, до выключения электронного облучения. При наличии двух независимых каналов рекомбинации профиль спада концентрации неравновесных неосновных носителей заряда в мишени после выключения электронного облучения описан суммой двух экспонент, зависящих от времени. Такой подход позволил получить решение дифференциального уравнения двухмерной диффузии носителей заряда с учетом их переменного эффективного времени жизни. Практическое приложение разработанной математической модели реализовано для метода времяпролетной катодолюминесценции при описании диффузии экситонов в монокристаллическом нитриде галлия с учетом зависимости концентрации сгенерированных экситонов от времени.

**Ключевые слова:** диффузия экситонов, переменное эффективное время жизни, полупроводниковая мишень, профиль концентрации.

DOI: 10.31857/S1028096023030159, EDN: LMVMMK

### ВВЕДЕНИЕ

Одними из немногих методов, позволяющих реализовать бесконтактную неразрушающую диагностику твердых тел, являются зондовые методы, основанные на использовании остро сфокусированных пучков электронов с низкой энергией [1–3]. В полупроводниковом материаловедении при проведении локальных исследований материалов с использованием сфокусированных пучков электронов наиболее часто в качестве информативного регистрируют сигнал, связанный с генерацией и диффузией в полупроводниковой мишени неравновесных неосновных носителей заряда (ННЗ) [2–4], и/или сигналы, характеристики которых существенно зависят от распределения ННЗ, например, катодолюминесцентное излучение,

возникающее при излучательной рекомбинации ННЗ или экситонов, созданных в полупроводниковой мишени пучком киловольтных электронов [5–7].

Одним из методов, позволяющих решить задачу идентификации параметров полупроводниковой мишени, является метод времяпролетной катодолюминесценции [8, 9], в основе количественной реализации которого лежит математическая модель диффузии и последующей излучательной рекомбинации созданных электронным зондом частиц [10–12]. Ранее для этого режима работы растрового электронного микроскопа была изучена двумерная нестационарная модель диффузии экситонов после прекращения воздействия электронного зонда на полупроводниковую мишень. Мишенью служил однородный материал,

в котором все электрофизические параметры полупроводника, характеризующие диффузионный процесс (диффузионная длина, время жизни ННЗ), были величинами постоянными. В то же время результаты экспериментальных исследований времени пролетной катодолюминесценции гетероструктуры ZnMgO/ZnO с Zn-квантовой ямой [8] и катодолюминесценции однородного нитрида галлия [9, 13], перспективного материала оптоэлектроники и СВЧ-техники, позволили установить немонотонную зависимость времени жизни экситонов и диффузионной длины от температуры, что позволяет предположить наличие нескольких каналов рекомбинации в этих мишенях. Математическое моделирование диффузии экситонов в однородном нитриде галлия с учетом их переменного времени жизни и составляет предмет рассмотрения настоящей работы.

### ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

При включении или выключении электронного зонда время действия электронного импульса во много раз больше времени установления стационарного процесса [14], что дает возможность описывать процессы диффузии следующим образом. На первом этапе, при сравнительно длительном облучении полупроводника, когда время стационарного облучения электронным зондом много больше времени спада информативного сигнала катодолюминесценции, можно считать процесс стационарным, обусловленным генерацией и рекомбинацией ННЗ или экситонов, при котором мощность, рассеиваемая электронным пучком в мишени, а значит, и число генерируемых и рекомбинирующих в единицу времени носителей, есть величина постоянная. На втором этапе, при выключении электронного зонда, процесс диффузии ННЗ или экситонов нестационарный, с уменьшением количества диффундирующих частиц со временем. Использование низкоэнергетического электронного зонда позволяет при моделировании использовать двумерную математическую модель диффузии экситонов. Ранее для такой модели концентрацию экситонов  $c(x, y, t)$  в точке с координатами  $(x, y)$  при выключении электронного зонда определяли, как решение нестационарного дифференциального уравнения диффузии [9–13]:

$$\partial c(x, y, t) / \partial t = D \Delta c(x, y, t) - c(x, y, t) / \tau \quad (1)$$

с начальным условием

$$c(x, y, 0) = n(x, y). \quad (2)$$

Здесь  $\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$  – двумерный оператор Лапласа;  $D$  – коэффициент диффузии;  $\tau$  – время жизни экситонов. Функцию  $n(x, y)$  находили

как решение стационарного дифференциального уравнения, описывающего диффузию экситонов в состоянии квазиравновесия:

$$D \Delta n - n / \tau = -\Phi(x, y). \quad (3)$$

Здесь  $\Phi(x, y)$  – функция источника генерации экситонов, которая определяется характером возбуждения и свойствами материала. В случае узкого электронного пучка, электронного зонда, область генерации экситонов описывалась функцией Гаусса, что дает для правой части (3) соотношение  $G_0 \phi(x, y)$ , где  $\phi(x, y)$  – плотность двумерного нормального распределения Гаусса, а  $G_0$  – частота генерации экситонов.

Для уравнения (3) методом функций Грина получено аналитическое решение в виде [10]:

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

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.

В работе [15] получено аналитическое решение задачи (1), (2):

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

Отметим также, что задача (1)–(3) ранее решена и приближенно-аналитическим методом с использованием модифицированных функций Лагерра [16, 17], а также с использованием проекционного метода [18]. Следует отметить, что в рассмотренной ранее модели (1)–(3) для всех способов решения задачи рассматривали только один канал рекомбинации экситонов, и потому все электрофизические параметры мишени при проведении расчетов полагали постоянными.

Учитывая результаты расчетов [15, 19] и экспериментальные результаты [9, 13, 20], построим математическую модель диффузии экситонов в однородном нитриде галлия с двумя независимыми каналами рекомбинации.

## РЕШЕНИЕ ЗАДАЧИ

При наличии двух независимых каналов рекомбинации профиль спада концентрации экситонов будем описывать суммой двух экспонент:

$$n(t) = n_{10} \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + n_{20} \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right),$$

где  $n_{10}$  – число экситонов, распадающихся с временем  $\tau_1$ ,  $n_{20}$  – число экситонов, распадающихся с временем  $\tau_2$ . Кроме того, предположим, что число экситонов, созданных электронным пучком в состоянии квазиравновесия, равно  $n_0 = n_{10} + n_{20}$ . Здесь  $n_{10} = \alpha n_0$ ,  $n_{20} = (1 - \alpha) n_0$ ,  $\alpha$  – безразмерный параметр. Тогда с учетом последнего:

$$n(t) = n_0 \left( \alpha \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + (1 - \alpha) \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right).$$

Полагая, что суммарный профиль также можно описать экспонентой, имеем:

$$\begin{aligned} n_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{эф}}(t)}\right) &= \\ &= n_0 \left( \alpha \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + (1 - \alpha) \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right). \end{aligned}$$

Решая последнее уравнение относительно эффективного времени жизни  $\tau_{\text{эф}}(t)$ , получим:

$$\tau_{\text{эф}}(t) = -\frac{t}{\ln\left(\alpha \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + (1 - \alpha) \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)\right)}.$$

В результате вместо уравнения (1) будем иметь уравнение:

$$\frac{\partial \tilde{c}(x, y, t)}{\partial t} = D \Delta \tilde{c}(x, y, t) - \frac{\tilde{c}(x, y, t)}{\tau_{\text{эф}}(t)} \quad (5)$$

с начальным условием (2).

Используя замену  $\tilde{c}(x, y, t) = \exp\left(-\int_0^t \frac{ds}{\tau(s)}\right) \times v(x, y, t)$ , от уравнения (5), (2) перейдем к уравнению вида:

$$\frac{\partial v(x, y, t)}{\partial t} = D \Delta v(x, y, t) \quad (6)$$

с начальным условием

$$v(x, y, 0) = n(x, y), \quad (7)$$

В работе [15] получено решение для уравнения (6), (7):

$$V(r, t) = \frac{1}{(2Dt)} \int_0^{+\infty} \exp\left(-\frac{(r^2 + \xi^2)}{(4Dt)}\right) I_0\left(\frac{r\xi}{(2Dt)}\right) n(\xi) \xi d\xi.$$

Тогда решение уравнения (5) с учетом начального условия примет вид:

$$\begin{aligned} \tilde{c}(r, t) &= \\ &= \frac{\exp\left(-\int_0^t \frac{ds}{\tau(s)}\right)}{(2Dt) \int_0^{+\infty} \exp\left(-\frac{(r^2 + \xi^2)}{(4Dt)}\right) I_0\left(\frac{r\xi}{(2Dt)}\right) n(\xi) \xi d\xi}. \end{aligned} \quad (8)$$

## РЕЗУЛЬТАТЫ МАТЕМАТИЧЕСКОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

Было проведено математическое моделирование диффузии экситонов в GaN с учетом их переменного времени жизни для параметров полупроводника, характеризующих процессы рассеяния электронов в мишени и свойственных для диффузионных процессов в нитриде галлия [9, 20–22], который является перспективным материалом для создания устройств опто-, микро-, нанoeлектроники и СВЧ-техники способных работать, в том числе в неблагоприятных условиях внешней среды и при высоких напряжениях. Частоту генерации экситонов принимали равной  $G_0 = 10^{-13} \text{ с}^{-1}$ , а профиль распределения энергии электронов в пучке задавали функцией Гаусса с нулевым математическим ожиданием и дисперсией 60 нм, что соответствуют условиям реальных экспериментальных катодoluminesцентных измерений [2, 20, 23].

Результаты математического моделирования для решения нестационарного уравнения диффузии экситонов (1), (2) с постоянным временем жизни представлены на рис. 1. Время жизни эк-

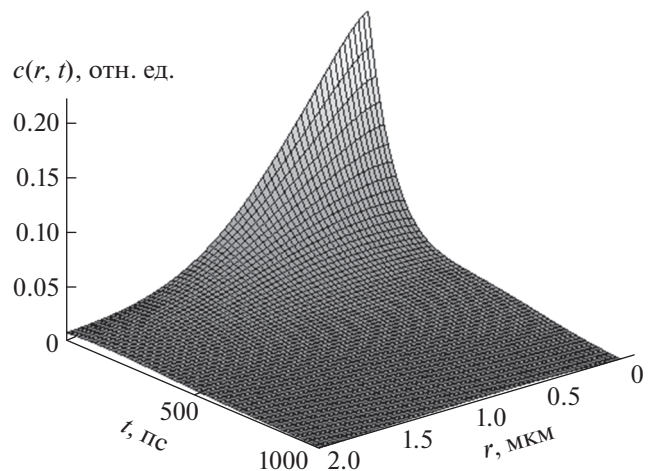
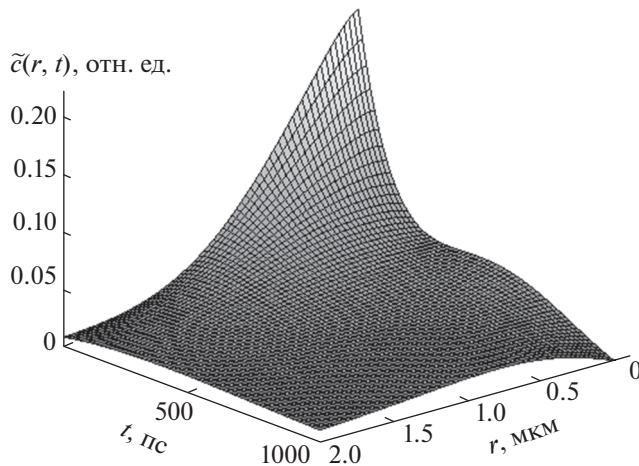
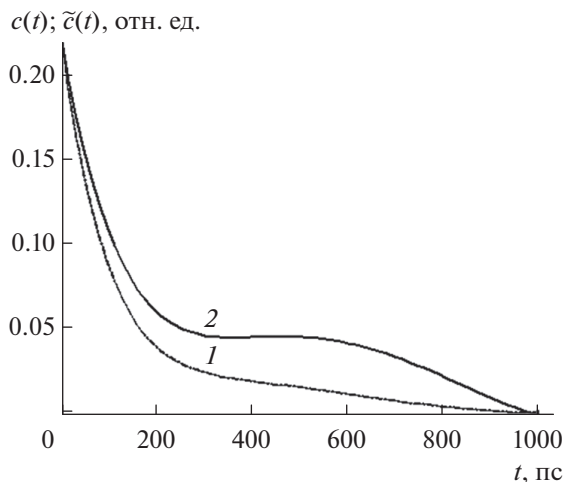


Рис. 1. Концентрация экситонов  $c(r, t)$  для случая постоянных электрофизических параметров мишени и рассчитанная с использованием модели (1), (2).



**Рис. 2.** Концентрация экситонов  $\tilde{c}(r, t)$  для случая переменного эффективного времени жизни и рассчитанная с использованием модели (5), (2) для  $\tau_1 = \tau$  и  $\tau_2 = 10\tau$  при  $\tau = 382$  пс и коэффициенте  $\alpha = 0.1$ .



**Рис. 3.** Сечение поверхности  $c(r, t)$  (1) и поверхности  $\tilde{c}(r, t)$  (2) при  $r = 0$  для  $\tau_1 = \tau$  и  $\tau_2 = 10\tau$  при  $\tau = 382$  пс и коэффициенте  $\alpha = 0.1$ .

ситонов принято равным  $\tau = 382$  пс при коэффициенте их диффузии  $D = 1.5 \text{ см}^2/\text{с}$ .

Результаты математического моделирования для полученного решения нестационарного уравнения диффузии экситонов (5), (2) с переменным эффективным временем жизни представлены на рис. 2. Время жизни экситонов для этой двухканальной модели полагали равным:  $\tau_1 = \tau$  и  $\tau_2 = 10\tau$  при  $\tau = 382$  пс и коэффициенте  $\alpha = 0.1$ .

Оценка относительной погрешности по норме пространства  $C$  [24] составляет:

$$\begin{aligned} \Delta(\tilde{c}(r, t), c(r, t)) &= \\ &= \frac{\|\tilde{c}(r, t) - c(r, t)\|_C}{\|c(r, t)\|_C} \times 100\% \approx 13.86\%. \end{aligned}$$

Здесь видно влияние переменного времени жизни экситонов на их концентрацию.

Оценка относительной погрешности по норме пространства  $C$  при  $\tau_1 = 10\tau$  и  $\tau_2 = \tau$  при  $\tau = 382$  пс и коэффициенте  $\alpha = 0.1$  составляет:

$$\begin{aligned} \Delta(\tilde{c}(r, t), c(r, t)) &= \\ &= \frac{\|\tilde{c}(r, t) - c(r, t)\|_C}{\|c(r, t)\|_C} \times 100\% \approx 1.17\%. \end{aligned}$$

В этом случае влияние переменного времени жизни экситонов на их концентрацию является практически незаметным. На рис. 3 изображено сечение поверхности  $c(r, t)$  (кривая 1) и сечение поверхности  $\tilde{c}(r, t)$  (кривая 2) при  $r = 0$ , где наиболее заметно это влияние. Из рис. 3 видно, что, начиная приблизительно с момента времени  $t = 200$  пс, профиль концентрации экситонов для модифицированной модели заметно медленнее убывает с ростом времени, что обусловлено влиянием второго канала рекомбинации.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложена математическая модель диффузии носителей заряда в полупроводнике с учетом их переменного эффективного времени жизни частиц. Предлагаемая модель учитывает два независимых канала рекомбинации, которые могут оказывать влияние на изменение профиля концентрации носителей заряда во времени.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Исследования проведены при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 19-03-00271).

## КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Растровая электронная микроскопия для нанотехнологий. Методы и применение / Ред. Жу У., Ванга Ж.Л. М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2013. 582 с.
2. Goldstein J.I., Newbury D.E., Michael J.R., Ritchie N.W., Scott J.H.J., Joy D.C. Scanning electron microscopy and X-ray microanalysis. N.Y. Inc.: Springer-Verlag, 2018. 550 p.
3. Конников С.Г., Сидоров А.Ф. Электронно-зондовые методы исследования полупроводниковых материалов и приборов. М.: Энергия, 1978. 135 с.
4. Якимов Е.Б. // Кристаллография. 2021. Т. 66. № 4. С. 540. <https://www.doi.org/10.31857/S0023476121040226>

5. *Yacobi B.G., Holt D.B.* Cathodoluminescence microscopy of inorganic solids. N.Y.: Plenum Press, 1990. 354 pp.
6. *Соломонов В.И., Михайлов С.Г.* Импульсная катодолуминесценция и ее применение для анализа конденсированных веществ. Екатеринбург: НИСО УрО РАН, 2003. 181 с.
7. *Saparin G.V., Obyden S.K., Ivannikov P.V.* // Scanning. 1996. V. 18. № 4. P. 281.  
<https://www.doi.org/10.1002/sca.1996.4950180404>
8. *Noltemeyer M., Bertram F., Hempel T., Bastek B., Polyakov A., Christen J., Brandt M., Lorenz M., Grundmann M.* // J. Mater. Research. 2012. V. 27. Iss. 17. P. 2225.
9. *Поляков А.Н., Noltemeyer M., Hempel T., Christen J., Степович М.А.* // Прикладная физика. 2012. № 6. С. 41.
10. *Поляков А.Н., Noltemeyer M., Hempel T., Christen J., Степович М.А.* // Поверхность. Рентген., синхротрон. и нейтрон. исслед. 2012. № 11. С. 35.
11. *Polyakov A.N., Smirnova A.N., Stepovich M.A., Turtin D.V.* // Lobachevskii J. Math. 2018. V. 39. № 2. P. 259.
12. *Stepovich M.A., Turtin D.V., Seregina E.V., Polyakov A.N.* // J. Phys.: Conf. Ser. 2019. V. 1203. P. 012095.
13. *Поляков А.Н., Noltemeyer M., Hempel T., Christen J., Степович М.А.* // Прикладная физика. 2015. № 4. С. 11.
14. *Михеев Н.Н., Петров В.И., Степович М.А.* // Известия АН СССР. Серия физическая. 1991. Т. 55. № 8. С. 1474.
15. *Туртин Д.В., Степович М.А., Калманович В.В., Серегина Е.В.* // Проблемы математического анализа: Межвузовский сборник. 2021. Вып. 110. С. 89.
16. *Seregina E.V., Polyakov A.N., Stepovich M.A.* // J. Phys.: Conf. Ser. 2018. V. 955. P. 012032.
17. *Степович М.А., Серегина Е.В., Поляков А.Н., Лямина О.И.* // Информатика и кибернетика. 2018. № 1(11). С. 100.
18. *Серегина Е.В., Степович М.А., Макаренко А.М.* // Итоги науки и техники. Сер. Современ. мат. и ее прил. Темат. обз. 2021. Т. 200. № 1(11). С. 105.  
<https://www.doi.org/10.36535/0233-6723-2021-200-105-114>
19. *Амрастанов А.Н., Серегина Е.В., Степович М.А., Филиппов М.Н.* // Поверхность. Рентген., синхротрон. и нейтрон. исслед. 2018. № 8. С. 48.  
<https://www.doi.org/10.1134/S0207352818080036>
20. *Поляков А.Н., Noltemeyer M., Hempel T., Christen J., Степович М.А.* // Известия РАН. Серия физическая. 2012. Т. 76. № 9. С. 1082.
21. *Properties of Group III Nitrides* / Ed. by Edgar J.H. London: INSPEC, 1994. 302 p.
22. *Properties, Processing and Application of GaN and Related Semiconductors* / Ed. Edgar J.H. London: INSPEC, 1999. 830 p.
23. *Новиков Ю.А., Раков А.В., Филиппов М.Н.* // Измерительная техника. 2004. № 5. С. 13.
24. *Колмогоров А.Н., Фомин С.В.* Элементы теории функций и функционального анализа. М.: Физматлит, 2004. 572 с.

## On a Mathematical Model of the Diffusion of Excitons in a Semiconductor Taking into Account Their Variable Lifetime

E. V. Seregina<sup>1, \*</sup>, M. A. Stepovich<sup>2</sup>, M. N. Filippov<sup>3</sup>

<sup>1</sup>*Bauman Moscow State Technical University (National Research University), Kaluga Branch, Kaluga, 248000 Russia*

<sup>2</sup>*Tsiolkovsky Kaluga State University, Kaluga, 248023 Russia*

<sup>3</sup>*Kurnakov Institute of General and Inorganic Chemistry RAS, Moscow, 119991 Russia*

\*e-mail: [evfs@yandex.ru](mailto:evfs@yandex.ru)

The time dependence of the concentration of nonequilibrium minority charge carriers generated in a homogeneous semiconductor material by a sharply focused electron beam, an electron probe, after the target irradiation is described. A mathematical model is constructed for the nonstationary diffusion of charged particles generated by a low-energy electron probe in a semiconductor target in the presence of two independent recombination channels of generated charge carriers in the target material. The use of a low-energy electron probe made it possible to use a two-dimensional mathematical model of diffusion in the simulation. As an initial condition in this model, the distribution of the concentration of nonequilibrium minority charge carriers under quasi-equilibrium conditions, before turning off the electron irradiation, is used. In the presence of two independent recombination channels, the profile of the decline in the concentration of nonequilibrium minority charge carriers in the target after the electron irradiation is turned off is described by the sum of two time-dependent exponents. This approach made it possible to obtain a solution to the differential equation for two-dimensional diffusion of charge carriers, taking into account their variable effective lifetime. The practical application of the developed mathematical model is implemented for the method of time-of-flight cathodoluminescence in describing the diffusion of excitons in single-crystal gallium nitride, taking into account the dependence of the concentration of generated excitons on time.

**Keywords:** diffusion of excitons, variable effective lifetime, semiconductor target, concentration profile.