

Заселение метастабильных состояний в *n*-GaAs

© В.В. Криволапчук, М.М. Мездрогина, Н.К. Полетаев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Vlad.krivol@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 20 мая 2002 г.

В окончательной редакции 3 сентября 2002 г.)

При исследовании затухания фотолюминесценции (ФЛ) линий D^0, h и D^0, x в эпитаксиальных слоях *n*-GaAs обнаружено, что в затухании присутствует медленная компонента $\tau \approx 10^{-5}$ s [1]. На рис. 1 [1,2] представлена кривая затухания ФЛ линии D^0, h . Время быстрого спада τ_0 соответствует времени жизни фотовозбужденных носителей $\tau_0 \leq 10^{-8}$ s, которое характерно для оптических переходов, формирующих указанные выше линии [2,3]. Проведенные нами эксперименты [4,5] позволили сделать вывод, что медленное затухание интенсивности ФЛ обусловлено существованием метастабильных состояний, захватывающих дырки. Формирование длительного послесвечения линии излучения D^0, h происходит в результате безактивационного выброса дырки в валентную зону из метастабильного центра, которая затем рекомбинирует с электроном мелкого донора. Основными характеристиками медленного затухания излучения являются время спада интенсивности τ_s и величина интеграла по времени от интенсивности излучения под кривой медленного затухания I_τ . Время медленного спада τ_s определяется процессами высвобождения дырок из метастабильных состояний, при этом оно является постоянным для всех исследованных образцов и практически не зависит от внешних воздействий. Интеграл I_τ пропорционален количеству дырок, высвободившихся из метастабильных состояний, и, естественно, зависит от концентрации метастабильных центров и их заселенности.

Заселение метастабильных центров осуществляется во время действия импульса возбуждения и определяется интенсивностью этого возбуждения (темпом генерации) и эффективностью механизма перехода носителей на эти центры, который связан с величиной сечения захвата σ_{MS} . Полное количество захваченных на метастабильные центры дырок после окончания импульса возбуждения пропорционально также концентрации этих центров N_{MS} . Поскольку интегральная интенсивность длительного послесвечения (I_τ) определяется концентрацией заселенных в результате возбуждения метастабильных центров, она отличается для разных образцов (рис. 1, *b*) вследствие того, что отличается N_{MS} . Экспериментально количество захваченных дырок может быть оценено из светосуммы, излученной образцом после окончания импульса возбуждения. Эта светосумма может быть определена как площадь под кривой затухания фотолюминесценции. Она показана на

рис. 1, *a* штриховкой и равна интегралу $I_\tau = \int I(t)dt$. Процессы захвата носителей в метастабильные состояния и их освобождение непосредственно не связаны с процессом излучательной рекомбинации (D^0, h ; D^0, x), следовательно, при анализе экспериментальных данных необходимо разделять влияние внешних воздействий на излучательную рекомбинацию и процессы заселения метастабильных центров. Для того чтобы учесть разнообразные факторы, влияющие на интенсивность линий (D^0, h) и (D^0, x), мы нормировали этот интеграл на величину интенсивности линий (D^0, h) и (D^0, x) в момент возбуждения ($B_{MS} = I_\tau / I_{ex}$, где I_{ex} — интеграл интенсивности свечения в момент импульса возбуждения). Таким образом, определенная величина B_{MS} не будет зависеть от изменения собственно процесса излучения линии D^0, h и, следовательно, B_{MS} может служить мерой, отражающей заселенность метастабильных состояний. Для выяснения особенностей механизмов заселения метастабильных центров исследовано поведение B_{MS} при различных внешних воздействиях. Исследование зависимости величины B_{MS} от интенсивности возбуждения было выполнено ранее [4]. Проведенный в настоящей работе анализ экспериментальных данных совместно с результатами модельного численного расчета позволил описать поведение B_{MS} во всем диапазоне интенсивностей возбуждающего света. Это позволило оценить концентрацию метастабильных центров ($N_{MS} \approx 10^{13} \text{ cm}^{-3}$). Заселение центров определяется (в значительной степени) энергетическим положением уровня захвата, который может находиться как в запрещенной, так и в разрешенной зоне. В последнем случае такие состояния будут действовать как источники резонансного рассеяния [6] свободных носителей.

Цель данной работы — выяснение особенностей процесса заселения метастабильных состояний. Для этого изучено поведение величины B_{MS} долговременного затухания (отражающей заселенность метастабильных состояний в данном образце) в зависимости от температуры (T_b), величины одноосного сжатия (P_d) и напряженности магнитного поля (B_f).

1. Эксперимент

Исследовались образцы эпитаксиального *n*-GaAs с $N_d - N_a = 10^{13} - 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Слои выращивались на подложках с ориентацией $\langle 100 \rangle$ различными метода-

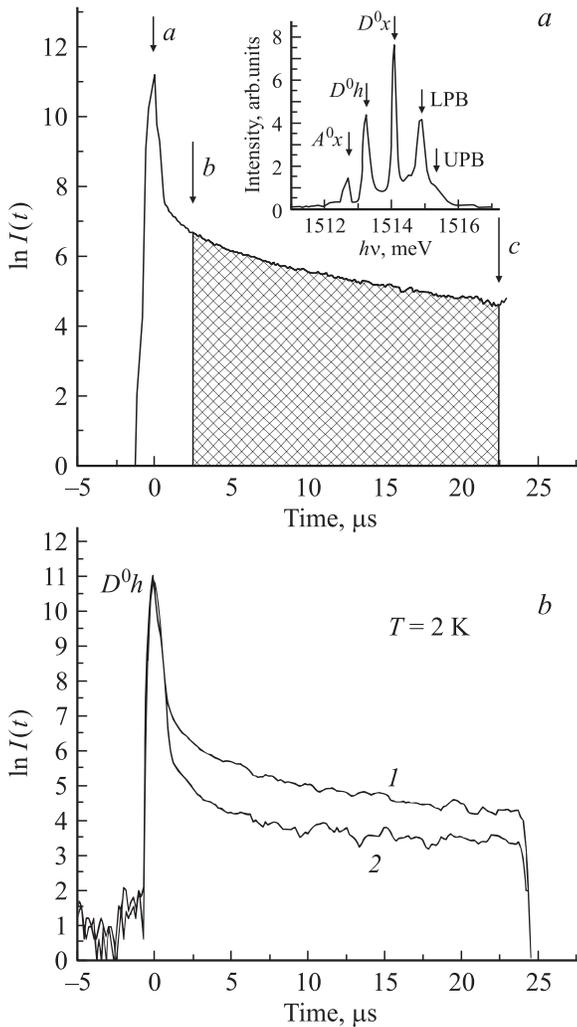


Рис. 1. *a* — кривая затухания излучения линии D^0, h при $T = 2\text{ K}$ в одном из образцов $n\text{-GaAs}$. Заштрихованная область обозначает интеграл $I_\tau = \int I(t) dt$, определяемый медленным высвечиванием. На вставке показан типичный вид спектра $n\text{-GaAs}$ в экситонной области при $T = 2\text{ K}$, где LPB и UPB — нижняя и верхняя ветви поляритона соответственно; линия A^0, x — излучение экситона, связанного на нейтральном акцепторе. *b* — кривые затухания излучения линии D^0, h ($T = 2\text{ K}$) двух различных образцов $n\text{-GaAs}$.

ми: жидкофазной эпитаксией (LPE), газофазной эпитаксией в хлоридной системе (HVPE) и эпитаксией МОС-гидридным способом. Все образцы, использовавшиеся в экспериментах, имели достаточно высокую интенсивность фотолюминесценции в экситонной области спектра. Люминесценция возбуждалась импульсным YAG-лазером ($\lambda_{\text{ex}} = 530\text{ nm}$, $\tau = 10^{-7}\text{ s}$) либо полупроводниковым лазером ($\lambda_{\text{ex}} = 759\text{ nm}$, $\tau = 10^{-6} - 10^{-7}\text{ s}$). Спектры и кинетика ФЛ регистрировались с использованием двойного дифракционного спектрометра ДФС-52 методом время-коррелированного счета фотонов. Температурные измерения осуществлялись в диапазоне 2–25 K с использованием криостата УТРЕКС. Зависи-

мость спектров затухания ФЛ (D^0, x ; D^0, h) от величин напряженности внешнего магнитного поля излучалась при температурах 1.8 и 4.2 K, а одноосного сжатия — только при 4.2 K. Регистрация спектров и кинетики в магнитном поле осуществлялась в геометрии Фарадея (магнитное поле перпендикулярно поверхности образца). Величина напряженности магнитного поля менялась в диапазоне от 0 до 4 T.

2. Экспериментальные результаты и обсуждение

Экспериментальная зависимость B_{MS} от температуры (T_b) приведена на рис. 2. Из рисунка видно, что величина B_{MS} уменьшается с ростом температуры приблизительно на порядок. Исследование зависимости поведения B_{MS} (при $T = 4.2\text{ K}$) от величины одноосного сжатия (P_d) и напряженности магнитного поля (B_f) (рис. 3, *a* и *b* соответственно) показало, что интеграл B_{MS} также уменьшается (приблизительно в 2 раза) по мере увеличения P_d и B_f . Из рис. 2, 3 видно, что характер изменения B_{MS} в зависимости от T_b , P_d и B_f , хотя и имеет разные функциональные зависимости, качественно идентичен — B_{MS} монотонно уменьшается. Важным обстоятельством является то, что уменьшение величины B_{MS} (отражающей поведение глубокого локализованного центра) происходит при малых значениях (и малом диапазоне изменения) T_b , P_d и B_f .

Переходя к обсуждению, заметим, что температурная зависимость сечения захвата на различные центры изучалась подробно для различных полупроводниковых соединений [7–9] и, как показано в этих исследованиях, определяется многими факторами. При этом следует заметить, что характер температурной зависимости сечения $\sigma_{\text{MS}} = F(T_b)$ чувствителен к параметрам центра и реализуемому в конкретных условиях механизму захвата носителей на центр. При термоактивационном механизме сечение захвата (а следовательно, $B_{\text{MS}} \sim \sigma_{\text{MS}}$) растет с увеличением температуры [7], а при каскадном

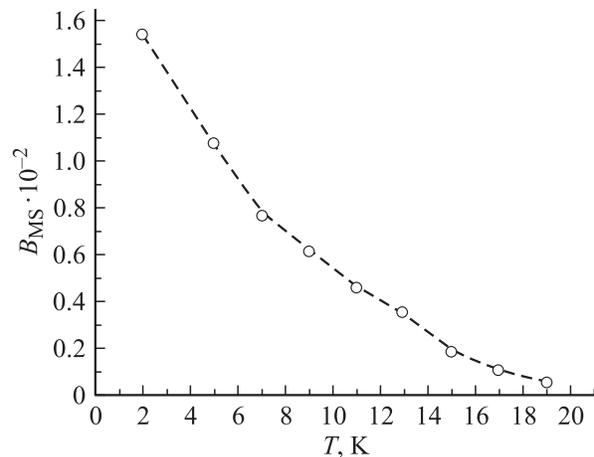


Рис. 2. Зависимость величины B_{MS} от температуры.

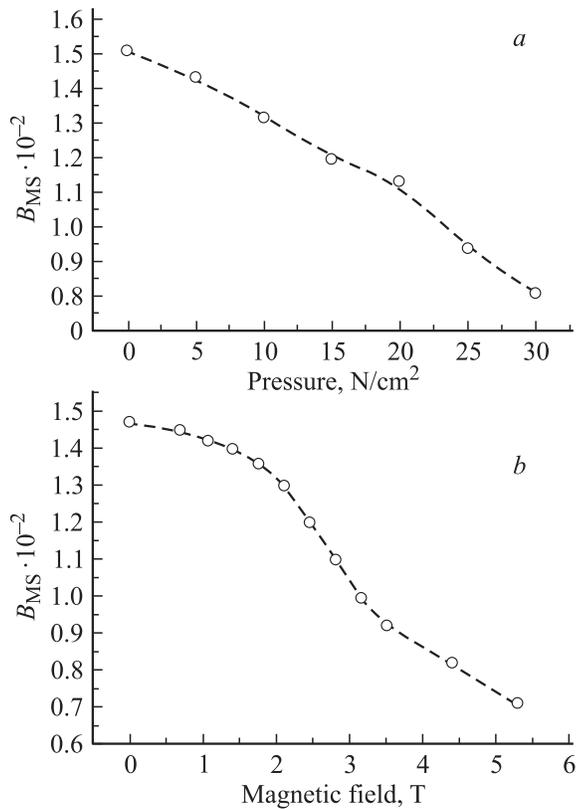


Рис. 3. Изменение B_{MS} при $T = 4.2$ К в зависимости от величины одноосного сжатия (а) и напряженности магнитного поля (б).

захвате на притягивающий центр [8] сечение уменьшается с ростом температуры, что наблюдалось и в нашем случае. Однако применимость каскадного механизма захвата для описания приведенных выше экспериментальных результатов вызывает сомнения, поскольку время высвобождения из метастабильных состояний не зависит от температуры. Кроме того, исследования кинетики в наносекундном диапазоне и ионизации связанного экситона (линия D^0, x) в зависимости от температуры [10] показали, что в области температур 6–8 К в поведении B_{MS} наблюдается заметная особенность.

Принимая во внимание эти факты, а также формальную независимость сечения захвата в каскадной модели [8] (изменение плотности энергетических уровней при малом изменении P_d и B_f маловероятно), мы использовали для анализа экспериментальных данных по зависимости B_{MS} от T_b , P_d и B_f модель туннельного механизма заселения глубоких центров [11,12] (природа потенциального барьера для приведенного далее феноменологического рассмотрения не столь важна и поэтому здесь не обсуждается). В рамках этой модели заселение метастабильных центров осуществляется в результате туннельного перехода носителя из свободного состояния E_f , принадлежащего зоне ($E = \hbar k^2/2m^*$), на уровень захвата метастабильного центра E_{MS} . Вероят-

ность тунnelирования определяется в общем виде выражением [13] $W_t \approx \exp(-\{(2m)^{1/2}/\hbar\} \int [U(x) - E_{MS}]^{1/2} dx)$, где m — масса частицы, $U(x)$ — потенциал барьера, E_{MS} — энергия, для которой рассчитывается вероятность туннельного перехода. Количество свободных носителей, туннелирующих из E_f на уровень метастабильного центра, будет определяться заселенностью состояния (реальное заселение метастабильного центра возможно, если заселено состояние зоны с энергией $E_t = E_{MS}$).

В этой связи рассмотрим причины изменения заселенности метастабильных состояний (B_{MS}) при изменении внешних воздействий (T_b , P_d , B_f), которые определяются реакцией свободных носителей на эти внешние воздействия и тем самым зависят от функции распределения носителей в разрешенной зоне. Можно полагать, что при использовавшихся в эксперименте сравнительно небольших значениях P_d и B_f состояние локального центра практически не изменяется, а все изменения связаны с функцией распределения свободных носителей. Следует заметить, что увеличение P_d и B_f приводит (несмотря на различную природу воздействия) к одному результату, а именно к „эффективному“ увеличению ширины запрещенной зоны в Γ -точке, на изменение величины которой указывает одинаковый сдвиг всех

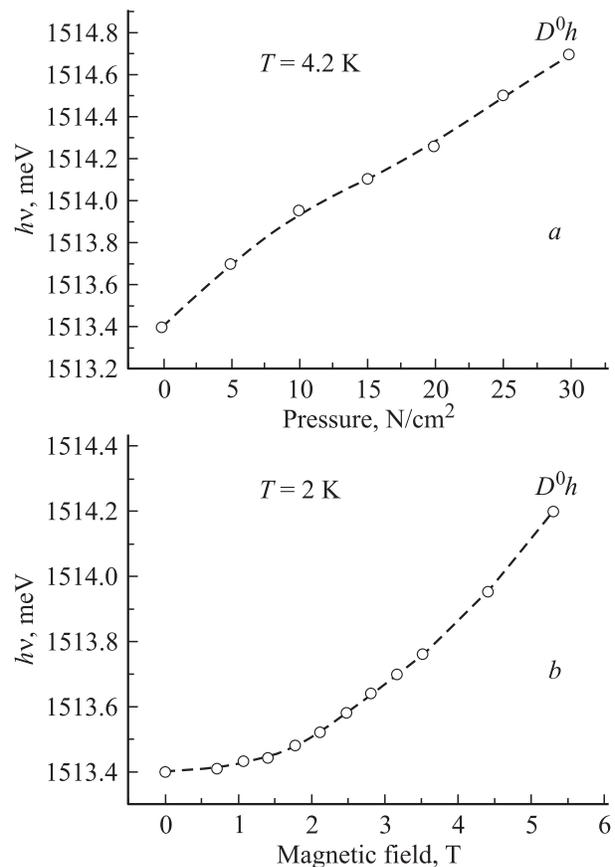


Рис. 4. Изменение спектрального положения линии D^0, h ($T = 4.2$ К) по мере увеличения одноосного сжатия (а) и напряженности магнитного поля (б).

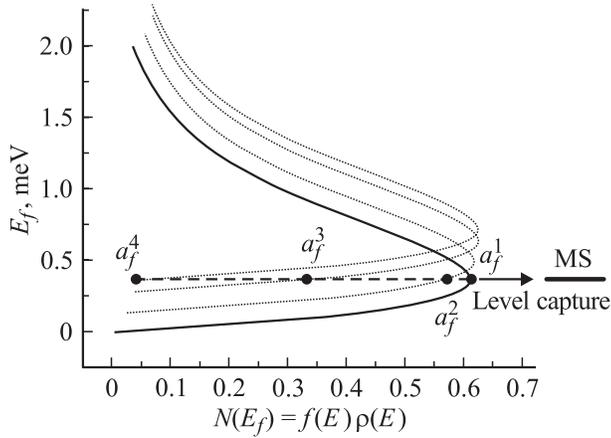


Рис. 5. Уменьшение заселенности $N(E_f) = f(E)\rho(E)$ в зоне при значении энергии $E_f = E_{MS}$ для четырех различных значений величины одноосного сжатия P_d по мере их увеличения ($a_f^1 < a_f^2 < a_f^3 < a_f^4$).

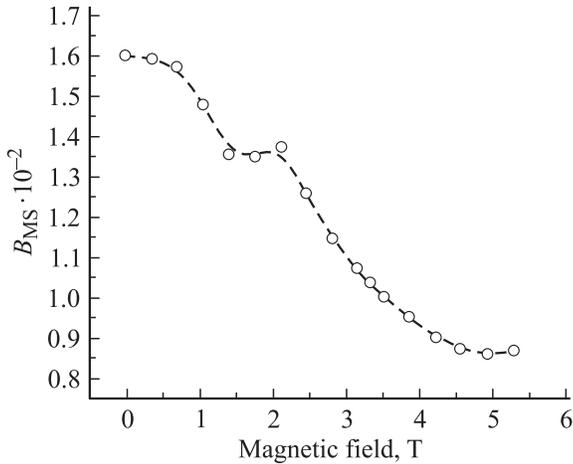


Рис. 6. Зависимость величины B_{MS} от напряженности магнитного поля при $T = 2$ К.

линий спектра излучения (F_x, D^0, x и D^0, h) в сторону больших энергий (этот сдвиг показан для линии D^0, h на рис. 4). В результате сдвига края зоны изменяется заселенность на энергии $E_f = E_{MS}$. Заселенность при этом определяется выражением $N(E) = \rho(E)f(E)$, где $\rho(E)$ — плотность состояний, а $f(E)$ — функция распределения носителей в разрешенной зоне. Для качественной иллюстрации этого процесса функция распределения свободных носителей $f(E)$ принималась нами в виде распределения Максвелла ($T = 4.2$ К). Положение максимума функции $f(E)$ соответствует энергии E_f . Изменение полученной таким образом функции заселенности $N(E)$ при значении энергии $E_f = E_{MS}$ для четырех последовательно возрастающих значений P_d показано на рис. 5. Этот рисунок иллюстрирует уменьшение заселенности в точке зоны с энергией $E_f = E_{MS}$ при увеличении одноосного сжатия и напряженности

магнитного поля. Действительно, как видно из рис. 5, по мере увеличения P_d и B_f и, следовательно, максимума функции распределения $f(E)$ заселенность точки $N(E_f)$ будет монотонно уменьшаться (точки $a_f^1, a_f^2, a_f^3, a_f^4$ на рис. 5). Необходимо отметить два аспекта, следующие из приведенной выше модели туннельного перехода. 1) Заселение центров реально, если энергия туннельного перехода E_{MS} (отвечающая уровню метастабильного состояния) попадает в интервал энергий, равный полуширине функции распределения носителей в зоне. При этом осуществляется резонансное туннелирование. 2) Величина B_{MS} (а следовательно, и заселенность метастабильных состояний) будет уменьшаться при увеличении P_d и B_f только в том случае, если при фиксированной температуре $T = 2$ и 4.2 К и $P_d = 0, B_f = 0$ энергия, отвечающая максимуму функции распределения (E_f), больше энергии, соответствующей уровню метастабильного состояния (E_{MS}).

Резонансный характер туннелирования находит подтверждение в зависимости интеграла B_{MS} от величины напряженности магнитного поля при $T = 2$ К, которая показана на рис. 6. Как видно из рисунка, при увеличении напряженности магнитного поля на фоне монотонного спада интеграла B_{MS} наблюдается заметная особенность при напряженности магнитного поля $H = 1.5$ Т. Причиной увеличения заселенности (величины интеграла B_{MS}) при определенном значении напряженности магнитного поля является возникновение уровней Ландау. Действительно, в этом случае выражение для энергии носителей в зоне без учета спиновой составляющей принимает вид $E = \hbar^2 k_z^2 / 2m + (n + 1/2)\hbar\omega_c$, где $\omega_c = eH/m^*$. Здесь ω_c — циклотронная частота, e — заряд электрона, H — величина напряженности магнитного поля, m^* — эффективная масса носителя. Из этого выражения следует, что при увеличении внешнего магнитного поля край зоны смещается в сторону больших энергий, вследствие чего и наблюдается, как отмечено выше, монотонный спад заселенности MS при температуре 4.2 К.

Появление на фоне монотонного спада локального максимума при $B = 1.5$ Т обусловлено модификацией плотности состояний — возникают критические точки для подзон Ландау, которые определяются условием $\partial E_n(k_z) / \partial k_z = 0$. В результате при совпадении энергии максимума (E_f) модифицированной плотности состояний с энергией метастабильного уровня E_{MS} туннелирование возрастает, вследствие чего увеличивается заселенность этого состояния (возрастает интеграл B_{MS}). Величина локального максимума интеграла B_{MS} (и даже само его наличие) зависит от соотношения полуширины функции распределения носителей по энергиям, которая определяется температурой ($k_B T$), и энергетического интервала ($\hbar\omega_B$) между уровнями Ландау. Действительно, максимум наблюдается при температуре $T = 2$ К и величине магнитного поля $B = 1.5$ Т, однако при температуре 4.2 К, когда величина kT больше $\hbar\omega_c$,

максимума нет и спад заселенности M_S происходит только монотонно.

Анализ приведенных выше экспериментальных данных зависимости величины B_{MS} от P_d , B_f и T_b позволяет в первом приближении оценить границы энергии, в пределах которых находится уровень захвата E_{MS} метастабильного центра. Возможность такой оценки основана на следующем: в случае $E_i < E_{MS}$ по мере приближения E_f к энергии E_{MS} количество носителей, туннелирующих в состояние с энергией E_{MS} , будет монотонно возрастать и, следовательно, B_{MS} будет увеличиваться, а поскольку с увеличением P_d и B_f наблюдалось монотонное уменьшение интеграла B_{MS} , энергия уровня E_{MS} , на который происходит захват, оказывается меньше энергии, соответствующей максимуму распределения носителей в зоне ($E_{MS} < E_f$). Только в этом случае при сдвиге функции распределения носителей в сторону высоких энергий (при приложении давления или магнитного поля) количество носителей с энергией, равной энергии уровня захвата на E_{MS} ($N(E_f = E_{MS})$), будет уменьшаться (точки a_f^1 , a_f^2 , a_f^3 , a_f^4 на рис. 5). Величина B_{MS} максимальна при a_f^1 и минимальна при a_f^4 (рис. 3). Таким образом, задача определения энергии уровня захвата (E_{MS}) сводится к определению энергетического интервала, в котором изменяется максимум функции распределения и его положение E_f относительно края зоны при $(P_d, B_f) = 0$ и температурах эксперимента T и 4.2 К. Величина изменения энергетического положения ($T = \text{const}$) максимума функции распределения $f(E)$ (a_f), обусловленная увеличением E_g , определяется из величины сдвига линий излучения (рис. 4) и приблизительно равна 1 meV. Определение реального значения E_f затруднено вследствие того, что функция распределения является неравновесной и эффективная температура носителей (T^*) заметно отличается от температуры решетки. Определение вида неравновесной функции распределения является очень трудной задачей. Для грубой оценки мы использовали данные работы [14], в которой приведено значение эффективной температуры для экситонов $T^* \approx 7$ К (0.6 meV). На основании сделанных таким образом оценок можно предположить, что величина E_{MS} находится в пределах нескольких meV от края зоны.

Таким образом, совокупность экспериментальных данных, отражающих эволюцию величины B_{MS} при увеличении P_d , T_b и B_f , позволяет предположить существование уровня захвата в разрешенной зоне, который отстоит от края зоны на несколько meV. Можно полагать, что его заселение осуществляется в результате резонансного туннельного обмена носителями между подсистемой свободных носителей и резервуаром метастабильных локализованных состояний. Кроме того, зависимость интеграла B_{MS} от P_d и B_f позволяет качественно определить низкоэнергетический хвост неравновесной функции распределения экситонов.

Список литературы

- [1] А.В. Акимов, А.А. Каплянский, В.В. Криволапчук, Е.С. Москаленко. Письма в ЖЭТФ **46**, 35 (1987).
- [2] А.В. Акимов, В.В. Криволапчук, Н.К. Полетаев, В.Г. Шофман. ФТП **27**, 310 (1993).
- [3] D. Bimberg, H. Munzel, A. Steckenborn, J. Christen. Phys. Rev. B **12**, 7788 (1985).
- [4] А.В. Акимов, Ю.В. Жилияев, В.В. Криволапчук, Н.К. Полетаев, В.Г. Шофман. ФТП **25**, 713 (1991).
- [5] В.В. Криволапчук, Н.К. Полетаев, Л.М. Федоров. ФТП **28**, 310 (1994).
- [6] Б. Ридли. Квантовые процессы в полупроводниках. Мир, М. (1986). С. 175.
- [7] С.Н. Henry, D.V. Lang. Phys. Rev. B **15**, 989 (1977).
- [8] В.Н. Абакумов, В.И. Перель, И.Н. Ясиевич. ФТП **12**, 3 (1978).
- [9] В.Н. Абакумов, И.А. Меркулов, В.И. Перель, И.Н. Ясиевич. ЖЭТФ **89**, 1472 (1985).
- [10] В.В. Криволапчук, Н.К. Полетаев. ФТП **32**, 307 (1998).
- [11] R. Kubo. Phys. Rev. **86**, 929 (1952).
- [12] R. Kubo, Y. Toyozawa. Progr. Theor. Phys. **13**, 160 (1957).
- [13] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Квантовая механика. Наука, М. (1974). С. 215.
- [14] В.М. Ботнарюк, Ю.В. Жилияев, В.В. Россин, Т.В. Россина, В.В. Травников. ФТТ **28**, 201 (1986).