Терагерцовое излучение, связанное с примесными переходами электронов в квантовых ямах при оптической и электрической накачке

© Д.А. Фирсов*[¶], Л.Е. Воробьев*, В.Ю. Паневин*, А.Н. Софронов*, Р.М. Балагула*, И.С. Махов*, Д.В. Козлов⁺•, А.П. Васильев[♦]

* Санкт-Петербургский государственный политехнический университет,

⁺ Институт физики микроструктур Российской академии наук,

• Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,

• Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,

194021 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 23 мая 2014 г. Принята к печати 15 июня 2014 г.)

Исследовано излучение терагерцового спектрального диапазона из структур с легированными квантовыми ямами GaAs/AlGaAs в условиях межзонного оптического возбуждения электронно-дырочных пар в структурах *n*-типа и при примесном пробое в продольном электрическом поле в структурах *p*-типа. Получены спектры излучения. Излучение наблюдается при низких температурах, показано, что оно определяется оптическими переходами между состояниями примеси и переходами между зонными и примесными состояниями. При оптической межзонной накачке опустошение примесных состояний осуществляется благодаря рекомбинации электронно-дырочных пар с участием примеси, в электрическом поле примесные состояния опустошаются благодаря ударной ионизации.

1. Введение

Разработка эффективных твердотельных источников излучения терагерцового спектрального диапазона (длина волны 50-300 мкм) является важной и актуальной задачей, поскольку область потенциального применения таких источников чрезвычайно широка и включает информационные технологии, медицину, системы контроля и безопасности, связь, физические исследования материалов и структур [1]. Перспективный механизм эмиссии терагерцового излучения может быть основан на использовании внутрицентровых переходов носителей заряда в легированных полупроводниках и полупроводниковых наноструктурах. С оптическими внутрицентровыми переходами дырок авторы работы [2] связывают генерацию терагерцового излучения в однооснодеформированном германии в электрическом поле. Известны также другие примеры получения терагерцового излучения при переходах носителей заряда между примесными состояниями. Это лазер на объемном кремнии с оптической накачкой [3], излучение при ударной ионизации электрическим полем нейтральной примеси в объемном кремнии [4]. Резонансные состояния примеси могут возникать не только при приложении внешнего механического напряжения, как в [2], но и благодаря внутренним напряжениям в структуре, образующимся при эпитаксиальном выращивании полупроводников с разной постоянной решетки. Терагерцовое излучение из таких структур в электрическом поле исследовано в работе [5].

В работах [1–5] терагерцовое излучение возникало в неравновесных условиях при опустошении примесных состояний электрическим полем или внутризонной оптической накачкой. Недавно был предложен иной способ опустошения состояний примеси в условиях межзонного оптического возбуждения легированного полупроводника, связанный с рекомбинацией неравновесных носителей заряда через примесные состояния. Терагерцовое излучение, связанное с таким механизмом, было обнаружено в объемном *p*-Ge и *n*-GaAs [6].

Работ по исследованию терагерцового излучения, связанного с переходами носителей заряда между уровнями примесных центров в полупроводниковых наноструктурах с квантовыми ямами, немного (см., например, работу [7], в которой описано терагерцовое излучение в продольном электрическом поле из структур с квантовыми ямами GaAs/AlGaAs с участием резонансных состояний примеси, которые возникали благодаря размерному квантованию). Между тем, характеристики источников терагерцового излучения на примесных переходах в структурах с квантовыми ямами могут быть более привлекательными из-за возможности управления энергией ионизации примеси в таких структурах при изменении параметров квантовых ям.

В настоящей работе представлены результаты наблюдения спонтанного излучения терагерцового диапазона в структурах с легированными квантовыми ямами (КЯ) GaAs/AlGaAs. Использовались два способа возбуждения неравновесных носителей заряда: электрическая накачка и межзонное оптическое возбуждение. В последнем случае, как и в работе [6], основное состояние донора опустошалось за счет межзонной рекомбинации

¹⁹⁵²⁵¹ Санкт-Петербург, Россия

⁶⁰⁷⁶⁸⁰ Нижний Новгород, Россия

⁶⁰³⁹⁵⁰ Нижний Новгород, Россия

[¶] E-mail: dmfir@rphf.spbstu.ru

10

с неравновесными дырками и терагерцовое излучение возникало при переходах неравновесных электронов из зоны проводимости на донорные уровни.

2. Терагерцовое излучение при межзонной оптической накачке

Образцы для исследований были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на полуизолирующей подложке GaAs и содержали буферный слой GaAs толщиной 0.2 мкм и 50 периодов квантовых ям GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As шириной 30 нм. Квантовые ямы разделялись барьерами шириной 7 нм. Легирование кремнием осуществлялось в слое шириной 4 нм, сдвинутом относительно центра КЯ на 6 нм. Концентрация доноров составляла $3 \cdot 10^{10}$ см⁻². Образцы также содержали покровный слой GaAs толщиной 20 нм, легированный кремнием до уровня $5 \cdot 10^{17}$ см⁻³.

Измерения велись с помощью криостата замкнутого цикла Janis PTCM-4-7, позволяющего поддерживать температуру в диапазоне 4–320 К. Неравновесные носители заряда возбуждались модулированным с частотой 87 Гц излучением твердотельного лазера с диодной накачкой ($\lambda = 532$ нм, P = 8 мВт), работающего в непрерывном режиме. С помощью оптической системы излучение накачки фокусировалось на поверхности образца под углом 45° к оси роста структуры. Терагерцовое излучение собиралось с поверхности образца в направлении оси роста через окно из полиметилпентена (TPX).

Спектры фотолюминесценции в терагерцовом диапазоне были получены с помощью вакуумного фурьеспектрометра Bruker Vertex 80v. Входное окно спектрометра было выполнено из полиэтилена, использовался также фильтр из черного полиэтилена для предотвращения попадания возбуждающего излучения в спектрометр. Излучение регистрировалось кремниевым болометром, охлаждаемым до температуры жидкого гелия. Измерения велись в режиме "step-scan", сигнал с болометра измерялся усилителем с синхронным детектором SR830.

В условиях межзонного оптического возбуждения происходит генерация неравновесных электроннодырочных пар. При низкой температуре доноры являются нейтральными, их основное состояние заполнено электронами, которые могут рекомбинировать с неравновесными дырками. Процессы захвата неравновесных электронов из подзоны размерного квантования на состояния заряженного донора могут протекать излучательным образом и сопровождаться эмиссией терагерцового излучения.

На рис. 1 представлены экспериментально найденные спектры терагерцового излучения из структур с квантовыми ямами в условиях межзонной оптической накачки. Для сравнения на рисунке также приведен спектр излучения образца без квантово-размерных слоев (спектр подложки). Следует отметить, что реальные спектры



Рис. 1. Спектры излучения структуры с КЯ GaAs/AlGaAs *n*-типа (1) и подложки (2) при межзонном оптическом возбуждении при T = 4.4 К.

могут отличаться от приведенных в силу спектральных особенностей оптической системы (светоделителей спектрометра, окон, фильтров).

Эксперимент показал, что широкая линия излучения в области 15–30 мэВ представлена на обоих спектрах. Это свидетельствует о том, что излучение в данной спектральной области не связано с наличием квантоворазмерных слоев в исследуемой структуре. Поскольку возбуждающее излучение может проникать в подложку, возможные причины появления линии в области 15–30 мэВ могут быть связаны с процессами в подложке либо с примесями, адсорбированными поверхностью структуры. Выяснение природы этого излучения требует проведения дополнительных исследований.

Линия излучения в диапазоне 4–13 мэВ наблюдается только в образце с квантовыми ямами. Оптимизация оптической схемы для увеличения чувствительности установки в этой спектральной области позволила более детально изучить эту линию. На рис. 2 представлены спектры излучения в длинноволновой области, измеренные при двух температурах.

Энергии переходов электронов между первым уровнем размерного квантования и основным уровнем примеси $e1 \rightarrow 1s$ и между возбужденным и основным уровнями примеси $2p_{x,y} \rightarrow 1s$ были рассчитаны для этой структуры в [7] и составляют 8.8 и 6.5 мэВ соответственно. Эти энергии показаны на рис. 2 стрелками. Удовлетворительное соответствие между рассчитанными энергиями переходов электронов с участием примесных уровней и экспериментально полученными спектрами позволяет предположить наличие приведенного выше механизма эмиссии терагерцового излучения.

С ростом температуры от 4.4 до 10 К интенсивность излучения падает примерно в 1.5 раза, при этом спектр излучения не меняется. Подобное уменьшение интенсивности излучения из объемных полупроводников с температурой было обнаружено в работе [6],



Рис. 2. Длинноволновая часть спектра излучения для двух температур решетки: T = 4.4 K (1) и T = 10 K (2). Стрелками показаны рассчитанные энергии переходов электронов.



Рис. 3. Сравнение спектра эмиссии излучения при межзонной оптической накачке (1) и спектра фотопроводимости (2), измеренного в этой же структуре [7].

где в качестве возможной причины этого приводилось уменьшение вероятности захвата электрона донорным центром с увеличением температуры. Для детального объяснения температурной зависимости требуются дальнейшие исследования.

Дополнительное подтверждение примесной природы наблюдаемого излучения приведено на рис. 3, на котором наряду со спектром излучения представлен спектр примесной фотопроводимости этой структуры, взятый из работы [7].

Спектры, изображенные на рис. 3, близки, однако они отличаются в длинноволновой и коротковолновой частях. Коротковолновый хвост спектра фотопроводимости, которого нет у спектра эмиссии, может быть связан с переходами электронов с уровня примеси в состояния подзоны размерного квантования с большим значением волнового вектора. В то же время длинноволновая часть спектра эмиссии может определяться излучательными переходами электронов из первой подзоны на возбужденные состояния примеси.

3. Терагерцовое излучение при возбуждении продольным электрическим полем

Во второй части работы исследовалось излучение из легированных структур с КЯ GaAs/AlGaAs в условиях пробоя примеси продольным электрическим полем. Ранее наблюдалось терагерцовое излучение в электрическом поле из структур с квантовыми ямами п-типа, связанное с переходами электронов, возбужденных электрическим полем, между резонансными и локализованными состояниями примеси [7]. В настоящей работе использовались структуры р-типа, что связано с большой энергией ионизации акцепторной примеси Ве, составляющей в наших структурах 46 мэВ и превышающей энергию оптического фонона. В таких условиях невозможен захват неравновесных дырок из валентной зоны на основной уровень примеси Ве с испусканием оптического фонона. Захват же неравновесных дырок из зоны на возбужденные состояния акцептора с эмиссией оптического фонона возможен, что может способствовать увеличению интенсивности терагерцового излучения, связанного с внутрицентровыми переходами дырок на основной уровень примеси.

Мы использовали структуры, выращенные методом молекулярно-пучковой эпитаксии на полуизолирующей подложке GaAs, которые содержали буферный слой GaAs толщиной 0.2 мм и 200 периодов квантовых ям GaAs/Al_{0.4}Ga_{0.6}As шириной 3.8 нм. Квантовые ямы разделялись барьерами шириной 7 нм. Легирование бериллием осуществлялось в центральной части квантовой ямы в слое шириной 0.8 нм. Концентрация акцепторов составляла 3.2 · 10¹¹ см⁻². Образцы также содержали покровный слой GaAs толщиной 20 нм, легированный кремнием до уровня 5 · 10¹⁷ см⁻³. Контакты к образцам представляли собой две узкие параллельные полоски индия, нанесенные на поверхность структуры и подвергнутые отжигу в атмосфере азота при температуре 450°С, и обеспечивали возможность приложения электрического поля в плоскости структуры ко всем слоям квантовых ям.

На рис. 4 приведены вольт-амперная характеристика (ВАХ) и зависимость интегральной интенсивности излучения, измеренные при температуре 4.2 К в режиме одиночных импульсов электрического поля длительностью 2 мкс. Образец и фотоприемник Ge(Ga) помещались в транспортный сосуд Дьюара для жидкого гелия. Излучение появляется в электрических полях, превышающих поле примесного пробоя, которое примерно равно 1000 В/см.

Спектры излучения изучались с помощью методики, описанной в основном в предыдущем разделе. Отличие состояло в способе возбуждения неравновесных дырок — использовался примесный пробой в продольном



Рис. 4. Вольт-амперная характеристика (1) и интегральная интенсивность (2) терагерцового излучения, измеренные при T = 4.2 К в структурах с КЯ GaAs/AlGaAs *p*-типа.



Рис. 5. Спектры излучения структуры с КЯ GaAs/AlGaAs *p*-типа в продольном электрическом поле 560 В/см (*I*) и 680 В/см (*2*). Температура T = 15 К. Числа у стрелок обозначают рассчитанные энергии внутрицентровых переходов (в мэВ).

электрическом поле. Чтобы избежать джоулева нагрева образца, электрическое поле прикладывалось в виде серий из четырех импульсов длительностью 20 мкс. Расстояние между импульсами в серии составляло 1.5 мс, частота следования серий 87 Гц.

На рис. 5 приведены экспериментально найденные спектры эмиссии для разных значений продольного электрического поля, измеренные при T = 15 К. Напряженность электрического поля пробоя при этой температуре, определенная по ВАХ, составляет около 400 В/см.

Для выяснения природы наблюдаемого излучения были рассчитаны энергии примесных уровней Ве в исследуемой структуре. Расчеты проводились в приближении эффективной массы. Гамильтониан уравнения для огибающих волновых функций включал в себя гамильтониан Латтинжера, ограничивающий потенциал квантовой ямы, кулоновский потенциал точечного заря-

3 Физика и техника полупроводников, 2015, том 49, вып. 1

да акцептора и потенциал центральной ячейки, описывающий химический сдвиг. Использовалось аксиальное приближение; при этом в недиагональных элементах гамильтониана Латтинжера были опущены слагаемые, пропорциональные $(\gamma_2 - \gamma_3)$ $(\gamma_2, \gamma_3 - параметры Латт$ инжера). В аксиальном приближении сохраняется проекция полного момента на нормаль к квантовой яме, и спектр акцептора оказывается двукратно вырожденным по знаку этой проекции. Волновая функция акцептора разлагалась по базису из огибающих волновых функций свободных дырок в квантовой яме $v_n^s(\mathbf{k}, z)e^{i\mathbf{k}\rho}$, которые являются собственными функциями гамильтониана в отсутствие потенциала примеси. (Здесь *n* — номер подзоны размерного квантования, ρ — радиус-вектор в плоскости квантовой ямы, k — волновой вектор дырки, *s* = 1, ..., 4 — номер компоненты волновой вектор-функции дырки). Подставляя это разложение в уравнение эффективной массы, получаем интегральное уравнение для коэффициентов разложения. Далее интеграл может быть заменен дискретной суммой по k; при этом шаг по k необходимо выбирать меньше обратного боровского радиуса, чтобы подынтегральная функция мало менялась на одном шаге. Суммирование может быть оборвано при значениях k, много больших обратного боровского радиуса. Таким образом, задача сводится к диагонализации конечномерной эрмитовой матрицы.

Для расчета величины химического сдвига для акцепторной примеси бора, помещенной в произвольную точку гетероструктуры, использовался, аналогично [8], модельный потенциал, существенный в окрестности акцепторного иона:

$$\Delta V = \left[\frac{1}{\varepsilon} - \frac{1}{\varepsilon_0}\right] \frac{e^{-r/a}}{r},$$

где a = 5.65 Å (постоянная решетки GaAs); $\varepsilon_0 = 13.6$ — диэлектрическая проницаемость GaAs; $1 < \varepsilon < 11.4$ — эффективная диэлектрическая проницаемость, являющаяся подгоночным параметром, который подбирался исходя из наилучшего согласия результатов расчета с имеющимися экспериментальными данными для энергии основного состояния примеси бериллия в объемном GaAs. Значение этого параметра оказалось равным $\varepsilon = 8.5$.

Схема полученных уровней энергии акцепторов приведена на рис. 6. Широкие линии соответствуют большим значениям оптического матричного элемента.

На рис. 5 стрелками показаны энергии кванта, соответствующие разрешенным переходам дырок с участием примесных состояний. Положение экспериментально полученного спектра эмиссии удовлетворительно согласуется с рассчитанными энергиями примесных переходов. При этом экспериментально найденный спектр простирается в область малых энергий кванта 20–28 мэВ. Соответствующее излучение может быть связано с переходами горячих тяжелых дырок из подзоны *hh*1 на возбужденные состояния акцептора. Интенсивность излучения в области энергий квантов, превышающих 40 мэВ, мала,



Рис. 6. Рассчитанные уровни энергии акцептора, связанные с первой подзоной тяжелых дырок hh1 в структуре с КЯ GaAs/AlGaAs. Стрелки 31–41.8 мэВ показывают разрешенные оптические переходы дырок для *s*-поляризации (*I*) и *z*-поляризации (*2*) света. Переходы 40 и 41.8 мэВ соответствуют большим значениям оптического матричного элемента.

несмотря на большую силу осциллятора, рассчитанную для переходов 40 и 41.8 мэВ. Это может быть объяснено близостью соответствующих энергий квантов к энергии поперечного оптического фонона подрешетки AlAs.

4. Заключение

Итак, в работе показано, что в структурах с квантовыми ямами GaAs/AlGaAs возможно наблюдение излучения терагерцового диапазона, связанного с переходами носителей заряда на состояния примеси. Продемонстрированы два способа опустошения основного состояния примеси: межзонное оптическое возбуждение, приводящее к рекомбинации электронно-дырочных пар с участием примесных состояний, и пробой примеси в продольном электрическом поле.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты 12-02-01155, 14-02-90444), Министерства образования и науки РФ (государственное задание) и German-Russian Program of the Federal Ministry of Education and Research (BMBF).

Список литературы

- [1] M. Tonouchi. Nature Photonics, 1 (2), 97 (2007).
- [2] Yu.P. Gousev, I.V. Altukhov, K.A. Korolev, V.P. Sinis, M.S. Kagan, E.E. Haller, M.A. Odnoblyudov, I.N. Yassievich, K.-A. Chao. Appl. Phys. Lett., 75 (6), 757 (1999).
- [3] S.G. Pavlov, R.Kh. Zhukavin, E.E. Orlova, V.N. Shastin, A.V. Kirsanov, H.-W. Hübers, K. Auen, H. Riemann. Phys. Rev. Lett., 84 (22), 5220 (2000).

- [4] P.-C. Lv, R.T. Troeger, T.N. Adam, S. Kim, J. Kolodzey, I.N. Yassievich, M.A. Odnoblyudov, M.S. Kagan. Appl. Phys. Lett., 85 (1), 22 (2004).
- [5] V.A. Shalygin, L.E. Vorobjev, D.A. Firsov, V.Yu. Panevin, A.N. Sofronov, A.V. Andrianov, A.O. Zakhar'in, A.Yu. Egorov, A.G. Gladyshev, O.V. Bondarenko, V.M. Ustinov, N.N. Zinov'ev, D.V. Kozlov. Appl. Phys. Lett., **90** (16), 161 128 (2007).
- [6] А.В. Андрианов, А.О. Захарьин, Ю.Л. Иванов, М.С. Кипа. Письма ЖЭТФ, 91 (2), 102 (2010). [Пер. на англ.: A.V. Andrianov, A.O. Zakhar'in, Yu.L. Ivanov, M.S. Kipa. JETP Lett. 91 (2), 96 (2010)].
- [7] Д.А. Фирсов, В.А. Шалыгин, В.Ю. Паневин, Г.А. Мелентьев, А.Н. Софронов, Л.Е. Воробьев, А.В. Андрианов, А.О. Захарьин, В.С. Михрин, А.П. Васильев, А.Е. Жуков, Л.В. Гавриленко, В.И. Гавриленко, А.В. Антонов, В.Я. Алешкин. ФТП, 44 (11), 1443 (2010). [Пер. на англ.: D.A. Firsov, V.A. Shalygin, V.Yu. Panevin, G.A. Melentyev, A.N. Sofronov, L.E. Vorobjev, A.V. Andrianov, A.O. Zakhar'in, V.S. Mikhrin, A.P. Vasil'ev, A.E. Zhukov, L.V. Gavrilenko, V.I. Gavrilenko, A.V. Antonov, V.Ya. Aleshkin. Semiconductors, 44 (11), 1394 (2010)].
- [8] N.O. Lipary, A. Baldereschi, M.L.W. Thewalt. Sol. St. Commun. 33 (3), 277 (1980).

Редактор А.Н. Смирнов

Terahertz radiation associated with impurity electron transitions in quantum wells at optical and electrical pumping

D.A. Firsov*, L.E. Vorobjev*, V.Yu. Panevin*, A.N. Sofronov*, R.M. Balagula*, I.S. Makhov*, D.V. Kozlov⁺●, A.P. Vasil'ev[♦]

* Saint Petersburg State Polytechnical University, 195251 St. Petersburg, Russia
+ Institute for Physics of Microstructures, Russian Academy of Sciences, 603950 Nizhny Novgorod, Russia
• Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod, 603950 Nizhny Novgorod, Russia
• loffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences, 194021 St. Petersburg, Russia

Abstract Terahertz emission from doped structures with GaAs/AlGaAs quantum wells was studied in conditions of interband optical excitation in *n*-doped structures and under impurity breakdown in lateral electric field in *p*-doped structures. Emission spectra were obtained. Terahertz radiation was observed at low temperatures. It was shown that radiation is related to optical carrier transitions between localized states of impurity and between band and impurity states. Depopulation of impurity states under optical interband excitation arises due to electron-hole recombination with participation of impurity. At lateral electric field the impurity states are depopulated as a result of impact ionization.