

# Влияние корреляции между подсистемами мелких и глубоких метастабильных уровней на экситонные спектры фотолюминесценции в $n$ -типе 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 28 февраля 2002 г.  
В окончательной редакции 19 апреля 2002 г.)

Исследованы экситонные спектры фотолюминесценции эпитаксиальных слоев GaAs. Показано, что относительное расположение мелких и глубоких центров в тетраэдрической решетке приводит к изменению кинетики затухания и формы линии излучения  $D^0, x$  (экситон, связанный на мелком нейтральном доноре). Причиной такого изменения спектров экситонной фотолюминесценции является дисперсия энергии связи экситонов мелких доноров  $E_D$ , которая обусловлена влиянием подсистемы глубоких метастабильных дефектов в кристаллах GaAs  $n$ -типа.

В последние годы значительное внимание уделяется исследованию процессов упорядочения и корреляции между подсистемами мелких и глубоких дефектов. Процессы упорядочения проявляются как в изменении концентрации введенной в полупроводник примеси, так и во флуктуации состава [1,2].

Известно, что при низких температурах экситонные состояния являются конечным этапом энергетической релаксации электронных возбуждений, на которую оказывают существенное влияние процессы взаимодействия экситонов с дефектами и примесями. Характеристики спектра (наличие тех или иных линий, их форма, интенсивность, полуширина, время затухания) экситонной люминесценции достаточно полно отражают динамику неравновесных носителей заряда в кристаллах GaAs и поэтому позволяют судить о влиянии на нее процессов с участием разнообразных дефектов в материале.

Целью настоящей работы является исследование связи между подсистемами мелких и глубоких примесей и влияния этой взаимосвязанной конфигурации дефектов на особенности экситонных спектров в эпитаксиальных слоях арсенида галлия.

## 1. Образцы и схема эксперимента

В работе исследовались эпитаксиальные слои GaAs  $n$ -типа, выращенные методом хлорид-гидридной эпитаксии на арсенид-галлиевых подложках. Концентрация мелких примесей  $N_{\text{эф}}$  ( $N_D - N_A$ ) в исследованных образцах, измеренная  $C-V$  методом, составляла  $10^{13-14} \text{ см}^{-3}$ . Концентрация глубоких уровней, определенная методом DLTS, не превышала концентрации мелких. При исследовании спектров фотолюминесценции (в геометрии на отражение, причем плоскость эпитаксиального слоя была нормальна к оптической оси спектрометра) образцы погружались в жидкий откачанный гелий с  $T = 1.8 \text{ К}$ . Возбуждение ФЛ осуществлялось светом непрерывного

He-Ne лазера ( $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ ), сфокусированным в пятно диаметром около  $150 \mu\text{м}$ . Кинетика затухания ФЛ исследовалась при возбуждении полупроводниковым импульсным лазером ( $\lambda = 7980 \text{ \AA}$ ). Регистрация спектров и кинетики ФЛ осуществлялась методом времякоррелированного счета фотонов с использованием двойного дифракционного спектрометра ДФС-52. Для корректного сравнения спектров излучения разных образцов контролируемые условия эксперимента (температура, плотность возбуждения, спектральное разрешение, угол падения лазерного луча) поддерживались постоянными.

## 2. Результаты измерений

При уровне возбуждения, обеспечивающем число рождаемых электронно-дырочных пар, сопоставимое с  $N_{\text{эф}}$ , в спектре излучения эпитаксиальных слоев  $n$ -GaAs присутствуют следующие спектральные компоненты: поляритонное излучение свободных экситонов; линия экситона, связанного на мелком нейтральном доноре ( $D^0, x$ ); линия, отвечающая рекомбинации электрона нейтрального донора с дыркой в валентной зоне ( $D^0, h$ ), а при увеличении степени компенсации мелкими акцепторами, и линия экситона, связанного на нейтральном акцепторе ( $A^0, x$ ) (рис. 1). При этом линия ( $D^0, x$ ) является самой интенсивной для всех образцов. Заметное различие спектров исследованных образцов заключается в отличающихся (на порядок) значениях интенсивности, в величине полуширины ( $\text{FWHM} = 0.15-0.30 \text{ meV}$ ) линии  $D^0, x$  и ее спектральном положении (рис. 2).

## 3. Обсуждение

Для понимания взаимосвязи между подсистемами мелких и глубоких уровней рассмотрим, каким образом спектр излучения связанных и свободных экситонов (поляритонов) в кристалле зависит от наличия дефектов.

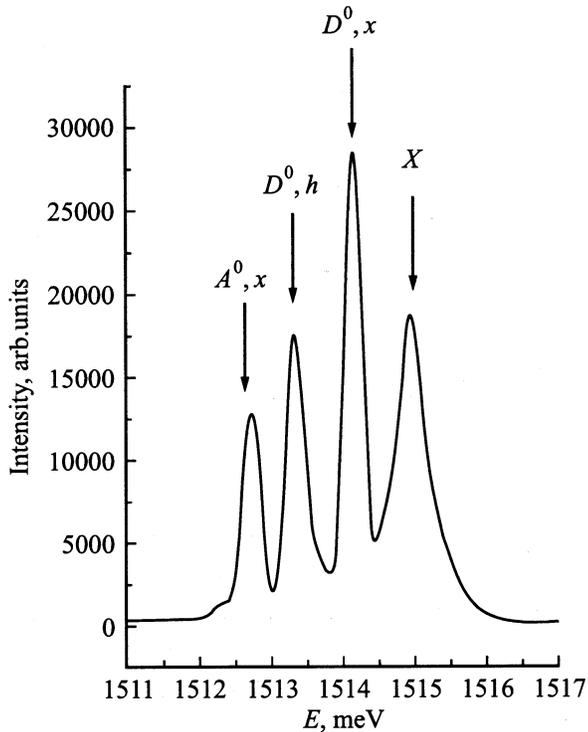


Рис. 1. Характерный вид спектра фотолюминесценции *n*-GaAs в экситонной области при  $T = 1.8$  К.

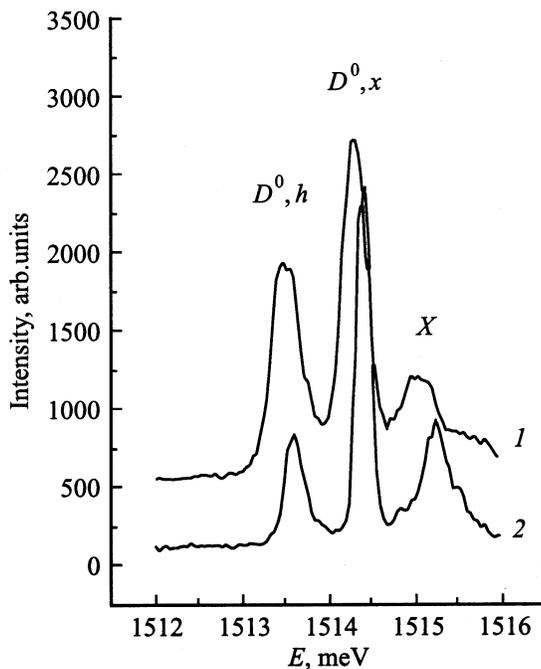


Рис. 2. Сдвинутые как целое спектры фотолюминесценции двух разных образцов *n*-GaAs, полученные при одинаковых условиях возбуждения и регистрации.

В самом общем случае интенсивность излучения ( $I_r$ ) при уровне возбуждения  $g = f(I_{ex})$  зависит от полного времени жизни неравновесных носителей (экситонов)  $\tau$ .

В свою очередь полное время жизни определяется временем излучательной ( $\tau_r$ ) и безызлучательной ( $\tau_{nr}$ ) гибели экситонов (носителей):  $1/\tau = 1/\tau_r + 1/\tau_{nr}$ . В результате выражение для интенсивности излучения принимает вид  $I_r = g/(1 + \tau_r/\tau_{nr})$ .

Поскольку для данного материала (GaAs) и наших условий эксперимента  $\tau_r = \text{const}$ , интенсивность зависит от  $\tau_{nr}$ . Безызлучательное время гибели  $\tau_{nr}$  определяется захватом (сечение захвата —  $\sigma_i$ ) экситонов в глубокие состояния (с концентрацией —  $N_i$ ), существование которых обусловлено наличием разнообразных дефектов:  $1/\tau_{nr} = \sum_i v \sigma_i N_i^{NR}$  (здесь  $v$  — тепловая скорость, а  $i$  — тип дефекта). Отсюда следует, что при одинаковых условиях эксперимента образцы с разной интенсивностью ФЛ отличаются, прежде всего, концентрацией центров безызлучательной рекомбинации, которым отвечают глубокие уровни. Чем меньше концентрация центров (глубоких уровней) безызлучательной гибели, тем больше интегральная интенсивность спектра ФЛ и наоборот.

В дальнейшем основное внимание будет уделяться анализу спектра излучения экситонов, связанных на мелких донорах ( $D^0, x$ ). Из изложенного выше следует, что интенсивность излучения с участием мелких центров должна зависеть от концентрации мелких и глубоких центров, их взаимного расположения в решетке и, кроме того, от транспорта свободных экситонов к центрам захвата (мелким и глубоким). Поэтому необходимо рассмотреть, чем определяется относительный вклад в наблюдаемый спектр излучения свободных и связанных экситонов.

Интенсивность спектра излучения свободных экситонов (поляритонов) в упрощенном виде можно представить в виде [3]

$$I(E) \approx \sum_r T_r(E) F(x, E)_{x=0},$$

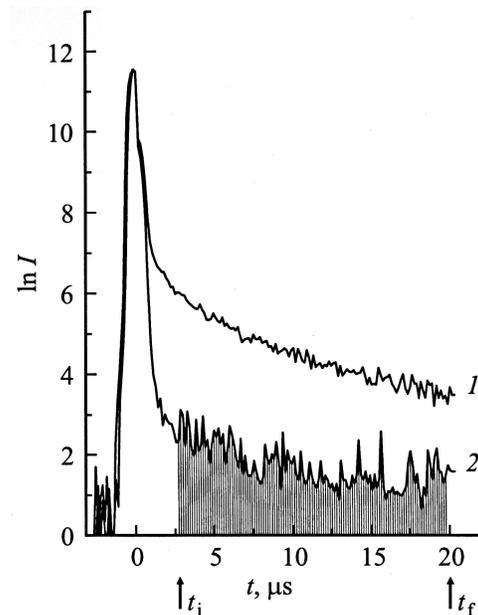
где  $T_r(E)$  — коэффициент преобразования поляритонов во внешнее излучение на границе кристалла (коэффициент пропускания);  $F(x, E)$  — функция пространственно-энергетического распределения поляритонов в кристалле. Отсюда следует, что для данного материала поляритонная люминесценция определяется в основном функцией пространственно-энергетического распределения  $F(x, E)$ . В первом приближении функцию пространственно-энергетического распределения можно записать в факторизованном виде —  $F(x, E) = f(E) * C(X)$ . Для описания спектра ФЛ необходимо определить вид  $F(x, E)$  в каждом конкретном случае, что является очень трудной задачей. Однако для дальнейшего анализа спектров излучения GaAs достаточно заметить, что как  $f(E)$ , так и  $C(X)$  определяются величиной полного времени жизни экситонов —  $\tau$ . По мере увеличения времени жизни  $\tau$  изменяется не только энергетическая, но и пространственная функция распределения. При этом максимум энергетической

функции распределения поляритонов  $f(E)$  сдвигается в область резонанса ( $E_{LT}$ ), а максимум пространственной функции  $C(x)$  смещается в глубину кристалла в силу увеличения диффузионной длины как свободных экситонов  $L = (1/3\langle v \rangle^2 \tau_k \tau)^{1/3}$ , так и носителей [4]. Это приводит к тому, что при большем  $\tau$  (и, следовательно,  $L$ ) увеличивается объем образца, занятый свободными экситонами, который содержит большее число нейтральных доноров  $D^0$ . В результате захвата свободных экситонов на мелкие нейтральные доноры  $D^0$  формируется линия излучения  $D^0, x$ , интенсивность которой определяется количеством нейтральных доноров. Относительная интенсивность спектральных линий свободных и связанных экситонов определяется эффектом пленения излучения, роль которого в образцах с большим временем жизни значительно повышается [5]. Из этого следует, что интенсивности спектров фотолюминесценции образцов с различной величиной полного времени жизни  $\tau$  существенно различаются между собой, поэтому интенсивность излучения линии  $D^0, x$  (для образцов с концентрацией мелких доноров  $10^{13-14} \text{ cm}^{-3}$ ) можно в грубом приближении рассматривать в качестве одного из параметров, отражающих концентрацию центров безызлучательной гибели экситонов  $N_i^{NR}$  в образце.

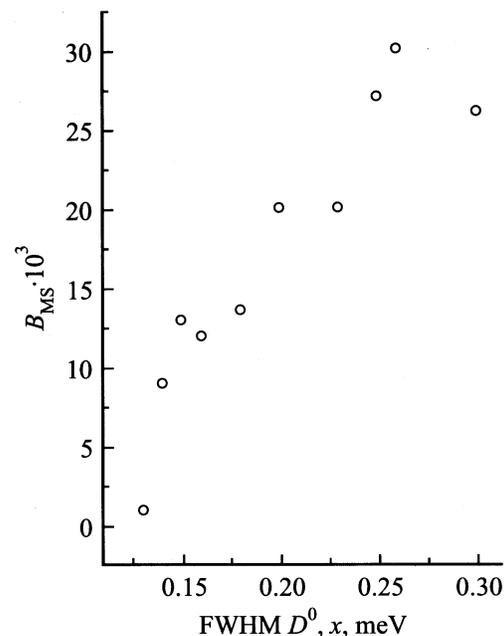
Важными спектральными характеристиками являются энергетическое положение и полуширина (полная ширина на полувысоте — FWHM) линии излучения  $D^0, x$ . В исследованных образцах полуширина линии  $D^0, x$  изменялась от 0.12 до 0.31 meV.

Известно, что линия излучения  $D^0, x$  является неоднородно уширенной. Неоднородное уширение возникает вследствие того, что длины волн излучения экситонов, связанных на разных донорах  $D^0$ , несколько различны. Причиной этого различия является дисперсия энергии термоактивации мелких доноров  $E_{DT}$  (и, следовательно, связанных на них экситонов). В свою очередь причина дисперсии  $E_{DT}$  кроется в различных значениях локального потенциала  $V_{loc}$  в местах расположения донорных примесей. Это означает, что разнообразные дефекты, близко расположенные к мелким донорам  $D^0$ , изменяют величину внутрикристаллического поля. Предположение, что роль таких дефектов могут играть как глубокие центры безызлучательной гибели, так и мелкие акцепторы, не подтвердилось. Действительно, анализ спектров образцов с отличающимися более чем на порядок интенсивностями линии излучения  $D^0, x$ , а значит, различающихся концентрацией глубоких центров безызлучательной гибели  $N_i^{NR}$ , показал независимость полуширины линии  $D^0, x$  от концентрации  $N_i^{NR}$ . Полуширина также не зависит и от концентрации мелких акцепторов. (Заметим, что на большую концентрацию мелких акцепторов указывает наличие интенсивной линии  $A^0, x$ ). Из этого следует, что доминирующее влияние на дисперсию  $E_{DT}$  оказывают не центры безызлучательной гибели и мелкие акцепторы, а подсистема дефектов иной природы, порождающих глубокие уровни.

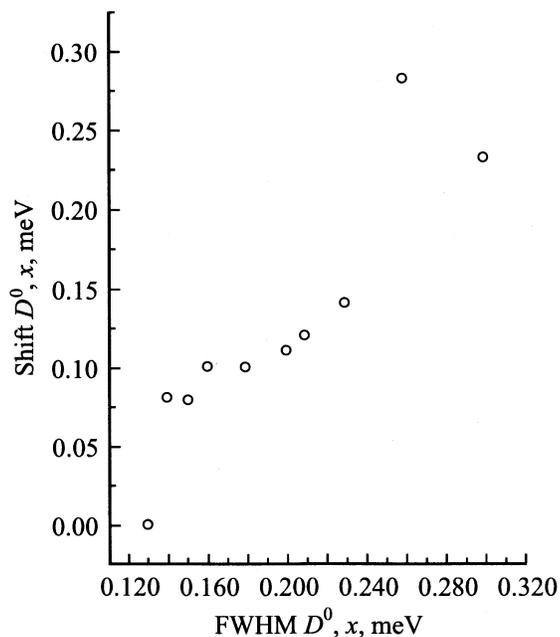
Ключом к пониманию причины возникновения дисперсии  $E_{DT}$  (уширение линии  $D^0, x$ ) является различие в спектральном положении этой линии и кинетики затухания излучения линии  $D^0, x$  в разных образцах. Как было показано ранее [6], медленное затухание ( $\tau \approx 10^{-6} \text{ s}$ ) линии  $D^0, x$  обусловлено существованием локальных



**Рис. 3.** Кинетика затухания линии излучения  $D^0, x$  для двух образцов GaAs с величиной FWHM = 0.14 (2) и 0.31 meV (1). Заштрихована область интегрирования с пределами  $t_i$  и  $t_f$ . Цифры соответствуют спектрам, приведенным на рис. 2.



**Рис. 4.** Соотношение между интегралом ( $B_{MS}$ ) под кривой затухания излучения линии  $D^0, x$  и полушириной (FWHM) этой линии в разных образцах  $n$ -GaAs.



**Рис. 5.** Зависимость спектрального положения линии излучения  $D^0, x$  от полуширины (FWHM) этой линии.

метастабильных центров, поставляющих дырки в валентную зону. Количество этих центров находит отражение в величине интеграла  $B_{MS}$  под кривой затухания ФЛ линии  $D^0, x$  [7,8] (рис. 3). Оказалось, что долговременное затухание отсутствует в некомпенсированных образцах, которые имеют полуширину линии  $D^0, x$  меньше 0.12 meV. На рис. 4 приведены значения  $B_{MS}$  и FWHM для ряда образцов с большой интенсивностью излучения (большое  $\tau$ ). Из этого рисунка видно, что между этими величинами существует заметная корреляция. Поскольку неоднородная полуширина обусловлена дисперсией  $E_{DT}$  мелких доноров, а интеграл  $B_{MS}$  отражает количество глубоких метастабильных состояний, эта корреляция указывает на существование связи между подсистемами мелких и глубоких уровней. Существующий разброс (в диапазоне 1.5143–1.5158 eV) энергетического положения максимума излучения линии  $D^0, x$ , спектральное положение которой изменяется от образца к образцу, обусловлен существованием в каждом конкретном образце напряжений разной величины [9], вследствие чего спектры ФЛ сдвинуты как целое относительно друг друга (рис. 2). На рис. 5 представлена зависимость отклонения спектрального положения линии  $D^0, x$  от реперного значения в различных образцах и от величины FWHM для каждого из них. (Приведенная зависимость получена следующим образом: в качестве репера было взято положение линии  $D^0, x$  в образце с минимальной величиной FWHM (0.12 meV), который имеет минимальное значение дисперсии  $E_{DT}$ ). Таким образом, спектральное положение, полуширина линии излучения  $D^0, x$  и величина интеграла  $B_{MS}$  оказались

взаимосвязанными, что может быть обусловлено реконструкцией тетраэдрической решетки [10] и формированием глубоких центров вследствие перехода примесных ионов из узлов решетки в позиции тетраэдрических междоузлий [11–14]. Такая реконструкция возможна в случае существования напряжений в образцах, на наличие которых указывает разброс спектрального положения линии  $D^0, x$ .

Таким образом, анализ изменения экситонных спектров фотолюминесценции в сочетании с исследованием кинетики их затухания позволяет предложить замкнутую интерпретацию взаимодействия между подсистемами глубоких и мелких дефектов в арсениде галлия  $n$ -типа.

Авторы благодарны В.М. Ботнарюку и Л.М. Федорову за предоставленные образцы.

## Список литературы

- [1] М.М. Мездрогина, Т.И. Мосина, Е.И. Теруков, И.Н. Трапезникова. ФТП **35**, (2001).
- [2] V.A. Shchukin, A.N. Starodubtsev. Proc. of 8th Int. Symp. „Nanostructures: Physics and technology“. Ioffe Institute, St-Petersburg, Russia (2000). С. 137.
- [3] Toyozawa Y. Prog. Theor. Phys. **20**, 53 (1958).
- [4] В.В. Криволапчук, С.А. Пермогоров, В.В. Травников. ФТТ **23**, 606 (1981); В.В. Травников, В.В. Криволапчук. ФТТ **24**, 961 (1982).
- [5] В.В. Травников, В.В. Криволапчук. Письма в ЖЭТФ **37**, 419 (1983).
- [6] А.В. Акимов, А.А. Каплянский, В.В. Криволапчук, Е.С. Москаленко. Письма в ЖЭТФ **46**, 35 (1987).
- [7] А.В. Акимов, В.В. Криволапчук, Н.К. Полетаев, В.Г. Шофман. ФТП **27**, 310 (1993).
- [8] В.В. Криволапчук, Н.К. Полетаев, Л.М. Федоров. ФТП **28**, 310 (1994).
- [9] Г.Л. Бир, Г.Е. Пикус. Симметрия и деформационные эффекты в полупроводниках. Наука, М. (1972). Гл. 7. С. 524, 545.
- [10] Д.Е. Онопко, Н.Т. Баграев, А.И. Рыскин. ФТТ **30**, 142 (1996).
- [11] P.M. Moony. J. Appl. Phys., **67**, R1 (1990).
- [12] D.J. Chadi, K.J. Chang. Phys. Rev. B **39**, 10063 (1989).
- [13] T.N. Morgan. Matter., Sci. Forum **38-41**, 1079 (1989).
- [14] D.J. Chadi, K.J. Chang. Phys. Rev. Lett. **61**, 873 (1988).