

О природе полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ в арсениде галлия

© К.Д. Глинчук[¶], Н.М. Литовченко, А.В. Прохорович, О.Н. Стрильчук

Институт физики полупроводников Национальной академии наук Украины,
03028 Киев, Украина

(Получена 14 сентября 2000 г. Принята к печати 21 ноября 2000 г.)

В полуизолирующих кристаллах GaAs проведено при 4.2 К сравнительное изучение зависимостей интенсивностей полос люминесценции с положениями максимумов $h\nu_m = 1.5133, 1.5141$ и 1.5153 эВ от уровня возбуждения. Анализ наблюдаемых закономерностей (совпадение вида изучаемых зависимостей интенсивность люминесценции \leftrightarrow уровень возбуждения) показал, что в полуизолирующем арсениде галлия полоса люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ при 4.2 К обусловлена аннигиляцией экситонно-примесных комплексов D^+X (экситонов X , связанных с мелкими ионизированными донорами D^+).

1. Введение. Постановка задачи

Известно, что в спектре краевой люминесценции арсенида галлия при 4.2 К наблюдаются интенсивные полосы люминесценции с положениями максимумов излучения $h\nu_m = 1.5133, 1.5141$ и 1.5153 эВ (см., например, [1–9]). Природа полос люминесценции с $h\nu_m = 1.5153, 1.5141$ эВ надежно установлена — они обусловлены, соответственно, излучательной аннигиляцией свободных экситонов X (интенсивность излучения I_X , реакция $X \rightarrow h\nu$), экситонно-примесных комплексов: (мелкий нейтральный донор D^0)–(экситон X) (далее: связанные экситоны D^0X , интенсивность индуцируемого ими излучения I_{D^0X} , реакция $D^0X \rightarrow D^0 + h\nu$) [1–4]. В то же время природа полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ (ее интенсивность $I_{1.5133}$) неоднозначна. Так, в работах [1,2,5] полосу излучения с $h\nu_m = 1.5133$ эВ связывают с излучательной аннигиляцией экситонно-примесных комплексов (мелкий ионизированный донор D^+)–(экситон X) (далее: связанные экситоны D^+X , интенсивность обусловленного ими излучения I_{D^+X} , реакция $D^+X \rightarrow D^+ + h\nu$). Основанием для этого явилось совпадение экспериментальных и рассчитанных теоретических значений энергии квантов света, испускаемых при излучательной аннигиляции связанных экситонов D^+X [1], увеличение интенсивности обсуждаемой полосы люминесценции при изменении типа проводимости кристалла с n на p , т.е. при возрастании концентрации ионизированных доноров N_{D^+} [1,2], а также анализ наблюдаемых смещений положений ее максимума в магнитном поле [2,5]. Однако в работах [3,4,6] полосу люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ связывают с рекомбинацией свободных дырок h на мелких нейтральных донорах D^0 , т.е. с излучательной аннигиляцией пар D^0h (интенсивность обусловленного ими излучения I_{D^0h} , реакция $D^0h \rightarrow D^+ + h\nu$). Это утверждение основано на том, что энергия термической диссоциации 1.5133 эВ излучающих центров близка к энергии ионизации доноров D^0 [1,2,6], на анализе как формы полосы люми-

несценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ [3], так и влияния на нее электрического поля [4], а также на наблюдаемом гашении ее интенсивности при воздействии последнего [4]. Первоначально предполагалось, что результаты опытов по резонансному возбуждению полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ в арсениде галлия также свидетельствуют о том, что источником рассматриваемого рекомбинационного излучения являются пары D^0h [3]. Однако проведенный в [2] детальный анализ результатов работы [3] и своих аналогичных данных показал, что рассмотрение спектра возбуждения полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ не дает возможности отдать предпочтение той или иной модели ее появления (они могут быть объяснены как излучательной аннигиляцией связанных экситонов D^+X , так и пар D^0h). Авторы [3,6] также считали, что наблюдаемый ими вид зависимостей $I_{1.5133}, I_{D^0X}$ от освещенности L подтверждает, что источником излучения с $h\nu_m = 1.5133$ эВ являются пары D^0h . Однако сравнение приведенных ими зависимостей $I_{1.5133}(L)$ и $I_{D^0X}(L)$ без их детального анализа (в работах [3,6] он не проведен) не может дать однозначного ответа об источнике излучения с $h\nu_m = 1.5133$ эВ — связанные экситоны D^+X либо пары D^0h (см. далее).¹

Из изложенного выше следует, что значительный интерес представляет дальнейшее изучение явлений и закономерностей, позволяющих получить аргументы в пользу той либо иной природы полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ в арсениде галлия.

В настоящей работе мы проведем при 4.2 К детальный сопоставительный анализ зависимостей интенсивностей полос люминесценции с $h\nu_m = 1.5133, 1.5141$ и 1.5153 эВ от уровня возбуждения в полуизолирующих кристаллах арсенида галлия. Мы покажем, что наблюдаемые в них люкс-яркостные характеристики краевых полос люминесценции свидетельствуют о том, что излучение с $h\nu_m = 1.5133$ эВ в арсениде галлия обусловлено аннигиляцией связанных экситонов D^+X .

¹ Для проведения детального анализа люкс-яркостных характеристик излучения $I = \varphi(L)$ необходимо знать соотношение между концентрациями неравновесных и равновесных носителей тока, а также вид зависимостей концентраций избыточных электронов и дырок, ионизированных и нейтральных доноров от освещенности L и координаты u .

[¶] E-mail: ria@isp.kiev.ua
Fax: (044) 265–33–37

2. Методика эксперимента и характеристики исследуемых кристаллов GaAs

Полуизолирующие кристаллы GaAs выращивались методом Чохральского в тиглях из пиролитического нитрида бора с герметизацией жидким флюсом B_2O_3 при высоком давлении. Их удельное сопротивление $\rho \approx 10^8 \text{ Ом}\cdot\text{см}$ при $T = 300 \text{ К}$ и $\rho \rightarrow \infty$ при $T \leq 200 \text{ К}$, равновесная концентрация электронов в них $n_0 \approx 10^7 \text{ см}^{-3}$ при $T = 300 \text{ К}$ и $n_0 \rightarrow 0$ при $T \leq 200 \text{ К}$, а их подвижность $\mu_n \approx 6000 \text{ см}^2/(\text{В}\cdot\text{с})$ при 300 К , равновесная концентрация дырок $p_0 \ll n_0$. Темновая проводимость кристаллов GaAs определялась ионизацией глубоких доноров $EL2$ (антиструктурных дефектов As_{Ga} , энергетическое положение создаваемых ими уровней $\varepsilon_{EL2} \simeq 0.75 \text{ эВ}$, а их концентрация $N_{EL2} \simeq 10^{16} \text{ см}^{-3}$), частично скомпенсированных остаточными мелкими акцепторами (атомами углерода, их концентрация $N_{\text{C}} \simeq 3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$), и донорами (атомами кремния, их концентрация $N_{\text{Si}} \simeq 10^{15} \text{ см}^{-3}$) [10,11].

Исследовалась люминесценция, возбуждаемая сильно-поглощаемым излучением He-Ne-лазера (площадь светового пятна $s \simeq 10^{-2} \text{ см}^2$, направление распространения света y , энергия квантов 1.96 эВ , коэффициента поглощения $k = 2.5 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$). Перед измерением люминесценции кристаллы (их типичные размеры $1 \times 0.3 \times 0.2 \text{ см}$) обрабатывались в полирующем травителе $3 \text{ H}_2\text{SO}_3 : 1 \text{ H}_2\text{O}_2 : 1 \text{ H}_2\text{O}$. Анализ спектров люминесценции (энергия испускаемых квантов $h\nu$) проводился на спектрометре МДР-23 с разрешением не хуже 0.2 мэВ . Вид спектров люминесценции (положение максимумов $h\nu_m$, полуширины w и соотношение интенсивностей полос люминесценции в них) практически (в пределах точности их измерений: $\pm 0.1 \text{ мэВ}$ для $h\nu_m$, w и $\pm 10\%$ для I) не зависели от L .

Интенсивности изучаемых полос люминесценции I (они, очевидно, в значительной степени зависели от концентраций избыточных электронов δn и дырок δp) определялись процессами, происходящими в объеме кристалла (длина диффузии избыточных носителей тока $l_d \leq 1/k$). Область свечения была локализована вблизи поверхности кристалла (ее примерный размер в направлении y $l_d + 1/k \simeq 10^{-4} \text{ см}$ существенно меньше соответствующего размера кристалла $d \simeq 0.2 \text{ см}$).

Измерение спектральных характеристик кристаллов проводилось при температуре $T = 4.2 \text{ К}$ и интенсивностях освещения L от 10^{17} до $10^{19} \text{ 1}/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$. При указанной температуре и используемых интенсивностях возбуждения проводимость полуизолирующих кристаллов GaAs определялась избыточными электронами и дырками ($\delta n, \delta p \gg n_0 + p_0$). Полные количества избыточных электронов $\delta N = s \int_0^\infty \delta n dy$ и дырок $\delta P = s \int_0^\infty \delta p dy$

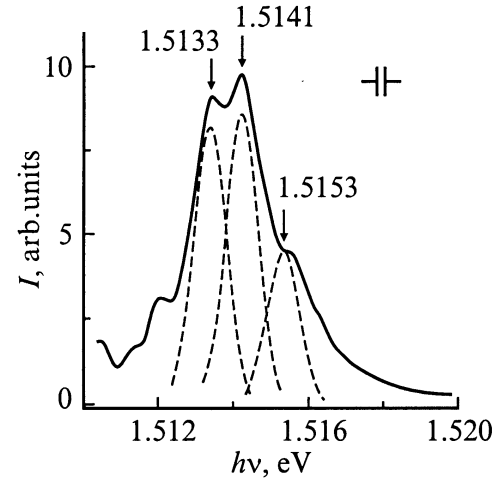


Рис. 1. Спектр краевой люминесценции полуизолирующего GaAs при 4.2 К . Пунктирными линиями выделены изучаемые полосы люминесценции; $L = 2.5 \cdot 10^{18} \text{ 1}/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$.

в них линейно возрастали с увеличением освещенности L ($\delta n, \delta p \propto L$). Из этого следует, что концентрации $\delta n(y)$, $\delta p(y)$ линейно повышались с L и экспоненциально понижались с y , т.е. $\delta n(y, L)$, $\delta p(y, L) \propto L \exp(-ay)$, где $a = \varphi(l_d, 1/k) \neq \varphi(y, L)$. Величины δn и δp определялись скоростью линейной рекомбинации неравновесных носителей тока на глубоких центрах, т.е. лишь небольшая часть генерируемых лазером электронов и дырок связывалась в экситоны и, следовательно, рекомбинировала через экситонные состояния (суммарная интенсивность экситонной люминесценции была значительно ниже L).

Методом, позволяющим провести разграничение различных предположений о возможной природе центров, обуславливающих появление полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133 \text{ эВ}$, явился сравнительный анализ зависимостей интенсивностей указанной и иных полос экситонной люминесценции от интенсивности возбуждения L . Типичный спектр люминесценции для одного из исследуемых полуизолирующих кристаллов GaAs (в нем выделены лишь изучаемые полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133, 1.5141$ и 1.5153 эВ , они являются доминирующими) показан на рис. 1.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 2 приведены наблюдаемые в полуизолирующем GaAs при 4.2 К зависимости интенсивностей полос люминесценции, обусловленных аннигиляцией связанных (D^0X) и свободных (X) экситонов, а также полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133 \text{ эВ}$, от уровня возбуждения. Как видно, интенсивности I_{D^0X} , I_X и $I_{1.5133}$ одинаково (пропорционально L^2) возрастают при повышении интенсивности освещения.

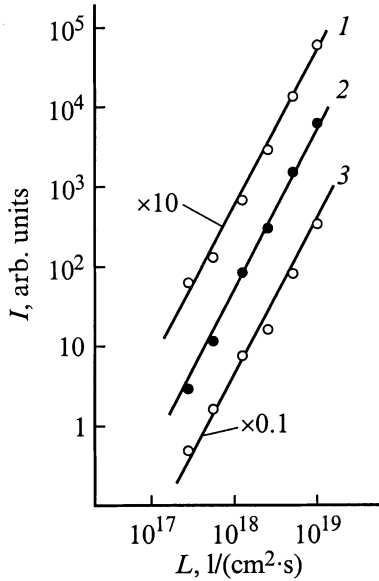


Рис. 2. Зависимости интенсивностей полос люминесценции, обусловленных аннигиляцией связанных $D^0(X)$ (1) и свободных X (2) экситонов, а также полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ (3), от уровня возбуждения в полупроводнике GaAs при 4.2 К.

Обсудим приведенные данные. Очевидно, интенсивности люминесценции I_{D^0h} , I_{D^+X} , I_{D^0X} и I_X зависят от концентраций свободных экситонов n_e , дырок δp , положительно заряженных N_{D^+} и нейтральных N_{D^0} доноров, вероятности излучательной аннигиляции свободного экситона b , от коэффициентов захвата дырок донорами c_p^0 , а также свободных экситонов — ионизированными (β) и нейтральными (γ) донорами. В полубесконечных полупроводниках GaAs (их размер в направлении y намного больше $l_d + 1/k$) соответствующие интенсивности определяются соотношениями [12,13]²

$$I_{D^0h} = c_p^0 \int_0^\infty N_{D^0} \delta p dy, \quad I_{D^+X} = \beta \int_0^\infty N_{D^+} n_e dy, \quad (1)$$

$$I_{D^0X} = \gamma \int_0^\infty N_{D^0} n_e dy, \quad I_X = b \int_0^\infty n_e dy, \quad (2)$$

где

$$N_{D^0} = \frac{c_n^+ \delta n}{c_n^+ \delta n + c_p^0 \delta p} N_D, \quad N_{D^+} = \frac{c_p^0 \delta p}{c_n^+ \delta n + c_p^0 \delta p} N_D, \quad (3)$$

² Очевидно, приведенные далее соотношения для интенсивностей I_{D^0h} , I_{D^+X} , I_{D^0X} и I_X годятся не только для полупроводника GaAs, но и для кристаллов с любой величиной темновой проводимости, если в них уровни возбуждения достаточно велики ($\delta n \gg n_0$ и $\delta p \gg p_0$).

$$n_e = \frac{\alpha \delta n \delta p}{b + \beta N_{D^+} + \gamma N_{D^0}}, \quad (4)$$

N_D — концентрация доноров, c_n^+ — коэффициент захвата донорами электронов; α — коэффициент связывания электронно-дырочной пары в экситон.³

Если

$$\delta n(y, L), \delta p(y, L) \propto L \exp(-ay)$$

(это соотношение реализуется на опыте, см. выше; оно имеет место вследствие того, что избыточные электроны и дырки рекомбинируют по линейному закону преимущественно через глубокие центры, в этом случае очевидно, что $I_{D^0h}, I_{D^+X}, I_{D^0X}, I_X \ll L$), то, как следует из (3) и (4), $N_{D^+}, N_{D^0} \neq \varphi(y, L)$, а

$$n_e \propto \delta n \delta p \propto L^2 \exp(-2ay).$$

Тогда интегрирование выражений (1) и (2) приводит к следующему виду зависимостей интенсивностей изучаемых полос люминесценции от интенсивности возбуждения:

$$I_{D^0h} \propto L, \quad (5)$$

$$I_{D^+X}, I_{D^0X}, I_X \propto L^2. \quad (6)$$

Из соотношений (5), (6) видно, что если интенсивность $I_{1.5133}$, как и интенсивности I_{D^0X} и I_X , с повышением L возрастают пропорционально L^2 (именно эта зависимость и наблюдается на опыте), то рассматриваемое излучение с $h\nu_m = 1.5133$ эВ обусловлено аннигиляцией связанных экситонов D^+X ($I_{1.5133} = I_{D^+X}$). Действительно, если бы это излучение было обусловлено рекомбинацией свободных дырок h на нейтральных донорах D^0 , то следовало бы ожидать, что интенсивность $I_{1.5133}$ с повышением уровня возбуждения будет возрастать пропорционально L .

Таким образом, наблюдаемые в полупроводнике арсениде галлия люкс-яркостные характеристики полосы люминесценции с положением максимума $h\nu_m = 1.5133$ эВ при 4.2 К могут быть объяснены лишь в предположении, что указанное излучение обусловлено аннигиляцией связанных экситонов D^+X , а не рекомбинацией свободных дырок на нейтральных донорах D^0 , как это предполагалось ранее [3,6]. Отмеченное является еще одним доказательством доминирующей роли связанных экситонов D^+X в формировании полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ в арсениде галлия.

³ Приведенные выражения для N_{D^+} , N_{D^0} и n_e справедливы при $\delta n \gg n_0$, $\delta p \gg p_0$ и низких температурах (отсутствуют процессы тепловой ионизации доноров и термического разрушения экситонов). При записи выражения для n_e предполагается, что: а) имеет место локальное равновесие между электронами, дырками и экситонами [14]; б) свободные экситоны могут связываться в основном с донорами (рис. 1). При записи выражений для N_{D^+} и N_{D^0} предполагается, что заполнение доноров определяется их взаимодействием со свободными носителями тока; в этом случае $N_{D^+}, N_{D^0} \neq \varphi(y, L)$ если $\delta n/\delta p \neq \varphi(y, L)$.

4. Заключение

Наблюдаемая в полуизолирующем арсениде галлия полоса люминесценции с положением максимума излучения $h\nu_m = 1.5133$ эВ при 4.2 К обусловлена аннигиляцией связанных экситонов D^+X . Полученные данные о природе полосы люминесценции с $h\nu_m = 1.5133$ эВ в полуизолирующем GaAs важны для понимания физики излучательных электронных переходов в интерметаллических полупроводниках.

Список литературы

- [1] E.H. Bohards, V. Bebb. Phys. Rev., **176**, 993 (1968).
- [2] U. Heim, P. Hiesinger. Phys. St. Sol. (b), **66**, 461 (1974).
- [3] R. Ulbrich, B. Moreth. Sol. St. Commun., **14**, 331 (1974).
- [4] W. Bludau, E. Wagner. Phys. Rev. B, **13**, 5410 (1976).
- [5] S. Zeman, G. Lampert. J. Appl. Phys., **70**, 4909 (1991).
- [6] М.И. Калинин, М.П. Лисица, Ф.В. Мощный. Укр. физ. журн., **37**, 330 (1992).
- [7] К.С. Журавлев, А.К. Калагин, Н.Т. Мошегов, А.И. Торопов, Т.С. Шамирзаев, О.А. Шегай. ФТП, **30**, 1704 (1996).
- [8] D.C. Reynolds, D.C. Look, V. Jogai. Phys. Rev. B, **53**, 1891 (1996).
- [9] V.A. Karasyuk, M.L.W. Trewalt, A.J. SpringThorpe. Phys. St. Sol. (b), **210**, 353 (1998).
- [10] А.Н. Георгибнани, И.М. Тигиняну. ФТП, **22**, 3 (1988).
- [11] К.Д. Глинчук, В.И. Гурушев, А.В. Прохорович. В сб.: *Оптоэлектроника и полупроводниковая техника* (Киев, Наук. думка, 1992) вып. 24, с. 66.
- [12] Е.Л. Нолле. ФТТ, **9**, 122 (1967).
- [13] T.M. Schmidt, K. Lischka. Phys. Rev. B, **45**, 8989 (1992).
- [14] А.В. Саченко, О.В. Снитко. *Фотоэффекты в приповерхностных слоях полупроводников* (Киев, Наук. думка, 1984) с. 158.

Редактор Т.А. Полянская

On the origin of the luminescence band peaked at 1.5133 eV in gallium arsenide

K.D. Glinchuk, N.M. Litovchenko, A.V. Prokhorovich, O.N. Strilchuk

Institute of Semiconductor Physics,
National Academy of Sciences of Ukraine,
03028 Kiev, Ukraine

Abstract The dependences of the intensities of the emission bands peaked at $h\nu_m = 1.5133$, 1.5141 and 1.5153 eV vs. the excitation intensity are studied in semi-insulating GaAs crystals at 4.2 K. An analysis of the regularities observed (a coincidence of dependences — the emission intensities of luminescence bands studied vs. the excitation intensity) has shown that in semi-insulating GaAs the emission band peaked at $h\nu_m = 1.5133$ eV at 4.2 K is arising due to annihilation of the exciton-impurity complexes D^+X (of X excitons bound to ionized shallow D^+ donors).