

Анализ полосы излучения комплексов $V_{Ga}Te_{As}$ в n -GaAs при одноосном давлении

© А.А. Гуткин[¶], А.В. Ермакова

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

(Получена 3 февраля 2003 г. Принята к печати 4 февраля 2003 г.)

В приближении малости отклонений осей излучающих оптических диполей комплексов $V_{Ga}Te_{As}$ в GaAs от одного из направлений типа $\langle 111 \rangle$ проанализирована форма спектра широкой бесструктурной полосы фотолюминесценции этих дефектов при давлении 10 кбар вдоль оси [111]. Для выявления расщепившихся компонент этой полосы, принадлежащих центрам разной ориентации, разработана методика, использующая закономерности пьезоспектроскопического поведения анизотропных центров и применение измерений спектров в случаях, когда электрический вектор световой волны параллелен и перпендикулярен оси давления. Подтверждена модель, принятая при анализе, и определено, что расщепление энергий центров разной ориентации при давлении 10 кбар примерно равно 38 мэВ, а относительная доля ротатора, описывающая в классическом дипольном приближении поляризационные свойства света, излучаемого отдельным комплексом, составляет 0.15. Это свидетельствует о сравнимости роли спин-орбитального и ян-теллеровского взаимодействий в формировании излучающего состояния комплекса.

1. Введение

Известно, что сложные дефекты (комплексы) в GaAs, содержащие вакансию галлия (V_{Ga}) и атом теллура на месте мышьяка (Te_{As}), являются эффективными центрами захвата дырок и в материале n -типа дают широкую полосу фотолюминесценции с максимумом при энергии фотонов ($\hbar\omega$) около 1.2 эВ, вызванную рекомбинацией электронов из c -зоны с дырками, локализованными на комплексах [1–5].

Исследования как пьезоэлектрических свойств этой полосы при возбуждении люминесценции за счет генерации электронно-дырочных пар, так и ее поляризации при резонансном поляризованном возбуждении [4–8] обнаружили существование искажений связанного с ней комплекса $V_{Ga}Te_{As}$, которые вызваны взаимодействием локализованных носителей с неполносимметричными колебаниями атомов (эффект Яна–Теллера). Эти искажения понижают исходную тригональную симметрию комплекса до моноклинной и в отдельном дефекте имеют несколько возможных ориентаций. Внешнее одноосное давление вдоль направления [111] или [110] при низкой температуре приводит к выстраиванию подобных искажений в заметной части всех центров, связанных с полосой излучения 1.2 эВ.

В работе [5] из количественного анализа результатов указанных исследований были определены направления осей оптических диполей, описывающих излучающее и поглощающее состояния рассматриваемых дефектов в классическом дипольном приближении, и установлено, что относительный вклад ротатора в поглощение и излучение света этими центрами (μ_1 и μ_2 соответственно) лежит в диапазоне 0–0.26. Более точная оценка этих величин не была получена главным образом из-за большой ширины полосы фотолюминесценции и относи-

тельно малого расщепления при одноосной деформации ее компонент, принадлежащих центрам с разной ориентацией [9]. Вследствие этого прямое наблюдение этих компонент было невозможно, а существующий метод разделения сложной полосы на составляющие [10] оказался неприменимым из-за отсутствия в спектре полосы участка, обусловленного только одной компонентой. В связи с указанными обстоятельствами в работах [4–8] определялась и анализировалась величина интегральной поляризации полосы излучения комплексов. Знание только этой величины в условиях частичного выстраивания дигорсий, степень которого неизвестна [5], не позволяло более точно определить μ_2 (и, следовательно, μ_1) [5].

Между тем величины этих параметров дают возможность судить о свойствах оптических переходов в отдельном центре и могут быть использованы для оценки относительной роли различных внутрицентровых взаимодействий в формировании электронного состояния дефекта.

Цель настоящей работы — применение закономерностей пьезоспектроскопического поведения анизотропных центров для выявления компонент полосы излучения 1.2 эВ в n -GaAs:Te при одноосном давлении и определение оптических характеристик комплекса $V_{Ga}Te_{As}$ в классическом дипольном приближении.

2. Модель центров, связанных с полосой 1.2 эВ, и основные приближения

В работе [5] было показано, что все исследованные свойства полосы фотолюминесценции могут быть объяснены, если предположить, что совокупность связанных с ней центров состоит из дефектов двух типов, которые имеют одинаковые оптические свойства и подобные

[¶] E-mail: Agut@defect.ioffe.ru

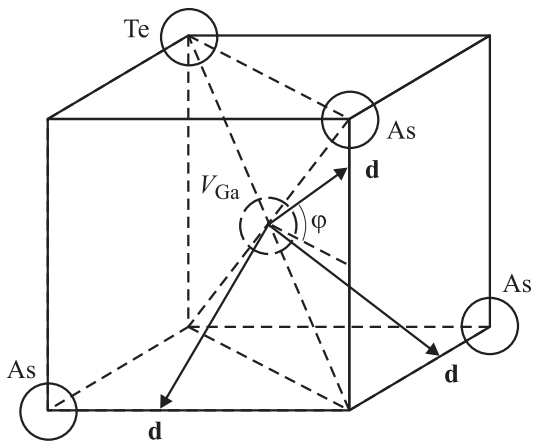


Рис. 1. Исходное расположение составляющих комплекса $V_{Ga}Te_{As}$ и возможные направления оси \mathbf{d} излучающего оптического диполя комплекса.

неполносимметричные искажения, приводящие к моноклинной симметрии дефекта. В центрах одного типа дисторсии могут переориентироваться и выстраиваться под влиянием одноосного давления, а в центрах другого типа такое изменение ориентации дисторсии не происходит. Первые, по-видимому, представляют собой изолированные комплексы $V_{Ga}Te_{As}$, а вторые, как предполагается, также содержат V_{Ga} и Te_{As} , ассоциированные с каким-либо третьим центром (например, еще с одним атомом Te). Состояние дырки, связанной на таких дефектах, является вакансионным. Такая дырка сильно взаимодействует с неполносимметричными фонами, что и приводит к дисторсиям (эффект Яна–Теллера), тогда как влияние Te_{As} и ассоциированных центров сравнительно мало. Поскольку, как предполагается, окружение изолированной вакансии в результате эффекта Яна–Теллера имеет тригональную симметрию, одновременное влияние донора и этого эффекта на вакансионное состояние дырки в комплексе приводит к тому, что ось излучающего диполя комплекса сравнительно мало отклонена от одной из осей типа $\langle 111 \rangle$, не совпадающей с исходной тригональной осью, на которой (или вблизи которой) лежат V_{Ga} и Te_{As} . В каждом изолированном комплексе $V_{Ga}Te_{As}$ существует три эквивалентных направления оси диполя (рис. 1) и возможна переориентация дисторсии и диполя. В дефектах второго типа одно из направлений фиксировано благодаря влиянию ассоциированного центра и переориентация невозможна, однако распределение всех возможных направлений по комплексам этого типа также однородно. Направление оси оптического диполя характеризуется углом φ , отсчитываемым от оси типа $\langle 110 \rangle$ в плоскости симметрии моноклинного комплекса (рис. 1). Согласно [5], $\varphi \approx 28^\circ 40'$, т.е. ось диполя отклонена от ближайшей к ней тригональной оси на $(6-7)^\circ$.

Разложение широкой полосы излучения на составляющие относительно просто осуществить, если эта полоса

содержит всего две компоненты. Такая ситуация для моноклинных центров реализуется, если внешняя деформация направлена вдоль оси $[001]$ [9]. Однако, как показали эксперименты, расщепление полос излучения с электрическим вектором световой волны ϵ , параллельным и перпендикулярным оси деформации, в этом случае мало, а форма полос практически не отличается от формы полосы в отсутствии деформации.¹ В этих условиях надежное выявление компонент полосы люминесценции, учитывая погрешности эксперимента, невозможно. Поэтому мы использовали эксперименты при одноосной деформации вдоль направления $[111]$. Давление P вдоль этой оси нарушает эквивалентность дисторсий в той части изолированных комплексов, для которых исходная ось $V_{Ga}-Te_{As}$ не совпадает с направлением давления. При низких температурах это приводит к выстраиванию дисторсий и излучающих диполей таких комплексов. Таким образом, все изолированные комплексы разделяются на две группы: в первой группе оси излучающих диполей отклоняются на небольшой одинаковый угол от оси давления, а во второй — с последней совпадает исходная ось комплекса. Поэтому полоса излучения изолированных комплексов при низких температурах в случае давления вдоль оси $[111]$ расщепляется на две компоненты, соответствующие этим группам. При этом в целом благодаря выстраиванию полоса излучения изолированных комплексов поляризуется [5]. Следует также отметить, что для обеих рассмотренных выше групп комплексов ось давления лежит в плоскости симметрии дефекта, т.е. в плоскости, содержащей ось диполя и исходную ось комплекса.

Комплексы с непереориентирующимися направлениями оси диполя, как обычные дефекты моноклинной симметрии, при $\mathbf{P} \parallel [111]$ разделяются на три группы. Первые две из них по положению диполей относительно оси давления подобны группам изолированных комплексов, а в третьей группе ось давления не лежит в плоскости симметрии дефекта. В комплексах с переориентирующимися дисторсиями эта группа центров исчезла в результате выстраивания. Таким образом, строго говоря, полоса излучения комплексов с непереориентирующимися дисторсиями при $\mathbf{P} \parallel [111]$ расщепляется на три компоненты [9]. Однако поскольку оси диполей комплексов третьей группы, так же как оси диполей второй группы, близки к осям $\langle 111 \rangle$, не совпадающим с осью давления, можно ожидать, что разница между положением их полос излучения при $\mathbf{P} \parallel [111]$ мала, и суммарный спектр излучения всех центров при низкой температуре содержит практически только две компоненты, совпадающие с компонентами полосы излучения изолированных комплексов. Подобная модель была использована нами ранее [11] для описания

¹ Причиной этого является близость направления оси диполя в исследуемых центрах к оси $\langle 111 \rangle$, т.е. к направлению диполя в центрах тригональной симметрии, в которых при указанном направлении деформации никакого расщепления нет.

зависимости интегральной поляризации исследуемой полосы фотолюминесценции при одноосном давлении от температуры и дала разумное согласие между расчетом и экспериментом. Она соответствует предельному случаю, в котором можно пренебречь влиянием Te_{As} на вакансионное состояние дырки, связанной на комплексе, по сравнению с влиянием тригональной дисторсии. Поэтому в дальнейшем при количественном анализе спектров фотолюминесценции мы будем также считать, что ось излучающего диполя комплекса направлена вдоль одной из тригональных осей кристалла, не совпадающих с исходной осью дефекта.

Рассматривая излучение дефектов двух указанных выше групп в $n\text{-GaAs}$ при $\mathbf{P} \parallel [111]$ и низкой температуре в условиях равной вероятности возбуждения всех центров за счет захвата ими дырок, образуемых генерацией электронно-дырочных пар, в классическом дипольном приближении, можно получить следующие соотношения между интенсивностями расщепившихся компонент полосы излучения при различных поляризациях света.

$$\frac{I_1(\parallel)}{I_1(\perp)} = \frac{1 - \mu_2}{\mu_2}, \quad (1)$$

$$\frac{I_2(\parallel)}{I_2(\perp)} = \frac{1 + 7\mu_2}{4 + \mu_2}, \quad (2)$$

$$\frac{I_1(\parallel)}{I_2(\parallel)} = \frac{1 - \mu_2}{1 + 7\mu_2} \frac{9(1 + 2A)}{3 - 2A}, \quad (3)$$

$$\frac{I_1(\perp)}{I_2(\perp)} = \frac{\mu_2}{4 + \mu_2} \frac{9(1 + 2A)}{3 - 2A}, \quad (4)$$

где A — доля выстраивающихся центров, $I_i(\parallel)$ и $I_i(\perp)$ — интенсивности излучения с электрическим вектором световой волны $\boldsymbol{\varepsilon}$, параллельным и перпендикулярным оси давления, испускаемым i -й группой комплексов в направлении, перпендикулярном оси давления.

3. Результаты эксперимента и их анализ

Для выделения компоненты полосы фотолюминесценции, расщепившихся при одноосном давлении, мы использовали измерения спектров этой полосы при двух поляризациях регистрируемого излучения, указанных в предыдущем разделе. Эксперименты проводились при температуре 2 К на образцах $n\text{-GaAs:Te}$ с концентрацией электронов $\sim 10^{18} \text{ см}^{-3}$, полученных методом Чохральского и подобных исследовавшимся нами ранее [4–8,11].

На рис. 2 показан спектр излучения, связываемого с комплексами $V_{\text{Ga}}\text{Te}_{\text{As}}$ при $P = 0$. Поляризация света в полосе отсутствует, что свидетельствует о равной вероятности распределения анизотропных центров излучения по всем возможным ориентациям. Давление в 10 кбар вдоль направления [111] вызывало поляризацию полосы, степень которой менялась по спектру. Это

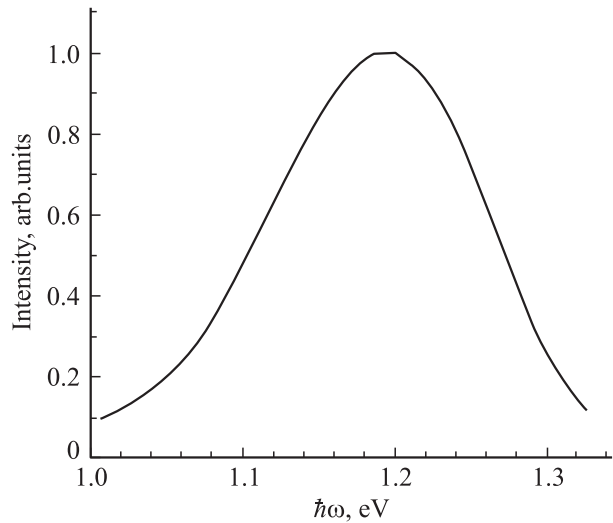


Рис. 2. Спектр фотолюминесценции комплексов $V_{\text{Ga}}\text{Te}_{\text{As}}$ в недеформированном кристалле $n\text{-GaAs:Te}$ ($n \approx 10^{18} \text{ см}^{-3}$) при температуре 2 К.

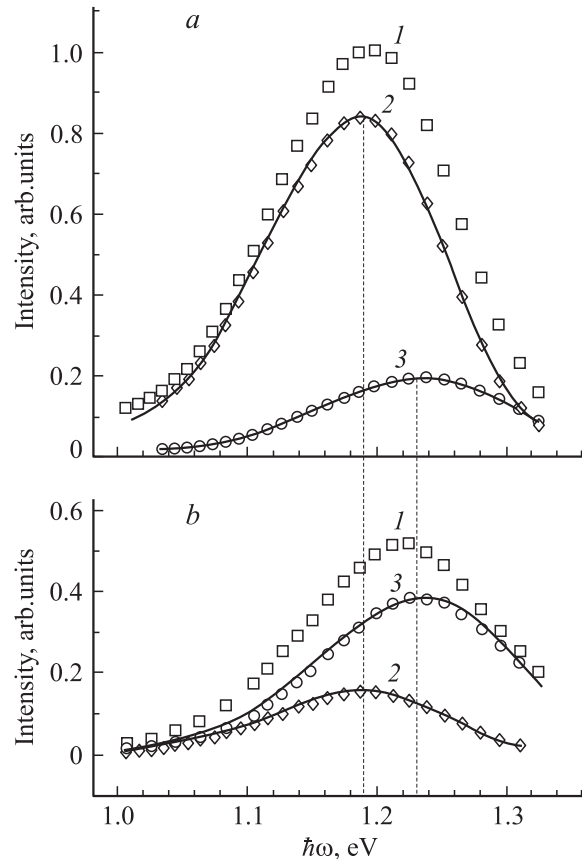


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции комплексов $V_{\text{Ga}}\text{Te}_{\text{As}}$ при температуре 2 К и давлении 10 кбар вдоль направления [111]. a — $\boldsymbol{\varepsilon} \parallel \mathbf{P}$, b — $\boldsymbol{\varepsilon} \perp \mathbf{P}$. 1 — эксперимент, кривые 2, 3 — компоненты 1 и 2, форма которых совпадает с формой спектра при нулевом давлении, точки 2, 3 — величины интенсивностей излучения, которые в сумме дают экспериментальный спектр и наилучшим образом совпадают с кривыми 1 и 2.

проявлялось в различии сдвигов спектра в зависимости от направления электрического вектора световой волны регистрируемого излучения (рис. 3) и свидетельствует о расщеплении спектра на несколько компонент с различной степенью поляризации. Эти компоненты непосредственно не наблюдаются и процедура их выделения основывалась на следующем.

1. Согласно приближенной модели, развитой в разд. 2, число расщепившихся компонент равно двум.

2. Энергетическое положение компоненты не меняется при изменении плоскости поляризации регистрируемого излучения, а форма их спектров одинакова и совпадает с формой спектра всей полосы при нулевом давлении (нулевой спектр). Последнее, в частности, позволяет в (1)–(4) заменять отношения интенсивности компонент отношением величин каждой компоненты в максимуме ее излучения.

3. Компонента I , соответствующая центрам, в которых ось диполя близка к оси давления, сдвинута в сторону меньших энергий фотонов по сравнению с компонентой 2, поскольку возбужденное (связывающее дырку) состояние этих центров при $\mathbf{P} \parallel [111]$ имеет меньшую энергию, благодаря чему и происходит выстраивание дисторсий [5].

Тогда энергия фотонов $\hbar\omega_{\max}(\perp)$, соответствующая максимуму сдвинутой в сторону больших энергий полосы излучения с $\varepsilon \perp \mathbf{P}$ (рис. 2), задает нижний предел положения по оси энергий максимума компоненты 2. Поэтому в качестве первого шага для выделения компонент полосы, соответствующей $\varepsilon \parallel \mathbf{P}$, можно предположить, что положение максимума компоненты 2 совпадает с $\hbar\omega_{\max}(\perp)$, а его величина при $\varepsilon \parallel \mathbf{P}$ такова, что самая высокоэнергетическая часть полного экспериментального спектра при указанной поляризации целиком определяется компонентой 2. Разница между полным спектром и этой компонентой должна представлять компоненту I , спектр которой по форме также должен совпадать с нулевым спектром. Если после первого шага этого не происходит, то улучшение согласия спектра разницы и нулевого спектра можно добиваться, уменьшая величину компоненты 2 и сдвигая ее в сторону больших энергий фотонов.

Проверкой достаточно точного определения компонент и применимости принятой модели может служить возможность описания экспериментального спектра с $\varepsilon \perp \mathbf{P}$ двумя такими же компонентами. При этом величины максимумов определенных составляющих должны удовлетворять соотношениям (1)–(4), содержащим всего два параметра (μ_2 и A).

Результаты такого выделения компонент показаны на рис. 2. Расщепление составляющих при $P = 10$ кбар составляет ~ 38 мэВ, а положения их максимумов соответствуют $\hbar\omega_1 \approx 1.192$ эВ и $\hbar\omega_2 \approx 1.230$ эВ. Относительные величины максимумов составляли $I_{1\max}(\parallel) \approx 0.85$, $I_{2\max}(\parallel) \approx 0.19$, $I_{1\max}(\perp) \approx 0.15$, $I_{2\max}(\perp) \approx 0.385$.

Используя эти значения, из (1) и (3) можно получить $\mu_2 = 0.15$ и $A = 0.57$. Такие же величины этих параметров следуют и из (2) и (4).

4. Обсуждение результатов и заключение

Прежде всего отметим, что полученные величины μ_2 и A лежат в пределах диапазонов возможных значений этих параметров, определенных в работах [5,11], и оценим погрешность, вводимую пренебрежением отклонением оси диполя от направлений типа $\langle 111 \rangle$. Рассматривая излучение центров первой группы с учетом этого отклонения, можно получить следующее соотношение, не содержащее, как и (1), параметра A :

$$\frac{I_1(\parallel)}{I_1(\perp)} = \frac{3\mu_2 + (1 - 2\mu_2)(2b + a)^2}{3\mu_2 + (1 - 2\mu_2)(b - a)^2}, \quad (5)$$

где $a = \sin \varphi$, $b = (1/\sqrt{2}) \cos \varphi$ — абсолютные величины проекций орта оси диполя на оси $\langle 100 \rangle$ кристалла. Используя $\varphi = 28^\circ 40'$ [5] и подставляя приведенные выше величины максимумов компонент из (5), получим значение μ_2 , не отличающееся от приведенного в разд. 3.

Для вычисления A с учетом указанного отклонения мы воспользуемся выражением, связывающим эту величину с интегральным поляризационным отношением полосы излучения при давлении вдоль оси $[111]$, обеспечивающим максимально возможное выстраивание дисторсий — r_{111}^* [5]:

$$A = \frac{r_{111}^* - 1}{r_{111}^* + 2} \frac{1}{(a + b)b} \frac{1 + \mu_2}{1 - 2\mu_2}. \quad (6)$$

Поскольку

$$r_{111}^* = \frac{I_{1\max}(\parallel) + I_{2\max}(\parallel)}{I_{1\max}(\perp) + I_{2\max}(\perp)}, \quad (7)$$

из результатов разд. 3 следует, что $r_{111}^* = 1.91$. Тогда, согласно (6), для исследованного образца $A = 0.56$, что практически совпадает с величиной, полученной на основании (3) или (4).

Следовательно, пренебрежение отклонением оси диполя от направления $\langle 111 \rangle$ не приводит к существенным погрешностям при определении параметров модели.

Полученная величина μ_2 заметно ниже значения 0.2, которое соответствует диполям, характеризующим излучение при рекомбинации электрона из c -зоны с дыркой, локализованной на акцепторе в состоянии с полным моментом $3/2$ и его проекцией $\pm 1/2$. Такое состояние образуется в результате спин-орбитального взаимодействия и воздействия внутрицентровой дисторсии (или внешнего одноосного давления), если спин-орбитальное взаимодействие является доминирующим. Случаю, когда μ_2 меньше 0.2, но существенно отличается от 0, отвечает ситуация, в которой дисторсионное и

спин-орбитальное расщепления исходного вакансионного t_2 -состояния комплекса имеют один порядок, т.е. роли спин-орбитального и ян-теллеровского взаимодействий в формировании основного состояния локализованной дырки сравнимы. Согласно оценкам [12], в излучающем состоянии комплекса ян-теллеровское расщепление достигает нескольких десятых эВ. Следовательно, и спин-орбитальное расщепление имеет тот же порядок.

В [5] из анализа данных по поляризации полосы 1.2 эВ при поляризованном резонансном возбуждении было получено эмпирическое соотношение, связывающее относительные вклады ротатора в поглощение и излучение света комплексами $V_{\text{Ga}}\text{Te}_{\text{As}}$:

$$\mu_1 = \frac{0.91 - 3.5\mu_2}{3.5 - 5.32\mu_2}. \quad (8)$$

Используя это соотношение и $\mu_2 = 0.15$, получим $\mu_1 = 0.14$.

Укажем также, что определенная в разд. 3 величина расщепления компонент полосы излучения согласуется с диапазоном возможных значений разницы энергий активации термической эмиссии дырок комплексами разной ориентации при том же давлении [11].

Таким образом, приведенные результаты показывают, что модель совокупности переориентирующихся и непереориентирующихся комплексов с одинаковыми значениями оптических параметров и направлениями оси излучающего диполя, близкими к одной из осей $\langle 111 \rangle$ [5,11], хорошо описывает форму связанной с этими центрами полосы фотолюминесценции в $n\text{-GaAs:Te}$ при одноосном давлении и низкой температуре. При этом полоса излучения с достаточной точностью может быть представлена суммой двух компонент, форма спектра которых совпадает с формой полосы при нулевом давлении, а интенсивности связаны соотношениями, справедливыми для излучающих диполей с тригональной осью. Это означает, что изменения энергий обоих разновидностей комплексов при давлении близки и зависят только от направления диполя относительно оси давления, а небольшая „нетригональность“ дефектов, которая должна приводить к появлению третьей компоненты в излучении, несущественна.

Выявление компонент излучения, принадлежащих комплексам различной ориентации, вместе с результатами работы [5] позволило определить оптические параметры комплексов в дипольном приближении и оценить относительную роль спин-орбитального и ян-теллеровского взаимодействий в формировании основного состояния дырки, связанной на комплексе $V_{\text{Ga}}\text{Te}_{\text{As}}$.

Представленный анализ также показывает возможность выявления компонент широкой полосы излучения анизотропных центров при одноосной деформации с помощью методики, использующей закономерности пьезоспектроскопического поведения таких дефектов. Этот способ может быть применен для центров тетрагональной, тригональной ромбической и моноклинной

симметрии, поскольку при соответствующих направлениях деформации их полосы излучения расщепляются только на две компоненты [9].

Список литературы

- [1] E.W. Williams. *Phys. Rev.*, **168**, 922 (1968).
- [2] Ф.Н. Воробкало, К.Д. Глинчук, А.В. Прохорович. *ФТП*, **7**, 896 (1973).
- [3] H.G. Guislain, L. De Wolf, P. Clauws. *J. Electron. Mater.*, **7**, 83 (1978).
- [4] Н.С. Аверкиев, А.А. Гуткин, Е.Б. Осипов, М.А. Решиков, В.Р. Сосновский. *ФТП*, **26**, 1269 (1992).
- [5] А.А. Гуткин, М.А. Решиков, В.Е. Седов. *ФТП*, **34**, 1201 (2000).
- [6] A. Gutkin, M. Reshchikov, V. Sedov, V. Sosnovski. *Proc. Estonian Acad. Sci. Phys. Math.*, **44**, 212 (1995).
- [7] A.A. Gutkin, N.S. Averkiev, M.A. Reshchikov, V.E. Sedov. *Proc. 18 Int. Conf. on Defects in Semicond.* (Sendai, Japan, July 23–28, 1995), ed. by M. Suezawa, H. Katayama-Yoshida. [*Mater. Sci. Forum*, **196–201**, pt 1, 231 (1995)].
- [8] N.S. Averkiev, A.A. Gutkin, E.B. Osipov, M.A. Reshchikov, V.R. Sosnovski. *Proc. 1 Nat. Conf. on Defects in Semicond.* (St. Petersburg, Russia, Apr. 26–30, 1992), ed. by N.T. Bagraev. [*Def. Dif. Forum*, **103–106**, 31 (1993)].
- [9] A.A. Kaplyanskii. *J. de Phys.*, **28**, Suppl., N 8–9, 4 (1967).
- [10] М.В. Фок. *Тр. ФИАН им. П.Н. Лебедева*, **59**, 3 (1972).
- [11] А.А. Гуткин, М.А. Решиков. *ФТП*, **37** (3), 287 (2003).
- [12] А.А. Гуткин, М.А. Решиков, В.Е. Седов. *ФТП*, **31**, 1062 (1997).

Редактор Л.В. Беляков

An analysis of a radiation band of $V_{\text{Ga}}\text{Te}_{\text{As}}$ complexes in $n\text{-GaAs}$ under uniaxial pressure

A.A. Gutkin, A.V. Yermakova

Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia