

n型砷化镓外延层中 1.48eV 发射带的时间分辨光谱的研究

段家祇

(北京大学物理系, 北京, 100871)

1991年6月28日收到, 同年10月29日修改定稿

用 VPE 技术生长的 n 型砷化镓外延层在 1.48eV 能量位置有一个发射带, 与我们熟知的 1.49eV 发射带有相似的光学特性。低温下的辐射寿命及时间分辨光谱测量进一步证实了它是由一个中性施主与中性受主对的复合发射产生的, 并且来源于杂质硅。

PACC: 7847, 7855

一、引言

先前许多报道无论是用 LEC (液封法) 生长的砷化镓 (GaAs) 体材料, 还是用 LPE (液相外延), VPE (汽相外延) 及 MOVPE (金属有机化合物汽相外延) 技术生长的 GaAs 外延层都已探测到在 1.49eV 能量位置有一个来源于碳受主杂质的发射带。在低温下光致发光连续光谱 (CW PL), 特别是时间分辨光谱 (TRS) 的研究证实了它产生于施主-受主对 (DAP) 的复合发光机制^[1-4]。也曾有文章报道用 CW PL 技术观察到用 LPE 技术生长的未掺杂的 GaAs 外延层在 1.48eV 附近有一个发射带来源于硅 (Si) 受主的 DAP 复合, 并发现发射带的发光强度和能量位置随温度和光源激发功率强度的变化规律^[5,6]。

通常用 VPE 和 MOVPE 生长技术在常规条件下, 在 GaAs 外延层中探测不到由 Si 受主杂质产生的发射带, 仅发现由硅施主-镓空位复合体 ($D_{Si-V_{Ga}}$) 引起的在 1.2eV 附近的宽发射带^[4,7]。

在对用 VPE 技术生长的不同厚度 GaAs 外延层进行了 CW PL 光谱测量研究后, 发现 1.48eV 发射带与 1.49eV 带的光学性质相似。在用 TRS 技术对它进行研究后进一步证实了这个事实。本文目的是报道用 CW PL 特别是 TRS 研究的结果, 证实在由 VPE 生长的无意识掺杂的 GaAs 外延层中也可见 1.48eV 发射, 它符合 DAP 复合机制, 并由其能量位置判断此发射带最可能来源于硅受主杂质 (Si_{As}) 而不是锗 (Ge_{As}) 或镉 (Cd_{As})。

二、实验和结果

实验研究的样品是具有不同厚度的 GaAs 外延层。用 VPE 生长技术在相同的硅

掺杂的 GaAs 衬底上(杂质浓度约 10^{18}cm^{-3}), 生长厚度分别为 $3\mu\text{m}$, $6\mu\text{m}$ 和 $24\mu\text{m}$ (此后分别称它们为 3μ , 6μ 和 24μ) 的外延层, 它们的无意识掺杂的杂质浓度 N_D-N_A 分别为 $3\times 10^{17}\text{cm}^{-3}$, $1.8\times 10^{17}\text{cm}^{-3}$ 和 $3\times 10^{16}\text{cm}^{-3}$.

CW PL 测量使用氩离子激光器(波长 514.5nm)为激发光源, 使用 1m 光谱仪(0.5meV 分辨率)和一个用液氮致冷的 Ge 探测器, 并配合以通常的锁相技术. 样品测试温度范围为 $5-25\text{K}$, 激发光功率密度为 0.4 至 $26\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$.

辐射寿命和 TRS 的测量使用染料激光器(在 605nm 波长)以锁模氩离子激光器作为同步泵源, 脉冲宽度为 5ps , 重复频率为 8MHz . 使用 0.25m 双光栅光谱仪(1meV 分辨率)、PM3310 InGaAs 光电倍增管及时间相关的光子计数技术, 时间分辨率为 350ps . 一系列的衰减曲线以 0.3meV 间隔在 $1.47-1.50\text{eV}$ 内获得. 所有样品均置于一个连续流动的液氮冷却恒温器中.

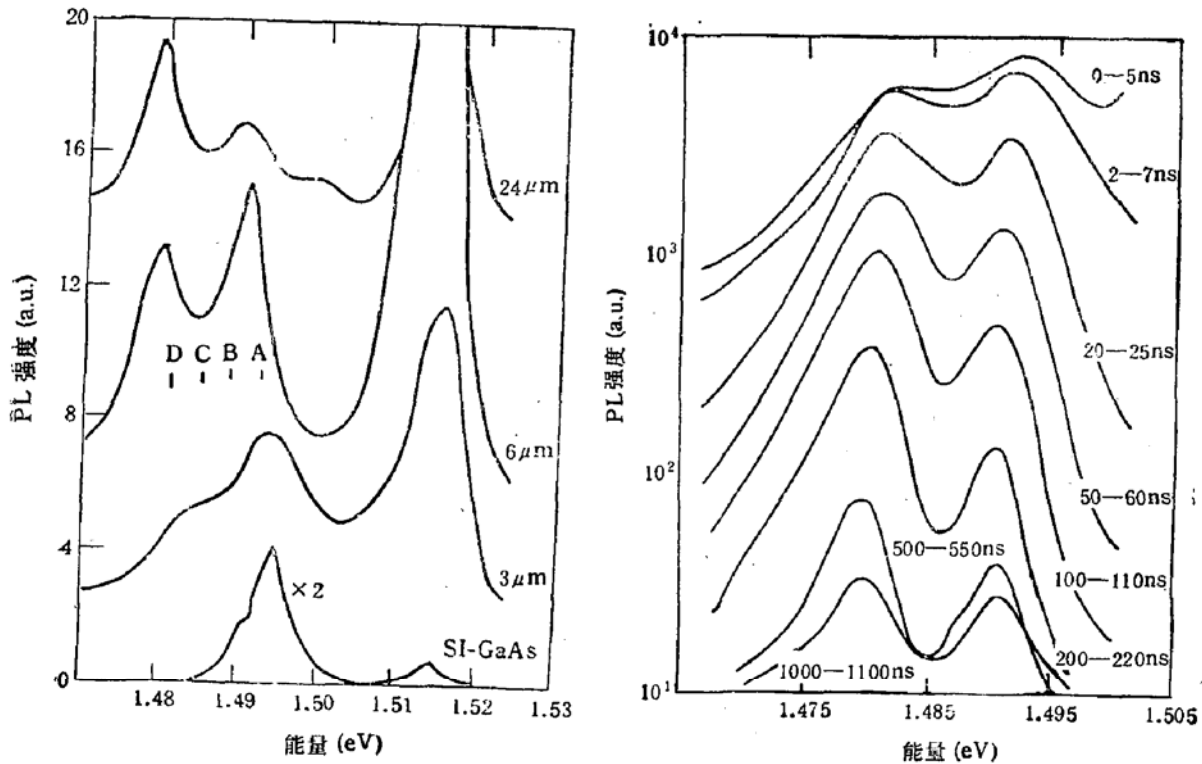


图1 样品 SI-GaAs, $3\mu\text{m}$, $6\mu\text{m}$ 和 $24\mu\text{m}$ 的 CW PL 光谱, 激发光功率密度为 $9\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$, 温度为 5K

图2 低温下 6μ 样品在 B、D 峰能量区域内的时间分辨光谱 (TRS)

脉冲激发功率密度为 $17\text{kW}\cdot\text{cm}^{-2}$

图1 给出了四个样品在 $1.47-1.53\text{eV}$ 能量区域中的 CW PL 光谱, 它们分别是半绝缘 GaAs(SI GaAs), $3\mu\text{m}$, $6\mu\text{m}$ 和 $24\mu\text{m}$. 其中有 4 个发射带分别标记为 A 在 1.494eV , B 在 1.49eV , C 在 1.484eV 和 D 在 1.48eV 能量位置.

A 发射带来源于导带中自由电子与中性受主的复合(标记为 (e, A^0)), B 带为中性施主与中性受主对的复合(标记为 (D^0, A^0)), 受主杂质为碳^[3]. C 带在 1.484eV 位置, 符合 (e, A^0) 复合且来源于硅受主杂质^[4,5,7].

为了识别 D 发射带, 我们将 1.48eV 与 1.49eV 带及两个含杂质浓度不同的样品 6μ 和 24μ 的 CW PL 光谱作了比较. 用两个洛仑兹分布去拟合在不同温度、不同的激光激发

功率下的发射谱线。两个带的谱线形状都遵循非指数变化的特性,两个峰的能量位置随激光激发功率密度增加以同样趋势移向高能方向(在实验所取激光激发功率密度范围内,对 6μ 样品每提高激发功率一个数量级时,能量改变略大于 0.3meV ;而 24μ 样品能量改变略小于 0.3meV);这两个带的谱线半宽 (FWHM) 随激发功率密度增加;其积分强度差不多是线性地随激发功率密度增长。至于温度依赖关系的测量结果表明,在较小的温度范围内(如 $5-25\text{K}$ 我们所取的数值内),两个峰的能量位置随温度升高以相同速率移向高能方向;谱线半宽也随之增加; 1.49eV 带的积分强度随温度升高急剧下降,但 1.48eV 带在 $5-25\text{K}$ 范围内无变化。

进一步对其中一个样品 (6μ) 进行了辐射寿命和 TRS 测量, TRS 结果见图 2。 1.48eV 与 1.49eV 带的发射强度随时间变化遵循非指数衰减特性并具有长寿命, 1.48eV 比 1.49eV 发射带衰减慢,它们的寿命从几十纳秒 (ns) 至上百纳秒。我们对图 2 所有曲线也用两个洛仑兹分布进行拟合,定量地得到两个发射带随时间以大约 $-3\text{meV}/\mu\text{s}$ 速率移向低能方向,见图 3,同时也得到它们的积分强度在不同激发光功率密度下的衰减明显地表现出一个规律,即激发功率密度越高,寿命越短,见图 4 (图中曲线 6, 5, 4 为 1.49eV 带分别在 $50\text{kW}\cdot\text{cm}^{-2}$, $17\text{kW}\cdot\text{cm}^{-2}$ 和 $6\text{kW}\cdot\text{cm}^{-2}$ 脉冲激发功率密度下; 3, 2, 1 为 1.48eV 带分别在以上三个对应的脉冲激发功率密度下随时间的衰减曲线)。

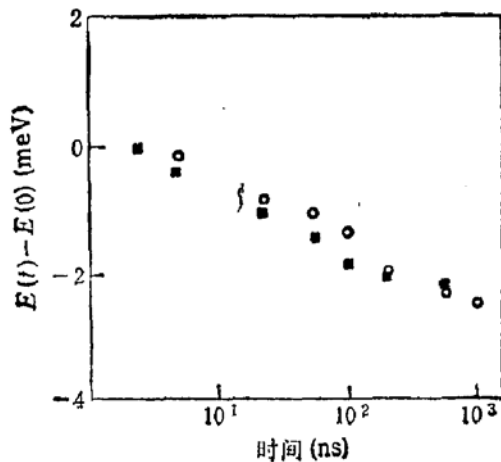


图 3 1.48eV 和 1.49eV 发射峰能量位置随时间的变化
■ 表示 1.49eV 发射峰能量位置; ○ 表示 1.48eV 发射峰的能量位置

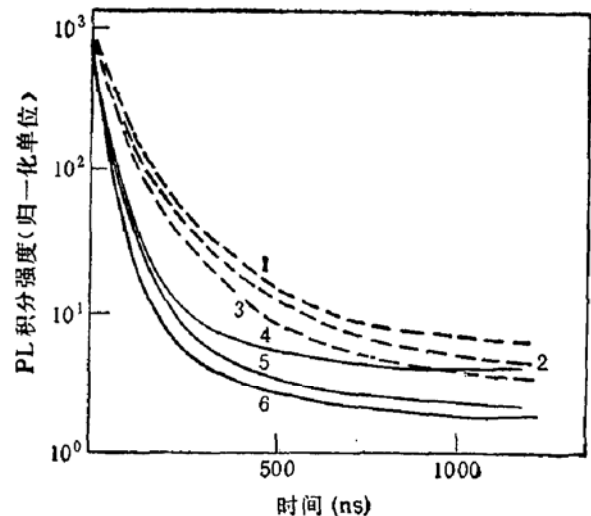


图 4 1.48eV 和 1.49eV 发射带积分强度在不同的脉冲激发功率密度下随时间衰减。温度 5K 。
---- 表示 1.48eV 发射带, —— 表示 1.49eV 发射带

三、讨 论

1.49eV 发射带在 LPE, VPE 和 MOVPE 等各种外延生长技术下,无论在有或无碳掺杂的样品中都可被探测到,它来源于碳受主的 (D° , A°) 复合发光。

实验结果揭示了, 1.48eV 带与 1.49eV 带有相似的光学特性。在 CW PL 光谱中两个发射峰的能量位置随激发功率密度变化及发射强度与激发功率强度间的线性特征均符

合某些关于 DAP 的报道^[9,9]。关于 6μ 样品中峰的能量移动略大于 24μ 样品中相同位置发射峰的能量移动,原因是由 DAP 复合发射能量的基本公式

$$E(\hbar\nu) = E_g - (E_D + E_A) + \frac{e^2}{\epsilon r}$$

(其中 E_g ——禁带宽度, E_D , E_A 分别为施主、受主杂质的离化能, ϵ ——介质的介电常数, e ——电子电量, r ——DAP 的平均距离), 较高的杂质浓度导致 r 减小, 库仑相互作用项 $\frac{e^2}{\epsilon r}$ 增大。1.48eV 带在 25K 以下积分强度随温度变化不明显的事实与已有的报

道并不矛盾, 因为 (D°, A°) 温度特性在 25—35K 较明显^[10]。1.48eV 与 1.49eV 峰在温度变化较小时, 随温度升高以相同速率移向高能方向, 可作如下解释: 由于温度升高(在 $<35K$ 的小范围内温度变化, 禁带宽度 E_g 变化很小), 处于某些施主位置上的电子被释放, 而迁移到其它更加有利于复合的施主位置上, 使 DAP 复合的平均寿命减小。由于辐射寿命随施-受主对距离 r 的减小而减小, 短寿命对应短的 DAP 距离 r 。所以, 温度在小范围内的升高产生的后果是使 r 减小, 由上述 DAP 复合的能量基本公式看, r 减小使 DAP 的平均库仑相互作用增加, 则峰位往高能方向移动。

TRS 测量得到短寿命的结果通常与激子复合相联系。激子复合及 (e, A°) 复合发射强度随时间变化都符合指数衰减规律。而 DAP 复合对应的 TRS 测量结果是长寿命; 发射强度随时间呈非指数衰减规律^[11,12]; 谱线形状即发射强度随波长(能量)变化呈非指数关系; 寿命随脉冲激发功率密度变化, 激发功率密度越大, 寿命越短。1.48eV 发射带的 TRS 测量结果符合 DAP 复合的特性。1.48eV 与 1.49eV 两个发射带的谱线半宽随时间变窄且以 $-3\text{meV}/\mu\text{s}$ 速率移向低能方向的数量也与 DAP 复合的报道相符合^[8,12]。

1.48eV 发射带在我们的样品中出现的最可能来源是 Si 受主杂质。Si, Cd 和 Ge 受主杂质在 GaAs 中离化能分别为 34.8meV ^[13] (34.5meV ^[7]), 34.7meV 和 40.4meV ^[7,13,2]。在 Ge 掺杂的由 VPE 或 LPE 生长的 GaAs 外延层在 4.2K 温度下 Ge 受主在 1.475 eV 的发射来源于 (D°, A°) 复合; 在较高温度激发的 1.48eV 峰是 (e, A°) 复合发射^[8,9,7], 而我们样品在此能量位置是 (D°, A°) 复合发射。Cd 受主在有 Cd 掺杂的 GaAs 外延层中才出现, 而本实验中无有意识的 Cd 掺杂。所以 Ge, Cd 不可能是我们讨论的样品中 1.48eV (D°, A°) 复合的受主杂质。

在有 Si 或无 Si 掺杂的 GaAs 外延层中, 1.48eV 能量位置附近出现与硅受主联系的一对(即 (D°, A°) 与 (e, A°) 一对发射)或一个发射带 (e, A°) 的情况取决于不同的生长技术和生长条件^[5,6,7,4]。

在 3μ 样品中有两个宽发射带, 一个位于 1.484eV, 另一个位于 1.494eV, 这两个带的谱线半宽由洛仑兹分布拟合得到约为 12meV (而 6μ , 24μ 样品中的 1.48eV 和 1.49eV 峰半宽约 5—8meV), 可推测它们各为一对 (D°, A°) 和 (e, A°) 发射带的交叠。由于 3μ 样品的 $N_D - N_A$ 达 $3 \times 10^{17}\text{cm}^{-3}$, 高于 6μ 和 24μ 样品含杂质的浓度。在较高掺杂的施主浓度(浅施主能级)水平上, 导带中自由电子增加, 在 (e, A°) 发射增长的同时, (D°, A°) 发射减弱, 在某些杂质浓度下, (e, A°) 发射将占支配地位^[8]。我们样品中 1.48eV 带很象这一结构。综上所述, 在这一能量位置最可能的受主杂质是硅。

四、结 论

我们研究的由 VPE 生长技术生长的 GaAs 外延层中 1.48eV 发射带通过 CW PL 光谱特别是 TRS 的研究表现了 (D^0 , A^0) 发射的所有特性。这证实了用 VPE 技术在一定条件下生长的 GaAs 外延层中也可出现 1.48eV 发射带, 而且这个发射带最可能来源于受主杂质为硅的施主-受主对复合。

参 考 文 献

- [1] T. Kamiya and Elmar Wagner, *J. Appl. Phys.*, 47(7), 3219(1976).
- [2] D. W. Kisker, H. Tews, and W. Rehm, *J. Appl. Phys.*, 54(3), 1332(1983).
- [3] G. B. Stringfellow, W. Koschel, F. Briones, J. Gladstone and G. Patterson, *Appl. Phys. Lett.*, 39(8), 581(1981) and C. K. Teh, and F. L. Weichman, *J. Luminescence* 40&41, 359(1988).
- [4] J. Van de Ven, H. G. Schoot and L. J. Giling, *J. Appl. Phys.*, 60(5), 1648(1986).
- [5] W. A. Brandley, C. J. Hwany, L. R. Dawson and H. S. Quisser, *Solid State Commun.*, 10, 1141(1972).
- [6] F. Bantien, E. Bauser and J. Weber, *J. Appl. Phys.*, 61(8), 2803(1987).
- [7] D. J. Ashen, P. J. Dean, D. T. J. Hurle, J. B. Mullin and A. M. White, and P. D. Greene, *J. Phys. Chem. Solids*, 36, 1041(1975).
- [8] R. Dingle, *Phys. Rev.*, 184(3), 788(1969).
- [9] W. Schairer and W. Graman, *J. Phys. Chem. Solids*, 30, 2225(1969).
- [10] E. W. Williams and H. Barry Bebb, in *Semiconductors and Semimetals*, Vol. 8, Edited by Williams and Beer, 1972, p. 336.
- [11] D. G. Thomas, J. J. Hopfield and W. M. Augustyniak, *Phys. Rev.*, 140(1A), A202(1965).
- [12] R. Dingle and K. F. Rodgers, *Appl. Phys. Lett.*, 14(6), 183(1969).
- [13] R. F. Kirkman, R. A. Stradling and P. J. Lin-Chung, *J. Phys. C: Solid State Phys.* 11, 419(1978).

Time-Resolved Photoluminescence Study of 1.48eV Emission Band in Epitaxial n-Type GaAs

Duan Jiaqi

(Department of Physics, Peking University, Beijing, 100871)

Abstract

An emission band in the energy position of 1.48eV has been observed in epitaxial n-type GaAs grown by VPE. The optical properties of the 1.48eV band are similar to those of the well known 1.49eV band. The radiative life-time and time-resolved spectrum measurements at low temperatures have confirmed that the 1.48eV band is attributed to the recombination emission of the neutral donor-neutral acceptor pairs originated from silicon acceptors.

PACC: 7847, 7855