

## Примесная терагерцовая люминесценция при межзонном фотовозбуждении полупроводников

А. В. Андрианов<sup>1)</sup>, А. О. Захарьин, Ю. Л. Иванов, М. С. Кипа

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

Поступила в редакцию 1 декабря 2009

После переработки 18 декабря 2009 г.

Сообщается об обнаружении интенсивного терагерцового излучения при межзонном фотовозбуждении полупроводников ( $n$ -GaAs и  $p$ -Ge) при низких температурах. Терагерцовая фотолюминесценция обусловлена излучательными переходами, имеющими место в процессе захвата неравновесных носителей на ионизованные примесные центры, которые в свою очередь создаются в кристалле в результате электронно-дырочной рекомбинации с участием примесей. Внешний квантовый выход излучения составляет до 0.1%.

В последние годы интенсивно исследуются физические явления, обуславливающие генерацию электромагнитного излучения терагерцового (ТГц) диапазона (0.1–10 ТГц), что связано с перспективами применения ТГц излучения в различных областях, включая безопасность, медицину, астрономию и биологию. Один из вариантов ТГц излучателя может быть реализован с использованием оптических переходов между уровнями энергии мелких примесных центров в полупроводниках при электрическом пробое примесей [1–4]. При этом излучательные переходы возникают в результате захвата неравновесных носителей на ионизованные примеси. В такой системе возможно достижение ТГц лазерной генерации [5]. ТГц излучательные переходы, в том числе и стимулированные, возможны также при фотоионизации примесных центров инфракрасным излучением [6].

Здесь мы показываем, что ТГц излучательные переходы могут иметь место и в случае межзонного фотовозбуждения полупроводников, легированных мелкими примесями. Механизм такой ТГц фотолюминесценции в случае кристалла, легированного донорной примесью, состоит в следующем. Неравновесные электроны и дырки, созданные в результате межзонной накачки, рекомбинируют либо через собственные каналы рекомбинации (электронно-дырочная рекомбинация, экситоны), либо с участием примесей, в том числе мелких доноров. При низкой температуре и слабой компенсации донорные центры заселены электронами и находятся в нейтральном состоянии. Свободная дырка, созданная светом, рекомбинирует с таким связанным электроном. Данный тип рекомбинации образует интенсивную линию, называемую  $h-D^0$  (см. [7] и другие ссылки там) в

спектре краевой фотолюминесценции (ФЛ) кристаллов типа  $n$ -GaAs. В результате рекомбинации  $h-D^0$  остается заряженный донорный центр, который затем захватывает свободный неравновесный электрон из зоны проводимости. Захват электрона на примесный центр сопровождается как безызлучательными переходами, которые, безусловно, преобладают, так и излучательными, с испусканием ТГц фотонов. В случае кристалла, содержащего нейтральные акцепторы, рекомбинация неравновесных электронов с дырками, связанными на акцепторах ( $e-A^0$ -рекомбинация), будет приводить к образованию заряженных акцепторов. Захват неравновесных дырок из валентной зоны на ионизованные акцепторы, созданные в процессе  $e-A^0$ -рекомбинации, будет также сопровождаться ТГц излучением. Описанный выше механизм генерации ТГц излучения в полупроводниках может быть весьма эффективным. Тем не менее, исследований ТГц излучения, возникающего при возбуждении электронов и дырок светом из собственной полосы поглощения, ранее не проводилось. В настоящей работе сообщается о наблюдении ТГц люминесценции при межзонном фотовозбуждении кристаллов  $n$ -GaAs и  $p$ -Ge при гелиевых температурах.

Экспериментальные исследования выполнялись на слоях  $n$ -GaAs, полученных методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) на подложках полуизолирующего GaAs. Толщины эпитаксиального слоя и подложки составляли порядка 0.8 мкм и 300 мкм соответственно. Эпитаксиальный слой специально не легировался, но концентрация электронов при 300 К ( $N_D - N_A$ ) составляла  $\sim 4 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ . Исследовались также образцы Ge(Ga) с  $N_A - N_D \sim 3 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ , имеющие форму пластинок толщиной 500 мкм. Исследуемые образцы размещались в гелиевом оптическом криостате для ТГц измерений с ре-

<sup>1)</sup>e-mail: alex.andrianov@mail.ioffe.ru

гулируемой температурой. В качестве источника фотовозбуждения использовался непрерывный полупроводниковый с длиной волны 645 нм. Максимальная мощность излучения составляла 40 мВт. Лазерное излучение, модулируемое механическим прерывателем на частоте 75 Гц, после прохождения через серию малых диафрагм и фильтров, предотвращающих проникновение в измерительную часть установки теплового фона лазера, фокусировалось на поверхность эпитаксиального слоя в пятно диаметром порядка 2 мм. ТГц люминесценция измерялась в обычной геометрии “обратного рассеяния”. Спектральные измерения проводились с использованием фурье-спектрометра на область  $5\text{--}350\text{ см}^{-1}$ , работающего в режиме шагового сканирования. Сигнал ТГц излучения измерялся с помощью охлаждаемого жидким гелием Si болометра методом синхронного детектирования на частоте 75 Гц.

На рис.1 приведен характерный спектр излучения, наблюдаемый при межзонном фотовозбуждении

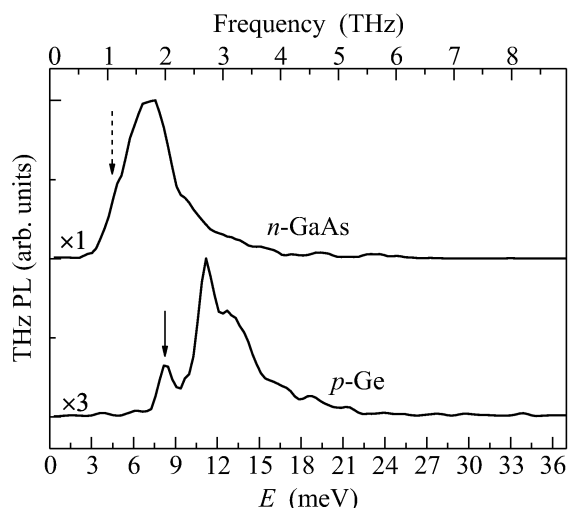


Рис.1. Характерные спектры ТГц фотолуминесценции при  $T = 5\text{ К}$  эпитаксиальных слоев  $n\text{-GaAs}$  ( $N_D - N_A \sim 4 \cdot 10^{15}\text{ см}^{-3}$ ) и кристаллов  $p\text{-Ge(Ga)}$  ( $N_A - N_D \sim 3 \cdot 10^{13}\text{ см}^{-3}$ ). Интенсивность фотовозбуждения  $\sim 1\text{ Вт/см}^2$ . Пунктирная стрелка указывает энергию 4.4 мэВ, соответствующую переходам между уровнями 2P и 1S мелкого донора в GaAs [2]. Сплошная стрелка указывает энергию 8.25 мэВ, которая соответствует внутризонным оптическим переходам между уровнями  $2\Gamma_8^-$  и  $1\Gamma_8^+$  мелкого акцептора (Ga) в Ge [4]. Спектры скорректированы с учетом спектральной характеристики измерительной системы. Кривые смещены по вертикали для ясности

эпитаксиальных слоев  $n\text{-GaAs}$ . В спектре видна линия с полушириной  $\sim 4\text{ мэВ}$  и максимумом при

$\sim 7.2\text{ мэВ}$ . Принимая во внимание калиброванную вольт-ваттную чувствительность детектора ТГц излучения, а также потери связанные со сбором и доставкой излучения к детектору, оценки спектрально интегрированной эффективности источника ТГц излучения по мощности дают величину  $\sim 4.3 \cdot 10^{-6}$ . С учетом величин энергий кванта накачки и ТГц излучения мы получаем для внешнего квантового выхода ТГц фотолуминесценции в  $n\text{-GaAs}$  величину  $\sim 10^{-3}$ . При повышении температуры интенсивность излучения уменьшается (см. рис.2), и при

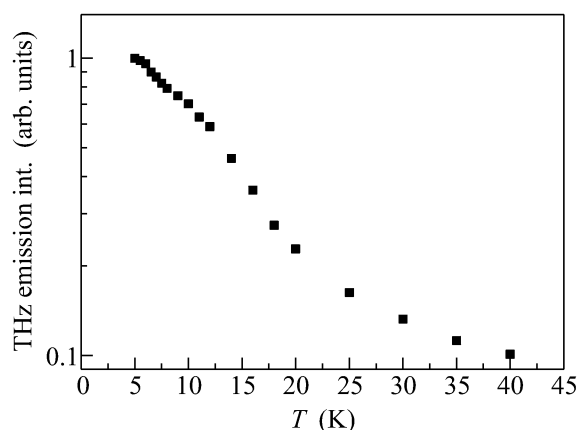


Рис.2. Температурная зависимость интегральной ТГц фотолуминесценции слоя  $n\text{-GaAs}$ . Интенсивность фотовозбуждения  $\sim 1\text{ Вт/см}^2$

$T \sim 50\text{ К}$  ТГц сигнал практически падает до нуля. На рис.3 показана зависимость интенсивности ТГц

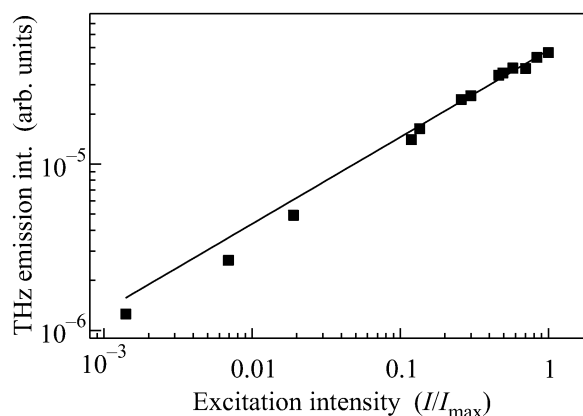


Рис.3. Зависимость интенсивности ТГц фотолуминесценции слоя  $n\text{-GaAs}$  от интенсивности возбуждения при  $T = 5\text{ К}$ . Максимальная интенсивность возбуждения  $\sim 1\text{ Вт/см}^2$ . Точки – эксперимент, кривая – зависимость вида  $I_{PL} = \text{const} \times \sqrt{I_{\text{exc}}}$

излучения от интенсивности фотовозбуждения, которая, как можно видеть, носит в целом сублинейный

характер. Видно, что при высоких интенсивностях фотовозбуждения эта зависимость хорошо аппроксимируется корневым законом.

Наблюдаемые свойства ТГц фотолюминесценции в  $n$ -GaAs позволяют связать ее с процессом излучательного захвата неравновесных носителей заряда на заряженные донорные центры. Основной вклад в ТГц излучение дают оптические переходы электронов из состояний в зоне проводимости на основное состояние донора. Энергия таких переходов превышает энергию связи мелкого донора в GaAs  $E_B = 5.8$  мэВ [8] на величину  $\sim 1.4$  мэВ, что мы объясняем разогревом неравновесных электронов в зоне проводимости. Действительно, оценки эффективной температуры электронов  $T_e$  показывают, что в условиях эксперимента  $T_e$  может составлять величину порядка 15–20 К. Внутрицентровые переходы типа  $2P \rightarrow 1S$  с энергией  $\sim 4.4$  мэВ [2], безусловно, также дают вклад в излучение, но вследствие значительного неоднородного уширения они не разрешаются в виде узкой линии, а проявляются только как слабое низкоэнергетическое плечо основной линии излучения. Ионизованные доноры, захват электронов на которые в условиях низких температур приводит к ТГц излучению, в материале  $n$ -типа, в свою очередь, создаются в результате рекомбинации фотовозбужденной дырки с электроном на нейтральном доноре ( $h - D^0$ -переходы). Температурное тушение ТГц фотолюминесценции (рис.2), по-видимому, связано с несколькими факторами, один из которых – уменьшение вероятности захвата электрона донорным центром с ростом температуры, но для детального объяснения температурной зависимости требуются дополнительные исследования. Сублинейная зависимость интенсивности ТГц фотолюминесценции от интенсивности возбуждения (рис.3) также свидетельствует в пользу механизма излучения, связанного с захватом свободных электронов на заряженные донорные центры. Анализ уравнений баланса (см., например, [9]) для электронов и дырок в разрешенных зонах, а также для нейтральных и заряженных центров приводит при слабых накачках к линейной зависимости интенсивности ТГц излучения  $I_{PL}$ , связанного с указанным выше механизмом, от интенсивности фотовозбуждения  $I_{exc}$  и к корневой зависимости в случае высокой интенсивности накачки. Именно такой характер зависимости  $I_{PL}$  от  $I_{exc}$  наблюдается экспериментально (см. рис.3). Используя результаты расчета времени излучательного перехода свободного электрона на  $1S$  состояние атома водорода [10], модифицированные для случая донорной примеси в GaAs, при концентрации доноров  $\sim 4 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$  мож-

но получить оценку излучательного времени жизни  $\tau_{rd} \sim 10^{-5}$  с. Экспериментальные значения сечений захвата свободных электронов на заряженные доноры в GaAs при гелиевых температурах составляют  $\sim 5 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$  [11], что при указанной выше концентрации центров соответствует значению безызлучательного времени жизни  $\tau_{nrd} \sim 10^{-8}$  с. Отношение времен  $\tau_{nrd}/\tau_{rd}$  дает оценку величины внутреннего квантового выхода ТГц излучения, которая составляет  $\sim 10^{-3}$ . В эксперименте мы наблюдаем близкую величину. Необходимо добавить, что в условиях нашего эксперимента различие между внутренним и внешним квантовым выходом излучения не должно быть существенным, поскольку излучение с длиной волны  $\sim 200$  мкм генерируется в тонком диске толщиной  $\sim 1$  мкм и диаметром  $\sim 2$  мм и значительная доля его выходит из кристалла.

ТГц фотолюминесценция более слабой интенсивности наблюдалась и в кристаллах  $p$ -Ge(Ga). Типичный спектр такой ФЛ приведен на рис.1. Характер спектра ТГц фотолюминесценции позволяет отнести ее также к излучательным переходам неравновесных носителей заряда (дырок из валентной зоны) на заряженные примесные центры (акцепторы). Можно видеть, что максимум спектра излучения приходится на энергию  $\sim 11.2$  мэВ, что близко к энергии связи примеси Ga в германии 11 мэВ, известной из литературы (см. [12]). Поскольку исследованные кристаллы германия имеют малую концентрацию примеси и неоднородное уширение линий излучения для них значительно меньше, в спектре отчетливо видна линия внутрицентровых переходов  $2\Gamma_8^- \rightarrow 1\Gamma_8^+$  (мы используем общепринятую классификацию состояний акцептора в кристаллах типа Ge (см. [13])) с максимумом при 8.25 мэВ. Данная линия излучения ранее наблюдалась в спектрах ТГц электролюминесценции, вызванной ударной ионизацией примесных центров в Ge(Ga) [4]. В спектре ТГц фотолюминесценции Ge(Ga) (рис.1) видна также широкая линия с максимумом при  $\sim 12.8$  мэВ, которую можно отнести к излучательным переходам горячих дырок из состояний в валентной зоне на основное состояние акцептора  $1\Gamma_8^+$ .

Таким образом, на примере GaAs, содержащего мелкие донорные центры, и Ge с мелкой акцепторной примесью показано, что межзонное стационарное фотовозбуждение полупроводника при низких температурах приводит к ТГц фотолюминесценции, которая обусловлена излучательным захватом неравновесных свободных носителей на ионизованные примесные центры. При низких температурах фотоактивные ионизованные центры создаются в кри-

талле в результате электронно-дырочной рекомбинации с участием примеси. Внешний квантовый выход обнаруженной ТГц фотолюминесценции для  $n$ -GaAs при  $T = 5$  К составляет величину  $\sim 0.1\%$ , что делает схему межзонного возбуждения полупроводников подходящей для практических применений в ТГц технологиях. В заключение отметим, что нами наблюдалась интенсивная ТГц фотолюминесценция в легированных мелкими примесями квантовых ямах GaAs/AlGaAs, результаты исследования которой будут представлены в отдельной публикации.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 08-02-00162), Программы РАН 2009 №27 “Основы фундаментальных исследований нанотехнологий и наноматериалов”, Программы ОФН РАН “Современные проблемы радиофизики”, а также при частичной поддержке Министерства науки и образования (Программа развития научного потенциала университетов России, грант # 2.1.1/2503). Авторы выражают благодарность И.Н. Ясиевич за обсуждение результатов работы, а также С.В. Иванову за предоставление образцов GaAs, полученных методом МПЭ.

1. S. H. Koenig and R. D. Brown, Phys. Rev. Lett. **4**, 170 (1960).
2. I. Melngailis, G. E. Stillman, J. O. Dimmock et al., Phys. Rev. Lett. **23**, 1111 (1969).
3. T. N. Adam, R. T. Troeger, S. K. Ray et al., Appl. Phys. Lett. **83**, 713 (2003).
4. А. В. Андрианов, А. О. Захарьин, И. Н. Ясиевич и др., Письма в ЖЭТФ **79**, 448 (2004).
5. M. A. Odnobludov, I. N. Yassievich, M. S. Kagan et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 644 (1999).
6. S. G. Pavlov, H.-W. Hübers, E. E. Orlova et al., Phys. Stat. Sol. (b) **235**, 126 (2003).
7. А. В. Акимов, А. А. Каплянский, В. В. Криволапчук и др., Письма в ЖЭТФ **46**, 35 (1987).
8. R. J. Almassy, D. C. Reynolds, C. W. Litton et al., Sol. St. Commun. **38**, 1053 (1981).
9. M. Balkanski and R. F. Wallis, *Semiconductor Physics and Applications*, Oxford University Press, 2000.
10. I. I. Sobelman, *Introduction to theory of atomic spectra*, Oxford, New York, Pergamon Press, 1972.
11. D. Bimberg, H. Munzel, A. Stekenborn et al., Phys. Rev. B **31**, 7788 (1985).
12. F. Bassani, G. Iadonisi, and B. Preziosi, Reports on Prog. Phys. **37**, 1099 (1974).
13. R. Buczko, IL Nouovo Cimento **9**, 669 (1987).