

# Анализ изменений интенсивности собственной люминесценции, происходящих после диффузии меди в полуизолирующие нелегированные кристаллы арсенида галлия

© Ф.М. Воробкало, К.Д. Глинчук, А.В. Прохорович

Институт физики полупроводников Национальной академии наук Украины, 252023 Киев, Украина

(Получена 9 июля 1997 г. Принята к печати 10 декабря 1997 г.)

Проанализировано влияние диффузии меди в полуизолирующие нелегированные кристаллы GaAs на интенсивность собственной люминесценции. Показано, что диффузия меди в полуизолирующие нелегированные кристаллы GaAs может приводить как к повышению, так и понижению интенсивности собственной люминесценции. Получены аналитические соотношения, связывающие величину и знак эффекта с рекомбинационными параметрами указанных кристаллов, а также с интенсивностью возбуждения люминесценции.

## 1. Введение

Известно, что высокотемпературный прогрев ( $T = 800-900^\circ\text{C}$ ) полуизолирующих нелегированных кристаллов арсенида галлия (ПИН GaAs) широко используется для повышения их однородности (см., например, [1,2], а также обзор [3]). В процессе указанного термического воздействия возможна диффузия меди в объем кристаллов ПИН GaAs, существенно изменяющая спектр локальных центров в них [1-3]. Поэтому в последние годы определенное внимание уделяется изучению влияния меди на электрофизические (в частности, люминесцентные) свойства кристаллов ПИН GaAs, что позволяет получить надежные сведения об индуцированных медью изменениях в их энергетической структуре (см., например, [4,5], а также обзор [3]). Надежная работа также связана с изучением влияния меди на люминесцентные свойства кристаллов ПИН GaAs. Ее сущность состоит в следующем. В работах [1,2] наблюдались значительные изменения интенсивности собственной люминесценции кристаллов ПИН GaAs после диффузии в них меди. При обсуждении полученных данных авторы [1,2] ограничились изложением наблюдаемых ими явлений и их качественным рассмотрением, что не позволило выяснить характер приведенных ими закономерностей и дать их убедительное физическое описание. В отличие от работ [1,2] мы проведем детальный анализ влияния диффузии меди в кристаллы ПИН GaAs на интенсивность собственной люминесценции и представим реальную картину происходящих при этом физических явлений.

## 2. Изменение интенсивности собственной люминесценции после диффузии меди в кристаллы ПИН GaAs (теория)

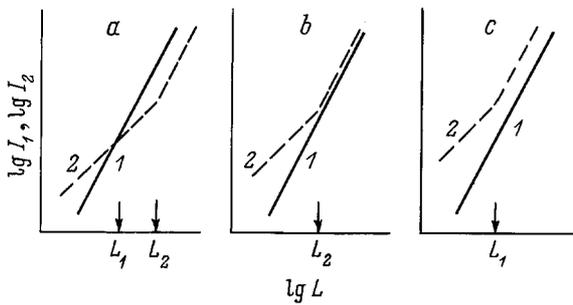
Найдем интенсивность собственной люминесценции (она обусловлена прямой излучательной рекомбинацией свободных электронов и дырок, соответствующий коэф-

фициент рекомбинации  $c$ ) в исходных кристаллах ПИН GaAs и полученных после диффузии в них меди кристаллах  $p$ -GaAs (электрические свойства этих кристаллов детально описаны в [4,5]). В исходных кристаллах ПИН GaAs концентрации равновесных электронов и дырок весьма малы по сравнению с их избыточными, созданными освещением, концентрациями  $\delta n_1$  и  $\delta p_1$ . Диффузия меди в рассматриваемые полуизолирующие кристаллы приводит к их преобразованию в низкоомные кристаллы  $p$ -GaAs [4,5]. Поэтому в легированных медью кристаллах  $p$ -GaAs концентрация равновесных электронов весьма мала по сравнению с их избыточной концентрацией  $\delta n_2$ , а концентрация равновесных дырок  $p_0$  может быть как выше, так и ниже концентрации избыточных дырок  $\delta p_2$  в них. В этом случае интенсивность собственной люминесценции в исходных кристаллах ПИН GaAs  $I_1$  и полученных после диффузии в них меди  $I_2$  определяются соотношениями (предполагается, что толщина кристаллов  $d$  в направлении распространения света у существенно превышает длину диффузии электронно-дырочных пар  $l_d$  и глубину проникновения возбуждающего света  $1/k$ ):

$$I_1 = c \int_0^\infty \delta p(y) \delta n(y) dy, \quad (1)$$

$$I_2 = c \int_0^\infty [p_0 + \delta p(y)] \delta n(y) dy. \quad (2)$$

Далее предположим, что в обоих типах кристаллов при используемых интенсивностях возбуждения люминесценции доминирует линейная объемная рекомбинация избыточных электронов (их время жизни  $\tau_{n1}$  в исходных кристаллах ПИН GaAs и  $\tau_{n2}$  в легированных медью кристаллах  $p$ -GaAs) и дырок (их время жизни  $\tau_{p1}$  в исходных кристаллах ПИН GaAs и  $\tau_{p2}$  в легированных медью кристаллах  $p$ -GaAs), т.е. величины  $\tau_{n1}$ ,  $\tau_{n2}$ ,  $\tau_{p1}$  и  $\tau_{p2}$ , а также длины диффузии электронно-дырочных пар  $l_{d1}$  в исходных кристаллах ПИН GaAs и  $l_{d2}$  в легированных медью кристаллах не зависят от интенсивности



**Рис. 1.** Схематические (вытекающие из соотношений (5) и (6)) зависимости интенсивностей собственной люминесценции от интенсивности возбуждения в исходных кристаллах ПИН GaAs  $I_1$  (1) и полученных после диффузии в них атомов меди  $I_2$  (2) при различных соотношениях между их рекомбинационными параметрами —  $\tau_{n2}\tau_{p2}/l_{d2} < \tau_{n1}\tau_{p1}/l_{d1}$  (a),  $\tau_{n2}\tau_{p2}/l_{d2} = \tau_{n1}\tau_{p1}/l_{d1}$  (b) и  $\tau_{n2}\tau_{p2}/l_{d2} > \tau_{n1}\tau_{p1}/l_{d1}$  (c).

возбуждения люминесценции  $L$ .<sup>1</sup> Также предположим, что люминесценция возбуждается сильно поглощаемым излучением (коэффициент поглощения света  $k$  значительно больше  $1/l_d$ ).<sup>2</sup> В этом случае распределение концентраций избыточных электронов и дырок задается соотношениями [6]

$$\delta n(y) = \delta n(0) \exp(-y/l_d), \quad (3)$$

$$\delta p(y) = \delta p(0) \exp(-y/l_d), \quad (4)$$

где  $\delta n(0) = L\tau_n/l_d$  и  $\delta p(0) = L\tau_p/l_d$  — величины  $\delta n$  и  $\delta p$  при  $y = 0$ .

Тогда, как следует из уравнений (1)–(4), интенсивности собственной люминесценции в исходных кристаллах ПИН GaAs и после диффузии в них меди определяются соотношениями (очевидно,  $I_1, I_2 \ll L$ ):

$$I_1 = \frac{c}{2l_{d1}} \tau_{n1} \tau_{p1} L^2, \quad (5)$$

$$I_2 = c p_0 L \tau_{n2} \left( 1 + \frac{L \tau_{p2}}{2 p_0 l_{d2}} \right) \quad (6)$$

[ $I_2 = c p_0 L \tau_{n2}$  при  $L \ll L_2 = 2 p_0 l_{d2} / \tau_{p2}$ , т.е.  $\delta p_2(0) = L_2 \tau_{p2} / l_{d2} \ll 2 p_0$ , и  $I_2 = c \tau_{n2} \tau_{p2} L^2 / 2 l_{d2}$  при  $L \gg L_2$ , т.е.  $\delta p_2(0) \gg 2 p_0$ ; очевидно, точка перегиба зависимости  $I_2(L)$  наблюдается при  $L = L_2$ , т.е.  $\delta p_2(0) = 2 p_0$ ].

<sup>1</sup> Отмеченное имеет место, если время жизни избыточных носителей тока определяется скоростью их рекомбинации через локальные центры, заполнение которых мало изменяется при возбуждении, т.е. времена жизни неосновных носителей тока относительно их рекомбинации на локальных центрах существенно ниже времени жизни электронов и дырок относительно их прямой излучательной рекомбинации  $\tau = 1/c(p_0 + \delta p)$ .

<sup>2</sup> Приведенные далее выражения для  $\delta n$ ,  $\delta p$ ,  $I_1$  и  $I_2$  легко обобщаются на случай любых соотношений между  $k$  и  $1/l_d$  [6]. Так, в частности, при использовании для возбуждения люминесценции слабо поглощаемого излучения ( $k \ll 1/l_d$ ) приведенные далее соотношения для  $\delta n$ ,  $\delta p$ ,  $I_1$  и  $I_2$  справедливы, если в них заменить  $1/l_d$  на  $k$ .

На рис. 1 схематически показаны вытекающие из выражений (5) и (6) зависимости  $I_1, I_2 = \varphi(L)$  при различных соотношениях между рекомбинационными параметрами исходных кристаллов ПИН GaAs ( $\tau_{n1}, \tau_{p1}, l_{d1}$ ) и полученных после диффузии в них меди кристаллах  $p$ -GaAs ( $\tau_{n2}, \tau_{p2}, l_{d2}$ ). Как видно, в зависимости от соотношения между рекомбинационными параметрами исследуемых кристаллов (а именно, между величинами  $\tau_{n1}\tau_{p1}/l_{d1}$  и  $\tau_{n2}\tau_{p2}/l_{d2}$ ),<sup>3</sup> а также используемой интенсивности возбуждения люминесценции на опыте после введения меди в кристаллы ПИН GaAs может наблюдаться как понижение ( $I_2 < I_1$ ), так и повышение интенсивности собственной люминесценции ( $I_2 > I_1$ ), т.е. величина и знак рассматриваемого эффекта зависят не только от индуцированных медью изменений величин  $\tau_n, \tau_p$  и  $l_d$ , но и от скорости генерации электронно-дырочных пар  $L$  (последнее является следствием различной зависимости интенсивностей  $I_1$  и  $I_2$  от  $L$ , а именно  $I_1 \sim L^2$  при любых  $L$ , а  $I_2 \sim L$  при  $L \ll L_2$  и  $I_2 \sim L^2$  при  $L \gg L_2$ ). Действительно, как следует из соотношений (5), (6), при возбуждении люминесценции сильно поглощаемым светом:

1)  $I_2 > I_1$  при  $L < L_1 = 2(\tau_{n2}/\tau_{n1})p_0l_{d1}/\tau_{p1}$ ,  $I_2 = I_1$  при  $L = L_1$  и  $I_2 < I_1$  при  $L > L_1$ , если  $\tau_{n2}\tau_{p2}/l_{d2} < \tau_{n1}\tau_{p1}/l_{d1}$  (см. рис. 1, a);

2)  $I_2 > I_1$  при  $L < L_2$  и  $I_2 = I_1$  при  $L \geq L_2$ , если  $\tau_{n2}\tau_{p2}/l_{d2} = \tau_{n1}\tau_{p1}/l_{d1}$  (см. рис. 1, b);

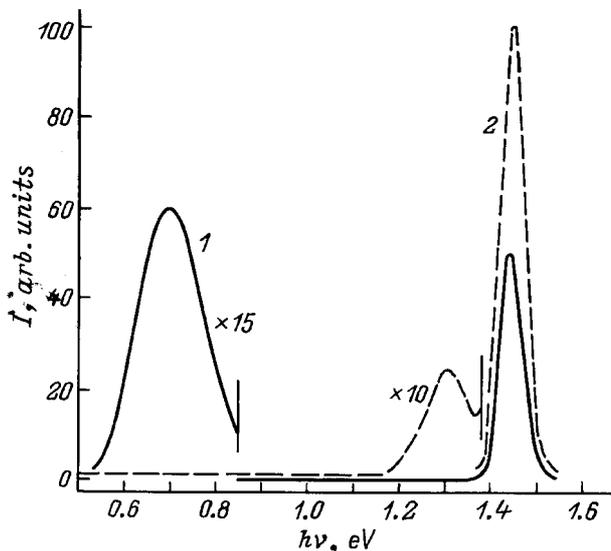
3)  $I_2 > I_1$  при любых  $L$ , если  $\tau_{n2}\tau_{p2}/l_{d2} > \tau_{p1}\tau_{n1}/l_{d1}$  (см. рис. 1, c).

Полученные соотношения (5) и (6) в принципе могут быть использованы для выяснения причин, приводящих к наблюдаемым в [1,2] изменениям интенсивности собственной люминесценции (увеличению в [1] и увеличению и уменьшению в [2]) после диффузии меди в кристаллы ПИН GaAs (т.е. роли в этом эффекте индуцированных медью изменений величин  $\tau_n, \tau_p$  и  $l_d$ ). Однако отсутствие в указанных работах данных о величинах  $\tau_n, \tau_p$  и  $l_d$  в исследуемых кристаллах, а также о величине интенсивности возбуждения люминесценции делает невозможным использование соотношений (5) и (6) для количественного анализа приведенных в [1,2] данных, хотя и качественно они следуют из показанных на рис. 1 возможных соотношений между величинами  $I_1$  и  $I_2$  (возможно, как  $I_2 > I_1$ , так и  $I_2 < I_1$ ). Поэтому далее мы приведем результаты об индуцированных медью изменениях интенсивности собственной люминесценции для кристаллов, рекомбинационные параметры которых  $\tau_n, \tau_p, l_d$  и скорость возбуждения электронно-дырочных пар  $L$  в них известны. Это позволит провести количественные оценки эффекта и установить основные причины изменений интенсивности собственной люминесценции при диффузии меди в кристаллы ПИН GaAs.

<sup>3</sup> При использовании для возбуждения люминесценции слабо поглощаемого излучения ( $k \ll 1/l_d$ ) при последующем анализе соотношений между величинами  $I_1$  и  $I_2$  необходимо рассматривать соотношение между величинами  $\tau_{n1}\tau_{p1}$  и  $\tau_{n2}\tau_{p2}$  (см. выше).

### 3. Методика

Исходными для опытов являлись кристаллы ПИН GaAs (удельное сопротивление  $\rho = 2 \cdot 10^8 \text{ Ом} \cdot \text{см}$  при  $T = 300 \text{ К}$  и увеличивается при понижении температуры,  $\rho(T) \sim \exp(0.75 \text{ эВ}/kT)$ ). Их проводимость определялась ионизацией дефектов  $EL2$  (их концентрация  $N_{EL2} = 1.6 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ , энергетическое положение создаваемых ими уровней  $\varepsilon_{EL2} = 0.75 \text{ эВ}$ ), частично скомпенсированных мелким акцептором углеродом (его концентрация  $N_C \simeq 3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3} < N_{EL2}$ ). Детально свойства исходных кристаллов ПИН GaAs описаны в [5].



**Рис. 2.** Типичный вид спектров фотолюминесценции исходных кристаллов ПИН GaAs (1) и полученных после диффузии в них меди (2) при 300 К и  $L = 3 \cdot 10^{22} \text{ кв/см}^2 \cdot \text{с}$ .

Атомы меди в кристаллы ПИН GaAs вводились путем диффузии при  $750^\circ\text{C}$ , 4.5 ч (их концентрация  $N_{\text{Cu}} \simeq 1 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ). Вследствие пассивации дефектов  $EL2$  атомами меди в легированных медью кристаллах концентрация дефектов  $EL2$  была значительно ниже концентрации атомов углерода ( $N_{EL2} < 1.5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3} = N_C/2$ ) [5]. Поэтому проводимость диффузионно легированных медью кристаллов определялась термической ионизацией атомов углерода и меди была достаточно велика ( $\rho = 0.8-0.24 \text{ Ом} \cdot \text{см}$  при  $T = 77-300 \text{ К}$ ) и носила дырочный характер (концентрация равновесных дырок в них  $p_0 \simeq 3 \cdot 10^{15}-8 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$  при  $T = 77-300 \text{ К}$ ). Детально свойства кристаллов, полученных после введения меди в ПИН GaAs, описаны в [5].

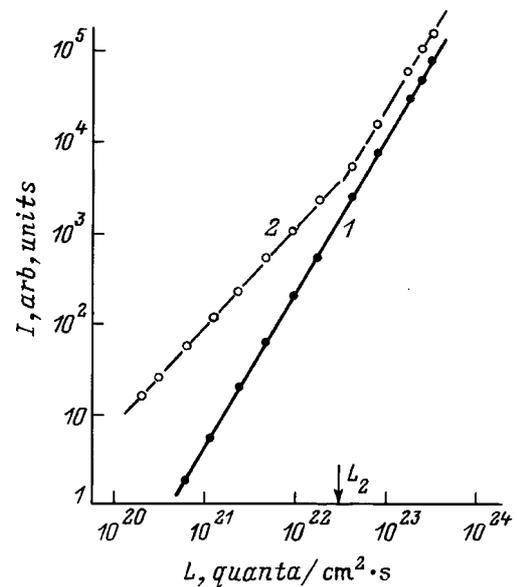
Исследовалась при 300 К и различных уровнях возбуждения собственная люминесценция исходных и легированных медью кристаллов арсенида галлия. Люминесценция возбуждалась сильно поглощаемым излучением He-Ne-лазера (энергия квантов  $h\nu' = 1.96 \text{ эВ}$ , коэффициент поглощения  $k = 4 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$ , интенсивность возбуждения  $L = 10^{18}-10^{22} \text{ кв/см}^2 \cdot \text{с}$ ) и руби-

нового лазера ( $h\nu' = 1.79 \text{ эВ}$ ,  $k = 3.4 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$ ,  $L = 10^{22}-10^{24} \text{ кв/см}^2 \cdot \text{с}$ ). Протяженность области свечения арсенида галлия определялась длиной диффузии избыточных носителей тока  $l_d$  [величина  $l_d \simeq 10^{-4} \text{ см}$  превышала длину генерации электронно-дырочных пар излучением  $1/k \simeq (0.25-0.3) \cdot 10^{-4} \text{ см}$  и была существенно ниже толщины кристалла  $d$  ( $l_d, 1/k \ll d$ )].

При используемых уровнях возбуждения интенсивность собственной люминесценции была значительно меньше интенсивности возбуждения, т.е.  $I_1, I_2 \ll L$ . Типичный вид спектров люминесценции исходных и легированных медью кристаллов (в них, помимо полосы собственного излучения в положении максимума  $h\nu_m = 1.44 \text{ эВ}$ , также наблюдаются обусловленные дефектами  $EL2$  и атомами меди полосы люминесценции с  $h\nu_m \simeq 0.7$  и  $1.30 \text{ эВ}$  соответственно) показан на рис. 2. Их подробный анализ, в частности индуцированное Cu гашение обусловленной дефектами  $EL2$  люминесценции, детально проведен в [5].

### 4. Изменение интенсивности собственной люминесценции после диффузии меди в кристаллы ПИН GaAs (эксперимент)

На рис. 3 приведены экспериментальные зависимости интенсивностей собственной люминесценции от уровня возбуждения в исходных кристаллах ПИН GaAs и полученных после диффузии в них меди. Как видно, введение меди приводит при любых уровнях возбуждения к повышению интенсивности собственной люминесценции, т.е.  $I_2 > I_1$  при любых  $L$ . Из анализа приведенных



**Рис. 3.** Зависимости интенсивностей собственной люминесценции в исходных кристаллах ПИН GaAs  $I_1$  (1) и полученных после диффузии в них меди  $I_2$  (2) от интенсивности возбуждения  $L$  при 300 К.

экспериментальных зависимостей (см. соотношения (5) и (6), а также рис. 1, *c*) следует, что между рекомбинационными параметрами исходных кристаллов ПИН GaAs и полученных после диффузии в них атомов меди реализуется соотношение  $\tau_{n2}\tau_{p2}/l_{d2} > \tau_{n1}\tau_{p1}/l_{d1}$ . Указанное соотношение действительно выполняется в наших экспериментах (это имеет место за счет индуцированного Cu увеличения величины  $\tau_p$  при неизменных величинах  $\tau_n$  и  $l_d$ , ибо, как показывают прямые измерения при 300 К рекомбинационных параметров исходных и легированных медью кристаллов, в них (в частности, при  $L = 3 \cdot 10^{22}$  кв/см<sup>2</sup> · с)  $\tau_{n1} \simeq \tau_{n2} \simeq 10^{-10}$  с,  $\tau_{p1} \simeq 1.6 \cdot 10^{-10}$  с,  $\tau_{p2} \simeq 5 \cdot 10^{-10}$  с и  $l_{d1} \simeq l_{d2} \simeq 10^{-4}$  см (о методике измерений  $\tau_n$ ,  $\tau_p$  и  $l_d$  см. [7]).<sup>4</sup>

## 5. Заключение

Наблюдаемое после введения меди в полуизолирующие нелегированные кристаллы арсенида галлия при любых уровнях возбуждения повышение интенсивности собственной люминесценции обусловлено индуцированным Cu увеличением времени жизни свободных дырок. Величина и знак эффекта удовлетворительно описываются теоретическими соотношениями, учитывающими зависимость интенсивности излучательной рекомбинации свободных электронов и дырок от скорости их генерации  $L$  и их времен жизни  $\tau_n$ ,  $\tau_p$ .

## Список литературы

- [1] С.Е. Third, F. Weinberg, L. Young, M. Thewalt. Appl. Phys. Lett., **58**, 714 (1991).
- [2] U. Jahn, H. Menniger. Phys. St. Sol. A, **128**, 145 (1991).
- [3] К.Д. Глинчук, В.И. Гурошев, А.В. Прохорович. Оптоэлектрон. и полупроводн. техн., **24**, 66 (1992).
- [4] W.J. Moore, R.J. Henry, J.S. Blakemore. Phys. Rev. B, **46**, 7229 (1992).
- [5] Ф.М. Воробкало, К.Д. Глинчук, А.В. Прохорович. ФТП, **31**, 1045 (1997).
- [6] Г.Е. Пикус. *Основы теории полупроводниковых приборов* (М., 1965).
- [7] Н.М. Литовченко, Л.Г. Шепель. Оптоэлектрон. и полупроводн. техн., **29**, 108 (1995).

Редактор В.В. Чалдышев

<sup>4</sup> На опыте наблюдается относительно слабая нелинейность рекомбинации избыточных электронов и дырок, т.е. сравнительно слабые зависимости  $\tau_n$ ,  $\tau_p$  и  $l_d$  от  $L$  (в частности,  $\tau_{n1}$ ,  $\tau_{p1} \sim L^{-0.25}$ ). Отмеченное приводит к тому, что полученный нами вид экспериментальных зависимостей  $I_1$ ,  $I_2 = \varphi(L)$  несколько отличается от рассмотренного выше теоретического вида (см. соотношения (5) и (6)). На опыте (см. рис. 3)  $I_1 \sim L^{1.6}$  при любых  $L$ , а  $I_2 \sim L^{1.1}$  при  $L < 3 \cdot 10^{22}$  кв/см<sup>2</sup> · с и  $I_2 \sim L^{1.6}$  при  $L > 3 \cdot 10^{22}$  кв/см<sup>2</sup> · с. Точка перегиба зависимости  $I_2(L)$ , как ожидалось, наблюдается при  $L = L_2 = 2p_0l_{d2}/\tau_{p2} = 3 \cdot 10^{22}$  кв/см<sup>2</sup> · с (см. рис. 3), т.е. при  $\delta p_2(0) = L_2\tau_{p2}/l_{d2} = 1.5 \cdot 10^{17}$  см<sup>-3</sup> =  $2p_0$ .

## Analysis of changes in the intensity of an intrinsic luminescence after copper diffusion into semi-insulating undoped gallium arsenide crystals

F.M. Vorobkalo, K.D. Glinchuk, A.V. Prokhorovich

Institute of Semiconductor Physics,  
National Academy of Sciences of Ukraine,  
252028 Kiev, the Ukraine

**Abstract** An analysis is made of the effect of copper diffusion into semi-insulating undoped GaAs crystals on the intensity of intrinsic luminescence. It is shown that the copper diffusion into semi-insulating undoped GaAs crystals can lead both to an increase and a decrease in the intrinsic luminescence intensity. Obtained are analytical expressions relating the value and sign of the effect observed to recombination parameters of the crystals and the intensity of the luminescence excitation.

E-mail: class@class.semicond.kiev.ua (K.D.Glinchuk)