

## Донорно-акцепторная рекомбинация в короткопериодных сверхрешетках GaAs/AlAs, легированных кремнием

© И.И. Решина, Р. Планель\*

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

\*Центр национальных научных исследований, Лаборатория микроструктур и микроэлектроники,  
92225 Багню, Франция

(Получена 23 декабря 1997 г. Принята к печати 24 декабря 1997 г.)

В спектрах фотолюминесценции короткопериодных сверхрешеток GaAs/AlAs, легированных кремнием в барьерах или в ямах и барьерах, наряду с экситонной полосой обнаружена низкочастотная полоса, которую мы интерпретируем как донорно-акцепторную рекомбинацию на основании зависимости ее частоты от интенсивности возбуждающего света при непрерывном возбуждении и от времени задержки при импульсном возбуждении. Исследование проводилось в основном на структурах типа II. Из энергии максимума донорно-акцепторной полосы при очень малой интенсивности возбуждения можно оценить, что  $E_A + E_D \approx 120$  мэВ. Оценка по температурной зависимости интенсивности дает  $E_A \approx 23$  мэВ,  $E_D \approx 90$  мэВ. Высказана гипотеза, что глубокий донорный уровень является DX-центром в слоях AlAs.

В узких сверхрешетках GaAs/AlAs второго типа, легированных кремнием, мы наблюдали наряду с полосами люминесценции прямого и непрямого экситонов более низкочастотную полосу люминесценции. Специфические свойства этой полосы позволяют думать, что она связана с донорно-акцепторной рекомбинацией с участием глубоких центров.

С другой стороны, известно, что в подобных сверхрешетках легирование кремнием приводит к образованию так называемых DX-центров — глубоких донорных центров, сопровождающихся сильной релаксацией решетки и явлением сохраняющейся (persistent) фотопроводимости при низких температурах [1,2]. Представляется заманчивым связать наблюдаемую нами люминесценцию с DX-центрами, а также сравнить свойства донорно-акцепторной рекомбинации в структурах GaAs/AlAs типа I и II.

### Образцы и методика эксперимента

Сверхрешетки GaAs/AlAs (35J22) с номинальной шириной ям 2 нм и барьеров 1.1 нм и с числом периодов равным 290 были получены методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Рост производился без вращения, и поэтому в выращенных больших образцах толщины ям и барьеров варьировали по площади образца. Это позволило получить набор образцов с несколько различными толщинами ям и барьеров. Большинство образцов относились ко второму типу, в котором наименьшая электронная зона с симметрией  $X_z$  расположена в слоях AlAs, а валентная зона с симметрией  $\Gamma$  расположена в слоях GaAs. Энергетический зазор между  $\Gamma$ - и  $X_z$ -минимумами менялся по площади исходного образца. Образец 35J22 был однородно легирован кремнием до концентрации электронов  $3.3 \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$  на период при комнатной температуре. Был также получен набор образцов JA-15 с числом периодов равным 100, селективно легированных кремнием в барьерах (однако не исключена диффузия

кремния в процессе роста в слой GaAs). Слоевая концентрация электронов при комнатной температуре составляла  $3.9 \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$  на период. Образец, выколотый с края исходного образца JA-15, относился к типу I, но близкому к типу II.

Спектры люминесценции при температурах от 4.2 до 250 К регистрировались на дифракционных спектрометрах с двойным монохроматором ДФС-24 или U-1000 (Жобен-Ивон). Возбуждение осуществлялось лазерами непрерывного действия  $\text{Ar}^+$  (2.41 эВ) и He-Ne (1.96 эВ). Производились также измерения с временным разрешением при возбуждении азотным лазером (3.69 эВ) с длительностью импульса 10 нс.

### Экспериментальные результаты и обсуждение

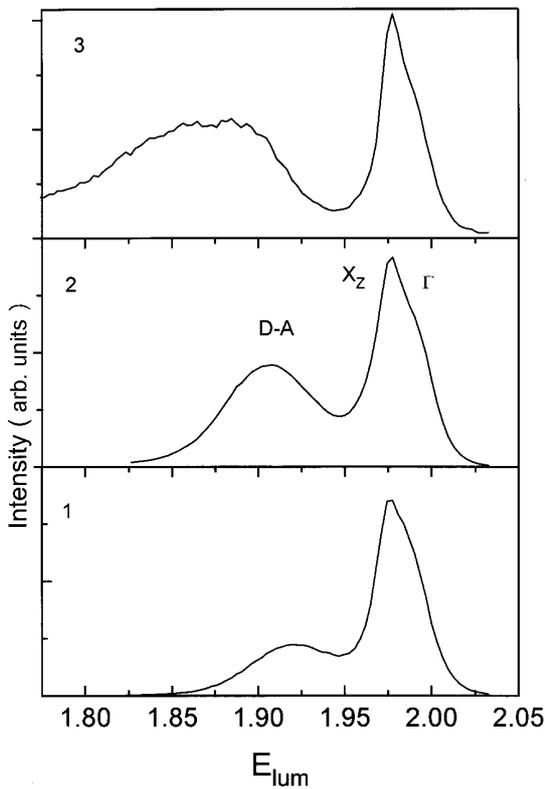
Большинство измерений, приведенных далее, проводилось на одном из образцов типа II 35J22.

На рис. 1 представлен его спектр люминесценции при  $T = 77$  К и различных интенсивностях возбуждения. Интенсивный пик соответствует непрямому  $X_z$ -экситону. Небольшой горб на высокочастотной стороне этого пика соответствует прямому  $\Gamma$ -экситону. Низкочастотная полоса (далее обозначенная как D-A-полоса) связана предположительно с донорно-акцепторной рекомбинацией. Далее изложены основания для такой интерпретации.

Частота максимума D-A-полосы, как видно из рис. 1, сильно зависит от интенсивности возбуждения. При уменьшении интенсивности возбуждающего света примерно на 4 порядка полоса смещается к низким энергиям на 49 мэВ (рис. 2) и сильно уширяется. Такое поведение характерно для D-A-люминесценции. Энергия D-A-полосы определяется известным выражением [3]:

$$E = E_G - (E_A + E_D) + \frac{e^2}{\epsilon r}, \quad (1)$$

где  $E_A$  и  $E_D$  — энергии ионизации акцепторов и доноров,  $r$  — расстояние между донором и акцептором в паре,



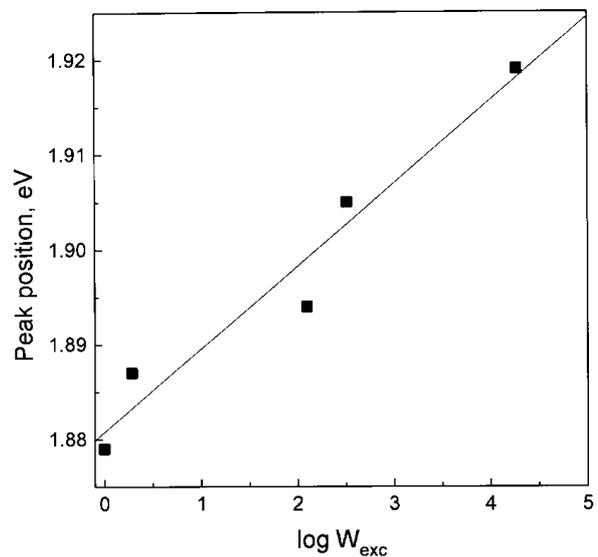
**Рис. 1.** Спектры люминесценции сверхрешеток типа II GaAs/AlAs, легированных кремнием, при различной интенсивности возбуждения  $P$ , Вт/см<sup>2</sup>: 1 —  $8.5 \cdot 10^2$ , 2 — 1.5, 3 —  $4.5 \cdot 10^{-2}$ . Образец 35J22,  $E_{\text{exc}} = 2.41$  эВ,  $T = 77$  К.

$\varepsilon$  — диэлектрическая постоянная. При увеличении интенсивности возбуждения происходит насыщение люминесценции далеких пар, поскольку для них характерна меньшая вероятность рекомбинации, чем для близких пар, и соответственно происходит сдвиг  $D$ – $A$ -полосы к высоким энергиям [4]. Столь большая величина сдвига в нашем случае по сравнению со сдвигом 4 мэВ, который наблюдался для  $D$ – $A$ -полосы в GaAs [5], может быть связана с тем фактом, что мы имеем дело с непрямым материалом (сверхрешетка типа II). В непрямом полупроводнике GaP наблюдался значительно больший сдвиг  $D$ – $A$ -полосы, чем в GaAs (примерно 15 мэВ при изменении интенсивности на 4 порядка [4]). Меньшая вероятность перехода в непрямах полупроводниках облегчает насыщение далеких пар, что и приводит к большей величине сдвига [3].<sup>1</sup>

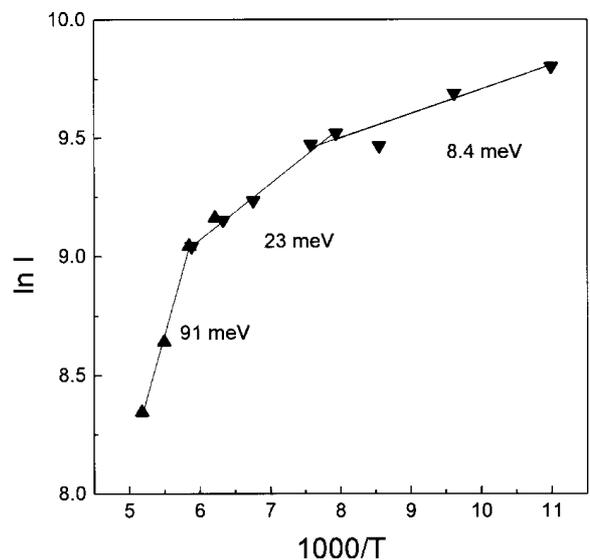
Из энергии максимума  $D$ – $A$ -полосы при очень малой интенсивности возбуждения, пренебрегая кулоновским членом в выражении (1), можно оценить, что  $E_A + E_D \approx 120$  мэВ.

<sup>1</sup> Следует, однако, отметить, что в одном из образцов JA-15, относящемуся к типу I, наблюдалась такая же скорость сдвига  $D$ – $A$ -полосы, правда, в меньшем динамическом диапазоне интенсивностей возбуждения. При больших интенсивностях возбуждения измерения были невозможны, так как  $D$ – $A$ -полоса маскировалась очень интенсивной полосой прямого экситона.

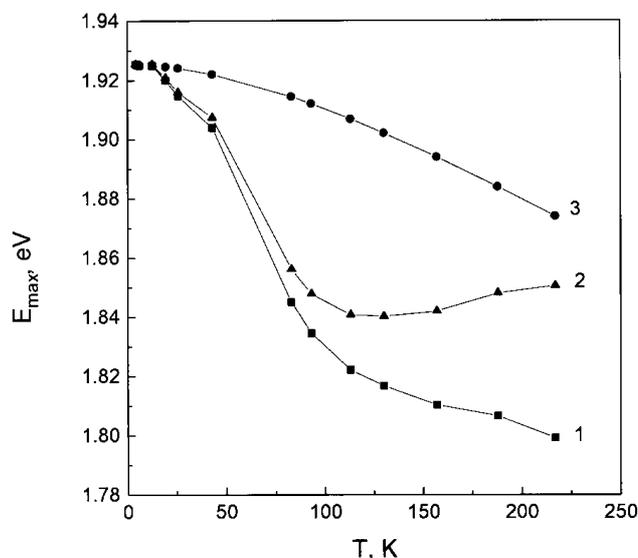
Были также проведены измерения зависимости интенсивности  $D$ – $A$ -полосы и частоты ее максимума от температуры. На рис. 3 представлена зависимость логарифма максимума интенсивности от обратной температуры. Температурная зависимость может быть аппроксимирована тремя линейными участками, наклон которых дает энергию активации в данной температурной области. В наиболее высокотемпературной области наклон равен 90 мэВ, в промежуточной области  $\approx 23$  мэВ и в низкотемпературной области  $\approx 8$  мэВ. Мы связываем наклон 23 мэВ с энергией ионизации акцепторов, наклон 90 мэВ с энергией активации глубокого донора, а наклон 8 мэВ с энергией ионизации мелкого донора. Сум-



**Рис. 2.** Зависимость энергии максимума  $D$ – $A$ -полосы от логарифма интенсивности возбуждения. Образец 35J22,  $E_{\text{exc}} = 2.41$  эВ,  $T = 77$  К.



**Рис. 3.** Температурная зависимость интенсивности максимума  $D$ – $A$ -полосы. Образец 35J22,  $E_{\text{exc}} = 1.96$  эВ,  $P = 50$  Вт/см<sup>2</sup>.



**Рис. 4.** Температурная зависимость энергии максимума  $D-A$ -полосы. 1 — измеренные значения, 2 — значения, исправленные на температурную зависимость ширины зоны  $X_z$ , 3 — расчетная температурная зависимость ширины зоны  $X_z$ . Образец 35J22,  $E_{exc} = 1.96$  эВ,  $P = 17$  Вт/см<sup>2</sup>.

ма 90 мэВ + 23 мэВ = 113 мэВ согласуется с величиной  $E_A + E_D \approx 120$  мэВ, найденной из частоты максимума полосы при минимальной интенсивности возбуждения. Уменьшение интенсивности полосы при повышении температуры можно, по-видимому, объяснить ионизацией акцепторов и доноров в паре и последующей безызлучательной рекомбинацией.

На рис. 4 представлена температурная зависимость энергии максимума. Приведены как измеренные значения, так и значения, исправленные на температурную зависимость  $X$ -экстремума в AlAs с помощью формулы Варшни [6]:

$$E_z(T) = E_z(0) - \alpha_z T^2 / (T + \beta_z), \quad (2)$$

где  $\alpha_z = 4.60 \times 10^{-4}$  эВ/К,  $\beta_z = 204$  К [7].

Обращает на себя внимание сильный сдвиг к низким энергиям в интервале от 40 до 80 К. Затем он прекращается и в области 110–220 К сменяется слабым сдвигом к высоким энергиям. Сдвиг максимума  $D-A$ -полосы к низким энергиям может быть связан с более быстрой ионизацией близких пар при повышении температуры, так как энергии ионизации у них меньше за счет кулоновского взаимодействия.

Спектр с дискретной структурой, который характерен для близко расположенных пар и наблюдался в ряде объемных полупроводников, например в GaP [7], в нашем случае не наблюдался. При отсутствии такого спектра свидетельство о донорно-акцепторной природе исследуемой полосы могут дать измерения люминесценции с временным разрешением [3]. Измерения такого рода были произведены нами при возбуждении импульсным

азотным лазером. При этом вследствие большой интенсивности возбуждения в импульсе  $D-A$ -полоса сдвинута к высоким энергиям и перекрывается с сильной экситонной полосой. Разделение спектра на полосы непрямого и прямого экситона и  $D-A$ -полосу показывает, что при задержке 500 нс максимум  $D-A$ -полосы смещен на 12 мэВ к низким энергиям по сравнению с ее положением при нулевой задержке. Как уже отмечалось, близко расположенные пары, которым соответствует более высокая энергия люминесценции, имеют более высокую вероятность рекомбинации, и поэтому при больших задержках спектр определяется люминесценцией далеких пар, и происходит сдвиг к низким энергиям. Интенсивность  $D-A$ -полосы по отношению к интенсивности непрямого экситона возрастает при увеличении времени задержки, что может происходить, если ее время жизни больше, чем у непрямого экситона.

Приведенные результаты зависимости энергии максимума  $D-A$ -полосы от интенсивности возбуждающего света и от времени задержки при импульсных измерениях дают достаточно оснований, чтобы интерпретировать ее как донорно-акцепторную рекомбинацию в сверхрешетке типа II.

Возникает вопрос о природе центров, образующих донорно-акцепторную пару. Как известно, кремний является амфотерной примесью и может в зависимости от концентрации приводить к созданию как доноров, так и акцепторов водородоподобного типа [8]. Однако большая величина  $E_A + E_D \approx 120$  мэВ, найденная как из спектра, так и из измерений температурной зависимости интенсивности, свидетельствует о том, что один из партнеров в паре является примесью с энергией ионизации примерно 90 мэВ.

Известно, что во многих полупроводниках (например, AlGaAs) легирование кремнием приводит к образованию так называемых  $DX$ -центров — глубоких донорных центров, вызывающих сильную релаксацию решетки и связанных с явлением сохраняющейся фотопроводимости при низких температурах [9]. Подобные  $DX$ -центры были обнаружены также в узких сверхрешетках GaAs/AlAs типа II [1,2]. В этих структурах могут существовать два типа таких центров  $DX_0$  в слоях GaAs (Si в окружении Ga) и  $DX_3$  в слоях AlAs (Si в окружении Al). В работе [1] из холловских измерений в сверхрешетке GaAs/AlAs 2.3/1.4 нм (т. е. с ширинами слоев близкими к исследованной нами сверхрешетке) были найдены положения  $DX_0$  и  $DX_3$  относительно дна  $X_z$ -зоны. Положение  $DX_3$  оценивалось равным 86 мэВ, что очень близко к значению 90 мэВ, найденному нами по температурной зависимости интенсивности  $D-A$ -полосы. В этой связи уместно предположить, что роль глубокого донора в паре играет  $DX_3$ -центр, т. е. донорно-акцепторная рекомбинация в узких сверхрешетках типа II обусловлена глубоким донорным центром, расположенным в слоях AlAs, и водородоподобным акцептором в слоях GaAs (вероятнее всего, также связанным с Si), т. е. взаимодействие осуществляется через интерфейс. Возможно поэтому, несмотря на большие энергии ионизации, не наблюдался линейчатый спектр, характерный для  $D-A$ -рекомбинации

очень близко расположенных пар. Заметим также, что в этом случае получает подкрепление модель  $DX$ -центра с двумя электронами и отрицательной корреляционной энергией [9]. Действительно, поскольку спектры регистрируются при постоянном воздействии света, можно думать, что в условиях освещения остается центр с одним электроном.

Такие же результаты наблюдались в сверхрешетках типа II, легированных только в слоях AlAs (JA-15). Отметим, что и в образце типа I (но близком к типу II) также наблюдалась  $D-A$ -полоса, обусловленная глубоким донором.

Совсем другой вид имела донорно-акцепторная рекомбинация в структуре с квантовыми ямами GaAs/AlAs типа I, 4/10 нм, легированной Si в ямах с концентрацией  $\sim 2 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$  [10]. При гелиевых температурах наблюдалась полоса, сдвинутая от экситонной полосы на 24.5 мэВ к низким энергиям. Эта полоса приписана донорно-акцепторной рекомбинации с  $E_A + E_D$  равным 39 мэВ. При увеличении накачки от 5 до 80 мВт полоса смещалась к высоким энергиям на 5 мэВ. При повышении температуры интенсивность донорно-акцепторной полосы быстро уменьшалась и при 40 К она уже не наблюдалась. Это свидетельствует о том, что рекомбинация связана с мелкими донорами Si. Акцепторы, по-видимому, также связаны с Si, так как интенсивность полосы сильно увеличивалась в области концентрации, в которой Si образует как доноры, так и акцепторы.

## Заключение

В спектрах люминесценции короткопериодных сверхрешеток GaAs/AlAs, легированных кремнием, обнаружена низкочастотная полоса, которую мы интерпретируем как донорно-акцепторную рекомбинацию на основании зависимости ее частоты от интенсивности возбуждающего света при непрерывном возбуждении и от времени задержки при импульсном возбуждении. Эта полоса связана с глубоким донорным центром, которым предположительно является  $DX$ -центр в слоях AlAs.

Авторы благодарны А. Гуревичу за измерения с импульсным лазером.

## Список литературы

- [1] P. Sellitto, P. Jeanjean, J. Sicart, J.L. Robert, R. Planel. *J. Appl. Phys.*, **74**, 7166 (1993).
- [2] P. Sellitto, J. Sicart, J.L. Robert. *J. Appl. Phys.*, **75**, 7356 (1994).
- [3] E.W. Williams, H. Barry Bebb. In: *Semiconductors and semimetals* ed. by R.K. Willardson, A.C. Beer (N.Y., Academic Press) v. 8, p. 321.
- [4] K. Maeda. *J. Phys. Chem. Sol.*, **26**, 595 (1965).
- [5] R.C.C. Leite, A.E. DiGiovanni. *Phys. Rev.*, **153**, 841 (1967).
- [6] Y.P. Varshni. *Physica*, **34**, 149 (1967).
- [7] F. Williams. *Phys. St. Sol.*, **25**, 493 (1968).

[8] J.E. Northrup, S.B. Zhang. *Phys. Rev. B*, **47**, 6791 (1993).

[9] P.M. Mooney. *J. Appl. Phys.*, **67**, R1 (1990).

[10] В.Ф. Сапега (частное сообщение).

Редактор В.В. Чалдышев

## Donor-acceptor recombination in short-period GaAs/AlAs superlattices doped with Si

I.I. Reshina, R. Planel \*

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

\*Center National de la Recherche Scientifique,  
92225 Bagneux Cedex, France

**Abstract** A low-frequency band was observed alongside with an exciton band in photoluminescence spectra of short-period superlattices GaAs/AlAs doped with Si in the barriers or uniformly. This band is ascribed to donor-acceptor recombination on the ground of excitation intensity dependence of its frequency under CW-excitation and time-delay dependence under pulse excitation. The study was performed mainly on type II superlattices. The value  $E_A + E_D \approx 120 \text{ meV}$  was estimated from the peak energy of the donor-acceptor band under very weak excitation density. The values  $E_A \approx 23 \text{ meV}$  and  $E_D \approx 90 \text{ meV}$  were estimated from the temperature dependence of the band intensity. We propose that the deep donor level could be associated with the  $DX$ -center in the AlAs layers.