

Катодолуминесценция слабых растворов $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ ($x \leq 0.03$)

© П.Н. Брунков, А.А. Гуткин*, М.В. Заморянская, В.С. Хрусталев

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

(Получена 14 марта 2007 г. Принята к печати 28 марта 2007 г.)

В интервале энергий фотонов от края собственной полосы поглощения до 3 эВ при комнатной температуре измерена катодолуминесценция слоев $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ ($0 \leq x \leq 0.03$). В видимой области спектров катодолуминесценции обнаружена дополнительная полоса излучения, интенсивность которой более чем на 2 порядка ниже интенсивности краевого излучения. Энергия фотонов, отвечающая максимуму этой полосы, и ее полуширина практически не зависят от x и составляют соответственно ~ 2.1 и $0.6\text{--}0.7$ эВ. Это излучение связывается с непрямыми оптическими переходами электронов из L_{6c} - и Δ -минимумов зоны проводимости в Γ_{15} -максимум валентной зоны.

PACS: 78.60.Hk, 78.66.Fd

Как известно, уже небольшое содержание азота в твердых растворах $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ существенно изменяет электронную структуру материала, заметно уменьшая ширину запрещенной зоны по сравнению с таковой для GaAs, увеличивая эффективную массу у дна зоны проводимости, т. е. вблизи центра зоны Бриллюэна, и приводя к появлению в этой области дополнительных подзон с более высокой энергией [1–3]. Наряду с этим возможны и изменения высокоэнергетических состояний, соответствующих другим особым точкам зоны Бриллюэна [2].

Если время релаксации энергии носителей, находящихся в указанных состояниях, оказывается сравнимым с временем их излучательной рекомбинации, то изменения, происходящие с такими состояниями, можно детектировать, исследуя „горячую“ люминесценцию при генерации электронов и дырок в глубине соответствующих разрешенных зон.

В настоящей работе для этой цели использовалось исследование катодолуминесценции при облучении образцов пучком электронов с энергией 5–10 кэВ. Измерения проводились на электронно-зондовом микроанализаторе „Камебак“, снабженном двумя оптическими спектрометрами, регистрирующими катодолуминесцентное излучение в диапазонах 1.8–5.5 и 1.0–1.9 эВ [4]. Фотоприемниками служили фотоумножители ФЭУ 106 (в видимой и ультрафиолетовой областях спектра) и ФЭУ 83 (в инфракрасной области). Спектры катодолуминесценции исследовались при комнатной температуре. Интенсивность пучка электронов при измерениях обычно составляла 60 нА, а его диаметр был равен приблизительно 0.5 мкм.

Можно предположить, что небольшое количество азота в разбавленных растворах $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ мало меняет потери энергии первичных электронов по сравнению с таковыми в GaAs. Тогда согласно расчетам, проведенным на основании модели, рассмотренной в [5], торможение первичных электронов с энергией 5 и 10 кэВ (т. е. генерация носителей) в таких растворах происходит

в приповерхностном слое толщиной соответственно не более 0.2 и 0.6 мкм.

Кроме того, краевая люминесценция образцов (инфракрасная область спектра) измерялась и при возбуждении ее излучением аргонового лазера (энергия фотонов ~ 2.41 эВ, диаметр пучка около 100 мкм, мощность 60 мВт). В качестве фотоприемника в этом случае использовался охлаждаемый InGaAs-фотодиод.

Исследуемые слои $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ были выращены молекулярно-пучковой эпитаксией на подложке из GaAs при температуре 580°C и имели толщину 1.5 мкм. При этом в случае изготовления образцов с $x \leq 0.015$ на подложке сначала выращивался слой AlGaAs толщиной 25 нм, препятствующий диффузии неравновесных носителей в GaAs. В образце с $x = 0.03$ такой пленки не было. Наряду с $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ была исследована также катодолуминесценция GaAs, слои которого были изготовлены также молекулярно-пучковой эпитаксией. Один из таких слоев (GaAs1) специально не легировался, а другой (GaAs2) был легирован Ве и при комнатной температуре имел концентрацию дырок $3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$.

В спектрах катодолуминесценции и фотолюминесценции образцов наблюдался пик краевого излучения (рис. 1), изменение положения максимума которого с изменением содержания N соответствовало модели антипересечения зон (BAC–модель) [1] (рис. 2, а). При этом пик краевой катодолуминесценции находился при энергии фотонов на 0.01–0.04 эВ выше, чем соответствующий ему пик фотолюминесценции. Такое систематическое расхождение может быть вызвано большей плотностью неравновесных электронов, возбуждаемых при катодолуминесценции.

Кроме того, в области энергий фотонов 1.8–2.5 эВ во всех образцах наблюдалась дополнительная полоса катодолуминесценции (рис. 3), интенсивность которой была более чем на 2 порядка ниже интенсивности краевой полосы. Мы связываем основную часть излучения в этой полосе с непрямыми оптическими переходами электронов, находящихся вблизи L_{6c} - и Δ -минимумов зоны проводимости (области вблизи L - и X -точек зоны Бриллюэна) в область у вершины валентной зоны (переходы $L_{6c} - \Gamma_{15v}$ и $\Delta_{\text{min}} - \Gamma_{15v}$). Энергия этих переходов,

* E-mail: agut@detect.ioffe.ru

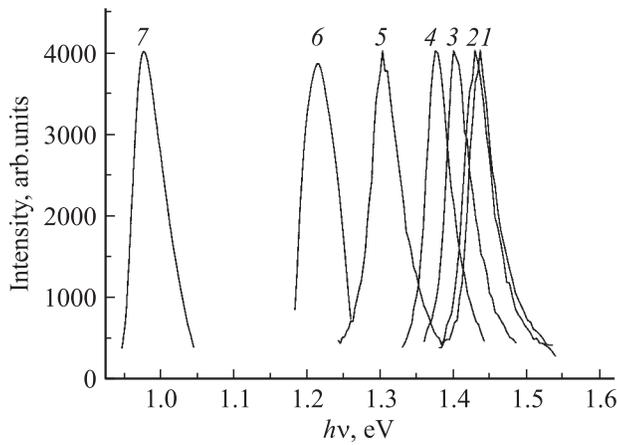


Рис. 1. Спектры краевой люминесценции слоев $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ с различным содержанием азота. Величина x : 1 — 0 (образец GaAs1), 2 — 0.0005, 3 — 0.001, 4 — 0.002, 5 — 0.007, 6 — 0.015, 7 — 0.03. 1–6 — катодоллюминесценция, 7 — фотоллюминесценция.

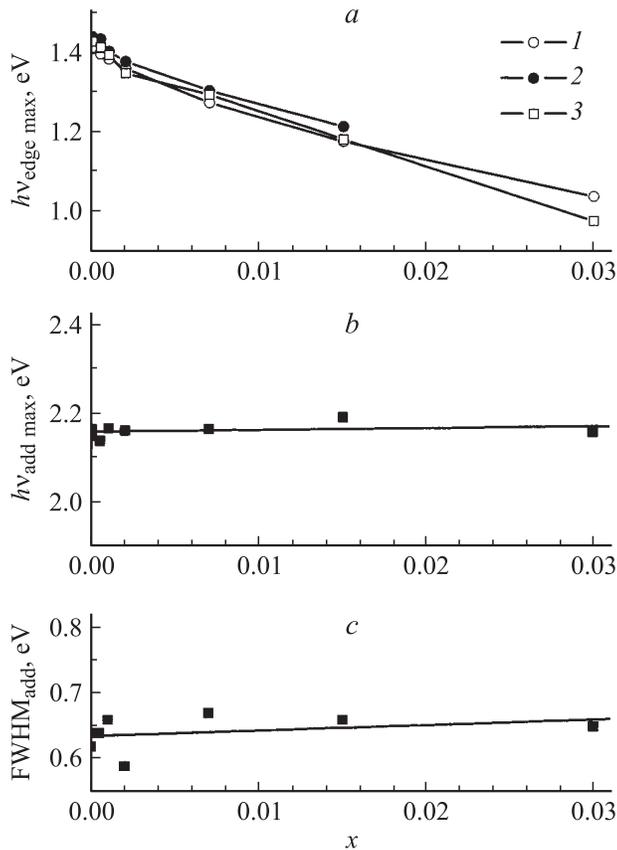


Рис. 2. Зависимость характеристик краевой (a) и дополнительной (b, c) полос излучения от содержания азота в слое $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$. 1 — положение пика краевой фотоллюминесценции, 2 — положение пика краевой катодоллюминесценции, 3 — ширина запрещенной зоны в ВАС-модели [1] при следующих значениях параметров: $E_g(\text{GaAs}) = 1.41$ эВ, $E_N = 1.65$ эВ, $C_{MN} = 2.7$ эВ (на рис. b и c при $x = 0$ приведены данные для образцов GaAs1 и GaAs2).

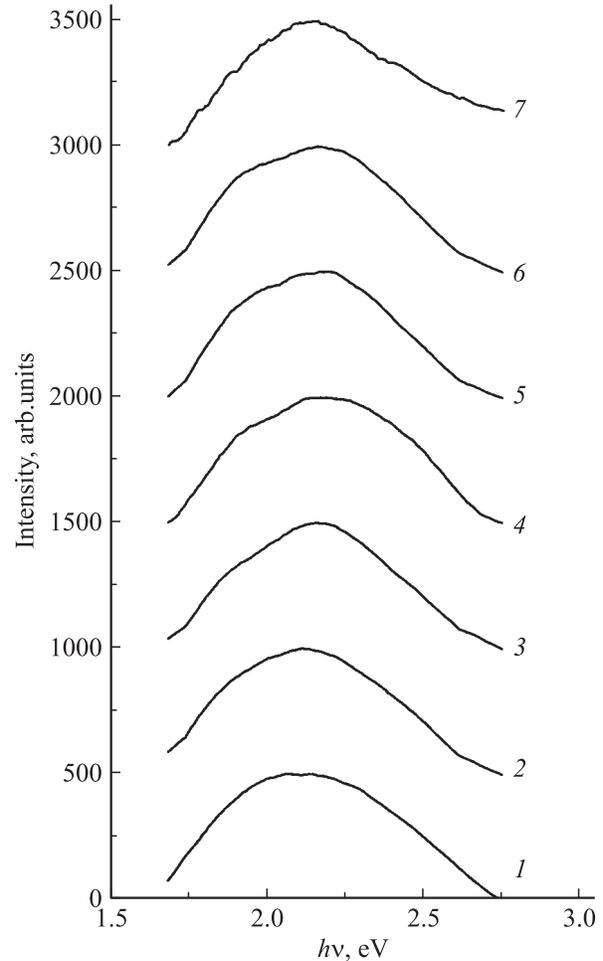


Рис. 3. Дополнительная полоса катодоллюминесценции слоев $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ с различным содержанием азота. Величина x : 1 — 0 (образец GaAs1), 2 — 0.0005, 3 — 0.001, 4 — 0.002, 5 — 0.007, 6 — 0.015, 7 — 0.03.

согласно расчетам и экспериментальным данным (см., например, [6]), близка к 2 эВ. Возможность достаточно длительного пребывания неравновесных электронов в указанных выше минимумах зоны проводимости при возбуждении их туда прямыми оптическими переходами наблюдалась ранее для арсенида галлия по спектрам фотоэффекта мелких p - n -переходов [7,8]. Можно ожидать, что и в $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ с небольшим содержанием азота время релаксации энергии для электронов в этих состояниях сравнимо с временем их излучательной рекомбинации с дырками у вершины валентной зоны. Последнее и позволяет наблюдать полосу излучения, сопровождающую такую рекомбинацию.

Как видно из рис. 2, b и 3, положение этой полосы при увеличении x от 0 до 0.03 меняется слабо, т.е. энергетическое расстояние L_{6c} - и Δ -минимумов зоны проводимости от вершины валентной зоны практически не зависит от содержания азота при $x \leq 0.03$. В то же время для основного Γ -минимума зоны проводимости эта величина с ростом x уменьшается примерно на 0.4 эВ (рис. 2, a). Поскольку энергетическое поло-

жение максимума валентной зоны в слабых растворах $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ и GaAs различаются незначительно, этот результат означает, что энергии L_{6c} - и Δ -минимумов зоны проводимости мало меняются при увеличении x от 0 до 0.03. Последнее согласуется с данными работ [9,10], в которых на основании исследования спектров отражения для $\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}_x\text{As}_{1-x}$ ($y = 3x$) [8] и $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ [9] был сделан вывод об очень слабой зависимости от x энергии прямых оптических переходов в сингулярностях Ван Хова вдоль L - и X -направлений зоны Бриллюэна. Отсутствие сильного уширения дополнительной полосы катодолуминесценции с ростом содержания азота (рис. 2, *c*) может быть вызвано тем, что ее исходная ширина при $x = 0$ велика, так как определяется не флуктуациями потенциала, а распределением рекомбинирующих электронов по энергиям в L_{6c} - и Δ -минимумах, энергетическое положение которых относительно валентной зоны в свою очередь различно.

Таким образом, результаты проведенных исследований показывают, что в слабых растворах $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ с содержанием азота до 3% наряду с рассеянием неравновесных высокоэнергетических электронов в абсолютный минимум зоны проводимости заметная часть электронов рекомбинирует с дырками у потолка валентной зоны непосредственно из L_{6c} - и Δ -минимумов. Энергетическое расстояние от этих минимумов до вершины валентной зоны с увеличением x от 0 до 0.03 практически не меняется.

Работа выполнена с использованием оборудования регионального ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ при поддержке гранта РФФИ № 07-02-01231.

Авторы выражают благодарность М. Hopkinson (University of Sheffield, UK) за предоставление образцов для исследований.

Список литературы

- [1] W. Shan, W. Walukiewicz, K.W. Yu, J.W. Ager III, E.E. Haller, J.F. Geisz, D.J. Friedman, J.M. Olson, S.R. Kurtz, H.P. Xin, C.W. Tu. *Phys. Status Solidi B*, **223**, 75 (2001).
- [2] P.R.C. Kent, A. Zunger. *Phys. Rev. B*, **64**, 115 208 (2001).
- [3] A. Lindsay, E.P. O'Reilly. *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 196 402 (2004).
- [4] М.В. Заморянская, С.Г. Конников, А.Г. Заморянский. *Приборы и техника эксперимента*, № 3, 1 (2004).
- [5] Л.А. Бакалейников, Е.В. Галактионов, В.В. Третьяков, Э.А. Тропп. *ФТТ*, **43** (5), 779 (2001).
- [6] S. Richard, F. Aniel, G. Fishman. *Phys. Rev. B*, **70**, 235 204 (2004).
- [7] E. Loh. *J. Phys. Chem. Sol.*, **24**, 493 (1963).
- [8] E. Loh, J.C. Phillips. *J. Phys. Chem. Sol.*, **24**, 495 (1963).
- [9] C. Skierbiszewski, P. Perlin, P. Wisniewski, T. Suski, J.F. Geisz, K. Hingerl, W. Jantsch, D.E. Mars, W. Walukiewicz. *Phys. Rev. B*, **65**, 035 207 (2001).
- [10] H. Gruning, L. Chen, Th. Hartmann, P.J. Klar, W. Heimbrodt, F. Hahnsdorf, J. Koch, W. Stolz. *Phys. Status Solidi B*, **215**, 39 (1999).

Редактор Л.В. Беляков

Cathodoluminescence of $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ dilute solutions ($x \leq 0.03$)

P.N. Brunkov, A.A. Gutkin, M.V. Zamoryanskaya, V.S. Khrustalev

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

Abstract The cathodoluminescence of $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$ layers ($0 \leq x \leq 0.03$) was measured in the range of photon energies from the edge of intrinsic absorption band to 3 eV at room temperature. The additional band of luminescence with intensity two orders lower than the intensity of the edge luminescence was observed in the visible spectral region. The photon energy at intensity maximum and FWHM for this band practically do not depend on x and are equal to ~ 2.1 eV and 0.6–0.7 eV accordingly. This radiation is related to indirect optical transitions of electrons from L_{6c} - and Δ -minima of c -zone to Γ_{15} -maximum of c -zone.