

УДК 537.872.31.029.66/.71, 621.315.595

ГЕНЕРАЦИЯ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ МЕЖЗОННОМ ФОТОВОЗБУЖДЕНИИ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ СЛОЁВ n-GaN

А. О. Захарьин¹, А. В. Бобылев^{1,2}, А. А. Усикова¹, А. В. Андрианов¹

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН

² Национальный исследовательский университет «Санкт-Петербургский государственный политехнический университет»

Получена 17 декабря 2012 г.

Аннотация. Сообщается об экспериментальном обнаружении и исследовании люминесценции в терагерцовой (ТГц) области спектра при стационарном межзонном фотовозбуждении эпитаксиальных слоёв n-GaN(Si). Свойства обнаруженного ТГц излучения свидетельствуют о том, что излучение возникает вследствие захвата неравновесных электронов на ионизованные донорные центры. Оптические переходы типа $2P \rightarrow 1S$ между первым возбуждённым и основным состоянием донорной примеси вносят основной вклад в ТГц фотолюминесценцию.

Ключевые слова: спектроскопия, терагерцовое излучение, легированные полупроводники, фотолюминесценция.

Abstract: We report on experimental observation and study of terahertz (THz) luminescence under continuous-wave interband excitation of n-GaN(Si) epitaxial layers. Properties of the THz emission show that the emission occurs due to capture of non-equilibrium electrons on ionized donor centers. Optical transitions of $2P \rightarrow 1S$ type between first excited and ground donor states give main contribution in THz photoluminescence.

Keywords: spectroscopy, terahertz radiation, doped semiconductors, photoluminescence.

Введение. Одна из возможных схем терагерцовых (ТГц) эмиттеров основана на оптических переходах между уровнями мелких примесей в полупроводниках в условиях пробоя примеси электрическим полем (см. [1] и другие ссылки там).

ТГц излучение возникает при этом в процессе энергетической релаксации неравновесных носителей заряда, переведенных в зону сплошного спектра в результате пробоя примесей.

Недавно было показано, что при низких температурах ТГц излучательные переходы могут быть вызваны также межзонным фотовозбуждением полупроводников, содержащих мелкие примесные центры, и интенсивная ТГц фотолюминесценция (ФЛ) легированных полупроводников была экспериментально обнаружена [2,3]. Природа ТГц ФЛ обусловлена особенностями процессов электронно-дырочной рекомбинации с участием примесных состояний. Один из механизмов ТГц ФЛ связан с рекомбинацией свободных дырок с электронами на нейтральных донорах, в результате которой образуется система заряженных примесных центров и свободных электронов в зоне проводимости, последующий захват которых на заряженные доноры сопровождается ТГц излучением [2,3]. Другой возможный механизм ТГц ФЛ может быть обусловлен примесной Оже-рекомбинацией электронов и дырок или экситонов (свободных или связанных на нейтральных центрах) [4], которая также ведет к образованию системы заряженных примесных центров и свободных электронов в зоне проводимости.

В настоящей работе сообщается об экспериментальном обнаружении и исследовании ТГц ФЛ в слоях n-GaN(Si).

Детали эксперимента. Были исследованы эпитаксиальные слои нитрида галлия толщиной 1.8–2 мкм, выращенные методом MOCVD на сапфировых подложках ориентации (0001) с 20 нм буферным слоем GaN. Толщина сапфировых подложек составляла 450 мкм. Слои GaN были легированы кремнием в процессе роста. Концентрация электронов и их подвижность при комнатной температуре составляли $4 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ и $190 \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$, соответственно. Для ТГц-экспериментов исследуемые образцы размещались в гелиевом оптическом криостате с регулируемой температурой, оптимизированном для ТГц области спектра. В качестве источника межзонного фотовозбуждения

использовался непрерывный He–Cd лазер с длиной волны излучения 325 нм и максимальной мощностью порядка 8 мВт. Лазерное излучение, модулируемое механическим прерывателем на частоте 75 Гц, после прохождения серии малых диафрагм и фильтров, предотвращающих проникновение в измерительную часть установки теплового фона лазера, фокусировалось через сапфировую подложку на поверхность эпитаксиального слоя n-GaN. Интенсивность фотовозбуждения слоев нитрида галлия не превышала 0.7 Вт/см^2 .

Измерения ТГц излучения проводились в геометрии ”на проход“ - через слой нитрида галлия. Спектральные измерения были выполнены с использованием вакуумируемого Фурье-спектрометра на область спектра $5\text{--}350 \text{ см}^{-1}$ с шаговым сканированием интерферограммы, описанного в [5]. Спектральное разрешение в большинстве случаев составляло 8 см^{-1} (0.96 мэВ). Сигнал ТГц излучения измерялся с помощью охлаждаемого жидким гелием Si-боллометра с использованием lock-in техники.

Экспериментальные результаты. При фокусировке излучения накачки на исследуемый образец наблюдалось ТГц излучение. На вставке в рис. 1 показана типичная интерферограмма ТГц сигнала. Можно видеть характерный максимум сигнала, соответствующий нулевой разности хода в оптических каналах Фурье-спектрометра.

Наиболее интенсивная ТГц фотолюминесценция в n-GaN наблюдалась при гелиевых температурах. Характерный спектр ТГц ФЛ слоя n-GaN показан на рис. 1. Было установлено, что интегральная мощность ТГц излучения в полосе частот системы регистрации составляет величину порядка 19 нВт при мощности фотовозбуждения на образце $\sim 7 \text{ мВт}$, что соответствует эффективности преобразования по мощности $\sim 2.7 \cdot 10^{-6}$.

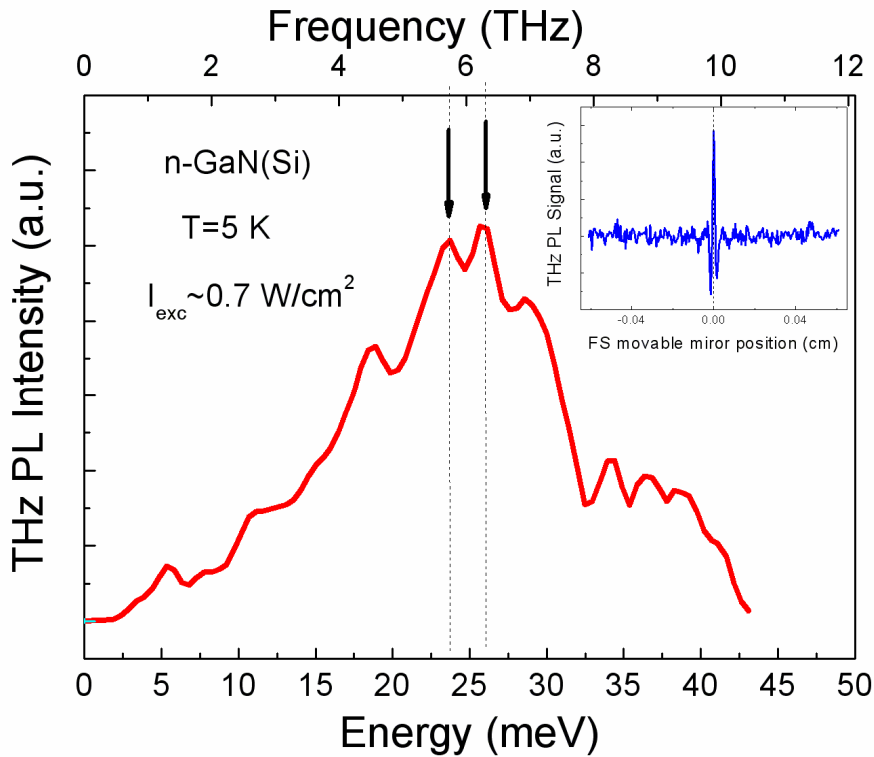


Рис. 1. Спектр ТГц фотолюминесценции слоев n-GaN(Si), наблюдаемой при $T = 5\text{ K}$ и интенсивности межзонного фотовозбуждения $\sim 0.7\text{ Вт/см}^2$ (линия 325 нм He–Cd-лазера). Стрелками указаны энергии 23 и 26 мэВ отнесенные в [8] к $2P-1S$ внутрицентровым переходам в Si и O донорах в n-GaN. На вставке: интерферограмма сигнала ТГц фотолюминесценции.

Как видно из рис. 1, максимум спектра излучения приходится на энергию кванта порядка 25 мэВ (6.05 ТГц). Данная энергия соответствует ожидаемой для переходов $2P \rightarrow 1S$ между первым возбужденным и основным уровнем водородоподобного донора в GaN, если учесть, что энергия связи мелкого донора в гексагональном нитриде галлия может лежать в интервале от 29.5 до 35 мэВ [6,7]. Интенсивные линии ТГц излучения при 23 и 26 мэВ, которые видны в спектре ТГц-ФЛ, ранее наблюдались также в спектрах примесной ТГц электролюминесценции n-GaN [8], и были отнесены к переходам $2P \rightarrow 1S$ в донорных центрах, обусловленных примесями кремния и кислорода, соответственно. Более слабые особенности в спектре ТГц ФЛ при энергиях ~ 18.8 и 28.7 мэВ (см. рис. 1) возможно обусловлены вкладом внутрицентровых

переходов в менее распространенных донорах с другими энергиями связи (порядка 25 и 38 мэВ, соответственно).

Температурная зависимость интенсивности ТГц излучения представлена на рис. 2(а). С ростом температуры интенсивность ТГц ФЛ существенно падает и при температуре выше 140 К сигнал излучения уверенно измерить не удавалось. Важно добавить, что построение температурной зависимости в координатах Аррениуса дает энергию температурного тушения ТГц ФЛ порядка 33.5 мэВ, что хорошо согласуется с энергией связи мелких доноров в GaN [6,7] На рис. 2(б) приведена зависимость интегральной интенсивности ТГц ФЛ от интенсивности фотовозбуждения при $T = 5\text{K}$. Видно, что зависимость эта сублинейна и может быть хорошо аппроксимирована корневым законом ($I_{PL} \sim \sqrt{I_{exc}}$). Данный факт представляется очень важным и в сочетании с закономерностями, наблюдаемыми в спектре ТГц излучения и в температурной зависимости интенсивности излучения, он свидетельствует в пользу того, что ТГц ФЛ возникает в результате захвата свободных электронов из зоны проводимости на заряженные донорные центры, которые в свою очередь образуются в результате рекомбинации свободных дырок с электронами, локализованными на нейтральных донорах ($h-D^0$ -рекомбинация).

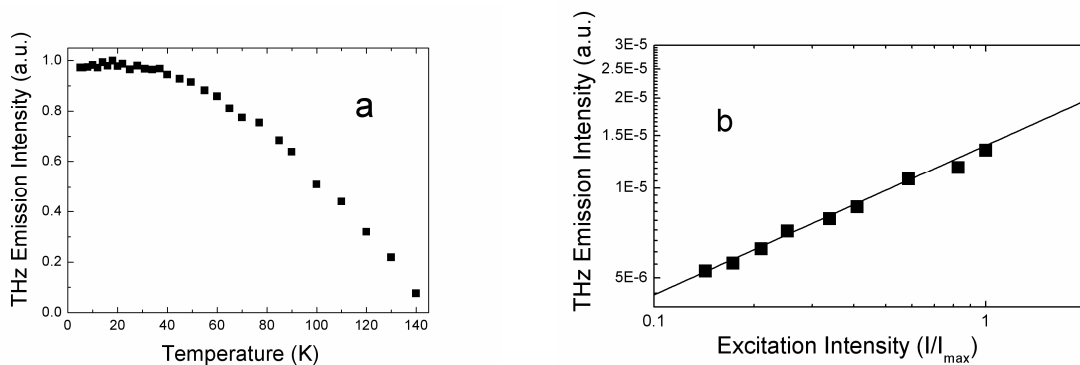


Рис. 2. а) Температурная зависимость интенсивности ТГц-ФЛ слоев n-GaN(Si). б) Зависимость интенсивности ТГц-ФЛ слоев n-GaN(Si) от интенсивности фотовозбуждения. Здесь точки – эксперимент, сплошная линия – результат аппроксимации экспериментальных данных зависимостью $I_{THz} = const \times \sqrt{I_{exc}}$.

Рассматривая систему уравнений баланса для электронов и дырок, нейтральных и заряженных доноров в ситуации, когда ТГц излучение появляется как следствие $h-D^0$ -рекомбинационного процесса, можно показать, что должна иметь место либо линейная, либо корневая зависимость интенсивности ТГц ФЛ от интенсивности накачки в случае слабого и сильного фотовозбуждения, соответственно. Аналогично можно показать, что в случае, когда ТГц ФЛ возникает в результате примесной Оже-рекомбинации электронов и дырок или экситонов (связанных на нейтральных центрах или свободных), следует ожидать квадратичную либо линейную зависимость интенсивности ТГц ФЛ от интенсивности накачки в случае слабого и сильного фотовозбуждения, соответственно. Заметим, что именно корневой характер зависимости от интенсивности накачки наблюдается в эксперименте (см. рис. 2(б)) и это свидетельствует в пользу того, что $h-D^0$ -рекомбинация приводит к появлению ТГц ФЛ n-GaN.

На рис. 3 приведен спектр краевого излучения слоев n-GaN в УФ области при межзонной накачке. В спектре можно видеть линии излучения при 3.466 и 3.474 эВ. Последняя линия хорошо известна в нитриде галлия и относится к излучательной рекомбинацией экситона, связанного на нейтральном доноре (см. например [9] и другие ссылки там). Линия излучения с энергией кванта 3.466 эВ вполне может быть обусловлена $h-D^0$ рекомбинацией. Такой тип электронно-дырочной рекомбинации хорошо известен для кристаллов n-GaAs (см. [10]) и он имеет место в n-GaN [11]. Рекомбинационный процесс $h-D^0$ приводит также и к ТГц излучению. Таким образом характер спектра краевого излучения слоев n-GaN поддерживает нашу интерпретацию обнаруженной ТГц ФЛ.

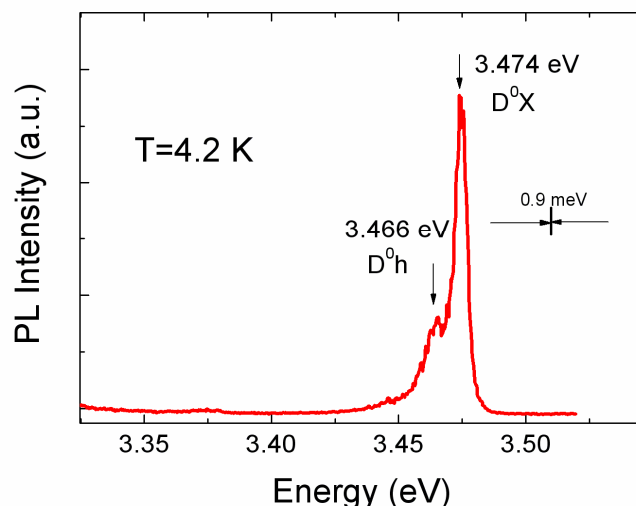


Рис. 3. Спектр низкотемпературной краевой фотолюминесценции n-GaN при возбуждении линией 325 нм He-Cd лазера ($I_{\text{exc}} \sim 0.7 \text{ Вт/см}^2$).

Выводы. В работе обнаружена и исследована ТГц фотолюминесценция при стационарном, межзонном фотовозбуждении слоёв n-GaN(Si) на сапфире. Свойства ТГц ФЛ свидетельствуют о том, что ТГц излучение возникает в результате захвата неравновесных электронов на ионизированные донорные центры. При низких температурах такие фотоактивные донорные центры образуются в результате рекомбинации неравновесных дырок с электронами, локализованными на нейтральных донорах. Основной вклад в спектр ТГц излучения дают внутрицентровые переходы $2P \rightarrow 1S$ между первым возбуждённым и основным состоянием доноров, обусловленных примесями кремния и кислорода.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты № 11-02-00230-а и № 12-02-00455-а), а также ряда специальных программ РАН. Авторы выражают благодарность проф. Z.C. Feng за предоставление эпитаксиальных слоёв n-GaN(Si) на сапфире.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ (соглашение 8862).

Литература

1. А.В. Андрианов, А.О. Захарьин, И.Н. Яссиевич, Н.Н. Зиновьев.
«Терагерцовая электролюминесценция в условиях пробоя мелкого акцептора в германии»// Письма в ЖЭТФ, 2004, т. 79, выл. 8, с. 448-451.
2. А.В. Андрианов, А.О. Захарьин, Ю.Л. Иванов, М.С. Кипа. «Примесная терагерцовая люминесценция при межзонном фотовозбуждении полупроводников»// Письма в ЖЭТФ, 2010, т. 91, вып. 2, с. 102-105.
3. A.O. Zakhar'in, A.V. Andrianov, A.Yu. Egorov, N.N. Zinov'ev. "Terahertz photoluminescence from GaAs doped with shallow donors at interband excitation"//Appl. Phys. Lett., 2010, v. 96, p. 211 118.
4. В.Н. Абакумов, В.И. Перель, И.Н. Яссиевич. «Безызлучательная рекомбинация в полупроводниках» // Изд-во ПИЯФ РАН, 1997.
5. Н.Н. Зиновьев, А.В. Андрианов, В.Ю. Некрасов, Л.В. Беляков, О.М. Сресели, Г. Хилл, Дж.М. Чемберлен. «Электролюминесценция квантово-каскадных структур в терагерцовом диапазоне»//ФТП, 2002, т. 36, вып. 2, с. 234-237.
6. F. Mireles, S.E. Ulloa. "Zeeman splitting of shallow donors in GaN"//Appl. Phys. Lett., 1999, v. 74, p. 248-250.
7. H. Wang, A.-B. Chen. "Calculation of shallow donor levels in GaN"// J. Appl. Phys., 2000, v. 87, p. 7859-7863.
8. V.A. Shalygin, L.E. Vorobjev, D.A. Firsov, V.Yu. Panevin, A.N. Sofronov, G.A. Melentyev, A.V. Antonov, V.I. Gavrilenko, A.V. Andrianov, A.O. Zakharin, S. Suihkonen, P.T. Torma, M. Ali, H. Lipsanen."Impurity breakdown and terahertz luminescence in GaN epilayers under external electric field" // J. Appl. Phys., 2009, v. 106, 123 523.
9. A.V. Andrianov, D.E. Lacklison, J.W. Orton, D.J. Dewsnip, S.E. Hooper, C.T. Foxon. "Low-temperature photoluminescence study of GaN films grown by MBE"//Semicond. Sci. Technol., 1996, v. 11, p. 366-371.

10. А.В. Акимов, А.А. Каплянский, В.В. Криволапчук, Е.С. Москаленко. «Проявление метастабильных локализованных состояний дырок в медленной кинетике краевой люминесценции n-GaAs» // Письма ЖЭТФ, 1987, т. 46, с. 35-39.
11. J.W. Orton, D.E. Lacklison, A.V. Andrianov, T.S. Cheng, D.J. Dewsnip, C.T. Foxon, L.C. Jenkins, S.E. Hopper. "Photoluminescence study of silicon-doped GaN grown by MBE on GaAs substrates" // Sol. St. Electron., 1997, v. 41, p. 219-222.