

低激发功率密度下 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ ($x=0.88$) 的 NN_i 对发光*

俞容文 郑健生 康东林 颜炳章

(厦门大学物理系 厦门 361005)

摘要 在低激发功率密度条件下研究了混晶材料 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ ($x=0.88$) 中的 NN_i 对束缚激子发光. 发现随温度升高, 在光致发光谱中依次出现 NN_i 和 NN_i 发光带, 同时 N_s 带明显热猝灭. 在低温下, 降低激发功率密度, N_s 谱带移向低能端并且窄化. 结果表明, 在低激发功率密度下, 热激活的 $\text{N}_s \rightarrow \text{NN}_i$ 激子转移过程明显加强, 激子转移的机制主要是变程跳跃过程.

PACC: 7135, 7855, 7155, 7280E

1 引言

自从1966年 Thomas 等人^[1]发现氮(N)在GaP中等电子陷阱的作用以来, 人们对GaP:N和 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$, $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}:\text{N}$ 等III-V族化合物材料中N杂质态的行为进行了许多研究. 其中, 不同N中心之间的能量转移过程是个令人感兴趣的问题. 对单晶材料GaP:N^[1], 它的低温光谱几乎全部来自 NN_i 对束缚激子的发光贡献. 而在混晶材料 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 的低温光谱中, 光谱成分主要是来自孤立N中心的 N_s 线及其LO声子伴线, 而不存在 NN_i 对的发光成分^[2]. 这些光谱差异被解释为^[3], 在GaP:N中存在激子从孤立N中心到 NN_i 对中心强烈的隧穿转移^[4]. 但在混晶 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 中, 由于混晶无序效应, N_s 能级展宽, 存在称为“局域能量极小点”的孤立 N_s 中心^[5], 激发产生的激子很快地隧穿转移到这些 N_s 中心上而后复合发光成为 N_s 谱带. 结果转移到 NN_i 对中心的激子隧穿过程受到抑制. 根据Stegmann等人的结果^[6], 在温度 $T=80\text{K}$ 下, 在较高组分($x>0.90$)的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 样品中仍可观察到 NN_i 对发光带. Kash等人^[7]在组分 $x=0.96$ 的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 样品中升温后明显地在光谱中观察到 NN_i 发光带. 这些结果表明发生了热激活的 $\text{N}_s \rightarrow \text{NN}_i$ 激子转移过程. 张新夷等人^[8]曾在组分接近的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ ($x=0.95$)样品中发现声子伴带 $\text{N}_s\text{-LO}$ 与 N_s 带发光积分强度之比随温度升高而增大. 与Kash等人的结果比较, 混晶材料 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 中的这一“反常现象”应当是在光谱中出现 NN_i 对发光成分引起的^[9]. 张勇等人^[10]通过77K压力光谱观察到较低组分($x<0.90$)的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 中的 NN_i 对发光现象, 表明流体静压减

* 国家自然科学基金资助项目

1992年12月3日收到初稿, 1993年7月20日收到修改稿

弱混晶无序效应,热激活的 $\text{N}_x \rightarrow \text{NN}_i$ 的带间激子转移加强。

本文工作研究了 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}(x=0.88)$ 样品中的 NN_i 对发光现象,发现在低激发功率密度条件下,热激活的 $\text{N}_x \rightarrow \text{NN}_i$ 激子转移过程显著加强,首次在常压下较低组分 $x=0.88$ 的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 样品中观察到 $\text{NN}_i(i=1,3)$ 对发光带。

2 实验方法

样品为 LPE 的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 材料,组分经电子探针测出,利用光吸收法^[1]测得其掺氮浓度 $[\text{N}] = 1.1 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ 。用氩离子激光器 488nm 线激发样品,使用中性衰减片改变激发功率密度。样品置于 CSA-202E 致冷器的样品室中,控温和指示精度均为 $\pm 0.5\text{K}$ 。检测系统包括 GDM-1000 双光栅单色仪, C31034 光电倍增管和 PAR-124A 锁相放大器。

3 实验结果与分析

图 1 是低激发功率密度下 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}(x=0.88)$ 的变温光致发光谱。在 $T=14\text{K}$ 温度下,光谱由 N_x 带和声子伴带 $\text{N}_x\text{-LO}$ 组成。温度升高至 40K 左右时,光谱结构并无明显变化。在温度达到 50K 左右时,光谱图开始发生变化,在 N_x 带低能端 $\text{N}_x\text{-LO}$ 峰值能量处的发光强度随温度升高而显著增强, N_x 带则很快地热猝灭。温度继续升高至 70K 时,在 N_x 带低能端约 110meV 处又出现一个新的发光带。根据相对能量位置判断,依次出现的二个发光峰分别为 NN_3 和 NN_1 发光带。这一指认与 Kash 等人^[2]在更高组分 $x=0.96$ 的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 材料中 NN_i 对发光的研究结果相一致。从图 2 看,随温度升高, NN_3 带的发光强度相对 N_x 带逐渐增大,并在 60K 左右温度下达到最大值后也开始热猝灭。因 NN_3 发光带的能量位置与 $\text{N}_x\text{-LO}$ 接近,光谱发生重叠,在计算 NN_3 带发光强度时,已对 $\text{N}_x\text{-LO}$ 峰强度作了扣除。另外从图 3 看,在温度 $T=14\text{K}$ 下,光谱只由 N_x 带和 $\text{N}_x\text{-LO}$ 带组成,它们的发光积分强度之比(记作 $R = I_{\text{N}_x\text{-LO}}/I_{\text{N}_x}$)不随激发功率变化。这证实低温光谱中没有 NN_i 对发光成分^[2]。 NN_i 对发光带的出现是由于温度升高,发生 $\text{N}_x \rightarrow \text{NN}_i$ 的热激活激子转移。这样 N_x 带很快热猝灭, NN_i 发光带随之出现并逐渐在光谱中占主要地位。热激活过程包括激子热离化后被 N_x 中心或 NN_i 对中心俘获(多重陷入)和激子在不同 N_x 中心之间隧穿被 NN_i 对中心束缚的过程(变程跳跃)^[2]。根据多重陷入机制,在不同激发功率密度下,升高温度后, $\text{N}_x \rightarrow \text{NN}_i$ 的带间激子转移过程都应加强。实验却表明,在大约 $100\text{W}/\text{cm}^2$ 的激发功率密度下,虽然温度升高至 77K,但光谱仍由 N_x 带及其 $\text{N}_x\text{-LO}$ 带组成,不出现 NN_i 发光带。在 60K 温度下,降低激发功率密度,光谱出现与图 1 类似的变化,谱图中明显地出现 $\text{NN}_i(i=1,3)$ 发光带(图 4)。这说明在组分较低 ($x < 0.90$) 的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 样品中,热激活的 $\text{N}_x \rightarrow \text{NN}_i$ 带间激子转移主要地应是 N_x 束缚激子的变程跳跃过程。

升高温度后,在低激发功率密度条件下,存在着二种相互竞争的激子转移过程。一是 N_x 束缚激子隧穿到称为“局域能量极小点”的 N_x 中心上,并停留直至复合发光。这种

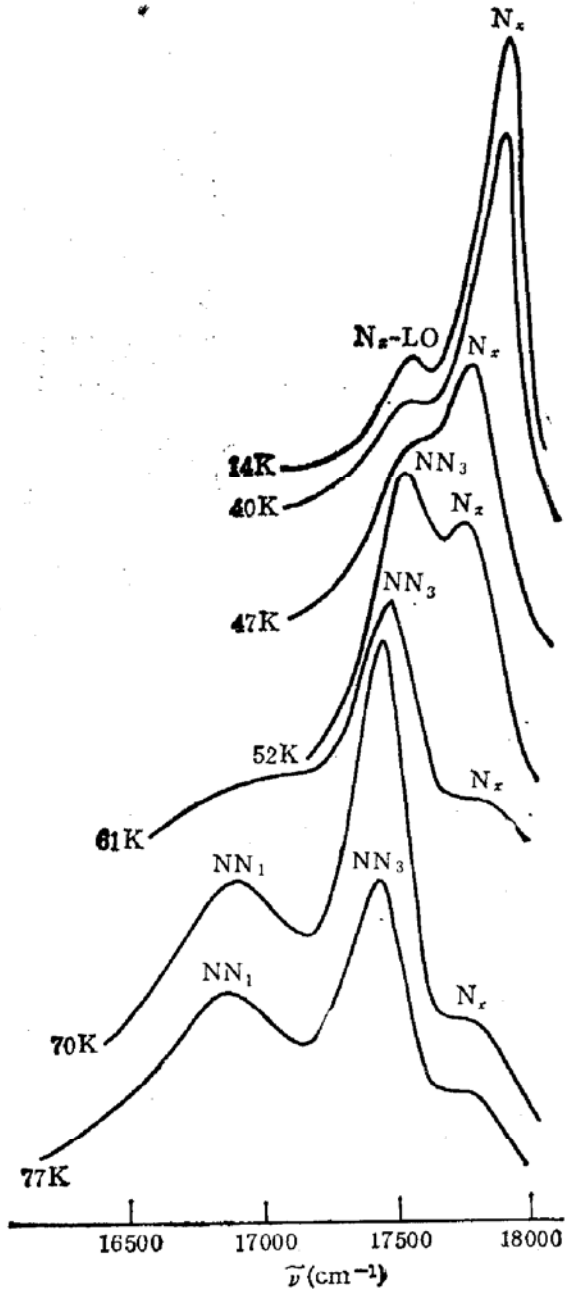


图1 低激发功率密度下 GaAs_{1-x}P_x:N(x = 0.88) 的变温光致发光谱 (500mW/cm²)

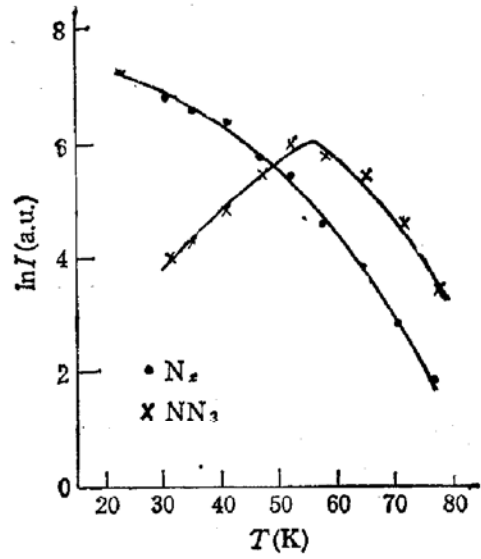


图2 低激发功率密度下 GaAs_{1-x}P_x:N (x = 0.88) 的 N_x 带和 NN₃ 带发光积分强度随温度的变化 (500mW/cm²)

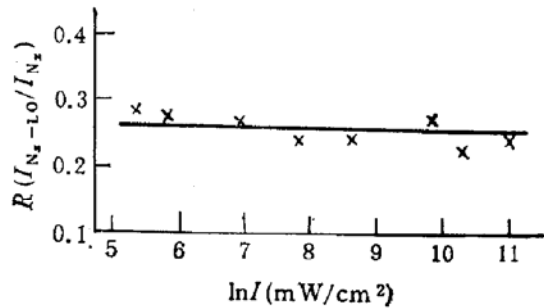


图3 GaAs_{1-x}P_x:N(x = 0.88) 的 N_x-LO 带和 N_x 带发光积分强度之比随激发功率的变化 (14K)

N_x 带内的激子隧穿抑制了 N_x 束缚激子向 NN₁ 对中心的转移。二是激子的变程跳跃过程,这导致 N_x 束缚激子的空间扩散,有利于 N_x 束缚激子向更远距离的 NN₁ 对中心转移,发生热激活的 N_x → NN₁ 的带间激子转移。实验发现,降低激发功率密度后,光谱中 N_x 带峰值位置移向低能端并且谱带窄化(图5) 这一结果与 Collet 等人^[13]的时间分辨谱相似。根据 Kash 提出的模型^[5],称为“局域能量极小点”的 N_x 中心的分布由下式表示:

$$n_m(E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot \sigma} \exp \left[-\frac{(E - E_0)^2}{2\sigma^2} \right] \cdot \left[\frac{1}{2} - \frac{1}{2} \operatorname{erf} \left(\frac{E - E_0}{\sqrt{2}\sigma} \right) \right]^m, \quad (1)$$

在低激发功率密度下,激子占据能量更低的 N_x 中心,相当于(1)式中的 m 值变大, N_x 谱

带移向低能量位置并且窄化。由于低能量 N_x 束缚激子向其它更低能量 N_x 中心的隧穿 (N_x 带内转移) 几率减小^[13], 升温后 N_x 束缚激子的变程跳跃过程能够有效地进行, 激子 $N_x \rightarrow \text{NN}_i$ 的热激活转移过程加强, 结果在光谱中明显地观察到 NN_i 发光带, 同时 N_x 带很快地热猝灭。

在 77K 温度下增大激发功率密度, N_x 带发光逐渐趋于饱和(图 6), 在激发功率密度达到 $100\text{W}/\text{cm}^2$ 左右时, 光谱中不再出现 NN_i 发光带。因这时“局域能量极小点”的 N_x 中心已接近饱和, 激发产生的激子占据在更高能量的 N_x 中心上, 由于 N_x 带高能部分的激子带内隧穿十分强烈^[13], 通过变程跳跃进行的 $N_x \rightarrow \text{NN}_i$ 的带间激子转移因而受到抑制。Stegmann 等^[5]和 Munir 等^[14]在 80K 温度下, 未能在低组分 $x < 0.90$ 的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 样品中观察到 NN_i 发光带, 原因在于实验中使用了较高的激发功率密度, 甚至在高激发功率密度下, 在更高组分 $x = 0.96$ 的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}$ 样品中也不出现 NN_i 发光带^[14]。本文工作还进一步说明^[8,9], 考虑到升温后光

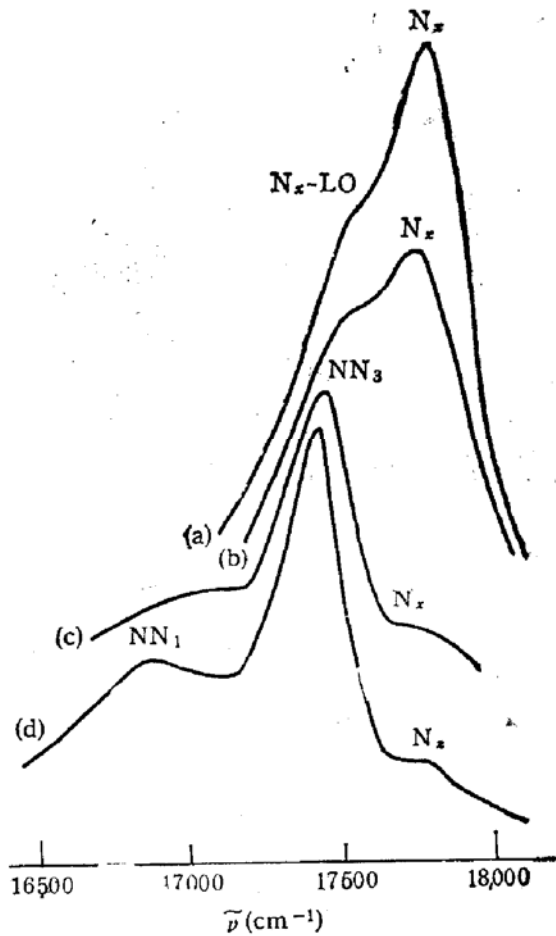


图 4 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}(x=0.88)$ 样品在 60K 温度下变化激发功率密度的光致发光光谱
(a) $85\text{W}/\text{cm}^2$ (b) $1\text{W}/\text{cm}^2$ (c) $500\text{mW}/\text{cm}^2$
(d) $70\text{mW}/\text{cm}^2$

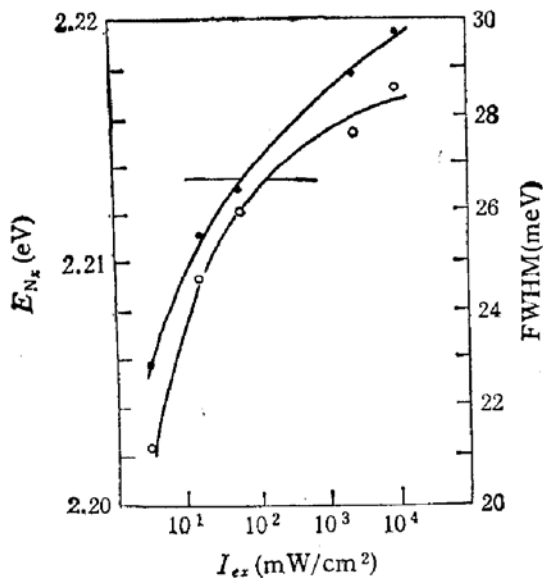


图 5 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}(x=0.88)$ 的 N_x 带半宽和峰值能量位置随激发功率的变化 (14K)

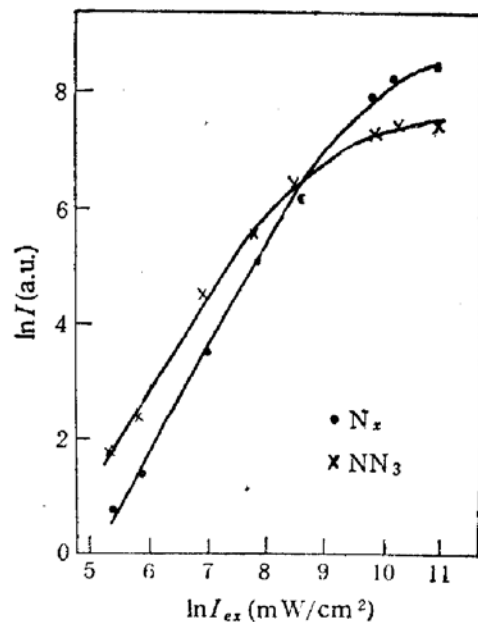


图 6 $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x:\text{N}(x=0.88)$ 的 N_x 带和 NN_i 带发光强度随激发功率密度的变化 (77K)

谱中出现 NN_i 对发光成分,在混晶材料 $GaAs_{1-x}P_x:N$ 中发现的所谓“反常现象”^[8]实际上是对不同温度下出现的谱带指认分析不当所致。

4 结 论

在低激发功率密度条件下,对较低组分 $x = 0.88$ 的 $GaAs_{1-x}P_x:N$ 样品,通过升温首次常在常压下观察到 $NN_i (i = 1, 3)$ 发光带。分析结果表明,在低激发功率密度下,热激活的 $N_s \rightarrow NN_i$ 带间激子转移明显加强。光谱中出现 $NN_i (i = 1, 3)$ 发光带主要起因于 N_s 束缚激子的变程跳跃过程。

致谢 感谢中国科学院半导体所李国华副研究员审阅了手稿,并作了有益的讨论。

参 考 文 献

- [1] D. G. Thomas, J. J. Hopfield, *Phys. Rev.*, 1966, **150**:680.
- [2] D. J. Wolford, B. G. Streetman, R. J. Nelson and N. Holonyak, Jr., *Solid State Commun.*, 1976, **19**:74.
- [3] H. Mariette, *Physica*, 1987, **B146**: 286.
- [4] P. J. Wiesner, R. A. Street and H. D. Wolf, *Phys. Rev. Lett.*, 1976, **35**:1366.
- [5] J. A. Kash, *Phys. Rev.*, 1984, **B29**:7069.
- [6] R. Stegmann, N. R. Nurtdinov, A. E. Yunovich and G. Oelgart, *Phys. Status Solidi*, 1980, **A62**: K49.
- [7] J. A. Kash, H. Mariette and D. J. Wolford, *Phys. Rev.*, 1985, **B32**:3753.
- [8] 张新夷等,中国科学A辑,1982,**25**:326.
- [9] 郑健生等,《半导体物理进展与教学》黄昆,谢希德等著,高等教育出版社,北京: 1989,262.
- [10] 张勇等,物理学报, 1988,**31**:1925.
- [11] 俞容文等,厦门大学学报(自然版),1992,**32**: 152.
- [12] N. F. Mott, *Philos. Mag.*, 1969, **19**:835.
- [13] J. H. Collet, J. A. Kash, D. J. Wolford and J. Tompson, *J. Phys.*, 1983, **C16**:1283.
- [14] M. Munir, N. R. Nurtdinov, R. Stegmann and A. E. Yunovich, *Sov. Phys. Semicon.*, 1981, **15**: 721.

NN_i Emission in $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x\text{:N}(x=0.88)$ under Low Excitation Power Density

Yu Rongwen, Zheng Jiansheng, Mi Donglin and Yar Bingzhang

(Department of Physics, Xiamen University, Xiamen 361005)

Abstract The NN_i ($i = 1, 3$) emission in $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x\text{:N}$ with somewhat low composition $x = 0.88$ under low excitation power density is observed for the first time. As temperature is raised, the NN_3 and NN_1 appear successively in CW spectrum, while the N_2 band quenches thermally. At low temperature, the narrowing and shift to lower energy of N_2 band with decreasing of excitation power density are also observed. It is shown that the thermally activated $\text{N}_2 \rightarrow \text{NN}_i$ exciton transfer proceeds efficiently, and variable-range hopping mechanism is mainly responsible for this transfer.

PACC: 7135, 7855, 7155, 7280E