

GaAs 中与施主高激发态有关的 共振极化子效应

陈张海 陈忠辉 刘普霖 石晓红 史国良 沈学础

(中国科学院上海技术物理研究所红外物理国家重点实验室, 上海 200083)

(1996 年 4 月 3 日收到)

报道了 n 型 GaAs 的杂质磁光电导谱. 在相对低的磁场下观察到束缚电子高激发态与 LO 声子的共振相互作用; 讨论了共振极化子光电导响应随磁场强度变化的行为, 以及钉扎在 LO 声子能量处的光电导峰的物理起源.

PACC: 7155; 7138; 7240

1 引 言

在极性半导体中, 电子和纵光学(LO)声子相互作用, 即极化子效应, 对材料的光学和输运性质有着重大的影响. 当电子的跃迁能量趋近 LO 声子能量, 即发生共振极化子效应时, 这种影响尤为突出^[1,2]. 二十几年来, 人们采用回旋共振等方法对处于连续态上的电子与 LO 声子共振相互作用进行了广泛的研究^[1-3]. 并在较高温度和较低磁场下观察到与量子数朗道能级相关的共振极化子效应^[4]. 然而, 连续态上一定浓度电子的布居所引起的电子-电子相互作用和 Pauli 不相容效应使这类极化子问题的研究变得更加复杂^[5,6]. 基于这个原因, 高纯半导体材料中的类氢浅施主杂质及其所束缚的单电子, 成为极化子研究的一个较为纯粹的体系. 但是, 迄今为止与杂质束缚电子相关的共振极化子效应的实验观察大多集中在 $2p_{+1}$ 或 $3p_{+1}$ 等低激发态^[3,7-10]. 对于 GaAs, CdTe 等大多数宽带隙半导体材料而言, 利用 Zeeman 效应将类氢浅施主的低能激发态调节到共振区所需要的磁场强度都在 12 T 以上. 尽管 InSb 具有较小的有效质量而可以在低磁场下观察到共振电子-声子相互作用, 但是, 由于其 Frohlich 耦合常数 α 很小 ($\alpha=0.02$) 以及窄带隙所引起严重的导带非抛物线性, 以至很难将极化子效应和导带非抛物线性的影响区分开^[11]. 因此, 要在较低的磁场下观察到较为纯粹的共振极化子效应, 所涉及的电子态必须是杂质高激发态, 而采用的材料仍必须是宽带隙材料, 以减小导带-价带相互作用所引起的导带非抛物线性的影响.

杂质的光热电离过程所引起的光电导响应的光谱测量是一种高灵敏度、高分辨率的杂质检测技术, 目前已成为半导体中杂质能谱标定的最精确的方法^[12]. 采用这种方法, 并选择适当的几何位形, 我们研究了 GaAs 的浅施主杂质电子跃迁能谱与磁场的关系, 在较低的磁场强度 ($B < 7$ T) 下观察到与 Si 施主高激发态相关的共振极化子效应.

2 实 验

本工作所采用的样品为分子束外延生长(MBE)GaAs 薄膜,厚度为 $5\text{ }\mu\text{m}$, Si 施主浓度为 10^{14} cm^{-3} , 衬底为半绝缘 GaAs. 欧姆电极用 Sn 在 $450\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下 N_2 和 H_2 混合气体保护下合金化获得. 由 Hall 效应测量得到 300 K 时电子浓度和迁移率分别为 $8\times 10^{14}\text{ cm}^{-3}$, $6400\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$; 77 K 下分别为 $7\times 10^{14}\text{ cm}^{-3}$, $69000\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$. 远红外光电导谱的测量在 Bruker IFS-113V 型 Fourier 变换光谱仪上进行. 样品置于 OXFORD 标准超导磁体的低温杜瓦瓶内, 利用低损耗的光学传输装置将远红外辐射从 Fourier 变换光谱仪引到置于磁体中的光导管中^[13], 并在样品与光导管之间加一级聚光锥, 使一部分的入射光倾斜照射到样品上, 从而偏离法拉第位形, 以破坏或松弛杂质电子的跃迁选择定则, 便于对其高激发态进行观察.

3 结果与讨论

图 1 为 4.2 K 温度下磁场强度为 3.6 T 时样品的远红外光电导谱. 与变分计算的结果相比较^[14], 我们对各光电导峰进行了指认, A, B, C, D 分别对应于 $1s$ 到 $3d_{+2}$, $4f_{+3}$, $5g_{+4}$, $6h_{+5}$ 的跃迁. 这些跃迁在严格的法拉第位形下是偶极禁戒的; 然而, 在本实验中, 入射光的波矢方向并不完全平行于磁场方向; 因此, 上述跃迁在这种位形下成为弱允许跃迁. 在 $10, 5.5, 4.3$ 和 3.5 T 等磁场强度附近, 这些跃迁的能量分别接近 4.2 K 下的 LO 声子能量, 即发生共振的电子-声子相互作用. 图 2 给出了样品在不同磁场强度时 LO 声子能量附近的光电导谱. 从图 1 和图 2 可以看出, 在 $260\text{--}296\text{ cm}^{-1}$ 波段很难观察到光谱结构, 这是因为这个波段正好对应于 GaAs 剩余射线带. 而在能量高于 296 cm^{-1} 的光谱区, 光电导峰的强度随着磁场强度的增大而减小, 并且逐渐展宽. 也就是说, 随着 $1s$ 到上述各高激发态的跃迁能量朝高能方向远离 LO 声子能量, 跃迁引起的光电导响应逐渐减小. 在所观测的磁场强度范围内, 296 cm^{-1} 处均出现一具有非对称线型的光电导响应, 不随磁场强度的改变而移动, 即其能量位置钉扎在 LO 声子处. Cheng 等曾在 GaAs/AlGaAs 多量子阱样品的磁光电导谱中观察到类似的结构, 但他们并未对其物理起源进行研究^[10].

图 3 为 $1s\text{--}4f_{+3}$ 和 $1s\text{--}5g_{+4}$ 跃迁能量与磁场强度关系. 同时给出了与 $1s\text{--}4f_{+3}$ 跃迁相应的未考虑极化子效应和导带非抛物线性的变分计算结果^[14]. 可以看出, 在能量低于 260 cm^{-1} 的光谱区, 实验点与理论曲线基本符合. 而在 LO 声子能量以上的光谱区, 上述跃迁明显偏离简单的变分理论计算结果.

由弱耦合极化子的二阶 Wigner-Brillouin 微扰理论^[2,7], 可以得到考虑极化子效应后处于磁场中的施主束缚电子能量

$$E_n = -\alpha\hbar\omega_{\text{LO}} + E_n(m^{**}, B) + T_n, \quad (1)$$

其中 α 为无量纲的 Fröhlich 电子-声子耦合常数, 当 α 较小时, (1) 式中的 $m^{**} \approx \left(1 + \frac{1}{6}\alpha\right)m^*$, m^* 为未考虑极化子修正时的电子有效质量; 而

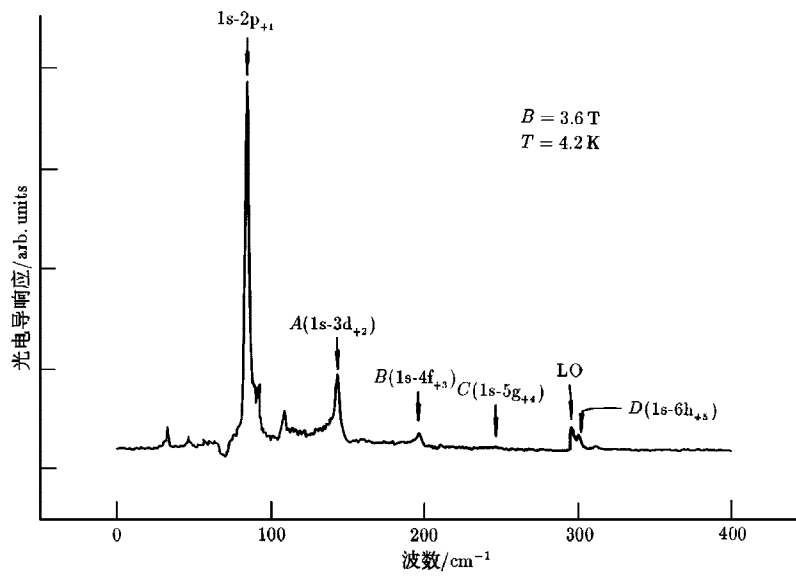


图 1 4.2 K 温度下, 磁场强度为 3.6 T 时 GaAs 的远红外光电导谱

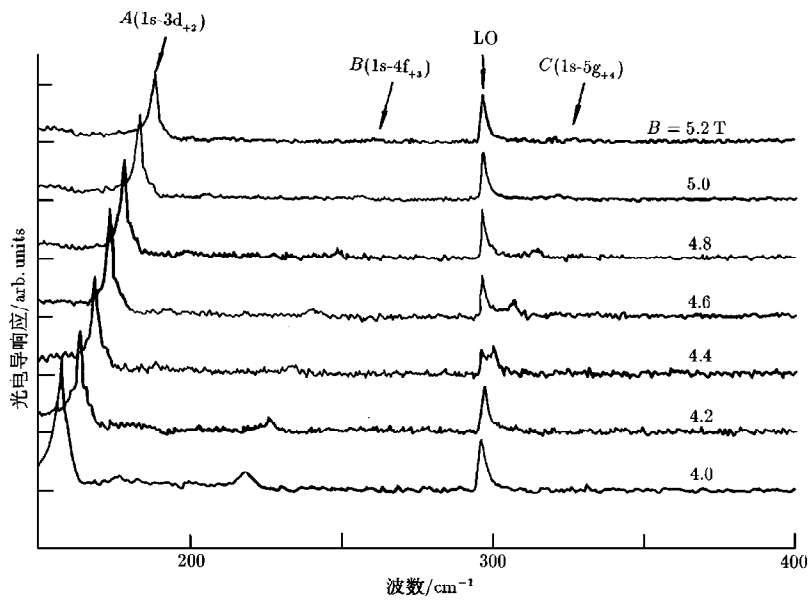


图 2 GaAs 在不同磁场强度下 LO 声子能量附近的光电导响应

$$T_n \sim \sum_m \frac{|M|^2}{E_n - E_m - \hbar\omega_{LO}}, \quad (2)$$

E_n, E_m 为处于 n, m 能级上的未受微扰的电子能量; M 为微扰矩阵元. 当 $E_n - E_m$ 与 $\hbar\omega_{LO}$ 相差比较大时, T_n 可以忽略不计. 这对应于非共振极化子情形. 因此, 考虑束缚电子

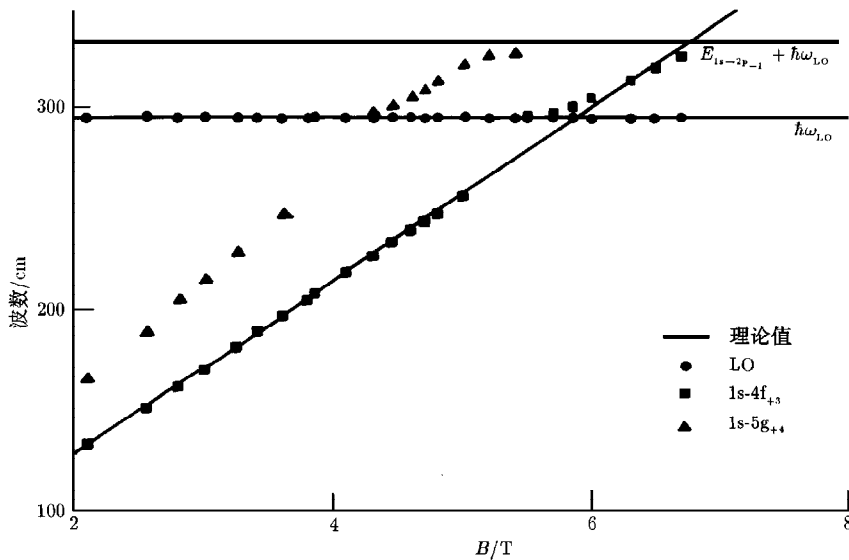


图3 GaAs 中 Si 施主 $1s-4f_{+3}$ 和 $1s-5g_{+4}$ 跃迁能量与磁场强度的关系

从基态 $1s$ 到激发态 n 的跃迁, 当计及极化子效应时, 其跃迁能量为

$$E_n - E_{1s} \approx E_n(m^{**}, B) - E_{1s}(m^{**}, B) + T_n. \quad (3)$$

对于 GaAs 而言, 在能量低于剩余射线带的光谱区, (3) 式中的 T_n 项可以忽略. 所以在该光谱区内, 我们的实验结果与未计及极化子效应和导带非抛物线性的变分理论计算结果基本符合, 说明了在低磁场非共振区, 极化子效应和导带非抛物线性对电子的有效质量影响并不明显. 而 296 cm^{-1} 附近和以上的跃迁谱线与理论值的明显偏差则可归因于共振极化子效应. 从 (2) 和 (3) 式可知, 随着 $E_n - E_m$ 接近于 LO 声子能量 $\hbar\omega_{LO}$, T_n 对电子跃迁能量的贡献将越来越大. 或者说, 当未受微扰的某一电子能级 E_n 从高能方向和低能方向趋近于能量位置位于 $E_m + \hbar\omega_{LO}$ 的单声子虚态时, 都将受到该单声子虚态的排斥, 从而在 $E_m + \hbar\omega_{LO}$ 处引起能级的分裂. 这就是共振极化子效应, 它表现在跃迁能谱上便是在某些与 LO 声子相关的能量位置附近谱线的反相交现象. 由图 2 和图 3 可以看出, 在 296 cm^{-1} 附近, 以 LO 声子线为渐近线, 跃迁谱线随磁场的移动表现出明显的反相交行为 (由于剩余射线带的缘故, LO 声子线以下的谱线并未观察到). 这对应于如图 4(a) 所示的共振极化子过程, 即类氢高激发态与 $1s + \text{LO}$ 虚态发生能量共振. 图 3 表明, 随着磁场强度的进一步增加, 谱线又一次出现反相交特性, 并逐渐趋近于 $E_{1s-2p_{-1}} + \hbar\omega_{LO}$ 线, 它对应于类氢高激发态与 $2p_{-1} + \text{LO}$ 虚态的共振, 如图 4(b) 所示. 从共振跃迁所涉及的电子态数目来看, 图 4(a) 和 (b) 所示的共振极化子过程可分别称为二能级共振和三能级共振^[8-10].

对于极化子体系, 其波函数应为零声子态 (纯电子态) 和单声子虚态 (纯电子态加一个 LO 声子) 波函数的杂化^[1]. 对于只涉及到一个零声子态和一个单声子态的极化子情形, 在共振区, 零声子态和单声子态对杂化波函数的贡献接近 1:1; 越远离共振区, 纯电子态波函数的贡献越大, 而单声子态的贡献越小, 最终两者的比例趋近于 1: α . 而引起光吸收

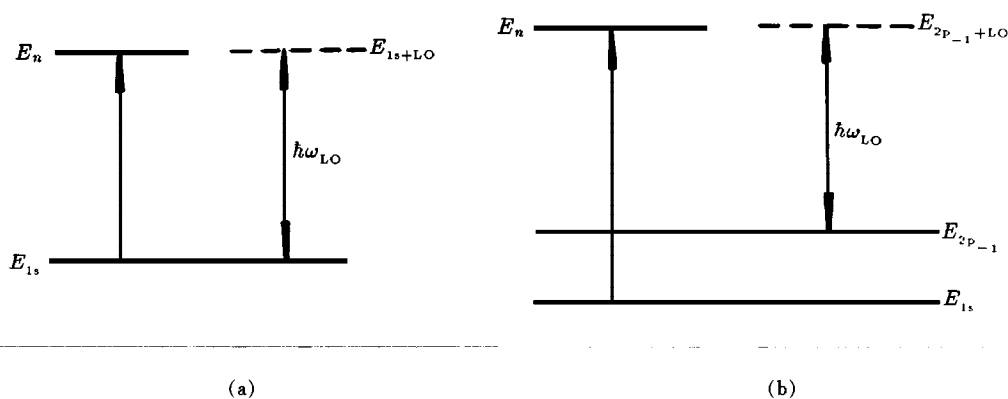
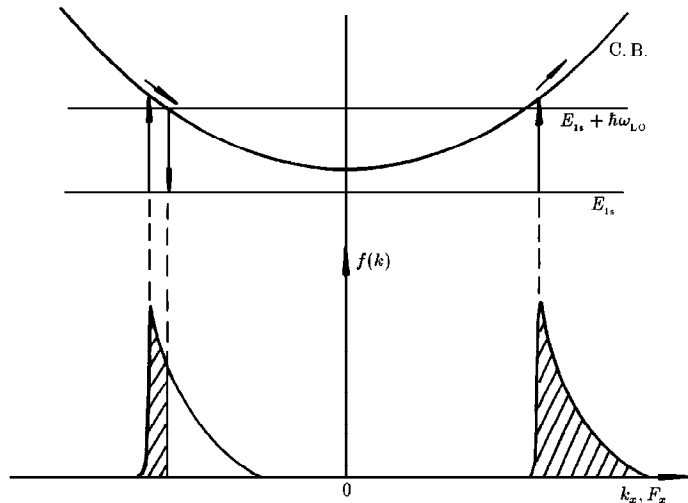


图 4 二能级(a)与三能级(b)共振极化子过程

的跃迁振子强度主要来自零声子态的贡献. 因此, 如果只考虑 $4f_{+3}$ 或 $5g_{+4}$ 等零声子态与 $1s + LO$ 的杂化, 那么当零声子态朝高能方向远离 $1s + LO$ 态时, 其跃迁吸收强度应随之增大. 然而, 由于 $2p_{-1} + LO$ 虚态的存在, 这时, 应考虑三能态的波函数杂化, 即一个零声子态和 $1s + LO, 2p_{-1} + LO$ 这两个单声子虚态的杂化. 这样, 纯电子态在极化子体系的归一化波函数中所占的比例将减小. 在零声子态离开 $1s + LO$ 而趋近 $2p_{-1} + LO$ 的过程中, 尽管 $1s + LO$ 态对体系波函数的贡献逐渐减小, 但是 $2p_{-1} + LO$ 态的贡献却随之增大. 因此, 纯电子态的跃迁振子强度在这过程中并不是单调增大的. 同时, 由于这时电子跃迁能量大于 LO 声子能量, 使得实声子发射成为可能, 这进一步引起光电导谱线强度的减弱和展宽. 也正是这个原因, 在 $E_{1s-2p_{-1}} + \hbar\omega_{LO}$ 线以上的光谱区, 未观察到有关的光电导响应.

前面已经提到, 在非共振极化子区, 体系波函数仍为杂化波函数. 因此, 对于从基态 $1s$ 到单声子态 $1s + LO$ 的跃迁而言, 其振子强度约为 α 量级^[1]. 由于 GaAs 的 Fröhlich 常

图 5 在 LO 声子能量处产生正光电导响应机制示意图

数 $\alpha \approx 0.06$, 这么小的振子强度不足以在 LO 声子能量处引起如图 1、图 2 所示的强光电导响应. Stocker 曾提出用伴随一个 LO 声子发射的能量弛豫模型来解释出现在 InSb 中位于 $E_I \pm \hbar\omega_{LO}$ (E_I 为杂质电子的离化能) 处的负光电导现象^[15,16]. 借用这个模型, 下面讨论与 LO 声子相对应的光电导峰的物理起源.

图 5、图 6 分别为产生 LO 正负光电导峰机制的示意图. 当略大于 LO 声子能量的光子将杂质束缚电子从基态(1s 态)激发到导带而成为热电子后, k_x 方向的电场力将使具有 $-k_x$ 方向动量的电子减速, 使其能量降低至与 LO 声子能量相同, 从而发射一个 LO 声子, 重新被 1s 态俘获. 而运动方向与电场力方向一致的电子将被加速, 重新被杂质基态俘获的概率则较小. 由于上述俘获机制的存在, 将产生如图 5 所示的导带电子分布函数, 很明显, 这时将产生正的光电导. 同样的机制将在 LO 声子的低能侧引起负的光电导“沟”(这在 B 掺杂的 Si 单晶的光电导谱中表现得十分明显), 从而形成 LO 声子光电导响应的非对称线型. 知道电子分布函数后, 可利用 Boltzmann 输运方程进行有关的理论计算, 进一步的工作还在进行中.

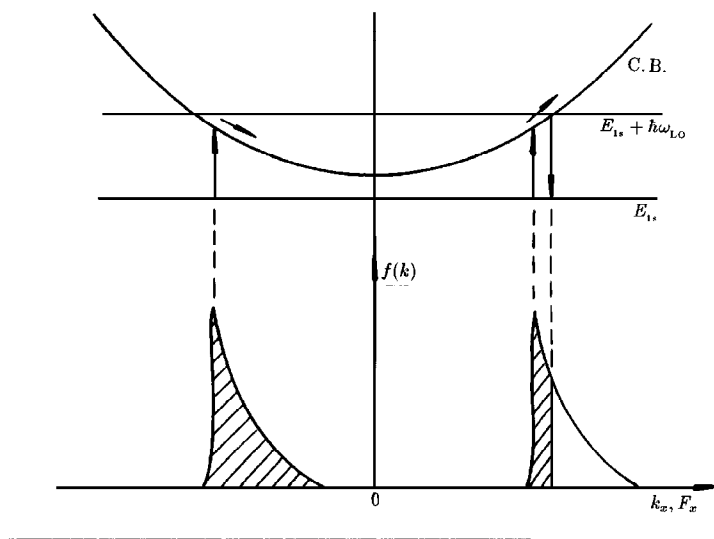


图 6 在 LO 声子能量处产生负光电导响应机制示意图

4 结 语

我们利用高灵敏度的傅里叶变换光热电离谱(FTPTIS)方法, 获得 GaAs 中 Si 施主 $4f_{+3}$, $5g_{+4}$ 等高激发态电子与 LO 声子共振耦合的信息. 并观察到三能级波函数杂化以及实声子发射所导致的跃迁振子强度随磁场的演化. 同时, 认为与 LO 声子对应的光电导峰起源于伴随一个 LO 声子发射的杂质基态对导带电子的重新俘获过程.

[1] Y.B. Levinson and E.I. Rashba, *Rep. Prog. Phys.*, **36**(1973), 1499.

[2] G. Lindemann, R. Lassnig, W. Seidenbusch *et al.*, *Phys. Rev.*, **B28**(1983), 4693.

- [3] H. Sigg, H.J.A. Bluyssen and P. Wyder, *Solid State Commun.*, **48**(1983), 897.
- [4] C.M. Hu, E. Batke, K. Kohler *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **76**(1996), 1904.
- [5] C.M. Hu, T. Friedrich, E. Batke *et al.*, *Phys. Rev.*, **B52**(1995), 12090.
- [6] D.M. Larsen, *Phys. Rev.*, **B30**(1984), 4595.
- [7] D.R. Cohn, D.M. Larsen and B. Lax, *Phys. Rev.*, **B6**(1972), 1367.
- [8] J.P. Cheng, B.D. McCombe and G. Brozak, *Phys. Rev.*, **B43**(1991), 9324.
- [9] J.P. Cheng, B.D. McCombe, J.M. Shi *et al.*, *Phys. Rev.*, **B48**(1993), 7910.
- [10] J.P. Cheng, B.D. McCombe, G. Brozak *et al.*, *Phys. Rev.*, **B48**(1993), 17243.
- [11] J.T. Devreese, *Polarons in Ionic Crystal and Polar Semiconductors* (North Holland Publishing Company, London, 1972), p. 237.
- [12] S.C. Shen, *Optical Properties of Semiconductors* (Scientific Press, Beijing, 1992), p. 257.
- [13] P.L. Liu, G.L. Shi, P.G. Wang *et al.*, *Chin. J. IR mm Waves*, **12**(1993), 307.
- [14] P.C. Makado and N.C. McGill, *J. Phys.*, **C19**(1986), 873.
- [15] H.J. Stocker, H. Levinstein and C.R. Stannard, *Phys. Rev.*, **150**(1966), 613.
- [16] H.J. Stocker, *Phys. Rev. Lett.*, **18**(1967), 1197.

RESONANT POLARON EFFECT RELATED WITH HIGH EXCITED STATES OF DONORS IN GaAs

CHEN ZHANG-HAI CHEN ZHONG-HUI LIU PU-LIN SHI XIAO-HONG
SHI GUO-LIANG SHEN XUE-CHU

(*State Key Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute
of Technical Physics, Academia Sinica, Shanghai 200083*)

(Received 3 April 1996)

ABSTRACT

Photoconductivity (PC) spectra of impurities in n type GaAs under magnetic field are presented. The resonant interaction between high excited states of bound electrons and LO phonons under relatively low magnetic field was observed. The magnetic field dependency of PC response of resonant polaron and the physical origin of the PC peak stuck on the energy position of LO phonon are discussed.

PACC: 7155; 7138; 7240