

## INFLUÊNCIA DA LUZ MONOCROMÁTICA NA DESPOLARIZAÇÃO TERMICAMENTE ESTIMULADA EM FILMES DE $Al_xGa_{1-x}As$ TIPO n

Luis V.A. Scalvi<sup>1</sup>, L. Oliveira<sup>1,2</sup> e M. Siu Li<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Departamento de Física -UNESP, Bauru, Cx. Postal 473, 17033 - 360, Bauru SP,

<sup>2</sup>DFCM, Instituto de Física de São Carlos - USP, Cx. Postal 369, 13560-970 São Carlos SP.

### RESUMO

Corrente de Despolarização Termicamente Estimulada (CDTE) aplicado em filmes semicondutores de  $Al_xGa_{1-x}As$  revela uma banda em 37K para uma amostra de gap direto ( $x \cong 0,32$ ) e 50K para uma amostra com gap indireto ( $x \cong 0,50$ ). Estas bandas são associadas à presença do defeito conhecido como centro DX, que devido à posição intersticial, deve gerar os dipolos elétricos obtidos nestas medidas. A aplicação de luz monocromática em conjunção com o experimento de CDTE, que normalmente é feito no escuro, induz transformações metaestáveis no centro DX, fundamentais para a sua identificação inequívoca. As linhas  $\lambda = 488nm$  do laser de  $Ar^+$  e  $\lambda = 647nm$  do laser de  $Kr^+$  são usadas para excitar a amostra e em ambos os casos as bandas de CDTE são completamente destruídas. Isso é uma forte indicação de que os dipolos encontrados estão efetivamente relacionados aos centros DX e além disso, têm estado fundamental com carga negativa.

### 1. INTRODUÇÃO

A técnica de Corrente de Despolarização Termicamente Estimulada (CDTE) é conhecida desde os anos 60 para o estudo de dielétricos e polímeros [1]. Recentemente, esta técnica foi aplicada pela primeira vez para a liga semicondutora  $Al_xGa_{1-x}As$  do tipo n [2,3]. A presença de dipolos elétricos foi observada tanto em  $Al_xGa_{1-x}As$  com gap direto [2] como para gap indireto [3] e foram interpretados como associados aos chamados centros DX, que são níveis profundos praticamente inevitáveis nestes materiais, quando dopados com elementos do grupo IV, para composições de alumínio aproximadamente maiores que 0,22 [4]. Entre os modelos propostos na literatura nos últimos 20 anos para explicar o centro DX, o mais aceito é o modelo de Chadi e Chang [5], no qual o átomo doador localizado numa posição substitucional captura dois elétrons e se move para uma posição intersticial, sugerindo uma explicação para a grande relaxação da rede observada

nestes materiais. O'Reilly [6] propôs que devido à existência de centros  $d^+$  (doadores nas posições substitucionais com ausência de 1 elétron), a associação de dipolos do tipo  $DX^- - d^+$  (o centro DX tem carga negativa devido à captura de dois elétrons) tem que ser considerada para explicar os dados de mobilidade obtidos, desde que a energia adquirida nessa associação não é desprezível.

A vantagem da técnica de CDTE é que ela permite a obtenção de sinais de corrente advindo da movimentação dos dipolos, e não de corrente eletrônica. Quando iluminamos a amostra de  $AlGaAs$  com uma luz intensa à baixa temperatura, os centros DX deverão ser destruídos, com a liberação de elétrons para a banda de condução. Como essa corrente não é medida pela técnica de CDTE, a aplicação de luz monocromática com intensidade e energia suficientes para excitar o centro DX é um excelente parâmetro para se identificar se as bandas de CDTE, obtidas pela técnica de CDTE convencional [2,3], estão realmente relacionadas aos centros DX.

Neste trabalho apresentamos resultados de CDTE no escuro para amostras de  $Al_xGa_{1-x}As$  dopados com Silício, e a influência de linhas de excitação do laser de  $Ar^+$  ( $\lambda = 488nm$ ) e de  $Kr^+$  ( $\lambda = 647nm$ ) aplicados por 5 minutos a 10 K. Também discutimos a aplicação destas técnicas combinadas para a investigação de outros defeitos em semicondutores III-V.

### 2. CORRENTE DE DESPOLARIZAÇÃO TERMICAMENTE ESTIMULADA EM $Al_xGa_{1-x}As$

No experimento de CDTE a amostra é submetida a uma voltagem de polarização ( $V_p = 1,25 \times 10^4$  V/cm) (fig.1), no escuro, à temperatura ambiente e resfriada até a temperatura de aproximadamente 10K, quando o potencial externo é removido. Seqüencialmente, a temperatura é elevada a uma taxa constante, com a amostra sempre no escuro (fig.1, s/ luz), e a corrente é medida com o auxílio de um eletrometro.

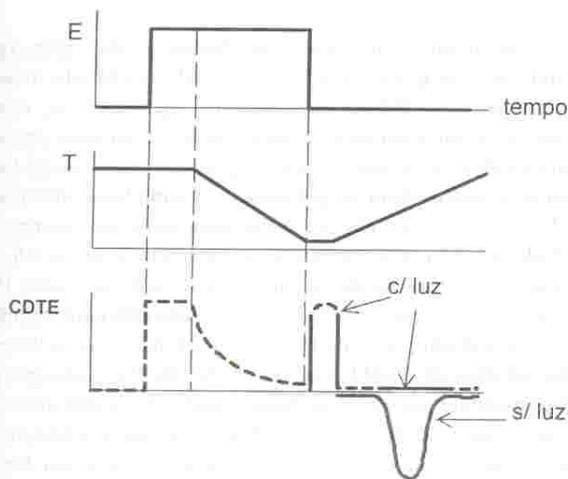


Fig.1 - Diagrama esquemático mostrando a evolução do campo elétrico aplicado na amostra (E), temperatura (T) e o sinal de corrente (CDTE). A curva tracejada representa a expectativa de corrente, que não é medida neste intervalo

As amostras usadas neste trabalho já foram discutidas anteriormente [7]. A figura 2 mostra o espectro experimental de CDTE para uma amostra de  $Al_xGa_{1-x}As$  de gap direto ( $x \cong 0,32$ ). Considerando-se que nenhuma luz atinge a amostra durante todo o experimento, então nenhum elétron é fotoexcitado durante a subida de temperatura. A corrente observada na figura 2 não é eletrônica, o que pode ser considerado pela sua ordem de magnitude, além disso não existe potencial aplicado na amostra. Não existe nenhum processo conhecido que poderia ser responsável pela liberação de uns poucos elétrons para a banda de condução em temperatura baixa, e recaptura à temperatura mais alta, tudo isso acontecendo no escuro. A interpretação

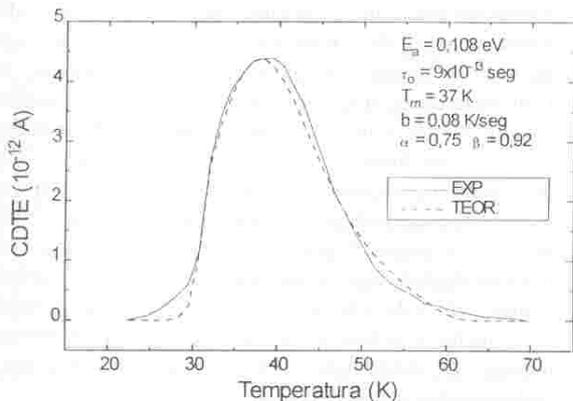


Fig.2 - CDTE para uma amostra de  $Al_xGa_{1-x}As$  de gap direto ( $x \cong 0,32$ ). Dopagem de Si  $\cong 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ .

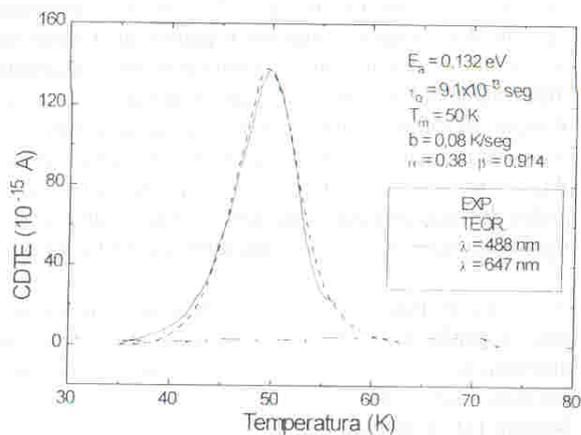
da corrente observada na figura 2 é devido à reorientação dos dipolos. Quando a amostra é polarizada à temperatura ambiente, os dipolos que originalmente estão distribuídos aleatoriamente na amostra, são orientados seguindo a direção do campo elétrico. Então este campo é removido à temperatura baixa. Com o aumento de temperatura os dipolos orientados na direção do campo aplicado tendem a voltar às suas posições originais. Portanto, uma corrente dipolar iônica é observada, como mostrado na figura 2.

A curva pontilhada na figura 2 representa o melhor ajuste para a banda de CDTE, o qual é obtido usando uma distribuição contínua de tempos de relaxação e energias de ativação como proposto originalmente por Havriliak-Negami [1]. A energia média de ativação para  $Al_xGa_{1-x}As$  de gap direto é 0,108eV com um fator pré-exponencial de Arrhenius de  $9 \times 10^{-13}$  segundos. O experimento de CDTE quando realizado para uma amostra de  $Al_xGa_{1-x}As$  de gap indireto ( $x \cong 0,50$ ) também fornece uma banda com pico a 50K, como mostrado na figura 3.

A simulação numérica, baseada no modelo de Havriliak-Negami (pontilhada), gerou uma energia média de ativação de 0,132eV, com o fator pré-exponencial de Arrhenius de  $9,1 \times 10^{-13}$  segundos. O aspecto mais interessante desses resultados é que as energias de ativação, obtidas tanto para a amostra de gap direto como para gap indireto, estão em ótima concordância com a energia de ligação dos centros DX [8], o que é uma forte indicação de que a corrente dipolar elétrica, obtida com os experimentos de CDTE, vem de alguma relaxação na qual certamente está envolvido o centro DX. Com base nos nossos resultados é difícil afirmar que o dipolo em questão é  $d^+DX^-$ , o que confirmaria o modelo de O'Reilly, porém a concordância entre energia de ativação para relaxação dipolar nas amostras investigadas e a energia de ligação do centro DX, parecem apontar para um modelo cujo estado fundamental possui carga negativa, já que se a carga fosse nula não seria possível a formação de dipolos. Convém também mencionar a diferença de ordens de magnitude entre as correntes nas figuras 2 e 3. Isso se deve à dois fatores principais: a diferença na concentração do dopante Si, que é o dobro na amostra de gap direto; e a concentração de estados adicionais na amostra de gap indireto que competem com o centro DX para captura de elétrons à medida que a temperatura é abaixada, sendo responsáveis pelas propriedades de transporte a temperaturas menores que  $\cong 60K$ , conforme é discutido a seguir.

### 3 - INFLUÊNCIA DA LUZ MONOCROMÁTICA

Uma das características mais importantes do centro DX é chamado fotocondutividade persistente (PPC): Quando os elétrons são fotoexcitados a partir dos centros DX, à baixa temperatura, eles passam a ocupar a banda de condução.



**Fig.3** - CDTE para uma amostra de  $Al_xGa_{1-x}As$  de gap indireto ( $x \approx 0,50$ ). Dopagem de Si  $\approx 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . A linha traço-ponto representa a mesma medida após iluminação com  $\lambda = 488 \text{ nm}$  e a linha pontilhada representa a mesma medida após iluminação com  $\lambda = 647 \text{ nm}$ .

Mesmo após a remoção da luz eles permanecem neste estado condutivo por um tempo praticamente infinito, se a temperatura for suficientemente baixa. Em amostras de gap indireto, quando a luz é usada para excitar os elétrons dos centros DX, eles também são promovidos para a banda de condução, porém ao invés de permanecerem neste estado condutivo, eles são imediatamente capturados pelo estado hidrogênico associado ao vale X [9,10]. Este estado é profundo o suficiente para capturar os elétrons metaestavelmente, sem apresentar barreira, o que explica a ausência de PPC em temperaturas menores que  $\approx 60 \text{ K}$ . Esta característica torna a amostra de gap indireto particularmente interessante para se testar a hipótese de que os dipolos encontrados pelas medidas de CDTE convencional estão efetivamente relacionados aos centros DX.

Assim o experimento de CDTE pode ser realizado com uma pequena modificação (fig.1), ou seja, quando a temperatura está no seu valor mínimo ( $\approx 10 \text{ K}$ ) a amostra é iluminada com luz monocromática por 5 minutos (fig.1, c/ luz) e então a luz é removida e o experimento volta a ser realizado no escuro. Com este procedimento, a banda de CDTE obtida pelo método convencional é destruída usando-se a luz do laser de Ar<sup>+</sup> ( $\lambda = 488 \text{ nm}$ , que está acima do gap de energia dessa amostra), e também é destruída excitando-se a amostra com a luz do laser de Kr<sup>+</sup> ( $\lambda = 647 \text{ nm}$ ) que está abaixo do gap de energia. Isto está mostrado na figura 3. Em ambos os casos, os feixes de luz possuem energia acima da energia limitante para fotoexcitação do centro DX [11,12], que está em torno de 0,8 eV e é independente da composição de alumínio.

Os resultados mostrados na figura 3 são uma forte indicação de que os dipolos encontrados estão relacionados aos centros DX e ainda mais, possuem o estado fundamental carregado negativamente, conforme previsto no modelo de Chadi Chang [5], já que se o estado fosse neutro, não poderia ser polarizado. A completa confirmação de que os dipolos obtidos estão associados aos centros DX pode ser feita investigando-se a região em torno de 0,8 eV, que é a energia limitante para fotoexcitação do centro DX, conforme já citado. A iluminação da amostra com um feixe de energia um pouco menor que 0,8 eV não deveria destruir as bandas de CDTE, já um feixe de luz com energia ligeiramente maior seria responsável pela diminuição na intensidade das bandas de CDTE, esse efeito sendo maior com aumento do tempo de exposição à luz (num tempo suficientemente longo) até que destruísse completamente a banda. As duas linhas usadas neste trabalho já estão na região de saturação da fotoexcitação do centro DX e portanto, destroem completamente o defeito. Medidas com energias em torno de 0,8 eV já estão sendo realizadas e a grande dificuldade tem sido a obtenção de linhas estreitas e de intensidade comparável às linhas de Ar<sup>+</sup> e Kr<sup>+</sup> usadas neste trabalho.

#### 4. CONCLUSÃO

Medidas de CDTE realizadas para  $Al_xGa_{1-x}As$  revelam a presença de dipolos elétricos tanto em amostras com gap direto como indireto. Estes dipolos são associados aos centros DX, presentes nestes materiais. A interação com a luz monocromática destrói as bandas de CDTE obtidas para a amostra com gap indireto, conforme previsto [3], o que sugere fortemente que os dipolos são efetivamente advindos do centro DX, e além disso, o estado fundamental é um estado com carga negativa, conforme o modelo proposto por Chadi-Chang [5].

A combinação de técnicas de CDTE no escuro e com luz, apesar de usada neste trabalho para a interpretação de um problema específico, pode ser estendida para a investigação de outros níveis profundos em semicondutores III-V. Considerando-se que a interação com luz leva a diferentes estados de carga nos defeitos, a realização de medidas no escuro e medidas na qual a luz está presente, leva a diferentes resultados experimentais, que interpretados conjuntamente podem se tornar um teste definitivo no modelo proposto. A única coisa que pode mudar, em se tratando de aplicação destas técnicas para outros defeitos é o modo de aplicação de luz. Para alguns casos pode ser conveniente a aplicação de luz à temperatura ambiente ou mesmo a iluminação durante todo o processo de resfriamento ou aquecimento.

## 5. AGRADECIMENTOS

As amostras usadas neste estudo foram crescidas em Oregon State University - Estados Unidos. Luís V.A. Scalvi agradece a hospitalidade recebida durante sua estadia em Corvallis. Os autores agradecem o suporte financeiro do CNPq, Fapesp, Finep e Capes.

## 6. REFERÊNCIAS

1. BRÄUNLICH, P.; "Topics in Applied Physics"; Vol. 37, "Thermally Stimulated Relaxation in Solids". Springer-Verlag; New York; 1979
2. SCALVI, L.V.A., OLIVEIRA, L., MINAMI, E. e SIU LI, M.; "Dipole Relaxation Current in n-type  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ "; *Appl. Phys. Lett.*; **63** (19): 2658-60, 1993
3. SCALVI, L.V.A., OLIVEIRA, L. e SIU LI, M.; "Dipole Relaxation Current in n-type  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ "; *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*; vol. 325; 285-90, 1994
4. MOONEY, P.M.; "Deep Donor Levels (DX centers) in III-V semiconductors"; *J. Appl. Phys.*; **67**(3): R1-R26, 1990
5. CHADI, K.J. e CHANG, C.D.; "Energetics of DX-Center formation in GaAs and  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  alloys"; *Phys. Rev. B*; **39**(14): 10063-70, 1989
6. O'REILLY, E.P.; "Pressure dependence of DX center mobility in highly doped GaAs"; *Appl. Phys. Lett.*; **55**(4): 1409-11, 1989
7. SCALVI, L.V.A., OLIVEIRA, L., MINAMI, E. e SIU LI, M.; "Propriedade Dipolar Elétrica em filmes de  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  tipo n"; *XIV CBRATIC* (aceito)
8. CHADI, N., HENDERSEN, T., KLEM, J., MASSELINK, W.T., FISCH, R., CHANG, Y.C. e MORKOÇ, H.; "Comprehensive analysis of Si-doped  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  ( $x=0$  to 1): Theory and Experiments"; *Phys. Rev. B*; **30**(8): 4481-92, 1984
9. DMOCKOWSKI, J.E., DOBACZEWSKI, L., LANGER, J. M. e JANTSCH, W.; "Electron Trapping by metastable effective mass states of donors in indirect bandgap  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}:\text{Te}$ "; *Phys. Rev. B*; **40**(14): 9671-82, 1989
10. DOBACZEWSKI, L. e KACZOR, P.; "Photoionization of the DX (Te) centers in  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ : Evidence for a negative-U character of the defect"; *Phys. Rev. B*; **44**(16): 8621-32, 1991
11. LEGROS, R., MOONEY, P. M. e WRIGHT, S.L.; "Photoionization Cross Section of the DX Center in Si-doped  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ "; *Phys. Rev. B*; **35**(14): 7505-10, 1987
12. MOONEY, P.M., NORTHROP, G.A., MORGAN, T.N. e GRIMMEISS, H.G.; "Evidence for large Lattice Relaxation at the DX Center in Si-doped  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ "; *Phys. Rev. B*; **37**(14): 8298-307, 1988