

- [1] Агранович В. М., Гинзбург В. Л. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. М., 1965. 374 с.
- [2] Пекар С. И. Кристаллооптика и добавочные световые волны. Киев. 1982. 295 с.
- [3] Демиденко А. А., Лебедев М. В., Пекар С. И., Страшникова М. И., Тимофеев В. Б., Цекава Б. Е. // ЖЭТФ. 1985. Т. 89. В. 1. С. 330—335.
- [4] Kiselev V. A., Razbirin B. S., Uraltsev I. N. // Phys. St. Sol. (b). 1975. V. 72. N 1. P. 161—172.
- [5] Давыдов А. С. Теория твердого тела. М., 1976. 640 с.
- [6] Hopfield J. J., Thomas D. G. // Phys. Rev. 1963. V. 132. N 2. P. 563—572.
- [7] Ярив А. Квантовая электроника и нелинейная оптика. М., 1973. 455 с.

Институт полупроводников АН УССР
Киев

Получено 29.05.1989
Принято к печати 5.06.1989

ФТП, том 23, вып. 10, 1989

**ВЛИЯНИЕ ОТНОШЕНИЯ ПОТОКОВ МЫШЬЯКА И ГАЛЛИЯ
НА ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЮ АРСЕНИДА ГАЛЛИЯ,
ПОЛУЧЕННОГО МЕТОДОМ
МОЛЕКУЛЯРНО-ЛУЧЕВОЙ ЭПИТАКСИИ**

Лубышев Д. И., Мигаль В. П., Преображенский В. В.,
Чалдышев В. В., Шмарцев Ю. В.

Известно, что отношение потоков As_4 и $Ga(P_{As}/P_{Ga})$ в молекуллярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) GaAs влияет на электрофизические и люминесцентные свойства материала [1—5]. Для изучения такого рода закономерностей в этих работах при различных отношениях P_{As}/P_{Ga} выращивались серии образцов, в которых, однако, от одного эксперимента к другому могли изменяться, например, концентрация фоновых примесей и другие условия роста.

Целью настоящей работы является исследование влияния отношения P_{As}/P_{Ga} на люминесценцию эпитаксиальных слоев арсенида галлия, полученного методом молекуллярно-лучевой эпитаксии. Для устранения влияния неуправляемых изменений условий выращивания слоев в данной работе была использована методика Векшинского [6], позволяющая непрерывно изменять P_{As}/P_{Ga} вдоль подложки.

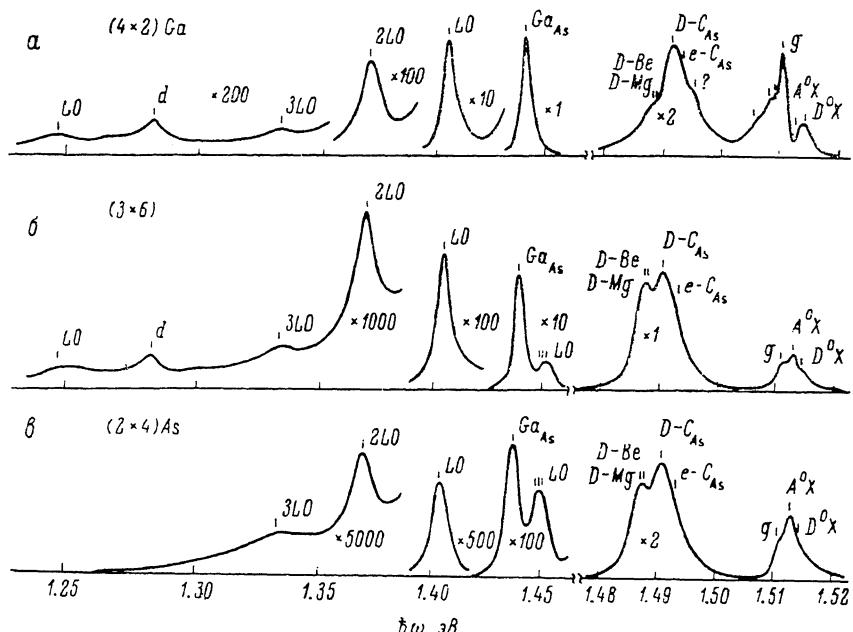
Эпитаксиальные слои арсенида галлия выращивались в однокамерной установке МЛЭ на подложках (100) GaAs : Cr при температурах 515—585 °C со средней скоростью роста ~ 1 мкм/ч. Толщина слоев составляла 2—3 мкм. Концентрация носителей заряда и их подвижность измерялись при 300 и 77 K на образцах размером 2×2 мм методом Ван-дер-По. Исследования фотoluminesценции (ФЛ) проводились при 77 и 4.2 K по стандартной методике [7] с разрешением не хуже 0.1 мэВ.

Молекуллярный поток As_4 измерялся ионным манометром, датчик которого вносился в зону роста. Поток галлия определялся из скорости роста слоев. При этом считалось, что коэффициент прилипания галлия равен единице.

Молекуллярные потоки As_4 и Ga формировались двумя источниками, оси которых лежали в одной плоскости, расположенным под углом 45° к поверхности подложки. Расстояние между источником и центром подложки составляло 80 мм. При такой геометрии расположения источников на длине 10 мм вдоль поверхности подложки отношение потоков P_{As}/P_{Ga} меняется от 2 : 1 до 9 : 1. Изменение отношений потоков в этих пределах соответствует изменению типа поверхности структуры от (4×2) Ga-стабилизированной до (2×4) As-стабилизированной, что фиксировалось в наших экспериментах с помощью дифракции быстрых электронов. При отношении $A_{As}/P_{Ga} \approx 3 : 1$ наблюдалась также

промежуточная структура (3×6), соответствующая стехиометрическому составу поверхности [8].¹

Измерения коэффициента Холла показали, что все образцы обладали *p*-типом проводимости. Концентрация дырок была максимальной в области, соответствующей структуре (4×2)Ga, и составляла $(5 \div 10) \cdot 10^{15}$ см⁻³ при 300 и 77 К. С увеличением отношения $P_{\text{As}}/P_{\text{Ga}}$ концентрация дырок уменьшалась, и при $P_{\text{As}}/P_{\text{Ga}} = 9 : 1$ образцы становились высокомягкими с удельным сопротивлением $> 10^4$ Ом·см. Изменение подвижности было немонотонным с максимумом (480 и 5000 см²/В·с при 300 и 77 К) в области, соответствующей поверхности структуре (3×6). Обнаруженная закономерность изменения электрофизических свойств материала коррелирует с данными работы [2], хотя переход от *n*-типа к *p*-типу проводимости слоев при изменении $P_{\text{As}}/P_{\text{Ga}}$ нами не наблюдался.



Спектры фотолюминесценции при 4.2 К арсенида галлия, выращенного методом молекулярно-лучевой эпитаксии в условиях, соответствующих образованию на поверхности роста структур (4×2)Ga (a), (3×6) (b), (2×4)As (c).

На рисунке представлены типичные спектры ФЛ при 4.2 К, снятые в точках, соответствующих поверхностным структурам (4×2)Ga (a), (3×6) (b), (2×4)As (c) для образца, выращенного при 560 °C. Рассмотрим структуру и характер изменения спектра ФЛ при варьировании $P_{\text{As}}/P_{\text{Ga}}$.

В области краевого излучения для всех трех случаев характерны люминесценция экситонов, связанных на мелких нейтральных донорах D^0X , ионизированных донорах D^+X , нейтральных акцепторах A^0X , а также линия *g* и серия линий в области 1.511—1.504 эВ, возможно, обусловленных рекомбинацией экситонов, связанных на дефектах с глубокими уровнями [9, 10]. Линия A^0X доминирует в экситонном излучении, если выращивание слоя производилось в условиях, соответствующих (2×4)As-стабилизации поверхности. Однако, как видно из рисунка, зависимость интенсивности A^0X от $P_{\text{As}}/P_{\text{Ga}}$ немонотонна и имеет максимум в области, соответствующей стехиометрии [поверхностная структура (3×6)]. Напротив, интенсивность излучения в области 1.511—1.504 эВ, в том числе и линии *g*, доминирующей в краевом излучении в области структуры поверхности (4×2)Ga, быстро и монотонно уменьшается при увеличении $P_{\text{As}}/P_{\text{Ga}}$.

В области спектра ФЛ 1.495—1.475 эВ среди линий излучательной рекомбинации на мелких акцепторах во всех образцах доминировали переходы донор—

¹ Это отношение несколько изменялось при варьировании температуры роста.

акцептор С ($D-C_{As}$). Наблюдались также линии ФЛ, связанные с акцепторами иной химической природы, например Be_{Ga} или Mg_{Ga} , для образца, спектр ФЛ которого представлен на рисунке. Кроме того, в спектрах ФЛ ряда образцов наблюдалась линия 1.495 эВ, возможно, связанная с излучательной рекомбинацией на более мелком, чем углерод, акцепторе, природа которого не ясна [11]. При варьировании P_{As}/P_{Ga} интенсивности всех идентифицированных акцепторных линий ФЛ изменялись сходным образом и обычно принимали максимальное значение в области, соответствующей поверхности структуре (3×6). Напротив, интенсивность линии 1.495 эВ быстро уменьшалась при увеличении P_{As}/P_{Ga} , и в области, соответствующей структуре (2×4)As, эта полоса не обнаруживалась в спектрах ФЛ.

Линия 1.44 эВ, сопровождаемая серией фононных повторений, наблюдалась в спектрах ФЛ всех исследованных образцов. Считается, что эта линия связана с двухзарядным акцептором Ga_{As} [12, 13]. Как видно из рисунка, в области, соответствующей структуре (4×2)Ga, полоса 1.44 эВ является наиболее сильной в спектре ФЛ. При увеличении P_{As}/P_{Ga} ее интенсивность быстро уменьшается на несколько порядков. Подобным же образом изменяется и интенсивность слабой линии 1.28 эВ (d на рисунке), связанной с глубоким центром с энергией ионизации 0.24 эВ.

Описанные выше закономерности изменения концентрации и подвижности носителей заряда и спектров ФЛ при варьировании отношения потоков As_4 и Ga качественно сохранялись при любых температурах роста в диапазоне 515—585 °C, несмотря на определенные изменения электрофизических и люминесцентных свойств образцов. Обсудим возможные причины этих явлений.

Относительно небольшие изменения интенсивностей донорно-акцепторных линий ФЛ (1.48—1.49 эВ), а также линий экситонов, связанных с мелкими примесями, свидетельствуют о том, что варьирование P_{As}/P_{Ga} слабо влияет на захват этих примесей (в частности, углерода) в кристалл. Небольшой максимум интенсивности этих линий ФЛ при $P_{As}/P_{Ga}=3-4$, на наш взгляд, скорее всего обусловлен не увеличением захвата мелких примесей, а уменьшением скорости безызлучательной рекомбинации за счет улучшения структурного совершенства кристалла при составе поверхности, близком к стехиометрическому. Ранее в работе [8] методами релаксационной спектроскопии глубоких уровней и фотоемкостной спектроскопии действительно был обнаружен минимум концентрации глубоких центров рекомбинации при $P_{As}/P_{Ga}=3.5-4$.

В отличие от линий, связанных с мелкими примесями, интенсивности полос ФЛ, обусловленных глубокими дефектами 1.28 и 1.44 эВ, а также линии 1.495 эВ и экситонной группы линий 1.504—1.511 эВ резко уменьшаются при увеличении P_{As}/P_{Ga} . Можно предположить, что увеличение P_{As}/P_{Ga} приводит к залечиванию дефектов в анионной подрешетке кристалла. Действительно, полоса 1.44 эВ связана с антиструктурным дефектом в анионной подрешетке Ga_{As} . Высказывалось предположение [14], что линия 1.28 эВ обусловлена вторым зарядовым состоянием этого акцептора. Наблюдаемые нами закономерности в изменении интенсивности линии 1.28 эВ согласуются с этой моделью. Возможно, что экситонная группа линий 1.504—1.511 эВ, а также полоса 1.495 эВ тоже связаны с дефектами в подрешетке мышьяка или междоузельными атомами галлия.

Таким образом, можно заключить, что варьирование потоков As и Ga существенно изменяет электрофизические и люминесцентные свойства слоев при молекулярно-лучевой эпитаксии арсенида галлия. Оптимальным с точки зрения получения структурно совершенных слоев является отношение P_{As}/P_{Ga} , при котором наблюдается поверхностная структура (3×6), соответствующая стехиометрическому составу поверхности роста.

Список литературы

- [1] Salerno L. P., Koteles E. S., Gormley J. V., Sowell B. J., Brodi E. M., Chi J. Y., Holmstrom R. P. // J. Vac. Sci. Techn. B. 1985. V. 3. N 2. P. 618—621.
- [2] Saleses A., Massies J., Neu G., Contour J. P. // Electron. Lett. 1984. V. 20. N 21. P. 872—874.
- [3] Amano C., Shibukawa K., Ando K., Yamaguchi M. // Electron. Lett. 1984. V. 20. N 4. P. 174—175.

- [4] Kudo K., Makita Y., Takayasu I., Nomura T. // J. Appl. Phys. 1986. V. 59. N 3. P. 888—891.
- [5] Skromme B. J. et al. // J. Appl. Phys. 1985. V. 58. N 12. P. 4682—4702.
- [6] Векшинский С. А. Новый метод металлографического исследования сплавов. М., 1944. 252 с.
- [7] Бирюлин Ю. Ф., Воробьева В. В., Голубев В. Г., Голубев Л. В., Иванов-Омский В. И., Новиков С. В., Осутин А. В., Савельев И. Г., Чалдышев В. В., Шмарцев Ю. В., Ярошевич О. В. // ФТП. 1987. Т. 21. В. 12. С. 2201—2209.
- [8] Massies J., Etienne P., Deraly F., Linh N. T. // Surf. Sci. 1980. V. 99. N 1. P. 121—131.
- [9] Skolnik M. S., Harris T. D., Tu C. W., Brennan T. M., Sturge M. D. // Appl. Phys. Lett. 1985. V. 46. N 4. P. 427—429.
- [10] Beye A. C., Neu G. // J. Appl. Phys. 1985. V. 58. N 9. P. 3549—3569.
- [11] Rao E. V. K., Alexandre F., Masson J. M., Alloyon M., Goldstein L. // J. Appl. Phys. 1985. V. 57. N 2. P. 503—508.
- [12] Miura M., Mannon M., Shinozaki K., Naritsuka S., Ishii M. // Japan. J. Appl. Phys. 1986. V. 25. N 7. P. L611—L613.
- [13] Hiramoto T., Mochizuki Y., Ikoma T. // Japan. J. Appl. Phys. 1986. V. 25. N 10. P. L830—L832.
- [14] Shanabrook B. V., Moore W. J., Bishop S. G. // J. Appl. Phys. 1986. V. 59. N 7. P. 2535—2537.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Получено 30.05.1989
Принято к печати 9.06.1989