

СТРУКТУРНЫЕ ДЕФЕКТЫ И ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ СЛОЕВ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$

Г. Н. Семенова, В. П. Кладько, Т. Г. Крыштаб, Ю. Г. Садофьев,
А. В. Свительский, С. В. Корытцев

Институт полупроводников Академии наук Украины,
252650, Киев, Украина
(Получена 10.06.1992. Принята к печати 20.07.1992)

Методами низкотемпературной фотолюминесценции (ФЛ), рентгеновской топографии и дифрактометрии изучалось влияние состава твердого раствора на структуру и свойства эпитаксиальных слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ для интервала составов ($0.002 < x < 0.01$), полученных молекулярно-лучевой технологией.

Показано, что по мере увеличения степени изовалентного легирования эпитаксиальных слоев на фоне релаксации внутренних напряжений путем введения дислокаций несоответствия наблюдается преобразование спектра ФЛ в области $1.3 < h\nu < 1.5$ эВ, сопровождающееся немонотонным поведением интенсивности краевой полосы и квантового выхода ФЛ, связанное с изменением числа центров безызлучательной рекомбинации, а также перераспределением остаточной акцепторной примеси углерода (C_{As}) по глубине пленки вследствие геттерирующего влияния дислокаций несоответствия.

Концепция легирования монокристаллов и эпитаксиальных слоев (ЭС) GaAs изовалентной примесью In, развиваемая в работах [1-3], предполагает замещение индием вакансий галлия $V_{\text{Ga}} \rightarrow [\text{In}_{\text{Ga}}]$, которые являются центрами безызлучательной рекомбинации [4]. При этом в определенном интервале составов увеличивается эффективность люминесценции. Одновременно с этим процессом при введении In вследствие существенного различия атомных радиусов In ($r_{\text{In}} = 1.44 \text{ \AA}$) и Ga ($r_{\text{Ga}} = 1.26 \text{ \AA}$) возникающие микронапряжения в свою очередь могут приводить к генерации дефектов и преобразованию системы исходных точечных дефектов. Эти два процесса взаимосвязаны, зависят от технологии выращивания ЭС [5], чистоты [уровня остаточных природных примесей С и (или) Si], уровня легирования, вида и величины деформационных полей ϵ , определяемых толщиной ЭС и рассогласованием параметров решетки пленка—подложка.

В работе изучалось влияние состава твердого раствора и увеличивающегося рассогласования параметров решетки пленка—подложка по мере изовалентного легирования ЭС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($0.002 \leq x \leq 0.01$), выращенных по молекулярно-лучевой технологии, на спектры фотолюминесценции (ФЛ) во взаимосвязи с возможной релаксацией внутренних механических напряжений путем образования дислокаций несоответствия (ДН) в границе раздела или дополнительного дефектообразования.

Методика эксперимента

Исследовались ЭС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($0.002 < x < 0.01$), выращенные на высокоомных подложках (100) GaAs методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) при температуре роста $\sim 600^\circ\text{C}$. Толщина пленок составляла $1.1 \div 1.4$ мкм. Концентрация и подвижность свободных электронов, определяемые по эффекту Холла

№ серии	Марка подложки	Радиус изгиба R , м	Дислокации несоответствия	$\Delta a/a_2$	Эпитаксиальный слой (ЭС)			
					толщина ЭС, мкм	концентрация свободных носителей, см^{-3}	подвижность μ , $\text{см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$	состав x , мол%
1 (88)	АГЧП	+23	Нет	$9.9 \cdot 10^{-4}$	1.4	$8 \cdot 10^{17}$	< 1000	0.2
2 (89)	АГЧП	+30	»	$1.27 \cdot 10^{-3}$	1.1	$8 \cdot 10^{17}$	< 1000	0.4
3 (90)	АГЧП	-150	Единичные	$1.48 \cdot 10^{-3}$	1.45	$6 \div 8 \cdot 10^{17}$	< 1000	0.42
4 (91)	АГЧП	+152	Сетка	$1.85 \cdot 10^{-3}$	1.3	$5 \div 8 \cdot 10^{17}$	< 1000	0.9

с холл-фактором, равным 1, составляли: $n \leq 8 \cdot 10^{17}$ и $\mu < 1000 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$ для всех изучаемых образцов.

Стационарная ФЛ возбуждалась излучением аргонового лазера ЛГ-503 с длинами волн λ_p : $\lambda_1 = 4880$, $\lambda_2 = 5145 \text{ \AA}$, плотностью возбуждения от 5 до 50 Вт/см² и He—Ne-лазера с $\lambda_3 = 6328 \text{ \AA}$ и плотностью возбуждения <10 Вт/см². Регистрация рекомбинационного излучения в диапазоне 0.8—1.15 мкм производилась ФЭУ-62 без охлаждения в токовом режиме в составе автоматизированного комплекса КСВУ-23. Измерения проводили в интервале температур 4.2÷80 и 300 К.

Для контроля структурного совершенства ЭС использовались рентгеновская топография на отражение (CuK_α -излучение в асимметричной геометрии съемки, рефлекс 531) и рентгенодифрактометрия в варианте двухкристального спектрометра на CuK_α -излучении в геометрии ($n, -m$), позволившие определить толщины слоев, профили изменения параметра решетки по толщине [6] и макроизгиб системы. Состав и электрофизические параметры использовавшихся серий образцов приведены в таблице. Каждая серия состояла из 4—12 образцов, полученных в едином технологическом цикле.

Экспериментальные результаты и обсуждение

Рентгеновские топограммы образцов показали, что при минимальном рассогласовании параметров решетки пленки a_1 и подложки a_2 (серия 1, 2) зарождения ДН еще не наблюдалось и пленки обладали достаточно высоким структурным совершенством. При увеличении рассогласования¹ до величины $\Delta a/a_2 \sim 1.48 \cdot 10^{-3}$ (серия 3) обнаруживались зарождающиеся единичные ДН (рис. 1, а), а при рассогласовании $\sim 1.85 \cdot 10^{-3}$ (серия 4) образовывалась регулярная сетка ДН по всей поверхности эпитаксиального слоя (ЭС) (рис. 1, б).

В изучаемом спектральном диапазоне типичные спектры ФЛ эпитаксиальных слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с различным содержанием In при температуре измерения $T = 80 \text{ К}$ содержали две основные полосы с интенсивностью излучательной рекомбинации: I_A и I_B (рис. 2, а—д), характерные для сильно легированного компенсированного арсенида галлия. Считается, что полоса I_B с энергией максимума излучения, лежащей в интервале $h\nu_B = 1.488 \div 1.478 \text{ эВ}$, 80 К, для всех изучаемых составов связана [7] с излучательными переходами электронов из зоны проводимости на уровень, связанный с мелким акцептором ($e-A^\circ$) [8], а полоса I_A ($h\nu_A = 1.502 \div 1.409 \text{ эВ}$, 80 К) — с зона-зонной рекомбинацией электронов и дырок. При комнатной температуре полоса I_B отсутствует и люминесценция определяется только зона-зонной рекомбинацией (рис. 3, а), напротив, при понижении температуры основной по интенсивности становится B -полоса за счет

¹ Рассогласование определялось как $a_1 - a_2/a_2$.

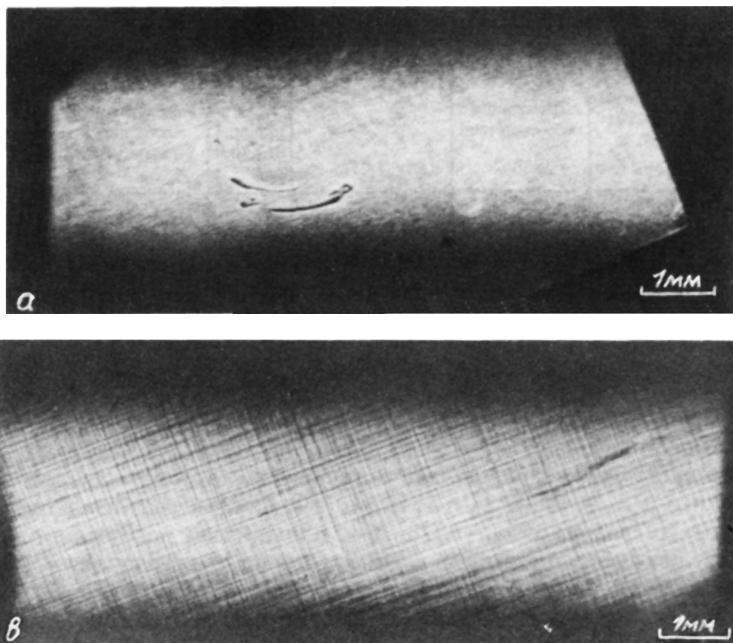


Рис. 1. Двухкристальная брэгговская топограмма ЭС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ серии 3 (а) и серии 4 (б); плотность поверхности (100); отражение (531); $\text{Cu } K\alpha_1$ — излучение. X12.

захвата дырок на мелкие акцепторные уровни и их рекомбинации со свободными электронами (рис. 3, *d*). Такая температурная зависимость спектров ФЛ обычно характерна для высоколегированного ($n > 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$) и компенсированного арсенида галлия. Следует отметить, что во всем изучаемом интервале составов концентрация электронов менялась незначительно в пределах ($5 \cdot 10^{17} \div 8 \cdot 10^{17}$) см^{-3} . По мере увеличения степени изовалентного легирования краевая I_A и акцепторная I_B полосы симметрично сдвигались в низкоэнергетическую сторону. Такое смещение полос ФЛ примерно соответствовало уменьшению ширины запрещенной зоны при переходе от бинарного соединения к твердому раствору $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$.

Содержание In оценивалось по сдвигу энергии максимума $h\nu_m$ зона-зонной $h\nu_A$ или зона-акцепторной полос рекомбинации $h\nu_B$ по формуле $\Delta E_g [\text{эВ}] = E_g \text{GaAs} - E_g \text{InGaAs} \cong 1.5x$, где x — молярное содержание In [2]. Концентрация In приведена в таблице в интервале $0.002 \leq x \leq 0.009$.

По мере увеличения уровня легирования индием (до $x \leq 0.0042$) происходило увеличение интегральной интенсивности краевой полосы I_A с последующим ее спадом ($x > 0.0042$) для образцов 4 серии, содержащих регулярную сетку ДН. Одновременно с немонотонным изменением интенсивности краевой полосы I_A происходило немонотонное изменение внешнего квантового выхода ФЛ $\eta = \int I(\lambda) d\lambda$, сопровождающееся уменьшением соотношения интенсивностей полос $S_B = I_B/I_A$ (S_B пропорционально отношению концентраций излучающих центров). Немонотонное уменьшение отношения интенсивностей линий ФЛ (примесной к краевой) с увеличением содержания In может свидетельствовать об уменьшении концентрации мелких акцепторов (серий 1—3) N_B при введении изоэлектронной примеси в арсенид галлия в предположении постоянного значения сечения захвата. Обычно мелкие акцепторные центры, через которые происходит излучательная рекомбинация свободных носителей, связывают с наличием остаточных неконтролируемых примесей [по-видимому, углерода и (или) кремния], и такого типа

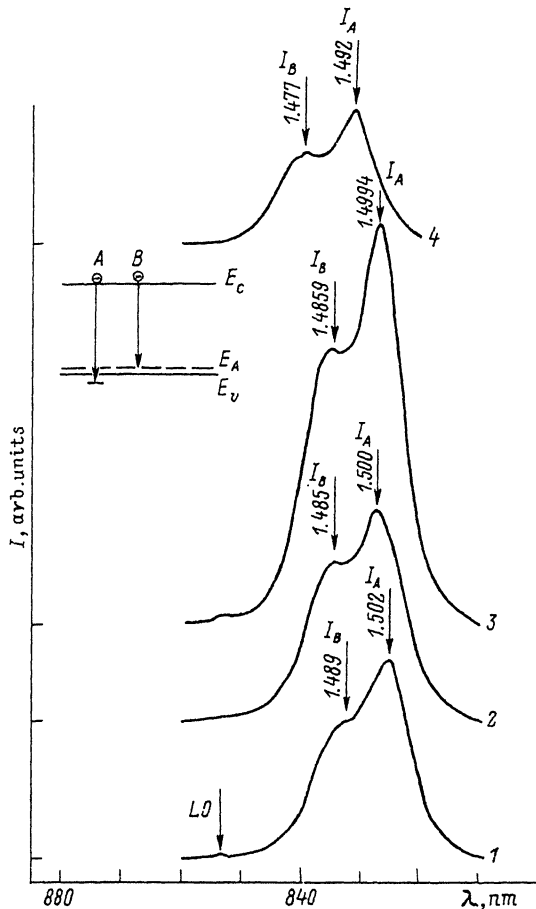


Рис. 2. Спектры ФЛ слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ при 80 К, $\lambda_p = 4880 \text{ \AA}$, с различным содержанием индия, x : 1 — 0.002, 2 — 0.004, 3 — 0.0042, 4 — 0.009. На вставке — энергетическая схема переходов.

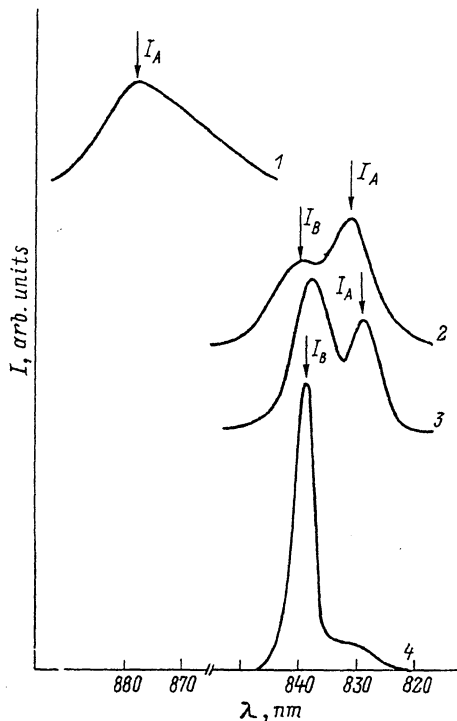


Рис. 3. Спектры ФЛ эпитаксиальных слоев $\text{In}_{0.01}\text{Ga}_{0.99}\text{As}$ (серия 4) при температурах измерения, К: 1 — 300, 2 — 80, 3 — 40, 4 — 6. $\lambda_p = 4880 \text{ \AA}$.

уменьшение количества центров можно связать с изменениями в системе акцепторов (остаточных примесей) при изменении структурного совершенства пленок. При введении ДН в границу раздела пленка—подложка, возможно, происходит перераспределение остаточных примесей с оттоком их от поверхности образцов на границе раздела. Энергия ионизации акцептора (E_A), вычисленная из положения максимума полосы люминесценции $h\nu_B$ ($e-A^*$), при $T = 4.2 \text{ К}$ составила $E_A = 27 \text{ мэВ}$, что соответствует энергии ионизации углерода C_{As} . (Так как технология получения пленок различных серий сохранялась постоянной и изменялось только содержание In высокой степени чистоты, значительные колебания в содержании углерода, связанные с невоспроизводимостью технологии, можно, очевидно, исключить из рассмотрения).

Для проверки перераспределения углерода по толщине пленок измерялось соотношение S_B во всем диапазоне изменения x при увеличении глубины зондирования.² При этом ФЛ возбуждалась излучением с $\lambda_2 = 5145$ и $\lambda_3 = 6328$

² Глубину зондирования оценивали по формуле $d_{eff} = 1/\alpha_n + L_D$, где L_D — диффузионная длина неосновных носителей, которая принималась $\approx 0.5 \text{ мкм}$ [9], α_n — коэффициент поглощения на длине волны λ_n [10].

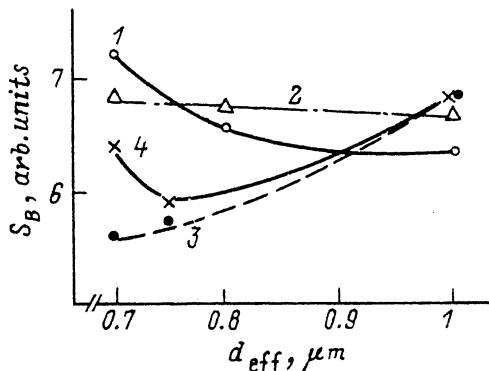


Рис. 4. Зависимости отношения интенсивностей полос I_B/I_A ФЛ от глубины зондирования d_{eff} для 1—4 серий образцов (1—4).

А при одинаковом уровне возбуждения. Глубина зондирования d_{eff} увеличивалась от ~ 0.7 (λ_1 , 80 К) до ~ 1.0 мкм (λ_3 , 80 К). По мере увеличения глубины зондирования содержание примеси углерода практически не изменялось для образцов серий 1 и 2, а по мере введения ДН происходило его перераспределение с возрастанием $N_{C_{As}}$ вблизи границы раздела и уменьшением вблизи поверхности (рис. 4). Так как при уменьшении уровня возбуждения, связанного с увеличением d_{eff} , возможно изменение соотношения $S_B = I_B/I_A$ в сторону увеличения из-за различной зависимости интенсивностей красовой и примесной полос от уровня возбуждения, экспериментально измерены значения S_B , при увеличении уровня возбуждения в 1.5—2 раза S_B изменилось не более чем на 3—4%. Для ответа на вопрос, не сопровождается ли такое перераспределение углерода также и перераспределением изовалентной примеси In по глубине ЭС, а также для исключения влияния уровня возбуждения на качественные оценки перераспределения остаточной примеси на всех образцах были изготовлены косые шлифы (химическое утонение) и проведен весь цикл измерений на λ_1 по косому шлифу. Было подтверждено геттерирование углерода дислокациями несоответствия границы раздела. Изменения содержания In по сдвигу максимума ФЛ (в пределах чувствительности метода 0.002 эВ, что соответствует изменению концентрации In $\sim 1 \cdot 10^{19}$ см $^{-3}$) обнаружено не было.

В работе показано, что релаксация внутренних напряжений в ЭС $In_xGa_{1-x}As$ на подложках GaAs, связанная при одинаковых толщинах пленок с рассогласованием параметров решетки пленка—подложка, по мере увеличения степени изовалентного легирования происходит путем введения ДН по механизму, требующему дальнейшего изучения методом просвечивающей электронной микроскопии. Одновременно с этим происходит перераспределение деформационных полей всей системы в целом (см. таблицу), сопровождающееся перераспределением остаточной акцепторной примеси. Учитывая знак концентрационного расширения углерода, а также соотношение ковалентных радиусов ($r_C = 0.77$ x) $r_C < r_{Ga}$, в поле внутренних напряжений примесь углерода в свободном состоянии может перемещаться по градиенту поля в сторону сжатия, что согласуется с эпюрой деформационных полей в системе пленка—подложка для 3 и 4 серий [11].

Использование на одном и том же объекте методов рентгенодифракционных, рентгенопографических и фотолюминесценции позволило четко и однозначно установить взаимосвязь между немонотонным

изменением интенсивности ФЛ МЛЭ ЭС InGaAs/GaAs и изменением дислокационной структуры границы раздела.

Таким образом, в процессе изовалентного легирования индием МЛЭ ЭС $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($0.002 \leq x \leq 0.01$) на фоне перераспределения деформационных полей и их релаксации путем введения ДН происходит увеличение интенсивности краевой полосы и внешнего выхода люминесценции ($x \leq 0.004$) с последующим спадом для $x > 0.004$, связанное с изменением концентрации центров безызлучательной рекомбинации, а также с перераспределением концентрации акцепторной примеси углерода по глубине пленок, которые мы объясняем гетеризирующим влиянием дислокаций несоответствия.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] В. К. Баженов, В. И. Фистуль. ФТП, 18, 1345 (1984).
- [2] Ю. Ф. Бирюлин, Н. В. Ганина, М. Г. Мильвидский, В. В. Чалдышев, Ю. В. Шмарцев. ФТП, 17, 108 (1983).
- [3] К. Д. Глинчук, К. Лукат, А. А. Прохорович. Оптоэлектроника и полупроводниковая техника, вып. 1, 39. Киев (1982).
- [4] Н. К. Дряпико, В. Ф. Коваленко, Г. П. Пека. УФЖ, 28, 1424 (1983).
- [5] В. А. Быковский, Т. И. Кольченко, В. М. Ломако. ФТП, 24, 2117 (1990).
- [6] Ю. И. Беляев, В. М. Гуделов, А. В. Колпаков. Поверхность. Физика, химия, механика, вып. 60 (1984).
- [7] В. И. Гавриленко, А. М. Грехов, Д. В. Корбутяк, В. Г. Литовченко. Оптические свойства полупроводников: Справочник, 608. Киев (1987).
- [8] А. П. Леванюк, В. В. Осипов. УФН, 133, 428 (1981).
- [9] Г. П. Пека, В. Ф. Коваленко, В. Н. Куценко. Люминесцентные методы контроля параметров полупроводниковых материалов и приборов, 152. Киев (1986).
- [10] С. Зи. Физика полупроводниковых приборов, Т. 1, 456. М. (1984).
- [11] Ю. А. Тхорик, Л. С. Хазан. Пластическая деформация и дислокации несоответствия в гетероэпитаксиальных системах, 304. Киев (1983).

Редактор В. В. Чалдышев
