

## ОПТИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ЭКСИТОННЫХ СПЕКТРОВ В ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНКАХ GaN

© Д.К.Нельсон, Ю.В.Мельник, А.В.Селькин, М.А.Якобсон,  
В.А.Дмитриев, К.Ж.Ирвин\*, К.Х.Картер мл.\*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

\*Cree Research, Inc., Durham, USA

(Поступила в Редакцию 24 июля 1995 г.)

Измерены низкотемпературные экситонные спектры люминесценции, отражения и поглощения света эпитаксиальных пленок GaN/6H-SiC. Из анализа спектров впервые определены силы осцилляторов и значения диссипативного затухания экситонных резонансов. Исследование температурной зависимости люминесценции GaN позволило выделить вклады в излучение свободных и связанных экситонов.

В последние годы достигнут заметный прогресс в технологии выращивания нитридов элементов третьей группы. Это связано с тем, что нитриды  $A_3B_5$  являются перспективными материалами для создания полупроводниковых приборов, работающих в голубой и ультрафиолетовой областях спектра. Вместе с тем исследования оптических свойств этих материалов крайне малочисленны, в частности отсутствует достаточно надежная интерпретация оптических спектров, регистрируемых в области края фундаментального поглощения.

В данной работе исследовались тонкие (1–3  $\mu\text{m}$ ) монокристаллические пленки GaN, полученные методом газофазной эпитаксии на 6H-SiC и  $Al_2O_3$ -подложках. Оптическая ось  $C$  кристалла (структура вюртцита) была перпендикулярна плоской поверхности пленки. Концентрация электрически активных примесей не превышала  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ .

Образцы помещались в гелиевый криостат, позволяющий варьировать температуру от 4.2 до 70 К. Спектры отражения регистрировались при угле падения  $\varphi = 45^\circ$  в поляризации света  $E \perp C$  ( $s$ -компонента) на спектрометре МДР-23 с использованием лампы накаливания КГМ-100. Для исследования спектров поглощения использовались пленки GaN, выращенные на подложках из  $Al_2O_3$ . Спектры люминесценции и отражения изучались на пленках GaN, выращенных на 6H-SiC-подложках. Для возбуждения спектров люминесценции использовалась ртутная лампа.

На рис. 1 представлены спектры отражения пленки GaN, измеренные при температуре 6 К. Известно [1,2], что валентная зона в гексагональных кристаллах GaN расщеплена кристаллическим полем и спин-орбитальным взаимодействием на три подзоны (состояния  $\Gamma_9$ ,

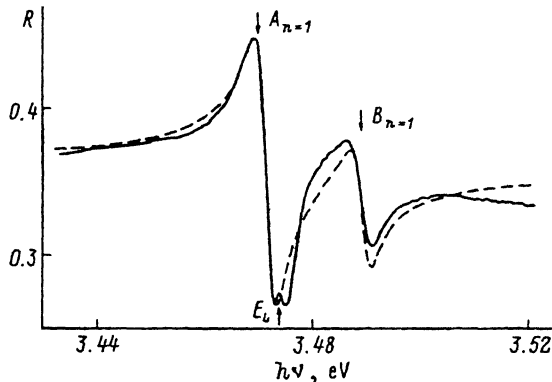


Рис. 1. Спектр отражения эпитаксиальной пленки GaN.  $T = 6$  К. Штриховая кривая — результат теоретического расчета.

$\Gamma_7$  и  $\Gamma_7$  группы симметрии  $C_{6v}$ ). Наблюдаемые в спектре особенности, показанные на рис. 1 стрелками, мы отождествляем с переходами в экситонные состояния  $A_{n=1}$  ( $\Gamma_9 - \Gamma_7$ ,  $E_A = 3.470$  eV) и  $B_{n=1}$  ( $\Gamma_7 - \Gamma_7$ ,  $E_B = 3.489$  eV). В области минимума отражения проявляется небольшая спектральная особенность в виде пика (spike) при энергии  $E_L = 3.474$  eV.

Для анализа спектров отражения использовалось следующее выражение для дисперсионной зависимости диэлектрической проницаемости  $\epsilon(\omega)$  с учетом безэкситонного «мертвого» слоя  $^{[3,4]}$  толщины  $d_{dl}$ :

$$\epsilon = \epsilon_b + \frac{4\pi\beta_A\omega_{0A}^2}{\omega_{0A}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_A} + \frac{4\pi\beta_B\omega_{0B}^2}{\omega_{0B}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_B},$$

где  $\omega_{0A,B}$  — резонансные частоты экситонных состояний  $A$  и  $B$ ,  $\Gamma_{A,B}$  — соответствующие константы затухания,  $\beta_{A,B}$  — поляризуемости, связанные с продольно-поперечными расщеплениями  $\omega_{LT}$  экситонных состояний ( $\omega_{LT} \approx 2\pi\beta\omega_0/\epsilon_b$ , где  $\epsilon_b$  — фоновая диэлектрическая постоянная). Параметры  $\omega_{0A,B}$ ,  $\beta_{A,B}$  и  $\Gamma_{A,B}$  определялись подгонкой по лучшему соответствию экспериментальных и теоретических спектров (теоретическая кривая показана на рис. 1 штриховой линией). Сила осциллятора была определена из соотношения  $\beta = kf$   $^{[5]}$ , где  $k = 0.2$  (коэффициент, рассчитанный для GaN).

В работах  $^{[2,6]}$  сообщалось о наличии максимумов отражения от  $A$ -,  $B$ - и  $C$ -зон в монокристаллах GaN, выращенных на сапфировых подложках. Некоторое смещение резонансной частоты  $A$ -экситона по сравнению с нашими данными может быть связано как с разными подложками (мы исследовали спектр отражения структур GaN/SiC), так и с разным качеством исходных материалов. Однако в любом случае положение резонансного состояния может быть сдвинуто за счет деформаций, связанных с различием параметров решеток подложки и слоя, их коэффициентов термического расширения. При этом образцы на подложках SiC более совершенны вследствие меньшей разницы постоянных решетки подложки и слоя. Экситонный  $B$ -резонанс (рис. 1) оказывается близким по частоте к спектральной особенности  $C$ , наблюдаемой авторами работ  $^{[2,6]}$  и связываемой с  $C$ -экситонной зоной.

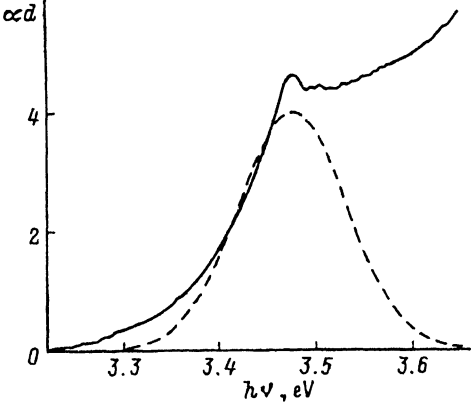


Рис. 2. Спектр поглощения пленки GaN.  $T = 4.2$  К. Толщина пленки  $d = 2.3 \mu\text{m}$ . Штриховая кривая — результат выделения линии поглощения.

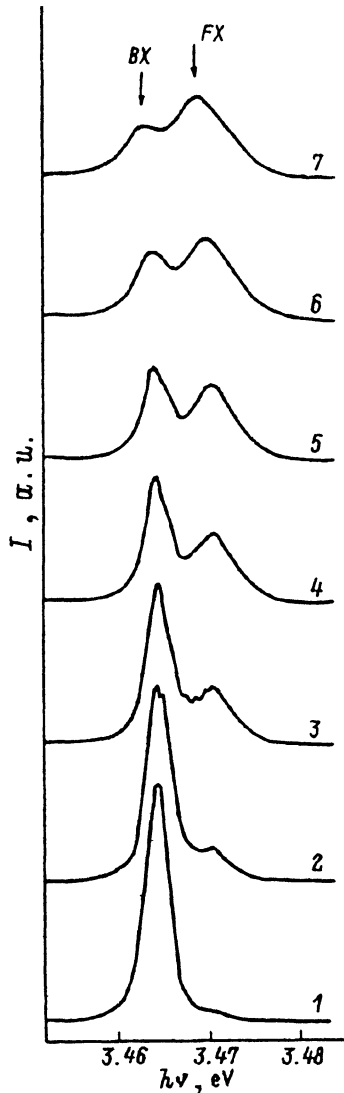


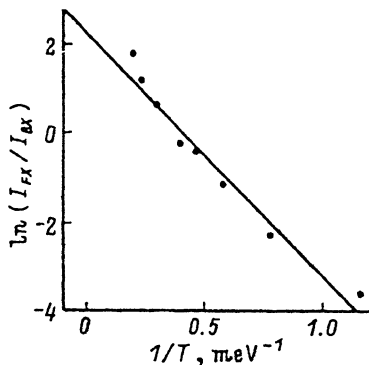
Рис. 3. Спектры люминесценции эпитаксиальной пленки GaN/6H-SiC при различных температурах.  $T$  (К): 1 — 6, 2 — 15, 3 — 20, 4 — 25, 5 — 30, 6 — 40, 7 — 60. Спектры пронормированы по интегральной интенсивности. Стрелками отмечены линии свободного (FX) и связанного (BX) экситонов.

Что касается пика  $E_L$  (3.474 eV), то его энергетическое положение коррелирует с положением особенности  $B$  из работ [2,6]. Мы не связываем наблюдаемую нами структуру  $E_L$  с проявлением  $B$ -резонанса, поскольку ее форма заметно меняется от образца к образцу. В то же время полосы отражения  $A$  и  $B$  сохраняют свой основной дисперсионный вид для всего набора исследованных образцов. Естественно интерпретировать структуру  $E_L$ , возникающую на частоте  $\omega_L$  продольного экситона  $A_{n=1}$ , как спектральное проявление приповерхностного переходного слоя (типа «мертвого» слоя для экситона Ванье-Мотта [4]).

Относительная узкозонность подложки из SiC не позволяет исследовать оптическое поглощение в этих структурах. Такие исследования были проведены на слоях, выращенных на сапфире (спектр на рис. 2). Эти слои менее совершенны, полуширина единственного отчетливо ре-

Рис. 4. Зависимость логарифма отношения интенсивностей линий излучения свободного ( $FХ$ ) и связанного ( $BХ$ ) экситонов от обратной температуры.

Точки — экспериментальные данные, сплошная линия — линейная аппроксимация. Наклон прямой соответствует величине  $\Delta E = 5.4 \text{ meV}$ .



гистрируемого состояния в таких слоях составляет почти  $100 \text{ meV}$ , в то время как полуширина экситонных линий отражения в структурах на  $\text{SiC}$  не превышает  $3\text{--}4 \text{ meV}$ . Интегральный коэффициент поглощения  $K$  определяется из соотношения  $K = \frac{\pi}{2} \alpha_{\text{max}} \Delta = 2.7 \cdot 10^3 \text{ eV} \cdot \text{cm}^{-1}$ , где  $\Delta$  — полуширина линии поглощения,  $\alpha_{\text{max}}$  — значение коэффициента поглощения в максимуме спектрального контура поглощения. Выделение линии поглощения  $A_{n=1}$  проводилось аппроксимацией края поглощения длинноволновым крылом гауссового контура [5].

Зная величину  $K$ , мы можем вычислить продольно-поперечное расщепление  $\omega_{LT}$  и значение силы осциллятора  $f$ , используя известные соотношения [7]

$$\omega_{LT} = K \frac{\text{ch}}{\pi} \frac{1}{\omega_0 \eta}; \quad f = K \frac{\eta \Omega_0}{11010^6}.$$

Здесь  $\Omega_0$  — объем элементарной кристаллической ячейки,  $\eta$  — коэффициент преломления. Полученные таким образом значения хорошо совпадают с данными анализа спектров отражения.

В результате нами получены следующие параметры экситонных переходов в монокристаллических пленках  $\text{GaN}$ . Для экситона  $A_{n=1}$ :  $\omega_{0A} = 3.470 \text{ eV}$ ,  $\Gamma_A = 3.5 \text{ meV}$ ,  $f_A = 0.0035$ ,  $\omega_{LTA} = 1.8 \text{ meV}$ ; для экситона  $B_{n=1}$ :  $\omega_{0B} = 3.489 \text{ eV}$ ,  $\Gamma_B = 3.5 \text{ meV}$ ,  $f_B = 0.0015$ ,  $\omega_{LTB} = 0.6 \text{ meV}$ ;  $\epsilon_b = 9.4$ ,  $d_{dl} = 6 \text{ nm}$ .

На рис. 3 представлена температурная зависимость спектра люминесценции пленки  $\text{GaN}$  на подложке  $6H\text{-SiC}$ . Из этого рисунка видно, что при температуре  $T \geq 20 \text{ K}$  в спектре люминесценции отчетливо проявляются две линии, коротковолновая ( $FХ$ ) из которых хорошо совпадает с энергетическим положением экситона  $A_{n=1}$  в спектре отражения. Интенсивность каждой из линий при повышении температуры уменьшается. Длинноволновая линия ( $BХ$ ) быстрее гаснет с ростом температуры. На рис. 4 приведена зависимость отношения интенсивностей этих линий от обратной температуры. Видно, что эта зависимость характеризуется бoльцмановским фактором  $\exp(-\Delta E/kT)$  с энергией  $\Delta E = 5.4 \text{ meV}$ , что в пределах точности эксперимента совпадает с энергетическим расстоянием между линиями. Таким образом, температурное поведение рассматриваемых линий излучения соответствует случаю теплового равновесия. С учетом энергетического положения линии  $BХ$  это позволяет предположить ее экситонно-примесную

природу. Заметим, что энергия температурного тушения, определенная по формуле Мотта [8] из температурной зависимости интенсивности линии  $BX$ , оказалась сильно заниженной, что свидетельствует о значительной роли безызлучательных процессов.

В заключение следует отметить, что в наших расчетах не учитывался вклад пространственной дисперсии (конечности трансляционной массы экситона), который, по-видимому, не очень существен для наших образцов из-за больших значений диссипативного затухания. Тем не менее учет пространственной дисперсии мог бы улучшить согласие теории с экспериментом, в частности воспроизвести спайковую структуру спектра отражения.

Авторы выражают благодарность Р.П.Сейсяну за полезные замечания и помощь при количественной обработке результатов.

#### Список литературы

- [1] Fiorentini Y., Methfessel M., Scheffler M. Phys. Rev. **B47**, 13353 (1993).
- [2] Dingle R., Sell D.D., Stokowski S.E., Ilegems M. Phys. Rev. **B4**, 4, 1211 (1971).
- [3] Hopfield J.J., Thomas D.G. Phys. Rev. **132**, 563 (1963).
- [4] Певцов А.Б., Селькин А.В. ЖЭТФ **83**, 516 (1982).
- [5] Алиев Г.Н., Кошуг О.С., Сейсян Р.П. ФТТ **36**, 2, 373 (1994).
- [6] Monemar B. Phys. Rev. **B10**, 2, 676 (1974).
- [7] Нокс Р. Теория экситонов. М. (1966). 220 с.
- [8] Шварц В. Тр. ИФА АН ЭССР **7** (1956).