

06.3;07;12

ОСОБЕННОСТИ ЭКСИТОН-ФОНОННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ СЛОЯХ ОКСИДА ЦИНКА НА САПФИРЕ

© Б.М.Атаев, А.М.Багамадова, В.В.Мамедов

В данной работе приведены результаты исследования фотолюминесценции эпитаксиальных слоев (ЭС) оксида цинка на сапфире в зависимости от технологических параметров осаждения и степени легирования. При этом особое внимание уделено анализу тонкой структуры экситонной фотолюминесценции (ЭФЛ), хорошо наблюдаемой в оксиде цинка при азотной температуре [1,2], с ростом толщины ЭС. Интересным представлялось также изучение особенностей ЭФЛ недавно полученных ЭС ZnO/Al_2O_3 , легированных донорной примесью галлия в процессе выращивания [3].

ЭС оксида цинка толщиной 1–10 мкм выращивались методом химического транспорта в проточном реакторе пониженного давления в атмосфере водорода [4]. Процедура легирования галлием приведена в [3]. Изучалась ЭФЛ свежеработанных слоев, не подвергнутых иным воздействиям. Источники возбуждения ЭФЛ — линия 313 нм ртутной лампы и N_2 -лазер. Регистрация спектров производилась с использованием синхронного детектирования и монохроматора SPM-2 с фотоумножителем. Образцы помещались непосредственно в жидкий азот. ЭС различной толщины выращивались в идентичных условиях. Использовалась также процедура послойного травления в 50%-й ортофосфорной кислоте. Спектр переходного слоя изучался возбуждением и регистрацией ЭФЛ через прозрачную для обеих областей сапфировую подложку — поворотом образца в криостате на 180° . Поскольку в области однофотонного возбуждения и излучения свободного экситона коэффициент поглощения $\alpha \sim 10^5 \text{ см}^{-1}$, то спектр ЭФЛ зондировался с шагом, меньшим 1 мкм. При этом очевидно, что глубина проникновения излучения в области фоновых повторений, где α существенно меньше, значительно превышает 1 мкм.

Характерные спектры ЭФЛ ЭС ZnO , полученные при 77 К, приведены на рис. 1. Спектр 1 соответствует случаю возбуждения и регистрации ЭФЛ с поверхности слоев. ЭС совершенной кристаллической структуры обладают преобладающим излучением в линию свободного экситона $A1$ и менее интенсивным излучением в полосе связанного экситона J_D . Подобные спектры изучены и идентифицированы в

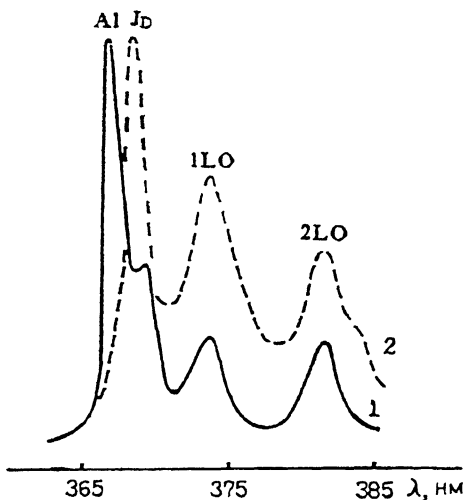


Рис. 1. Спектры ЭФЛ ЭС ZnO, характерные для поверхности (1) и переходного слоя (2) при 77 К.

[2]. Спектр 2 соответствует ЭФЛ переходной области, полученной при возбуждении и регистрации через сапфировую подложку, тех же слоев. Излучение переходной области отличается интенсивной полосой в области 369 нм, а излучение свободного экситона, как правило, не наблюдается.

Мы специально изучали отношение интегральной интенсивности однофононной линии σ_1 к интенсивности двухфононной σ_2 в зависимости от толщины ЭС ZnO. Данные этих измерений приведены на рис. 2, из которого видно, что переходная область отличается наибольшим σ_1/σ_2 . Здесь также наблюдается аномальное уширение $1LO$. Отношение $\sigma_1/\sigma_2 \sim 2$ в переходной области ЭС, тогда как в области поверхности роста составляет ~ 1 .

Анализ формы линий $1LO$, соответствующих верхней части ЭС, показал, что она с достаточной точностью описывается квазимагвелловской функцией (см. также [2]).

В то же время в ЭФЛ дефектных слоев и особенно в переходной области интенсивность и полуширина линии $1LO$ существенно увеличиваются и меняются от слоя к слою. Такое поведение линии $1LO$ в дефектных слоях связано с тем, что процесс экситонной люминесценции первого порядка становится разрешенным [1]. Поскольку изменение механизма излучения приводит к увеличению относительной интенсивности линии $1LO$, вклад дефектной части в экситон-фононный процесс превалирует, что и наблюдается

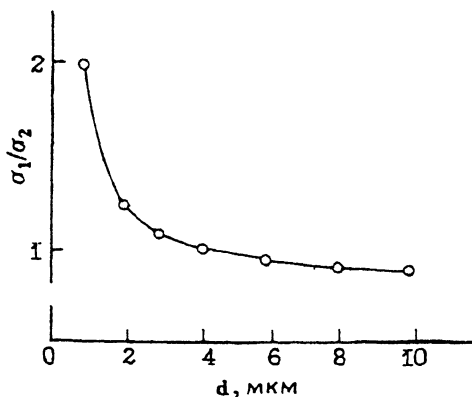


Рис. 2. Зависимость отношения интегральной интенсивности одnofонной линии к интенсивности двухфонной от толщины ЭС ZnO при 77 К.

в ЭС толщиной до 2 мкм (рис. 2), соответствующих переходной области структур, обусловленной различием постоянных кристаллических решеток ZnO и Al₂O₃. Вывод подтверждается рентгеноструктурными и электронографическими измерениями. В частности, с увеличением толщины ЭС от 1 до 3 мкм и более полуширина профиля рефлекса (1120) уменьшалась почти в два раза.

Для пленок толщиной менее 1 мкм характерны точечные электронограммы, а по мере увеличения толщины слоя d появляются сначала размытые ($d \sim 2$ мкм), а затем более резкие ($d > 3$ мкм) Кикучи-линии. Заметим также, что в [5] проведена оценка переходного слоя структур ZnO на сафире различной ориентации изучением микроморфологии растущего слоя и электрических свойств и получено значение толщины переходного слоя 2–4 мкм, сравнимое с данными ЭФЛ. Таким образом, совершенство кристаллической структуры ЭС ZnO сильно зависит от толщины: наиболее высокой концентрацией дефектов обладает переходный слой ($d \leq 2$ мкм), граничащий с подложкой, а наиболее низкой — поверхностный слой. Зависимость же отношения σ_1/σ_2 от толщины слоев позволяет оценить размер переходной области.

На рис. 3 представлены спектры легированных слоев ZnO при различных концентрациях примеси Ga. Характерной особенностью таких ЭС является увеличение относительной интенсивности в полосе J_D с ростом концентрации доноров N_D .

В ЭС с меньшей степенью легирования (менее 0.5% Ga и $N_D < 10^{18}$ см⁻³ [3]) наблюдались линии как свободного, так и связанного экситонов (рис. 2, спектр 1). Промежуточ-

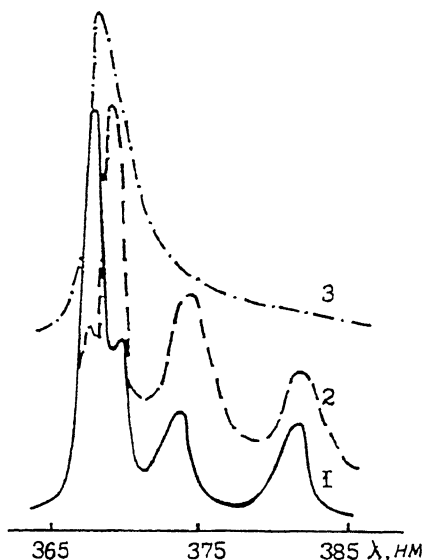


Рис. 3. Спектры легированных ЭС ZnO при различных концентрациях примеси Ga: < 0.5% (1); промежуточная (2); > 2% (3).

ная концентрация $10^{18} \text{ см}^{-3} < N_D < 10^{19} \text{ см}^{-3}$ приводила к преобладанию излучения на J_D и уширению фоновых повторений (рис. 3, спектр 2). При больших концентрациях (> 2% Ga и $N_D > 10^{19} \text{ см}^{-3}$) наблюдалось в основном только интенсивное излучение в области 369 нм. В этом случае фоновая структура, как правило, не разрешалась (рис. 3, спектр 3).

Особенности полосы J_D , связанные с ростом концентрации: смещение полосы в коротковолновую сторону, уширение и асимметричная форма, характеризующаяся затянутым длинноволновым краем, — типичная картина, обусловленная аннигиляцией экситонов, связанных на нейтральных центрах [6,7]. Отсутствие выраженной структуры при больших N_D связано с экранированием кулоновского потенциала (предельная концентрация равновесных носителей, при которой могут образоваться экситоны в ZnO, $8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$) и образованием примесной зоны. Люминесценция сильно легированного ZnO:Ga может быть объяснена зона-зонными переходами (см. также [8]). При этом форма спектра в основном отражает плотность занятых состояний в зоне проводимости.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 95-02-04554).

Список литературы

- [1] *Вербин С.Ю., Пермагоров С.А., Резницкий А.Н., Старутин А.Н.* // ФТТ. 1977. Т. 19. В. 11. С. 3468.
- [2] *Абдуев А.Х., Адуков А.Д., Атаев Б.М., Рабаданов Р.А., Шахтов Д.А.* // Опт. и спектр. 1981. Т. 50. В. 6. С. 1137.
- [3] *Атаев Б.М., Багамадова А.М., Джабраилов А.М., Мамедов В.В., Рабаданов Р.А.* // Письма в ЖТФ. 1995. Т. 21. В. 3. С. 92.
- [4] *Абдуев А.Х., Атаев Б.М., Багамадова А.М.* // Изв. АН СССР. Сер. Неорг. мат. 1987. Т. 11. С. 1928.
- [5] *Рабаданов Р.А., Семилетов С.А., Багамадова А.М.* // Кристаллография. 1974. Т. 19. В. 4. С. 850.
- [6] *Кузьмина И.П., Никитенко В.А.* Окись цинка. Получение и оптические свойства. М., 1984. 165 с.
- [7] *Бутхузи Т.В., Георгобуани А.Н., Зада-Улы Е., Эльтазаров Б.Т., Хулардава Т.Г.* // Труды ФИАН. 1987. Т. 182. С. 140.
- [8] *Neukirch U., Broser J., Rass R.* // Phys. Stat. Sol. (b). 1990. V. 159. P. 431.

Институт физики Дагестанского
Научного Центра РАН,
Махачкала

Поступило в Редакцию
2 августа 1996 г.