

Инфракрасные спектры отражения и морфология поверхности эпитаксиальных гетероструктур $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) с фазой упорядочения AlGaAs_2

© Э.П. Домашевская[¶], П.В. Середин, А.Н. Лукин, Л.А. Битюцкая, М.В. Гречкина, И.Н. Арсентьев*, Д.А. Винокуров^{*¶}, И.С. Тарасов*

Воронежский государственный университет,
394006 Воронеж, Россия

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

(Получена 11 июля 2005 г. Принята к печати 25 июля 2005 г.)

Исследованы инфракрасные спектры отражения, обусловленные колебаниями решетки в эпитаксиальных гетероструктурах $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100), выращенных методом МОС-гидридной эпитаксии, с различными концентрациями Al в металлической подрешетке. В спектре образца с $x \approx 0.50$ обнаружены моды колебаний, соответствующие сверхструктурной фазе упорядочения AlGaAs_2 . Атомно-силовая микроскопия поверхности образца с $x \approx 0.50$ показала наличие областей упорядочения нанорельефа с периодом ~ 115 нм, в которых проявляется структурная фаза AlGaAs_2 .

PACS: 78.66.Fd, 81.05.Ea, 68.05.Nq

1. Введение

Эпитаксиальные слои твердых растворов полупроводниковых соединений $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$ являются основными для изготовления лазеров, светодиодов и других компонентов микро- и нанoeлектронных устройств. Поэтому структурные, электрические и оптические свойства самих соединений $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$ и твердых растворов на их основе давно и достаточно хорошо изучены. Тем не менее до настоящего времени все еще остаются некоторые свойства этих материалов, особенно синтезированных различными способами в виде тонких эпитаксиальных монокристаллических слоев, заслуживающие тщательного изучения различными методами.

Так, ряд работ в этой области [1–3] акцентирует внимание на проблемах технологии и последующего анализа твердых растворов $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ в области $x \approx 0.50$ ввиду их структурной неустойчивости, сопровождающейся распадом с образованием областей упорядочения в виде сверхструктур.

Возможное образование сверхрешеток в пленках твердых растворов $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с $x = 0.25–0.75$, выращенных на подложках GaAs с ориентацией (100) методами молекулярно-лучевой эпитаксии и эпитаксии путем разложения металлоорганических соединений и гидридов (МОС-гидридной эпитаксии), обсуждалось ранее авторами работ [4–7]. Сообщалось, что возникающая упорядоченная структура может иметь тетрагональную симметрию, аналогичную структуре сплава CuAu I , и состоять из чередующихся упорядоченных слоев AlAs и GaAs [4,5].

В нашей предыдущей работе [8], представляющей результаты исследования эпитаксиальных гетерострук-

тур $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100), выращенных методом МОС-гидридной эпитаксии, было установлено методами рентгеновской дифракции, что в эпитаксиальных твердых растворах с $x = 0.50$ и 0.54 появляется фаза упорядочения AlGaAs_2 , являющаяся сверхструктурой по отношению к решетке сфалерита. Решетку обнаруженной фазы AlGaAs_2 можно описать слоистой структурой InGaAs_2 -типа (layered tetragonal) [9] с направлением упорядочения [100]. В этой структуре элементарная ячейка соответствует двум ячейкам типа сфалерита, поставленным друг на друга вдоль оси c , перпендикулярно к которой расположены чередующиеся слои Al–As и Ga–As. Величина тетрагонального сжатия $c/2a$ составляет в сверхструктуре величину, равную 0.97.

Понимая, что появление сверхструктурной фазы упорядочения в составе твердого раствора неизбежно должно проявиться и в характере оптических спектров, в данной работе мы предприняли исследование инфракрасных (ИК) спектров отражения этих гетероструктур в области однофононного резонанса.

Одним из широко используемых методов изучения тонких решеточных свойств и оценки структурного качества эпитаксиальных пленок является инфракрасная оптическая колебательная спектроскопия, позволяющая судить не только о молекулярном составе вещества, но и о внутренних напряжениях в его решетке, к которым данный метод является очень чувствительным. Благодаря глубокой проникающей способности ИК излучения, ИК спектры отражения, связанные с колебаниями решетки, позволяют получать сведения о реальном состоянии микроструктуры кристалла на значительной толщине.

В ранних работах [10,11] имеются сведения об ИК спектрах отражения твердых растворов $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. Так, в работе [10] представлены экспериментальные

[¶] E-mail: ftt@phys.vsu.ru

^{*¶} E-mail: dmitry.vinokurov@mail.ioffe.ru

Таблица 1. Состав гетероструктур и толщины слоев

Образец	Состав гетероструктур	Толщины эпитаксиальных слоев на GaAs
GaAs	GaAs	
EM28	Al _{0.12} Ga _{0.88} As/GaAs	~ 1 мкм/GaAs
EM29	Al _{0.16} Ga _{0.84} As/GaAs	~ 1 мкм/GaAs
EM135	Al _{0.50} Ga _{0.50} As/GaAs	~ 1 мкм/GaAs
EM49	Al _{0.54} Ga _{0.46} As/GaAs	~ 1 мкм/GaAs
EM77	Al _{0.8} Ga _{0.2} As/Al _{0.3} Ga _{0.7} As/Al _{0.8} Ga _{0.2} As/GaAs	~ 0.5 мкм/0.2 мкм/0.1 мкм/GaAs
AlAs	AlAs/GaAs	~ 1 мкм/GaAs

Примечание. Образец GaAs и подложки GaAs имеют кристаллографическую ориентацию (100).

ИК спектры отражения, полученные при комнатной температуре для толстых пленок твердых растворов Al_xGa_{1-x}As различных составов с толщинами в интервале от 50 до 100 мкм, выращенных методом жидкофазной эпитаксии на монокристаллических подложках GaAs, ориентированных в плоскости (111). В спектрах отражения твердых растворов пяти составов (0 < x < 1) были обнаружены две основные моды колебаний: Ga–As и Al–As. Полученные экспериментальные зависимости были проанализированы методом Крамерса–Кронига, в результате чего были определены частоты продольных (LO) и поперечных (TO) оптических фононов для колебаний Ga–As и Al–As. Следует, однако, отметить, что частоты TO- и LO-мод колебаний Al–As для составов твердых растворов с x = 0.53 и 0.82 были определены не с использованием метода Крамерса–Кронига, а из частот, соответствующих максимуму и минимуму интенсивности данной моды в экспериментальном спектре. Для состава с x = 0.53 (наиболее близкого к x = 0.50) спектр также оказался двухкомпонентным.

В статье [11] приведены лишь теоретические расчеты TO- и LO-мод ИК спектров отражения твердых растворов Al_xGa_{1-x}As с различным x в рамках модифицированной модели статистического изовалентного замещения в смешанных кристаллических системах (MREI-модель) с задаваемым одно- или двухмодовым типом перестройки колебательного спектра вещества. Данные по частотам LO- и TO-колебаний, полученные в этой работе, хорошо согласуются с экспериментальными результатами работы [10]. Кроме того, данные работ [10,11] наглядно свидетельствуют об изменении положения TO- и LO-мод колебаний на шкале частот с изменением концентрации Al в твердом растворе Al_xGa_{1-x}As.

Основной задачей данной работы было получение ИК спектров отражения от эпитаксиальных слоев Al_xGa_{1-x}As, выращенных МОС-гидридным методом, с целью выявления их особенностей при образовании областей упорядочения с образованием сверхструктурной фазы при x ≈ 0.50.

Кроме того, учитывая, что содержание обнаруженной фазы упорядочения AlGaAs₂ в твердом растворе Al_xGa_{1-x}As в области составов с x ≈ 0.50 в соответствии с нашими данными рентгеноструктурных исследова-

ований составляет ~ 20% [8], мы предприняли исследование морфологии поверхности эпитаксиальных гетероструктур Al_xGa_{1-x}As/GaAs (100) методами зондовой микроскопии с использованием атомно-силового микроскопа.

2. Объекты и методы исследования

В работе исследовались гетероструктуры, изготовленные в Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе РАН. На монокристаллических подложках GaAs (100) методом МОС-гидридной эпитаксии были выращены эпитаксиальные монокристаллические пленки Al_xGa_{1-x}As толщиной ~ 1 мкм. Технологические данные относительно толщин слоев эпитаксиальных твердых растворов гетероструктур Al_xGa_{1-x}As/GaAs (100) и содержания в них Al по данным микроанализа приведены в табл. 1.

Спектры решеточного отражения исследуемых эпитаксиальных гетероструктур получали при комнатной температуре в интервале от 200 до 600 см⁻¹ с помощью ИК спектрометра Specord-82M, сопряженного с компьютером и имеющего разрешение 1 см⁻¹.

Морфологию поверхности МОС-гидридных эпитаксиальных слоев Al_xGa_{1-x}As в гетероструктурах с малым (x = 0.16) и большим (x = 0.50) содержанием алюминия в металлической подрешетке исследовали на сканирующем зондовом микроскопе Femtосcan-001 в режиме атомно-силовой микроскопии (АСМ) с кантилевером CSC 12.

3. Инфракрасные спектры решеточного отражения

3.1. Дисперсионный анализ одномодового спектра бинарного кристалла GaAs

Известно, что для элементарных полупроводников и бинарных монокристаллов A^{III}B^V, A^{IV}B^{VI} достаточно хорошим приближением при расчете ИК спектров отражения является одноосцилляторная модель [12]. На рис. 1, а (сплошная линия) представлен экспериментальный ИК спектр решеточного отражения от моно-

Таблица 2. Частоты поперечных мод оптических колебаний Ga–As и Al–As в спектрах эпитаксиальных гетероструктур $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) по результатам дисперсионного анализа экспериментального спектра в сравнении с данными [11]

Образец	Состав	x	$\omega_{\text{TO}}, \text{cm}^{-1}$			
			Ga–As		Al–As	
			Данная работа	[11]	Данная работа	[11]
GaAs	GaAs	0	268	268		
EM28	$\text{Al}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{As}/\text{GaAs}$	0.12	283	268	345	354
EM29	$\text{Al}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{As}/\text{GaAs}$	0.16	281	268	346	354
EM77	$\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}/\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}/\text{GaAs}$	0.3	281	271	345	351
		0.8	269	259	363	361
EM49	Сверхструктурная фаза AlGaAs_2	0.54	272	260	365	360
			$\omega_1 = 241 \text{ cm}^{-1}$		$\omega_2 = 327 \text{ cm}^{-1}$	
AlAs	AlAs/GaAs	1			375	364

Примечание. Образец GaAs и подложки GaAs имеют кристаллографическую ориентацию (100).

кристаллической пластины GaAs (100). Как видно из рисунка, в спектре образца присутствует одна колебательная мода. Поэтому дисперсионный анализ этого спектра проводился в одноосцилляторном приближении по методу Спитцера–Клеймана–Фроша [11]. Коэффици-

ент отражения R в зависимости от частоты ω в данном случае представляется в следующем виде:

$$R(\omega) = \frac{[n(\omega) - 1]^2 + k(\omega)^2}{[n(\omega) + 1]^2 + k(\omega)^2}. \quad (1)$$

С учетом соотношений

$$\begin{aligned} \varepsilon_1(\omega) &= n(\omega)^2 - k(\omega)^2, \\ \varepsilon_2(\omega) &= 2n(\omega)k(\omega) \end{aligned} \quad (2)$$

рассчитываем действительную и мнимую части величины диэлектрической проницаемости соответственно как

$$\begin{aligned} \varepsilon_1(\omega) &= \varepsilon_\infty \left[1 + \frac{(\omega_{\text{LO}}^2 - \omega_{\text{TO}}^2)(\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2)}{(\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2) + \omega^2\gamma^2} \right], \\ \varepsilon_2(\omega) &= \varepsilon_\infty \left[\omega\gamma \frac{(\omega_{\text{LO}}^2 - \omega_{\text{TO}}^2)}{(\omega_{\text{TO}}^2 - \omega^2) + \omega^2\gamma^2} \right], \end{aligned} \quad (3)$$

где $n(\omega)$ — показатель преломления, $k(\omega)$ — коэффициент экстинкции, ω_{LO} , ω_{TO} , γ , ε_∞ — частоты продольных и поперечных колебаний, коэффициент затухания и высокочастотная диэлектрическая проницаемость соответственно.

Как видно из рис. 1, *a*, теоретический расчет спектра отражения $R(\omega)$ в рамках одноосцилляторного приближения по формулам (1)–(3) дает хорошее согласие с экспериментальным спектром для арсенида галлия. Данные о частотах поперечных (ω_{TO}) мод колебаний в спектре образца GaAs, определенные в результате дисперсионного анализа, (табл. 2) хорошо согласуются с результатами работ [10,11].

3.2. Дисперсионный анализ многокомпонентных гетероструктур

При моделировании ИК спектров решеточного отражения многокомпонентных материалов и гетероструктур расчетные спектры вычисляются с учетом модели

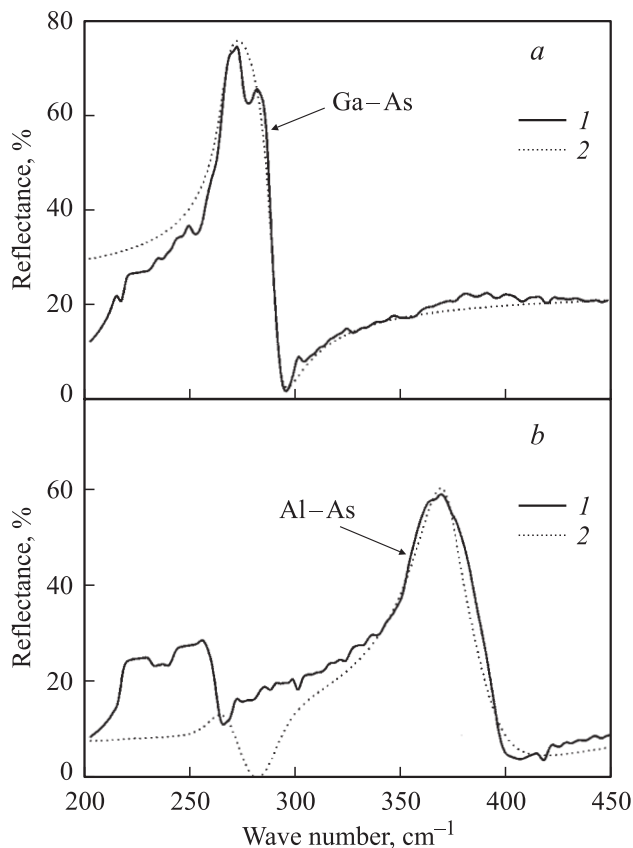


Рис. 1. ИК спектры отражения монокристаллической пластины GaAs (100) (*a*) и эпитаксиальной гетероструктуры AlAs/GaAs (100) (*b*): 1 — эксперимент, 2 — расчет.

„полубесконечная подложка с диэлектрической функцией ε_s и поверхностная тонкая пленка толщиной d с диэлектрической функцией ε_f “. В данной модели коэффициент отражения для нормального падения имеет вид [13]

$$R(\omega) = \left| \frac{r_f(\omega) + r_{fs}(\omega) \exp(i2\delta)}{1 + r_f(\omega)r_{fs}(\omega) \exp(i2\delta)} \right|^2, \quad (4)$$

где

$$r_f(\omega) = \frac{1 - \sqrt{\varepsilon_f(\omega)}}{1 + \sqrt{\varepsilon_f(\omega)}}, \quad r_{fs}(\omega) = \frac{\sqrt{\varepsilon_f(\omega)} - \sqrt{\varepsilon_s(\omega)}}{\sqrt{\varepsilon_f(\omega)} + \sqrt{\varepsilon_s(\omega)}},$$

$$\delta = \frac{2\pi d \sqrt{\varepsilon_f(\omega)}}{\lambda}, \quad (5)$$

λ [мкм] = 10 000/ ω [см⁻¹] — длина волны.

Диэлектрическая функция пленки в этой модели задается соотношением

$$\varepsilon_f(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_i \frac{4\pi f_i (\omega_{TOi})^2}{(\omega_{TOi})^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_i}, \quad (6)$$

где f_i , ω_{TOi} , γ_i — сила, резонансная частота и затухание i -го осциллятора.

При расчете коэффициента отражения гетероструктуры в формуле для величины диэлектрической проницаемости пленки (6) мы в основном варьировали следующие величины: резонансную частоту ТО-моды i -го осциллятора ω_{TOi} , силу осциллятора f_i и коэффициент затухания γ_i . Моделирование спектров гетероструктур $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) различных составов в интервале $x = 0.12-1$ проводили по формулам (4)–(6).

На рис. 1, *b* приведены экспериментальный и расчетный спектры для эпитаксиальной гетероструктуры AlAs/GaAs (100). Из рисунка видно, что ИК спектр решеточного отражения этого образца содержит одну моду колебаний, отвечающую связям Al–As. Результат дисперсионного анализа (частота ТО-моды колебаний Al–As) приведен в табл. 2.

На рис. 2, *a* и *b* приведены спектры отражения эпитаксиальных гетероструктур $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) с малым содержанием Al в твердом растворе. Спектры отражения образцов EM28 и EM29 мало различаются по форме и положению полос (табл. 2), изменяется лишь относительная интенсивность полос при изменении состава от $x = 0.12$ до 0.16. Дисперсионный анализ спектров показал наличие двух мод колебаний, что в соответствии с критерием, приведенным в работе [14], определяет для твердого раствора $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ двухмодовый тип перестройки спектра фононов (см. табл. 2). Эти колебания мы называем основными и интерпретируем их как мода колебаний Al–As (с ростом концентрации Al в твердом растворе $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ интенсивность этой моды увеличивается) и мода колебаний Ga–As (изменяющая свою интенсивность антибатно по отношению к моде Al–As, т.е. в соответствии с содержанием Ga в твердом

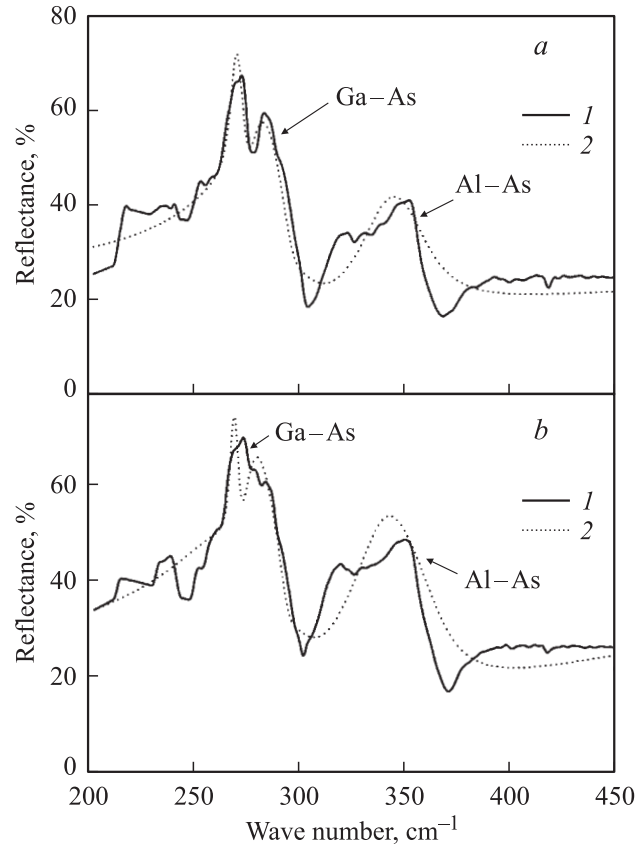


Рис. 2. ИК спектры отражения эпитаксиальных гетероструктур: *a* — гетероструктура $\text{Al}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) (образец EM28), *b* — гетероструктура $\text{Al}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) (образец EM29). 1 — эксперимент, 2 — расчет.

растворе $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$). Кроме того, для обеих мод, Al–As и Ga–As, характерно изменение их расположения на шкале частот с изменением x в $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, что было отмечено и при теоретических расчетах этих мод [10,11].

Моделирование спектра многослойной гетероструктуры (образец EM77) (рис. 3, *a*) проводилось аналогично моделированию спектров однослойных гетероструктур в модели пленка–подложка. Однако длинноволновая диэлектрическая функция пленки такой многослойной структуры ε_f использовалась в виде, предложенном в [14] для случая нормального падения,

$$\varepsilon_f = \frac{\sum_j d_j \varepsilon_j(\omega)}{\sum_j d_j}, \quad (7)$$

где ε_j и d_j — диэлектрическая функция и толщина j -го слоя. Выражение (7) справедливо, если выполняются требования пространственной однородности в каждом слое [15].

На рис. 3, *a* представлены экспериментальный и расчетный спектры многослойной эпитаксиальной гетероструктуры (кривые 1, 2), а также смоделированный спектр гетероструктуры $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) с тол-

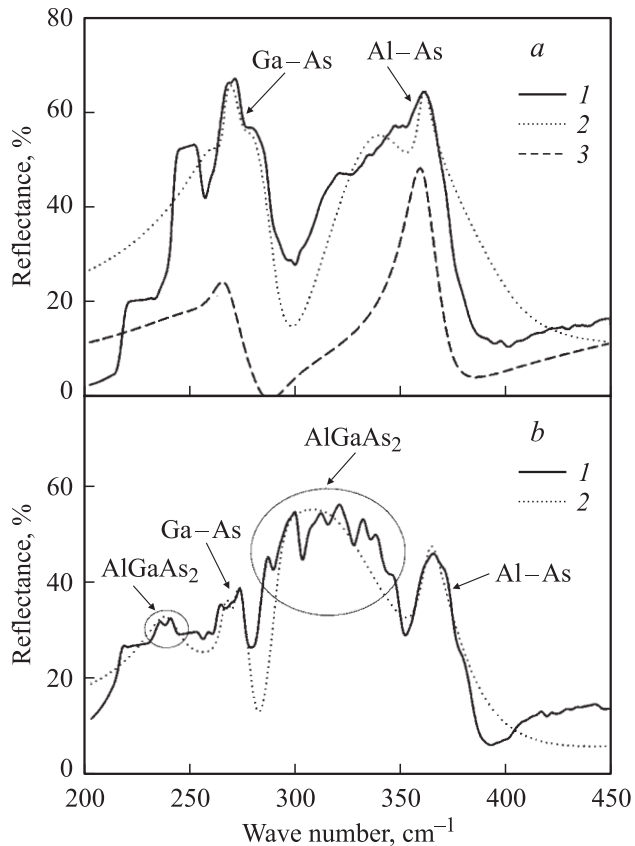


Рис. 3. ИК спектры отражения эпитаксиальных гетероструктур: *a* — многослойная гетероструктура $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}/\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}/\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}/\text{GaAs}$ (100); *b* — гетероструктура $\text{Al}_{0.54}\text{Ga}_{0.46}\text{As}/\text{GaAs}$ (100). 1 — эксперимент, 2, 3 — расчет.

щиной твердого раствора 0.6 мкм (кривая 3). Как видно из рисунка, в спектре реального образца присутствуют две полосы колебаний: первая в области частот 270–290 см^{-1} , являющаяся наложением трех мод колебаний Ga–As — от подложки и твердых растворов $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ двух составов ($x = 0.30$ и 0.80); вторая в области 310–370 см^{-1} , представляющая собой наложение двух мод Al–As от твердых растворов двух составов ($x = 0.30$ и 0.80).

Особого внимания, однако, заслуживает спектр отражения эпитаксиального слоя гетероструктуры $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) с содержанием алюминия $x = 0.54$ (рис. 3, *b*). Этот спектр отражения помимо мод, соответствующих связям Ga–As и Al–As в твердом растворе, (локализованных около ТО-фононных частот Ga–As, 272 см^{-1} , и Al–As, 365 см^{-1}) содержит две группы дополнительных мод, сдвинутые относительно основных колебаний в сторону длинных волн. Первая, лежащая в области 230–245 см^{-1} , имеет самую малую интенсивность и ширину среди всех мод, присутствующих в спектре. Вторая группа представляет собой широкую полосу, расположенную между основными колебаниями в интервале 230–350 см^{-1} , и

состоит из нескольких резонансных пиков различной интенсивности, расположенных примерно через 10 см^{-1} , что указывает на факт интерференции отраженного излучения в структуре (рис. 3, *b*).

Присутствие этих осцилляторов в спектре мы связываем с тем фактом, что в эпитаксиальных твердых растворах $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ с $x \approx 0.50$, выращенных на подложках GaAs (100), появляется сверхструктурная фаза [8], представляющая собой химическое соединение AlGaAs_2 со структурой InGaAs₂-типа (layered tetragonal) [9], представляющей собой чередующиеся слои Al–As и Ga–As. Появление интерференционных мод может быть вызвано особенностями морфологии в областях упорядочения со сверхструктурной фазой AlGaAs_2 . Это предположение мы проверили в ходе исследования поверхности гетероструктур методами атомно-силовой микроскопии, результаты которого будут представлены в следующем разделе.

В табл. 2 приведены результаты дисперсионного анализа ИК спектров отражения гетероструктур $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) с $x = 0.12, 0.16, 0.54$ и многослойной эпитаксиальной гетероструктуры (образец EM77) — значения резонансных частот ТО-мод колебаний в сравнении с частотами из [11].

С целью доказать, что возникающие дополнительные моды представляют собой колебания ионов, относящихся к сверхструктурной фазе, нами был предпринят следующий расчет. Используя микроскопическую теорию колебаний кристаллической решетки [16] для кубического кристалла, с помощью соотношения Сигети можно связать параметр сжимаемости кубического кристалла β с расстоянием r_0 между соседними ионами и частотой возникающих оптических фононов ω_i :

$$\frac{\varepsilon_{\text{st}} + 2}{\varepsilon_{\infty} + 2} = \frac{\beta}{3v} r_0^2 \mu \omega_i^2, \quad (8)$$

где μ — приведенная масса ионов, v — объем элементарной ячейки, ε_{∞} и ε_{st} — высокочастотная и низкочастотная (статическая) диэлектрические проницаемости кристалла соответственно.

Связь между диэлектрическими проницаемостями ε_{∞} , ε_{st} и силой осциллятора f_j задается соотношением

$$\varepsilon_{\text{st}} = \varepsilon_{\infty} + \sum_j 4\pi f_j, \quad (9)$$

где производится суммирование по всем осцилляторам.

Таким образом, с учетом соотношения (9) имеем

$$\frac{\varepsilon_{\infty} + \sum_j 4\pi f_j + 2}{\varepsilon_{\infty} + 2} = \frac{\beta}{3v} \sum_j r_{0j}^2 \mu_j \omega_j^2. \quad (10)$$

Из дисперсионного анализа спектров мы определяем ε_{∞} — высокочастотную диэлектрическую проницаемость эпитаксиального слоя, а также силу осциллятора f_j и резонансную частоту ω_j для каждой моды в твердом растворе. Из литературных данных были взяты

величины, позволяющие рассчитать приведенную массу колеблющихся ионов μ и расстояние между ними r_0 [17].

В результате единственным параметром, остающимся неизвестным в (10), является параметр сжимаемости кубического кристалла β . Зависимость данного параметра от концентрации Al в твердом растворе мы рассчитали из (10) для эпитаксиальных слоев с различным x на основании данных дисперсионного анализа исследованных нами гетероструктур и с использованием результатов работ [10,11] при помощи методов экстраполяции программы SigmaPlot 8.

В итоге для образца со сверхструктурной фазой в твердом растворе записываем (10) с учетом наличия в правой части суммы четырех слагаемых и считаем, что $\omega_1 = 241 \text{ см}^{-1}$ и $\omega_2 = 327 \text{ см}^{-1}$ есть моды колебаний связей Ga-As и Al-As в сверхструктурной фазе AlGaAs₂.

Принимая в итоге $\beta(\text{AlGaAs}_2) = \beta(\text{Al}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As})$, рассматриваем соотношение (10) как математическое тождество. Для нашего случая оно выполняющееся с отклонением в 17%. Данная ошибка объясняется неточностями дисперсионного анализа спектров образцов, ошибками при расчете коэффициента β и не всегда строгим выполнением соотношения Сигети (8) для материалов [12,16].

4. Исследование морфологии поверхности эпитаксиальных гетероструктур Al_xGa_{1-x}As/GaAs (100)

Предполагая, что области упорядочения со сверхструктурной фазой в образцах при $x \approx 0.50$ могут проявлять себя и в морфологии поверхности МОС-гидридных эпитаксиальных слоев, мы предприняли исследования образцов Al_xGa_{1-x}As/GaAs (100) с малым ($x = 0.16$) и большим ($x = 0.50$) содержанием алюминия в металлической подрешетке на сканирующем зондовом микроскопе в атомно-силовом режиме.

На рис. 4,5 приведены изображения характерных микроучастков образцов (а), сечения их поверхности (b), соответствующие функции распределения рельефа поверхности (c) для эпитаксиальной гетероструктуры с малым содержанием Al в твердом растворе Al_xGa_{1-x}As ($x = 0.16$) и для эпитаксиальной гетероструктуры ($x = 0.50$), в твердом растворе которой мы обнаружили сверхструктурную фазу AlGaAs₂ методами дифрактометрии и ИК спектроскопии.

Из рис. 4 видно, что образец EM29 ($x = 0.16$) имеет практически гладкую поверхность пленки с несколькими локальными дефектами, проявляющимися в виде углублений (рис. 4,а и b). В отличие от EM29, поверхность образца EM135 ($x = 0.50$) содержит два типа областей (рис. 5,а и b). Первый тип может быть охарактеризован как шероховатая поверхность с наличием неупорядоченного нанорельефа. Второй тип областей имеет упорядоченный рельеф, с периодом упорядочения

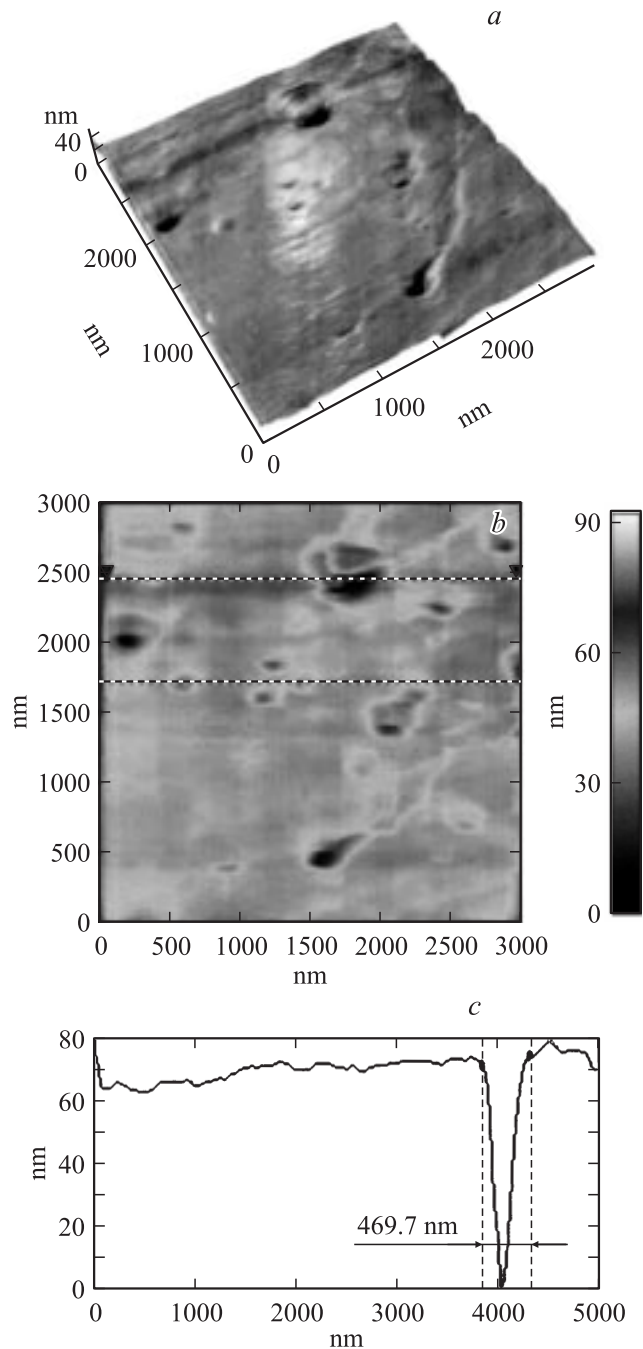


Рис. 4. Изображение участка поверхности $3 \times 3 \text{ мкм}$ (а, b) и функция распределения ее рельефа (с) в гетероструктуре Al_{0.16}Ga_{0.84}As/GaAs (100) (образец EM29).

$m \approx 115 \text{ нм}$ при средней высоте рельефа 30 нм (рис. 5, c) и небольшой шероховатостью вдоль гребня волны наноструктуры. Угол сопряжения наноструктурированных областей (рис. 5, a) составляет $\sim 80^\circ$, что не характерно для равновесных структур. Обнаруженные нами области упорядоченного нанорельефа мы связываем с областями существования сверхструктурной фазы AlGaAs₂ с кристаллической решеткой InGaAs-типа и параметрами $a = 5.6532 \text{ \AA}$, $c = 11.292 \text{ \AA}$.

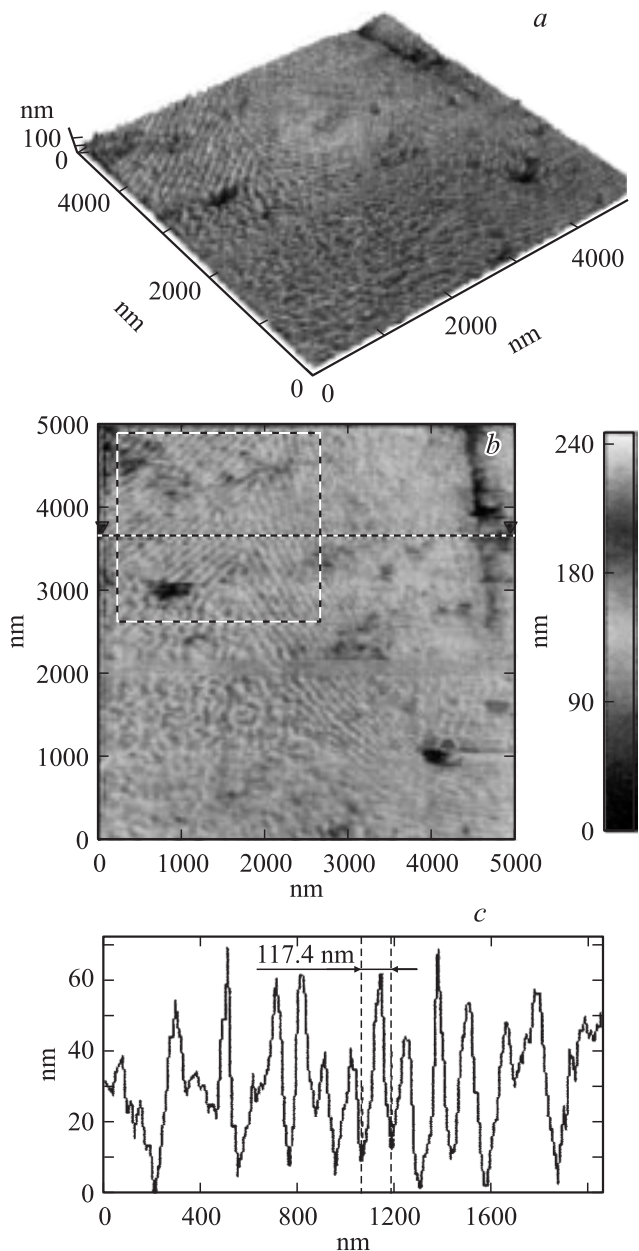


Рис. 5. Изображение участка поверхности 5×5 мкм, содержащего упорядоченный периодический нанорельеф (*a, b*) и функция распределения рельефа (*c*) в гетероструктуре $\text{Al}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) (образец ЕМ135).

Следует обратить внимание на кратность периода поверхностного упорядочения нанорельефа $m \approx 115$ нм величине параметра $c \approx 1.13$ нм, что является одним из характерных признаков самоорганизованных структур [18].

5. Заключение

Данные ИК спектроскопии отражения показали, что в спектрах выращенных МОС-гидридным методом эпитаксиальных гетероструктур $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) с кон-

центрациями Al в металлической подрешетке $x = 0.12, 0.16, 0.30$ и 0.80 присутствуют две моды колебаний, и этот факт согласуется с имеющимися экспериментальными и теоретическими данными [10,11]. Частоты ТО-мод колебаний связей Al–As и Ga–As для гетероструктур $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ различного состава (табл. 2), рассчитанные в рамках адекватной для исследованных структур дисперсионной модели спектров решеточного отражения „пленка–полубесконечная подложка“, несколько отличаются от литературных данных [10,11], определенных в толстых эпитаксиальных слоях гетероструктур $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100), выращенных методом жидкофазной эпитаксии (см. табл. 2).

В спектре гетероструктуры $\text{Al}_{0.54}\text{Ga}_{0.46}\text{As}/\text{GaAs}$ (100), выращенной методом МОС-гидридной эпитаксии, помимо мод колебаний, отвечающих связям Ga–As и Al–As (основных колебаний), присутствуют еще два осциллятора с частотами $\omega_1 = 241 \text{ см}^{-1}$ и $\omega_2 = 327 \text{ см}^{-1}$, сдвинутых в сторону длинных волн относительно основных колебаний, появление которых мы связываем с возникновением фазы упорядочения AlGaAs_2 в эпитаксиальных твердых растворах $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, выращенных на подложках GaAs (100), со значениями x , близкими к 0.50.

По данным, полученным из атомно-силовой микроскопии, области упорядочения, обнаруженные на поверхности образца с $x \approx 0.50$, проявляются в виде упорядоченного нанорельефа с периодом ~ 115 нм, кратным параметру решетки слоистой тетрагональной фазы AlGaAs_2 . Появление интерференционных мод в области $280\text{--}350 \text{ см}^{-1}$ ИК спектра отражения может быть обусловлено именно этой периодической структурой нанорельефа в твердом растворе с $x \approx 0.50$.

Таким образом, совокупность структурных [8], спектральных и морфологических исследований свидетельствует о структурной неустойчивости твердых растворов $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ в эпитаксиальных гетероструктурах в области составов с $x \approx 0.50$, распад которых сопровождается образованием самоорганизованных периодических наноструктур.

Список литературы

- [1] D. Zhou, B.F. Usher. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **34**, 1461 (2001).
- [2] Z.R. Wasilewski, M.M. Dion, D.J. Lockwood, P. Poole, R.W. Streater, A.J. Spring Thorpe. *J. Appl. Phys.*, **81**, 1683 (1997).
- [3] S. Gehrsitz, H. Sigg, N. Herres, K. Bachem, K. Kuhler, F.K. Reinhart. *Phys. Rev. B*, **60**, 11 601 (1999).
- [4] T.S. Kuan, T.F. Kuech, W.I. Wang. *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 201 (1985).
- [5] B. Koiller, A.M. Davidovich. *Phys. Rev. Lett.*, **41**, 3670 (1990).
- [6] E. Muller, B. Patterson. *PSI annual report 2000*. www.physik.unizh.ch/reports/report2000.html.
- [7] B.D. Patterson, H. Auderset, C. Bronnimann, U. Staub, M. Moser, A. Vonlanthen, P. Pattison, K. Knudsen, R. Mathiessen. *PSI annual report 1997*. www.physik.unizh.ch/reports/report1999.html

- [8] Э.П. Домашевская, П.В. Середин, Э.А. Долгополова, И.Е. Занин, И.Н. Арсентьев, Д.А. Винокуров, А.Л. Станкевич, И.С. Тарасов. ФТП, **3**, 354 (2005).
- [9] Alex Zunger. *MRS-IRS bulletin* (1997). <http://www.sst.nrel.gov/images/mrs97>.
- [10] M. Pegems, G.L. Pearson. Phys. Rev. B, **1** (4), 1576 (1970).
- [11] I.F. Chang, S.S. Mitra. Phys. Rev. B, **2** (4), 1215 (1970).
- [12] Ю.И. Уханов. *Оптические свойства полупроводников* (М., Наука, 1977).
- [13] H.W. Verleur. JOSA, **58**, 1356 (1968).
- [14] Л.К. Водопьянов, С.П. Козырев, Ю.Г. Садофьев. ФТТ, **41** (6), 982 (1999).
- [15] С.П. Козырев. ФТТ, **36** (10), 3008 (1994).
- [16] А. Пуле, Ж.-П. Матье. *Колесательные спектры и симметрия кристаллов* (М., Мир, 1973).
- [17] Yu.A. Goldberg. *Handbook Series on Semiconductor Parameters*, ed. by M. Levinshtein, S. Rumyantsev and M. Shur (World Scientific, London, 1999) v. 2, p. 1.
- [18] *Монокристаллические пленки*, ред. З.Г. Пинскер (М., Мир, 1966).

Редактор Л.В. Шаронова

The infrared-reflection spectra of epitaxial heterostructures $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) and AlGaAs_2 ordered phase

E.P. Domashevskaya, P.V. Seredin, A.N. Lukin, L.A. Bityutskaya, M.V. Grechkina, I.N. Arsenyev, D.A. Vinokurov*, I.S. Tarasov**

Voronezh State University,
394006 Voronezh, Russia
* Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

Abstract Infrared reflection spectra of lattice vibrations were investigated in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ (100) epitaxial heterostructures obtained by MOVPE epitaxy with different Al concentrations in the cation sublattice. In the sample with $x \approx 0.50$, besides two main vibration modes, ones were found related to AlGaAs_2 superstructural ordered phase. Atomic-force microscopy demonstrated on the surface with $x \approx 0.50$ the presence of areas with ordered ~ 115 nm period nano-relief related to a superstructure phase of AlGaAs_2 .