УДК 538.9

ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ GaAs/Ge/GaAs ДЛЯ ТЕМПЛЕЙТОВ ОПТИЧЕСКИХ НЕЛИНЕЙНЫХ ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЕЙ С РЕГУЛЯРНОЙ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРОЙ. II. ИССЛЕДОВАНИЕ СВОЙСТВ

И. П. Казаков, А. А. Пручкина, М. А. Базалевский,

А.В. Клековкин, В.И. Цехош

Исследованы гетероструктуры GaAs/Ge/GaAs, в которых кристаллические решётки слоев GaAs развёрнуты под прямым углом в плоскости подложки. Высокое качество гетероструктур подтверждено методами рентгеновской дифракции и фотолюминесценции.

Ключевые слова: гетероструктуры GaAs/Ge/GaAs, разворот кристаллической решётки, атомно-силовая микроскопия, рентгеновская дифракция, фотолюминесценция.

В настоящей работе представлены результаты исследования гетероструктур (ГС) GaAs/Ge/GaAs (рис. 1) для темплейтов оптических нелинейных преобразователей с регулярной доменной структурой, технология выращивания которых методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) и результаты их исследования методом дифракции быстрых электронов описаны в нашей предыдущей работе [1]. Отдельное внимание уделено изучению процессов деградации в выращенных ГС вследствие их нахождения в атмосфере при комнатной температуре.

Методика эксперимента. ГС (рис. 1) исследовались методами рентгеновской дифракции (РД, дифрактометр Panalytical X'Pert Pro MRD Extended), атомно-силовой микроскопии (АСМ, микроскоп P47-SPM-MDT) и низкотемпературной фотолюминесценции (НФЛ). Измерения спектров НФЛ проводились в парах гелия при температуре 5 К в геометрии "на отражение". Т.к. ставилась задача охарактеризовать слои 5–7, выращенные на слое Ge (рис. 1), для возбуждения НФЛ применялось относительно коротковолновое излучение полупроводникового лазера ($\lambda = 405$ нм), глубина поглощения которого в GaAs порядка нескольких десятков нм. Диаметр пятна возбуждающего излучения и размеры анализируемой области на образце составляли 3 мм и

ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: kazakov@sci.lebedev.ru.

Ν	Состав слоев	d, нм	Примечание
7	i-GaAs	20	
6	i-AlAs	20	«Цна-25»
5	i-GaAs	100	
4	Ge	9	«Катунь»
3	i-GaAs	20	
2	i-AlAs	20	«Цна-25»
1	i-GaAs	300	
Подложка GaAs(001) 3 ⁰ → (111)Ga			

Рис. 1: Схема ГС GaAs/Ge/GaAs. Кристаллическая решётка слоёв 5–7 либо развёрнута под прямым углом в плоскости поверхности пластины (образцы A), либо имеет ориентацию подложки (образцы B). Примечание: названия установок МПЭ.

 (0.02×1) мм², соответственно. Для анализа рекомбинационного излучения применялся решеточный спектрограф с дисперсией 32 Å/мм, оснащенный многоканальным ПЗС приемником Spec-10. Ширина входной щели спектрографа составляла 20 мкм. В сочетании с размером пикселя 20 мкм это соответствовало спектральному разрешению ~0.064 нм (0.13 мэВ вблизи 780 нм) [2].

Результаты исследования.

Рентгеновская дифракция. Для определения кристаллического совершенства слоёв 5–7 выращенных ГС использовались слабые рефлексы (424) и (4-24), симметрично расположенные относительно оси [100]. Из-за большого угла наклона $\varphi_{(001)/(424)} = 48.19^{\circ}$ к плоскости (001) при величине брэгговского угла дифракции $\theta_B = 54.83^{\circ}$, уменьшается глубина проникновения рентгеновских лучей, что повышает вклад верхних слоев ГС в общую интенсивность кривой качания. Использовалась не стандартная геометрия, в которой как плоскость РД, так и плоскость образца вертикальны, а скользящая, в которой дифракционная плоскость (424) остается вертикальной, тогда как плоскость образца отклоняется от вертикали на угол $\varphi_{(001)/(424)} = 48.19^{\circ}$. В этой геометрии небольшая разориентация подложек от кристаллографической плоскости (001) меньше сказывается на изменении интенсивности по сравнению со стандартной геометрией РД на отражение.

Измеренные кривые качания (рис. 2) на рефлексе (424) в скользящей геометрии дифракции образцов A, B и подложки GaAs имели следующие значения ширины на полувысоте: 50.4", 25.56" и 24.12", соответственно.



Рис. 2: Кривые качания рефлекса (424) образцов А (577), В (576) и исходной подложки.



Рис. 3: Изображение поверхности образцов А (а) и В (б) в АСМ.

Атомно-силовая микроскопия. Исследования методом АСМ выявили существенное различие в морфологии поверхности образцов А и В (рис. 3). Образец А, выращенный с разворотом решётки слоёв 5–7 (рис. 1), имел значительно более шероховатую поверхность, чем образец В, сохранивший ориентацию подложки. Среднеквадратичные отклонения поверхности образцов А и В имели значения 7.44 нм и 3.83 нм, соответственно.



Рис. 4: Спектры НФЛ образца В при температуре 5 К вблизи края собственного поглощения GaAs. Нижняя кривая записана на ~150 дней позже, чем верхняя, в той же точке образца.

Низкотемпературная фотолюминесценция. В спектре образцов В (рис. 4, верхняя кривая) наиболее яркая линия с максимумом в районе 1.4936 эВ представляет собой излучение донорно-акцепторных пар (ДАП) с участием мелких доноров и акцепторов. Длинноволновый край этой линии сдвинут на 36 meV относительно запрещенной зоны GaAs при T = 5 K (~1.519 эВ). Примесь германия в подрешетке Ga образует мелкий донор с энергией 6 мэВ, а в подрешетке As – акцептор с энергией ~30 мэВ [6]. Таким образом, длинноволновый край обсуждаемой полосы соответствует длинноволновой край обсуждаемой полосы в спектре НФЛ слоев GaAs 5-7 ожидаемо, ввиду сегрегации Ge из слоя 4 (рис. 1) в процессе выращивания ГС. Линии с максимумами в районе 1.4571 и 1.4210 мэВ представляют собой излучение ДАП Ge_{As}-Ge_{Ga}, при котором одновременно испускается, соответственно, один и два продольных оптических (LO) фонона. Энергия фононов ~36.3 мэВ, рассчитанная по сдвигу между бесфононной линией и фононным повторениями, соответствует LO фононам в окрестности Г-точки зоны Бриллюэна ненапряженного GaAs.

Полоса в районе 1.406 мэВ представляет собой излучение с участием марганца [7]. Для данной полосы характерно наличие длинноволнового крыла, сдвинутого на 10 мэВ относительно бесфононной линии. Это крыло представляет собой фононное повторение с участием поперечных акустических (ТА) фононов [7]. Длинноволновый пик в районе 1.36 мэВ ранее был отождествлен с примесью меди [8]. Для данного пика наблюдаются фононные LO повторения, соответствующие ненапряженной решетке GaAs.

Слабые коротковолновые линии на рис. 4 представляют собой экситонную люминесценцию GaAs. Более коротковолновую полосу с максимумом в районе 1.5145 эВ следует, по-видимому, приписать излучению свободных экситонов, в то время как более длинноволновую полосу с максимумом в районе 1.5119 эВ – излучению экситонов, связанных на нейтральных акцепторах. Отметим, что спектральное положение экситонных линий подтверждает отсутствие заметных напряжений в решетке GaAs.

На масштабах пространственного разрешения используемой системы регистрации, которое составляет ~20 мкм, значительных неоднородностей сигнала НФЛ на поверхности образцов В не наблюдалось.

Таким образом, на основе анализа спектров НФЛ можно утверждать, что верхний слой в исследованной ГС типа В представляет собой свободный от напряжений GaAs, в котором присутствует заметная концентрация германия, а также фоновые примеси Си и Mn.

Как видно из рис. 4, после того как образец находился ~150 дней в атмосфере при комнатной температуре, выраженная структура примесно-дефектной полосы излучения почти полностью исчезла. Осталась лишь наиболее яркая линия, соответствующая излучению ДАП с участием германия, и ее фононные повторения. Отметим, что данный результат воспроизводится и в других точках образца В (рис. 5).

Структура спектров образцов А радикально отличается от спектров образцов В (рис. 5). Широкая полоса в районе 1.7 eV (II), которая в образцах В была примерно в 200–400 раз слабее, чем примесно-дефектное излучение GaAs, в образцах А доминирует. На ее фоне излучение объемного GaAs зарегистрировать, как правило, не удается. Исключение составляют лишь отдельные области поверхности образцов А, в которых признаки излучения GaAs все-таки регистрируются (кривая 3 на рис. 5). Интенсивность сигнала люминесценции образца А существенно отличалась в разных точках (рис. 6).

Изменения интенсивности сигнала НФЛ связаны не с перестройкой каналов излучательной рекомбинации, а с изменением вклада полосы II (рис. 5). Наиболее яркой области на рис. 6 соответствует кривая 1 на рис. 5. При смещении от яркой точки, структура спектра сохраняется, но уменьшается интенсивность линии II. В частности, кривая 2 на рис. 5 соответствует области, расположенной в верхней центральной части образца А. В областях, для которых наблюдается подавление вклада от полосы II,



Рис. 5: Спектры НФЛ образца A (кривые 1–3) и образца B (кривые 4, 5) измеренные в различных точках. Значения интенсивностей кривых 1–3 умножены на 1000.



Рис. 6: Микрофотография люминесцирующей поверхности образца А. Размеры анализируемой области 1×1.5 мм².

(левая область рис. 6) удается зарегистрировать слабый вклад от примесно-дефектного излучения GaAs (кривая 3 на рис. 5).

Обсуждение. По результатам РД и АСМ видно, что структурно образцы А и В существенно различаются. Если кривая качания образца А значительно (в два раза) шире, чем у подложки, то в случае образца В наблюдается лишь незначительное уширение. Шероховатость поверхности характеризуется значениями среднеквадратичного отклонения, равными 7.44 нм и 3.83 нм для образцов А и В соответственно, что примерно на порядок превышает типичные значения для гетероструктур GaAs/Ge/GaAs [3] и слоёв Ge, выращенных на подложках GaAs [4]. По-видимому, увеличение шероховатости в нашей работе можно объяснить отсутствием высоковакуумного транспорта между установками МПЭ, который имелся в распоряжении авторов других работ и недостаточно хорошо отработанным процессом защиты поверхности GaAs от окисления при переносе пластины между установками МПЭ. Разная морфология поверхности образцов А и В (рис. 3) объясняется тем, что на вицинальной поверхности GaAs (001)A ступени оканчиваются атомами Ga и скорость диффузии адатомов Ga здесь выше, чем на вицинальной поверхности GaAs (001)В, где ступени оканчиваются атомами As [5]. После разворота решётки в образцах А для слоёв 5-7 ориентация вицинальной поверхности поменялась с GaAs(001) $3^0 \rightarrow (111)$ Ga на GaAs(001) $3^0 \rightarrow (111)$ As, и поэтому поверхность гетероструктуры образцов А стала более грубой, чем у В, что обычно и наблюдается [3].

Структура спектров образцов A, не характерная для GaAs, с доминированием полосы II в области энергии 1.7 эВ, существенно превышающей E_g , по-видимому может быть связана с образованием новых фаз на поверхности образцов, возможно в процессе их окисления атмосферным воздухом. Это предположение основано на том, что спектры такого вида характерны для образцов пористого GaAs, получаемого с помощью химического или электрохимического травления [9, 10]. Поверхность образцов A (рис. 3(a)) также имеет пористую структуру. Кроме того, на основании данных РД можно предположить, что образцы A имеют значительно большую концентрацию точечных дефектов, чем образцы B, из-за упоминаемого выше огрубления ростовой поверхности, что может значительно ускорять процессы окисления и образования новой фазы.

Заключение. Методом МПЭ получены гетероструктуры GaAs/Ge/GaAs, в которых кристаллическая решётка слоя GaAs, выращенного на Ge, развёрнута под прямым углом в плоскости подложки. Впервые разработана технология выращивания таких ГС на отдельных установках МПЭ с переносом образцов через атмосферу. По данным РД и НФЛ развёрнутый слой GaAs обладает достаточно высоким кристаллическим и оптическим совершенством. Сильная шероховатость поверхности ГС, выявленная ACM, указывает на недостаточно хорошую защиту поверхности от окисления при переносе пластин между установками.

Авторы выражают благодарность В. П. Мартовицкому за проведение исследований методом РД и фонду РФФИ за финансовую поддержку по грантам № 15-02-08521, № 14-02-0174 и № 16-29-03352 офи-м.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] И. П. Казаков, В. И. Цехош, А. В. Клековкин, М. А. Базалевский, Краткие сообщения по физике ФИАН **44**(7), 3 (2017).
- [2] В. С. Багаев, В. С. Кривобок, Е. Е. Онищенко и др., ЖЭТФ 140, 929 (2011).
- [3] X.Yu, PhD Thesis (Stanford Univ. 2006).
- [4] M. K. Hudait, Y. Zhu, N. Jain, J. L. Hunter, J. Vac. Sci. Tech. B **31**, 011206-1 (2013).
- [5] E. Third, F. Weinberg, M. Thewalt, and L. Young, Appl. Phys. Lett. 58, 714 (1991).
- [6] A. G. Milnes, Deep Impurities in Semiconductors (Wiley, N.Y., 1973).
- [7] M. Ilegems, R. Dingle, L. W. Rupp, Jpn. J. Appl. Phys. 46, 3059 (1975).
- [8] C. E. Third, F. Weinberg, M. Thewalt, and L. Young, Appl. Phys. Lett. 58, 714 (1991).
- [9] А. А. Лебедев, Ю. В. Рудь, Письма в ЖТФ 22, 12 (1996).
- [10] Д. Н. Горячев, О. М. Сресели, ФТП **31**, 1383 (1997).

Поступила в редакцию 26 июня 2016 г.