

GaAs/SrTiO₃ 外延半导体单晶 薄膜带间跃迁研究

陈益栋 刘兴权 陆 卫 史国良 沈学础

(中国科学院上海技术物理研究所, 红外物理国家重点实验室, 上海 200083)

Q. X. ZHAO M. WILLANDER

(Department of Physics, Fysikgrand 3, University of Chalmers, S-41296 Göteborg, Sweden)

(1998 年 12 月 21 日收到; 1999 年 1 月 23 日收到修改稿)

报道了在钙钛矿型结构的 SrTiO₃ 衬底上用分子束外延方法生长闪锌矿型结构的 GaAs 半导体单晶薄膜. 应用光调制反射光谱和光荧光方法, 研究了 GaAs 半导体薄膜的带间跃迁, 并与通常的 GaAs 体材料特性进行了对比研究. 结果表明, 在钙钛矿型结构 SrTiO₃ 衬底上生长的 GaAs 单晶薄膜具有与单晶体材料相似的禁带与光学特性, 在带间跃迁的弛豫上, 外延薄膜相对体材料大了约 5 倍.

PACC: 6855; 8110; 8115; 7125

1 引 言

异质结长期以来一直吸引着固体物理学和固体电子学研究者的注意. 用两种不同的材料会得到附加的自由度, 从而为研究用单一材料所不可能具有的新的物理现象和器件结构提供了良机. 随着分子束外延(MBE)和金属有机化学汽相沉积(MOCVD)等薄膜制备技术的发展, 已能够制备出具有原子尺度上平整和突变界面的异质结构. 从半导体异质结构到铁电材料、陶瓷材料等各种材料的异质结构的研究, 近年来取得了惊人的进展, 是目前固体物理学和固体电子学的热点之一.

具有钙钛矿结构的许多材料表现出了丰富的电学、磁学和光学性质, 如典型的铁电性、铁磁性以及引人注目的高温超导与巨磁电阻等, 因而钙钛矿型氧化物外延薄膜及其异质结构在一些新型的器件方面有着广泛的应用前景. 由于半导体材料自身在微电子与光电子等方面成功的应用, 因此将半导体材料与钙钛矿结构材料集成, 构造新的一类功能材料是很有意义的. SrTiO₃ 作为一种钙钛矿型结构的材料, 因其大的介电常数及良好的晶格匹配性, 在高温超导器件等结构中被广泛地用作衬底材料. 它是一些典型钙钛矿晶格结构的重要代表, 因此本项研究选取典型的半导体光电子材料 GaAs 和钙钛矿结构的典型材料 SrTiO₃ 为研究对象, 探讨这两种材料之间直接集成的可能性.

我们在 SrTiO₃ 衬底上外延得到了 GaAs 单晶薄膜并进行了一系列光学特性的研究. 本文主要报道 GaAs/SrTiO₃ 外延半导体单晶薄膜带间跃迁的特性.

2 实 验

选用 $1\text{ cm} \times 1\text{ cm} \times 1\text{ mm}$ 取向为(001)的高纯 SrTiO₃ 衬底片. SrTiO₃ 衬底片表面主要是碳玷污, 因而生长前先进行了化学清洗的预处理, 清除表面的油污^[1,2]后, 装入 RIBER 32R&D 型 MBE 系统. 在预处理室于 200, 350 和 500 °C 温度下除气; 然后传入生长室, 在 650 °C 温度下除碳 1 h; 此后温度降到 GaAs 生长的典型衬底温度 610 °C 作 GaAs 外延生长. 生长过程中 Ga 源炉温度为 $T_{\text{Ga}} = 900\text{ °C}$, As 源炉温度为 $T_{\text{As}} = 200\text{ °C}$, 以保证在作 GaAs 同质外延时的富 As 状态. 在相同生长条件下, 生长了两片 GaAs 外延样品, 一片约为 $2.5\text{ }\mu\text{m}$ (称之为 GS1), 另一片为 $1.9\text{ }\mu\text{m}$ (称之为 GS2). 外延 GaAs 样品的反射式高能电子衍射(RHEED)图样为点状, 没有环状条纹存在, 表明 GaAs 薄膜是单晶样品而不是非晶. 为了进一步确定 GaAs 外延薄膜的结晶质量, GS1 样品取出后进行了 X 射线衍射测量.

GS1 生长后传入预处理室, 进行原位光调制反射光谱(PR)的测量. 探测光源为溴钨灯; 调制光为 He-Ne 激光器的 632.8 nm 线; 通过单色仪分光后由硅光二极管探测器探测. 探测信号由锁相放大器放大后经过 A/D 转换获得调制光谱并存入计算机. 作为比较. 在相同的测量条件和系统中, 我们又测量了半绝缘的 GaAs 单晶样品的光调制反射光谱.

为了更好地研究 GaAs/SrTiO₃ 结构中 GaAs 能带结构特性, 我们将样品 GS2 取出后在 2 K 温度下测量了异质外延单晶薄膜 GaAs 与半绝缘 GaAs 单晶样品的光荧光光谱(PL)特性. 采用 Ar 离子激光器的 514 nm 线激发, 样品浸没在液氮中, 通过减压使样品温度维持在 2 K. 光荧光信号经过单色仪后由光电倍增管探测.

3 实验结果及讨论

图 1 给出了 GS1 样品的 X 射线衍射谱, 作为比较, 同时给出了 SrTiO₃ 衬底的 X 射线

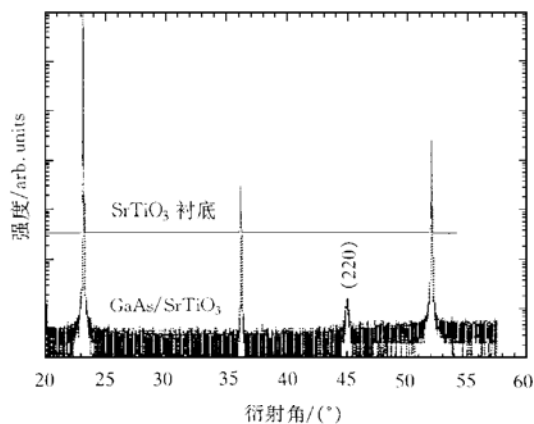


图 1 GaAs/SrTiO₃ 样品的 X 射线衍射谱

衍射谱. 从图中可以看出, GS1 样品的 X 射线衍射谱中于 $2\theta = 45^\circ$ 处出现了区别于 SrTiO_3 衬底的衍射峰, 此峰应来自 GaAs 外延薄膜. 经计算此峰为 GaAs(220) 晶向的 X 射线衍射峰. 这更进一步说明, 在 $\text{SrTiO}_3(001)$ 衬底上的 GaAs 外延膜为单晶薄膜. 由于 GaAs 和 SrTiO_3 的晶格常数相差较大, 导致 GaAs 薄膜不是(001)取向, 而是(220)取向.

图 2 为所测样品的 PR 光谱(由圆点表示). 其中谱线 *a* 为 GaAs/ SrTiO_3 结构中 GaAs 薄膜样品的 PR 光谱, 谱线 *b* 为单晶 GaAs 材料的 PR 光谱. 谱线 *b* 表现出通常的 GaAs 单晶材料的典型带间跃迁特征. 相对而言, 谱线 *a* 虽然与谱线 *b* 基本相似, 但其线宽要宽得多, 为了定量地给出两者的比较, 我们对 PR 光谱进行了理论拟合. 采用三阶微分通用拟合公式,

$$\frac{\Delta R}{R} = \text{Re}\{C[e^{i\theta}(E - E_g + i\Gamma)^{-m}]\},$$

其中, θ 为相位因子, E_g 为带间跃迁结构所对应的跃迁能量, m 与临界点类型有关, 对本文的样品取 $m = 3$, Γ 为展宽参数. 拟合的结果如图 2 实线所示.

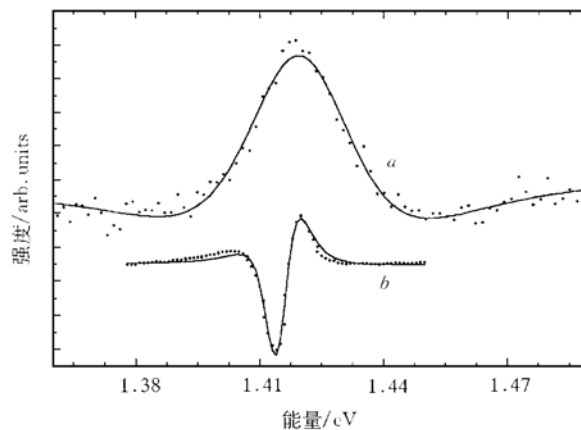


图 2 GaAs/ SrTiO_3 样品的 PR 光谱

拟合参数列于表 1 中. 从表 1 可见, 相对通常 GaAs 单晶材料而言, GaAs 薄膜带间跃迁的能量有 5 meV 蓝移, 而展宽因子增大了近 5 倍. 这表明薄膜材料中仍存在较大的散射, 使激子还难以形成. 这样在薄膜材料中观察到的是直接的带间跃迁, 而不是激子跃迁, 所以跃迁能量有约 5 meV 上升(与 GaAs 晶体中的激子束缚能 5 meV 一致^[3]). GaAs 中激子跃迁的消失和展宽因子的增加, 说明 GaAs 与 SrTiO_3 晶格之间的失配而引入的失配位错已使电子的散射大大增强. 这一点也可从图 3 的深低温下的 PL 光谱中明显地观察到.

表 1 PR 光谱的拟合参数

样 品	θ	E_g/eV	Γ/eV	m
GaAs	2.323	1.415	6.95×10^{-3}	3
GaAs/ SrTiO_3	-1.477	1.420	3.2×10^{-2}	3

图 3 给出了单晶 GaAs 参考样品、GaAs/ SrTiO_3 薄膜样品以及 SrTiO_3 衬底样品在 2 K

温度下的 PL 光谱. 由图 3 可见, SrTiO₃ 在测量波段没有 PL 信号, 而 GaAs/SrTiO₃ 样品呈现出峰位约在 1.52 eV 的宽峰, 它比 GaAs 参考样品的激子 PL 峰要宽一个多数量级. 与圆点相吻合的实线是采用通常的 Lorentz 线型拟合的理论曲线, 拟合结果得出该宽峰的峰位在 1.524 eV, 峰宽 18 meV, 是 GaAs 参考样品中激子峰线宽的 20 倍. 因此由 PL 光谱进一步看到, 在 GaAs 薄膜中存在着许多载流子的散射中心, 使载流子的寿命大大地缩短, 同时由于大量的晶格失配导致的位错, 使光生载流子难以迁移, 因此电子与空穴不易形成激子而辐射. 我们所观察到的 GaAs/SrTiO₃ 薄膜 PL 是直接来自 GaAs 的带间跃迁.

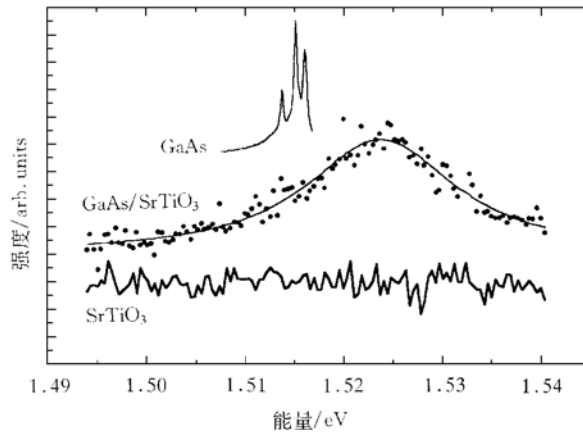


图 3 GaAs/SrTiO₃ 样品的 PL 谱

4 结 论

我们利用 MBE 技术在 SrTiO₃ 衬底上成功地生长出 GaAs 单晶薄膜. 虽然薄膜中存在大量的由晶格失配导致的缺陷, 但 PR 光谱和 PL 光谱的测量表明, GaAs 单晶薄膜中的带间跃迁行为仍与通常 GaAs 材料有很好的相似性. 这些光谱手段仍是对 GaAs/SrTiO₃ 材料有效的表征手段, 并可利用它的表征来进一步改善 GaAs 薄膜材料的光电性能.

- [1] Mamoru Yoshimoto, Hiroyuki Ohkubo *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**(1992), 3664.
- [2] Shunji Watanabe, Tokihisa Hipita *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **9**(1991), 2394.
- [3] Y. Y. Peter, Manuel Cardona, *Fundamentals of Semiconductors* (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1996).

STUDY OF THE INTER-BAND TRANSITION OF THE GaAs SINGLE-CRYSTAL FILM ON SrTiO₃ SUBSTRATE BY MBE

CHEN YI-DONG LIU XING-QUAN LU WEI SHI GUO-LIANG SHEN XUE-CHU

(State Key Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics,

Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083)

Q. X. ZHAO M. WILLANDER

(Department of Physics, Fysikgrand 3, University of Chalmers, S-41296 Göteborg, Sweden)

(Received 21 December 1998; revised manuscript received 23 January 1999)

ABSTRACT

This paper reports the molecular beam epitaxy growth of the GaAs single crystal film on the perovskite oxide SrTiO₃(001) substrate. The photo modulated reflectance spectroscopy and the photoluminescence measurement show that the energy band gap and optical property of the GaAs single crystal film on the SrTiO₃ substrate is similar to that of the GaAs bulk material and the broadening of band-to-band emission of the GaAs epitaxial film is 5 times that of the GaAs single crystal.

PACC: 6855; 8110; 8115; 7125