

Изменение структурных и электрофизических свойств нелегированных монокристаллов InAs инфракрасным лазерным облучением

© С.В. Пляцко, В.П. Кладько

Институт физики полупроводников Национальной академии наук Украины,
252650 Киев, Украина

(Получена 12 мая 1996 г. Принята к печати 18 марта 1997 г.)

Установлено значительное изменение электрофизических свойств и структурных характеристик монокристаллов InAs при воздействии инфракрасного лазерного излучения с энергией квантов, меньшей ширины запрещенной зоны InAs, и плотностью мощности лазерного излучения $W < 50 \text{ Вт/см}^2$. Эти изменения связаны с преобразованием и перераспределением собственных точечных дефектов в поле электромагнитной волны лазерного излучения.

Введение

Одним из эффективных методов управления свойствами полупроводников является метод лазерной обработки, использование которого позволяет в зависимости от соотношения величины кванта лазерного излучения $\hbar\omega$ и ширины запрещенной зоны E_g трансформировать его приповерхностные ($\hbar\omega > E_g$) [1] или объемные ($\hbar\omega < E_g$) [2] свойства. Однако, несмотря на многочисленные исследования, механизм взаимодействия лазерного излучения с кристаллами до настоящего времени не получил исчерпывающего объяснения. Поэтому цель настоящей работы — исследование лазерно-стимулированных ($\hbar\omega < E_g$) процессов трансформации структурных и электрофизических свойств кристаллов InAs, которые характеризуются узким интервалом области гомогенности и узкой шириной запрещенной зоны.

Методика эксперимента

В качестве источника облучения использовался CO₂-лазер непрерывного действия ($\hbar\omega = 0.118 \text{ эВ}$). Кинетические коэффициенты измерялись по стандартной методике. Стехиометрия образцов контролировалась с помощью рентгенодифракционных методов с использованием квазизапрещенных отражений [3]. Этот метод является чувствительным к изменению стехиометрии образцов и при точности измерения интегральной интенсивности дифрагированных рентгеновских лучей 0.3% позволяет контролировать изменение состава на уровне 10^{17} см^{-3} . Изменение интегральной интенсивности ΔR_i связано с изменением концентрации c_i формулой

$$\Delta R_i / R_i = k(c_{\text{In}} - c_{\text{As}}), \quad (1)$$

где константа k зависит от типа отражения и вида излучения. Расчеты показывают, что при использовании CuK_{α1}-излучения и отражения (222) можно определять отклонение $c_{\text{In}} - c_{\text{As}}$ на уровне $1.2 \cdot 10^{-4}$. Изменение относительной объемной доли искаженной решетки ρ_0 определялось по приросту интегральной интенсивности

за счет диффузной компоненты рассеяния на искажениях для рефлекса (333) по формуле [4]

$$R_{ie} = (1 - \rho_0)R_D + \rho_0R_K, \quad (2)$$

где R_{ie} , R_D , R_K — интегральные интенсивности: экспериментальная, а также рассчитанная по динамической и кинематической моделям рассеяния соответственно.

Исследовались нелегированные монокристаллы InAs. Вырезанные из одной шайбы образцы шлифовались, после чего химически полировались для удаления нарушенного слоя. Исследуемые кристаллы были близки к стехиометрическому составу с незначительным отклонением в сторону избытка атомов As или металлической компоненты и обладали дырочным и электронным типом проводимости соответственно.

Результаты и их обсуждение

Исследованные образцы, вырезанные из одной пластины, имели различный тип проводимости при температуре 77 К. Концентрация носителей в образцах электронного типа практически не зависит от температуры вплоть до области собственной проводимости. В области низких температур концентрация носителей тока, по-видимому, определяется собственными дефектами, имеющими электроактивный характер, уровни залегания которых находятся глубоко в зоне проводимости и поэтому не проявляются в температурных зависимостях постоянной Холла R_H и проводимости σ . Образцы 2-го типа с проводимостью при 77 К $\sigma_{77} = 2.5 \cdot 10^{-1} \text{ Ом}^{-1} \text{ см}^{-1}$ имеют зависимость $R_H(T)$, характерную для образцов с дырочным типом проводимости: с повышением температуры происходит инверсия типа проводимости ($T = 240 \div 250 \text{ К}$). В электронной области проводимости поведение коэффициента Холла $R_H(T)$ такое же, как и в 1-м случае.

После этого образцы подвергались лазерному облучению ($\hbar\omega = 0.118 \text{ эВ}$, $E_g = 0.35 \text{ эВ}$, $\hbar\omega < E_g$). При небольшой мощности ($W_1 = 10 \text{ Вт/см}^2$) излучения

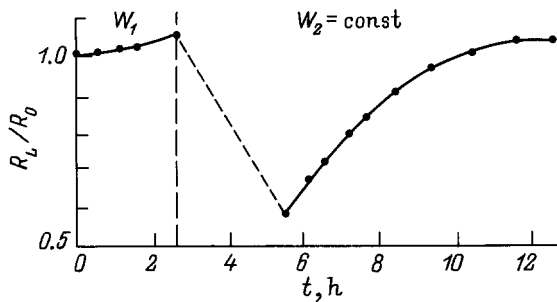


Рис. 1. Зависимость отношения значений коэффициента Холла R_L/R_0 от времени ИК облучения образцов InAs с избытком In. R_0 — коэффициент Холла для необлученного образца.

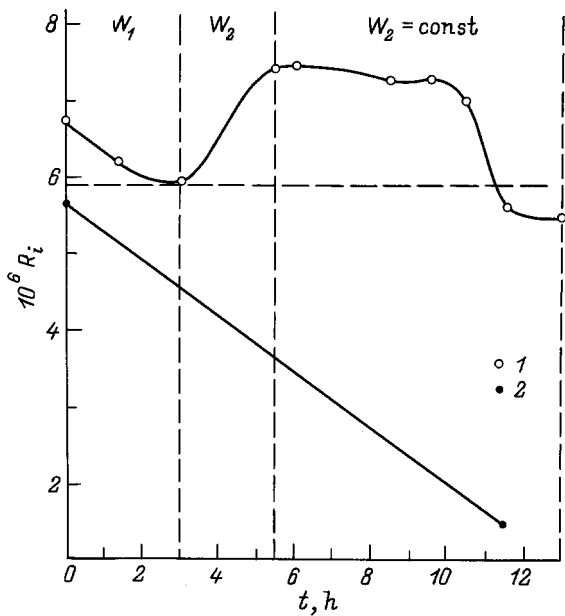


Рис. 2. Зависимость интегральной отражательной способности R_i квазизапрещенного отражения (222) от времени облучения для образцов InAs: 1 — с избытком In, 2 — с избытком As.

концентрация электронов в 1-м типе образцов незначительно уменьшается со временем облучения. Увеличение мощности до $W_2 = 20 \text{ Вт/см}^2$ вызывает заметный рост концентрации носителей тока за меньшее время экспозиции, чем при W_1 . Дальнейшее облучение при тех же условиях приводит к монотонному понижению концентрации электронов до уровня ниже исходной (рис. 1). Подвижность носителей при $T = 77 \text{ К}$ на протяжении всего времени взаимодействия кристаллов с лазерным излучением возрастала и превысила исходную в 2 раза.

Рентгеновские исследования свидетельствуют о том, что распределение атомов In и As в решетке при этом также изменяется. Сначала интегральная интенсивность R_i уменьшается по отношению к исходному значению, отвечающему избытку атомов In, почти до стехиометрического значения (рис. 2), а с увеличением мощности W_2 наблюдается рост R_i до значения выше исходного.

Накопление дозы облучения ($W_2 = \text{const}$) приводит к уменьшению R_i ниже уровня, отвечающего стехиометрическому значению (избыток As).

В кристаллах дырочного типа проводимости небольшая мощность $W_1 = 15 \text{ Вт/см}^2$ не вызывает заметных изменений при комнатной температуре, а при 77 К концентрация дырок сначала возрастает со временем облучения и имеет тенденцию к насыщению (рис. 3). С увеличением мощности излучения ($W_1 < W_2$) за время $t = 30 \text{ мин}$ происходит резкий рост концентрации дырок с последующим уменьшением со временем облучения. Очередное увеличение плотности мощности до $W_2 = 25 \text{ Вт/см}^2$ переводит образцы в состояние с электронным типом проводимости и аномально высокой подвижностью носителей при 77 К $\mu_{77} = 6 \cdot 10^5 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$ (рис. 4). Однако это состояние оказалось нестабильным. На протяжении 2-х суток образцы возвращались в состояние с p -типом проводимости. Продолжение облучения с той же плотностью мощности уменьшает концентрацию дырок, а через некоторое время кристаллы переходят в состояние с n -типа проводимостью во всем исследуемом интервале температур. При этом концентрация носителей с характерной температурной зависимостью близка к концентрации электронов в кристаллах n -типа проводимости в исходном состоянии (до облучения). После этого перехода кристаллы являются стабильными и с увеличением времени облучения при $W = \text{const}$ практически никаких изменений в концентрации электронов и их подвижности не происходит. Однако с увеличением мощности до $W_3 = 40 \text{ В/см}^2$ концентрация носителей как при 77 К, так и при 300 К снова возрастет, как и в кристаллах изначально n -типа проводимости (рис. 1, $t = 5.5 \text{ ч}$ и рис. 3, $t = 9 \text{ ч}$), но при больших значениях

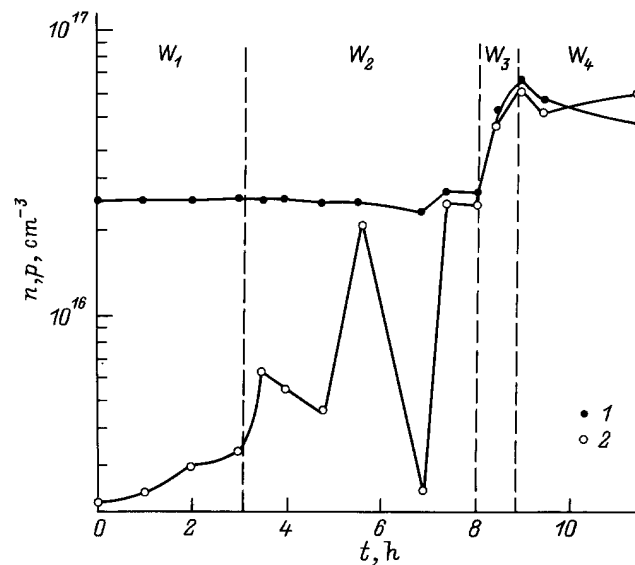


Рис. 3. Зависимость концентрации носителей тока от времени облучения для образцов InAs с избытком As при температуре $T, \text{ К}$: 1 — 300, 2 — 77. Мощности облучения, Вт/см^2 : $W_1 = 15$, $W_2 = 25$, $W_3 = 40$, $W_4 = 4$.

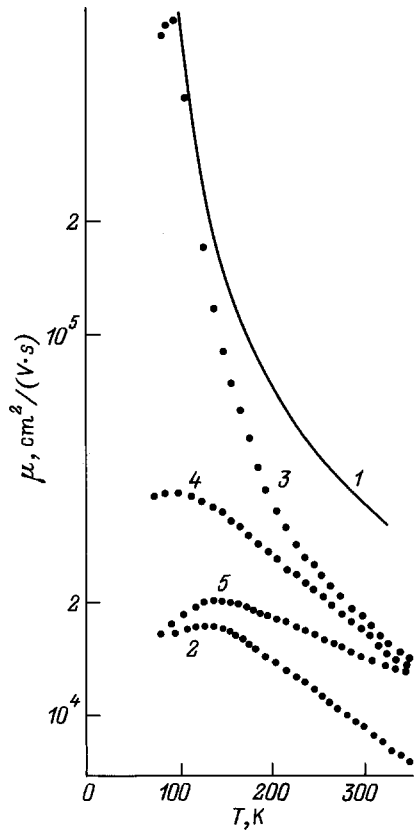


Рис. 4. Температурные зависимости подвижности электронов в кристаллах InAs. 1 — расчет для случая рассеяния на колебаниях решетки [5]. Эксперимент на кристаллах: 2 — исходном с избытком In, 3–5 — с избытком As. Измерения в областях *n*-типа: 3 — неустойчивой, 4 — устойчивой; 5 — при совместном действии полей: постоянного электрического и лазерной волны.

W и времени облучения. После этого мощность была значительно снижена до $W_4 = 4 \text{ Вт/см}^2$ и к образцу было приложено постоянное электрическое поле $E < 0.1 \text{ В/см}$ параллельно направлению электрического вектора лазерной волны. Как было показано в работе [6], в этом случае лазерно-стимулированные изменения в решетке происходят значительно быстрее, и кроме того, с увеличением времени совместного действия полей в кристаллах наблюдается направленная миграция собственных и примесных компонент. В InAs при таком воздействии концентрация электронов начинает падать (рис. 5).

Результаты этих экспериментов можно объяснить, если исходить из того, что происходящие изменения в кристалле не являются тепловыми, а связаны со стимулированными лазерными облучением преобразованиями в системе собственных точечных дефектов.

Как и в других полупроводниковых соединениях GaAs, PbSnTe, PbSnSe [6,7], так и в InAs лазерно-стимулированные преобразования происходят в обеих подрешетках, но с разной скоростью. Обычно металлическая компонента более активно реагирует на изменение

плотности мощности лазерного излучения, чем на дозу, что и наблюдается в эксперименте.

Такой же механизм лазерно-стимулированного перераспределения дефектов характерен и для образцов с избытком As. Особенности в зависимости $R_H(T)$, которые наблюдаются только в случае совместного действия внешнего электрического поля и лазерного излучения (рис. 5) для InAs, являются необычными и могут быть связаны с резонансным уровнем в зоне проводимости, который отдает электроны в зону проводимости с понижением температуры. Из анализа $R_H(T)$ было рассчитано положение этого уровня в предположении, что донорный уровень формируется волновыми функциями *s*-типа

$$E_d(T) = E_d(0) - \alpha T,$$

где $E_d(0) = (0.057 \pm 0.005) \text{ эВ}$, $\alpha = (2.0 \pm 0.2) \times 10^{-4} \text{ эВ/К}$.

Как уже упоминалось, во время облучения для кристалла с избытком As характерной является область *n*-типа проводимости с аномально высоким значением подвижности (рис. 4). В кристаллах с избытком In такое состояние не наблюдается. Как видно из рис. 4, подвижность электронов в исходных образцах не очень высокая, поскольку в наиболее совершенных кристаллах InAs, выращенных методом Чохральского, подвижность в области азотных температур достигает значения $\mu_{77} = 5 \cdot 10^4 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$. Естественно, что чем больше концентрация скоплений собственных компонент или примесей, тем ниже подвижность электронов [8,9]. На рис. 6 приведена зависимость относительной объемной доли искажений в решетке от времени облучения. Как следует из рисунка, со временем облучения величина ρ_0

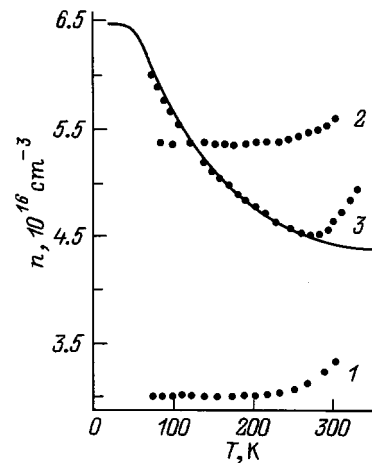


Рис. 5. Температурные зависимости концентрации носителей тока для образцов InAs: 1 — образец InAs с избытком In после облучения в течение 13 ч. 2 — образец InAs с избытком As в устойчивой электронной области проводимости перед совместным действием электрического поля и лазерного излучения (9 ч 30 мин), 3 — образец InAs с избытком As в устойчивой электронной области проводимости при совместном действии электрического поля и поля лазерной волны (сплошная кривая — теоретически рассчитанная).

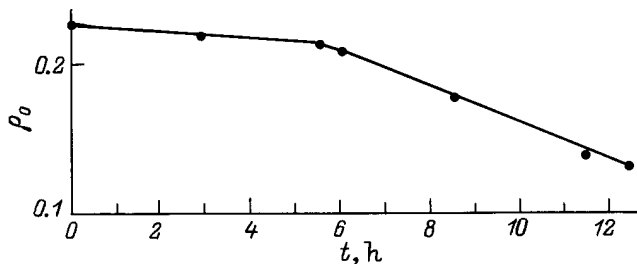


Рис. 6. Изменение относительной объемной доли искаженной решетки со временем облучения для образцов InAs с избытком In.

монотонно уменьшается, что свидетельствует об уменьшении объемной доли крупномасштабных неоднородностей в кристаллах. Этот результат согласуется с данными по измерению стехиометрии (рассасывание коагулятов собственных компонентов при облучении приводит к изменению соотношения атомов в решетке), а также с поведением подвижности носителей тока в процессе облучения, которая увеличивается по отношению к исходным образцам с увеличением дозы облучения. Но следует отметить, что этот механизм рассеяния вряд ли является доминирующим в нестабильной фазе электронной проводимости, где при довольно высокой доле объемных искажений подвижность при $T = 77$ К достигает в процессе облучения значений, практически ограниченных теоретическим пределом для рассеяния на колебаниях решетки (рис. 4, кривая 1). Примечательно, что при $N_I \approx n_{77} = 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ подвижность (с учетом рассеяния на ионизованных примесях и колебаниях решетки) не должна превышать $\mu_{77} = 7.5 \cdot 10^4 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$, N_I — концентрация ионизованных примесей. В эксперименте подвижность выше этого значения почти на порядок.

Возможной причиной такого поведения $\mu(T)$ может быть упорядочение совокупности заряженных рассеивающих центров под действием лазерного излучения вследствие их кулоновского отталкивания и образование коррелированно расположенной системы точечных дефектов со смешанной валентностью [10]. Для реализации упорядочения рассеивающих центров их концентрация должна быть не ниже $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, что в компенсированных полупроводниках с низкими энергиями образования точечных дефектов, к которым относятся соединения $A^{III}B^V$, вполне возможно. Еще раз хочется отметить, что такое состояние возникает только при лазерно-стимулированной инверсии от p - к n -типа проводимости с последующим переходом в стабильный n -тип.

Подвижность носителей в кристаллах с устойчивым n -типом немного ниже подвижности, которая наблюдалась в образцах с избытком In после облучения. Это свидетельствует о большей концентрации рассеивающих центров в образцах с избытком As. Кроме того, как видно из рис. 4, с увеличением мощности при незначительном времени облучения увеличение концентрации

электронов сопровождается снижением подвижности. Однако характер температурной зависимости остается практически без изменений. Особенно необходимо отметить изменение зависимости $\mu(T)$ во всей области температур при совместном воздействии лазерного излучения с плотностью мощности, уменьшенной на порядок, и слабого электрического поля (рис. 4, кривая 5) — подвижность растет с температурой, достигает максимума и потом падает. Это свидетельствует об изменении механизмов рассеяния не только в области низких температур $T < 130$ К, но и при более высоких температурах $130 < T < 400$ К. Зависимость $\mu(T)$ в области температур $T < 130$ К определяется преимущественно рассеянием на ионизованных примесях, которые генерируются совместным действием лазерного излучения и внешнего электрического поля. Его вклад возрастает с увеличением дозы облучения, что хорошо согласуется с зависимостью концентрации носителей от дозы в этом же интервале. К таким центрам, как вытекает из анализа $R_H(T)$ и интенсивностей квазизапрещенных отражений, на наш взгляд, принадлежат атомы As в междоузлиях своих плоскостей.

Заключение

Таким образом, воздействие лазерного излучения с $\hbar\omega < E_g$ и плотностью мощности, значительно ниже пороговой плотности, необходимой для теплового разрушения кристалла, позволяет изменять электрофизические и структурные свойства InAs благодаря перераспределению собственных электронейтральных компонент в поле лазерной волны.

Список литературы

- [1] П.К. Кашкаров, В.И. Петров, Д.В. Птицын. ФТП, **23**, 2080 (1989).
- [2] F.F. Sizov, S.V. Plyatsko. J. Cryst. Growth, **92**, 571 (1988).
- [3] I. Fujimoto. Jap. J. Appl. Phys., **23**, 287 (1984).
- [4] В.В. Лидер, Ф.Н. Чуховский, В.Н. Рожанский. ФТТ, **19**, 1231 (1977).
- [5] D.L. Rode. Phys. Rev. B, **3**, 3287 (1971).
- [6] Yu.S. Gromovoj, S.V. Plyatsko, F.F. Sizov, L.A. Korovina. J. Phys.: Condens. Matter, **2**, 10 391 (1990).
- [7] В.П. Кладько, С.В. Пляцко. Письма ЖТФ, **22**, 32 (1996).
- [8] А.Н. Баранов, Т.И. Воронина, А.А. Гореленок, Т.С. Лагунова, А.М. Литвак, М.А. Сиповская, С.П. Старосельцева, В.А. Тихомирова, В.В. Шерстнев. ФТП, **26**, 1612 (1992).
- [9] А.Н. Баранов, Т.И. Воронина, Т.С. Лагунова, М.А. Сиповская, В.В. Шерстнев, Ю.П. Яковлев. ФТП, **27**, 421 (1993).
- [10] И.М. Цидильковский. УФН, **162**, 63 (1992).

Редактор Т.А. Полянская

Changes in structural and electrophysical properties of undoped InAs crystals due to IR laser treatment

S.V. Plyatsko, V.P. Klad'ko

Institute of Semiconductor Physics
of Ukrainian National Academy of Sciences,
252650 Kiev, Ukraine

Abstract Considerable changes of electrical properties and structural characteristics of InAs single crystals are found under the action of IR laser radiation with photon energies less than the band gap of InAs. These changes are connected with transformation and redistribution of intrinsic defects in the field of the electromagnetic wave of laser radiation.