

熔体外延法生长截止波长 8~12 μm InAs_{1-x}Sb_x 单晶的透射光谱*

高玉竹^{1,†} 龚秀英¹ 山口十六夫²

(1 同济大学电子与信息工程学院, 上海 200092)

(2 静冈大学电子工学研究所, 滨松 432-8011, 日本)

摘要: 用熔体外延法在 InAs 衬底上成功地生长了截止波长为 8~12 μm 的 InAs_{1-x}Sb_x 单晶. 用红外光谱仪测量了样品的透射光谱. 提出了组分微观分布函数的概念, 并计算了 InSb 单晶和 3 种不同组分 InAs_{1-x}Sb_x 样品的透射光谱. 结果表明, 实验测得的样品截止波长与计算得到的数据基本一致, 从而证实了熔体外延法生长的 InAs_{1-x}Sb_x 单晶的禁带宽度变窄现象, 并认为组分微观分布的不均匀性可能影响 III-V 族混晶的能带结构.

关键词: 熔体外延; 截止波长; 透射光谱; 微观分布

PACC: 7340G

中图分类号: O612.5

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)S0-0115-04

1 引言

我们在以前发表的论文中提出了一种新的晶体生长法——熔体外延法, 用此法已成功生长了截止波长为 8~12 μm 的 InAsSb 单晶, 5~7 μm 的 InGaSb 及 11.5~13.5 μm 的 InNAsSb 单晶材料^[1~5]. 用多种手段研究了材料的光学、电学及结构性质. 结果证明, 这些材料具有良好的单晶取向结构, 均匀的组分分布及很高的电子迁移率. 本文报道用傅里叶红外光谱仪研究 InAsSb 外延单晶透射光谱的结果. 引入了组分微观分布函数的概念, 并在此假设条件下计算了 InSb 单晶和 3 种不同组分外延样品的透射光谱. 结果发现, 实验测得的样品的截止波长与计算得到的结果基本一致. 我们认为 InAsSb 材料的禁带宽度变窄可能与半导体混晶中存在的组分微观分布的不均匀性有关.

2 实验与测试结果

用于测试的 InAsSb 外延单晶是在液相外延生长系统中用熔体外延法于石墨舟中在约 600 $^{\circ}\text{C}$ 下生长的. 原材料是 7N 的 In, Sb 和非掺杂 InAs 多晶. 衬底为 <100> 晶向的 n-InAs. 熔体外延法及 InAsSb 的生长过程已经在前文中叙述过了^[1~5], 这里不再重复.

InAs_{1-x}Sb_x 外延层的透射光谱是在日本静冈大学电子工学研究所用傅里叶红外光谱仪 (JIRWINSPEC50, JEOL, Japan) 测定的. 图 1 示出了 3 种不同组分的 InAsSb 外延样品的室温透射光谱曲线. 这 3 个样品的组分和测得的截止波长分别为: 曲线 a, $x = 0.946, \lambda = 9.5\mu\text{m}$; 曲线 b, $x = 0.948, \lambda = 10.5\mu\text{m}$; 曲线 c, $x = 0.960, \lambda = 12.5\mu\text{m}$.

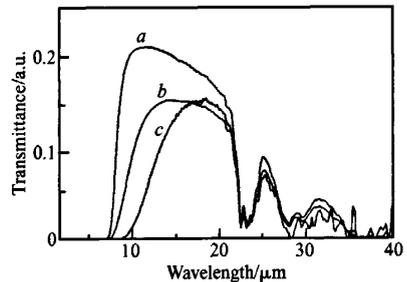


图 1 三个不同组分的 InAsSb 外延样品的室温透射光谱曲线
Fig. 1 Room temperature transmittance spectra for InAsSb epilayers with three different compositions

从图中可看出, 样品在室温下的截止波长为 9.5~12.5 μm , 比 MBE 及 LPE 法生长的组分相同的 InAsSb 材料的截止波长明显要长, 即用熔体外延法生长的材料的禁带宽度变窄了. 还可看出, 当波长超过样品的本征吸收边后, 透过率迅速下降, 这是由样品中的自由载流子吸收引起的.

* 国家自然科学基金资助项目 (批准号: 60644005)

† 通信作者. Email: gaoyuzhu@mail.tongji.edu.cn

2006-12-29 收到

3 计算

众所周知,在 III-V 族混晶半导体中,组成原子在其晶格上的分布是不规则的.因此,在 InAsSb 外延层中,尽管测得的组分的宏观分布是很均匀的,但实际上,In,As 和 Sb 原子在其晶格上的分布是不规则的.据此,我们假设了一个 InAsSb 的微观组分分布函数,并可用下面的经验式表示:

$$y = a \exp[-b(1-x)] \quad (1)$$

式中 y 表示微观的组分分布函数; x 是 InSb 的组分; $a=1$; b 是一个参数.

我们还假设,InSb 的微观平均组分为 X .从 0 到 1 积分 X 等于从 0 到 1 积分 y 的一半:

$$\int_0^X a \exp(-b(1-x)) dx = \frac{1}{2} \int_0^1 a \exp(-b(1-x)) dx \quad (2)$$

计算(2)式,得到

$$\ln\left(\frac{1}{2}\right) = -b(1-X)$$

即

$$b = \frac{0.693}{1-X} \quad (3)$$

因此,

$$y = a \exp\left(-\frac{0.693}{1-X} \times (1-x)\right) \quad (4)$$

图 2 的右方示出了 InAsSb 的 $X=0.98, 0.96$ 及 0.94 时的微观组分分布函数.为了比较,图中也示出了 Fang 等人^[6]给出的 InAsSb 材料在 300K 和 77K 下的禁带宽度与组分的关系.

材料的介电常数由下式给出:

$$\begin{aligned} \epsilon &= (n^2 - k^2) + i(2nk) \\ &= \epsilon_1 + i\epsilon_2 \end{aligned} \quad (5)$$

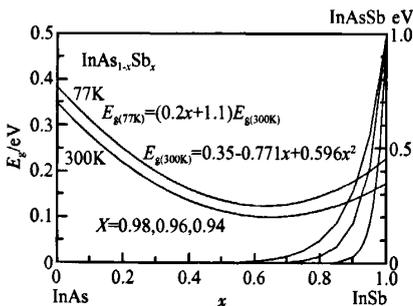


图 2 InAs_{1-x}Sb_x 材料在 $X=0.98, 0.96$ 及 0.94 时的微观组分分布函数以及 Fang 等人^[6]给出的禁带宽度与组分的关系
Fig. 2 Microscopic composition distribution function of InAs_{1-x}Sb_x for $X=0.98, 0.96$, and 0.94 , and compositional dependence of energy band gap provided by Fang *et al.*^[6]

式中 ϵ 是介电常数; ϵ_1 是介电常数的实部; ϵ_2 是介电常数虚部; n 是折射指数; k 是消光系数.

InSb(当 InAs_{1-x}Sb_x 的 $x=1$ 时)的介电常数取自手册,而 InSb 和 InAs_{1-x}Sb_x 的禁带宽度之差可由图 2 算出,求得 InAs_{1-x}Sb_x 的介电常数.根据组分分布,可将 InAs_{1-x}Sb_x 的平均介电常数用(6)式表示:

$$\begin{aligned} \frac{\sum \epsilon_1(x)y(x)}{\sum y(x)} &= \langle \epsilon_1 \rangle \\ \frac{\sum \epsilon_2(x)y(x)}{\sum y(x)} &= \langle \epsilon_2 \rangle \end{aligned} \quad (6)$$

由平均介电常数 $\langle \epsilon_1 \rangle$ 和 $\langle \epsilon_2 \rangle$, InAs_{1-x}Sb_x 的折射指数 $\langle n \rangle$ 和消光系数 $\langle k \rangle$ 可由(7)式计算:

$$\begin{aligned} \langle n \rangle &= \sqrt{\frac{1}{2}(\sqrt{\langle \epsilon_1 \rangle^2 + \langle \epsilon_2 \rangle^2} + \langle \epsilon_1 \rangle)} \\ \langle k \rangle &= \sqrt{\frac{1}{2}(\sqrt{\langle \epsilon_1 \rangle^2 + \langle \epsilon_2 \rangle^2} - \langle \epsilon_1 \rangle)} \end{aligned} \quad (7)$$

当 $X=1.00, 0.98, 0.96$ 及 0.94 时 InAs_{1-x}Sb_x 的折射指数及消光系数如图 3 所示.

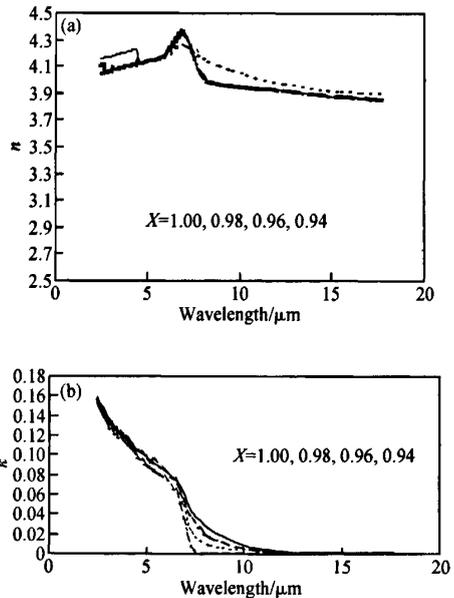


图 3 当 $X=1.00, 0.98, 0.96$ 及 0.94 时 InAs_{1-x}Sb_x 的折射指数 $\langle n \rangle$ (a) 和消光系数 $\langle k \rangle$ (b) X 是平均的微观 InSb 组分.
Fig. 3 Refractive index $\langle n \rangle$ (a) and extinction coefficient $\langle k \rangle$ (b) of InAs_{1-x}Sb_x for $X=1.00, 0.98, 0.96$, and 0.94 X is the average of microscopic InSb composition.

因此,根据折射指数 $\langle n \rangle$ 和消光系数 $\langle k \rangle$,得到 InAs_{1-x}Sb_x 的透射率的表达式:

$$R = \frac{(\langle n \rangle - 1)^2 + \langle k \rangle^2}{(\langle n \rangle + 1)^2 + \langle k \rangle^2}$$

$$T = (1 - R)^2 \exp\left(-\frac{4\pi}{\lambda} \langle k \rangle d\right)$$

$$= \left(\frac{4\langle n \rangle}{(\langle n \rangle + 1)^2 + \langle k \rangle^2}\right)^2 \exp\left(-\frac{4\pi}{\lambda} \langle k \rangle d\right) \quad (8)$$

式中 T 是透射率; R 是反射率; d 是 InAsSb 外延层的厚度. 由于通常用熔体外延法生长的 InAsSb 外延层的厚度达到 100 μm , 则设 $d = 100\mu\text{m}$. 由 (8) 式计算得到的 InAs_{1-x}Sb_x 在 300K 下的透射光谱示于图 4.

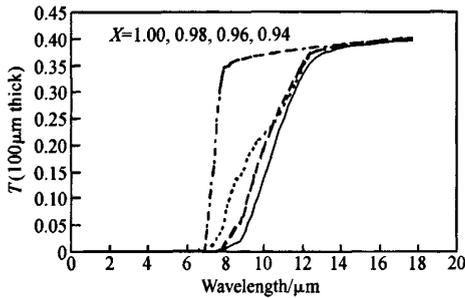


图 4 当 $X = 1.00, 0.98, 0.96$ 和 0.94 时计算得到的 InAs_{1-x}Sb_x 外延单晶在 300K 下的透射光谱曲线 X 是平均的微观 InSb 组分.

Fig. 4 Calculated transmittance spectra of InAs_{1-x}Sb_x for $X = 1.00, 0.98, 0.96$, and 0.94 at 300K X is the average of microscopic InSb composition.

由图 4 可见, InAsSb 外延层的截止波长可超过 10 μm . 因此, 由计算得到的数据与实验测定值基本上一致. 该结果表明, 用 (1) 式表示的 InAsSb 的微观组分分布函数是合理的. 我们认为, InAs_{1-x}Sb_x 材料的禁带宽度变窄可能与材料中的微观组分分布的不均匀性有关. 此外, 对于熔体外延来说, 熔体是在一石墨压块下结晶的. 在熔体结晶的过程中, 石墨压块抑制了其体积的膨胀, 这一特殊的生长工艺也可能影响其能带结构, 但是, 这需要更多的实验数据

来证明. 这里应该指出, 根据 EPMA 的测量结果, 沿外延层的表面及生长方向, InAs_{1-x}Sb_x 材料的宏观组分分布都是相当均匀的^[5].

4 结论

用熔体外延法成功地生长了截止波长为 8~12 μm 的 InAs_{1-x}Sb_x 单晶, 用傅里叶红外光谱仪测出了不同组分样品的透射光谱曲线. 在微观组分分布函数的假设下计算了 InAs_{1-x}Sb_x 单晶的透射光谱曲线. 结果表明, 计算得到的截止波长数据与实验测定值基本一致, 从而证明微观组分分布函数的概念及其计算方法是合理的, 单晶的微观组分分布不均匀可能会对材料的能带结构产生影响, 增加其弯曲参数, 从而使禁带宽度变窄.

参考文献

- [1] Gao Yuzhu, Kan H, Gao Fengsheng, et al. Improved purity of long-wavelength InAsSb epilayers grown by melt epitaxy in fused silica boats. *J Cryst Growth*, 2002, 234(1): 85
- [2] Gao Yuzhu, Kan H, Murata J I, et al. High purity In_xGa_{1-x}Sb single crystals with cutoff wavelength of 7~8 μm grown by melt epitaxy. *J Electro Material*, 2000, 29 (10): L25
- [3] Gao Yuzhu, Yamaguchi T, Gong Xiuying, et al. InAsSb single crystals with cutoff wavelength of 11~13.5 μm grown by melt epitaxy. *Jpn J Appl Phys*, 2003, 42(7A): 4203
- [4] Gao Yuzhu, Gong Xiuying, Gui Yongsheng, et al. Electrical properties of melt-epitaxy-grown InAs_{0.04}Sb_{0.96} layers with cutoff wavelength of 12 μm . *Jpn J Appl Phys*, 2004, 43(3): 1051
- [5] Gao Yuzhu, Gong Xiuying, Fang Weizheng, et al. InAsSb single crystals with cutoff wavelength longer than 10 μm grown by melt epitaxy. *J Infrared Millim Waves*, 2004, 23(6): 405 (in Chinese) [高玉竹, 龚秀英, 方维政, 等. 用熔体外延法生长的截止波长 10 μm 以上的 InAsSb 单晶. 红外与毫米波学报, 2004, 23(6): 405]
- [6] Fang Z M, Ma K Y, Jaw D H, et al. Photoluminescence of InSb, InAs, and InAsSb grown by organometallic vapor phase epitaxy. *J Appl Phys*, 1990, 67(11): 7034

Transmission Spectra for InAs_{1-x}Sb_x Alloy with Cutoff Wavelength of 8~12 μ m Grown by Melt-Epitaxy*

Gao Yuzhu^{1,†}, Gong Xiuying¹, and Tomuo Yamaguchi²

(1 College of Electronics and Information Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

(2 Research Institute of Electronics, Shizuoka University, Hamamatsu 432-8011, Japan)

Abstract: A study of transmission spectra for InAs_{1-x}Sb_x alloy with cutoff wavelength of 8~12 μ m grown by melt-epitaxy (ME) was performed. The transmission spectra of the epilayers were measured using a FTIR photospectrometer. A calculation of the transmission spectra for InAs_{1-x}Sb_x alloy was carried out under an assumption of composition microscopic distribution function. A fundamental agreement between experiments and theoretical calculation is obtained, demonstrating energy band gap narrowing of this material. The composition microscopic distribution in-homogeneity may affect the energy band gap structure for III-V mixed crystals.

Key words: melt epitaxy; cutoff wavelength; transmittance spectrum; microscopic distribution

PACC: 7340G

Article ID: 0253-4177(2007)S0-0115-04

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 60644005)

† Corresponding author. Email: gaoyuzhu@mail.tongji.edu.cn

Received 29 December 2006