

## Теплопроводность монокристалла GaAs, выращенного в условиях микрогравитации

А. И. Иванов, А. Н. Лукьянов

*Ракетно-космический комплекс «Энергия» им. С. П. Королева  
г. Королев, Московск. обл., 141070, Россия*

Б. А. Мерисов, А. В. Сологубенко, Г. Я. Хаджай

*Харьковский национальный университет им. В. Н. Каразина  
пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61077, Украина  
E-mail: george.ya.khadjai@univer.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 28 февраля 2002 г.

В интервале температур 2–300 К проведено сравнительное исследование теплопроводности образцов монокристалла GaAs, полученных в земных условиях и аналогичным способом в условиях микрогравитации на пилотируемой станции «Мир». Обнаружено, что тепло в образцах переносится фононами. Проведена согласованная обработка температурных зависимостей теплопроводности «земного» и «космического» образцов в рамках дебаевской модели фононного спектра с учетом граничного и резонансного рассеяний, а также рассеяния на «плоских дефектах» и фонон-фононных  $U$ -процессов. Различие в зависимостях теплопроводности «космического» и «земного» образцов связано с наличием в «земном» образце избыточного мышьяка, который обуславливает как резонансное рассеяние, так и рассеяние на «плоских дефектах», в качестве последних могут быть кластеры атомов мышьяка.

В інтервалі температур 2–300 К проведено порівняльне дослідження теплопровідності зразків монокристалла GaAs, отриманих у земних умовах та аналогічним способом в умовах мікрогравітації на пілотованій станції «Мир». Виявлено, що тепло у зразках переноситься фононами. Проведено узгоджену обробку температурних залежностей теплопровідності «земного» та «космічного» зразків у рамках дебаївської моделі фононного спектра з урахуванням граничного та резонансного розсіяннь, а також розсіяння на «плоских дефектах» та фонон-фононних  $U$ -процесів. Різниця у залежностях теплопровідності «космічного» та «земного» зразків пов'язана з наявністю у «земному» зразку надлишкового миш'яку, який обумовлює як резонансне розсіяння, так і розсіяння на «плоских дефектах», у якості останніх можуть бути кластери атомів миш'яку.

PACS: 66.60.+a

### Введение

Арсенид галлия — один из важнейших полупроводниковых материалов, используемых для изготовления сверхбыстродействующих и радиационностойких микроэлектронных приборов. Исследование влияния технологии и условий получения монокристаллов GaAs на степень их совершенства в настоящее время является предметом постоянного интереса.

Экспериментальное исследование теплопроводности таких материалов, особенно при низких температурах, с последующим описанием полученных результатов в рамках существующих теоретических моделей, позволяет установить спектр дефектов в образце и оценить изменение их концентраций в результате обработки.

Настоящая работа посвящена сравнительному исследованию при низких температурах тепло-

проводности образцов GaAs, полученных одинаковым способом в земных условиях и на пилотируемой станции «Мир» в условиях микрогравитации.

### Эксперимент

Исследуемый монокристалл арсенида галлия представляет собой единый монокристалл, состоящий из двух частей: монокристалла, выращенного на Земле в лабораторных условиях, и монокристалла, полученного перекристаллизацией в условиях микрогравитации в космосе в установке «Галлар».

Выбор в качестве объекта исследования именно этого комбинированного монокристалла представляется оптимальным для сравнительного анализа, так как выращенный в лабораторных условиях монокристалл является не только затравкой, но и исходным объектом для получения монокристалла арсенида галлия из расплава методом направленной кристаллизации в условиях микрогравитации.

Исходный монокристалл при подготовке космического эксперимента представлял собой цилиндр диаметром 22,2 мм и длиной 85 мм. Длина участка образца, переплавленного в космосе, составляла 50 мм. После проведения космического эксперимента от «земного» и «космического» образцов были отрезаны тамплеты длиной 25 и 15 мм, из которых затем были вырезаны образцы по технологии ориентированной резки.

Элементный состав образцов определяли на лазерном энерго-масс-анализаторе ЭМАЛ-2. Результаты анализа приведены в табл. 1.

Анализ структуры образцов арсенида галлия с использованием установки УРС-60 и дифракто-

разцах наблюдается макроблочность. Средняя плотность дислокаций в «земном» образце составила  $9,9 \cdot 10^4 \text{ см}^{-2}$ , в «космическом» —  $7,8 \cdot 10^4 \text{ см}^{-2}$ . Примесный состав определяли методами искровой масс-спектрометрии на масс-спектрометре JMS-01-VM2. Уровень содержания большинства примесей в обоих образцах не превышал  $10^{-8}$  массовых долей. Примеси фтора, магния, серы, кальция и цинка находились на уровне  $10^{-7}$  массовых долей. Содержание натрия, калия, фосфора, железа и хрома в «космическом» кристалле оказалось ниже. Учитывая уровень чувствительности применяемых методов, можно утверждать, что в исследуемых монокристаллах отсутствуют фазовые выделения или сегрегация элементов размерами более 1 мкм и содержанием легких элементов более  $10^{-4}$  массовых долей и тяжелых — более  $10^{-5}$  массовых долей.

Теплопроводность образцов измеряли методом стационарного одноосного теплового потока в температурном интервале 2–300 К. Тепловой поток направлялся вдоль кристаллографического направления [100]. Для контроля температуры использовали термодпары Cu–Au+Fe. Для устранения потерь тепла на излучение в области  $T > 100 \text{ К}$  применяли активный антирадиационный экран.

### Результаты и их обсуждение

1. Температурные зависимости теплопроводности  $\lambda$  обоих образцов GaAs приведены на рис. 1. Максимальное значение теплопроводности «космического» образца примерно в 5 раз больше, чем аналогичное значение для «земного» образца. Максимум теплопроводности «космичес-

Таблица 1

Элементный состав образцов		
Элементы	Содержание, ат. %	
	«Земной»	«Космический»
As	50,044	49,974
Ga	49,944	49,976
O	0,012	0,05

метра УРС-50 ИМ, а также стандартных методов рентгеноструктурного анализа показал, что эти образцы являются монокристаллами. Направления роста достаточно точно совпадают с кристаллографическим направлением [100]. В обоих об-

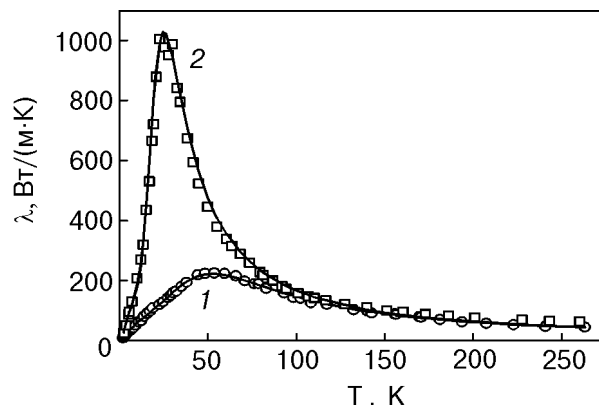


Рис. 1. Температурная зависимость теплопроводности  $\lambda$  монокристалла GaAs: «земной» образец (1); переплавленный в условиях микрогравитации «космический» образец (2).

кого» образца смещен в сторону более низких температур.

Измерения температурных зависимостей электропроводности показали, что для обоих образцов электронным вкладом в теплопроводность можно пренебречь во всем исследованном интервале температур. Отметим, что электропроводность «земного» образца примерно вдвое больше, чем «космического».

2. Температурные зависимости теплопроводности образцов описаны с использованием известных механизмов рассеяния фононов.

При расчете зависимости теплопроводности GaAs от температуры достаточно часто используются весьма сложные формулы (см., например, [1–6]), учитывающие нелинейную дисперсию фононного спектра, различие в фонон-фононном взаимодействии для продольных и поперечных фононов и т. д. Усложнение модели обязательно приводит к увеличению числа рассчитываемых параметров, что часто не улучшает подгонку, а только увеличивает неопределенность в параметрах и время, необходимое для расчетов. Поэтому естественным является стремление использовать простейшую из моделей, соответствующих описываемому процессу.

Температурные зависимости теплопроводности «земного» и «космического» образцов рассчитаны нами в рамках дебаевской модели фононного спектра [7] (температура Дебая  $\Theta = 344$  К; средняя скорость звука  $V_s = 3265$  м/с [8]):

$$\lambda(T) = \frac{k}{2\pi^2 V_s} \left(\frac{k}{\hbar}\right)^3 T^3 \int_0^{\Theta/T} \tau(x) \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx, \quad (1)$$

$$x = \hbar\omega/kT,$$

$$\tau^{-1}(x) = \sum_i \tau_i^{-1}(x). \quad (2)$$

Первоначально при расчете обратного времени релаксации  $\tau^{-1}(x)$  учитывались следующие процессы: рассеяние на границах, резонансное рассеяние с учетом затухания, рэлеевское рассеяние на точечных дефектах, фонон-фононные  $U$ - и  $N$ -процессы, а также рассеяние на «плоских» дефектах.

Однако при подгонке оказалось, что коэффициенты при членах, описывающих  $N$ -процессы и рэлеевское рассеяние, равны нулю в пределах ошибки. Учет затухания резонанса также не улучшает обработку. Поэтому в дальнейших расчетах эти члены не учитывались. Параметр граничного рассеяния не варьировали, а использовали значения поперечных размеров образцов.

Таким образом, выражение для обратного времени релаксации имеет следующий вид:

$$\tau^{-1}(\omega) = V/a_1 + a_2\omega^2/(a_6^2 - \omega^2)^2 + a_3\omega^2 + a_4\omega^2 \text{Texr}(-\Theta/Ta_5). \quad (3)$$

Здесь 1-й член описывает граничное рассеяние; 2-й и 3-й – резонансное рассеяние и рассеяние на «плоских» дефектах [9–11] и последний – фонон-фононные  $U$ -процессы. Варьировались коэффициенты  $a_2 - a_6$ . Величины коэффициентов, обеспечивающие погрешность аппроксимации не хуже 4%, приведены в табл. 2. Из табл. 2 видно, что коэффициенты  $a_4$  и  $a_5$  для обоих образцов близки, что и следовало ожидать, так как параметры фонон-фононного рассеяния не должны зависеть от термической обработки.

Таблица 2

Параметры температурной зависимости теплопроводности GaAs в соответствии с выражениями (1)–(3)

Механизмы рассеяния	Коэффициент	Образец		Относительное изменение при переходе от «земного» к «космическому» образцу
		«Земной»	«Космический»	
На границах	$a_1, \text{м}$	$3,36 \cdot 10^{-3}$	$1,94 \cdot 10^{-3}$	—
Резонансное	$a_2, \text{с}^{-3}$	$29,9 \cdot 10^{33}$	$3,122 \cdot 10^{33}$	8,6
	$a_6, \text{с}^{-1}$	$10,065 \cdot 10^{12}$	$6,068 \cdot 10^{12}$	0,7
«Плоские» дефекты	$a_3, \text{с}$	$96,83 \cdot 10^{-19}$	$2,016 \cdot 10^{-19}$	47,0
Фонон-фононное	$a_4, \text{с}/\text{К}$	$1,172 \cdot 10^{-18}$	$1,156 \cdot 10^{-18}$	0,01
	$a_5$	2,820	3,272	–0,14

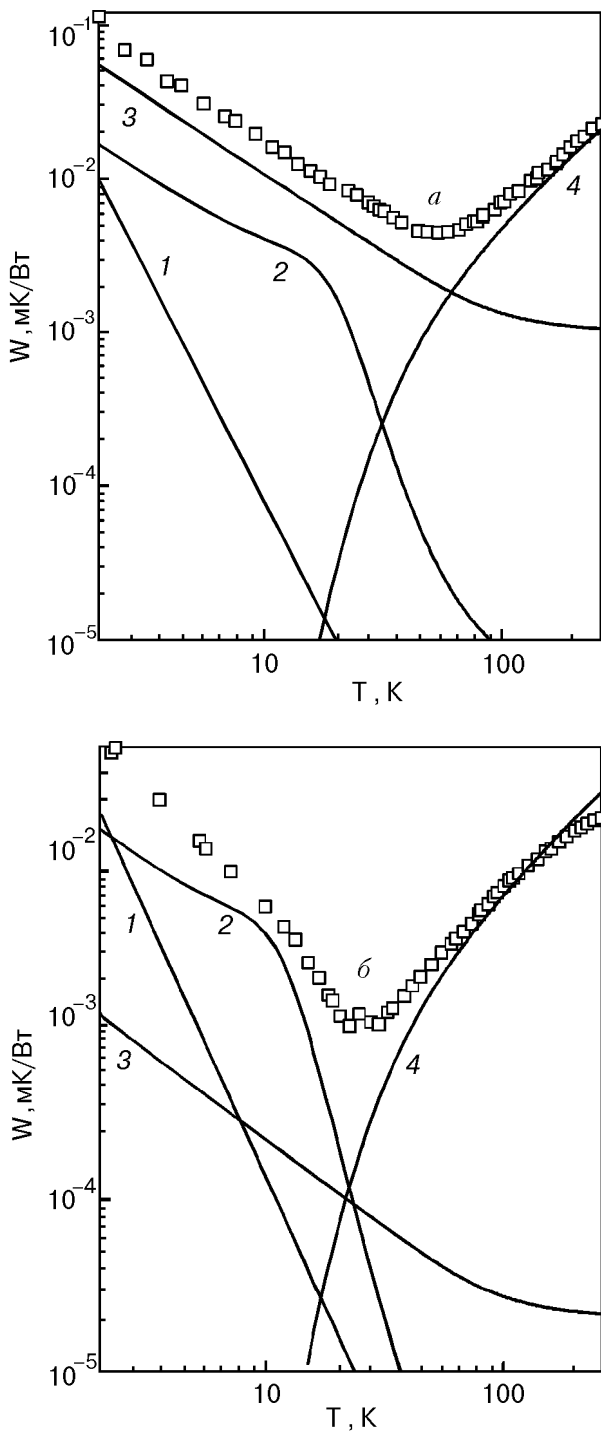


Рис. 2. Температурная зависимость теплосопrotивления  $W$  «земного» (а) и «космического» (б) образцов. Вклад различных механизмов рассеяния в общее теплосопrotивление.  $\square$  — эксперимент; 1 — граничное рассеяние; 2 — резонансное рассеяние; 3 — рассеяние на «плоских» дефектах; 4 — фонон-фононное рассеяние.

Вклады отдельных механизмов рассеяния в общее теплосопrotивление «земного» и «космического» образцов проиллюстрированы на рис. 2.

Все различие в поведении «космического» и «земного» образцов связано с наличием дефектов. При переходе от «земного» образца к «космическому» значительно уменьшаются коэффициенты, характеризующие резонансное рассеяние ( $a_2$ ) и «плоские» дефекты ( $a_3$ ). Оба эти члена пропорциональны концентрации соответствующих дефектов.

Элементный анализ (см. табл. 1) показал, что главным отличием между образцами является наличие нестехиометрического (избыточного) мышьяка (0,1 ат.%) в «земном» образце. В «космическом» образце концентрация избыточного мышьяка примерно в 20 раз меньше и находится на грани погрешности определения. Такое изменение концентрации избыточного мышьяка коррелирует с относительными изменениями коэффициентов  $a_3$  и  $a_2$ .

Таким образом, наличие избыточного мышьяка является единственно возможной причиной как резонансного рассеяния, так и рассеяния на «плоских дефектах». В качестве последних могут быть кластеры атомов мышьяка. Некоторое смещение резонансной частоты (коэффициент  $a_6$ ) может быть связано с релаксацией внутренних напряжений, обусловленных наличием «плоских» дефектов. В [12] показано, что резонансные частоты могут размываться и смещаться при наличии в образце внутренних напряжений. Вероятно, этих напряжений больше в «земном» образце.

Аппроксимирующая кривая теплопроводности «космического» образца при высоких температурах отклоняется вниз от экспериментальных значений. Это может быть связано с появлением в образце фотонной теплопроводности [13].

### Заключение

Таким образом, результаты измерения температурной зависимости теплопроводности показали, что избыточный мышьяк, содержащийся в «земном» образце, образует кластеры, которые резко увеличивают как резонансное рассеяние, так и рассеяние на «плоских» дефектах. Удаление избыточного мышьяка приводит к значительному возрастанию теплопроводности на низкотемпературном участке — в области максимума теплопроводности «космического» образца примерно в 5 раз превышает теплопроводность «земного».

1. M. D. Tiwari, D. N. Talwar, and B. K. Agrawal, *Solid State Commun.* **9**, 995 (1971).
2. M. C. Al Edani and K. S. Dubey, *Phys. Status Solidi* **B87**, K47 (1978).

3. M. C. Al Edani and K. S. Dubey, *Phys. Status Solidi* **B86**, 741 (1978).
4. K. S. Dubey and G. S. Verma, *Phys. Rev.* **B4**, 4491 (1971).
5. S. Singh and G. S. Verma, *Phys. Rev.* **B19**, 1069 (1979).
6. C. M. Bhandari and G. S. Verma, *Phys. Rev.* **140**, A2101 (1965).
7. Р. Берман, *Теплопроводность твердых тел*, Мир, Москва (1979).
8. C. W. Garland and K. C. Parks, *J. Appl. Phys.* **33**, 759 (1962).
9. P. L. Vuillermoz, A. Laugier, and P. Pinard, *Solid State Commun.* **17**, 413 (1975).
10. P. L. Vuillermoz, J. Jouglar, A. Laugier, and H. R. Winteler, *Phys. Status Solidi* **A41**, 561 (1977).
11. P. L. Vuillermoz, A. Laugier, and C. Mai, *J. Appl. Phys.* **46**, 4623 (1975).
12. V. Adolf, D. Fortier, J. H. Albany, and K. Suzuki, *Phys. Rev.* **B21**, 5651 (1980).
13. Б. М. Могилевский, А. Ф. Чудновский, *Теплопроводность полупроводников*, Наука, Москва (1972).

### Thermal conduction of GaAs monocrystals grown under microgravitation

A. Ivanov, A. Luk'yanov, B. Merisov,  
A. Sologubenko, and G. Khadzhay

The comparative research of thermal conduction of a GaAs single crystal grown on the manned station «Mir» in microgravitation conditions, and a sample grown in earthly conditions is carried out in an interval 2–300 K. It is revealed, that heat in the samples is transferred by phonons. The coordinated treatment of the temperature dependences of the thermal conductivities of the «earth» and «space» samples is performed in terms of the Debye model of phonon spectrum in view of boundary scattering, resonance scattering, scattering by «flat» imperfections and phonon-phonon  $U$ -processes. The difference in temperature dependence between «space» and «earth» samples is due to the presence of excess arsenic in the «earth» sample, which is responsible for both resonance scattering and scattering by «flat imperfections». The latter may be arsenic atoms clusters.