

Propiedades estructurales de la solución ternaria InGaP crecida sobre GaAs por el método de epitaxia de la fase líquida

T. Prutskij, F. Silva-Andrade
Instituto de Ciencias, BUAP, Apdo Postal 207, 72000 Puebla, Pue., México

P. Díaz Arencibia
Departamento de Física, CINVESTAV, Apdo Postal 14-740, 07000, D.F. México

A. Mintairov, T. Kosel
Department of Electrical Engineering, University of Notre Dame, 275 Fitzpatrick Hall, IN, 46556, USA

R. E. Cook
Argonne National Laboratory, 9700 S. Cass Avenue, Argonne, IL 60439, USA

(Recibido 17 de octubre de 2003; Aceptado 22 de febrero de 2004)

En el presente trabajo se estudian las características estructurales de películas de InGaP acopladas reticularmente a sustratos GaAs. Las películas fueron crecidas por el método epitaxial de la fase líquida (LPE por sus siglas en inglés) utilizando un bote de grafito de corredera en un reactor epitaxial horizontal. La morfología de la superficie de las películas obtenidas ha sido estudiada por microscopía óptica y microscopía de fuerza atómica. Se ha observado que la superficie de las mismas es bastante lisa con la aparición esporádica de defectos en forma de pirámides. Los espesores de las películas se han determinado por medio de elipsometría, la cual arrojó valores del orden de $1\ \mu\text{m}$. Colateralmente, este método nos permitió encontrar el índice de refracción de la película para la longitud de onda del láser de He-Ne. La estructura de las películas fue estudiada por dispersión de rayos X de alta resolución, microscopía electrónica de transmisión (TEM), así como por espectroscopía de dispersión de energía de rayos X (EDXS). Los estudios empleando TEM han establecido que las películas obtenidas presentan modulación espacial de la composición química de la aleación en las direcciones cristalinias [001] y [010] con un periodo del orden de $0.2\ \mu\text{m}$. Las discrepancias de los resultados de los análisis de la composición química de las películas obtenidos por rayos X de alta resolución y EDXS son atribuidos a las diferentes áreas del haz de prueba en uno y otro experimento. Se ha encontrado que la composición de las películas obtenidas está dentro de los rangos permisibles de la variación del desacople reticular película /sustrato.

Palabras clave: Epitaxia de fase líquida; Soluciones sólidas III-V; Microscopía electrónica de transmisión

We have studied the structural characteristics of InGaP films lattice-matched to GaAs substrates. The films were grown by the liquid phase epitaxy technique using a graphite boat in a conventional horizontal reactor. The morphology of the film surface was studied by optical and atomic force microscopy (AFM). Optical microscope observations show that almost all the structures have a smooth surface with occasional pyramids on it. Observation by AFM allows to reveal characteristic features of the surface on the submicrometric scale. The thickness and the refraction index were determined by ellipsometric measurements performed at $\lambda_{\text{exc}} = 632.8\ \text{nm}$ for different incident angles. The crystal structure of the sample was also evaluated by high resolution X-ray, TEM and EDXS measurements. In the [220] dark field image in plane view the structure showed a coarse tweed structure, with a period of $0.2\ \mu\text{m}$, oriented along the [100] and [010] directions. Some discrepancies in the chemical composition of the films were obtained from the X-ray rocking curves and EDXS measurements which is attributed to the difference of the area of the probe beam. It is found that the variation of the chemical composition of the films is within the range allowed by the variation of the lattice matching between the film and the substrate.

Keywords: Liquid phase epitaxy; III-V solid solutions; Transmission electron microscopy

PACS: 81.15.Lm, 68.37.Ps, 68.37.Lp

1. Introducción

Durante la última década se han logrado importantes avances en el estudio a la escala nanométrica de la forma del empaquetamiento atómico en películas de soluciones sólidas ternarias y cuaternarias crecidas epitaxialmente sobre un sustrato monocristalino.

En particular la solución sólida ternaria semiconductor InGaP crecida sobre sustratos de GaAs ha sido estudiada intensamente y se han encontrado características importantes de su estructura cristalina. El interés hacia

InGaP se debe tanto a las múltiples aplicaciones prácticas de este material tales como, la fabricación de diodos láser visibles, celdas solares y transistores; así como también por las propiedades físicas especiales de esta solución. Las soluciones sólidas de InGaP cristalizan en la red de la blanda de zinc que consiste de dos subredes cúbicas centradas en las caras, interpenetradas, una ocupada por cationes de In y Ga y la otra por los aniones de P. En general se supone que los cationes en su subred están distribuidos aleatoriamente. Es decir la posición de uno de los cationes (por ejemplo el In) no está correlacionada con

Tabla 1. Contenido de los átomos en la película determinado por el espectro de EDX.

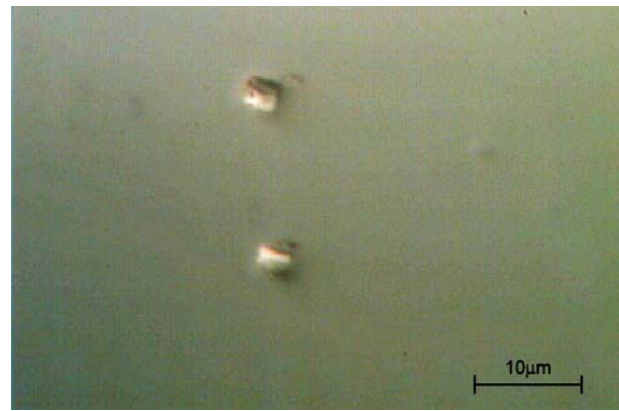
Elemento	% de peso	% atómico
P K	21.4	44.3
Ga K	32.3	29.6
As K	0.8	0.7
In K	45.5	25.4
Total	100.0	100.0

las posiciones que ocupan los otros cationes (Ga) en la subred. En otras palabras, la distribución aleatoria corresponde a la ausencia de ordenamiento tanto a corta, como a larga distancia. Sin embargo este estado aleatorio en las soluciones sólidas casi nunca se observa experimentalmente. Las desviaciones de este estado aleatorio que más frecuentemente se encuentran son: el ordenamiento atómico y la modulación de composición química.

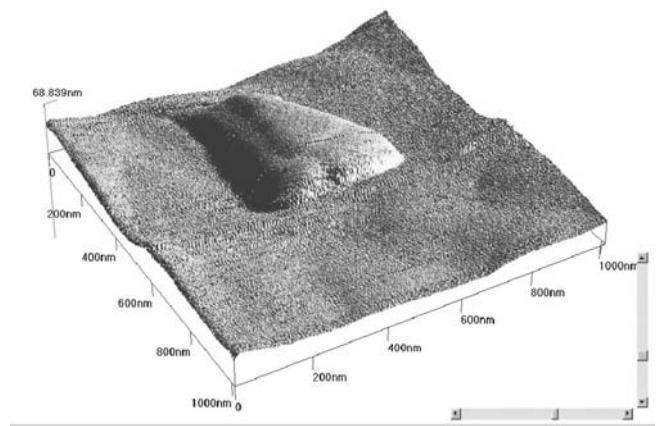
Lo que se ha denominado “ordenamiento atómico” consiste en una distribución específica de los cationes en su subred, y en el caso especial de $In_{0.5}Ga_{0.5}P$ se ha observado experimentalmente que los cationes, In y Ga, ocupan alternadamente los planos diagonales $\{\bar{1}11\}$ y $\{1\bar{1}1\}$. Por el contrario, si los cationes estuviesen distribuidos aleatoriamente en su subred cristalina estaríamos en presencia de un material “desordenado”. Este ordenamiento lleva a un cambio del grupo de simetría del cristal y consecuentemente a un cambio del valor de la banda prohibida del material. La mayor diferencia entre los valores del ancho de la banda prohibida del material “ordenado” y “desordenado”, que es más de 100 meV, se ha encontrado en $In_{0.5}Ga_{0.5}P$ [1] y es la causa por la cual la gran mayoría de los trabajos sobre el ordenamiento atómico está dedicada a esta solución.

La otra desviación del estado aleatorio que se observa en las soluciones sólidas de InGaP es la modulación de composición que consiste en la presencia de regiones ricas en In seguidas de regiones ricas en Ga con un cierto periodo (de 10-100 nm) orientadas en una o dos direcciones cristalinas determinadas [2].

El ordenamiento atómico de los cationes en su subred correspondiente se observa casi siempre en las estructuras crecidas por los métodos de crecimiento MOCVD (deposición química en fase vapor de compuestos metal-orgánicos, por sus siglas en inglés) de y MBE (epitaxia por haces moleculares, por sus siglas en inglés) y nunca ha sido observado en las estructuras obtenidas por el método epitaxial de la fase líquida (LPE) [3]. La causa de esto tal vez consiste en el hecho que las condiciones del crecimiento en la técnica de LPE son las que más se aproximan a las de equilibrio termodinámico y el estado “desordenado” es el estado con menor energía libre. Sin embargo, el fenómeno de “modulación de composición” se ha observado en la mayoría de las estructuras tanto ternarias como cuaternarias obtenidas por todos los métodos de crecimiento epitaxial conocidos. El efecto de



(a)



(b)

Figura 1. Microfotografías de la superficie de la estructura S1. a)- obtenida por microscopía óptica; b)- obtenida por microscopía de fuerza atómica. Nótese que las escalas difieren en un orden.

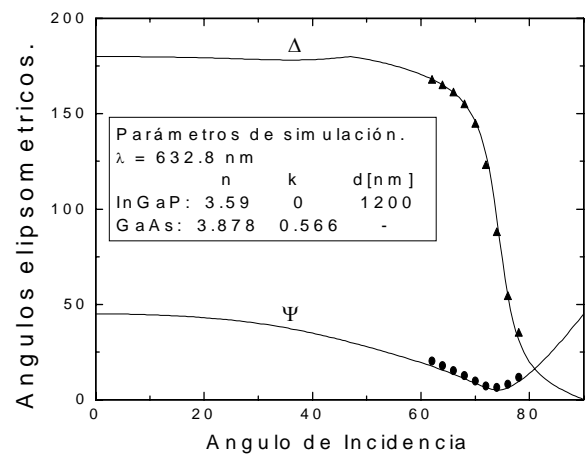


Figura 2. Comparación de las dependencias experimentales y teóricas de los ángulos elipsométricos Δ y Ψ en función del ángulo de incidencia del haz de prueba. Para el cálculo se ha usado el modelo de una sola capa sobre un sustrato absorbente.

modulación de composición puede llevar a consecuencias no deseables e inclusive a afectar la morfología de la superficie. En la referencia [4] se reporta un estudio de composición en estructuras InGaAs/InP crecidas por MBE, un método más lejano del equilibrio termodinámico que la epitaxia líquida. En ese trabajo fue observada no solo la modulación de composición sino también la modulación de la superficie de la película correlacionada con la variación del contenido de los átomos de grupo III. En la referencia [5] se reporta la observación de la variación del espesor de las películas de InGaAsP crecidas por MBE asociada con la modulación del contenido químico.

Ambos efectos, el ordenamiento y la modulación de composición pueden coexistir en la misma película de InGaP, en las referencias [6, 7] las implicaciones de esta coexistencia fueron estudiadas en las películas crecidas sobre GaAs por MOCVD. El grado del ordenamiento y el periodo de la modulación de composición dependen tanto de las condiciones específicas de crecimiento y en primer grado de la temperatura del crecimiento [6], así como también de los efectos de la superficie que determinan la cinética del crecimiento, o sea, la migración y reconstrucción de los átomos depositados en la superficie del sustrato.

La técnica de crecimiento LPE no es solo la más antigua y la más barata de las técnicas de crecimiento epitaxial, y hasta el momento la más usada para la producción masiva de dispositivos [8], sino también la que tiene condiciones de crecimiento más cercanas al equilibrio termodinámico. Otra de sus características específicas consiste en el hecho que la razón de crecimiento en LPE es mucho mayor que la de MOCVD y MBE. En este trabajo reportamos el estudio de la estructura de la película de $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$ ($x \sim 0.5$) acoplada reticularmente sobre GaAs crecida por LPE. El propósito de este estudio es conocer las propiedades estructurales típicas para las películas obtenidas por un método de crecimiento cuyas condiciones son más cercanas al equilibrio termodinámico.

2. Experimento

2.1 Crecimiento de las estructuras

Las capas de InGaP fueron crecidas epitaxialmente sobre sustratos semi-aislantes de GaAs (100) inclinadas alrededor de 2° hacia la dirección (110), usando un bote de grafito convencional de corredera en un sistema de LPE horizontal. Previamente al proceso de crecimiento el fundido de In fue sometido a un tratamiento térmico a 800°C durante no menos que 30 min. en flujo de H_2 purificado. Después del tratamiento térmico del solvente se le añadieron InP y Ga en cantidades correspondientes para saturar la solución a 760°C . El proceso de homogenización del fundido duró 5 min. a 770°C . Posteriormente el fundido se enfría a una razón de $2^\circ/\text{min}$. hasta llegar a la temperatura de crecimiento de 750°C . La temperatura máxima del crecimiento, 750°C , fue elegida para evitar contaminación de la superficie del sustrato y el

empobrecimiento de fósforo en la solución durante la homogenización. El tiempo del crecimiento para todas las capas fue de 1-2 min., el espesor típico de las capas fue del orden de $1\ \mu\text{m}$.

2.2. Resultados obtenidos y su análisis

2.2.1 Morfología de la superficie

La morfología de la superficie de las estructuras fue evaluada en el microscopio óptico. Casi todas las estructuras crecidas tenían una superficie lisa y brillante con algunas pirámides ocasionales. Para el estudio detallado fue elegida la estructura S1 debido a que la constante de la red de esta película, medida por rayos-X de alta resolución en un difractómetro doble resultó ser la más cercana a la del sustrato. En la Fig. 1a se muestra la microfotografía de la superficie de la estructura S1.

La superficie de la estructura S1 también ha sido estudiada en el microscopio de fuerza atómica, Q-Scope 250. La superficie en la escala submicrónica también es lisa con algunas irregularidades características en forma de pirámides triangulares sobre ella. Una de estas pirámides se muestra en la Fig. 1b. Nótese que las dimensiones características de estas pirámides son aproximadamente un orden menor que las observadas en el microscopio óptico.

2.2.2. Elipsometría

La elipsometría es una técnica de medición no destructiva, basada en principios fundamentales (ecuaciones de Maxwell), que permite obtener dos parámetros determinados de la estructura midiendo dos ángulos elipsométricos, que reflejan el cambio del estado de polarización en la luz reflejada. Esta técnica se usa más frecuente para determinar el espesor de una película dieléctrica fina, crecida sobre un sustrato que absorbe la luz de sondeo. Este caso corresponde a nuestro sistema, que consiste de una película de InGaP sobre un sustrato de GaAs. La película en nuestro sistema es casi transparente con respecto a la luz del laser de He-Ne (1.96eV), ya que el máximo de emisión de la película en la temperatura ambiente se sitúa en 1.93eV .

Las mediciones con el elipsómetro (EL X-02C), hechas para distintos ángulos de incidencia (ver Fig. 2), permitieron determinar el espesor y el índice de refracción de la capa de InGaP. En la Fig. 2 se presentan las dependencias de los ángulos elipsométricos Δ y Ψ con el ángulo de incidencia. Los ángulos elipsométricos fueron medidos en el rango de 60 a 80 grados, intervalo donde se observa un cambio característico de sus valores. Estos valores los comparamos con las curvas calculadas usando un modelo de simulación simple que solo incluye una capa sobre un sustrato con parámetros conocidos (líneas continuas). Para calcular las dependencias de los ángulos elipsométricos con el ángulo de incidencia se escogían distintos conjuntos de parámetros de la capa (n y d) y se seleccionaba el que mejor correspondía a los parámetros

obtenidos experimentalmente. Estas mediciones nos permitieron determinar el espesor de la capa; $d = 1200$ nm, y también los valores de los dos parámetros ópticos más importantes del material de la película: su índice de refracción (n) y coeficiente de extinción (k), $n = 3.59$, $k = 0$ para la longitud de onda $\lambda = 632.8$ nm. El valor del espesor de la capa obtenido resultó ser cercano al valor medido independientemente mediante el TEM, en un corte transversal de la estructura. El índice de refracción y el coeficiente de extinción del sustrato fueron determinados usando el mismo elipsómetro y resultaron ser: $n = 3.878$ y $k = 0.566$ para la misma longitud de onda.

El hecho de que la simulación arrojó el valor $k \approx 0$ para la película confirma que el material de la capa es prácticamente transparente para esta longitud de onda, es decir que la energía que corresponde al ancho de la banda prohibida E_g del material para la temperatura ambiente es cercana a 1.96 eV que corresponde a la longitud de onda del láser de HeNe. El valor del índice de refracción para nuestra película resultó ser similar al valor reportado en [9]. Las discrepancias pueden ser consecuencia del uso de un modelo simple para nuestro cálculo.

2.2.3. Difractometría

Para analizar el grado de correspondencia de las constantes de red de la película y del sustrato todas las estructuras fueron analizadas en un difractor de alta resolución de rayos X con doble cristal. Los valores del desacople reticular $\Delta a/a = (a_{\text{película}} - a_{\text{sustrato}})/a_{\text{sustrato}}$ obtenidos han sido usados para calcular el por ciento atómico de In y Ga en la película por la ley de Vegard. En nuestras estructuras el contenido de Ga calculado a partir del valor del desacople varió de 49% hasta 53% de estructura a estructura. Esto es debido a que el método de LPE sólo permite obtener películas en un pequeño rango de composiciones químicas que más se ajustan a la red cristalina del sustrato de GaAs orientado en (100), estas corresponden a las soluciones sólidas de $\text{In}_{0.51}\text{Ga}_{0.49}\text{P}$ a $\text{In}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{P}$, siendo la solución $\text{In}_{0.485}\text{Ga}_{0.515}\text{P}$ la composición que corresponde exactamente a la constante de la red de GaAs.

Para todas las estructuras crecidas hemos realizado las mediciones de fotoluminiscencia a la temperatura de 20K. El valor del contenido de Ga en la película fue correlacionado con la posición del pico de fotoluminiscencia que corresponde a la transición banda-banda. La dependencia de la posición del pico de fotoluminiscencia con el contenido de Ga se presenta en la Fig. 3. En la misma figura se representa el valor de la banda prohibida que corresponde a la temperatura de 0 K calculado por la fórmula tomada de la referencia [10]. Como podemos observar, para la mayoría de las estructuras, la energía que corresponde a la transición banda-banda es alrededor de 2.0 eV, valor próximo al establecido en la banda prohibida a bajas temperaturas de la solución sólida con $x \approx 0.5$.

Para la estructura seleccionada S1, el valor del desacople reticular es de sólo $\Delta a/a = 0.0167\%$, lo que indica una muy buena correspondencia entre las constantes de red cristalina del sustrato y de la película y corresponde al contenido atómico de Ga de 51.3%, es decir a la composición $\text{In}_{0.487}\text{Ga}_{0.513}\text{P}$.

2.2.4. Microscopía Electrónica de Trasmisión

La morfología de la capa también fue evaluada por mediciones hechas en el microscopio electrónico de transmisión (TEM) JEOL 100C, (Fig. 4). Con este fin, la muestra ha sido preparada reduciendo el espesor de la estructura por el lado del sustrato. Inicialmente se ha utilizado un pulido mecánico y luego el espesor de la muestra fue rebajado con un haz iónico de Ar^+ con energía de 2 kV. En la Fig.4 se presenta la imagen del campo oscuro para la reflexión [220] hecha a 100 kV en el plano de la superficie de la estructura. En esta reflexión, que es particularmente sensible a las variaciones de la composición química, se ha observado un patrón característico (CTS: "coarse tweed structure" por sus siglas en inglés) de franjas claras y oscuras cruzadas orientadas en las direcciones cristalinicas [001] y [010] con un periodo de aproximadamente 0.2 μm entre dos franjas oscuras. Esto es indicativo de la variación periódica del contenido de los cationes en la capa, alternándose las regiones del material ricas en In y en Ga. La variación periódica de la composición química corresponde a la variación periódica de la constante de la red. El contraste entre los segmentos claros y oscuros solo nos permite observar el cuadro cualitativo de la distribución de cationes en la capa sin poder determinar la composición química exacta en estas franjas.

En el patrón de difracción de electrones por transmisión (TED, por sus siglas en inglés) solo se observaron las difracciones correspondientes a la red cristalina cúbica y no fue observado ningún signo del ordenamiento atómico de los cationes en su subred cristalina.

Las observaciones en TEM, girando la muestra a distintos ángulos también permitieron establecer la ausencia de dislocaciones y defectos en la película, lo que muestra su alta calidad cristalina.

2.2.5. Espectroscopía de rayos-X

La espectroscopía de rayos X con dispersión de energía (EDXS por sus siglas en inglés) permite analizar la presencia y el contenido de distintos átomos en la capa en un área pequeña (el diámetro del haz de prueba es del orden 0.6 nm). El espectro medido por EDXS en la superficie de la estructura S1 se presenta en la Fig.5. Los datos procesados de este espectro se presentan en la tabla 1. Por este método (ver tabla 1) se ha determinado que el porcentaje atómico de Ga, In y P en la capa es de 29.6, 25.4 y 44.3 respectivamente, lo que corresponde al valor de la relación In/Ga igual a 0.86. Existen varias razones para pensar que los valores medidos por EDXS tienen solo

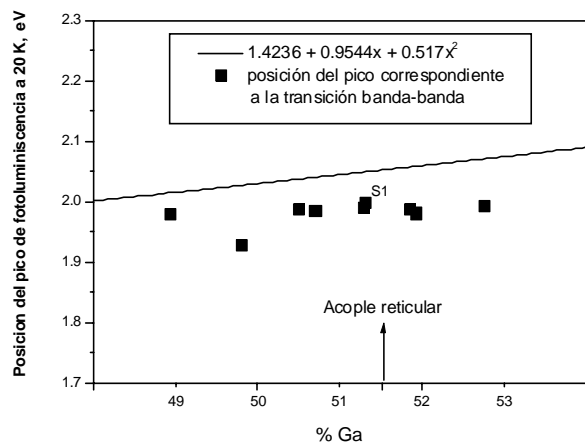


Figura 3. Dependencia de la posición del pico de fotoluminiscencia a 20 K correspondiente a la transición banda-banda con el contenido de Ga en las películas.

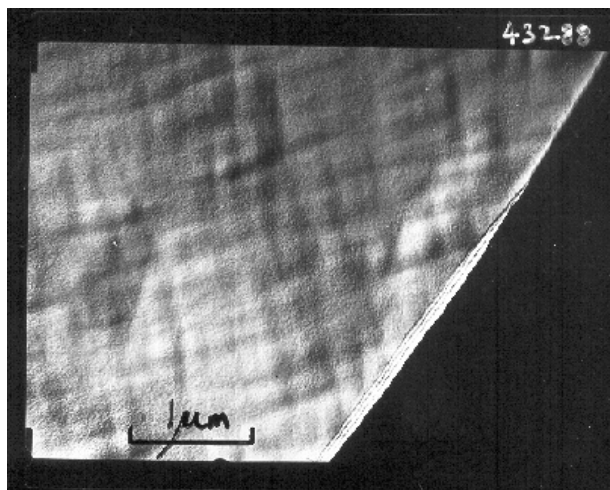


Figura 4. Imagen del campo oscuro para la reflexión [220] hecha en microscopio de transmisión de electrones en el plano de la superficie de la estructura S1.

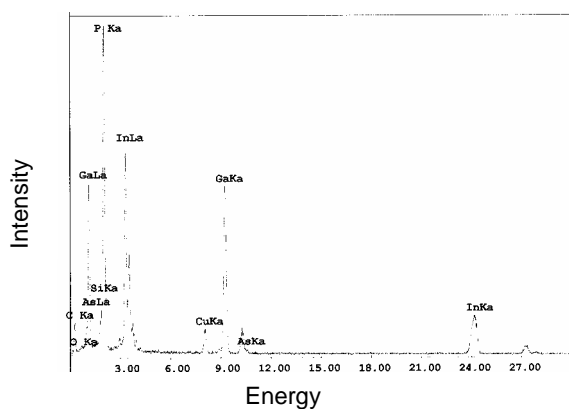


Figura 5. Espectro medido por espectrómetro de rayos X con dispersión de energía en la estructura S1.

carácter cualitativo: Primero, el contenido de Ga puede estar alterado porque cuando la capa no es suficientemente gruesa, el sustrato da algún aporte a esta relación. En el haz de prueba para EDXS es de 0.6 nm, y de este modo el área que da aporte al espectro es mucho menor que el periodo de la variación de composición, detectada en nuestra estructura utilizando el TEM. En el difractómetro de rayos X de alta resolución el área que ocupa el haz es de varios mm², es decir mucho mayor que este periodo y por este motivo el valor de la constante de la red medido es un valor promedio por todo el área que incluye varias regiones con distinta composición química. Esto explica las diferencias en la determinación del contenido químico de los elementos por distintos métodos.

3. Discusión

Hace más de dos décadas se ha venido observando el efecto de la modulación de composición en casi todas las películas de soluciones sólidas tanto ternarias como cuaternarias de compuestos III-V. No obstante, las causas de este efecto todavía no están claras y son objeto de discusión. Se han propuesto varios mecanismos para explicar la presencia de la modulación de composición en películas ternarias y cuaternarias de III-V. Existe una opinión generalizada que relaciona el origen de la modulación de composición con distintos mecanismos de relajación. En particular las posibles causas de este fenómeno se atribuyen a la relajación de la deformación producida por la no-correspondencia de los parámetros de la red cristalina [11]. Los cálculos [12] muestran que la modulación de la constante de la red puede permitir la relajación parcial de la deformación y puede minimizar la energía elástica de la superficie. En las soluciones cuaternarias de InGaAsP la presencia de CTS (coarse tweed structure) también fue explicada como resultado de la descomposición espinodal en la región de miscibilidad en su diagrama de fase. [13]

Además fue reportado [14] que la diferencia entre las constantes de red del 0.2% se debe a los distintos coeficientes de expansión térmica de la capa y del sustrato. Esto quiere decir que aun si las constantes de red coincidieran exactamente a la temperatura de crecimiento, luego de enfriarse a temperatura ambiente surgirá una deformación adicional en la película.

En la referencia [15] se reporta un estudio sobre la variación de la constante de red utilizando la combinación de los métodos de TEM y EDXS. En este estudio se ha encontrado que el rango permitido de la variación de la constante de red $\Delta a/a = 0.5\%$. Esto corresponde a la variación del contenido de la capa de In_{0.55}Ga_{0.45}P a In_{0.42}Ga_{0.58}P y si comparamos este rango con el de los contenidos atómicos posibles a crecer por nuestro método (ver Fig. 3), este resulta más amplio. Correspondientemente la relación In/Ga puede variar de 1.22 a 0.72. De este manera, el valor detectado experimentalmente por EDXS en la nuestra estructura S1 para la relación In/Ga = 0.86 se encuentra en el rango de

los límites del cambio de la constante de la red en la película y corresponde al observado por otros autores. En esta estructura el valor de desacople de la red promedio era solo $\Delta a/a = 0.0167\%$, lo que indica una muy buena correspondencia entre las constantes de red cristalina del sustrato y de la película y su composición química es cercana a la que reticularmente corresponde al sustrato. Debemos notar que a pesar de que la película de InGaP crecida parece ser casi exactamente acoplada al sustrato, una modulación de composición que corresponde a la fluctuación del contenido relativo de In/Ga de varios % alrededor de un valor promedio está presente.

4. Conclusiones

En el presente trabajo hemos estudiado la morfología de la superficie y la modulación de composición de la solución sólida $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{P}$ ($x \sim 0.5$) crecida por LPE sobre sustrato de GaAs. Las capas crecidas arrojaron un espesor del orden de $1 \mu\text{m}$ y una superficie lisa. Los estudios hechos empleando TEM mostraron que la composición química de la capa varía periódicamente, un efecto que frecuentemente se observa en las aleaciones de compuestos III-V tanto ternarias como cuaternarias y la procedencia de la cual aun no está del todo esclarecida.

Agradecimientos

El trabajo fue apoyado por el proyecto de investigación de CONACYT # 34759-E.

Referencias

- [1] S.-H. Wei and A. Zunger, Appl. Phys. Lett. **56**, 662 (1990).
- [2] S. Ghosh, B.M. Arora, S.-J Kim, J.-H Noh, H.Asahi, Semicond. Sci. Technol. **14**, 239 (1999).
- [3] O.Ueda, M. Hocino, M. Takechi, M. Ozeki, T. Kato and T. Matsumoto, J. Appl. Phys. **68**, 4268 (1990).
- [4] T. Okada, G.C. Weatherly, and D.W. McComb J. Appl. Phys. **81**, 2185 (1997).
- [5] A. Ponchet, A. Rocher, J.-Y Emery, C. Starck, L. Goldstein J. Appl. Phys. **74**, 3778 (1993).
- [6] D.M. Follstaedt, R. P. Schneider, and E.D. Jones, J. Appl. Phys. **77**, 3077 (1995).
- [7] O. Ueda, M. Takikawa, M. Takichi, J. Komeno, and I. Umebu, J. Cryst. Growth. **93**, 418 (1988).
- [8] "GaAs industry to grow 15% per year" Compound Semiconductor. **8**, 26, (2002).
- [9] G.R. Moriarty, M. Kildelmo, J.T. Beechinor, M. Murtagh, P.V. Kelly, G.M. Grean, S.W. Bland, Thin Solid Films. **364**, 244 (2000).
- [10] Bar Chen, Arden Sher. Semiconductor Alloys: Physics and Engineering (Plenum Press, NY and London, 1995) p. 263.
- [11] G.H. Olsen, C.J. Nuese, and R.T. Smith. J. Appl. Phys. **49**, 5523 (1978).
- [12] F. Glas, J. Appl. Phys. **62**, 3201 (1987).
- [13] A.G. Norman, J. Appl. Phys. **57**, 4715 (1985) .
- [14] H. Asai and K. Oe, J. Appl. Phys. **53**, 9058 (1982).
- [15] P.Henoc, Appl.Phys.Lett. **40**, 963 (1982).