

06

Исследование возможности формирования массивов квантовых точек в системе InAs/GaAs капельным методом в условиях МОС-гидридной эпитаксии

© Р.Х. Акчурин, И.А. Богинская, Н.Т. Вагапова,
А.А. Мармалюк, А.А. Панин

Московская государственная академия тонкой химической технологии
им. М.В. Ломоносова (МИТХТ)
ООО „Сигм Плюс“, Москва
E-mail: rakchur@mail.ru

Поступило в Редакцию 9 июля 2009 г.

Экспериментально изучена возможность формирования массивов квантовых точек InAs на подложке GaAs (100) капельным методом в условиях низкотемпературной (160–360°C) МОС-гидридной эпитаксии. Установлено, что разложение триметилиндия, использовавшегося в качестве источника In, происходит даже при наиболее низких температурах указанного диапазона. Высота образующихся на поверхности подложки капель составляла от 3 до 12 nm при плотности $\sim 0.4 \cdot 10^9 - 1.4 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ в зависимости от условий осаждения. Показано, что для сохранения геометрических размеров нанокристаллов InAs, образующихся на этапе последующей обработки, необходимо использовать повышенную подачу арсина.

В настоящее время основным методом формирования гетероструктур с самоупорядоченными массивами квантовых точек (КТ) является эпитаксия, осуществляемая по механизму Странского–Крастанова. Следует, однако, отметить два обстоятельства, существенно ограничивающие его возможности. Во-первых, он применим лишь для неизопериодных гетероструктур с ограниченной величиной рассогласования периодов кристаллических решеток сопрягаемых материалов. Это значительно сужает круг материалов, на основе которых могут быть сформированы структуры с КТ. Во-вторых, на начальном этапе роста образуется сплошной смачивающий слой, толщина которого

определяется величиной решеточного рассогласования и практически не может управляться. Наличие этого слоя может заметно отражаться на электрофизических и оптических характеристиках гетероструктур.

Альтернативным способом формирования массивов КТ является „капельная“ эпитаксия, основанная на механизме кристаллизации по схеме пар–жидкость–твердое и активно исследуемая в последние годы применительно к полупроводникам $A^{III}B^V$. Она заключается в осаждении на подложке наноразмерных капель элемента A^{III} с последующей подачей паров элемента B^V . В результате пересыщения образующегося раствора на подложке осаждаются наноразмерные кристаллы соединения $A^{III}B^V$. В результате такого процесса, напоминающего изотермическую локальную жидкофазную эпитаксию с подпиткой из газовой фазы, КТ могут формироваться изолированно (без смачивающего слоя) и независимо от величины рассогласования периодов решеток. Очевидно, необходимым условием его реализации является низкая температура подложки на первом этапе процесса для обеспечения более высокого поверхностного натяжения расплава, позволяющего исключить растекание осаждаемых капель. В связи с этим в условиях МОС-гидридной эпитаксии (МОСГЭ) возникают проблемы с проведением низкотемпературных процессов из-за относительной термической устойчивости источников. Так, согласно данным [1], полное термическое разложение триметилиндия (ТМИ) в атмосфере водорода происходит при $\sim 350^\circ\text{C}$, тогда как с понижением температуры до 250°C снижается практически до нуля. Поэтому все опубликованные данные по развитию этого метода относятся к условиям молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ), где возможности варьирования температуры в зоне осаждения практически не ограничены, поскольку температурные зоны создания молекулярных пучков и осаждения на подложку пространственно разделены. Методом капельной эпитаксии в условиях МПЭ в настоящее время успешно формируются массивы КТ как в рассогласованных (InAs/GaAs , $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ [2–6]), так и в фактически изопериодных ($\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$ [7–9]) гетероструктурах.

В данной работе впервые предпринята попытка реализовать указанный способ в условиях МОСГЭ. Объектом исследования была система InAs/GaAs . На первом этапе ставилась задача изучения начальной стадии процесса формирования КТ — выяснения возможности и условий осаждения наноразмерных капель индия на подложке GaAs .

Эксперименты проводились на установке МОС-гидридной эпитаксии в водородной атмосфере при пониженном давлении. В качестве источников использовали ТМИ, триметилгаллий и арсин. Перед подачей ТМИ на подвергнутую стандартной обработке подложку GaAs(100) *n*-типа проводимости при 580°C наращивали буферный слой GaAs, после чего при пониженной температуре осуществляли осаждение индия термическим разложением ТМИ. Расход ТМИ поддерживали одинаковым для разных температур осаждения. В ряде экспериментов после осаждения капле индия для синтеза InAs производили подачу арсина, повышая температуру в рабочей зоне до 500°C. Исследование рельефа поверхности полученных образцов проводили с использованием атомно-силовой микроскопии.

Предварительно была произведена приближенная оценка количества индия, необходимого для образования наноразмерных капель. Расчет проводили в предположении полусферической формы капель для разных задаваемых значений их диаметров (10–100 nm) и поверхностной плотности ($1 \cdot 10^9 - 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$).

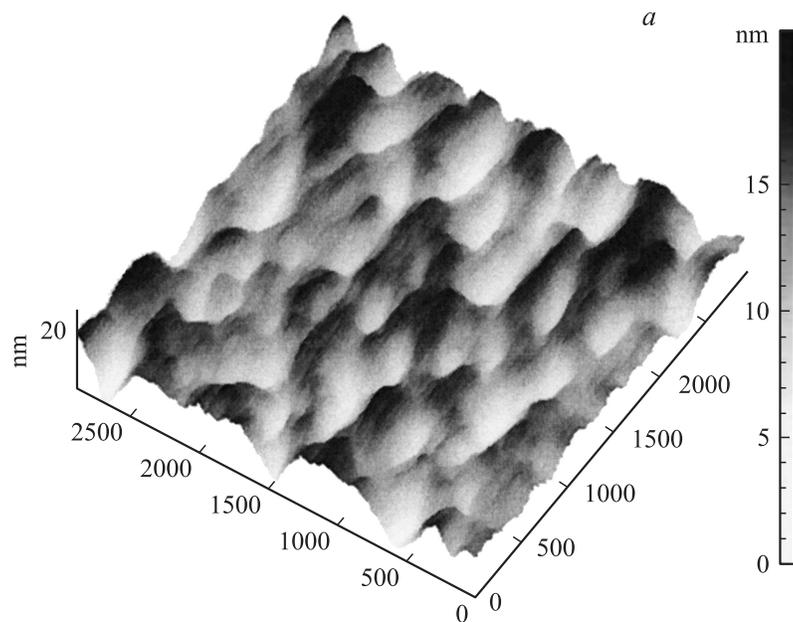
Первая серия экспериментов при температурах, близких к температуре полного термического разложения ТМИ (310–360°C), показала, что осаждение индия приводит к образованию не гладкой, а рельефной поверхности, образованной слившимися каплями индия (см. рисунок, *a*). С использованием полученных результатов и данных по температурной зависимости поверхностного натяжения жидкого индия (γ_{In}) была проведена расчетная оценка температурной зависимости контактного угла θ в системе расплав индия–подложка GaAs. Расчет проводили в приближении полусферической формы капель по уравнению Юнга:

$$\cos \theta = \frac{\gamma_{SV} - \gamma_{SL}}{\gamma_{\text{In}}}, \quad (1)$$

принимая разность в числителе постоянной и рассчитывая γ_{In} (индексы *S*, *V* и *L* относятся к твердой, паровой и жидкой фазам соответственно) на основе экспериментальных данных [10]:

$$\gamma_{\text{In}} = 568.0 - 0.04 \cdot T - 7.08 \cdot 10^{-5} \cdot T^2, \quad (2)$$

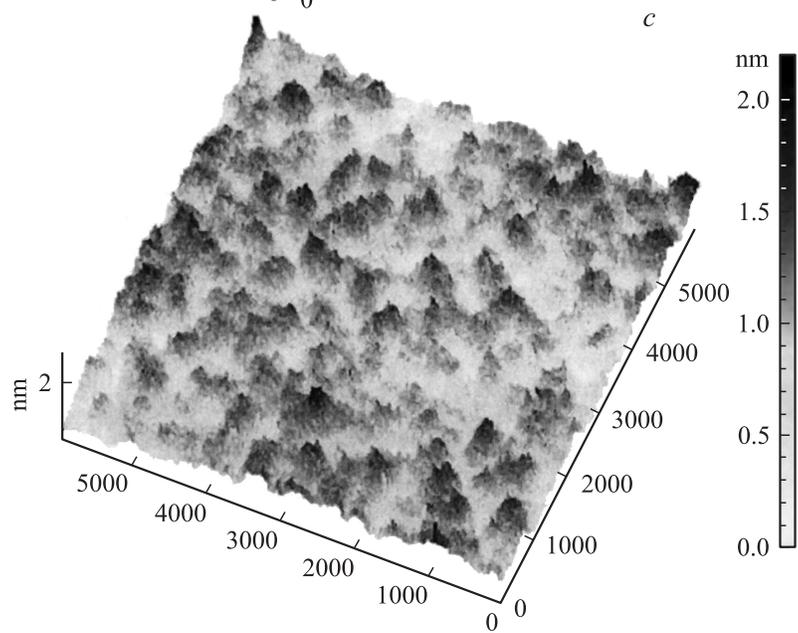
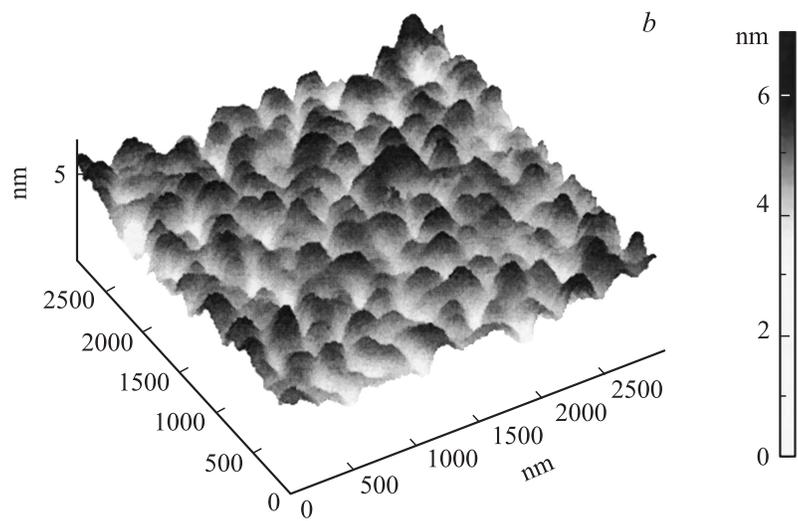
где *T* — температура, °C.



АСМ-изображения поверхности образцов после осаждения индия: *a* — при 340°C, *b* — при 250°C, *c* — при 200°C с последующей подачей арсина в процессе нагрева до 500°C (без отжига).

По результатам проведенной оценки с понижением температуры от 310 до 160°C величина контактного угла в системе $\text{In}_L\text{-GaAs}_S$ возрастает на $\sim 40\%$ (~ 11.4 до $\sim 16.1^\circ$), что должно уменьшить вероятность растекания капель.

Последующие эксперименты, проведенные при пониженных температурах, показали возможность осаждения капель индия даже при 160°C, что существенно ниже температуры пиролиза ТМИ, приведенной в [1]. На рисунке, *b* показана топографическая картина поверхности образца, полученного при 250°C. Видно, что в этом случае плотность расположения капель индия заметно возрастает, а размеры их уменьшаются. Так, если для слоя, осажденного при 340°C, характерна поверхностная плотность капель $\sim 0.4 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ и средняя высота неровностей рельефа в пределах 12 nm, то в случае осаждения при



Продолжение рисунка.

250°C эти параметры составляют $\sim 1.5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ и 7.5 nm соответственно. Очевидно, это объясняется как уменьшением количества осаждаемого индия с понижением температуры (вследствие меньшей степени разложения ТМИ), так и снижением подвижности адатомов In на поверхности подложки, приводящим к увеличению числа образующихся зародышей и уменьшению их размеров. На рисунке, с показана картина поверхностного рельефа, сформировавшегося при осаждении In ($T = 200^\circ\text{C}$) с последующей подачей арсина (500 ccm) в процессе нагрева подложки до 500°C. Можно видеть, что размеры островков не претерпевают значительных изменений в процессе такой обработки. Отсутствие огранки островков является, очевидно, следствием недостаточной выдержки при 500°C, необходимой для рекристаллизации InAs. Следует отметить, что при пониженной подаче арсина (50 ccm) наблюдалось уменьшение высоты и возрастание поперечных размеров островков, связанное с поверхностной миграцией не связанных с As атомов индия.

Результаты АСМ показывают, что даже в образцах, полученных при низких температурах, происходит частичное слияние капель индия. Очевидно, для дальнейшего уменьшения размеров капель и повышения их поверхностной плотности необходимо понизить количество подаваемого ТМИ. В то же время полученные результаты указывают на возможность формирования массивов КТ методом капельной эпитаксии в условиях МОСГЭ.

Авторы благодарят И.А. Рыжикова за содействие в проведении АСМ измерений.

Список литературы

- [1] *Koguchi N.* // J. Korean Phys. Soc. 2004. V. 45. P. S650.
- [2] *Kim J.S., Koguchi N.* // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 85. N 24. P. 5893.
- [3] *Mano T., Watanabe K., Tsukamoto S.* et al. // J. Cryst. Growth. 2000. V. 209. P. 504.
- [4] *Wang Z.M., Liang B., Sablon K.A.* et al. // Small. 2007. V. 3. N 2. P. 235.
- [5] *Alonso-Gonzalez P., Alen B., Fuster D.* et al. // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 91. P. 163 104.
- [6] *Lee C.-D., Park C., Lee H.J.* et al. // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 73. N 18. P. 2615.
- [7] *Sanguinetti S., Watanabe K., Tateno T.* et al. // J. Cryst. Growth. 2003. V. 253. P. 71.

- [8] *Wang Z.M., Holmes K., Mazur Y.I.* et al. // *Nanoscale Res. Lett.* 2006. N 1. P. 57.
- [9] *Stringfellow G.B.* // *Organometallic Vapor Phase Epitaxy: Theory and Practice.* London: Acad. Press, 1999. P. 228.
- [10] *White D.W.G.* // *Metallurgical Transaction.* 1972. V. 3. P. 1933.