06.3;07

Формирование квантовых точек InAs в матрице оксида алюминия

© Д.А. Тенне, О.Р. Баютова, А.К. Бакаров, А.К. Калагин, А.Г. Милёхин, А.И. Торопов, Д.Р.Т. Цан

Институт физики полупроводников СО РАН, Новосибирск E-mail: bajutova@thermo.isp.nsc.ru Institut für Physik, Universität Chemnitz, D-09107, Chemnitz

Поступило в Редакцию 11 февраля 2002 г.

Изучен процесс формирования квантовых точек InAs в матрице оксида алюминия методом селективного окисления слоев AlAs гетероструктур InAs/AlAs. Согласно данным комбинационного рассеяния света, процесс селективного окисления приводит к релаксации напряжений в квантовых точках InAs и к образованию аморфного мышьяка на границе раздела окисленной и неокисленной областей.

Селективное окисление Al(Ga)As слоев с высоким содержанием Al является перспективным методом в технологии оптоэлектронных приборов. Одним из важных применений данного метода является его использование при создании фотонных кристаллов [1]. В настоящее время его широко и успешно используют в изготовлении лазеров на квантовых точках (KT) с вертикальным резонатором. В качестве активной области таких лазеров используются KT InAs в матрице AlGaAs. Формирование токовой апертуры в процессе селективного окисления с целью электрического и оптического ограничения, создание многослойных брэгговских лазерных зеркал Al_xO_y/GaAs с высоким коэффициентом отражения позволяет значительно улучшить предельные характеристики лазеров [2–5]. Замещение матрицы AlGaAs на более широкозонную AlAs (Al₂O₃) позволит сдвинуть рабочий диапазон лазеров в красную область.

Процесс "бокового" селективного окисления слоев Al(Ga)As в структурах GaAs/Al(Ga)As в настоящее время находится в стадии активного изучения [6,7]. Установлено влияние ряда параметров (температуры окисления, состава *x* в слоях $Al_xGa_{1-x}As$, толщины

44

слоя, геометрии мезы структуры) на кинетику образования оксида алюминия [8,9].

В настоящей работе селективное окисление слоев AlAs использовалось для формирования структур с вертикально связанными точками InAs в матрице $Al_x O_y$.

Эксперимент. Структура, используемая в эксперименте, выращена методом молекулярно-лучевой эпитаксии на установке Riber 32P на подложке GaAs с ориентацией (001). Образец состоит из 5 слоев самоорганизованных InAs KT в матрице AlAs. Суммарная толщина наносимого InAs в слое равна двум монослоям (около 0.6 nm), толщина разделяющего слоя AlAs составляет 12 nm. Температура подложки в процессе роста InAs KT составляла 440°С. При этой же температуре производилось заращивание слоем AlAs толщиной 6 nm. Затем температура подложки увеличивалась, и следующие 6 nm AlAs выращивались при температуре 580°С. Суммарная толщина матрицы AlAs составляла 130 nm. После завершения роста активной области структура была закрыта слоем GaAs толщиной 12 nm. Процесс роста контролировался методом дифракции быстрых электронов (ДБЭ) на отражение.

Окисление образцов, содержащих КТ InAs, проводилось в горизонтальном кварцевом реакторе при температуре 360°С. Пары дистиллированной воды, подогреваемой в барботёре до 95°С, с помощью газаносителя (N₂) поступали в реактор. При скорости потока N₂ 0.3 l/min за время 30–40 min глубина фронта окисления достигала 18–22.5 μ m.

Образцы с квантовыми точками до и после окисления исследовались методом комбинационного рассеяния света (КРС). Эксперименты по КРС были выполнены на спектрометре Dilor XY800 в геометрии обратного рассеяния в неполяризованном свете, с использованием линии возбуждения Ar^+ -лазера на длине волны 514.5 nm (2.41 eV). Для изучения фронта окисления использовался микроскоп, позволяющий сфокусировать свет до размеров пятна диаметром 1 μ m на образце.

Результаты и обсуждение. На рис. 1 представлено изображение иследуемого образца, полученное с помощью электронной микроскопии высокого разрешения. Темные области на рис. 1 соответствуют слоям с квантовыми точками InAs, светлые — слоям AlAs. Из рисунка видно, что KT InAs имеют пирамидальную форму с основанием порядка 10 nm и высотой 2 nm.

На рис. 2, *а* приведены зависимости глубины окисления от времени окисления для толщины слоя AlAs 120 nm в диапазоне температур от



Рис. 1. Изображение исследуемого образца, полученное с помощью электронной микроскопии высокого разрешения. Темная область соответствует слою с КТ InAs. Подложка GaAs находится в нижней части фотографии.

360 до 420°С. Приведенные зависимости хорошо описываются в рамках модели окисления, предложенной в работе [10]. На начальной стадии глубина окисления линейно изменяется со временем, поскольку процесс бокового окисления определяется в основном реакцией окисления. Предполагается, что транспорт реагентов для дальнейшего окисления происходит через поры в образовавшемся окисле у границы раздела



Рис. 2. Зависимости: a — глубины бокового окисления w от времени окисления t слоев AlAs толщиной 120 nm при различных температурах; b — начальной скорости окисления g_0 и конечной глубины окисления w от температуры в аррениусовских координатах.

со средой $N_2 + H_2O$. Окисление продолжается, пока имеющиеся поры обеспечивают дальнейшее проникновение молекул воды или ионов кислорода. С увеличением времени окисления в окисле происходит блокировка пор продуктами реакции, что затрудняет доставку реагентов, и реакция значительно замедляется (а затем и прекращается). Процесс окисления описывается следующими реакциями [11]:

$$2AlAs + 6H_2O_{(g)} = Al_2O_3 + As_2O_3 + 6H_2,$$
 (1)

$$As_2O_3 + 3H_2 = 2As + 3H_2O_{(g)}.$$
 (2)

В процессе реакции образуются промежуточный As_2O_3 и аморфный As, присутствие которых подтверждают спектры комбинационного рассеяния. При окислении слоев AlAs в соответствии с данными электронной микроскопии образуется аморфная матрица Al_xO_y .

На рис. 2, *b* представлены зависимости начальной скорости окисления и конечной глубины окисления от температуры в аррениусовских



Рис. 3. Спектры комбинационного рассеяния, записанные вблизи фронта окисления с шагом $1.5\,\mu$ m в области частот оптических фононов: *a* — InAs и *b* — AlAs. *I* — спектр KP, измеренный от неокисленной области образца. Стрелки указывают изменение частот оптических фононов InAs.

координатах. На основе данных зависимостей, согласно [10], рассчитаны энергии активации для процесса реакции на границе раздела AlAs/окисел и механизма транспорта реагентов через уже образовавшийся окисел, равные соответственно $E_1 = (1.30 \pm 0.05) \text{ eV}$ и $E_2 = (0.94 \pm 0.01) \text{ eV}.$

На рис. 3 представлены спектры КРС, измеренные вблизи фронта окисления с шагом $1.5\,\mu$ m. Из рисунка видно, что в спектре КР, записанном от неокисленной части образца (кривая *I* на рис. 3), наблюдаются пики при 240 и 225 cm⁻¹ (402 и 360 cm⁻¹), соответствующие продольным и поперечным оптическим фононам в КТ InAs и (слоях AlAs). Частоты продольных и поперечных оптических (LO и TO) фононов в объемном кристалле InAs составляют 238.6 и 217 cm⁻¹ соответственно. Частоты LO и TO фононов, наблюдаемые в эксперименте для КТ, превышают соответствующие значения в объемном InAs. В КТ InAs два эффекта ответственны за сдвиг частот оптических

ских фононов — механические напряжения слоя с КТ, возникающие вследствие различия параметров кристаллических решеток InAs и AlAs, и эффект локализации оптических фононов. Положение фононных линий в спектрах свидетельствует о том, что исследованные наноструктуры являются псевдоморфными, т.е. не содержат дислокаций, приводящих к релаксации механических напряжений. Это подтверждается также данными просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения. Существующие напряжения вызывают высокочастотный сдвиг оптических фононов [12]. Локализация оптических фононов в КТ приводит к низкочастотному сдвигу положения линий LO и TO фононов [13].

По мере приближения к фронту окисления (кривые 2, 3) возникает широкая полоса КР в области частот 190–250 сm⁻¹, происходит низкочастотный сдвиг линий оптических фононов InAs и уменьшается интенсивность линий оптических фононов AlAs. После прохождения фронта окисления интенсивность полосы при 190–250 сm⁻¹ уменьшается, а линии оптических фононов AlAs исчезают (кривые 4, 5). Последующее смещение от фронта окисления не приводит к изменению спектров КР. Уменьшение интенсивности линии оптических фононов AlAs свидетельствует об окислении слоев AlAs, а возникновение широкой полосы в спектрах — об образовании кластеров аморфного мышьяка [14]. Низкочастотный сдвиг LO и TO фононов, наблюдаемый в эксперименте, свидетельствует о релаксации механических напряжений в KT InAs в окисленной области.

Нужно отметить, что в спектрах КР не наблюдается линий при 475 cm^{-1} , что указывает на отсутствие аморфного As_2O_3 , который может быть промежуточным продуктом реакций (см. [10]).

Таким образом, методом селективного окисления сформированы KT InAs в аморфной матрице оксида алюминия. Показано, что процесс окисления приводит к релаксации напряжений в KT InAs. На границе окисленной и не окисленной области обнаружено присутствие аморфного мышьяка.

Авторы благодарны Ш. Шульце (S. Schulze) за предоставленные электронно-микроскопические снимки поперечных срезов исследуемых образцов.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект 02–16969), Фонда Фольксваген (грант I/76837), INTAS (грант YS 2001/2–12).

Список литературы

- Sabarinathan J., Bhattacharua P., Zhu D. et al. // Appl. Phys. Lett. 2001. V. 78 (20). P. 3024–3026.
- [2] Zou Z., Huffuker D.L., Csutak S. et al. // Appl. Phys. Lett. 1999. V. 75 (1).
 P. 22–24.
- [3] Wierer J.J., Evans P.W., Holonyak N. et al. // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 72 (21).
 P. 2742–2744.
- [4] Гайслер В.А., Торопов А.И., Бакаров А.К. и др. // Письма в ЖТФ. 1999.
 Т. 25. В. 19. С. 40–44.
- [5] Сахаров А.В., Крестников И.Л., Малеев Н.А. и др. // ФТП. 2001. Т. 35 (7). С. 889–895.
- [6] Landesman J.P., Fiore A., Nagle J. et al. // Appl. Phys. Lett. 1997. V. 71 (17).
 P. 2520–2522.
- [7] Cheong S.K., Bunker B.A., Shibata T. et al. // Appl. Phys. Lett. 2001. V. 78(17).
 P. 2458–2460.
- [8] Langenfelder T., Schroder St., Grothe H. // J. Appl. Phys. 1997. V. 82(7).
 P. 3548–3551.
- [9] Nickel H. // J. Appl. Phys. 1995. V. 78 (8). P. 5201-5203.
- [10] Evans U.R. The Corrosion and Oxidation of Metals. Arnold, London, 1961. P. 819–854.
- [11] Ashby C.I.H., Sullivan J.P., Choquette K.D. et al. // J. Appl. Phys. 1997. V. 82(6).
 P. 3134–3136.
- [12] Cerdeira F., Buchenauer C.J., Pollak F.H. et al. // Phys. Rev. 1972. B. 5. P. 580– 593.
- [13] Tenne D.A., Haisler V.A., Bakarov A.K. et al. // Phys. Stat. Sol. 2001. V. 25. P. 25–29.
- [14] Schwartz G.P., Schwartz B.E., DiStefano D. et al. // Appl. Phys. Lett. 1979.
 V. 34. P. 205.