

УДК 546.86.681

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ КВАЗИЖИДКОГО ПРИБЛИЖЕНИЯ ПРИГРАНИЧНОГО СЛОЯ ГАЗОВОЙ ФАЗЫ ПРИ МОДЕЛИРОВАНИИ КОНЦЕНТРАЦИОННЫХ ПРОФИЛЕЙ ГЕТЕРОСТРУКТУР $\text{InGaAs}/(\text{Al})\text{GaAs}$ С КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ, ПОЛУЧАЕМЫХ МЕТОДОМ МОС-ГИДРИДНОЙ ЭПИТАКСИИ

© 2004 Р.Х. Акчурин, Л.Б. Берлинер, А.А. Мармалюк *

Московская государственная академия тонкой химической технологии им. М.В. Ломоносова
*ООО "Сигм Плюс"

Поступила в редакцию 30.09.07

Разработана математическая модель для описания сегрегации индия в квантовых ямах при формировании квантоворазмерных гетероструктур $\text{InGaAs}/(\text{Al})\text{GaAs}$ методом газофазной эпитаксии с использованием металлоорганических соединений (МОГ-ФЭ). В основе модели представление о приграничном слое газовой фазы как о квазижидкости, основанное на сопоставлении равновесных давлений паров индия и галлия при температурах эпитаксии с их давлениями, возникающими в газофазном реакторе при разложении соответствующих источников. Такое допущение позволяет использовать хорошо разработанные для системы In-Ga-As модели жидкофазной эпитаксии.

Компьютерные эксперименты показали, что расчетные профили распределения индия по глубине гетероструктуры согласуются с экспериментальными профилями, полученными методом Оже-электронной спектроскопии высокого разрешения с послойным травлением ионами аргона в ООО "Сигм Плюс". Показано, что перспективным развитием предложенной модели является дополнительный учет упругих напряжений, возникающих в формируемых гетероструктурах и десорбции индия, накапливающегося в приграничном слое.

Моделирование распределения компонентов в гетероструктурах типа $\text{InGaAs}/(\text{Al})\text{GaAs}$ с квантовыми ямами, широко используемых для изготовления эффективных оптоэлектронных устройств, понимание механизма концентрационной сегрегации – важная научная и практическая задача, решению которой посвящены многочисленные публикации последнего десятилетия [1-7]. В большинстве случаев предложенные для описания расчетные модели не дают полное качественное, а тем более количественное описание сегрегационных явлений.

В данной работе в основу разрабатываемой модели для случая газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений предложен не рассматриваемый ранее новый подход, основанный на квазижидком приближении приграничного слоя газовой фазы. Возможность применения такого подхода обоснована в работе [8].

РАСЧЕТНАЯ МОДЕЛЬ

При разработке расчетной модели были приняты следующие допущения:

- потоки направляемых к поверхности подложки газовых источников однородны и постоянны во времени;
- в нагретой зоне вблизи поверхности подложки происходит полное их разложение;
- индий и галлий образуют в приграничном к подложке слое пересыщенный пар, поскольку равновесное давление пара этих элементов при температурах эпитаксии на порядки ниже их парциального давления при разложении соответствующего источника;
- коэффициент адсорбции мышьяка много меньше единицы, поскольку равновесное давление паров мышьяка при температурах эпитаксии на порядки превышает значение парциального давления в рабочей камере при разложении арсина;

- процесс протекает при многократном избытке газового потока мышьяка;
- адсорбированный мышьяк при взаимодействии с удерживаемыми на поверхности за счет физической адсорбции атомами индия и галлия образует в приграничном слое подобие раствора-расплава (квазизидкость);
- коэффициенты адсорбции индия и галлия близки к единице, чему способствует переход адсорбированных атомов в квазизидкое состояние;
- десорбция галлия из квазизидкого приграничного слоя много меньше десорбции индия, чему способствует существенно меньшее равновесное давление паров галлия;
- количество мышьяка, удерживаемого в квазизидком приграничном слое, определяется отношением концентраций индия и галлия и температурой процесса по изотерме ликвидуса;
- квазизидкий слой однороден по составу, а его толщина увеличивается по мере накопления индия;
- на границе квазизидкости с подложкой существует локальное термодинамическое равновесие, определяющее состав эпитаксиального слоя;
- соотношение скоростей $Ga + As \rightarrow GaAs$ и $In + As \rightarrow InAs$ на границе квазизидкости с подложкой соответствует локальному термодинамическому равновесию;
- скорость кристаллизации определяется величиной газового потока галлия и составом эпитаксиального слоя.

Принятие таких допущений позволяет рассматривать приграничный адсорбционный слой как подобие раствора-расплава и использовать для расчета состава осаждаемого эпитаксиального слоя хорошо развитые расчетные модели для жидкофазной эпитаксии [9]. Для построения концентрационных профилей компонентов в гетероструктурах уравнения термодинамического равновесия при заданной температуре необходимо дополнять уравнениями материального баланса с учетом компонентов, поступающих в приграничный слой из газового потока, и компонентов, покидающих этот слой в результате кристаллизации и десорбции индия [10]:

$$\frac{dc_{In}}{dt} = F_{In} - k_{In} \cdot c_{In} - V_g(x) \cdot \frac{\rho(x)}{m(x)} \cdot x \quad (1)$$

$$\frac{dc_{Ga}}{dt} = F_{Ga} - V_g(x) \cdot \frac{\rho(x)}{m(x)} \cdot (1-x) \approx 0 \quad (2)$$

$$\frac{c_{In}}{c_{Ga}} = \frac{x_{In}}{x_{Ga}} \quad (3)$$

$$\begin{cases} RT \cdot \ln x + \alpha_{InAs-GaAs} \cdot (1-x)^2 = RT \cdot \ln(4\gamma_{In}x_{In}\gamma_{As}x_{As}) + \\ + \Delta S_{InAs}(T_{InAs} - T) - 0.5 \cdot \alpha_{In-As} \\ RT \cdot \ln(1-x) + \alpha_{InAs-GaAs} \cdot x^2 = RT \cdot \ln(4\gamma_{Ga}x_{Ga}\gamma_{As}x_{As}) + \\ + \Delta S_{GaAs}(T_{GaAs} - T) - 0.5 \cdot \alpha_{Ga-As} \end{cases} \quad (4)$$

Здесь c_{In} и c_{Ga} – концентрации индия и галлия в квазизидком слое [моль/см²]; x_{In} и x_{Ga} – аналогичные концентрации, но в атомных долях; F_{In} и F_{Ga} – потоки индия и галлия [моль/см²·с]; k_{In} – коэффициент десорбции индия [с⁻¹]; x – мольная доля InAs в InGaAs; V_g – скорость кристаллизации InGaAs [Å/с]; $\rho(x)$ – плотность [г/см²·Å] и $m(x)$ – молекулярный вес [г] структуры $In_xGa_{1-x}As$ оцениваются исходя из свойств InAs и GaAs по правилу Вегарда; ΔS_j [Дж/моль·К] и T_j – энтропия и температура плавления j-того компонента (j=InAs, GaAs); $\alpha_{InAs-GaAs}$ – энергия взаимодействия компонент InAs и GaAs в InGaAs [Дж/моль]; α_{i-j} – энергия взаимодействия i-го и j-го компонент в квазизидком слое [Дж/моль] и g_i – коэффициенты активности этих компонент (i, j = In, Ga, As).

В качестве лимитирующей (наиболее медленной) стадии поверхностных процессов принимаем накопление индия в приграничном слое, считая релаксацию атомов галлия и мышьяка на поверхности более быстрой. Поэтому в уравнении (2) величина производной близка к нулю. Отсюда следует наблюдаемое на практике выражение для скорости кристаллизации

$$V_g = \frac{F_{Ga} \cdot m(x)}{\rho(x) \cdot (1-x)}, \quad (5)$$

зависящее от величины газового потока галлия и состава эпитаксиального слоя.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ АНАЛИЗ

Квантоворазмерные гетероструктуры InGaAs/GaAs/AlGaAs выращивались при температуре 720 – 770 °С на подложках n⁺ GaAs(100) методом МОС-гидридной эпитаксии низкого давления (~ 60 мм. рт. ст.) в ООО “Сигм-Плюс”. Использовался горизонтальный кварцевый реактор с вращением подложкодержателя газовым потоком. В качестве источников элементов III группы применялись триметилиндий, триэтилгаллий, а также арсин как источник элемента V группы. Гетероструктуры исследовались методом Оже-электронной спектроскопии в НИИ “Полус”. Концентрационные профили индия в относительных единицах получены на сканирующем Оже-спектрометре РНИ-560. Экспериментальные исследования показывают

несимметричность распределения индия в гетеро-структуре: обычно пик был смещен к растущей поверхности и величина последующего пика при относительно тонких барьерных слоях (~90 Å) была несколько больше предыдущего.

На основании предлагаемой модели (1-5) выполнены вычислительные эксперименты в температурном интервале 650-800 °С при соотношениях входных потоков индия к галлию: 0.2-0.3, скоростях кристаллизации: 5-7 Å/сек и толщинах слоев гетероструктуры InGaAs/GaAs : 50-60 Å/100-150 Å. В данной серии вычислительных экспериментов не учитывалась десорбция индия и количество галлия в приграничном слое считалось постоянным и равным $c_{Ga} = 8,6 \cdot 10^{-11}$ моль/см². Последняя величина выбиралась из условия соответствия пика индия в квантоворазмерной гетероструктуре отношению входных потоков индия и галлия.

Расчет уравнений модели осуществлялся в два последовательных этапа:

На первом этапе задавалась температура и решалась система уравнений модели фазового равновесия (4). В результате рассчитывалась функциональная зависимость

$$x_{In} = f\left(\frac{x_{In}}{x_{Ga}}\right). \quad (6)$$

При этом получалось ровно два решения (см. рис. 1): одно в нижней части концентрационного треугольника, обогащенной индием и галлием, а другое – в верхней части концентрационного треугольника, обогащенной мышьяком.

На втором этапе решалось дифференциальное уравнение (1) с учетом соотношений (4, 5) и рассчитанной на первом этапе зависимости (6). Результаты рассчитанных профилей распределения индия в гетероструктуре InGaAs/GaAs представлены на рис. 2.

Видно, что асимметрия в профиле распределения индия в квантовой яме может быть обусловлена непосредственно спецификой физико-химического взаимодействия в системе In-Ga-As. В то же время выполненные ранее расчеты [11] показали, что заметное воздействие на профили распределения индия в подобных гетероструктурах оказывают упругие напряжения, вызванные рассогласованием параметров решеток сопрягаемых материалов, и для более точного описания формируемых концентрационных профилей необходим совместный учет обоих факторов.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант 04-02-16650).

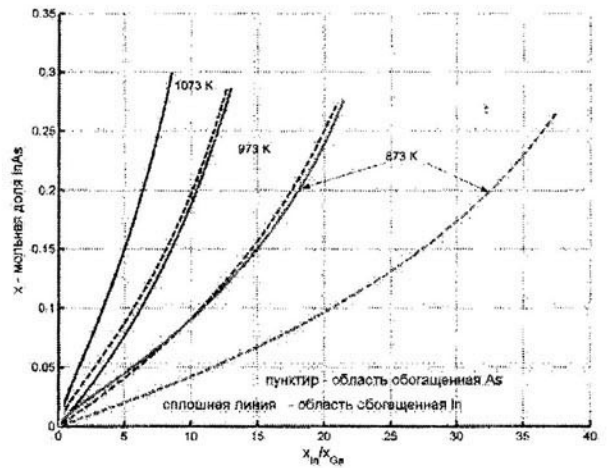


Рис. 1. Изотермические зависимости состава $In_xGa_{1-x}As$ от отношения атомных долей индия и галлия в жидкой фазе, рассчитанные по уравнениям (4) модели термодинамического равновесия (параметры модели взяты из работы [9]): сплошные и штриховые линии – решения в областях концентрационного треугольника, обогащенных компонентами A^{III} и B^V , соответственно.

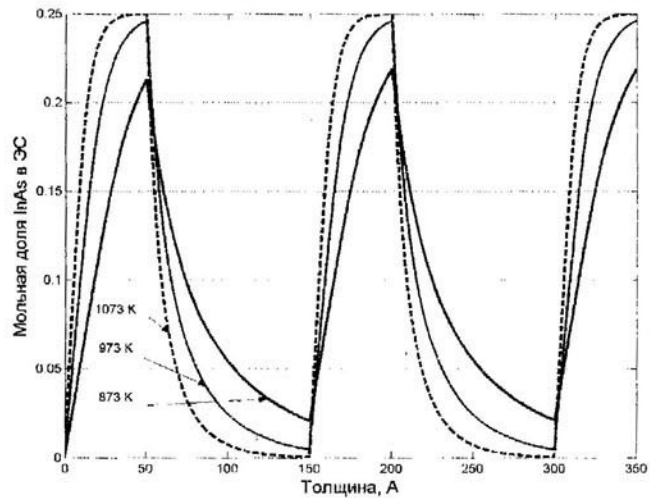


Рис. 2. Примеры расчетных профилей распределения индия в эпитаксиальных слоях гетероструктуры $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ при различных температурах (отношение газовых потоков $In/Ga = 0.25$, $V_g = 5$ Å/с, расчет для области, обогащенной A^{III}).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Stringfellow G.B. Organometallic Vapor Phase Epitaxy: Theory and Practice. Acad. Press, London, 1999, 572 p.*
2. *Muraki K., Fukatsu S., Shiraki Y. // Appl. Phys. Lett., 1992, V. 61, P. 557-559.*
3. *Dehaese O., Wallari X., Mollot F. // Appl. Phys. Lett., 1995, V. 66, P. 52-54.*

4. Bugge F., Zeimer U., Sato M., Weyers M., Trankle G. // J. Cryst. Growth, 1998, V. 183, P. 511-518.
5. Karpov S.Yu., Makarov Yu. N. // Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 2000, V.618, P. 185-191.
6. Karpov S.Yu., Talalaev R.A., Evstratov I.Yu., Makarov Yu. N. // Phys. Stat. Solidi, 2002, V.192, P.417-423.
7. Дроздов Ю.Н. , Байдусь Н.В., Звонков Б.Н. и др. // Физика и техника полупроводников. 2003., Т.37, №2. С. 203-208.
8. Акчурин Р.Х. // Изв. Вузов. Материалы электронной техники (в печати).
9. Папили М.Б., Илегемс М. в кн. "Материалы для оптоэлектроники" (пер. с англ.), М.: "Мир", 1976, 405с.
10. Хухрянский Ю.П. Веремьянина Л.Н., Сысоев О.И., Крылова Л.Н. // ЖТФ, 1996, Т.66, №4, С. 186-188.
11. Akchurin R.Kh., Andreev A.Y., Govorkov O.I., Marmalyuk A.A., Petrovsky A.V. // Appl. Surf. Sci., 2002, V.188, P.209-213.