

06

©1993 г.

ЭФФЕКТ НЕСТАЦИОНАРНОСТИ ПРИ ВЫРАЩИВАНИИ ТОНКИХ ПЛЕНОК ИЗ ЖИДКОЙ ФАЗЫ

Т.В.Сакало, С.А.Кукушкин

Исследованы условия, при которых возможно выращивание супертонких полупроводниковых слоев из жидкой фазы. Раскрыта еще одна важная особенность предложенного для этого ранее метода релаксационной жидкостной эпитаксии с инверсией массопереноса. Показано, что необходимым условием получения достаточно тонких слоев является нестационарный характер процесса зарождения на подложке вплоть до момента полной релаксации пересыщения в жидкой фазе и, следовательно, завершения формирования тонкой пленки. Проведено сопоставление известных экспериментальных данных и теоретических результатов авторов, демонстрирующее их хорошее соответствие.

Введение

В настоящее время супертонкие слои получают в основном методами молекулярно-пучковой эпитаксии и газотранспортной реакции. Жидкофазная эпитаксия встречает на своем пути такие трудности, как высокая скорость роста слоев из жидкой фазы и образование варизонного переходного слоя между подложкой и выращиваемой пленкой. Для уменьшения толщины пленки применялись методы краткосрочной и низкотемпературной эпитаксии, и недавно был предложен метод релаксационной жидкостной эпитаксии с инверсией массопереноса [1].

Идея метода состоит в использовании различия в скоростях увеличения толщины пленки в процессе ее гомоэпитаксиального роста и гетерогенного зарождения. Пересыщенный раствор элемента C в расплаве A помещается между двумя параллельными подложками состава AC и ABC , из которых AC является собственным кристаллом по отношению к раствору-расплаву $A-C$, а ABC инородна. Расстояние между подложками AC и ABC составляет 30–50 мкм.

Пересыщение раствора-расплава является движущей силой процесса кристаллизации и создается за счет начального переохлаждения системы. На подложке AC , называемой инвертирующей, происходит гомоэпитаксиальный рост кристалла, а на ABC (основной) вначале трехмерное зарождение, а после образования первичного сплошного слоя также гомоэпитаксиальный рост. Следовательно, на начальном этапе эволюции системы скорость усвоения вещества подложкой AC значительно выше,

чем подложкой ABC , и модуль градиента концентрации у поверхности AC больше, чем у поверхности ABC .

Соответственный выбор параметров эпитаксии обеспечивает релаксацию пересыщения в основном за счет инвертирующей подложки.

Чем меньше среднее пересыщение в растворе-расплаве к моменту образования первичного сплошного слоя на основной подложке, тем меньше результирующая толщина выращиваемого на ней слоя, причем время контакта подложек с жидкой фазой в этом методе не нуждается в ограничении и не влияет на толщину получаемой пленки.

Результирующая толщина пленки на основной подложке полностью определяется параметрами эпитаксии: температурой T (которая полагается постоянной) системы и ее начальным переохлаждением ΔT , расстоянием L между подложками, составом подложек и жидкой фазы.

Для описания эволюции системы была предложена модель [2], которая позволяет численными методами найти временные зависимости основных характеристик процесса зарождения — скорости зародышеобразования, функции распределения зародышей по размерам, коэффициента заполнения основной подложки и скоростей роста пленок, а также зависимости результирующих толщин пленок на подложках от параметров эпитаксии.

Эксперименты авторов [1] и наши вычисления проведены для системы, состоящей из подложек $GaAl$ и $GaAlAs$ и раствора-расплава $Ga-As$ между ними, при температуре эпитаксии $T = 900^\circ$. Сопоставление результатов моделирования [2] с данными эксперимента [3] было проведено по зависимостям результирующих толщин пленок на подложках от параметров эпитаксии и продемонстрировало справедливость модельных представлений.

Эффект нестационарности

На основе результатов моделирования можно сделать вывод о том, что для получения представляющих интерес слоев $GaAs$ (до 500 \AA) на подложке $GaAlAs$ необходимо выбрать параметры эпитаксии таким образом, чтобы зарождение на основной подложке вплоть до момента образования первичного сплошного слоя было нестационарным.

На рис. 1 представлены полученные теоретически и экспериментально зависимости результирующих толщин слоев h на основной и H на инвертирующей подложках от начального переохлаждения системы ΔT . При $\Delta T < 4 \text{ K}$ пересыщение релаксирует до того, как успевает образоваться сплошной слой на основной подложке. При $\Delta T \geq 4 \text{ K}$ результирующие толщины слоев возрастают с ростом ΔT , поскольку $h + H \sim \Delta T$, причем при $\Delta T \gg 1 \text{ K}$ $h \rightarrow H$.

Особенностью рассматриваемых кривых является перемена знака производных $\partial^2 h / \partial (\Delta T)^2$ и $\partial^2 H / \partial (\Delta T)^2$ в точке $\Delta T = 6 \text{ K}$, вследствие чего значения h в области $4 \leq \Delta T \leq 6 \text{ K}$ заметно меньше, чем при $\Delta T > 6 \text{ K}$, и не наблюдается прямой пропорциональности между h и ΔT .

Для объяснения данной особенности обратимся к рис. 2 и 3, на которых представлены зависимости от ΔT толщины h_0 и времени образования τ_c первичного сплошного слоя на основной подложке. Результирующая толщина h складывается из h_0 и толщины гомоэпитаксиально выросшего слоя за время $\tau_p - \tau_c$, где τ_p — время полной релаксации пересыщения, которое может быть оценено из уравнения диффузии вещества в капилляре и при данной температуре определяется практически только шириной

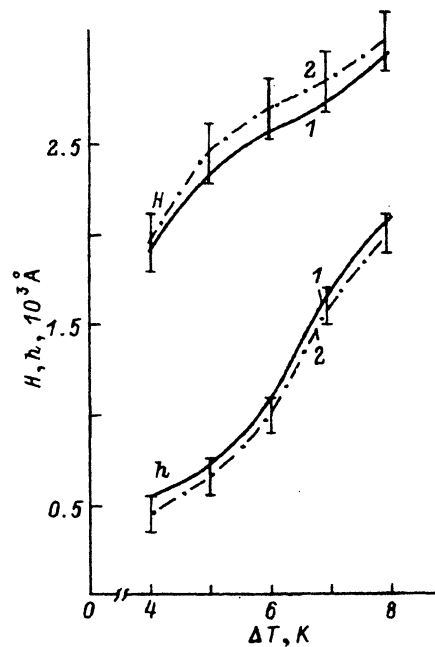


Рис. 1. Полученные теоретически (1) и экспериментально (2) зависимости результирующих толщин пленок h на основной GaAlAs и H на инвертирующей GaAs подложках от начального переохлаждения ΔT раствора-расплава Ga-As при $T = 900^\circ \text{C}$, $L = 50 \text{ мкм}$, $\Theta = 45^\circ$.

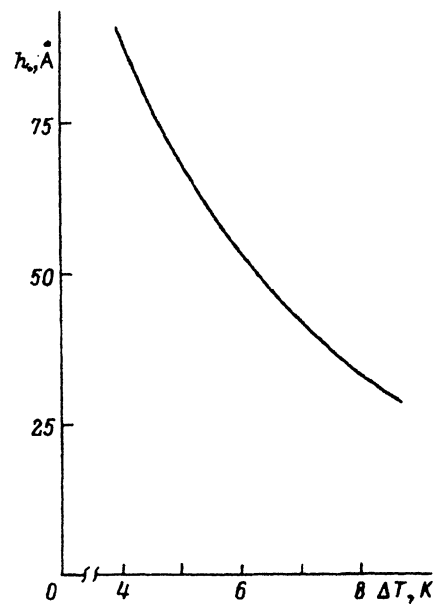


Рис. 2. Зависимость от начального переохлаждения ΔT толщины h_0 первичного сплошного слоя GaAs на основной GaAlAs подложке при $T = 900^\circ \text{C}$, $L = 50 \text{ мкм}$, $\Theta = 45^\circ$.

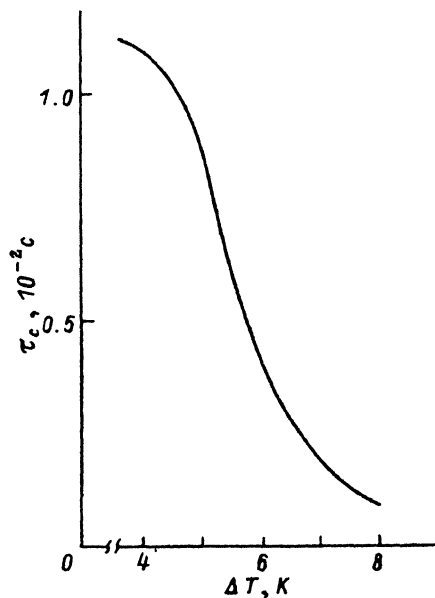


Рис. 3. Зависимость от начального переохлаждения ΔT времени образования τ_c первичного сплошного слоя GaAs на основной GaAlAs подложке при $T = 900^\circ \text{C}$, $L = 50 \text{ мкм}$, $\Theta = 45^\circ$.

капилляра L , т.е.

$$h = h_0 + \langle V \rangle (\tau_p - \tau_c),$$

где $\langle V \rangle$ — средняя скорость гомоэпитаксиального роста пленки, в первом приближении пропорциональная среднему пересыщению в жидкой фазе к моменту образования первичного сплошного слоя.

В свою очередь величина этого пересыщения возрастает с увеличением ΔT по двум причинам: чем больше ΔT , тем вообще больше избыточное количество вещества в жидкой фазе и тем меньшая доля этого вещества успевает релаксировать к моменту образования первичного сплошного слоя, поскольку с увеличением ΔT время образования первичного сплошного слоя τ_c уменьшается (рис. 3).

Таким образом, особенность поведения $h(\Delta T)$ может быть обусловлена только двумя причинами: аналогичной зависимостью $h_0(\Delta T)$ либо соответствующим характером $\tau_c(\Delta T)$. Как видно из рис. 2, h_0 с увеличением ΔT уменьшается, как и следовало бы ожидать: толщина h_0 сравнима с высотой критического зародыша на основной подложке, которая в первом приближении обратно пропорциональна ΔT .

Следовательно, наблюдаемая особенность может быть объяснена лишь путем изучения зависимости от ΔT времени образования τ_c первичного сплошного слоя. Зависимость $\tau_c(\Delta T)$ также характеризуется переменной знака $\partial^2 \tau_c / \partial (\Delta T)^2$ в точке $\Delta T = 6$ К, что полностью соответствует и служит математическим объяснением поведению $h(\Delta T)$ и $H(\Delta T)$.

Физически перемена знака выпуклости кривой $\tau_c(\Delta T)$ в точке $\Delta T = 6$ К вызвана изменением характера процесса зарождения. Изучение временных зависимостей скоростей зародышеобразования при различных ΔT позволяет заключить, что при $4 \leq \Delta T \leq 6$ К первичный сплошной слой формируется на стадии нестационарного зарождения, а при $\Delta T > 6$ К — на стадии стационарного. Такой же вывод можно сделать, сравнив значения τ_c с соответствующими оценками [1] времени нестационарности Зельдовича: $\tau_c \leq \tau_Z$ при $4 \leq T \leq 6$ К и $\tau_c > \tau_Z$ при $\Delta T > 6$ К.

Аналогичные особенности наблюдаются и для зависимостей h и H от L и Θ — краевого угла, определяющего смачивание основной подложки веществом раствора-расплава, что имеет ту же физическую причину.

Выводы

При получении супертонких полупроводниковых слоев методом релаксационной жидкостной эпитаксии с инверсией массопереноса нестационарный характер процесса зарождения на основной подложке играет существенную роль, притом определяющую для выбора параметров эпитаксии.

Таким образом, метод сочетает следующие основные идеи, три из которых отмечались ранее: 1) применение идеи затухающих источников: в контакт с подложкой приводится ограниченное (и очень малое) количество пересыщенного раствора-расплава; 2) использование различия в средних скоростях усвоения вещества при гетерогенном зарождении и гомоэпитаксиальном росте кристалла для организации инверсного массопереноса в системе и релаксации пересыщения в основном за счет инвертирующей подложки; 3) создание высоких температур эпитаксии и достаточно больших пересыщений для уменьшения толщины варизонного слоя и обеспечения малых размеров зародышей на основной подложке;

4) эффект нестационарности, который обуславливает возможность получения наиболее тонких слоев (до 500 \AA) и проявляется при таком выборе параметров эпитаксии, что первичный сплошной слой на основной подложке формируется на стадии нестационарного зарождения, что возможно при начальных переохлаждениях, достаточно малых для того, чтобы прогнозируемое время Зельдовича было сравнительно велико, а именно при температуре эпитаксии $T = 900^\circ \text{ C}$ оптимальные значения параметров эпитаксии, обеспечивающие выращивание супертонких слоев на основной подложке, заключены в области $\Delta T \simeq 4-6^\circ \text{ C}$, $L \simeq 30-50 \text{ мкм}$ при процентном содержании алюминия в основной подложке $x \simeq 0.2-0.4$.

Для создания теории метода была построена феноменологическая модель стадии нестационарного зарождения тонкой пленки, и успешное применение теории свидетельствует о справедливости модели, тем более что нестационарный характер зарождения имеет столь важное значение для метода.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность В.А.Попову за обсуждения.

Список литературы

- [1] Бессолов В.Н., Кукушкин С.А., Лебедев М.В., Царенков Б.В. // ЖТФ. 1988. Т. 58. Вып. 8. С. 1507-1512.
- [2] Сакало Т.В., Кукушкин С.А. // ЖТФ. 1990. Т. 60. Вып. 7. С. 78-83.
- [3] Лебедев М.В. Канд. дис. Л., 1989. 120 с.

Харьковский институт
инженеров транспорта
С.-Петербургский институт
проблем машиноведения

Поступило в Редакцию
13 октября 1992 г.
В окончательной редакции
2 апреля 1993 г.