

# Особенности роста InN методом МПЭ с плазменной активацией азота при различных соотношениях потоков элементов III и V групп

© Д.Н. Лобанов<sup>\*+</sup>, А.В. Новиков<sup>\*+</sup>, Б.А. Андреев<sup>\*+</sup>, П.А. Бушуйкин<sup>\*</sup>, П.А. Юнин<sup>\*</sup>,  
Е.В. Скороходов<sup>\*</sup>, Л.В. Красильникова<sup>\*+</sup>

<sup>\*</sup> Институт физики микроструктур Российской академии наук,  
6030087 Нижний Новгород, Россия

<sup>+</sup> Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,  
603950 Нижний Новгород, Россия

E-mail: dima@ipmras.ru

(Получена 28 мая 2015 г. Принята к печати 5 июня 2015 г.)

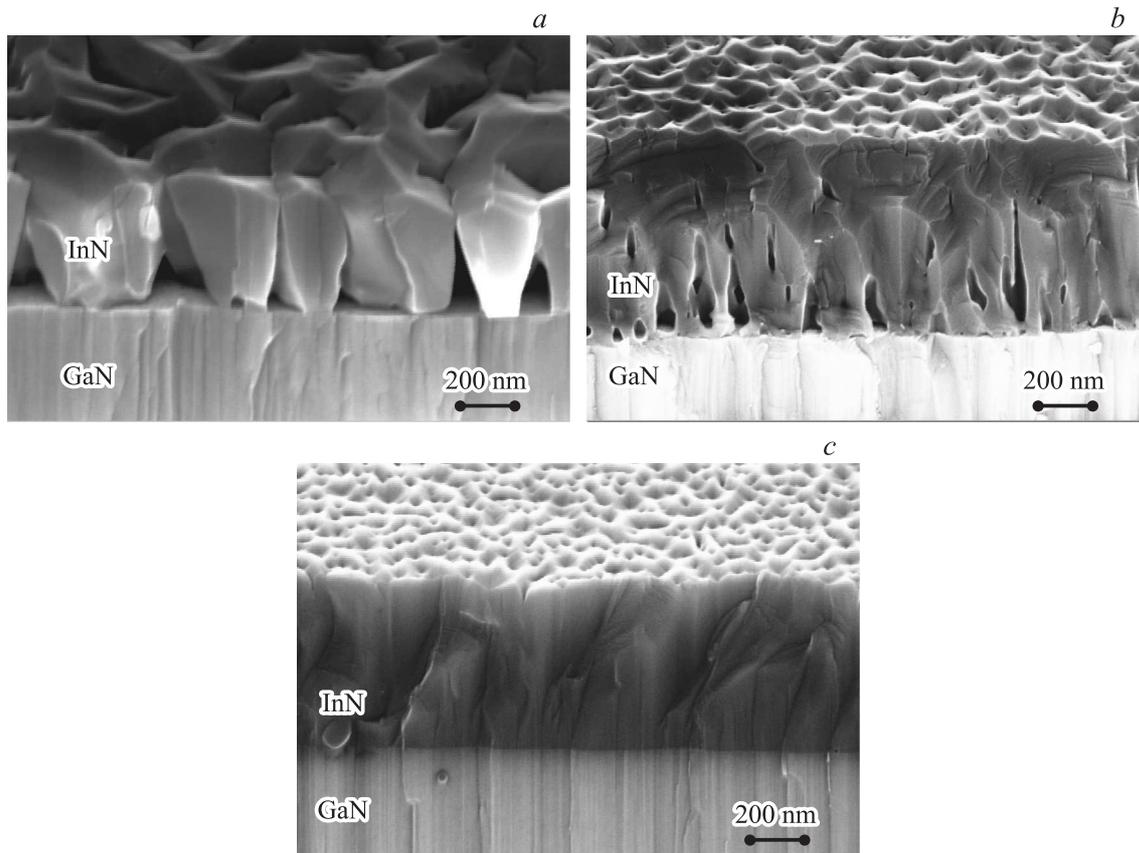
Представлены результаты исследований влияния соотношения потоков элементов III и V групп на структурные и оптические свойства формируемой методом МПЭ ПА пленки InN. Было показано, что при соотношении потоков III/V < 0.6 слой InN состоит из отдельно стоящих наноколонн. В диапазоне соотношений 0.6 < III/V < 0.9 рост InN становится двумерным, однако слой InN обладает нанопористой структурой. При переходе к металлобогатым условиям роста (III/V ~ 1.1) слой InN становится сплошным. Переход от трехмерного роста к двумерному сопровождается увеличением плотности прорастающих дислокаций. Это приводит к снижению интенсивности сигнала фотолуминесценции InN при комнатной температуре. Концентрация электронов в слоях InN составила ~ 5 · 10<sup>18</sup> см<sup>-3</sup>, что приводит к сдвигу максимума сигнала ФЛ в область длин волн 1.73–1.8 мкм и сдвигу края поглощения в область ~ 1.65 мкм.

## 1. Введение

В 90-х годах прошлого столетия произошел стремительный прогресс в технологии выращивания III-N материалов, что открыло перспективы для создания разнообразных приборов на их основе. Основное внимание исследователей последние годы было сосредоточено на получении и исследовании нитрида галлия и нитрида алюминия и их твердых растворов, в том числе и с индием. Гораздо меньше внимания в научной литературе уделяется нитриду индия, который остается наименее изученным среди III-N материалов. С практической точки зрения этот материал очень привлекателен для создания как источников инфракрасного излучения (ширина запрещенной зоны InN при комнатной температуре ~ 0.64 эВ [1]), так и быстродействующих, высокочастотных транзисторов. Теоретические расчеты показывают, что подвижность электронов в InN может достигать значений ~ 10 000 см<sup>2</sup> · В<sup>-1</sup> · с<sup>-1</sup> при комнатной температуре [2]. Это открывает потенциальную возможность работы полевых транзисторов на основе InN на экстремально высоких скоростях на частотах свыше 1 ТГц, что не может быть реализовано на других известных полупроводниковых материалах [3]. Основной причиной, по которой до сих пор не реализованы потенциальные возможности этого материала, является его низкое качество. В настоящее время структуры InN, полученные различными методами, имеют плотность дислокаций 10<sup>9</sup>–10<sup>11</sup> см<sup>-2</sup> и концентрацию носителей заряда 10<sup>17</sup>–10<sup>19</sup> см<sup>-3</sup> [4]. В рекордных образцах концентрация электронов достигает значения единиц 10<sup>17</sup> см<sup>-3</sup> [5]. Одна из основных трудностей получения высококачественных пленок InN связана с термическим разложением этого материала в вакууме при температурах выше 500°C [6]. Это приводит к

необходимости использования низких температур роста для получения слоев InN и, как следствие, к малой подвижности адатомов на поверхности, низкой скорости роста и худшему кристаллическому качеству растущей пленки по сравнению с пленками нитрида галлия и алюминия. Метод молекулярно-лучевой эпитаксии с плазменной активацией азота (МПЭ ПА) наиболее адаптирован для роста нитридов при низких температурах подложки, поскольку в отличие от методов газовой эпитаксии поток химически активного азота в методе МПЭ ПА не зависит от температуры подложки.

Рост InN различными методами, в том числе методом МПЭ ПА, изучался ранее [6–8]. Были построены диаграммы роста InN в зависимости от температуры как для случая азотной, так и металлической полярности [6,8]. В то же время анализ литературных данных показывает, что рост InN в зависимости от соотношения потоков элементов III и V групп исследован мало. Общеизвестным считается лишь то, что при соотношениях потоков III/V ≪ 1 пленка InN обладает наноклончатой структурой, а для формирования сплошного слоя InN с гладкой морфологией поверхности необходимо выдерживать соотношение потоков III/V > 1 [9]. В последнем случае на поверхности роста формируются капли металлического индия. Эта ситуация с изменением морфологии поверхности роста при переходе от азотообогащенных условий к металлобогатым характерна и для GaN и для AlN и связана с появлением на поверхности роста дополнительного слоя металла, приводящего к увеличению поверхностной диффузии адатомов [10,11]. При этом детальные исследования роста InN при промежуточных соотношениях потоков элементов III и V групп в литературе отсутствуют. В настоящей работе для широкого диапазона соотношения потоков элементов III и V групп (от 0.1 до 1.1) исследовано влияние этого параметра



**Рис. 1.** Снимки СЭМ поперечных сколов образцов с слоями InN, выращенными при соотношениях потоков III/V  $\sim 0.6$  (a),  $0.9$  (b) и  $\sim 1.1$  (c).

на структурные и оптические свойства пленок InN, формируемые методом МПЭ ПА.

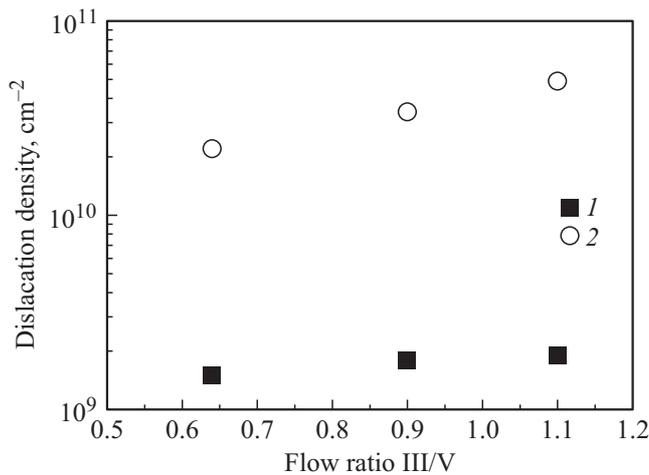
## 2. Методика эксперимента

Рост слоев InN проводился методом МПЭ ПА на установке STE 3N3 (ЗАО „НТО“) на подложках  $c\text{-Al}_2\text{O}_3$  с нанесенной на обратную сторону пленкой титана. Перед осаждением InN на подложках формировался буфер, состоящий из слоя AlN толщиной  $\sim 0.2$  мкм и слоя GaN толщиной  $\sim 1$  мкм. Из литературы известно, что рост на буферных слоях AlN и GaN существенно улучшает кристаллическое качество InN-слоев [9]. Среднеквадратичная шероховатость поверхности полученных GaN/AlN-буферов была меньше 1 нм, а суммарная плотность дислокаций в них, по данным рентгеноструктурного анализа, составляла  $3 \pm 0.5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . При росте слоев InN на таких буферах соотношение потоков индия и азота варьировалось в диапазоне от 0.1 до 1.1. При этом поток азота оставался неизменным  $\sim 0.5$  мкм/ч, а поток In варьировался. Первые 5 мин (8–45 нм по толщине в зависимости от соотношения потоков III/V) слой InN выращивался при температуре  $\sim 420^\circ\text{C}$ , а затем температура роста поднималась

до  $\sim 480^\circ\text{C}$ . Осаждение InN на начальных этапах при низкой температуре способствует улучшению кристаллического качества пленки InN [12]. Общее время роста слоев InN составляло 2 ч. Выращенные структуры исследовались методами сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) на микроскопе Carl Zeiss Supra 50VP, рентгеноструктурного анализа на дифрактометре Bruker D8 Discover. Спектры фотолюминесценции (ФЛ) возбуждались Nd : YAG-лазером с длиной волны 532 нм и регистрировались с помощью решеточного спектрометра Acton 2300i и фотоприемника OMA-V на основе линейки фотодиодов InGaAs. Измерения спектров отражения и пропускания образцов проводились с помощью фурье-спектрометра Bruker IFS 125 HR.

## 3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Согласно исследованиям поперечных сколов структур с помощью СЭМ при соотношении потоков III/V  $< 0.6$  слой InN обладает наноклончатой структурой, что хорошо согласуется с литературными данными [10]. В литературе сообщалось [13], что при увеличении соотношения потоков III/V до  $\sim 0.6$  наблюдается из-



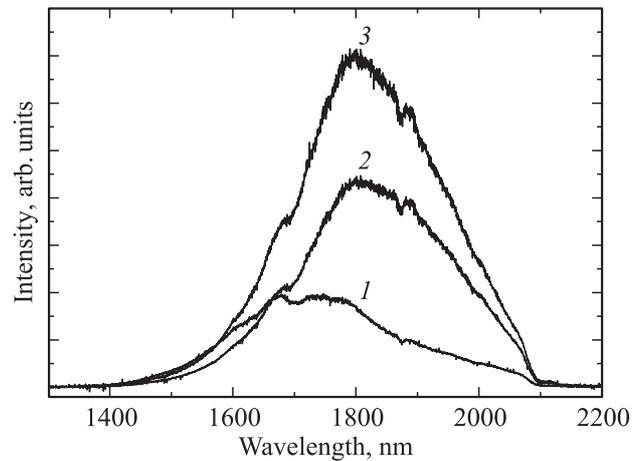
**Рис. 2.** Зависимость плотности винтовых (1) и краевых (2) прорастающих дислокаций в слоях InN, выращенных при различных соотношениях потоков элементов III и V групп.

менение механизма роста пленки InN с трехмерного при низких ( $\sim 350^\circ\text{C}$ ) температурах на двумерный при повышении температуры роста до  $\sim 450^\circ\text{C}$ . В настоящей работе при таком же соотношении потоков двумерного роста пленки InN не наблюдалось и при температуре роста  $\sim 480^\circ\text{C}$ . Как показали СЭМ исследования, в таких условиях наблюдается трехмерный наноклончатый рост. Однако по мере роста поперечные размеры наноклонн увеличиваются, что приводит к их смыканию при толщине слоя InN  $\sim 400$  нм (рис. 1, *a*). При увеличении соотношения потоков III/V до 0.9 отдельных наноклонн не наблюдается, а пленка InN представляет собой сплошной слой, обладающий нанопористой структурой (рис. 1, *b*). При переходе к металлобогатенным условиям роста даже при небольшом превышении потока In над потоком азота (III/V  $\sim 1.1$ ) слой InN становится сплошным без каких-либо нанопор (рис. 1, *c*). Двумерный рост с гладкой морфологией поверхности в случае металлобогатенных условий роста характерен и для эпитаксии других нитридов и связан с появлением на поверхности роста дополнительного слоя металла, приводящего к увеличению поверхностной диффузии адатомов [10,11].

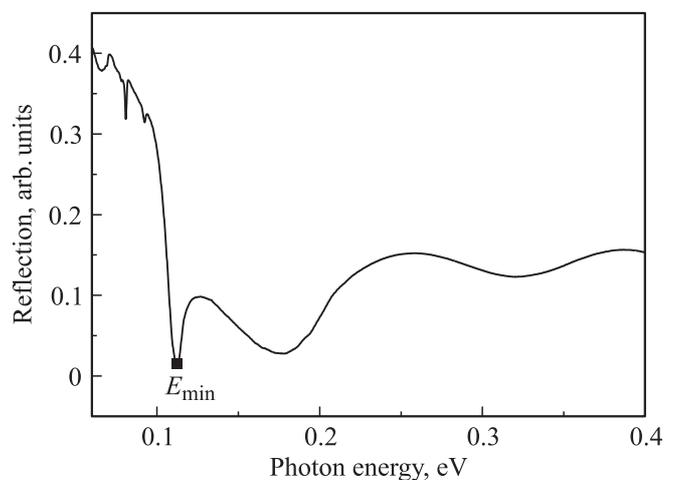
Рентгеноструктурный анализ полученных слоев InN показал, что наименьшие полуширины отражений в направлении (0004) и (10–12) отражений наблюдались в образцах с III/V  $\sim 0.6$  и составляли  $\sim 820''$  для отражения (0004) и  $\sim 1470''$  для отражения (10–12). Из данных по полуширинам кривых качания рассчитывались значения плотности винтовых и краевых прорастающих дислокаций по модели из работы [14]. Было обнаружено, что при переходе от трехмерного роста к двумерному происходит увеличение плотности прорастающих дислокаций (рис. 2). Данный факт связывается с дополнительной генерацией дислокаций на межзеренной границе при срастании отдельно стоящих наноклонн друг с другом. Следует отметить, что параметры буферного слоя GaN

были практически идентичны для всех образцов и не могли привести к различиям параметров слоев InN.

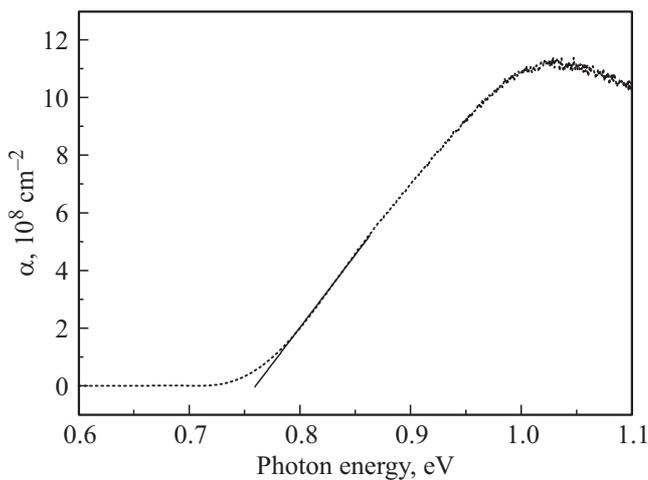
Независимо от морфологии поверхности все исследуемые слои InN демонстрировали сигнал фотолюминесценции при комнатной температуре (рис. 3). Интенсивность этого сигнала падает с увеличением отношения потоков III/V, что связывается с увеличением плотности дислокаций при увеличении этого соотношения (рис. 2). Максимум сигнала ФЛ в исследуемых слоях InN сдвинут в область коротких длин волн 1.73–1.8 мкм по сравнению с литературными данными о ширине запрещенной зоны InN ( $\sim 1.93$  мкм) [1]. Этот сдвиг, по-видимому, обусловлен большой концентрацией электронов в выращенных слоях InN. Для определения этой концен-



**Рис. 3.** Спектры ФЛ, измеренные при комнатной температуре, образцов с InN-слоями, выращенными при соотношениях потоков III/V  $\sim 1.1$  (1),  $\sim 0.9$  (2) и  $\sim 0.6$  (3). Накачка осуществлялась с помощью Nd:YAG-лазера с длиной волны 532 нм и плотностью мощности  $0.85$  Вт/см<sup>2</sup>.



**Рис. 4.** Спектр отражения от структуры с InN-слоем, выращенным при соотношении потоков III/V  $\sim 0.9$ . На спектре указан минимум, соответствующий поглощению света на частоте плазменных колебаний свободных носителей заряда.



**Рис. 5.** Зависимость квадрата коэффициента поглощения ( $\alpha$ ) в структуре с слоем InN, выращенным при соотношении III/V  $\sim 0.9$ , от энергии кванта. Жирная линия — линейная аппроксимация для определения края поглощения.

трации были проведены исследования спектров отражения структур с InN слоями (рис. 4). Минимум около 100 мэВ в спектре отражения на рис. 4 определяется частотой плазменных колебаний свободных носителей, поскольку характерные энергии фононов в InN меньше, чем 75 мэВ, и их вклад можно исключить [15]. Концентрация электронов определялась по известной формуле связи частоты плазменных колебаний с концентрацией носителей заряда  $E_{\min} = \hbar \sqrt{\frac{4\pi e^2 n}{m^*(\epsilon_\infty - 1)}}$  [16], где  $\epsilon_\infty$  — высокочастотная диэлектрическая проницаемость InN, равная 8.4 [17], и  $m^*$  — эффективная масса электрона в InN, равная 0.07 от массы свободного электрона [16]. Определенная этим методом концентрация электронов в разных образцах составила  $4\text{--}6 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ . Это значение не коррелировало с соотношением потоков III/V и, скорее всего, определялось методом и условиями роста.

Полученные образцы также исследовались методом спектроскопии пропускания света (рис. 5). Для этого слой титана, напыленный на тыльную сторону *c*-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> подложек, стравливался в растворе плавиковой кислоты. Истечение энергии края поглощения InN определялось по линейной аппроксимации зависимости квадрата поглощения от энергии фотона (рис. 5) и оно составило  $\sim 0.75$  эВ ( $\sim 1.65$  мкм). Эта величина была примерно одинакова для структур с разным соотношением потоков III/V, что связывается с близкой концентрацией электронов в разных слоях InN. Из этих данных была определена концентрация электронов в образцах, равная  $\sim 7.6 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ . Здесь использовалась калибровочная зависимость, построенная по экспериментальным данным в работы [18]. Значения концентрации свободных носителей, определенные различными методами, согласуются в пределах погрешности измерения и вместе с данными люминесценции характеризуют выращенные слои *n*-InN как вырожденный полупроводник.

#### 4. Заключение

В работе представлены результаты исследований влияния соотношения потоков индия и азота на структурные и оптические свойства слоев InN, выращенных методом МПЭ ПА. Было показано, что при соотношении потоков III/V  $< 0.6$  слой InN обладает наноклончатой структурой. При повышении соотношения III/V до 0.6 наноклонны начинают срастаться при толщине InN слоя  $\sim 400$  нм. В случае повышения соотношения III/V до 0.9 рост InN становится двумерным, однако слой InN обладает нанопористой структурой. При переходе к металлобогатым условиям роста (III/V  $\sim 1.1$ ) слой InN растет сплошным, без нанопор. Переход от трехмерного к двумерному росту сопровождается увеличением плотности прорастающих дислокаций в слоях InN. Это приводит к снижению интенсивности сигнала фотолюминесценции от InN при комнатной температуре. Концентрация электронов в полученных слоях InN слабо зависела от соотношения потоков и составила  $\sim 5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ , что приводит к сдвигу максимума сигнала ФЛ от InN в область длин волн 1.73–1.8 мкм и сдвигу края поглощения в область  $\sim 1.65$  мкм.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 15-42-02497) и программ РАН.

#### Список литературы

- [1] A.A. Klochikhin, V.Y. Davydov, V.V. Emtsev, A.V. Sakharov, V.A. Kapitonov, B.A. Andreev, Hai Lu, W.J. Schaff. *Phys. Rev. B*, **71**, 195 207 (2005).
- [2] N. Miller, E.E. Haller, G. Koblmüller, C. Gallinat, J.S. Speck, W.J. Schaff, M.E. Hawkrigde, Kin Man Yu, J.W. Ager. *Phys. Rev. B*, **84**, 075 315 (2011).
- [3] M. Higashiwaki, T. Matsui. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41**, L540 (2002).
- [4] С.С. Хлудков, И.А. Прудаев, О.П. Толбанов. *Изв. вузов: Физика*, **56** (9), 23 (2013).
- [5] X. Wang, S. Liu, N. Ma, Li Feng, G. Chen, F. Xu, N. Tang, S. Huang, K.J. Chen, S. Zhou, Bo Shen. *Appl. Phys. Express*, **5** (1), 015 502 (2012).
- [6] C.S. Gallinat, G. Koblmüller, J.S. Brown, J.S. Speck. *J. Appl. Phys.*, **102**, 064 907 (2007).
- [7] R. Intartaglia, B. Maleyre, S. Ruffenach, O. Briot, T. Taliercio, B. Gil. *Appl. Phys. Lett.*, **86**, 142 104 (2005).
- [8] X. Wang, S.-B. Che, Y. Ishitani, A. Yoshikawa. *J. Appl. Phys.*, **99**, 073 512 (2006).
- [9] Y. Nanishi, Y. Saito, T. Yamaguchi. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, 2549 (2003).
- [10] J. Neugebauer, T.K. Zywiec, M. Scheffler, J. E. Northrup, H. Chen, R. M. Feenstra. *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 056 101 (2003).
- [11] G. Koblmüller, R. Averbeck, L. Geelhaar, H. Riechert, W. Hosler, P. Pongratz. *J. Appl. Phys.*, **93**, 9591 (2003).
- [12] H. Xiao, X. Wang, J. Wang, N. Zhang, H. Liu, Y. Zeng, J. Li, Z. Wang. *J. Cryst. Growth*, **276**, 401 (2005).
- [13] Y.F. Ng, Y.G. Cao, M.H. Xie, X.L. Wang, S.Y. Tong. *Appl. Phys. Lett.*, **81** (21), 3960 (2002).
- [14] M.A. Moram, M.E. Vickers. *Rep. Prog. Phys.*, **72**, 036 502 (2009).

- [15] P. Rinke, M. Winkelkemper, A. Qteish, D. Bimberg, J. Neugebauer, M. Scheffler. *Phys. Rev. B*, **77**, 075 202 (2008).
- [16] Ю.И. Уханов. *Оптические свойства полупроводников* (М., Наука, 1977) с. 244.
- [17] T.L. Tansley. In: *Properties of Group III Nitrides*, ed. by J.H. Edgar (London, INSPEC, 1994) p. 39.
- [18] J. Wu, W. Walukiewicz, S.X. Li, R. Armitage, J.C. Ho, E.R. Weber, E.E. Haller, H. Lu, W.J. Schaff, A. Barcz, R. Jakiela. *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 2805 (2004).

Редактор А.Н. Смирнов

## Features of InN growth by plasma-assisted MBE at different ratio of III to V group element flows

*D.N. Lobanov*<sup>\*+</sup>, *A.V. Novikov*<sup>\*+</sup>, *B.A. Andreev*<sup>\*+</sup>,  
*P.A. Bushuykin*<sup>\*</sup>, *P.A. Yunin*<sup>\*</sup>, *E.V. Skorohodov*<sup>\*</sup>,  
*L.V. Krasilnikova*<sup>\*+</sup>

\* Institute for Physics of Microstructures  
Russian Academy of Sciences,  
603087 Nizhni Novgorod, Russia  
+ Lobachevsky state university of Nizhni Novgorod,  
603950 Nizhny Novgorod, Russia

**Abstract** The results of study of III to V group element flows ratio on the structural and optical properties of InN film grown by MBE PA have been performed in this work. It has been shown that InN film consists of free standing nanocolumns at flow ratio  $III/V < 0.6$ . InN growth becomes 2D at ratios  $0.6 < III/V < 0.9$  but has a nanoporous structure. InN film becomes solid at metal rich growth conditions ( $III/V \sim 1.1$ ). The transition from 3D to 2D growth leads to the increase of threading dislocation density. It results in the decrease of photoluminescence intensity of InN at room temperature. The electron density in the InN films equals to  $\sim 5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  that leads to the shift of photoluminescence signal maximum to the wavelength region of  $1.73\text{--}1.8 \mu\text{m}$  and to the shift of absorption edge to the wavelength region of  $\sim 1.65 \mu\text{m}$ .