

05:06

Контроль упругих напряжений в гетероструктурах III-N методом дифракции отраженных быстрых электронов в процессе молекулярно-пучковой эпитаксии

© Д.В. Нечаев, В.Н. Жмерик, А.М. Мизеров,
П.С. Копьев, С.В. Иванов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург
E-mail: nechayev@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 12 января 2012 г.

Приводятся результаты статистического анализа картин дифракции отраженных быстрых электронов (ДОБЭ) для определения значений латеральной постоянной решетки (a) слоев в гетероструктурах (ГС) широкозонных соединений (Al, Ga, In)N в процессе их роста методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Определено, что погрешность метода изменяется от минимального значения 0.17% до нескольких процентов в зависимости от контрастности изображений ДОБЭ, которая определяется стехиометрическими условиями роста. Демонстрируются возможности регистрации релаксации упругих напряжений при росте короткопериодных сверхрешеточных структур $\{\text{GaN}(4 \text{ nm})/\text{AlN}(6 \text{ nm})\}_{30}/\text{AlN}$.

Гетероструктуры (ГС) на основе широкозонных нитридов третьей группы (III-N) служат основой массового производства различных опто-электронных приборов и СВЧ-транзисторов [1]. Однако в приборных ГС практически всегда возникают упругие напряжения вследствие коммерческой недоступности гомоэпитаксиальных подложек и значительного рассогласования параметров кристаллической решетки слоев различного состава (в пределе более 10%). Упругие напряжения различного знака существенно влияют как на кинетику эпитаксиального роста, так и на энергетические зонные диаграммы материалов и приборных ГС [2,3]. Кроме того, релаксация этих напряжений может происходить посредством образования различных протяженных дефектов (прораста-

ющих дислокаций с плотностью до $\sim 10^{10} \text{ см}^{-2}$ и др.) и/или за счет изменения морфологии растущих слоев, что существенно влияет на характеристики приборов.

Упругие напряжения в ГС на основе III-N наиболее часто исследуются с помощью рентгенодифракционного анализа и лазерной рефлектометрии (ЛР). В первом случае степень релаксации напряжений в ГС определяется с помощью динамической теории рассеяния рентгеновских лучей деформированными кристаллами [4] или посредством более простых измерений радиуса кривизны подложки, который через соотношение Стони (Stoney) связан с произведением величины упругих напряжения на толщину слоя [5,6]. Эти измерения проводятся, как правило, после полного цикла эпитаксиального роста и охлаждения образца, что затрудняет контроль роста и интерпретацию результатов. Поэтому для определения напряжений в растущем слое используются *in situ* измерения кривизны подложки с помощью ЛР [7,8].

В молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) широко применяется анализ картин дифракции отраженных быстрых электронов (ДОБЭ). С помощью построения Эвальда, определяющего в пространстве обратной решетки направления дополнительных отражений ($\pm 0i$, $i = 1, 2, \dots$) к зеркальному рефлексу (00) в направлении $\langle 11\bar{2}0 \rangle$, можно количественно оценивать и контролировать релаксацию упругих напряжений в ГС.

Хотя цифровая обработка сигнала ДОБЭ впервые была продемонстрирована в 1991 г. [9], в настоящее время относительно немногие группы (В. Daudin et al. [10]) успешно используют ДОБЭ для анализа деформаций в ГС на основе соединений III-N, что, по-видимому, связано с методологическими проблемами.

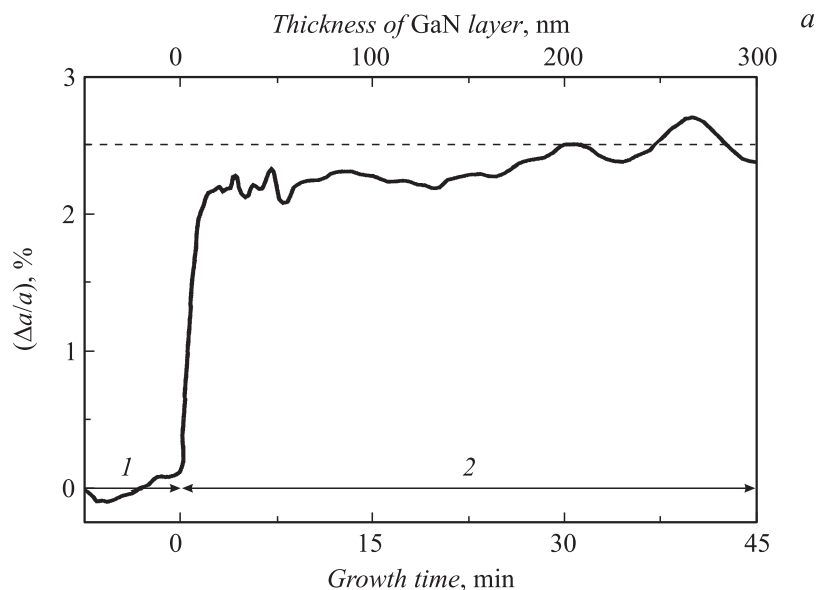
В данной статье сообщается о разработке метода статистической обработки картин ДОБЭ и демонстрируются результаты его применения для количественного контроля текущих значений постоянной кристаллической решетки слоев ГС на основе различных бинарных и тройных соединений III-N в процессе их роста методом МПЭ.

Образцы выращивались с помощью МПЭ с плазменной активацией азота на подложках $c\text{-Al}_2\text{O}_3$ [2,11]. Исследовался рост ГС на основе бинарных слоев InN/GaN, GaN/AlN и AlN/GaN ($\sim 1 \mu\text{m}/2 \mu\text{m}$) с различной поверхностной морфологией, а также рост короткопериодной сверхрешетки (КПСР) $\{\text{GaN}(4 \text{ nm})/\text{AlN}(6 \text{ nm})\}_{30}$ на буферном слое AlN толщиной $\sim 700 \text{ nm}$.

Во время роста использовались системы ЛР на основе полупроводникового лазера с длиной волны излучения $\lambda = 532 \text{ nm}$ и ДОБЭ (RH 30, STAIB Instruments) с энергией $E = 30 \text{ keV}$. Сфокусированный электронный пучок на флуоресцентном экране имел диаметр 2.7 mm . Первая методика позволяла измерять скорости роста слоев, а с помощью второй количественно определялись текущие значения его латеральной постоянной решетки. Система ДОБЭ была дооборудована цветной ПЗС-камерой с разрешением матрицы 3.2 MPixel и чувствительностью 0.8 lx (ЭВС VEC 335), находящейся на расстоянии 30 mm от экрана. Видеоизображения картин ДОБЭ регистрировались с частотой 1 Hz и обрабатывались с помощью разработанной нами программы MeaDOR (v.1.0).

Анализ картин ДОБЭ проводился в несколько этапов: 1) определение областей анализа рефлексов, 2) шумоподавление, 3) статистическая обработка изображений с целью определения межрефлексных расстояний, 4) вычисление текущих значений a -постоянной решетки растущего слоя и степени релаксации упругих напряжений. Для достижения необходимой точности измерений каждое распределение интенсивности рефлексов ДОБЭ $F(x)$ представлялось в форме функции Гаусса $F(x) = A_1 + A_2 \exp\{(x - A_4)^2 / (2A_3^2)\}$, для которой коэффициенты A_i ($i = 1 \div 4$) находились согласно итерационному алгоритму Левенберга–Марквардта с количеством итераций более десяти [12]. Для определения в каждый момент времени (t) усредненных положений рефлексов ДОБЭ и расстояния между ними ($L(t)$) внутри каждой из областей анализа описанным выше способом обрабатывалось несколько сотен сечений рефлексов картины ДОБЭ. Текущие значения рассогласования постоянных решеток в слоях ($\Delta a(t)/a(t)$) определялись из межрефлексных расстояний картин ДОБЭ буферного (нижележащего) слоя (L_0) и анализируемого слоя ($L(t)$): $\Delta a(t)/a(t) = (a(t) - a_0)/a_0 = (L_0 - L(t))/L(t)$ с учетом того, что $a_0 \sim 1/L_0$ и $a(t) \sim 1/L(t)$.

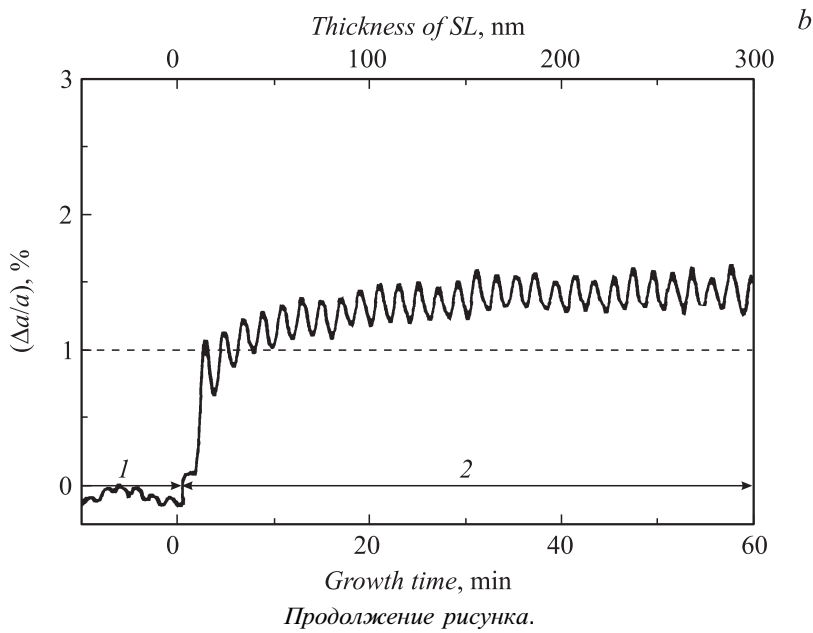
Первоначальное тестирование разработанного метода проводилось в процессе роста ГС на основе бинарных соединений с максимальной степенью рассогласования (InN/GaN, $\Delta a/a \sim 11\%$ [1]). Для этой системы было обнаружено практически мгновенное изменение постоянной решетки, что свидетельствует о полной релаксации упругих напряжений с критической толщиной менее 1 монослоя [13]. Анализ изменений линейчатых картин ДОБЭ во время двумерного (2D) роста менее



Графики изменения латеральной постоянной решетки во время роста различных ГС: *a* — рост на буферном слое AlN с толщиной $3\ \mu\text{m}$ (интервал времени *1* соответствует росту последних 50 nm этого слоя) эпитаксиального слоя GaN (интервал *2*) с кристаллическим несогласованием, показанным пунктирной линией; *b* — рост на буферном слое AlN с толщиной $0.65\ \mu\text{m}$ (интервал времени *1* соответствует росту последних 50 nm этого слоя) КПСР $\{\text{GaN}(4\ \text{nm})/\text{AlN}(6\ \text{nm})\}_{30}$. Пунктирная линия соответствует кристаллическому несогласованию в ГС $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}/\text{AlN}$.

рассогласованных гетероструктур GaN/AlN, AlN/GaN с $\Delta a/a \sim |2.5\%|$ подтвердил генерацию сжимающих и растягивающих напряжений соответственно.

Рисунок, *a* демонстрирует сложный характер релаксации латеральной постоянной решетки в процессе роста ГС GaN/AlN. Скорость релаксации максимальна в течение роста первых 10–20 nm слоя, когда происходит релаксация $\sim 90\%$ напряжения. Затем этот процесс замедляется, и релаксация оставшегося напряжения происходит на толщине до нескольких сотен нанометров в зависимости от условий



роста. Небольшое отличие наших результатов от данных аналогичной работы [10], по-видимому, связано с различной морфологией поверхности слоев ГС, которая влияет на погрешность измерений.

В частности, в наших экспериментах наименьшая среднеквадратическая погрешность 0.17% наблюдалась при статистической обработке 200 изображений линейчатой картины ДОбЭ в случае 2D-механизма роста слоев GaN и AlN. Погрешность измерений возрастала до нескольких процентов при недостаточной контрастности картин ДОбЭ, наблюдавшейся при соотношении $F_{III}/F_N > 1$, в котором F_{III} и F_N — потоки атомов металлов третьей группы и активированного азота соответственно. Следует также отметить наблюдавшееся изменение постоянной решетки слоя $\Delta a/a \approx 1-3\%$ (т.е. релаксацию сжимающих напряжений) во время переходов от линейчатой картины ДОбЭ, реализующейся при условии $F_{III}/F_N > 1$, к точечной при соотношении $F_{III}/F_N < 1$. В качестве причин такого изменения можно предположить резкий сброс

остаточных напряжений при развитии морфологии поверхности слоев III-N с межзеренными границами [14].

Рисунок, *b* демонстрирует релаксацию упругих напряжений в процессе роста КПСР $\{\text{GaN}(4\text{ nm})/\text{AlN}(6\text{ nm})\}_{30}$ на объемном слое AlN. Из него следует, что практически полная релаксация напряжений в КПСР наблюдается во время роста первых двух-трех периодов, в течение которых рассогласование достигает $\Delta a/a = 1\%$, что соответствует расчетному значению для ГС $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}/\text{AlN}$. Дальнейшее повышение рассогласования на 0.4–0.5%, вероятно, вызвано неполной релаксацией в буферном слое AlN и отчасти погрешностью измерений.

Таким образом, продемонстрирована эффективность разработанного алгоритма анализа картин ДЮБЭ для *in situ* измерений релаксации упругих напряжений в ГС системы (Al, In, Ga)N с минимальным значением погрешности 0.17%, что позволяет проводить детальные исследования этих процессов. В частности, продемонстрирована быстрая релаксация напряжений на толщине $\leq 10\text{ nm}$ в ГС бинарных соединений и сверхрешеточной структуре $\{\text{GaN}(4\text{ nm})/\text{AlN}(6\text{ nm})\}_{30}$, выращиваемых на буферном слое AlN. Дальнейшее снижение погрешности метода может быть достигнуто с повышением частоты записи и разрешения видеоизображений.

Список литературы

- [1] Morkos H. // Handbook of Nitride Semiconductors and Devices. 2008. V. 1.
- [2] Mizerov A.M., Jmerik V.N., Yagovkina M.A., Troshkov S.I., Kop'ev P.S., Ivanov S.V. // J. Cryst. Growth. 2011. V. 323. P. 68.
- [3] Ambacher O., Majewski J., Miskys C. et al. // J. Phys. Condens. Matter. 2002. V. 14. P. 3399.
- [4] Takagi S. // J. Phys. Soc. Jpn. 1969. V. 26. P. 1239.
- [5] Stoney G. // Proc. Soc. London. 1909. Ser. A. V. 82. P. 172.
- [6] Zhao Z.B., Hershberger J., Yalisovec S.M., Bilelloc J.C. // Thin Solid Films. 2002. V. 415. P. 21.
- [7] Xiao X., Schleh D. // J. Appl. Phys. 2010. V. 107. P. 013 508.
- [8] Jeremy D. Acord, Ian C. Manning, Xiaojun Weng, David W. Snyder, Joan M. Redwing // Appl. Phys. Lett. 2008. V. 93. P. 111 910.
- [9] Barlett D., Snyder C.W., Orr B.G., Clarke R. // Rev. Sci. Instrum. 1991. V. 62. P. 1263.
- [10] Bellet-Amalric E., Adelman C., Sarigiannidou E., Rouviere J.L., Feuillet G., Monroy E., Daudin B. // J. Appl. Phys. 2004. V. 95. N 3. P. 1127.

- [11] Жмерик В.Н., Мизеров А.М., Шубина Т.В., Листошин С.Б., Иванов С.В. // Письма в ЖТФ. 2007. Т. 5. В. 8. С. 36.
- [12] Гилл Ф., Мюррей У., Райт М. Практическая оптимизация / Пер. с англ. М.: Мир, 1985. 509 с.
- [13] Yoshikawa A., Hashimoto N., Kikukawa N., Che S.B., Ishitani Y. // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 86. P. 153 115.
- [14] Sheldon B.W., Rajamani A., Bhandari A., Chason E., Hong S.K., Beresford R. // J. Appl. Phys. 2005. V. 98. P. 043 509.