

Микроструктура объемного GaN, выращенного на сапфировых подложках с аморфным буфером

© В.В. Бельков, Ю.В. Жиляев, Г.Н. Мосина, С.Д. Раевский, Л.М. Сорокин, М.П. Щеглов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: zhilyaev@jyuv.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 24 января 2000 г.)

Структура объемных слоев GaN, выращенных методом газофазной эпитаксии на сапфировых (0001) подложках, была изучена посредством рентгеновской дифрактометрии и трансмиссионной электронной микроскопии. Обнаружено, что эти слои содержат прорастающие и винтовые дислокации. По мере удаления от интерфейса плотность дислокаций уменьшается. Выяснено влияние аморфного буферного слоя на формирование начального слоя GaN и в конечном результате на совершенство слоев нитрида галлия. Предлагается модель формирования прорастающих дислокаций и механизм релаксации напряжений несоответствия.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 97-02-18088).

Нитрид галлия — важный широкозонный полупроводниковый материал, нашедший широкое применение в оптоэлектронике в коротковолновом диапазоне. Известно, что эффективность и надежность излучающих приборов на основе GaN зависят от типа и плотности дефектов, присутствующих в материале.

В настоящее время имеется много публикаций [1–4], в которых сообщается о получении слоев GaN толщиной от 0.5 до 5 μm различными методами (MOCVD, MBE, CVP) на сапфировых и SiC подложках. Структурное совершенство таких слоев изучалось различными дифракционными методами (X-ray, трансмиссионной электронной микроскопии (TEM), HREM, LACBED). В исследованных образцах обнаружена большая плотность дислокаций, дислокационных границ и дефектов упаковки [5–7]. Применение метода газофазной эпитаксии сделало возможным выращивание "объемных", толщиной более 100 μm , GaN слоев [8–11], которые могут быть использованы как подложки для гомоэпитаксии. TEM исследования микроструктуры такого материала представлены в [10,11]. В работе [10] сообщается о дефектном слое вблизи (на расстоянии до 3 μm) интерфейса GaN/SiC. Дефекты в GaN, осажденном на сапфировой подложке с предварительно нанесенным на нее слоем оксида цинка, описаны в [11].

В настоящей работе предлагаются результаты исследования слоев GaN, выращенных на (0001) сапфировых подложках методом газофазной эпитаксии с низкотемпературным аморфным GaN буферным слоем (отметим, что полученные таким образом слои нитрида галлия легко отделяются от подложки [12]). Рассматриваются механизмы формирования кристаллических дефектов пленок нитрида галлия.

1. Образцы и методика исследований

Слой нитрида галлия толщиной от 100 до 800 μm изучались методом рентгеновской двухкристалльной дифрактометрии (XRD) и трансмиссионной электронной микроскопии, включающей в себя различную дифракци-

онную технику: стандартную электронную дифракцию, деформационное контрастное изображение линейных и плоских дефектов, а также анализ дислокаций, основанный на критерии невидимости.

Для TEM исследований были приготовлены как планарные (0001) GaN, так и поперечные (10 $\bar{1}$ 0) GaN образцы. После механической шлифовки утоньшение образцов до толщины, прозрачной для электронов, выполнялось обычным методом ионного травления в потоке ионов аргона. Планарные образцы для TEM исследований были приготовлены как со стороны интерфейса, так и со стороны поверхности.

2. Результаты

На рис. 1 показана область планарного образца вблизи интерфейса, представляющая собой буферный слой. На дифракционной картине этого слоя (рис. 1, *b*) присутствуют широкие размытые кольца, типичные для аморфного материала. Изображение слоя в начальной стадии роста в период перехода к образованию сплошного слоя из отдельных зародышей приведено на рис. 2, *a*. Частицы имеют как криволинейные контуры, так и кристаллогра-

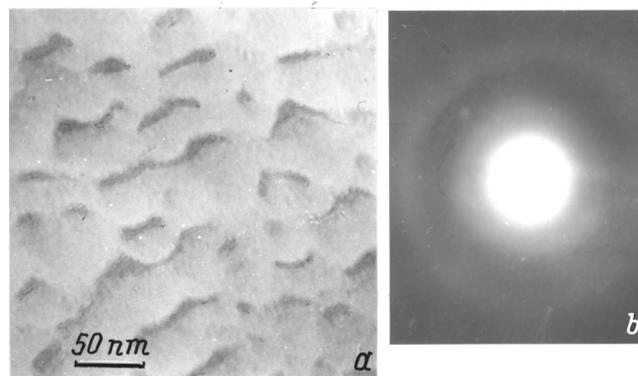


Рис. 1. Планарное TEM изображение аморфного буфера (*a*); дифракционная картина с аморфного буфера (*b*).

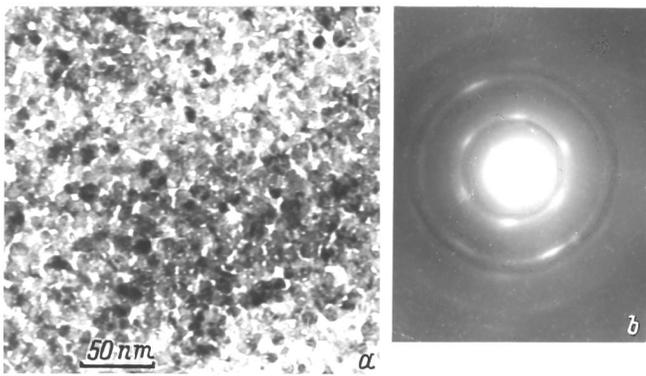


Рис. 2. Планарное ТЕМ изображение слоя GaN вблизи интерфейса (а); микродифракция со слоя GaN вблизи интерфейса, видна текстура коалесценции (b).

фическую огранку, их размеры — от 10 до 30 нм. На микродифракционной картине этого участка (рис. 2, b) хорошо видна текстура коалесценции, образующаяся при наличии азимутальной ориентировки зародышей, ось текстуры направлена вдоль [0001]. Следует отметить, что образование зародышей происходит уже при росте низкотемпературного буфера. ТЕМ исследование буферного слоя, на котором не производился рост основного слоя нитрида галлия, показало, что в верхней части буфера находятся мелкие частицы размером не более 5 нм, при этом текстуры коалесценции не наблюдается.

Дальнейший рост слоя происходит с образованием дефектов кристаллического строения, обусловленных существенным различием постоянных решеток сапфира и GaN.

ТЕМ изображение поперечного сечения слоя GaN вблизи интерфейса (рис. 3, a) свидетельствует о высокой плотности дислокационных дефектов в нем. Детальный анализ рис. 3, a показывает, что на нем изображено поперечное сечение нескольких зерен, примыкающих друг к другу боковыми гранями. В зернах присутствуют различные дислокации, большинство из которых прорастает от границы слой/подложка. Дислокации условно можно разделить на три вида: D_1 , D_2 и D_3 . Дислокации D_1 располагаются в межзеренных границах параллельно оси роста. Прорастающие дислокации D_2 направлены к поверхности нестрого параллельно оси C . Часто они замыкаются на вертикальных границах зерен. Эти дислокации иногда образуют узкие полупетли, стороны которых находятся в разных плоскостях [13]. В то же время дислокации D_2 являются источниками большого числа дислокаций D_3 , располагающихся параллельно интерфейсу в базисных плоскостях (0001). Наибольшая концентрация дислокаций D_3 наблюдается вблизи интерфейса (рис. 3, b, c и d). Хорошо видно, что дислокации возникают на границе слой/подложка. Часть дислокаций располагается в плоскости границы раздела и может выполнять роль дислокаций несоответствия (D_m).

Слой GaN, удаленный от интерфейса на расстоянии более 100 мкм, имеет заметно меньшую плотность дефектов. В выросших до нескольких десятков микрон зернах содержатся отдельные дислокации, плотность которых может быть оценена как 10^7 см^{-2} . Общая плотность дислокаций в приповерхностном слое нитрида галлия с учетом зернограницных дислокаций порядка 10^9 см^{-2} .

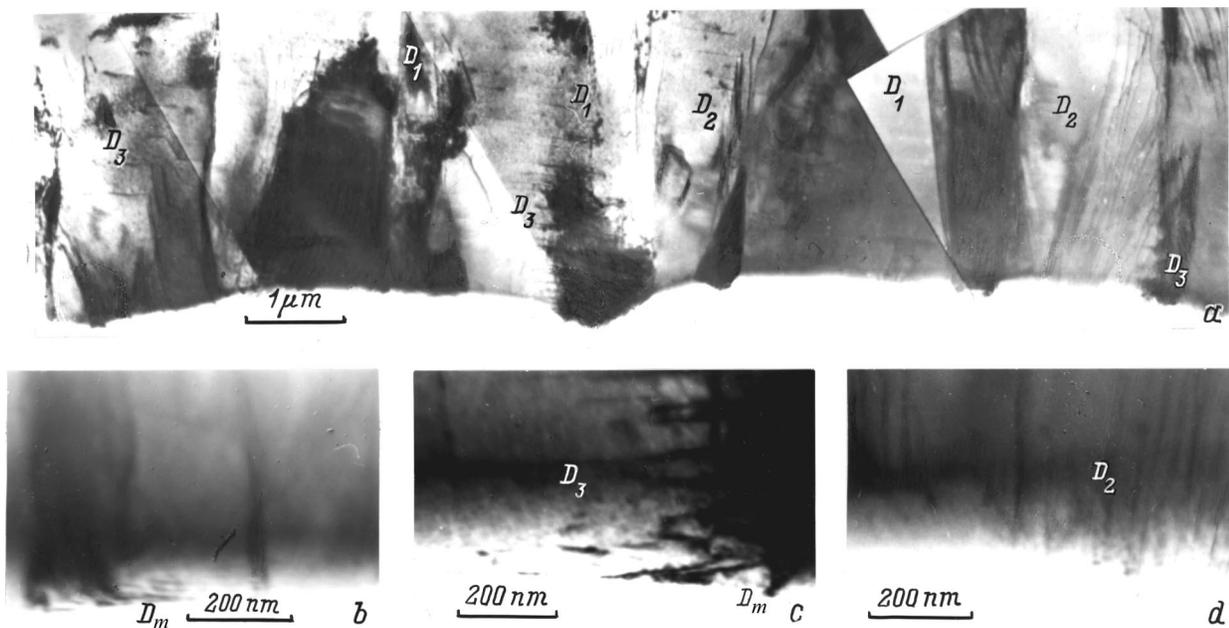


Рис. 3. ТЕМ изображение поперечного сечения слоя GaN вблизи интерфейса: D_1 — прорастающие дислокации в межзеренных границах, D_2 — дислокации, прорастающие от интерфейса внутри зерен, D_3 — дислокации, параллельные интерфейсу в базисной плоскости (0001) (а); b, c и d — участки (отмечены кружками) на границе слой/подложка при большем увеличении.

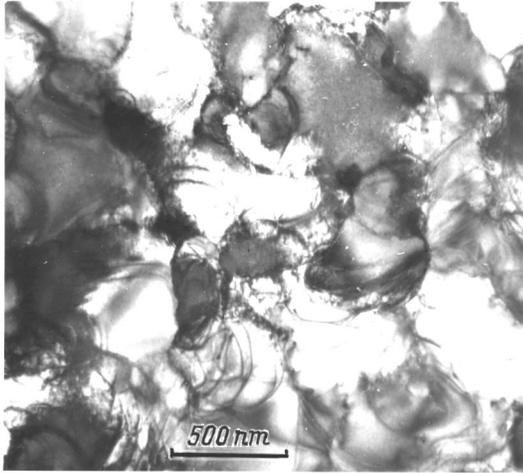


Рис. 4. ТЕМ изображение планарного образца на расстоянии $\sim 1 \mu\text{m}$ от интерфейса. Видны дислокации D_3 .

Для определения векторов Бюргера обнаруженных дислокаций использовался критерий невидимости дислокаций $g \cdot b = 0$ [13], где g — действующее отражение для изображения дислокации с вектором Бюргера b .

Проведенный анализ показал, что дислокации D_1 возникают на интерфейсе в местах соприкосновения островковых зародышей (кристаллитов) и затем прорастают к поверхности пленки параллельно оси роста. Они образуют малоугловые зеренные границы наклона и располагаются в призматических плоскостях $\{10\bar{1}0\}$. Вектор Бюргера этих дислокаций равен $1/3[11\bar{2}0]$ и направлен перпендикулярно линии дислокации, т. е. дислокации имеют чисто краевой характер.

Дислокации D_2 , так же как и дислокации D_1 , образуются на интерфейсе, (рис. 3, *c*). Они располагаются как в призматических $\{10\bar{1}0\}$, так и в пирамидальных $\{10\bar{1}1\}$ плоскостях. Вектора Бюргера этих дислокаций равны $b = [0001]$ и $1/3[11\bar{2}3]$ соответственно. Направление линий большинства дислокаций с $b = [0001]$ параллельно оси C , поэтому они имеют винтовой характер. Дислокации с вектором $b = 1/3[11\bar{2}3]$ также могут иметь винтовую компоненту. Линии этих дислокаций имеют направления $[01\bar{1}2]$ и $[01\bar{1}1]$. Они видны в отражениях $g = 0002$ и не видны в $g = \bar{1}100$.

Дислокации D_3 на планарном изображении области, удаленной от интерфейса на $1 \mu\text{m}$, имеют вид кривых линий (рис. 4). Вектор Бюргера этих дислокаций равен $b = 1/3[11\bar{2}0]$. Криволинейный вид линий дислокаций позволяет говорить об их смешанном характере.

Вектор Бюргера дислокаций D_m , скорее всего, также равен $1/3[11\bar{2}0]$. По мере удаления от границы слой/подложка эти дислокации изгибаются и смещаются в малоугловые зеренные границы.

Описанная структура дислокаций наблюдается и в слоях нитрида галлия, выращенных на кремниевых подложках.

3. Обсуждение результатов

В условиях гетероэпитаксиального роста GaN происходит процесс трехмерного зародышеобразования, приводящий к островковому характеру роста. Зародыши коалесцируют, чтобы сформировать сплошной слой, часто они образуют фасетки на низкоэнергетических плоскостях. В случае вюрцитных кристаллов, каковым является и GaN, это плоскости (0001) и $\{10\bar{1}0\}$. Идеальная форма зародыша — гексагонально-базисная пирамида. При соприкосновении растущих островков между ними образуются дислокационные стенки (дислокации D_1) из малоугловых границ, которые снимают напряжения, появляющиеся в результате их азимутальной разориентации. Границы представляют собой ряды прямолинейных дислокаций краевого типа, расстояние между дислокациями в границах обратно пропорционально углу разориентации. При островковом характере роста дислокации несоответствия будут генерироваться в пределах каждого из островков, которые практически растут независимо друг от друга до момента их слияния при образовании сплошного слоя. Если граница раздела слой/подложка совпадает с плоскостью скольжения, то вероятным механизмом генерации дислокаций несоответствия является скольжение дислокаций с краев "островков" вдоль границы раздела [14]. В гексагональных кристаллах наиболее плотно упакованной является базисная плоскость (0001) , поэтому наиболее легкое скольжение должно происходить по базисной плоскости, однако если скольжение в базисной плоскости затруднено полем напряжения или другими причинами, происходит призматическое в системе $(10\bar{1}0)$ $[\bar{1}2\bar{1}0]$ или пирамидальное в системе $(10\bar{1}1)$ $[\bar{1}2\bar{1}0]$ скольжение дислокаций [15].

В условиях роста процесс релаксации напряжений несоответствия может тормозиться такими факторами, как существование барьера для зарождения дислокаций несоответствия, наличие высоких напряжений Пайерлса, препятствующих скольжению дислокаций, взаимодействие дислокаций между собой и с другими дефектами, затрудняющими перемещение и размножение дислокаций.

Образующиеся на границе раздела слой/подложка дислокации D_m начинают скользить в базисной плоскости (0001) , осуществляя релаксацию сдвиговых напряжений. Но движению и размножению дислокаций в границе раздела, по-видимому, препятствуют вертикальные дислокационные границы, формирующие столбчатую структуру слоя GaN. Поэтому полной релаксации напряжений несоответствия не происходит и в слое появляются остаточные упругие напряжения. Это вызывает упругую деформацию и изгиб эпитаксиального слоя (рис. 3, *a*). Частично упругие напряжения в объеме слоя компенсируются дислокациями D_3 , которые генерируются дислокациями D_2 , располагающимися в призматических и пирамидальных плоскостях.

Таким образом, слои, растущие на аморфном буфере, уже на начальной стадии роста образуют совершенную текстуру коалесценции с осью текстуры вдоль направления [0001] и вблизи поверхности имеют плотность дислокаций порядка 10^9 см^{-2} . Если же буферный слой представляет собой поликристаллическую структуру с размерами кристаллитов до 300 nm, то выросшие на таких слоях пленки значительно дефектнее.

Рентгенодифракционный анализ показал, что полуширины рентгеновских двухкристалльных кривых качания от слоев на аморфном буферном слое составляет 6–8 arcmin, в то время как слои, выросшие на поликристаллическом буфере, имеют кривые качания с полушириной 45–90 arcmin.

Таким образом, в настоящей работе обнаружено, что дислокационная структура объемных слоев GaN во многом определяется формированием начального зародышевого слоя. Выросший на аморфном буфере начальный слой имеет совершенную текстуру. Большинство дислокаций в слое — прорастающие. Дислокации краевого типа образуют малоугловые границы зерен и пересекают слой от интерфейса до поверхности. Их плотность мало изменяется при увеличении толщины слоя и равна 10^9 см^{-2} . Часть прорастающих дислокаций винтового типа в процессе роста изгибается и переходит в границы зерен. Они являются источником дислокаций, располагающихся по базисным плоскостям (0001). Эти дислокации сконцентрированы, главным образом, вблизи границы раздела слой / подложка и очень редко наблюдаются у поверхности. Следовательно, определяющий вклад в дислокационную структуру пленок GaN, выросших на аморфном буферном слое, вносят прорастающие дислокации краевого типа, возникающие при коалесценции островков в начальный период роста.

Список литературы

- [1] T. Sasaki, S. Zembutsu. *J. Appl. Phys.* **61**, 2533 (1987).
- [2] T.W. Weeks, jr., M.D. Bremser, K.S. Ailey, E. Carlson, W.G. Perry, R.F. Davis. *Appl. Phys. Lett.* **67**, 401 (1995).
- [3] X.J. Ning, F.R. Chien, P. Pirouz, Y.W. Yang, M. Asif Khan. *J. Mater. Res.* **11**, 580 (1996).
- [4] R. Molnar, W. Goetz, L.T. Romano, N.M. Johnson. *J. Cryst. Growth* **178**, 147 (1997).
- [5] P. Vermaut, P. Ruternana, G. Nouct, A. Salvador, A. Botchkarev, B. Sverdlov, H. Morkoc. *Inst. Phys. Conf. Ser.* **146**, 289 (1995).
- [6] W. Qian, M. Skowronski, M. De Graef, K. Doverspike, L.B. Rowland, D.K. Gaskill. *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1252 (1995).
- [7] F.A. Ponce. *MRS Bulletin* **23**, 2, 51 (1997).
- [8] G. Jacob, M. Boulon, M. Futado. *J. Cryst. Growth* **42**, 136 (1977).
- [9] T. Detchprohm, K. Hiramatsu, H. Amano, I. Akasaki. *Appl. Phys. Lett.* **61**, 2688 (1992).
- [10] Y.V. Melnik, I.P. Nikitina, A.S. Zubrilov, A.A. Sitnikova, Y.G. Musikhin, V.A. Dmitriev. *Inst. Phys. Conf. Ser.* **142**, 863 (1996).
- [11] L.T. Romano, B.S. Krusor, R.J. Molnar. *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2283 (1997).
- [12] V.V. Bel'kov, V.M. Botnaryuk, L.M. Fedorov, I.I. Diakonov, V.V. Krivolapchuk, M.P. Schrglov, Yu.V. Zhilyaev. In: *Proc. MRS Fall Meeting. Boston, USA (1996)*. V. 449. P. 343.
- [13] P.B. Hirsch, A. Howie, R.B. Nicholson, D.W. Pashley, M.J. Whelan. *Electron Microscopy of Thin Crystal*. Butterworths, London (1965). 599 p.
- [14] J.W. Matthews. In: *Epitaxial Growth. Part B.* / Ed. by J.W. Matthews. Academic Press, N.Y. (1975). P. 560.
- [15] J.P. Hirth, J.L. Dothe. *Theory of Dislocations*. John Wiley & Sons, N.Y. (1970). 574 p.