

# Механизм и кинетика начальных стадий роста пленки GaN

© С.А. Кукушкин, В.Н. Бессолов\*, А.В. Осипов, А.В. Лукьянов\*\*

Институт проблем машиноведения Российской академии наук,  
199178 Санкт-Петербург, Россия

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

\*\* Фонд поддержки науки и образования,  
192007 Санкт-Петербург, Россия

(Поступила в Редакцию 28 мая 2001 г.)

В окончательной редакции 25 октября 2001 г.)

Изложены результаты теоретического анализа процессов роста на стадиях зарождения и оствальдовского созревания островков GaN в интервале температур 480–1000°С на поверхности подложки, покрытой буферным слоем AlN. Показано следующее. (1) При температурах ( $T > 650^\circ\text{C}$ ) рост островков контролируется химической реакцией образования молекул нитрида галлия вдоль контура поверхности островка. Зарождающиеся в этой температурной области островки имеют широкий спектр размеров. (2) При температурах ( $T < 600^\circ\text{C}$ ) рост островков контролируется поверхностной диффузией атомов азота. Зарождающиеся при этой температуре островки имеют практически одинаковые размеры. (3) При температурах 600–650°С происходит постепенное изменение механизма роста островков — от поверхностной диффузии, контролируемой диффузией азота с большой длиной свободного пробега, к процессу, контролируемому диффузией галлия с меньшей длиной свободного пробега. Вычислены значения пересыщения, потока и функции распределения зародышей GaN по размерам при разных температурах подложки. Построены диаграммы, описывающие эволюцию фазового состава островков GaN в зависимости от температуры.

Авторы считают своим приятным долгом поблагодарить Санкт-Петербургский научный центр РАН, Фонд поддержки науки и образования (Санкт-Петербург) и Российский фонд фундаментальных исследований (гранты № 02-0217216 и 02-0332471) за финансовую поддержку работы. Один из авторов (В.Н.Б.) пользовался также поддержкой программы „Поверхностные атомные структуры“ (грант № 5-4-99).

В последние годы основные усилия в электронике на основе GaN направлены, во-первых, на получение качественных эпитаксиальных слоев на инородных подложках (SiC, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, GaAs) [1] и, во-вторых, на создание наноразмерных кристаллов GaN на поликристаллических подложках (SiO<sub>2</sub>, металлы) [2]. Получение знаний о зарождении и росте островковой пленки GaN для обеих технологий является основополагающим направлением. В работе [3] нами были исследованы ранние стадии зарождения пленок GaN, образующихся на поверхности буферных слоев AlN при температурах подложки 480–1000°С. На этой стадии островков еще так мало, что пересыщение  $\xi$  и соответственно критический радиус  $R_{cr}$  островков не изменяются в процессе роста. Затем, когда число зародышей на поверхности подложки становится больше, они начинают поглощать подходящее к подложке вещество, снимая тем самым пересыщение, а  $R_{cr}$  на этой стадии начинает расти. Скорость изменения  $\xi$  определяется механизмом роста отдельных островков. На стадии зарождения формируется распределение островков, зависящее от механизма их роста [4,5]. После стадии зарождения островки при определенных условиях роста могут вступить в стадию оствальдовского созревания, на которой они взаимодействуют друг с другом через обобщенное диффузионное поле адатомов на поверхности [4,5]. На этой стадии формируется универсальное распределение островков по размерам, зависящее от их механизма

роста и поступающего на подложку потока атомов. Знание механизмов роста островков позволяет эффективно управлять как их распределением по размерам, так и их составом [5]. В настоящее время экспериментальное изучение начальных стадий роста GaN при гетероэпитаксии привлекает внимание исследователей [6], однако теоретическое рассмотрение возможных механизмов роста пленки отсутствует.

Исследованию зарождения и роста островков GaN на стадиях зарождения и оствальдовского созревания и посвящена данная работа.

## 1. Механизм и кинетика зарождения островков GaN

Для теоретического описания процесса зарождения GaN необходимо иметь систему уравнений, описывающую эволюцию островков стехиометрических соединений [4]. Для многокомпонентных стехиометрических соединений теоретическое описание представлено лишь для стадии оствальдовского созревания [5], но для однокомпонентных веществ и веществ, образующих непрерывный ряд твердых растворов, теория зарождения разработана [4]. В данной работе авторы обобщили систему уравнений, описывающих зародышеобразование однокомпонентных веществ, на случай образования зародышей многокомпонентного стехиометрического соединения. Опуская промежуточные выкладки, приведем

окончательный вид этой системы

$$\frac{\partial g(i, t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial i} [g(i, t)V_i] = 0, \quad (1)$$

$$\xi(t) = \xi(0)$$

$$+ (\tau^{\text{GaN}})^{-1} \int_0^t [\xi_0 - \xi(t')] dt' - N_{sa}^{-1} \int_0^\infty i g(i, t) dt, \quad (2)$$

где  $\xi(t)$  — пересыщение в момент времени  $t$ ,  $\xi(0)$  — пересыщение к моменту начала массового зарождения,  $\tau^{\text{GaN}} = (\tau_{\text{Ga}}\tau_{\text{N}})/(\tau_{\text{Ga}} + \tau_{\text{N}})$ ,  $\tau_{\text{Ga}}$ ,  $\tau_{\text{N}}$  — время жизни атомов Ga, N на подложке,  $N_{sa} = C_{0\text{Ga}}C_{0\text{N}}N_0$ ,  $C_{0\text{Ga}}$ ,  $C_{0\text{N}}$  — равновесные концентрации Ga и N,  $N_0$  — равновесное число молекул GaN на подложке,  $g(i, t)$  — функция распределения островков по размерам,  $V_i$  — скорость роста островка, состоящего из  $i$  атомов (молекул). Видно, что в отличие от однокомпонентного вещества в случае многокомпонентного соединения некоторые параметры определяются уже свойствами азота и галлия. Методы решения этой системы изложены в [4]; приведем здесь лишь окончательный результат, полученный в случае малых  $\tau$  и при постоянных потоках осаждаемых атомов. Это решение для многокомпонентного соединения имеет вид

$$\xi(t) = \frac{\xi_0}{1 + \frac{1}{\Gamma} T^k(t)\varphi_k(T(t))}, \quad (3)$$

$$I(t) = \frac{I(\xi_0) \exp[-T^k(t)\varphi_k(T(t))]}{1 + \frac{1}{\Gamma} T^k(t)\varphi_k(T(t))}, \quad (4)$$

$$N(t) = I(\xi_0)t_k\varphi_k(T(t)), \quad (5)$$

$$g(\rho, t) = \left\{ \frac{I(\xi_0)t_0}{\xi_0} \exp\left[-\left(T(t) - \frac{t_0\rho}{t_k\xi_0}\right)^k \times \varphi_k\left(T(t) - \frac{t_0\rho}{t_k\xi_0}\right)\right] \right\}, \quad \rho \leq \xi_0 \frac{t_k}{t_0} T(t), \quad (6)$$

$$g(\rho, t) = 0, \quad \rho > \xi_0 \frac{t_k}{t_0} T(t),$$

$$T = \frac{t}{t_k} - \frac{1}{\Gamma} \int_0^T x^k \varphi_k(x) dx, \quad (7)$$

$$t_k = \frac{t_0}{\xi_0} \left[ \frac{\xi_0 N_{sa}}{(k+1)\Gamma I(\xi_0)\tau^{\text{GaN}}} \right]^{1/(k+1)}. \quad (8)$$

где

$$\rho = i^{1/(k+1)}, \quad \xi_0 = \frac{J_{\text{Ga}}J_{\text{N}}\tau_{\text{Ga}}\tau_{\text{N}}}{N_{sa}} - 1,$$

$H$  — работа образования островка,  $\varphi_k$  — вспомогательная функция для всех возможных значений коэффициента  $k$ .  $\Gamma \sim i_c$ ,  $i_c$  — число атомов в критическом зародыше,  $I(t)$  — поток островков новой фазы, образующихся к моменту времени  $t$ ,  $N(t)$  — плотность зародившихся островков к моменту времени  $t$ ,  $\xi(t)$  — пересыщение

к моменту времени  $t$ . Выражения для  $H$ ,  $\Gamma$  можно найти в [4]. Видно, что ряд параметров, входящих в эти уравнения, в случае многокомпонентных соединений имеют иной смысл, чем в случае однокомпонентных веществ. Для нахождения величин, входящих в выражения (3)–(8), нужно найти коэффициент  $k$ , зависящий от механизма роста островков. Этот механизм определяет значение параметра  $k$ , а соответственно и поведение величин  $I(t)$ ,  $N(t)$ ,  $\xi(t)$  и функции распределения  $g(\rho, t)$ . Согласно результатам, полученным в работах [4,5], если  $k = 0$ , островки растут посредством поверхностной диффузии атомов (молекул) в случае, когда длина свободного пробега атомов (молекул) по поверхности  $\lambda_s \gg R$ , где  $R$  — средний радиус основания островка. Если  $k = 1/2$ , островки могут расти как за счет поверхностной диффузии, если  $\lambda_s \ll R$ , так и за счет механизма встраивания атомов (молекул) в островок, т.е. когда химическая реакция на поверхности по контуру островка лимитирует его рост. Случай  $k = 1$  рассматриваться не будет, так как он соответствует, согласно [5], случаю, когда зародыши растут в конвективно перемешиваемых системах. Если  $k = 2$ , островки могут расти либо за счет механизма испарения–конденсации, либо (если есть диффузия в газовой фазе) за счет химической реакции, когда атомы присоединяются по всей боковой поверхности островка. Сделаем прогноз возможных механизмов роста островков при различных температурах подложки. В работе [5] была найдена высота  $h$  островков дискообразной формы, при которой происходит смена механизма массопереноса от диффузии в газовой фазе к диффузии по поверхности. Выражение для этой высоты применительно к GaN имеет вид

$$\bar{h} \approx \frac{B\sqrt{k_B T} \tau_{N,s}}{\omega_N \sqrt{2m_N \pi} N_0} \times \left[ 1 + \frac{\beta_N C_{0\text{N}} \sqrt{m_N} \omega_N \tau_{\text{Ga},s}}{\beta_{\text{Ga}} C_{0\text{Ga}} \sqrt{m_{\text{Ga}}} \omega_{\text{Ga}} \tau_{\text{N},s}} \right] \left[ 1 + \frac{\beta_N C_{0\text{N}}}{\beta_{\text{Ga}} C_{0\text{Ga}}} \right]^{-1}. \quad (9)$$

Здесь  $\beta_{\text{Ga}}$  и  $\beta_{\text{N}}$  — соответственно удельные граничные потоки Ga и N, определяющие скорости присоединения атомов к зародышу,  $\omega_i$  — объем атома  $i$ -го компонента;  $\beta_i = N_{si}\gamma_i \exp(-E_{ai}/k_B T)$ ,  $\gamma_i$  — частота нормальных колебаний  $i$ -го атома на поверхности островков GaN,  $E_{ai}$  — энергия адсорбции  $i$ -го атома с поверхности GaN,  $N_{si}$  — плотность атомов сорта  $i$  на поверхности GaN,  $m_{\text{N}}$  и  $m_{\text{Ga}}$  — соответственно массы атомов Ga и N,  $k_B$  — константа Больцмана. Если средняя высота островков на подложке  $h_e > h$ , островки будут расти посредством испарения–конденсации. В противоположном случае они растут посредством диффузии на поверхности. Наши оценки показали, что при  $T > 480^\circ\text{C}$  рост островков GaN происходит посредством поверхностной диффузии, поскольку оказалось, что  $h_e \ll h$ . Рост островков GaN лимитируется величиной среднего радиуса островка  $R$  [4,5], при которой происходит смена

механизмов роста

$$R = \frac{D_s^0 N_0}{\beta_s^0}, \quad (10)$$

где  $N_0$  — число мест адсорбции на поверхности подложки,  $N_0 \sim 1/B^2$  ( $B$  — параметр решетки подложки)

$$D_s^0 = \left[ \sum_{i=1}^{n^s} \frac{p_i^2 \ln(\lambda_{si}/R)}{D_{ai} C_{0i}} \right]^{-1}. \quad (11)$$

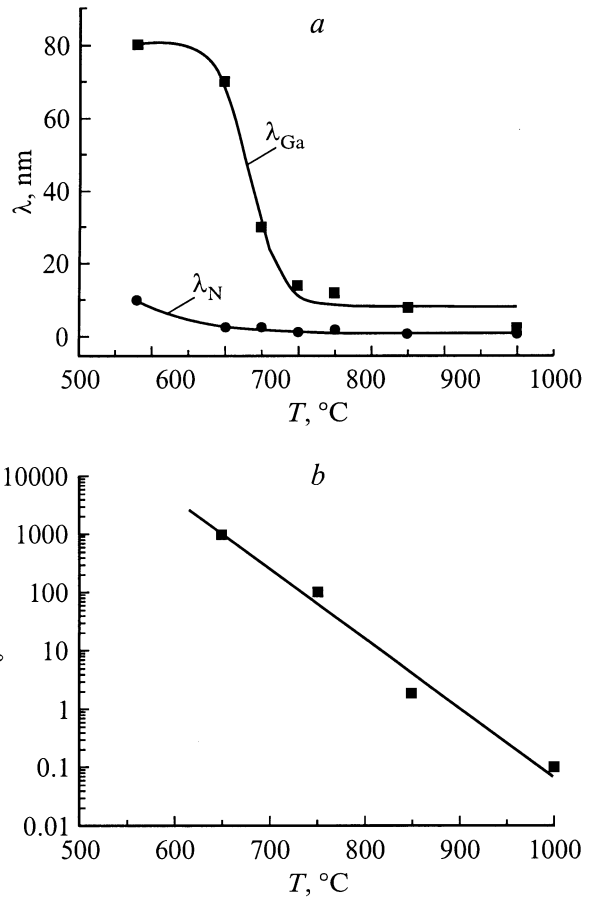
В формуле (11)  $D_s^0$  — обобщенный коэффициент диффузии (для GaN он характеризует скорость движения границы островка),  $C_{0i}$  — равновесная концентрация адатомов вещества островка на подложке,  $p_i$  — приведенные стехиометрические коэффициенты (для GaN  $p_i = 1/2$ ),  $D_{ai}$  — коэффициент диффузии  $i$ -го компонента,  $\lambda_{si}$  — длина свободного пробега атомов по поверхности,

$$\beta_s^0 = \left[ \sum_{i=1}^{n^s} \frac{p_i^2}{\beta_{si} C_{0i}} \right]^{-1}, \quad (12)$$

$p_i$  — приведенные стехиометрические коэффициенты, взятые из [4],  $\beta_s^0$  — обобщенный удельный граничный поток,  $\beta_{si}$  — удельные граничные потоки Ga, N — были определены нами в работе [3]. Отметим, что формула (10) может быть использована для оценок, если только  $\lambda_N \gg R$ ,  $\lambda_{Ga} \gg R$ . В противоположном случае, если  $\lambda_N \ll R$ ,  $\lambda_{Ga} \ll R$ , необходимо, согласно [5], непосредственно сравнивать обобщенный коэффициент диффузии с коэффициентом  $\beta_s^0$  из уравнения (13). Этот коэффициент диффузии для GaN имеет вид

$$D_s^0 = \frac{D_{aGa} D_{aN} C_{0Ga} C_{0N}}{4(D_{aGa} C_{0Ga} \lambda_{0N} + D_{aN} C_{0N} \lambda_{0Ga})}. \quad (13)$$

Если средний радиус островка в экспериментах  $R_e \gg R$ , рост лимитируется диффузией атомов на поверхности; если же  $R_e \ll R$ , рост лимитируется скоростью встраивания атомов азота и галлия вдоль контура островка в его поверхность. Для оценок значений  $R$  определим длины свободного пробега азота  $\lambda_N$  и галлия  $\lambda_{Ga}$  по формуле  $\lambda = (D_{ai} \tau_i)^{1/2}$ . Оказалось, что с ростом температуры подложки значения  $\lambda_N$  и  $\lambda_{Ga}$  сближаются и при  $T > 700^\circ\text{C}$  становятся соизмеримыми (рис. 1, *a*). Как известно [6], при выращивании GaN на поверхности AlN методом MBE диаметр островков при зарождении составлял 15–20 нм. Видно, что длина диффузии атомов N по поверхности GaN во всем интервале температур меньше, чем экспериментально определенный размер островка GaN, а диффузионная длина атома Ga становится меньше только при температурах свыше  $700^\circ\text{C}$ , что должно проявиться в изменении механизма роста нитрида галлия. Действительно, при  $T > 750^\circ\text{C}$  рост GaN будет уже определяться встраиванием как атомов азота, так и атомов галлия в кристаллическую структуру островка; авторы [7] экспериментально наблюдали смену механизма роста от Странско-Крастанова к Франку-ван-дер-Мерве при MBE гетероэпитаксии GaN и температурах свыше  $\sim 800^\circ\text{C}$ .



**Рис. 1.** Зависимости диффузионных длин атомов Ga ( $\lambda_{Ga}$ ) и N ( $\lambda_N$ ) на поверхности подложки (*a*) и характерного времени  $t_0$  присоединения атома к поверхности (*b*) от температуры роста.

Скорость роста островков в форме плоского диска в случае контроля роста встраиванием атомов вдоль контура островка имеет вид [5]

$$\frac{dR}{dt} + \frac{R}{2} \left( \frac{d \ln h}{dt} \right) = \frac{\beta_s^0 v_s^2 \sigma}{k_B T R h} \left( \frac{R}{R_{cr}} - 1 \right), \quad (14)$$

где  $h$  — высота островка,  $R$  — радиус островка,  $R_{cr}$  — критический радиус островка,  $\sigma$  — поверхностное натяжение зародыш–собственный пар,  $v_s$  — объем молекулы химического соединения.

Отметим, что в общем случае на стадии массового зарождения островков и на следующей стадии оствальдовского созревания высота островков не остается постоянной и равной высоте моноатомной ступеньки [5]. В [5] было доказано, что на стадии оствальдовского созревания высота и радиус дискообразных островков меняются во времени подобным образом.

Будем полагать, что высота и радиус островков меняются подобным образом и на стадии зарождения и что  $d \ln h / dt$  изменяется достаточно медленно [8].

Поэтому можно считать, что уравнение

$$\frac{dR}{dt} \sim \frac{\beta_s^0 v_s^2 \sigma}{k_B T R h} \left( \frac{R}{R_{cr}} - 1 \right) \quad (15)$$

с достаточной точностью отражает процесс зарождения.

Перепишывая это уравнение через число частиц в зародышах  $i$ , с учетом того, что  $h \sim R$ , получим

$$V_i = 3\pi^{2/3} v_s^{1/3} \beta_s^0 (\bar{C}_N \bar{C}_{Ga} - C_{0N} C_{0Ga}) i^{1/3}, \quad (16)$$

где  $\bar{C}_N$  и  $\bar{C}_{Ga}$  — соответственно средние концентрации азота и галлия на подложке. Уравнение (17) получено в пренебрежении влиянием поверхностного натяжения и при условии  $R \gg R_{cr}$ , что справедливо на стадии массового зарождения [4].

Перепишем уравнение (16) в виде

$$V_i = 3 \frac{\xi_{GaN}}{t_0} i^{1/3}, \quad (17)$$

$$t_0 = \frac{1}{\pi^{2/3} v_s^{1/3} \beta_s^0}, \quad (18)$$

где  $\xi_{GaN}$  — пересыщение по GaN. Для многокомпонентной системы  $\xi_{GaN}$  можно записать в виде

$$\xi_{GaN} = \frac{\prod_{i=1}^{n^s} \bar{C}_i^{v_i} - K_\infty^s}{K_\infty^s}, \quad (19)$$

где

$$K_\infty^s = \prod_{i=1}^{n^s} \bar{C}_{i0}^{v_i} \quad —$$

константа равновесия химической реакции образования химического соединения состава  $s$ , введенная нами в [3],  $\bar{C}_i$  — средняя концентрация  $i$ -го компонента в многокомпонентной системе на поверхности подложки,  $t_0$  — характерное время роста островка для многокомпонентного соединения.

Расчеты, выполненные для роста островков при температуре подложки  $T = 600^\circ\text{C}$ , показали, что скорость роста зародышей контролируется поверхностной диффузией для случая, когда  $\lambda_i \gg R_i$ . При этом

$$V_i = \frac{\xi_{GaN}}{t_0}, \quad (20)$$

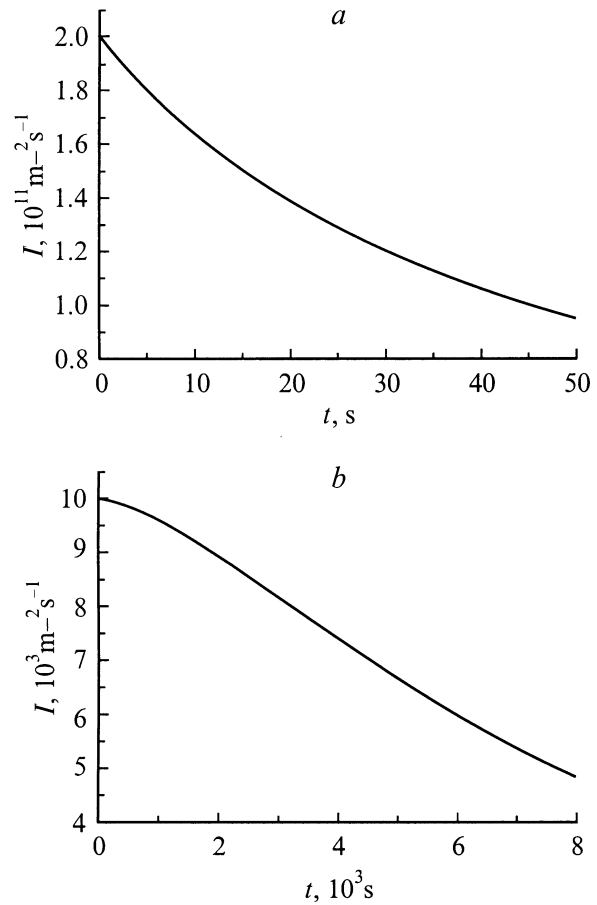
где

$$t_0 = \frac{1}{D_s^0 \pi N_0}. \quad (21)$$

Оценки показывают, что в данном случае  $t_0 \sim 10^5$  s. При температуре подложки  $T = 650^\circ\text{C}$  скорость роста определяется по формуле (18) с  $t_0$ , равным

$$t_0 = \frac{1}{D_s^0 \pi^{2/3} v_s^{1/3} N_0}, \quad (22)$$

где  $D_s^0$  — коэффициент диффузии, определяемый по формуле (13). Оценки показали, что в этом случае  $t_0 \sim 10^6$  s.



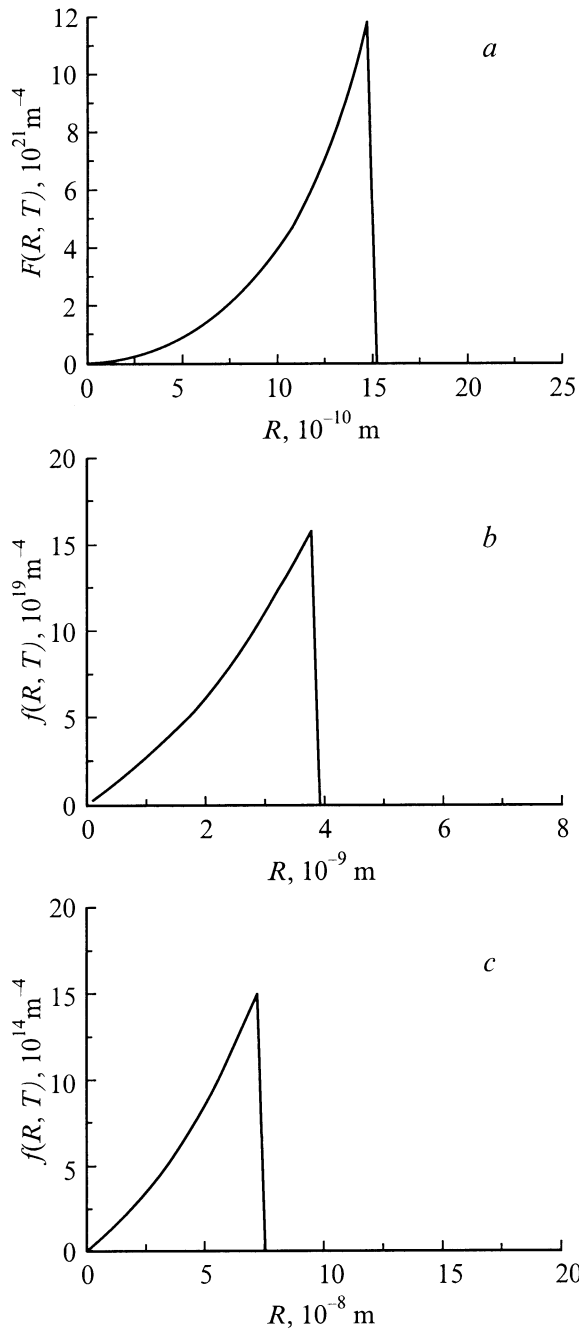
**Рис. 2.** Зависимости изменения потока  $I$  зародышей GaN от времени при двух различных температурах:  $a$  —  $600^\circ\text{C}$ ,  $b$  —  $750^\circ\text{C}$ .

Из (17) и (20) видно, что в случае высоких значений  $\xi$  получаются разумные значения скорости роста зародышей порядка 1–2 монослоя в секунду. При низких значениях пересыщений зародыши не растут, и только при образовании переходного слоя появляется возможность изменить механизм роста зародыша. При этом зародыш будет расти, поскольку характерное время роста  $t_0$  становится меньше. Оценка по (18), (21) и (22) значения  $t_0$  при различных температурах роста показывает, что  $t_0$  существенно уменьшается (рис. 1,  $b$ ).

Теперь построим зависимости изменения потока зародышей  $I(t)$  GaN (рис. 2), функции распределения зародышей GaN по размерам  $f(R, t)$  (рис. 3) и зависимости изменения плотности  $N(t)$  (рис. 4) островков GaN от времени при разных температурах подложки.

Высокое значение пересыщения, рассчитанное для температур  $600$ – $750^\circ\text{C}$  по (19), дает разумные значения потоков зародышей. С другой стороны, количество молекул GaN в критическом зародыше  $i_{GaN}$ , вычисляемое по формуле [4]

$$i_{GaN} = a / \ln^2(\xi + 1), \quad (23)$$



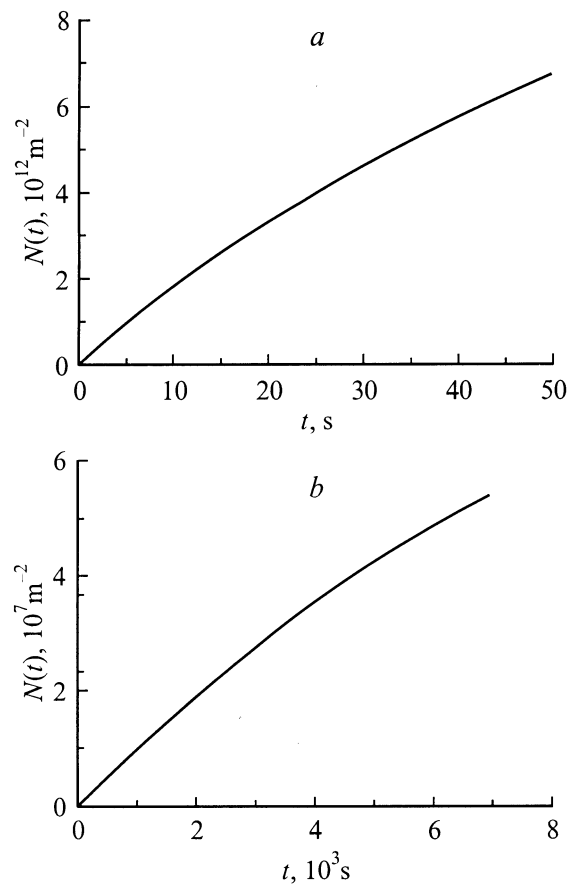
**Рис. 3.** Зависимости функции распределения  $f(R, t)$  зародышей GaN по размерам на стадии зарождения от времени при трех различных температурах:  $a$  — 600,  $b$  — 650,  $c$  — 700°C.

при том же значении пересыщения приводит к очень низкому значению числа молекул. В формуле (23)

$$a = (\sigma_s/k_B T)^2 v_s \pi / h, \quad \sigma_{st} \sim h \sigma,$$

$\sigma_{st}$  — поверхностное натяжение на единицу длины цилиндрического островка. Если пересыщение будет меньше, то мы получаем разумные значения числа молекул в критическом зародыше, но потоки зародышей во всем интервале температур при этом будут

близки к нулю. В многокомпонентных системах, из которых образуются кристаллические зародыши стехиометрического состава, пересыщение физически имеет иной смысл, чем пересыщение в однокомпонентных системах. В однокомпонентных системах пересыщение есть разность между средней концентрацией в паре и равновесной концентрацией пара одного и того же состава (20). В многокомпонентной системе оно определяется как разность между произведением концентрации паров веществ, не являющихся паром того же состава, что и островок, и константой равновесия образования зародыша. В однокомпонентных системах при образовании зародышей новой фазы величина пересыщения, как правило, меньше 1, т. е.  $\xi < 1$ . При больших значениях  $\xi$  система заходит в область метастабильности и начинается спинодальный распад [4]. Высокое значение  $\xi$  при образовании зародышей GaN можно объяснить, введя понятие о переходном слое Ga–N между твердым зародышем GaN и газовой фазой. В результате химической реакции между Ga и N, происходящей на поверхности зародыша, образуется переходной слой Ga–N со свойствами, отличными от свойств твердой фазы GaN. В общем случае этот слой может образоваться и на поверхности подложки, на которой растут зародыши, при



**Рис. 4.** Зависимости изменения плотности  $N(t)$  островков GaN от времени при двух различных температурах:  $a$  — 600,  $b$  — 700°C.

этом величина поверхностного натяжения между GaN и Ga–N должна быть меньше величины обычного поверхностного натяжения GaN, взятого из [9]. Именно свойства слоя Ga–N и определяют скорость роста зародыша. При образовании переходного слоя  $\xi$  становится меньше единицы и величина размера критического зародыша GaN будет иметь разумное значение. Итак, в общем случае величины, используемые в литературе, требуют коррекции с учетом переходного слоя Ga–N. В наших оценках высокое значение  $\xi$  при зародышеобразовании GaN ( $T < 700^\circ\text{C}$ ) фактически занижается наличием переходного слоя Ga–N и дает правильные результаты для величины потока зародышей.

На рис. 2–4 представлены зависимости потока зародышей  $I(t)$ , их плотности  $N(t)$  и функции распределения зародышей по размерам  $f(R, t)$  от времени при различных температурах. Отметим, что при  $T > 700^\circ\text{C}$  происходит возникновение зародышей в широком диапазоне размеров (рис. 3, c), в то время как при  $T < 600^\circ\text{C}$  условия возникновения зародышей одного (10–15 nm) размера предпочтительнее (рис. 3, a). Изменение температуры от  $600$  до  $700^\circ\text{C}$  приводит к существенному спаду потока  $I$  (рис. 2, a, b) и уменьшению плотности зародышей на подложке  $N(t)$  (рис. 4, a, b).

## 2. Оствальдовское созревание в ансамбле островков GaN

Оствальдовское созревание, или, как еще называют эту стадию, переконденсация, является поздней стадией фазового перехода первого рода. При наличии постоянного во времени потока поступающих на подложку атомов при механизме роста с  $k = 1/2$  процесс оствальдовского созревания не может реализоваться. Оствальдовское созревание может быть реализовано, только если внешний источник атомов азота и галлия изменяется со временем по закону  $g_i(t) = g_{0i}nt^{n-1}$ , где  $g_{0i}$  — источник атомов N и Ga в начальный момент времени,  $n$  — показатель убывания источника. Условия, необходимые для протекания этой стадии, подробно изложены в работах [4,5]. Поскольку мы нашли, что  $k = 1/2$ , средний, критический радиусы и высота островков должны изменяться по законам [4,5], описываемым формулами

$$\bar{R}^3(t) = \bar{R}_0^3 + A_3 t, \quad (24)$$

$$\bar{h}^3(t) = \bar{h}_0^3 + A_3 t, \quad (25)$$

где  $\bar{R}_0$  и  $\bar{h}_0$  — соответственно средний радиус и средняя высота в ансамбле островков к моменту начала процесса созревания, а

$$A_3 = \frac{\beta_s^0 \sigma v_s}{2k_B T}, \quad (26)$$

где  $\beta_s^0$  определяется из выражения (12).

Мы показали [3], что помимо островков GaN на поверхности подложки могут присутствовать островки жидкого Ga. Это приведет к тому, что равновесные

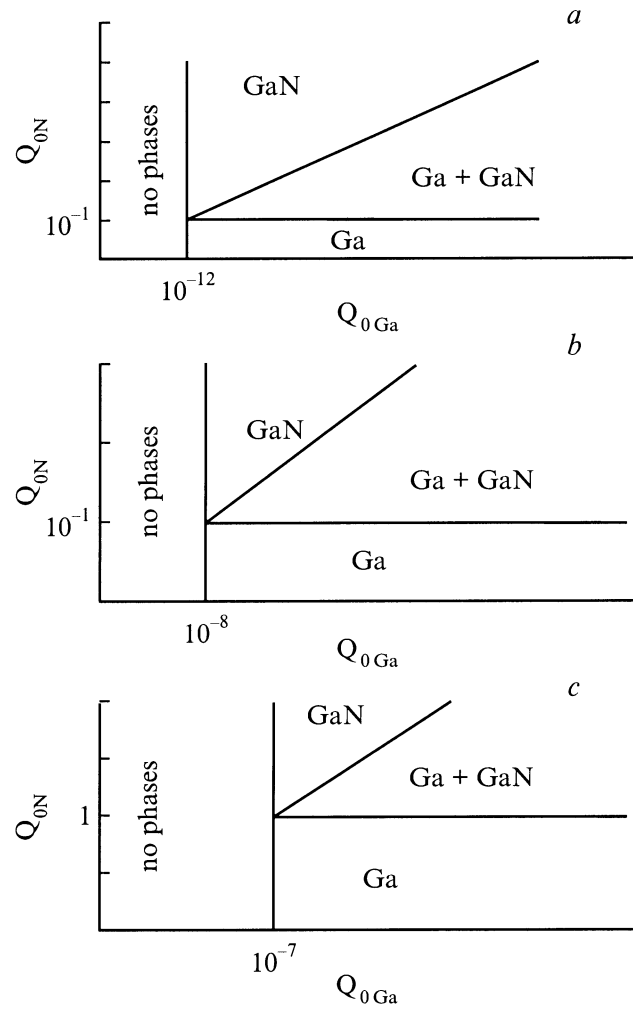


Рис. 5. Фазовые диаграммы состояния островковых пленок GaN при различных температурах  $T$ : a —  $480$ , b —  $850$ , c —  $1000^\circ\text{C}$ .

концентрации  $C_0$ , входящие в  $\beta_s^0$ , будут отличаться от равновесных концентраций, определяемых по данным испарения не взаимодействующих друг с другом веществ. Согласно [5], эти концентрации можно найти из решения следующей системы уравнений:

$$\begin{aligned} Q_{0\text{Ga}} &= C_{0\text{Ga}} + J^{\text{Ga}} + J^{\text{GaN}}, \\ Q_{0\text{N}} &= C_{0\text{N}} + J^{\text{GaN}}, \\ \left(1 - \frac{1}{Q_{0\text{N}}} J^{\text{GaN}}\right) \left(1 - \frac{1}{Q_{0\text{Ga}}} J^{\text{GaN}} - \frac{1}{Q_{0\text{Ga}}} J^{\text{Ga}}\right) &= \frac{K_\infty^s}{Q_{0\text{N}} Q_{0\text{Ga}}}, \\ C_{0\text{Ga}} &= k^{\text{Ga}}, \end{aligned} \quad (27)$$

где  $Q_{0\text{N}}$  и  $Q_{0\text{Ga}}$  — полные начальные относительные количества азота и галлия на подложке и в зародышах новой фазы к моменту начала стадии созревания,  $J^{\text{Ga}}$  и  $J^{\text{GaN}}$  — количество вещества в зародышах жидкого Ga и GaN к моменту окончания стадии созревания,

$K_{\infty}^s$  — константа диссоциации GaN на поверхности подложки,  $k^{\text{Ga}}$  формально заменяет константу химической реакции для однокомпонентных соединений.

Если теперь, следуя методике [5], в системе уравнений (27) положить вначале  $J^{\text{Ga}}$  равным нулю и решить систему (27), то получим линию, разделяющую плоскость фазовой диаграммы в координатах  $Q_{\text{ON}}$  и  $Q_{\text{OGa}}$  на две части. Выше этой линии островки будут присутствовать, ниже — отсутствовать. Для определения области существования GaN следует положить равным нулю  $J^{\text{GaN}}$  и решить систему (27), выражая  $J^{\text{GaN}}$  через  $Q_{\text{ON}}$  и  $Q_{\text{OGa}}$ . При этом, учитывая физически разумные значения корней для  $J^{\text{GaN}}$ , получим

$$J^{\text{GaN}} = \frac{Q_{\text{ON}} + Q_{\text{OGa}}}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{(Q_{\text{ON}} - Q_{\text{OGa}})^2 + 4K_{\infty}^s}. \quad (28)$$

Диаграммы состояния островковых пленок GaN, реализующихся на стадии остальдовского созревания (рис. 5), показывают, что повышение температуры изменяет области существования фаз. Отметим, что диаграмма отражает лишь термодинамическую тенденцию процесса, причем в той области, где присутствуют Ga и GaN одновременно, не обязательно будут существовать жидкие островки чистого Ga, вполне возможно, что Ga будет содержать примеси GaN.

В случае если  $Q_{\text{ON}} = Q_{\text{OGa}}$ , удельный граничный поток  $\beta_s^0$  можно представить в виде

$$\beta_s^0 = \frac{\beta_{s\text{N}}\beta_{s\text{Ga}}K_s^{1/2}}{4(\beta_{s\text{N}} + \beta_{s\text{Ga}})}. \quad (29)$$

Оценим теперь значения константы  $A_3$  для GaN. Если  $Q_{\text{OGa}} = Q_{\text{ON}}$ , при  $T = 650^\circ\text{C}$   $A_3 \sim 10^{-33} \text{ m}^3\text{s}^{-1}$ , при  $T = 850^\circ\text{C}$   $A_3 \sim 10^{-29} \text{ m}^3\text{s}^{-1}$  и, наконец, при  $T = 1000^\circ\text{C}$   $A_3 \sim 10^{-28} \text{ m}^3\text{s}^{-1}$ . Отсюда видно, что скорость роста островков GaN существенно зависит от температуры.

Таким образом, в работе показано, что: 1) при высоких температурах ( $T > 700^\circ\text{C}$ ) рост островков контролируется химической реакцией образования молекул нитрида галлия, и в этом случае происходит возникновение зародышей разных размеров; 2) при низких температурах ( $T < 600^\circ\text{C}$ ) рост островков контролируется поверхностной диффузией атомов азота, и в этом случае зарождающиеся островки имеют практически одинаковые размеры; 3) при температурах  $600\text{--}700^\circ\text{C}$  рост островков происходит по смешанному механизму.

## Список литературы

- [1] S.C. Jain, M. Willander, J. Narayan, R. Van Overstraeten. *J. Appl. Phys.* **87**, 968 (2000).
- [2] M. Hiroki, H. Asahi, H. Tampo, K. Asami, S. Gonda. *J. Cryst. Growth* **209**, 387 (2000).
- [3] С.А. Кукушкин, В.Н. Бессолов, А.В. Осипов, А.В. Лукьянов. *ФТТ* **43**, 2135 (2001).
- [4] С.А. Кукушкин, А.В. Осипов. *УФН* **168**, 1083 (1998).

- [5] С.А. Кукушкин, В.В. Слезов. Дисперсионные системы на поверхности твердых тел. Наука, СПб. (1996). 304 с.
- [6] F. Widmann, B. Daudin, G. Feuillet, Y. Samson, J.L. Rouviere, N. Pelekanov. *J. Appl. Phys.* **83**, 7618 (1998).
- [7] S.W. King, E.P. Carlson, R.J. Therrien, J.A. Christman, R.J. Nemanich, R.F. Davis. *J. Appl. Phys.* **86**, 5584 (1999).
- [8] R.S.Q. Fareed, J.W. Yang, J. Zhang, V. Adivarahan, V. Chaturvedi, M.A. Khan. *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2343 (2000).
- [9] J. Neugebauer, T. Zywiets, M. Scheffer, J. Northrup. *Appl. Surf. Sci.* **159–160**, 355 (2000).