

07

МОС-гидридная эпитаксия III–N светодиодных гетероструктур с малой длительностью технологического процесса

© В.В. Лундин^{1,2}, Д.В. Давыдов^{1,2}, Е.Е. Заварин^{1,2},
М.Г. Попов², А.В. Сахаров^{1,2}, Е.В. Яковлев³,
Д.С. Базаревский³, Р.А. Талалаев³, А.Ф. Цацульников^{1,2},
М.Н. Мизеров², В.М. Устинов¹

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург

² Научно-технологический центр микроэлектроники и субмикронных гетероструктур РАН, Санкт-Петербург

³ ООО „Софт-Импакт“, Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию 12 сентября 2014 г.

Представлены результаты по оптимизации технологии МОС-гидридной эпитаксии III–N светодиодных гетероструктур в установке Dragon-125 с целью ускорения технологического цикла. За счет достижения высокой скорости роста слоев GaN и оптимизации начальной фазы роста GaN полная длительность эпитаксиального процесса уменьшена с 4 h 45 min до 2 h 44 min. Выращенные по разработанной технологии светодиодные структуры не уступают по качеству выращенным по стандартной технологии на коммерчески доступной установке AIX2000HT.

Длительность эпитаксиального процесса является одним из критических параметров при производстве электронных и оптоэлектронных приборов для массовых применений. Для III–N материалов это в первую очередь относится к выращиванию гетероструктур для светодиодов, применяемых в твердотельном освещении. В настоящее время полная длительность эпитаксиального процесса при выращивании III–N светодиодов (от загрузки подложек до разгрузки выращенных гетероструктур) составляет 5–6 h, а в реакторах большой вместимости иногда превышает 7 h [1]. Последние поколения эпитаксиальных систем позволяют достигать высоких скоростей роста GaN как при пониженном [2,3], так и при атмосферном [4] давлении в реакторе.

В то же время, если скорость роста планарного GaN увеличить выше $6\text{--}8\ \mu\text{m/h}$, общая длительность процесса будет в основном определяться длительностью других этапов выращивания приборной структуры. Кроме того, нам не известны публикации, описывающие влияние роста GaN с высокой скоростью на свойства светодиодных гетероструктур.

В данной статье мы сообщаем о возможности существенного сокращения длительности эпитаксиального процесса при выращивании III–N светодиодов синего диапазона со стандартным дизайном без снижения эффективности излучения.

Эпитаксиальные структуры выращивались методом МOC-гидридной эпитаксии в установке Dragon-125 с индукционно-нагреваемым горизонтальным реактором вместимостью три подложки диаметром 2 in или одна подложка диаметром 100 mm. Рост осуществлялся на сапфировых подложках ориентации (0001) из общепринятых соединений-источников (триметилгаллий, триметилиндий, триметилалюминий, триэтилгаллий, аммиак) с использованием стандартного низкотемпературного зародышевого слоя GaN.

Для корректности сравнения результатов данной работы с полученными ранее основные режимы роста отдельных слоев (давление и температура в реакторе, тип несущего газа, мольная доля аммиака в газовой смеси и т.д.) при росте на установке Dragon-125 выбирались равными или максимально близкими к оптимизированным ранее для коммерчески доступной установки AIX2000HT. Аналогично конструкция светодиодных гетероструктур, выращивавшихся в данной работе, полностью совпадала с ранее разработанной нами для установки AIX2000HT [5] и состояла из слоев нелегированного GaN (*u*-GaN) и кремний-легированного GaN (GaN:Si) суммарной толщиной $4.7\ \mu\text{m}$, короткопериодной сверхрешетки InGaN/GaN (35 nm), 2–3 квантовых ям InGaN, разделенных барьерами GaN, блокирующего слоя AlGaN:Mg (15 nm) и слоя GaN:Mg (115 nm). Обе установки были оборудованы системами *in situ* оптической рефлектометрии (EpiCurve TT для AIX2000HT и Burattino для Dragon-125).

Необходимым условием короткого эпитаксиального процесса является возможность выращивания наиболее толстых слоев гетероструктуры (в первую очередь — буферных) с высокой скоростью. В то же время светодиодная структура состоит из большого количества слоев, оптимальные условия роста (температура, давление в реакторе, тип несущего газа) для которых сильно различаются, что приводит

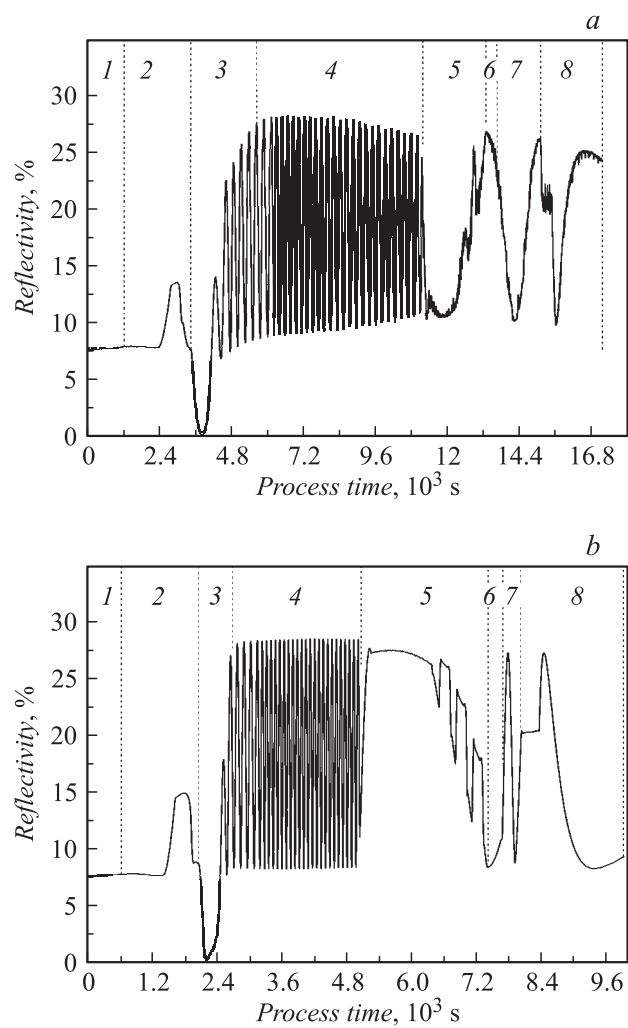


Рис. 1. Изменение во времени коэффициента оптического отражения при росте III–N светодиодных гетероструктур синего диапазона. In situ измерения. *a* — стандартный эпитаксиальный процесс на установке AIX2000HT; *b* — оптимизированный эпитаксиальный процесс на установке Dragon-125.

Продолжительности этапов эпитаксиального выращивания III–N гетероструктур для светодиодов синего диапазона

Этап процесса	Номер этапа (рис. 1)	Длительность этапа, min	
		AIX2000HT	Dragon-125
Нагрев	1	27	10
Зародышевый слой*	2	31	23
<i>u</i> -GaN (трехмерный рост)	3	37	11
GaN:Si	4	90	39
InGaN/GaN активная область	5	35	38
AlGaIn:Mg	6	5	4.5
GaN:Mg	7	25	5.5
Охлаждение	8	35	32
Продолжительность роста (2–7)		223	122
Полная продолжительность эпитаксиального процесса		285	164

Примечание. * включая отжиг подложки, снижение температуры и отжиг зародышевого слоя.

к затратам времени на переходные процессы. И, наконец, увеличение скорости роста на всех этапах не должно сопровождаться ухудшением свойств выращиваемой структуры.

На рис. 1, *a* представлена зависимость коэффициента отражения от времени при росте светодиодной структуры на установке AIX2000HT. Продолжительности отдельных этапов приведены в таблице. Необходимость толстого (не менее $3\ \mu\text{m}$) слоя GaN:Si делает актуальным в первую очередь увеличение скорости его роста. Хорошо известно, что достижимая при МОС-гидридной эпитаксии скорость роста GaN ограничена паразитными реакциями в газовой фазе, ускоряющимися с ростом давления [2], и в основном определяется конструкцией реактора.

Комплексное численное моделирование физических и химических процессов в газовой фазе и на всех поверхностях реактора в процессе конструирования реактора Dragon-125 позволило существенно подавить влияние этих паразитных реакций на эпитаксиальный рост [6]. Из зависимостей, представленных на рис. 2, *a*, видно, что в установке Dragon-125 скорость роста GaN линейно зависит от потока триметилгаллия

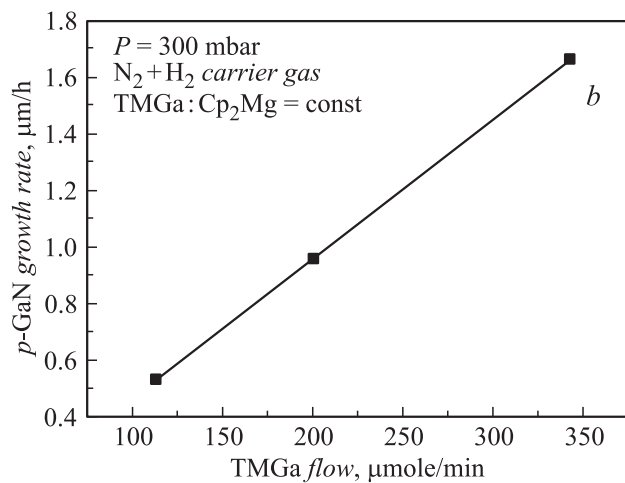
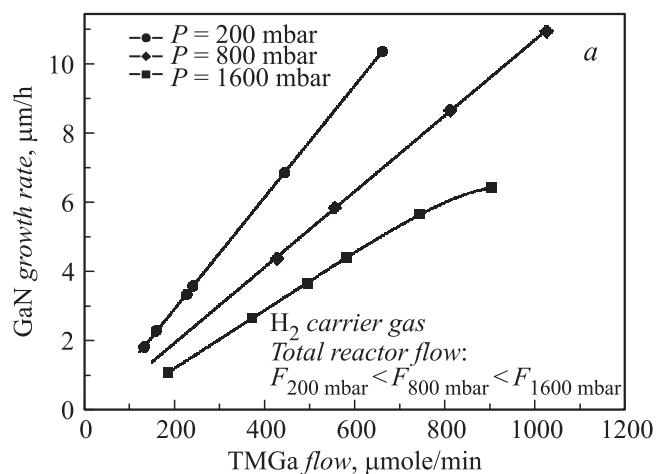


Рис. 2. Зависимость скорости роста GaN (a) и GaN:Mg (b) от потока триметилгаллия. (Меньшая скорость роста GaN:Mg при тех же потоках TMGa связана с большой концентрацией N₂ в реакторе и большими суммарными потоками газа.)

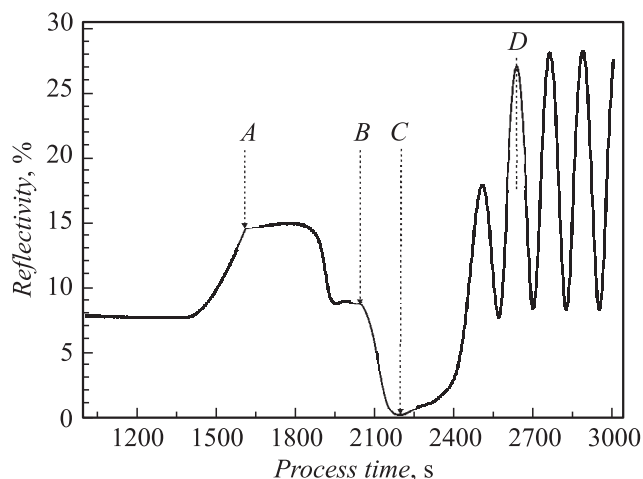


Рис. 3. Изменение во времени коэффициента оптического отражения при росте GaN (начальная стадия).

(TMGa) вплоть до $6 \mu\text{m/h}$ при давлении 1600 mbar и более чем до $10 \mu\text{m/h}$ при давлении ниже атмосферного, что находится на уровне лучших показателей эпитаксиальных установок последнего поколения.

Эксперименты показали, что увеличение скорости роста GaN:Si вплоть до $8 \mu\text{m/h}$ (при давлении 800 mbar) не влияет на качество светодиодных структур. Это позволило сократить длительность соответствующего этапа с 90 до 39 min. Аналогично без снижения качества светодиодов удалось уменьшить длительность роста слоя GaN:Mg с 25 до 5.5 min. При увеличении потока TMGa скорость роста GaN:Mg также возрастает линейно (рис. 2, b), а шероховатость поверхности GaN:Mg при увеличении скорости роста с 0.5 до $1.7 \mu\text{m/h}$ уменьшается с 6 до 1.5 nm (область измерения $5 \times 5 \mu\text{m}$). Последнее связано с подавлением разрастания дефектов морфологии, характерных для этого материала [7]. Значительно более тонкая оптимизация потребовалась для уменьшения длительности начальной стадии высокотемпературного роста GaN. В процессе отжига зародышевого слоя GaN (область A–B на рис. 3) на поверхности сапфировой подложки формируются отдельные нанокристаллиты, выступающие в качестве зародышей при

последующем росте GaN при высокой температуре. В самом начале высокотемпературного роста (точка *B* на рис. 3) поток TMGa должен быть достаточно мал, чтобы на поверхности подложки не происходило дополнительное зародышеобразование. По мере разрастания кристаллитов площадь их поверхности увеличивается, что позволяет наращивать поток TMGa без ухудшения качества материала вплоть до полного заполнения поверхности подложки кристаллитами (точка *C* на рис. 3, этот момент соответствует минимуму коэффициента отражения). Дальнейшее увеличение потока TMGa вплоть до максимальных значений, соответствующих скорости роста $6\text{--}8\ \mu\text{m/h}$, допустимо после полного срастания кристаллитов, планаризации поверхности (точка *D* на рис. 3) и зарастивания оставшихся дефектов. Параллельно вышеописанному изменению потока TMGa изменяются и другие параметры процесса (в частности, температура) с целью поддержания необходимого характера роста (сначала — трехмерного, потом — квазидвумерного). При оптимизации технологии на основании вышеописанной качественной модели процесса условия в реакторе (температура, поток TMGa) подбирались эмпирически с целью достижения минимальной длительности этапа при сохранении характера развития морфологии. Установлено, что если характер развития морфологии остается неизменным, то кристаллическое совершенство выращенного эпитаксиального слоя в исследованном диапазоне параметров не зависит от скорости роста. В результате проведенной оптимизации удалось сократить длительность вышеописанного этапа с $35\text{--}40\ \text{min}$ в реакторе AIX2000HT до $10\text{--}12\ \text{min}$ в реакторе Dragon-125 (момент окончательной планаризации достаточно условен), при этом полуширина кривых рентгеновской дифракции слоев GaN полной толщиной $5\ \mu\text{m}$ составляла 241, 223 и 371 arcsec для сканов (0002), (0004) и $(10\bar{1}2)$ соответственно. Эти параметры вполне соответствуют требованиям к буферным слоям синих светодиодов [8].

В ходе работы не исследовались возможности сокращения длительности роста блокирующего слоя AlGaIn:Mg и активной области InGaIn/GaN. Время роста AlGaIn мало и возможный выигрыш ($2\text{--}3\ \text{min}$) на данный момент не кажется достаточно важным. Напротив, после проведенной оптимизации технологического процесса продолжительность формирования активной области стала существенной — почти 30% времени всего эпитаксиального роста, при этом большую часть времени занимает рост сверхрешетки InGaIn/GaN, существенно

повышающей эффективность светодиодов и являющейся в связи с этим неотъемлемой частью конструкции почти всех выпускающихся в мире III–N светодиодов видимого диапазона. Заметное сокращение времени формирования активной области требует или значительного повышения скорости роста сверхрешетки InGaN/GaN, или изменения дизайна всей активной области, что будет следующим предметом наших исследований. Объединение всех вышеописанных решений позволило сократить полную длительность эпитаксиального процесса с 4 h 45 min до 2 h 44 min (рис. 1, *b*, см. таблицу). Светодиоды, изготовленные из выращенных в таких режимах эпитаксиальных структур, продемонстрировали внешнюю квантовую эффективность 32–34% на длине волны 455 nm, что является хорошим результатом для использованной геометрии кристаллов (flip-chip геометрия, неотделенная планарная подложка, планарный отражающий контакт) и полностью совпадает с эффективностью аналогичных структур, выращенных в стандартном длинном процессе на установке AIX2000HT.

В статье никак не затронуто сокращение длительности переходных процессов при смене режимов эпитаксиального роста между различными слоями гетероструктуры, на рис. 1 и в таблице они включены в длительности этапов. Эта тема существенно больше рамок технической статьи. Тут можно отметить, что для увеличения допустимых скоростей смены давления и температуры необходимы уменьшение объема пассивных областей реактора, оптимизация системы нагрева (включая изменение алгоритма работы системы контроля мощности нагревателя), уменьшение толщины графитового подложкодержателя и отказ от резистивного нагрева, применяемого в большинстве типов коммерчески доступных МОС-гидридных реакторов.

Используемый в статье для сравнения реактор AIX2000HT достаточно компактен (6 подложек диаметром 2 in), и выигрыш в длительности переходных процессов в реакторе Dragon-125 составил 5–6 min (в основном за счет большей скорости нагрева). Однако коммерчески доступные многоподложечные реакторы последних поколений имеют значительно большие объемы и тепловую инерционность [1]. Кроме того, увеличение размеров реактора приводит к существенному усилению паразитных реакций, осложняя достижение высоких скоростей роста. В связи с этим возникает вопрос о целесообразности перевода производства III–N гетероструктур с многоподложечных реакторов с длинным технологическим процессом на компактные одноподложечные

с коротким технологическим циклом, как это произошло в эпитаксии кремния.

Работа поддержана Минобрнауки РФ (контракт № 02.G25.31.0014) и РФФИ (проект 14-02-00488).

Авторы благодарны ЗАО „Светлана–Оптоэлектроника“ за построение процессирования и сборку светодиодов.

Список литературы

- [1] *Koh Matsumoto*. Prospect of GaN MOCVD: Challenge and Strategy for Various Substrate Materials / Presented at LED Forum. November 1-2, 2012, Taipei, Taiwan.
(http://seminar.ledinside.com/Ledforum/current/US/sharing_ppt/1-9Taiyo.pdf).
- [2] *Dauelsberg M., Brien D., Püsche R., Schön O., Yakovlev E.V., Segal A.S., Talalaev R.A.* // J. Crystal Growth. 2011. V. 315. P. 224.
- [3] *Gurary A., Mitrovic B., Armour E., Pophristic M., Paranjpe A.* // Abstracts of the 4th International Symposium on Growth of III-Nitrides. July 16-19, 2012, St. Petersburg, Russia, P. 96.
- [4] *Matsumoto K., Tokunaga H., Ubukata A., K. Ikenaga K., Fukuda Y., Tabuchi T., Kitamura Y., Koseki Sh., A. Yamaguchi A., Uematsu K.* // J. Crystal Growth. 2008. V. 310. P. 3950.
- [5] *Lundin W.V., Sakharov A.V., Tsatsulnikov A.Ф., Ustinov M.M.* // Semicond. Sci. Technol. 2011. V. 26 (1). P. 014039.
- [6] *Lundin W.V., Davydov D.V., Zavarin E.E., Nikolaev A.E., Sinitsyn M.A., Popov M.G., Sakharov A.V., Tsatsulnikov A.F., Mizerov M.N., Ustinov V.M., Yakovlev E.V., Bazarevskiy D.S., Lobanova A.V., Talalaev R.A.* // Proc. EWMOVPE. 2013. June 2–5, 2013. Aachen, Germany. P. 255.
- [7] *Лундин В.В., Сахаров А.В., Заварин Е.Е., Сеницын М.А., Николаев А.Е., Михайловский Г.А., Брунков П.Н., Гончаров В.В., Бер Б.Я., Казанцев Д.Ю., Цацульников А.Ф.* // ФТП. 2009. Т. 43 (7). С. 996.
- [8] *Лундин В.В., Николаев А.Е., Сахаров А.В., Усов С.О., Заварин Е.Е., Брунков П.Н., Яговкина М.А., Черкашин Н.А., Цацульников А.Ф.* // ФТП. 2014. Т. 48 (1). С. 55.