

06

Рост с высокими скоростями пленок InN на подложках фианита и сапфира методом металлоорганической газофазной эпитаксии с плазменной активацией азота

© Ю.Н. Бузынин^{1,3}, А.В. Водопьянов², С.В. Голубев²,
М.Н. Дроздов^{1,3}, Ю.Н. Дроздов^{1,3}, А.Ю. Лукьянов¹,
Д.А. Мансфельд², О.И. Хрыкин¹, В.И. Шашкин^{1,3}, П.А. Юнин^{1,3}

¹ Институт физики микроструктур РАН, Нижний Новгород

² Институт прикладной физики РАН, Нижний Новгород

³ Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского

E-mail: yury_buzynin@mail.ru

Поступило в Редакцию 26 сентября 2014 г.

Методом металлоорганической газофазной эпитаксии с активацией азота в плазме, поддерживаемой излучением гиротрона, получены монокристаллические пленки InN гексагональной модификации на подложках сапфира, фианита и темплейтах GaN/Al₂O₃ (0001). Достигнута рекордная скорость роста пленок $10 \mu\text{m} \cdot \text{h}^{-1}$. Показано, что применение подложек фианита по сравнению с подложками сапфира и темплейтами позволяет существенно улучшить структурное совершенство и фотолюминесцентные свойства пленок InN. Нелегированные пленки InN обладают *n*-типом проводимости с концентрацией электронов $n = (8.0 \cdot 10^{19} - 4.9 \cdot 10^{20}) \text{cm}^{-3}$ при значениях их подвижности до $180 \text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$.

Нитрид индия является прямозонным полупроводником с шириной запрещенной зоны 0.64 eV [1–3], что делает InN и твердые растворы InGaN ключевыми материалами для создания оптоэлектронных приборов, работающих в зелено-красной и ИК-областях спектра. Для InN предсказаны лучшие по сравнению с другими соединениями III–N транспортные параметры, в частности меньшая эффективная масса электронов и более высокая их подвижность [3–5]. Это говорит о

перспективах применения InN для электронных устройств СВЧ-диапазона.

Ключевой проблемой выращивания совершенных эпитаксиальных пленок InN является отсутствие доступных по цене и качеству подложек для гомоэпитаксии. Поэтому вплоть до настоящего времени практически вынужденным является рост пленок InN на инородных подложках. Из-за рассогласования параметров подложки и пленки гетероэпитаксиальные пленки InN оказываются сильно напряженными и содержат высокую плотность структурных дефектов, таких как домены и малоугловые границы, дислокации и точечные дефекты. Это оказывает негативное влияние на транспортные и фотолюминесцентные свойства пленок InN и затрудняет их приборное применение.

Наиболее часто для выращивания пленок InN используют подложки сапфира с буферным слоем GaN. Рассогласование буферного слоя с InN составляет 11%, что затрудняет получение качественного материала. Недавно для эпитаксии InN стала применяться новая подложка — стабилизированный иттрием диоксид циркония (yttria stabilized zirconia, YSZ). Рассогласование параметров решетки YSZ с InN составляет всего 2,3%. Применение подложек YSZ дает надежду на получение более совершенных пленок InN. YSZ является разновидностью флюоритов, синтез которых впервые был осуществлен в Физическом институте им. П.Н. Лебедева АН СССР (ФИАН), что и дало название кристаллу [6]. Гетероэпитаксиальные пленки InN на подложках YSZ (111) впервые были получены в работе [7]. Они обладали интенсивной фотолюминесценцией, что, по мнению авторов, могло быть связано с пониженной плотностью дислокаций.

Другой проблемой эпитаксии InN методом металлоорганической газофазной эпитаксии (МОГФЭ) является очень малая скорость роста пленок, составляющая, как правило, доли микрона в час [8]. Это связано с тем, что пленки выращиваются при сравнительно низких температурах (450–650°C), чтобы предотвратить разложение InN. При таких температурах скорость диссоциации аммиака, являющегося поставщиком азота в растущую пленку, очень мала. Большой интерес представляет возможность замены аммиака молекулярным азотом, активированным плазменным разрядом. В этом случае скорость поступления активного азота в зону роста определяется, в первую очередь, параметрами плазмы и не зависит от температуры подложки.

В данной работе приводятся результаты исследований влияния на структуру и свойства пленок InN условий их роста методом МОГФЭ с активацией азота в плазме электронно-циклотронного резонансного разряда, поддерживаемой излучением гиротрона. Плазменный источник с гиротроном впервые применен при выращивании пленок InN авторами данной работы [9,10].

В качестве подложек использовались пластины фианита (111) и Al_2O_3 (0001), а также темплеты GaN/ Al_2O_3 , в которых буферный слой GaN был выращен методом МОГФЭ. Рост пленок InN проводился при температуре нагревателя 350–600°C, потоке азота через плазменный реактор 100–680 sccm, давлении в ростовой камере $6 \cdot 10^{-2}$ Torr, мощности СВЧ-излучения 550–750 W. Для исследования пленок InN применялись методы оптической и сканирующей электронной микроскопии (СЭМ), вторичной ионной масс-спектропии (ВИМС), рентгеновской дифрактометрии (РД) и фотолюминесценции (ФЛ).

Для достижения высоких скоростей роста пленок InN использовались сравнительно низкие температуры подложки (500°C), позволяющие избежать теплового разложения соединения, и высокие скорости подачи молекулярного азота (до 680 sccm) при мощности СВЧ-излучения 550–750 W. Данные условия обеспечивают высокую концентрацию активного азота, что является ключевым фактором для достижения высоких скоростей роста пленок In-содержащих соединений. Применение разработанных условий позволило достичь рекордно высоких скоростей роста в $10 \mu\text{m} \cdot \text{h}^{-1}$. Структурное совершенство пленок InN исследовалось методом РД на дифрактометре Bruker D8 Discover. Записывались спектры $\theta/2\theta$, ω (кривая качания) и φ -сканирования. На рис. 1, *a* приведен φ -скан асимметричного отражения (10 $\bar{1}$ 4) пленки InN толщиной 1 μm , полученной при $T_s = 500^\circ\text{C}$ при скорости роста $10 \mu\text{m} \cdot \text{h}^{-1}$ на подложке сапфира. Острые пики, расположенные через 60° на φ -скане свидетельствуют о том, что по структуре пленка представляет собой эпитаксиальный монокристалл.

Элементный состав пленок InN исследовали методом ВИМС на установке TOF SIMS-5. Зондирующий пучок — ионы Bi^+ с энергией 25 keV. Из-за низкой чувствительности ВИМС по азоту его распределение изучалось по распределению кластерных вторичных ионов In_2N , имеющих большую интенсивность линий в масс-спектре. Результаты послойного ВИМС-анализа для пленок InN, полученных на подложках Al_2O_3 , приведены на рис. 1, *b*. Пленки InN характеризуются однородным

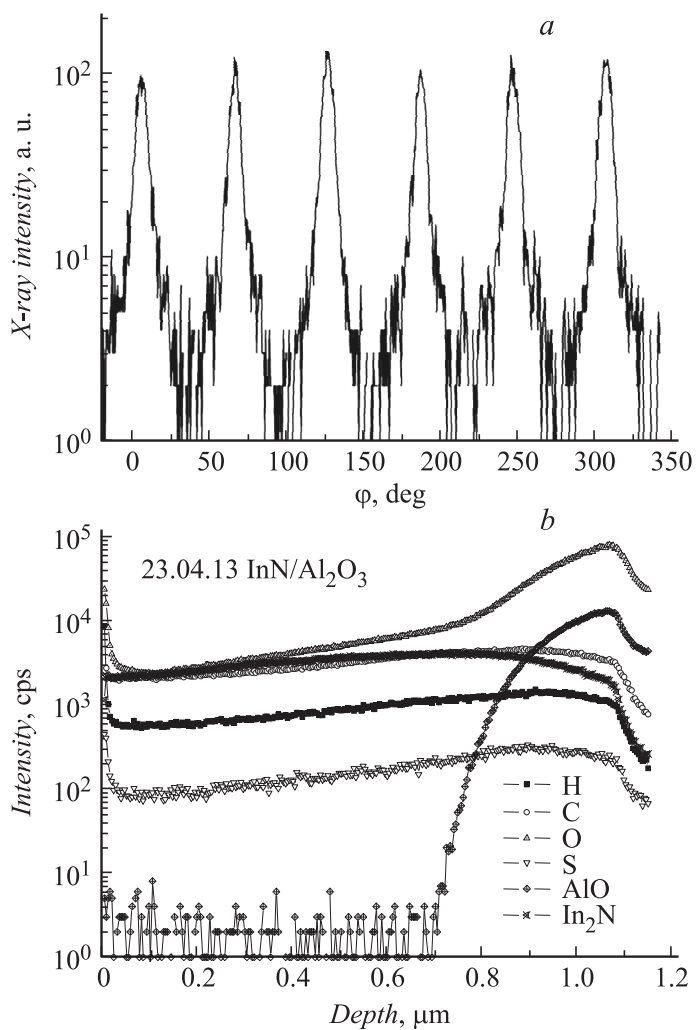


Рис. 1. РД ϕ -скан асимметричного отражения ($10\bar{1}4$) пленки InN на сапфире, выращенной при 480°C (a), и результаты ее послойного ВИМС-анализа (b).

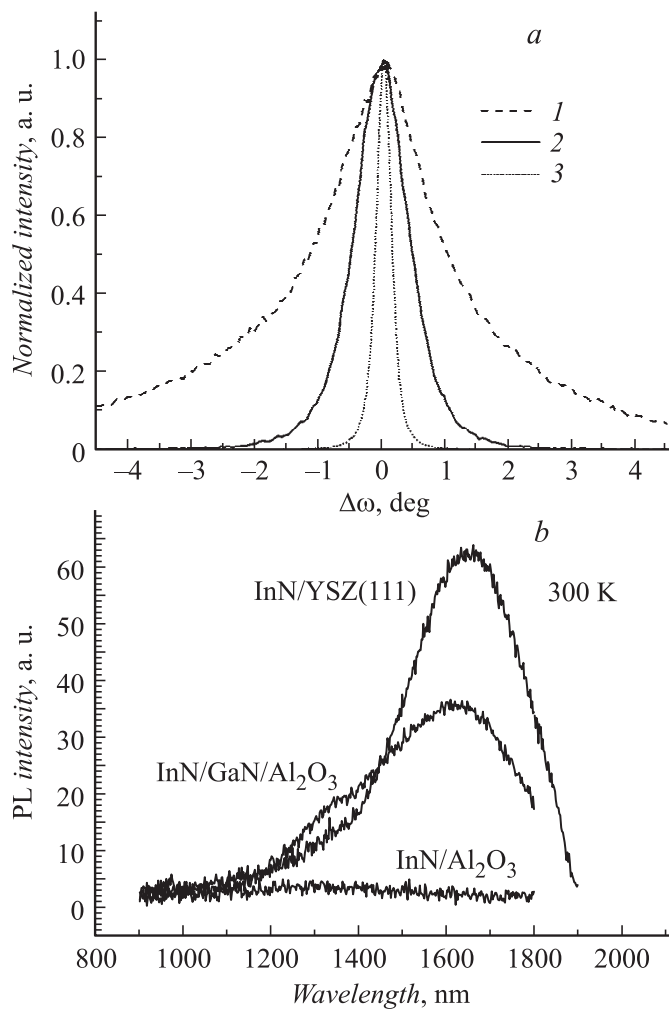


Рис. 2. Рентгенодифракционные кривые качания (0002) пленок InN, полученных на подложках Al₂O₃(0001), YSZ (111), GaN/Al₂O₃ (0001) (a), и их спектры фотолюминесценции, снятые при комнатной температуре (b).

распределением базовых элементов по толщине. Концентрация примесных элементов в пленках InN ниже 1 at.%. Основными электроотрицательными примесями в InN являются Н, С, О и S. Оценочные значения концентраций этих примесей в пленках составляют: $N_H \sim 5 \cdot 10^{18}$, $N_C \sim 5 \cdot 10^{19}$, $N_O \sim 2 \cdot 10^{19}$, $N_S \sim 10^{18}$ at/cm³.

Материал подложки и буферного слоя оказывает определяющее влияние на параметры гетероэпитаксиальных пленок InN. В данной серии экспериментов для роста пленок использовались подложки Al₂O₃ (0001), фианита ориентации (111), а также темплейты GaN/Al₂O₃ (0001). Пленки данной серии имели толщину 0.4 μm и были выращены при температуре подложки 520°C со скоростью 8 μm · h⁻¹. РД спектры ω-сканирования пленок InN, а также их спектры ФЛ приведены на рис. 2.

Как видно из приведенных данных, для пленок InN, полученных на сапфире, полуширина РД кривой качания составляет 2° (рис. 2, а, линия 1), в то время как при росте на темплейте это значение равно 0.9° (рис. 2, а, линия 2). Лучшие по структурному совершенству пленки InN данной серии получены на подложках фианита ориентации (111). Для них полуширина кривой качания имеет значение 0.26° (рис. 2, а, линия 3). Величина среднеквадратичной поверхностной шероховатости для пленок InN толщиной 0.4 μm на подложках фианита (111), измеренная на площади 100 × 100 μm², составляет 1.25 nm. Среднеквадратичная шероховатость поверхности пленок InN на темплейте GaN/Al₂O₃ несколько выше, чем для полученных на подложках фианита, и составляет 12 nm.

Из приведенных спектров фотолюминесценции (рис. 2, б) видно, что для пленок InN на подложках сапфира пик ФЛ очень слабый и положение его максимума соответствует длине волны 1300 nm. Для пленок InN, полученных на темплейте GaN/Al₂O₃, интенсивность фотолюминесценции значительно выше, а положение пика сдвинуто в длинноволновую область и соответствует длине волны 1630 nm. Наиболее высокая интенсивность фотолюминесценции при положении максимума пика 1650 nm наблюдается для пленок InN, полученных на подложках фианита (111).

Выращивание пленок InN толщиной от 1 до 7 μm проводилось на темплейтах GaN/Al₂O₃ (0001) при температурах 500–530°C со скоростью 2–4 μm · h⁻¹. Исследования, проведенные с помощью СЭМ, показали, что все выращенные пленки имеют характерную столбчатую

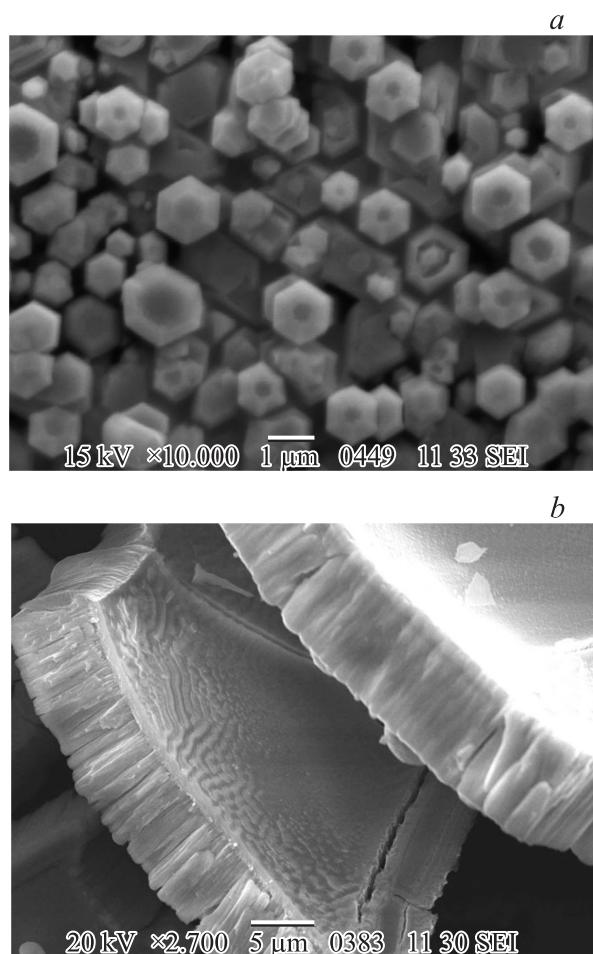


Рис. 3. СЭМ-изображения поверхности пленки InN толщиной $4.3 \mu\text{m}$ на темплекте GaN/Al₂O₃ (*a*) и пленки InN толщиной $7 \mu\text{m}$, отслоившейся от подложки (*b*).

структуру с поперечными размерами гексагональных столбиков $1-3 \mu\text{m}$ (рис. 3, *a*). Установлено, что пленки InN при достижении толщин $5-7 \mu\text{m}$ часто отслаиваются от подложки (рис. 3, *b*). Холловские

измерения, проведенные для нелегированных пленок InN данной серии толщиной 1–3 μm , показали, что они имеют n -тип проводимости с концентрацией электронов $n = (8.0 \cdot 10^{19} - 4.9 \cdot 10^{20}) \text{ cm}^{-3}$. При этом подвижность электронов при комнатной температуре лежит в пределах от 30 до 180 $\text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$. Как правило, более толстые пленки имеют более низкие значения концентрации электронов и более высокие величины их подвижности.

Таким образом, в работе показано, что метод МОГФЭ при активации азота в плазме, создаваемой с помощью плазменного источника на основе гиротрона, позволяет получать пленки InN высокого качества при рекордных скоростях роста, достигающих значений $10 \mu\text{m} \cdot \text{h}^{-1}$. Применение подложек флюорита (111) по сравнению с подложками сапфира (0001) и темплейтами GaN/Al₂O₃ (0001) позволяет существенно улучшить структурное совершенство пленок InN и повысить интенсивность фотолюминесценции в диапазоне 1620–1650 nm. Пленки InN на темплейтах GaN/Al₂O₃ (0001) имеют n -тип проводимости с концентрацией электронов $n = (8.0 \cdot 10^{19} - 4.9 \cdot 10^{20}) \text{ cm}^{-3}$ при значениях их подвижности до 180 $\text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (соглашение от 27 августа 2013г. № 02.В.49.21.0003 между МОН РФ и ННГУ), программы фундаментальных исследований ОФН РАН „Физика новых материалов и структур“, Российского фонда фундаментальных исследований (проекты № 13-02-01459, № 13-02-01313, № 13-02-97077).

При выполнении исследований применялось оборудование Центра коллективного пользования ИФМ РАН.

Список литературы

- [1] Davydov V.Yu., Klochikhin A.A. et al. // Phys. Stat. Solidi. B. 2002. V. 229. P. R1.
- [2] Wu J., Walukiewicz W., Yu K.M. et al. // Appl. Phys. Lett. 2002. V. 80. P. 3967.
- [3] Junqiao Wu. // J. Appl. Phys. 2009. V. 106. P. 011 101.
- [4] Baghani E., O'Leary S.K. et al. // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 99. P. 262 106.
- [5] Miller N., Haller E.E. et al. // Phys. Rev. B. 2011. V. 84. P. 075 315.
- [6] Александров В.И., Осико В.В., Прохоров А.М., Татаринцев В.М. // Вестник АН СССР. 1973. № 12. С. 29–39.

- [7] *Anderson P.A., Kendrick C.E., Kinsey R.J., Asadov A., Gao W., Reeves R.J., Durbin S.M.* // *Phys. Stat. Sol. (c)*. 2005. V. 2. N 7. P. 2320–2323.
- [8] *Briot O., Ruffenach S., Moret M., Gil B., Giesen Ch., Heuken M., Rushworth S., Leese T., Succi M.* // *J. Crystal Growth*. 2009. V. 311. P. 2761–2766.
- [9] *Бузынин Ю.Н., Викторов М.Е., Водопьянов А.В., Голубев С.В., Дроздов М.Н., Дроздов Ю.Н., Лукьянов А.Ю., Мансфельд Д.А., Скороходов Е.В., Хрыкин О.И., Шашкин В.И.* // *Письма в ЖТФ*. 2012. Т. 38. В. 24. С. 86–94.
- [10] *Alexander Vodopyanov, Dmitry Mansfeld, Yurii Buzynin, Mikhail Drozdov, Yurii Drozdov, Oleg Khrykin, Andrei Lukyanov, Mikhail Viktorov, Sergey Golubev, Vladimir Shashkin* // *Japanese J. Appl. Phys.* 2013. V. 52. P. 08JD07.