

15

## Контроль упругих напряжений с помощью оптической системы измерения кривизны подложки при росте гетероструктур III–N методом молекулярно-пучковой эпитаксии

© Д.С. Золотухин, Д.В. Нечаев, С.В. Иванов, В.Н. Жмерик

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

E-mail: zolotukhin.beam@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 28 сентября 2016 г.

Описывается оригинальная оптическая система измерений кривизны подложек (ОСИКП), позволяющая с высокой точностью исследовать процессы генерации и релаксации упругих напряжений во время роста гетероструктур (ГС) на основе нитридных соединений III–N методом плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии (ПА МПЭ). Применение разработанной ОСИКП для анализа роста ГС GaN/AlN/Si(111) позволило не только детально пронаблюдать динамику изменения упругих напряжений в этой структуре при ее металлобогатом росте низкотемпературной ПА МПЭ, но и разработать конструкцию ГС, исключающую эффект растрескивания слоев за счет контроля величины сжимающих напряжений.

DOI: 10.21883/PJTF.2017.05.44363.16508

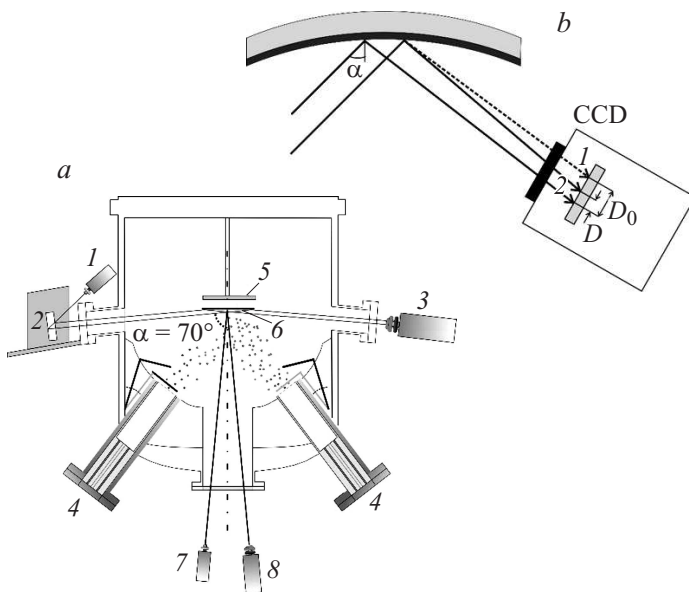
При производстве оптоэлектронных приборов и мощных СВЧ-транзисторов на основе широкозонных нитридных соединений третьей группы (III–N) из-за отсутствия коммерчески доступных гомоэпитаксиальных подложек широко используются различные гетероэпитаксиальные подложки (*c*-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 6H-SiC, Si(111) и др.) со значительным рассогласованием как постоянных решетки, так и коэффициентов температурного расширения (КТР) [1]. Кроме того, существенные рассогласования присутствуют, как правило, и между отдельными слоями в приборных III–N гетероструктурах (ГС). В результате в процессе роста возникают упругие напряжения, пластическая релаксация которых происходит путем генерации прорастающих дислокаций с плотностью до  $\sim 10^{10} \text{ см}^{-2}$  и/или через растрескивание/деламинацию эпитаксиальных слоев при

растягивающих/сжимающих напряжениях соответственно. Постростовые измерения остаточных упругих напряжений с помощью рентгенодифракционных измерений кривизны подложки [2], исследований спектров фотолюминесценции [3] и других не позволяют исследовать динамику процессов генерации и релаксации упругих напряжений, поэтому необходимо развить *in situ* методы контроля этих процессов. Необходимо отметить, что стандартный для молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) *in situ* метод дифракции отраженных быстрых электронов позволяет определять лишь изменение постоянной решетки в плоскости роста [4], но не дает полной информации о поведении напряжений в ГС.

Наиболее эффективно поставленная задача решается с помощью оптических измерений кривизны поверхности подложки, которая определяется средней величиной упругих напряжений и толщиной эпитаксиального слоя [5]. Коммерчески выпускаемые многолучевые лазерные системы для таких измерений эффективно используются главным образом при газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений (ГФЭ МОС) ГС на основе III–N [6]. Хотя в литературе сообщается об использовании этого метода и в МПЭ [3,7], но при этом возникает целый ряд проблем. Прежде всего, точность измерений расстояния между отраженными лазерными лучами ограничена низкой частотой измерений ( $< 1$  Hz) и дрожанием („wobbling“) подложки в процессе роста из-за несовершенства механизма ее вращения во всех известных нам установках МПЭ. Кроме того, стандартные системы могут быть установлены лишь на нижнее окно установок МПЭ с вертикальной геометрией, на которое в течение нескольких десятков ростовых процессов напыляется непрозрачное металлическое покрытие.

В статье сообщается о разработке оригинальной конструкции оптической системы измерений кривизны подложки (ОСИКП) с видеорегистрацией изображений отраженных лазерных лучей, которая устанавливается на боковые порты установки плазменно-активированной (ПА) МПЭ с вертикальной геометрией. С помощью ОСИКП детально анализируется изменение напряжений в процессе ПА МПЭ ГС GaN/AlN/Si(111).

Исследованная ГС выращивалась на установке ПА МПЭ Compact21T (Riber) на подложке Si(111) с использованием AlN зародышевого слоя ( $\sim 30$  nm), который формировался с помощью эпитаксии с повышенной миграцией [8]. Для роста последующих буферных слоев с двумерной (2D) морфологией поверхности 2D-AlN ( $\sim 200$  nm)



**Рис. 1.** *a* — общая схема размещения систем лазерной рефлектометрии на установке ПА МПЭ: 1 — лазер ОСИКП, 2 — расщепляющая призма, 3 — CCD-камера ОСИКП, 4 — эффузионные ячейки, 5 — нагреватель подложки, 6 — подложка с растущим слоем, 7, 8 — лазер и CCD-камера системы измерения скорости роста слоев. *b* — схема измерительного модуля: 1 — положение луча, отраженного от плоской подложки; 2 — положение луча, отраженного от деформированной подложки.

и 2D-GaN ( $\sim 1 \mu\text{m}$ ) использовался метод металл-модулированной эпитаксии [9].

Для *in situ* диагностики роста использовались две системы лазерной рефлектометрии на основе полупроводниковых лазеров с длиной волны излучения  $\lambda = 532 \text{ nm}$ . В первой системе, служащей для контроля скорости роста (толщин) слоев III–N, одиночный лазерный луч мощностью 20 mW падал почти нормально на подложку. При этом анализировался период интерференционных колебаний отраженного сигнала в резонаторе Фабри–Перо „слой-подложка“ (рис. 1). Во второй системе (ОСИКП), применявшейся для измерений кривизны подложки, лазерное излучение мощностью 5 mW расщеплялось с помощью оптической

призмы на два параллельных луча диаметром  $\sim 1$  mm и расстоянием между ними  $D_0 \sim 5$  mm, которые направлялись на центр подложки под углом падения  $\alpha = 70^\circ$ , как показано на рис. 1. Видеоизображения отраженных от подложки лазерных лучей регистрировались с помощью CCD-камеры VEC135 с частотой 2 Hz и обрабатывались компьютером с помощью программы RECurve, написанной в среде „Labview 2012“. Изменение кривизны подложки ( $k(t)$ ) вычислялось из относительного изменения расстояния между лазерными лучами при отражении от плоской ( $D_0$ ) и искривленной ( $D(t)$ ) подложки (рис. 1, *b*) согласно формуле, предложенной Chason et al. [5]:

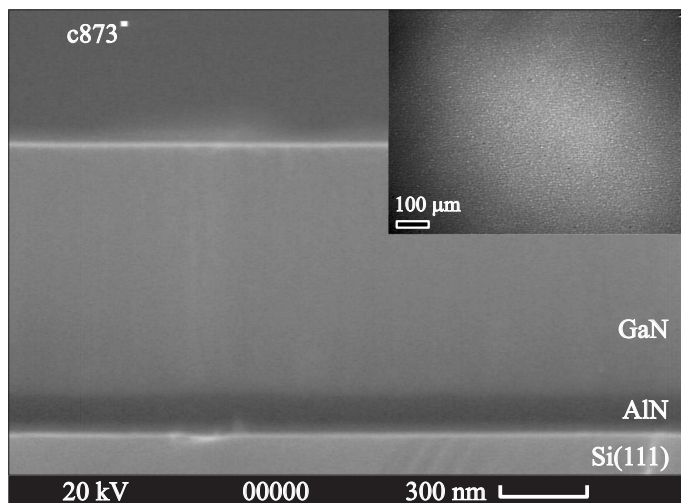
$$\kappa(t) = \frac{(D_0 - D(t)) \cos \alpha}{D_0} \frac{1}{2L}, \quad (1)$$

где  $L$  — расстояние от CCD-камеры до подложки,  $\alpha$  — угол падения лучей на подложку.

Повышение точности определения напряжений в ОСИКП, установленной на боковых окнах установки ПА МПЭ, обеспечивалось, как следует из (1), за счет большего угла падения лазерных лучей на подложку по сравнению с почти нормальным падением, используемым в большинстве современных аналогичных систем. Дополнительно точность измерений повышалась за счет высокой частоты видеорегистрации отраженных сигналов на двумерной CCD-матрице. Отметим, что в стандартных системах с этой целью используются, как правило, одномерные фотодиодные линейки, которые в случае ПА МПЭ с относительно небольшой скоростью вращения подложки (время оборота  $\geq 3$  s) ограничивают частоту измерений  $< 1$  Hz. Кроме того, размещение ОСИКП на боковых портах установки ПА МПЭ позволило существенно снизить запыление оптических окон и повысить ресурс работы системы до нескольких сотен ростовых процессов без их чистки.

Рис. 2 демонстрирует изображения выращенной ГС, полученные с помощью растрового электронного и оптического микроскопов, которые подтверждают резкие гетерограницы в ГС и отсутствие трещин на ее поверхности.

На рис. 3, *a* приводится зависимость произведения средней величины упругих напряжений  $\langle \sigma_f \rangle$  на толщину слоя ( $h_f$ ) от толщины данного слоя и, отдельно на участке 3, зависимость произведения средней величины упругих напряжений  $\langle \sigma_f \rangle$  на толщину слоя от времени охлаждения. Эта зависимость строилась по результатам измерений



**Рис. 2.** СЭМ и оптическое изображения скола и поверхности ГС GaN/AlN/Si(111).

кривизны подложки и толщины слоев в ГС с помощью формулы Стоуни (Stoney)

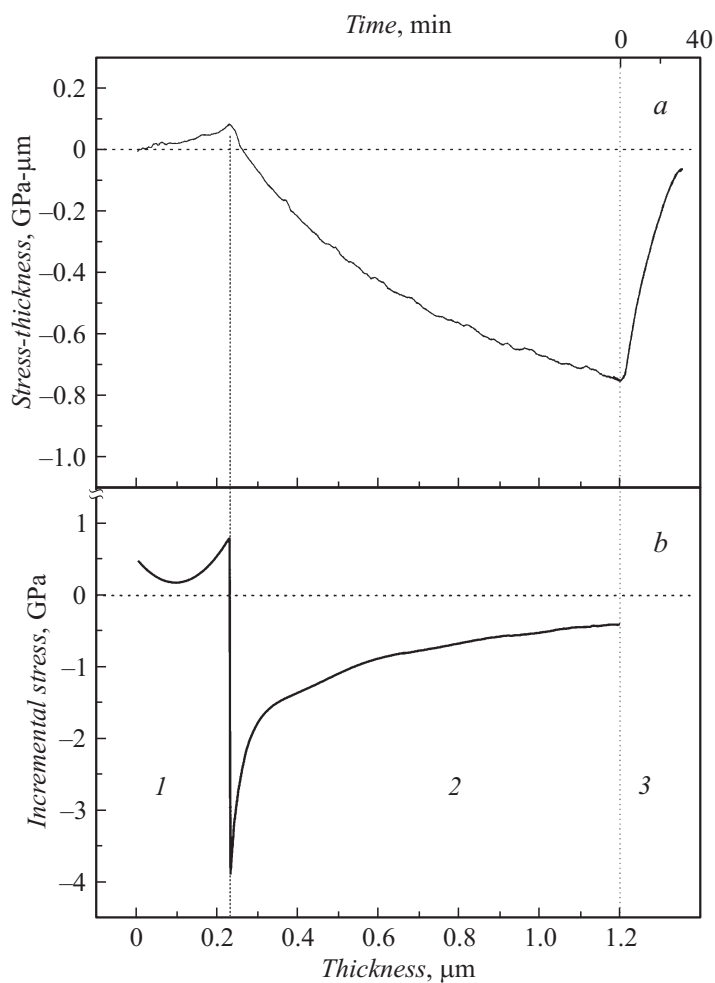
$$\langle \sigma_f \rangle h_f = \frac{M_s h_s^2}{6} k(h_f),$$

где  $h_s$  и  $M_s$  — толщина и упругий модуль подложки ( $h_s = 300 \mu\text{m}$  и  $M_{\text{Si}} = 229 \text{ GPa}$  для Si(111)). Рис. 3, *b* демонстрирует зависимость от толщины мгновенных значений напряжения в слоях, вычислившихся с помощью дифференциальной формы формулы Стоуни [10]

$$\sigma_f(h_f) = \frac{M_s h_s^2}{6} \frac{\partial k(h_f)}{\partial h_f}.$$

Из рис. 3, *b* следует, что величина растягивающих напряжений в слое AlN на подложке Si(111) (участок 1) составляет 0.5–0.7 GPa. С другой стороны, величина эпитаксиального напряжения, которая соответствует псевдоморфному росту ГС AlN/Si(111), может быть рассчитана по формуле

$$\sigma_f^m = M_f \varepsilon_f, \quad (2)$$



**Рис. 3.** Зависимость изменения произведения средней величины упругих напряжений на толщину от толщины слоя (*a*) и мгновенных напряжений в слое от его толщины (*b*), измеренная в процессе эпитаксиального роста ГС GaN/AlN/Si(111). 1 — участок роста AlN, 2 — участок роста GaN, 3 — участок охлаждения ГС (на участке 3 толщина слоя не изменяется, изменение в произведении средних напряжений на толщину на *a* обусловлено генерацией напряжений при охлаждении).

где  $\varepsilon_f = (a_s - a_f)/a_s$  — эпитаксиальное рассогласование между подложкой и слоем с упругим модулем  $M_f$ . Подстановка в (2) значений  $\varepsilon_{\text{AlN}} = 19\%$  (для Si(111) [1]) и  $M_{\text{AlN}} = 470$  ГПа [11] дает величину эпитаксиального напряжения  $\sigma_f^m = 89$  ГПа. Сравнение наблюдаемого и расчетного напряжений говорит о практически полной ( $> 99\%$ ) и мгновенной релаксации эпитаксиального напряжения в ГС AlN/Si(111), которая происходит через генерацию дислокаций несоответствия [12]. Генерация относительно небольших растягивающих напряжений, по видимому, связана с коалесценцией островков в пленке AlN, растущей по механизму Фольмера–Вебера [13].

Более плавная релаксация эпитаксиального напряжения наблюдается при росте слоя 2D-GaN на буферном слое 2D-AlN (участок 2 на рис. 3) с рассогласованием  $\varepsilon_f = -2.5\%$  [1]. С учетом растягивающих напряжений в слое AlN  $\sigma_f = 0.8$  ГПа величина рассогласования между этими слоями уменьшается до 2.3%, что с помощью (2) дает для ГС GaN/AlN значение  $\sigma_f^m = -10.9$  ГПа (при  $M_f = 478$  ГПа для GaN [11]). На зависимости, показанной на рис. 3, *b*, наблюдается максимальное значение мгновенных напряжений в начале роста  $\sigma_f = -3.9$  ГПа, что свидетельствует о частичной релаксации ( $\sim 66\%$ ) напряжений начиная с первых монослоев роста ГС. Более того, на протяжении всего роста слоя GaN вплоть до толщины  $\sim 1 \mu\text{m}$  напряжение релаксирует плавно до значения  $\sigma_f = -0.2$  ГПа, что можно объяснить кинетическими ограничениями релаксации напряжений при двумерном металлоглащенном росте слоя 2D-GaN в низкотемпературных ( $T_S \sim 700^\circ\text{C}$ ) условиях ПА МПЭ. Это предположение подтверждается тем, что при росте аналогичной ГС с помощью высокотемпературной ГФЭ МОС ( $T_S > 1000^\circ\text{C}$ ) полная релаксация сжимающих напряжений в ГС GaN/AlN происходит уже на толщинах слоя GaN около 100 nm, а дальнейший ее рост протекает при растягивающих напряжениях [6].

Подавление релаксации сжимающих напряжений при росте толстых слоев GaN важно с точки зрения предотвращения эффекта растрескивания (cracking) ГС GaN/AlN/Si(111) при охлаждении вследствие различия КТР III–N слоев и подложки [6]. Действительно, расчет среднего напряжения в исследованной ГС по формуле

$$\langle \sigma_f \rangle = \frac{1}{h_f} \int_0^{h_f} \sigma_f(h_f) dh_f$$

дает значение  $\langle \sigma_f \rangle = 0.63$  ГПа, что достаточно для компенсации экспериментально измеренных напряжений растяжения  $+0.52$  ГПа, возникающих при охлаждении ГС от температуры роста ( $T_S \sim 700^\circ\text{C}$ ) до комнатной температуры ( $20^\circ\text{C}$ ).

В заключение, продемонстрированы высокая точность и быстродействие оптической системы контроля кривизны подложки (ОСИКП), разработанной нами для *in situ* контроля генерации и релаксации упругих напряжений в процессе роста ГС на основе соединений III–N методом ПА МПЭ. С помощью ОСИКП было детально проанализировано поведение напряжений в ГС GaN/AlN/Si(111) при ее металлобогатенном росте методом ПА МПЭ. Это позволило разработать дизайн и технологию роста ГС, в которых полностью скомпенсированы растягивающие напряжения, возникающие при охлаждении ГС и ответственные за их растрескивание.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 14-22-00107).

## Список литературы

- [1] *Kukushkin S.A., Osipov A.V., Bessolov V.N.* et al. // *Rev. Adv. Mater. Sci.* 2008. V. 17. P. 1.
- [2] *Ратников В.В., Нечаев В.Н., Жмерик В.Н., Иванов С.В.* // *Письма в ЖТФ.* 2016. Т. 42. В. 8. С. 61.
- [3] *Baron N., Cordier Y., Chenot S.* et al. // *J. Appl. Phys.* 2009. V. 105. P. 033701.
- [4] *Нечаев Д.В., Жмерик В.Н., Мизеров А.М.* и др. // *Письма в ЖТФ.* 2012. Т. 38. В. 9. С. 96.
- [5] *Hearne S., Chason E., Han E.* et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1999. V. 74. P. 356.
- [6] *Raghavan S., Redwing J.M.* // *J. Appl. Phys.* 2005. V. 98. P. 023514.
- [7] *Aidam R., Diwo E., Rollbühler N.* et al. // *J. Appl. Phys.* 2012. V. 111 P. 114516.
- [8] *Nechaev D.V., Aseev P.A., Jmerik V.N.* et al. // *J. Cryst. Growth.* 2013. V. 378. P. 319.
- [9] *Jmerik V.N., Mizerov V.N., Nechaev D.V.* et al. // *J. Cryst. Growth.* 2012. V. 354. P. 188.
- [10] *Floro J.A., Chason E., Lee S.R.* et al. // *J. Electron. Mater.* 1997. V. 26. P. 969.
- [11] *Vurgaftman I., Meyer J.R.* // *J. Appl. Phys.* 2003. V. 94. P. 3675.
- [12] *Maroudas D., Zepeda-Ruiz L.A., Weinberg W.H.* // *Appl. Phys. Lett.* 1998. V. 73. P. 753.
- [13] *Floro J.A., Chason E., Cammarata R.C., Srolovitz D.J.* // *MRS Bull.* 2002. V. 27. P. 19.