

06

## Асимметрия дефектной структуры полуполярного GaN, выращенного на Si(001)

© А.Е. Калмыков, А.В. Мясоедов<sup>✉</sup>, Л.М. Сорокин

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

Санкт-Петербург, Россия

<sup>✉</sup> E-mail: amyasoedov88@gmail.com

Поступило в Редакцию 5 июля 2018 г.

Методом просвечивающей электронной микроскопии исследована дефектная структура толстого ( $\sim 15 \mu\text{m}$ ) полуполярного слоя нитрида галлия, выращенного методом хлорид-гидридной газофазной эпитаксии на кремниевой подложке ориентации (001) с использованием буферных слоев. Выявлена и проанализирована асимметрия дефектной структуры слоя. Обсуждается влияние асимметрии на скорость убывания плотности прорастающих дислокаций в эпитаксиальном слое в ходе его роста.

DOI: 10.21883/PJTF.2018.20.46806.17452

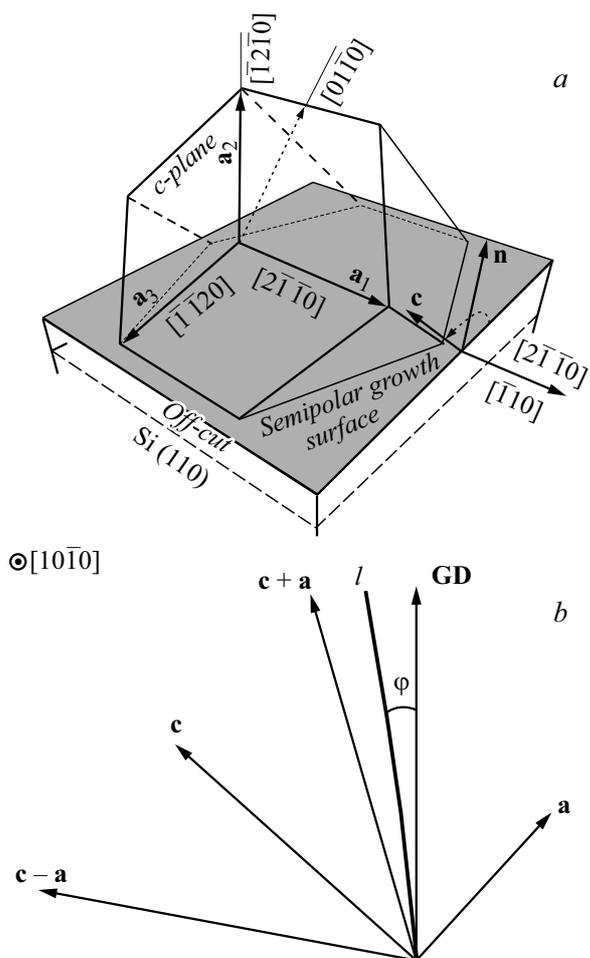
Эпитаксиальные структуры на основе нитрида галлия являются перспективным материалом для создания светоизлучающих приборов в широком диапазоне длин волн, поскольку соединения Al/Ga/In–N являются прямозонными полупроводниками, ширина запрещенной зоны которых лежит в диапазоне 1.97–6.2 eV в зависимости от состава [1]. Подложки для гомоэпитаксиального роста структур остаются дорогими, поэтому слои нитридов выращиваются на сапфире и карбиде кремния. Осуществляется рост в естественном для нитридов направлении роста (0001) вдоль полярной оси  $c$  (полярное направление). Структурам, выращенным в этом направлении, присущи недостатки фундаментального характера, связанные с электрическими полями, обусловленными спонтанной и пьезоэлектрической поляризациями [2,3]. Эти поля существенно снижают эффективность светоизлучающих приборов. Привлекательно использовать в качестве подложки пластины кремния в силу их дешевизны, больших размеров, возможности использования потенциала кремниевой промышленности. Но на этом пути существует ряд

трудностей. В кремниевой электронике преимущественно используются пластины кремния ориентации (001) с осью симметрии четвертого порядка, а ось  $c$  является осью симметрии третьего порядка. Один из способов преодоления этой проблемы — формирование эпитаксиального слоя (ЭС) полуполярной ориентации, когда поверхность роста представляет собой одну из пирамидальных плоскостей вюрцитной структуры [4–6]. В этом случае с поворотной осью симметрии четвертого порядка структуры типа алмаза в области интерфейса Si/GaN будет сопрягаться слой с осью второго порядка. При этом существенно снижается отрицательное влияние пьезоэлектрических полей [7].

Использование подложки для формирования ЭС с параметрами кристаллической решетки, отличными от параметров слоя, вызывает анизотропию дефектной структуры. Такая анизотропия наблюдалась в [8] в ходе исследования лазерных структур, выращенных на подложках GaN полуполярной ориентации. В области интерфейса были обнаружены дислокации несоответствия с векторами Бюргерса (ВБ)  $1/3(11\bar{2}0)$ . Среди трех возможных направлений векторов этого типа 80% составляли векторы одного направления. Авторы объясняли это тем, что дислокации с ВБ именно этого направления наиболее эффективно снимают упругое напряжение на интерфейсе.

Об анизотропии дефектной структуры полуполярных слоев  $(11\bar{2}2)\text{GaN}$ , выращенных на  $m$ -границах сапфира, сообщается в работе [9]. Авторы обнаружили существенную азимутальную зависимость полуширин (FWHM) кривых качания, полученных в условиях симметричного отражения от плоскостей  $(11\bar{2}2)$ . FWHM при падении пучка рентгеновского излучения вдоль направления  $[\bar{1}\bar{1}23]$  составила  $0.22^\circ$ , а вдоль  $[1\bar{1}00]$  GaN —  $0.42^\circ$ . Эту зависимость авторы связывают с различным распределением дефектов структуры и мозаичностью (различным размером и наклоном зерен).

В настоящей работе представлены результаты исследования методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) структуры слоя GaN толщиной  $14\ \mu\text{m}$ , выращенного методом хлорид-гидридной газофазной эпитаксии (ХГФЭ) на вицинальной подложке Si(001) диаметром  $1.5''$ , толщиной  $300\ \mu\text{m}$ . Угол отклонения поверхности подложки от сингулярной ориентации составил  $7^\circ$ . Предварительно на кремниевой пластине был синтезирован методом топохимического замещения атомов кремния атомами углерода тонкий слой ( $\sim 100\ \text{nm}$ ) карбида



**Рис. 1.** Схема исследуемой гетероструктуры Si(001)/SiC/AlN/GaN (a) и ориентации линий дислокаций с векторами Бюргерса  $c + a$  и  $c - a$ . GD — направление роста,  $l$  — линия дислокации.

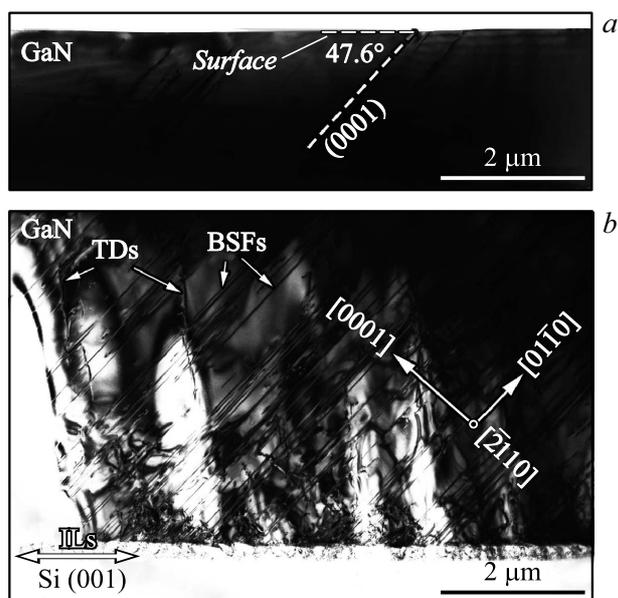
кремния, затем — методом ХГФЭ слой AlN. Подробно методика формирования слоев и роль слоя SiC описаны в [10,11].

Для ПЭМ-исследования дефектной структуры были приготовлены образцы трех различных ориентаций. Образец № 1 представляет собой срез гетероструктуры, нормаль к поверхности которого параллельна направлению GaN[ $2\bar{1}\bar{1}0$ ] (или направлению Si[ $\bar{1}10$ ], рис. 1, *a*), образец № 2 — срез с нормалью, параллельной GaN[ $0\bar{1}12$ ], образец № 3 является срезом с нормалью, параллельной направлению роста (НР) слоя GaN. Образцы утоньшались методом механической шлифовки с последующим ионным травлением. Гетероструктура исследовалась с помощью электронного микроскопа Philips EM420.

Анализ дефектной структуры на основе ПЭМ-изображений проводился с использованием критерия погасания. Изображения дислокаций в условиях двухволнового приближения становятся малококонтрастными, когда скалярное произведение ВБ  $\mathbf{b}$ , характеризующего дислокацию, и вектора дифракции  $\mathbf{g}$  равно нулю. Контраст изображений дефектов упаковки (ДУ) пропадает, когда произведение вектора смещения  $\mathbf{R}$ , описывающего дефект упаковки, на  $\mathbf{g}$  равно целому числу. В образце в непосредственной близости от интерфейса наблюдались области с очень высокой плотностью дефектов, поэтому структура исследовалась на расстоянии не менее  $1\ \mu\text{m}$  от буферного слоя AlN.

Исследование структуры образца показало наличие таких видов дефектов структуры слоя GaN, как прорастающие дислокации (ПД) и ДУ в базисной плоскости (рис. 2, *b*). В буферном слое нитрида алюминия были выявлены также ДУ в призматической плоскости. Как установлено [12], в ЭС GaN возможны дислокации с ВБ  $\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{c} + \mathbf{a}$  и  $\mathbf{c}$ , где  $\mathbf{a} = 1/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$ ,  $\mathbf{c} = \pm[0001]$ . Анализ ПЭМ-снимков показал, что наибольшую долю среди ПД, не лежащих в базисной плоскости GaN, составили дислокации с ВБ  $\mathbf{c} + \mathbf{a}$ . Линии этих ПД отклоняются от НР к оси  $c$  на некоторый угол, как это видно из рис. 2, *c*. Углы отклонения искажены из-за того, что на снимке представлены микрофотографии проекции призматических плоскостей скольжения ( $10\bar{1}0$ ) и ( $1\bar{1}00$ ) вдоль направления  $[2\bar{1}\bar{1}0]$  (рис. 1, *a*). В направлении отклонения дислокационных линий проявляется асимметрия, обусловленная наклоном оси  $c$  относительно НР. В отличие от случая полярного роста [13] все линии отклоняются в одну сторону от НР (на рис. 2, *c* по часовой стрелке).

В образце также присутствуют дислокации с ВБ  $\mathbf{b} = \mathbf{a}$ . Линии этих дислокаций расположены в базисных плоскостях GaN(0001) с наиболее плотной упаковкой, из которых они в результате поперечного скольжения переходят в призматические плоскости. На рис. 2, *c* стрелками



**Рис. 2.** Образец № 1. Электронные микрофотографии области вблизи поверхности образца (a), вблизи интерфейса (b) и дислокационной структуры (c). TDs — прорастающие дислокации, BSFs — дефекты упаковки,  $\mathbf{b}_1$  — линии дислокаций с векторами Бюргерса  $\mathbf{c} + \mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}_2$  — с вектором  $\mathbf{a}$ .

указаны дислокационные линии, начальные участки которых находятся в базисных плоскостях, затем по мере роста слоя происходит их переход в призматическую плоскость. Этот переход на микрофотографии отображается как отклонение линии ПД против часовой стрелки.

Как показал анализ электронных микрофотографий образца № 2, когда возможно реализовать условия  $\mathbf{g} = 2 \bar{1}\bar{1}0$ , при которых выполняется критерий погасания для дислокаций с  $\mathbf{b} = \mathbf{c}$ , таких дислокаций в образце практически нет. Низкая доля дислокаций с  $\mathbf{b} = \mathbf{c}$  является характерной чертой ЭС GaN. В зависимости от метода выращивания слоя эта доля меняется в пределах от менее 1 до 10% [13].

Помимо определенной направленности линий ПД асимметрия дефектной структуры проявляется в низкой плотности (менее  $10^8 \text{ cm}^{-2}$ )

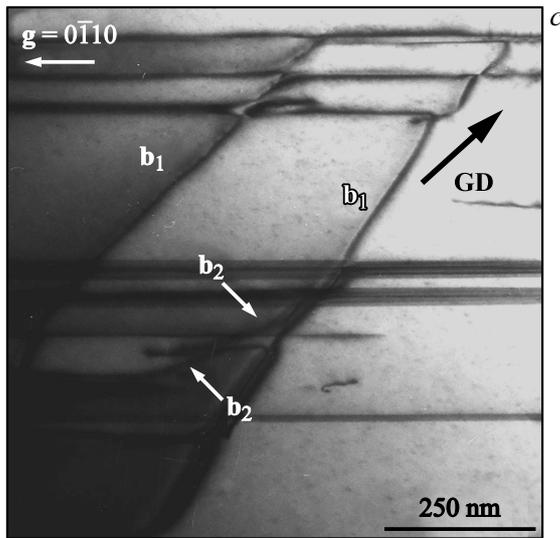
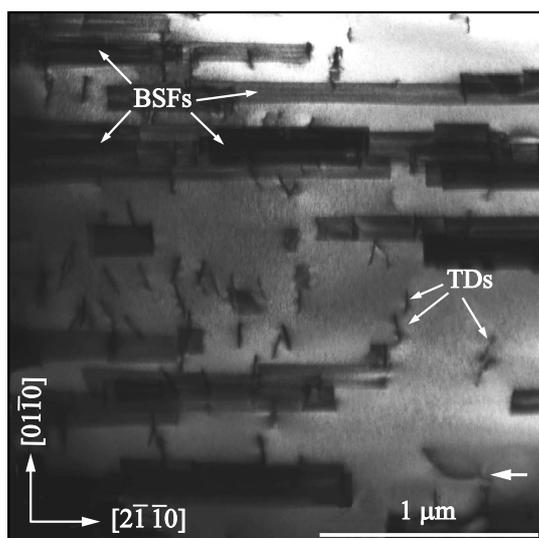


Рис. 2 (продолжение).

ПД с ВБ  $\pm 1/3[11\bar{2}3]$ ,  $\pm 1/3[\bar{1}2\bar{1}3]$  и  $\pm 1/3[2\bar{1}\bar{1}3]$  по сравнению с плотностью ( $\sim 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ) других возможных ПД с  $\mathbf{b} = 1/3\langle 11\bar{2}3 \rangle$  [14]. Низкое содержание дислокаций с ВБ первых двух типов подтверждается тем, что изображения дислокационных линий находились в контрасте, когда велось наблюдение в условиях  $\mathbf{g} = 01\bar{1}1$ , и становились практически невидимыми при  $\mathbf{g} = 0\bar{1}11$ . На рис. 3 эти дислокации с  $\mathbf{b} = \pm 1/3[2\bar{1}\bar{1}3]$  должны выглядеть как отрезки, параллельные направлению  $[2\bar{1}\bar{1}0]$ , но таковые практически отсутствуют, за исключением одного участка линии дислокации. Здесь зафиксировано не поперечное скольжение одной ПД между призматическими плоскостями, а реакция между двумя ПД, находящимися в плоскостях  $(01\bar{1}0)$  и  $(10\bar{1}0)$ . В случае поперечного скольжения ВБ должен был бы быть параллельным линии пересечения этих плоскостей, т. е.  $\mathbf{b} = [0001]$ . Тогда в данной ориентации образца по критерию  $\mathbf{b} \cdot \mathbf{g} = 0$  изображение дислокационной линии должно быть не в контрасте.

Качественно перечисленные выше проявления асимметрии дефектной структуры можно объяснить следующим образом. Рассмотрим слу-



**Рис. 3.** Электронная микрофотография образца № 3. Стрелка указывает на фрагмент линии дислокации, параллельный направлению  $[2\bar{1}\bar{1}0]$ .

чай, когда линии дислокации лежат в призматических плоскостях  $(10\bar{1}0)$  или  $(1\bar{1}00)$ . Всякая дислокационная линия по энергетическим причинам имеет тенденцию сократить свою длину и увеличить долю винтовой составляющей. Максимальная винтовая составляющая ПД реализуется, когда линия совпадает с ВБ. На рис. 2, *a* представлено изображение поперечного сечения образца вблизи поверхности. Частичные дислокации, ограничивающие ДУ, лежат в базисной плоскости и выглядят на рисунке как прямые линии, что позволяет непосредственно измерить угол между НР и осью  $c$  ( $47.6^\circ$ ). Вектор  $\mathbf{b} = \mathbf{c} + \mathbf{a}$  составляет с направлением  $c$  угол  $31.6^\circ$ , соответственно ВБ отклонен от НР на угол  $16^\circ$ . Минимальная длина ПД достигается, когда линия совпадает с нормалью к поверхности роста. Реальный угол является компромиссом этих тенденций [13] и в рассматриваемом случае находится в промежутке  $0-16^\circ$ . В полярном GaN линии дислокации с ВБ  $\mathbf{c} - \mathbf{a}$  будут отклоняться на тот же угол, что и с  $\mathbf{b} = \mathbf{c} + \mathbf{a}$ , но в противоположную сторону, т.е. будут расположены симметрично

относительно НР. В полуполярном слое векторы  $\mathbf{c} + \mathbf{a}$  и  $\mathbf{c} - \mathbf{a}$  по-разному ориентированы относительно НР (рис. 1, *b*). Угол между ними составляет  $63.2^\circ$ . Линия ПД, соответствующей  $\mathbf{b} = \mathbf{c} - \mathbf{a}$ , в ее стремлении увеличить винтовую составляющую будет отклонена от НР на больший угол, чем дислокация с  $\mathbf{b} = \mathbf{c} + \mathbf{a}$ . С другой стороны, очевидно, что чем больше линия ПД отклонена от НР, тем больше вероятность ее встречи с другой дислокацией с последующей реакцией. В результате реакции дислокация либо исчезает (аннигиляция), либо меняет ВБ. Как следствие, плотность ПД с сильно отклоненными дислокационными линиями падает быстрее и на некотором удалении от интерфейса они практически не встречаются. Аналогично можно объяснить отсутствие ПД с  $\mathbf{b} = \pm 1/3[2\bar{1}\bar{1}3]$ . Очевидно, угол отклонения этих ПД от НР больше, чем для дислокаций с  $\mathbf{b} = \mathbf{c} + \mathbf{a}$ , и их плотность быстрее спадает по мере роста слоя.

Помимо асимметрии дислокационной структуры выявлена асимметрия векторов смещения ДУ. Установлено, что ДУ относятся к типу  $I_1$ , т.е. их вектор смещения  $\mathbf{R} = 1/6\langle 20\bar{2}3 \rangle$ . В исследованных образцах отсутствовали ДУ с векторами смещения  $\mathbf{R} = \pm 1/6[0\bar{2}\bar{2}3]$  и  $\mathbf{R} = \pm 1/6[0\bar{2}23]$ . Выяснение причин этого вида асимметрии дефектной структуры является предметом дальнейших исследований.

Таким образом, дислокации всех трех видов с векторами Бюргера  $\mathbf{b} = \mathbf{c} + \mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b} = \mathbf{c}$ ,  $\mathbf{b} = \mathbf{a}$  отклоняются на разные углы от НР, что положительным образом сказывается на скорости снижения плотности ПД с ростом толщины ЭС. В результате если на расстоянии  $2\ \mu\text{m}$  от интерфейса плотность ПД составляет  $4 \cdot 10^9\ \text{cm}^{-2}$ , то у поверхности —  $3 \cdot 10^8\ \text{cm}^{-2}$ .

Исследования методом ПЭМ выполнены с использованием оборудования федерального ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“, поддержанного Министерством образования и науки РФ (уникальный идентификатор проекта RFMEFI62117X0018).

## Список литературы

- [1] <http://www.matprop.ru/>
- [2] Bernardini F., Fiorentini V., Vanderbilt D. // Phys. Rev. B. 1997. V. 56. P. R10024–R10027.
- [3] Bernardini F., Fiorentini V. // Phys. Rev. B. 1998. V. 57. P. R9427–R9430.

- [4] *Khoury M., Tottereau O., Feuillet G., Vennegues P., Zuniga-Perez J.* // *J. Appl. Phys.* 2017. V. 122. P. 105108 (1–7).
- [5] *Johnston C.F., Moram M.A., Kappers M.J., Humphreys C.J.* // *Appl. Phys. Lett.* 2009. V. 94. P. 161109 (1–3).
- [6] *Wang T.* // *Semicond. Sci. Technol.* 2016. V. 31. P. 093003 (1–26).
- [7] *Romanov A.E., Baker T.J., Nakamura S., Speck J.S.* // *J. Appl. Phys.* 2006. V. 100. P. 023522.
- [8] *Wu F., Tyagi A., Young E.C., Romanov A.E., Fujito K., DenBaars S.P., Nakamura S., Speck J.S.* // *J. Appl. Phys.* 2011. V. 109. P. 033505.
- [9] *Zhao G., Wang L., Yang S., Li H., Wei H., Han D., Wang Z.* // *Sci. Rep.* 2016. V. 6. P. 20787 (1–10).
- [10] *Бессолов В.Н., Коненкова Е.В., Кукушкин С.А., Мясоедов А.В., Осипов А.В., Родин С.Н., Щеглов М.П., Феоктистов Н.А.* // *Письма в ЖТФ.* 2014. Т. 40. В. 9. С. 48–54.
- [11] *Bessolov V., Kalmykov A., Konenkova E., Kukushkin S., Myasoedov A., Poletaev N., Rodin S.* // *J. Cryst. Growth.* 2017. V. 457. P. 202–206.
- [12] *Rouviere J.-L., Arlery M., Bourret A.* // *Microscopy of semiconducting materials.* Inst. Phys. Conf. Ser. 1997. N 157. P. 173–182.
- [13] *Mathis S.K., Romanov A.E., Chen L.F., Beltz G., Pompe W., Speck J.S.* // *Phys. Status Solidi A.* 2000. V. 179. P. 125–145.
- [14] *Sorokin L.M., Myasoedov A.V., Kalmykov A.E., Kirilenko D.A., Bessolov V.N., Kukushkin S.A.* // *Semicond. Sci. Technol.* 2015. V. 30. P. 114002 (1–6).