

02

Поверхностные поляритоны в пленках нитридов алюминия и галлия, легированных кремнием

© Н.Н. Новикова¹, В.А. Яковлев¹, С.А. Климин^{1,¶}, Т.В. Малин², А.М. Гилинский², К.С. Журавлев^{2,3}

¹ Институт спектроскопии РАН,
108840 Москва, Троицк, Россия

² Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения РАН,
630090 Новосибирск, Россия

³ Новосибирский государственный университет,
630090 Новосибирск, Россия

¶ e-mail: klimin@isan.troitsk.ru

Поступила в редакцию 25.02.2018 г.

В окончательной редакции 25.02.2018 г.

Принята к публикации 15.03.2019 г.

Измерены спектры отражения и спектры нарушенного полного внутреннего отражения сильно легированных кремнием пленок нитридов алюминия и галлия на сапфировых подложках с буферным слоем нитрида алюминия. В спектрах нарушенного полного внутреннего отражения наблюдались поверхностные фоннные и плазмон-фоннные поляритоны. Экспериментально наблюдалась высокая концентрация носителей в пленке нитрида галлия и их практическое отсутствие в пленке нитрида алюминия.

Ключевые слова: нитриды алюминия и галлия, спектры отражения, поверхностные поляритоны

DOI: 10.21883/OS.2019.07.47929.84-19

Введение

Нитриды галлия, алюминия, индия и твердые растворы на их основе (A_3 -нитриды) являются прямозонными широкозонными перспективными материалами для оптоэлектронных устройств. A_3 -нитриды находят широкое применение в фотодетекторах, светоизлучающих приборах, в полевых транзисторах, работающих под большим напряжением и при высоких температурах. Открытие широкополосной сверхлюминесценции в диапазоне 1.72–2.7 eV при возбуждении низкоэнергетическими электронными пучками, обусловленной оптическими переходами через уровни дефектов в сильно легированных донорами слоях A_3 -нитридов [1], возобновило к ним интерес как к перспективным источникам света, перестраиваемым в широком диапазоне длин волн, стимулируя всестороннее исследование этих твердых растворов. Так, в работе [2] при оптической накачке импульсным лазерным излучением с $\lambda = 266$ nm твердых растворов A_3 -нитридов, синтезированных методом молекулярно-лучевой эпитаксии, были исследованы спектральные характеристики спонтанной и стимулированной люминесценции и измерены коэффициенты усиления в них. В работе [3] проведено исследование методами рентгеновской дифрактометрии деформационных состояний и дефектной структуры эпитаксиальных слоев A_3 -нитридов состава $Al_xGa_{1-x}N$, легированных кремнием. Найдено, что для $x < 0.4$ латеральные остаточные напряжения имеют компрессионный характер, в то время как для $x > 0.4$ они становятся растягивающими.

Настоящая работа посвящена исследованию сильно легированных кремнием слоев AlN и GaN методами ИК

спектроскопии отражения и поверхностных поляритонов, что позволило обнаружить существенное отличие в концентрации свободных носителей заряда в исследуемых образцах.

Методы эксперимента

Эпитаксиальный рост образцов

Эпитаксиальные слои структур AlN и GaN толщиной ~ 1 μ m выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на установке RIBER-32 с применением аммиака в качестве источника активного азота на подложках (0001) сапфира. В качестве буферного слоя на подложках сапфира формировался слой AlN толщиной ~ 300 nm. Температура роста слоев в зависимости от состава варьировала в диапазоне от 780°C (для слоя бинарного GaN) до 940°C (для бинарного AlN). Задаваемый при росте слоев поток аммиака также изменялся от 10 (AlN) до 200 sccm (GaN). Обе структуры легировались кремнием, источником которого был силан. Для легирования образцов использовался фиксированный поток силана, $f = 0.021$ sccm. Электрофизические свойства исследуемых слоев определялись посредством измерений эффекта Холла.

Спектры отражения и нарушенного полного внутреннего отражения

Спектры отражения при комнатной температуре были измерены при помощи фурье-спектрометра BRUKER IFS66 v/s в спектральном интервале от 30 до

4500 cm^{-1} при падении излучения, близком к нормальному. Спектральное разрешение составляло 4 cm^{-1} . Из них с помощью дисперсионного анализа (ДА) были получены параметры оптических фононов. Для этого экспериментальные спектры сравнивались с расчетом, использующим формулы Френеля для отражения от многослойной структуры. Минимизация разницы этих спектров программой SCOUT [4] позволяет получить параметры слоев (толщины, а также частоты и затухание оптических фононов и плазмонов). При этом диэлектрическая проницаемость пленок предполагалась в виде

$$\epsilon(\nu) = \epsilon_\infty - \frac{\epsilon_\infty \nu_p^2}{\nu^2 + i\nu\nu_\tau} + \frac{S^2}{\nu_{\text{TO}}^2 - \nu^2 - i\nu\gamma}. \quad (1)$$

Здесь ϵ_∞ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость, ν_{TO} — частота поперечного (ТО) фонона, S — его сила осциллятора, γ — его затухание, ν_p — плазменная частота, ν_τ — частота соударений свободных носителей.

При измерении спектров нарушенного полного внутреннего отражения (НПВО) в указанных структурах могут наблюдаться поверхностные поляритоны (ПП) [5]. ПП являются нерадикационными (волновой вектор больше волнового вектора света в вакууме, $k_x > \omega/c$) электромагнитными возбуждениями, распространяющимися вдоль границ раздела. Они существуют на границе двух сред, если диэлектрические проницаемости контактирующих веществ имеют разные знаки [5–8], при этом поле ПП экспоненциально убывает при удалении от слоистой структуры и в подложку, и в вакуум. Отрицательная $\text{Re}\epsilon$ может быть либо ниже плазменной частоты при наличии в структуре свободных носителей (плазменный ПП), либо между частотами поперечного (ТО) и продольного (ЛО) фононов (фононный ПП). Следует заметить, что ПП чувствует все слои и является возбуждением всей структуры, а не отдельного ее слоя или границы.

Спектры ПП (спектры НПВО) в средней ИК области ($300\text{--}4000 \text{ cm}^{-1}$) с разрешением 4 cm^{-1} в p -поляризованном свете измерялись в геометрии Отто [9] с призмой KRS-5 при изменении угла падения света в призме от 20° до 45° . Вакуумный зазор между призмой и образцом регулировался сменой лавсановых прокладок микронной толщины. Расчет спектров ПП выполнялся при помощи программы SCOUT [4].

Результаты исследований

Спектры отражения для пленок AlN:Si и GaN:Si сильно отличаются друг от друга (рис. 1). Для пленки GaN:Si на фоне высокого отражения ниже 2000 cm^{-1} совсем нет полос, относящихся к подложке сапфира, которые хорошо видны для пленки AlN:Si. Такое отличие связано с большой разницей в проводимости пленок. Исследования эффекта Холла показали, что слой AlN:Si является практически диэлектриком, в то время как для GaN:Si концентрация электронов составляет

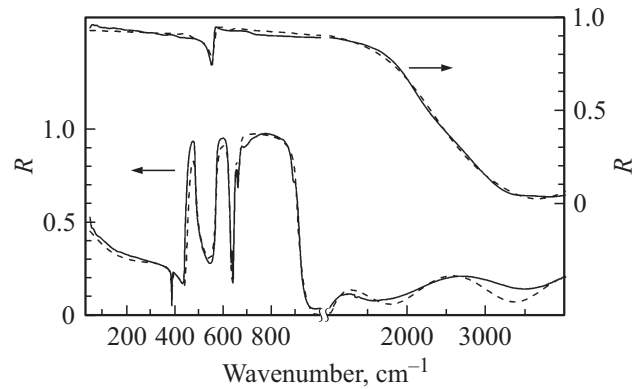


Рис. 1. Экспериментальные (сплошные линии) и расчетные (штриховые) ИК спектры отражения для пленок GaN:Si (вверху) и AlN:Si (внизу).

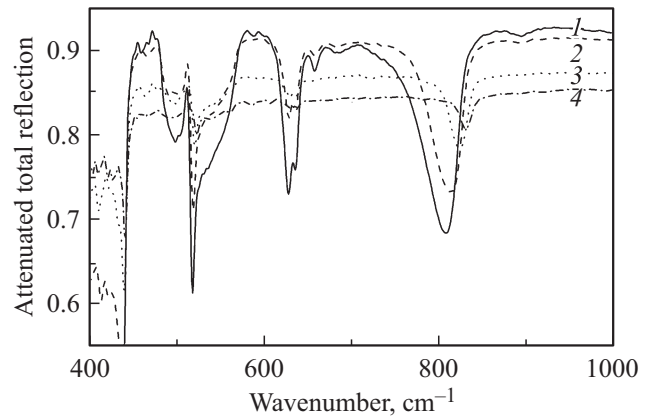


Рис. 2. Экспериментальные спектры НПВО для образца AlN:Si при 4 углах падения в призме: 1 — 30° , 2 — 32° , 3 — 36° , 4 — 40° .

$n = 1.1 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Это обуславливает металлический ход кривой отражения галлиевого образца, связанный с возбуждением плазменных мод в слое.

Экспериментальные спектры отражения (рис. 1) сравнивались с расчетом. Подгонка расчетных спектров к экспериментальным позволила получить параметры слоев (см. таблицу). Обращает внимание большая величина плазменной частоты $\nu_p = \omega_p/2\pi c$ (c — скорость света в вакууме) для слоя GaN:Si. Оценка плазменной частоты в рамках модели свободных электронов по формуле

$$\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{m\epsilon_0}}, \quad (2)$$

где n — концентрация носителей, e — заряд электрона, m — масса электрона, ϵ_0 — электрическая постоянная, дает $\nu_p \approx 3200 \text{ cm}^{-1}$, близкое к значению плазменной частоты, приведенному в таблице.

Анализ параметров показал, что, действительно, в исследуемых структурах выполняются условия для наблюдения ПП. Спектры НПВО представлены на рис. 2–4.

Параметры пленок и буферных слоев исследуемых структур. Для сапфира использовались параметры, приведенные в [10]

Structure	Layer	Thickness, nm	ϵ_∞	ν_p, cm^{-1}	ν_T, cm^{-1}	ν_{TO}, cm^{-1}	S, cm^{-1}	γ, cm^{-1}
AlN:Si	film	1120	4.83	220	69	668	1350	5
	buffer	260	4.97	117	120	688	1510	20
GaN:Si	film	412	7.89	2600	280	566	1620	11
	buffer	216	5.66	440	130	651	2060	28

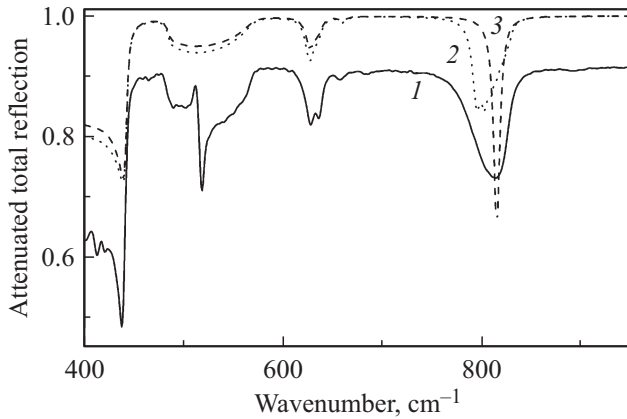


Рис. 3. Сравнение экспериментального и рассчитанных спектров НПВО для образца AlN:Si при угле падения в призме 30° : 1 — эксперимент, 2 — расчет с угловой расходимостью 4° , 3 — расчет с параметрами таблицы (параллельный пучок).

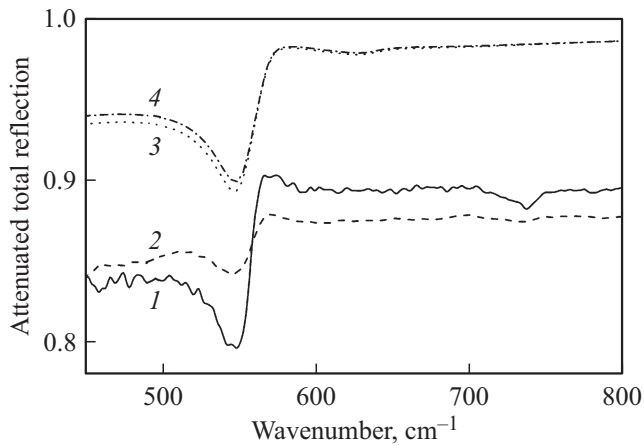


Рис. 4. Экспериментальные спектры НПВО для образца GaN в сравнении с рассчитанными: при двух углах падения в призме: 1 — эксперимент 30° , 2 — эксперимент 34° ; 3 — расчет при угле падения в призме 30° , зазор $5 \mu\text{m}$; 4 — расчет при угле падения в призме 34° , зазор $3 \mu\text{m}$.

Они также существенно различаются для двух исследуемых образцов. Для слоя AlN:Si поверхностная волна проникает глубоко внутрь и хорошо чувствует сапфировую подложку. В спектре в этом случае наблюдается значительное число пиков (фонного типа), обусловленных граничными условиями для трех сред:

воздуха, нитрида алюминия и сапфира. В случае GaN:Si большая концентрация электронов приводит к быстрому затуханию поверхностной волны и экранизации глубоко лежащих возбуждений. В результате в спектре присутствует малое число полос.

На рис. 3 и 4 расчет по полученным в результате дисперсионного анализа параметрам сравнивается с экспериментом. Для AlN:Si (рис. 3) рассчитанный ПП с частотой вблизи 830cm^{-1} (кривая 3), намного уже измеренного (кривая 1). Это обусловлено угловой расходимостью ИК излучения в призме. Если предположить расходимость $\pm 2^\circ$, различие уменьшается (кривая 2). Другое отличие между измеренным и расчетным спектрами (полоса 520cm^{-1}), возможно, связано с появлением переходного слоя между пленкой и буфером. В спектре НПВО для образца GaN:Si (рис. 4) есть один сильный пик 550cm^{-1} , который можно отнести к плазмон-фонному ПП. Второй широкий пик (преимущественно плазмонный) наблюдается между 1000 и 2000cm^{-1} .

Для построения кривых дисперсии ПП мы определяли положения минимумов в спектрах НПВО структур (призма–вакуумный зазор–пленка–буферный слой–сапфир) с полученными из ДА параметрами при разных углах падения в призме. Углы от 25° до 60° соответствуют приведенным волновым векторам ПП $\kappa_x = k_x c / \omega$ от 1 до 2, где $\kappa_x = 1$ (световая прямая) соответствует свету, распространяющемуся вдоль поверхности и над ней. Зазоры выбирались достаточно большими для минимизации влияния призмы на положение минимума.

Рассчитанные кривые дисперсии ПП обоих образцов в сравнении с экспериментальными данными представлены на рис. 5 и 6. Вертикальные линии справа показывают области отрицательной $\text{Re} \epsilon$ для каждой из трех сред. Для структуры с пленкой AlN:Si в спектральной области выше 1000cm^{-1} действительная часть диэлектрической проницаемости положительна у всех сред, поэтому верхняя кривая рис. 5 не связана с ПП, а обусловлена интерференцией в пленках. Остальные ПП — фонные, так как плазменные частоты всех сред ниже 400cm^{-1} (таблица).

У пленки GaN:Si $\text{Re} \epsilon < 0$, и верхнюю кривую рис. 6 можно отнести к плазмонному ПП. Остальные ПП — преимущественно фонные, модифицированные плазмонном пленки GaN. Рассчитанные кривые дисперсии ПП в основном согласуются с экспериментом (за исключением полосы 520cm^{-1} для пленки AlN:Si и очень слабой полосы 740cm^{-1} для пленки GaN:Si).

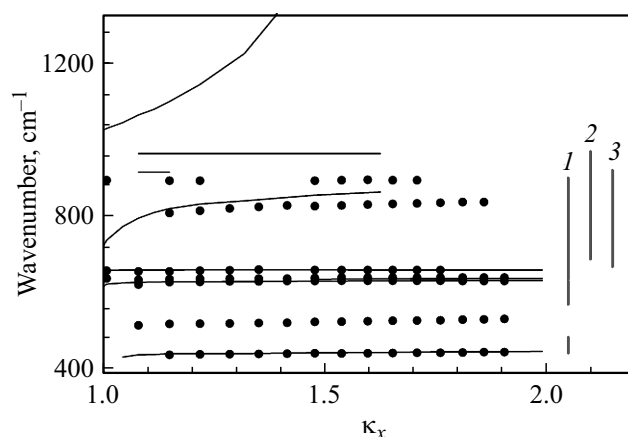


Рис. 5. Расчетные кривые дисперсии ПП для образца AlN:Si (сплошные линии) и экспериментальные данные (точки). Серые вертикальные линии показывают область отрицательной Reε для сапфировой подложки (1), буферного слоя (2) и пленки AlN:Si (3).

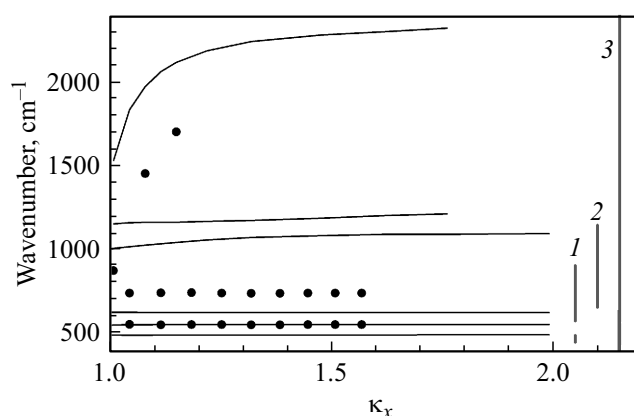


Рис. 6. Расчетные кривые дисперсии ПП для образца GaN:Si (сплошные линии) и экспериментальные данные (точки). Серые вертикальные линии показывают область отрицательной Reε для сапфировой подложки (1), буферного слоя (2) и пленки GaN:Si (3).

Выводы

Таким образом, в настоящей работе исследованы спектры отражения и НПВО легированных кремнием структур AlN и GaN на сапфировых подложках с буферным слоем AlN. Толщины и параметры фононов и плазмонов пленок получены из дисперсионного анализа спектров отражения. В спектрах НПВО таких структур впервые экспериментально наблюдались поверхностные фононные и плазмон-фононные поляритоны. Рассчитаны кривые дисперсии ПП. Измеренные частоты ПП удовлетворительно согласуются с расчетными данными. Наблюдалась высокая концентрация электронов в пленке GaN:Si и их практическое отсутствие в диэлектрике AlN:Si.

Финансирование работы

Работа поддержана Программой Президиума РАН I.7 „Современные проблемы фотоники, зондирования неоднородных сред и материалов“ (авторы ННН, САК, ВАЯ) и РФФИ, проект № 18-52-00008 (ТВМ, АМГ, КСЖ).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Bokhan P.A., Gugin P.P., Zakrevsky Dm.E., Zhuravlev K.S., Malin T.V., Osinnykh I.V., Solomonov V.I., Spirina A.V. // J. Appl. Phys. 2014. V. 116. P. 113103.
- [2] Бохан П.А., Журавлёв К.С., Закревский Дм.Э., Малин Т.В., Осинных И.В., Фатеев Н.В. // Письма в ЖТФ. 2017. Т. 43. № 1. С. 5.
- [3] Ратников В.В., Щеглов М.П., Бер Б.Я., Казанцев Д.Ю., Осинных И.В., Малин Т.В., Журавлев К.С. // ФТП. 2018. Т. 52. № 2. С. 233.
- [4] Theib W. // Surface Sci. Rep. 1997. V. 29. P. 91.
- [5] Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surfaces and Interfaces / Ed. by Agranovich V.M. Mills D.L. Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1982. 717 p.
- [6] Agranovich V.M., Malshukov A.G. // Opt. Commun. 1974. V. 11. P. 169.
- [7] Виноградов Е.А., Дорофеев И.А. // УФН. 2009. Т. 179. № 5. С. 449.
- [8] Dorofeyev I.A., Vinogradov E.A. // Phys. Rep. 2011. V. 504. P. 75.
- [9] Otto A. // Zs. Phys. 1968. V. 216. P. 398.
- [10] Barker A.S. // Phys. Rev. 1963. V. 132. P. 1474.