

13.1;07.3;06

## Ионно-лучевое осаждение тонких пленок AlN на Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

© Л.С. Лунин<sup>1,2</sup>, О.В. Девицкий<sup>1,3</sup>, И.А. Сысоев<sup>3</sup>, А.С. Пащенко<sup>1,2</sup>, И.В. Касьянов<sup>3</sup>, Д.А. Никулин<sup>3</sup>, В.А. Ирха<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Федеральный исследовательский центр Южный научный центр РАН, Ростов-на-Дону, Россия

<sup>2</sup> Южно-Российский государственный политехнический университет (НПИ) им. М.И. Платова, Новочеркасск, Россия

<sup>3</sup> Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, Россия

E-mail: lunin\_ls@mail.ru

Поступило в Редакцию 31 июля 2019 г.

В окончательной редакции 31 июля 2019 г.

Принято к публикации 17 сентября 2019 г.

Методом ионно-лучевого осаждения на сапфировых подложках выращены тонкие пленки AlN. Методами сканирующей электронной микроскопии, комбинационного рассеяния и оптической спектроскопии выявлены зависимости влияния параметров ионно-лучевого осаждения (состав рабочей газовой смеси, энергия ионного пучка, температура подложки) на морфологию, структуру и оптические свойства тонких пленок AlN на сапфире.

**Ключевые слова:** ионно-лучевое осаждение, широкозонные полупроводники, нитрид алюминия, нитрид галлия, сапфир.

DOI: 10.21883/PJTF.2019.24.48797.18006

Производство оптоэлектронных приборов на основе тонких пленок GaN на сапфире растет с каждым годом [1,2]. Эти устройства предназначены для удовлетворения возрастающего спроса на высокочастотные электронные компоненты повышенной мощности. Диапазон применения приборов на основе тонких пленок GaN крайне широк: от силовых высоковольтных источников питания до оптоволоконной связи и радиотелескопов. Однако непосредственное получение слоев GaN на сапфировых подложках на данный момент приводит к возникновению большой плотности дислокаций несоответствия на гетерогранице [3,4]. Этот эффект может быть компенсирован использованием буферных слоев, близких по параметрам кристаллической решетки к GaN [5]. Одним из перспективных путей является введение в качестве буферного слоя нитрида алюминия (AlN). Наибольшее распространение в технологии AlN получили методы молекулярно-лучевой и МОС-гидридной эпитаксии (МОС — металлоорганические соединения) [6,7]. Ионно-лучевое осаждение (ИЛО) [8] является альтернативным методом выращивания как самих пленок GaN, так и буферных слоев AlN на сапфировой подложке. Ранее этим методом также были сформированы гетероструктуры на основе A<sup>4</sup>B<sup>4</sup> [9] и A<sup>3</sup>B<sup>5</sup> [10,11].

Целью настоящей работы является выращивание методом ИЛО тонких пленок AlN, а также исследование их структурных и оптических свойств.

В качестве подложек был использован Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> с ориентацией (0001). Направление роста соответствовало гексагональной оси *c* подложки. Перед процессом ИЛО выполнялся отжиг подложки в течение 15 min при температуре 600°C. Осаждение тонких пленок AlN на сапфире осуществлялось с помощью установки ИЛО,

включающей ростовую камеру, систему откачки вакуума и ионный источник КЛАН-53. Давление в ростовой камере составляло 10<sup>-4</sup> Pa. Использовалась алюминиевая мишень чистотой 99.99%. В качестве источника N<sub>2</sub> применялась азотно-аргоновая смесь с чистотой используемых газов 99.999%. Энергия ионного пучка изменялась от 600 до 900 eV. Ток ионного пучка составлял 50–60 mA. В процессе ИЛО в зависимости от задач исследования температура подложки устанавливалась в диапазоне 600–800°C. Время осаждения составляло 60 min. Объемная доля азота C<sub>N</sub> в азотно-аргоновой смеси изменялась от 10 до 90%. Исследование морфологии поверхности проводилось методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) на микроскопе Carl Zeiss Crossbeam 340. Структурные свойства исследовались методом комбинационного рассеяния света (КРС) на оборудовании inVia Raman Microscope (Renishaw) в геометрии обратного рассеяния *z*(*xx*)*z*. Оптические спектры пропускания экспериментальных образцов были измерены на спектрометре СФ-56.

На рис. 1 представлены СЭМ-изображения поверхности тонких пленок AlN на сапфире, выращенных в различных условиях. Следует отметить общую характерную особенность. Для пленок, полученных при объемной доле азота C<sub>N</sub> < 50%, наблюдается наличие микрокапель алюминия на поверхности (рис. 1, *a*). Энергодисперсионный анализ проводился на поверхности микрокапель и на поверхности пленки. Результаты показали, что микрокапли в большей степени состоят из алюминия — 77.35 at.% (кроме того, N — 9.87%, O — 12.77%). Поверхность пленки AlN имеет нестехиометрический состав с отклонением в сторону увеличения содержания Al до 59.32%. Кроме того, наблюдается высокое

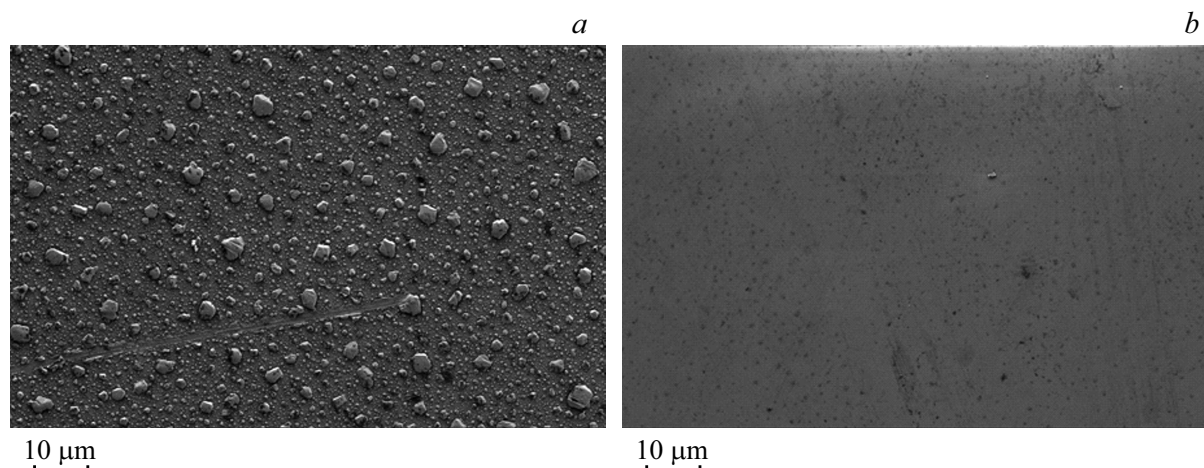


Рис. 1. СЭМ-изображение поверхностей тонких пленок AlN, выращенных методом ИЛО на сапфире.  $C_N = 30$  (a) и 90% (b).

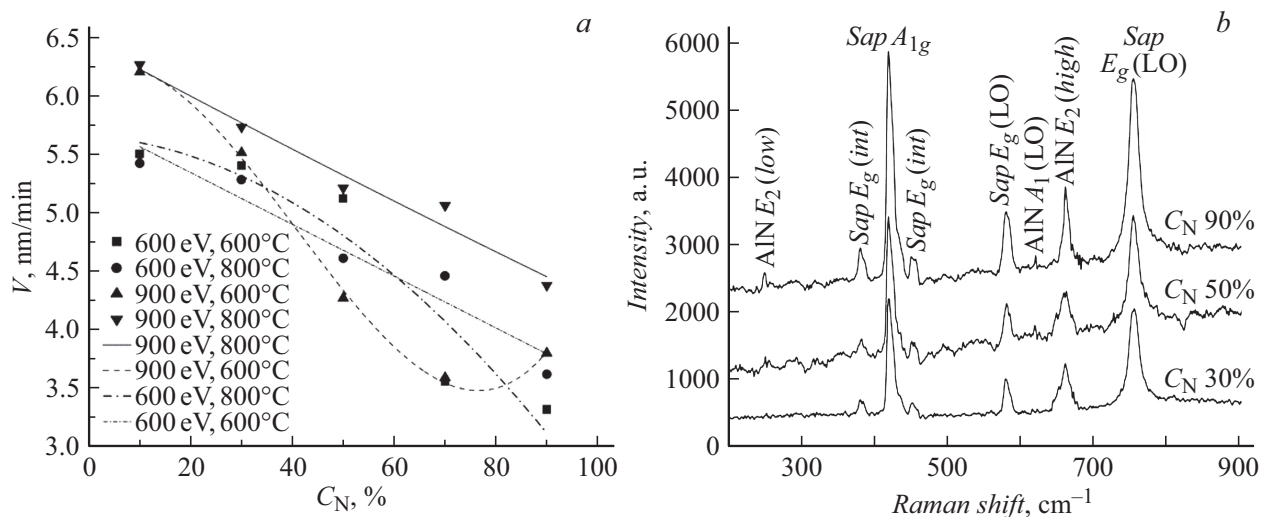


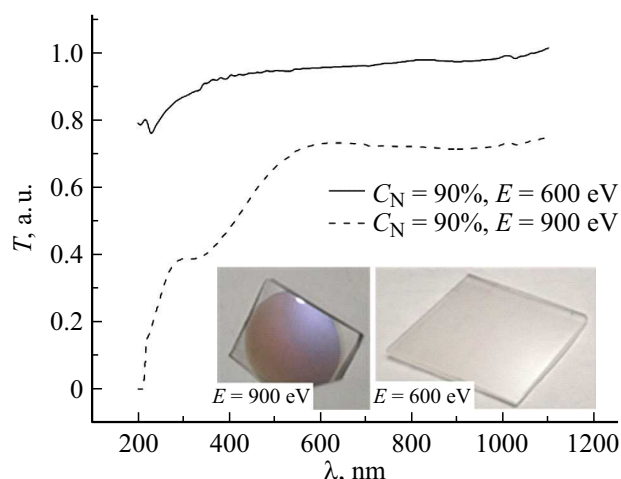
Рис. 2. Зависимость скорости осаждения (a) и спектров КРС (b) тонких пленок AlN от состава газовой смеси и условий ИЛО.

содержание O (26.17%). Для пленок AlN, выращенных с  $C_N > 50\%$ , наблюдается отсутствие микрокапель (рис. 1, b) и выравнивание стехиометрического состава. Тем не менее на поверхности присутствуют дислокации, вероятно вызванные различием термических коэффициентов расширения пленки AlN и сапфировой подложки.

В работе исследована зависимость скорости осаждения пленки AlN от состава азотно-аргоновой газовой смеси. Результаты представлены на рис. 2, a. При температуре подложки  $800^\circ\text{C}$  наблюдается повышенное влияние процесса „нитридации“ поверхности подложки, что приводит к расхождению первоначально параллельных кривых зависимости скорости роста пленки для разных режимов и постепенному снижению общей скорости роста пленки вследствие увеличивающегося числа диффундирующих по поверхности  $\text{Al}_2\text{O}_3$  атомов  $\text{N}_2$ . При  $C_N = 90\%$  скорость осаждения пленки AlN

достигает минимальных значений (рис. 2, a). Этот факт можно объяснить различием коэффициентов распыления Al ионами аргона и азота.

Далее необходимо было изучить влияние состава азотно-аргоновой газовой смеси на структурные свойства тонких пленок AlN. Результаты приведены на рис. 2, b. В таких условиях наблюдались три связанных с AlN оптических фонона: высокий  $E_2$  (high) при  $659\text{ cm}^{-1}$ , продольный  $A_1$  (LO) при  $619\text{ cm}^{-1}$  и низкий  $E_2$  (low) при  $250\text{ cm}^{-1}$ . Кристаллическое совершенство тонких пленок можно оценить исходя из измерений полной ширины на половине высоты пика (FWHM) значения фононной моды  $E_2$  (high) в спектрах КРС. Из рис. 2, b видно, что тонкие пленки AlN, полученные при  $C_N = 90\%$ , обладают наибольшим кристаллическим совершенством, для них величина FWHM  $E_2$  (high) составляет  $4.8\text{ cm}^{-1}$ . Также необходимо отметить, что в спектрах комбинационного рассеяния наблюдается про-



**Рис. 3.** Спектры пропускания тонких пленок AlN на сапфире. Штриховая линия —  $C_N = 90\%$ ,  $T = 800^\circ\text{C}$  и  $E = 900\text{ eV}$ ; сплошная —  $C_N = 90\%$ ,  $T = 800^\circ\text{C}$  и  $E = 600\text{ eV}$ .

дольная оптическая мода  $A_1(\text{LO})$ , которая запрещена в данной геометрии рассеяния. Вероятно, появление этой фоновой моды объясняется тем, что в тонкой пленке AlN существует некоторое отклонение гексагональной оси  $c$ , нарушающее симметрию в кристаллической решетке AlN.

Значение коэффициента пропускания является критическим показателем для многих изделий оптоэлектроники. В частности, для синих и белых светодиодов наиболее важным показателем является область светопропускания в диапазоне 400–450 nm. С этой целью нами были изучены спектры пропускания экспериментальных образцов, полученных при  $C_N = 90\%$ ,  $T = 800^\circ\text{C}$  и энергиях ионного пучка 600 и 900 eV соответственно. Результаты представлены на рис. 3. Величина коэффициента пропускания (кривая, соответствующая  $E = 600\text{ eV}$ ) во всем оптическом диапазоне длин волн составляет не менее 92%, что характеризует данный образец AlN/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> как оптически прозрачный. Фотоснимок образца пленки, изображенный на вставке, позволяет увидеть оптическое качество полученной пленки невооруженным глазом. Спектр пропускания, соответствующий энергии  $E = 900\text{ eV}$ , показывает значительно худшие результаты. В видимом диапазоне наблюдается сильное поглощение на длинах волн от 400 до 550 nm с коэффициентом пропускания 48–70%. Ухудшение оптических свойств можно объяснить влиянием параметров осаждения ( $C_N = 90\%$ ,  $T = 800^\circ\text{C}$  и  $E = 900\text{ eV}$ ), не обеспечивающих осаждение стехиометрического состава пленки AlN, а приводящих, вероятно, к осаждению аморфной структуры в виде твердых растворов Al–N–O.

Таким образом, методом ИЛО были выращены тонкие пленки AlN на подложке Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Методами сканирующей электронной микроскопии, энергодисперсионного анализа и КРС показано, что пленки AlN, полученные

при объемной доле азота  $C_N > 50\%$  в азотно-аргоновой газовой смеси, имеют состав, близкий к стехиометрическому. Результаты исследования оптических спектров пропускания показали, что для выращивания методом ИЛО пленок AlN с высокими значениями коэффициента пропускания (92%) необходимо уменьшать энергию ионного пучка до 600 eV и повышать долю N<sub>2</sub> в азотно-аргоновой газовой смеси до 90%. Полученные экспериментальные данные свидетельствуют о перспективности применения метода ИЛО для выращивания буферных слоев AlN на сапфире для оптоэлектронных устройств.

### Финансирование работы

Публикация подготовлена в рамках государственных заданий Федерального исследовательского центра Южного научного центра РАН на 2019 г. (номера госрегистрации 01201354240 и АААА-А19-119040390081-2).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] *Ryou J.-H., Lee W.* GaN on sapphire substrates for visible light-emitting diodes // Nitride semiconductor light-emitting diodes (LEDs): materials, technologies, and applications / Eds J.J. Huang, H.-C. Kuo, S.-C. Shen. 2nd ed. Amsterdam, Netherlands: Elsevier, 2018. Ch. 3. P. 43–78. DOI: 10.1016/C2016-0-01551-6. 2014
- [2] *Nishikawa A., Loesing A., Slischka B.* Achieving high uniformity and yield of 200 mm GaN-on-Si LED epiwafers for micro LED applications with precise strain-engineering // SID Symp. Digest of technical papers. 2019. V. 50. N 1. P. 338–341. DOI: 10.1002/sdtp.12925
- [3] *Sadasivan V., Mathew M.* Direct Epitaxial lateral overgrowth of GaN on sapphire // Int. Workshop on the physics of semiconductor and devices. Cham: Springer, 2017. P. 263–267.
- [4] *Wang W.-K., Huang S.-Y., Jiang M.-C., Wu D.-S.* // Appl. Sci. 2017. V. 7. N 1. P. 87. DOI: 10.3390/app7010087
- [5] *Dixit R., Tyagi P., Kushvaha S.S., Chockalingam S., Yadav B., Sharma N.D., Kumar M.S.* // Opt. Mater. 2017. V. 66. P. 142–148. DOI: 10.1016/j.optmat.2017.01.053
- [6] *Hentschel R., Gärtner J., Wachowiak A., Großer A., Mikolajick T., Schmult S.* // J. Cryst. Growth. 2018. V. 500. P. 1–4. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2018.07.026
- [7] *Kueller V., Knauer A., Brunner F., Zeimer U., Rodriguez H., Kneissl M., Weyers M.* // J. Cryst. Growth. 2011. V. 315. N 1. P. 200–203. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2010.06.040
- [8] *Six S., Gerlach J.W., Rauschenbach B.* // Surf. Coat. Technol. 2001. V. 142-144. P. 397–401. DOI: 10.1016/S0257-8972(01)01133-1

- [9] Чеботарев С.Н., Пащенко А.С., Лунин Л.С., Ирха В.А. // Письма в ЖТФ. 2013. Т. 39. В. 16. С. 30–37.
- [10] Чеботарев С.Н., Пащенко А.С., Williamson A., Лунин Л.С., Ирха В.А., Гамидов В.А. // Письма в ЖТФ. 2015. Т. 41. В. 13. С. 102–110.
- [11] Pashchenko A.S., Lunin L.S., Danilina E.M., Chebotarev S.N. // Beilst. J. Nanotechnol. 2018. N 9. P. 2794–2801. DOI: 10.3762/bjnano.9.261