

06

Повышение эффективности фильтрации прорастающих дислокаций в темплейтах AlN/c-Al₂O₃ с фасетированной морфологией поверхности во время их роста методом молекулярно-пучковой эпитаксии

© А.В. Мясоедов, Д.В. Нечаев, В.В. Ратников, А.Е. Калмыков, Л.М. Сорокин, В.Н. Жмерик

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия
E-mail: amyasoedov88@gmail.com

Поступило в Редакцию 10 марта 2020 г.

В окончательной редакции 10 марта 2020 г.

Принято к публикации 11 марта 2020 г.

Приведены результаты исследования методами просвечивающей электронной микроскопии и рентгеновской дифрактометрии темплейтов AlN/c-Al₂O₃ с ультратонкими вставками GaN, выращенных методом плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии. Показано, что буферные слои AlN с фасетированной морфологией поверхности обеспечивают большее снижение плотности прорастающих дислокаций, чем гладкие слои. Подтверждено фильтрующее действие ультратонких вставок GaN.

Ключевые слова: темплейты AlN/c-сапфир, прорастающие дислокации, молекулярно-пучковая эпитаксия, рентгеновская дифрактометрия.

DOI: 10.21883/PJTF.2020.11.49495.18280

Нитридные соединения (Al,Ga)N являются прямозонными полупроводниками, что позволяет изготавливать на их основе источники и фотоприемники излучения среднего ультрафиолетового диапазона [1], которые находят применение в промышленности, науке, медицине [2]. Однако применение собственных подложек для гомоэпитаксии в настоящее время ограничено из-за их высокой стоимости, и разработка доступных методов получения последних все еще является актуальной задачей [3–5]. Это обстоятельство приводит к тому, что подавляющее число приборных структур получают с помощью гетероэпитаксии, в частности, на подложках c-Al₂O₃. Значительное рассогласование параметров решеток в гетероструктуре AlN/c-Al₂O₃ обуславливает высокие плотности прорастающих дислокаций (ПД) в активных областях приборов, что вызывает деградацию их параметров [2]. Поэтому важно разрабатывать способы подавления зарождения ПД вблизи интерфейса AlN/c-Al₂O₃ и методы ограничения их распространения (фильтрации) во время роста буферных слоев в темплейтах AlN с толщиной до нескольких микрометров.

В работе методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) и рентгеновской дифрактометрии (РД) исследуется влияние морфологии ростовой поверхности темплейтов AlN/c-Al₂O₃ на снижение плотности ПД, а также возможность применения с этой целью ультратонких вставок GaN.

Два темплейта AlN были выращены на подложках c-Al₂O₃ методом плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии с использованием установки Comcraft 21T (Riber) [6]. Зародышевые слои толщиной ~ 65 nm были выращены в режиме импульсной эпитак-

сии с повышенной миграцией адатомов [7] при температуре подложки 770°C, которая контролировалась ИК-пирометром. Затем с помощью металл-модулированной эпитаксии (ММЭ) выращивались буферные слои AlN толщиной ~ 2 μm при одинаковых значениях температуры 770°C и потока активированного азота 0.44 ML/s, но при различных значениях потока Al: 0.60 ML/s (образец № 1) и 0.47 ML/s (образец № 2), что приводило к росту в сильно и слабо металлогобогащенных (Al) условиях соответственно. Для фильтрации ПД использовались вставки GaN с номинальной толщиной ~ 3.5 nm, которые были выращены при температуре 740°C в слегка азотобогащенных условиях, задававшихся потоками азота и галлия 0.44 и 0.41 ML/s соответственно.

Темплейты исследовались с помощью просвечивающего электронного микроскопа Philips EM420 при ускоряющем напряжении 100 kV. Образцы были приготовлены с использованием стандартной для ПЭМ методики, включающей резку, полировку с последующим ионным травлением ионами Ag⁺ с энергией в диапазоне от 4 до 1 keV. Исследования методом РД проводились на дифрактометре ДРОН-2.0 на основе двух- и трехкристалльных измерений полуширин симметричного 0002 и кососимметричного 10 $\bar{1}$ 1 рефлексов в геометрии Брэгга с использованием CuK α 1-излучения.

В III-нитридах с вюрцитной структурой возможны три типа полных дислокаций [8], характеризуемых векторами Бюргерса: $\mathbf{b}_a = \mathbf{a}$, $\mathbf{b}_c = \mathbf{c}$ и $\mathbf{b}_{a+c} = \mathbf{a} + \mathbf{c}$ соответственно, где \mathbf{a} и \mathbf{c} — основные векторы трансляции гексагональной решетки. С учетом того, что преимущественное направление распространения ПД совпадает с нормалью

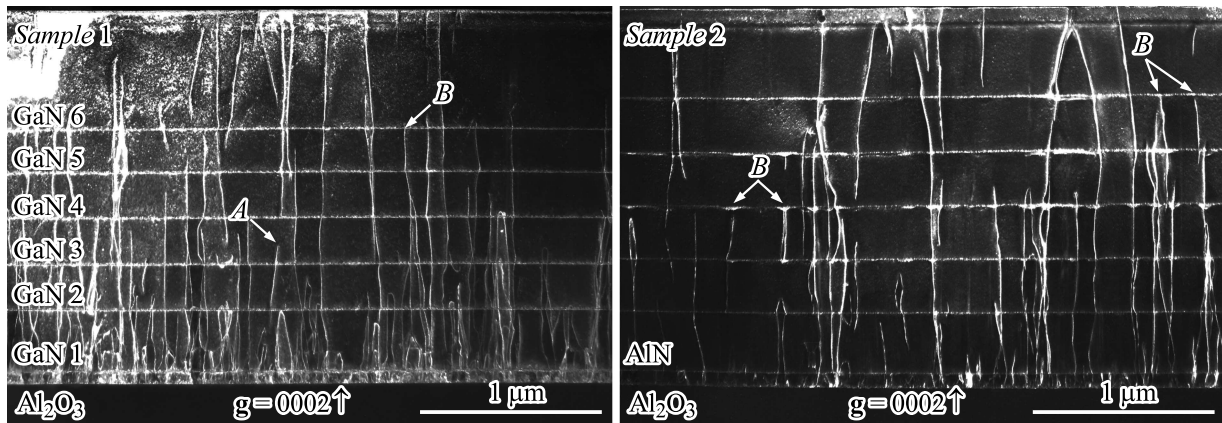


Рис. 1. Темнопольные ПЭМ-изображения поперечных сечений темплетов AlN/c-Al₂O₃ образцов № 1 и 2 в отражении $g = 0002$. Вставки GaN пронумерованы на изображении для образца № 1.

к подложке, эти дислокации относят к краевому, винтовому и смешанному типу соответственно.

Рассмотрим сначала ПД с ненулевой винтовой компонентой, ПЭМ-изображения которых были получены в соответствующих дифракционных условиях и представлены на рис. 1. Большинство линий дислокаций имеют небольшой наклон относительно направления роста. Такой наклон характерен для дислокаций смешанного типа и, согласно [9], обусловлен стремлением ПД снизить связанную с ней энергию путем сокращения длины и увеличения винтовой составляющей. Максимальная винтовая составляющая ПД достигается, когда дислокационная линия направлена вдоль вектора Бюргерса \mathbf{b} , в данном случае \mathbf{b}_{a+c} . Минимальная длина ПД реализуется, когда линия совпадает с направлением роста, в данном случае совпадающим с вектором \mathbf{c} . В результате направление линии смешанной ПД занимает промежуточное положение между векторами \mathbf{c} и $\mathbf{a} + \mathbf{c}$. При измерениях углов наклона нужно учитывать только максимальные углы, так как из всех призматических плоскостей только две параллельны плоскости ПЭМ-изображения и угол наклона ϕ отображается без искажения.

Оценим угол наклона линии дислокации путем расчета такого угла ϕ между направлением линии дислокации и ее вектором Бюргерса, при котором достигается минимум энергии, связанной с этой дислокацией. Упругую энергию, обусловленную дислокацией, можно рассчитать с помощью соотношения [9]:

$$E(h, \phi) = \frac{\mu \mathbf{b}^2}{4\pi} \frac{h}{\cos(\theta - \phi)} \left(\cos^2 \phi + \frac{\sin^2 \phi}{1 - \nu} \right) \ln \left(\frac{\alpha R}{|\mathbf{b}|} \right),$$

где μ — модуль сдвига; $\nu = 0.287$ [10] — коэффициент Пуассона; \mathbf{b} — вектор Бюргерса; h — толщина эпитаксиального слоя; ϕ — угол между вектором Бюргерса и линией дислокации l ; θ — угол между вектором Бюргерса и направлением роста; R — радиус экранирования; α — параметр, учитывающий вклад ядра дислокации.

Решая уравнение $dE/d\phi = 0$, находим равновесное значение угла ϕ . Искомое отклонение $\phi = \theta - \phi$. Рассчитанное значение составило 16° , в то же время измерение максимального угла ϕ дает значение 14° для образца № 1 и 24° для образца № 2.

Расхождение значений для образца № 2 мы связываем со специфической морфологией ростовой поверхности на этапе роста в слабо металлобогатенных условиях. Наличие вставок GaN позволило зафиксировать морфологию поверхности буферного слоя AlN на различных этапах его роста. На ПЭМ-изображении образца № 1 (рис. 1) все вставки GaN выглядят как тонкие прямые полосы, а на изображении образца № 2 зафиксированы дефекты поверхности в виде фасетированных ямок. Можно предположить, что образец № 1 был выращен в двумерном (2D) режиме, а рост образца № 2 между второй и пятой вставками GaN (т.е. при толщине слоя AlN от 0.5 до 1.3 μm) проходил в переходном 2D–3D-режиме, при котором ростовая поверхность сформирована наклонными относительно базисной плоскости фасетками. Силы изображения, действующие на ПД со стороны наклонных граней фасетированной поверхности, увеличивают угол отклонения ПД [11].

Наклон линий ПД приводит в ряде случаев к их сближению и междислокационным реакциям (рис. 1), результатом которых может быть аннигиляция ПД с образованием полупетель и соответственно снижение плотности ПД. На рис. 1 видны линии ПД, которые обрываются в слоях AlN (тип A), и линии, которые обрываются на вставках GaN (тип B). Обрыв линий типа A, безусловно, связан с выходом ПД на поверхность образца. Прекращение распространения ПД типа B, как нам удалось показать (рис. 2, c), связано с фильтрующим действием вставок GaN. На рис. 2, b, c представлена электронная микрофотография образца № 2, ориентация которого изменена относительно ориентации на рис. 2, a поворотом вокруг оси $[11\bar{2}0]$ на угол $\sim 40^\circ$. Стрелка показывает изменение направления распространения ПД

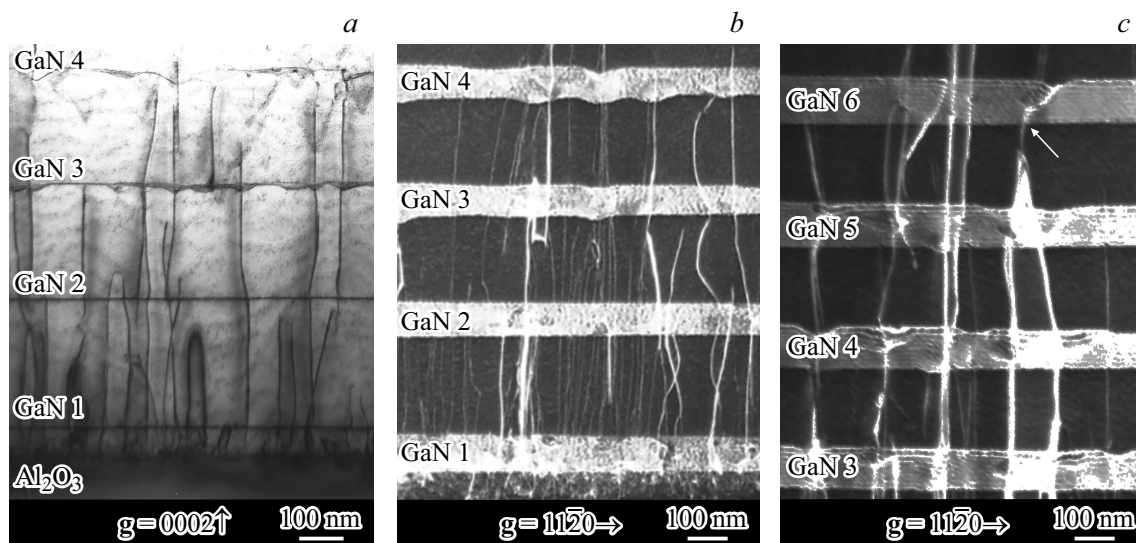


Рис. 2. ПЭМ-изображения образца № 2. *a* — светлопольное ПЭМ-изображение при $g = 0002$, на третьей и четвертой вставках GaN (GaN 3 и GaN 4) наблюдаются фасетированные ямки; *b*, *c* — темнопольные ПЭМ-изображения, полученные при развороте образца вокруг оси $[11\bar{2}0]$ на угол $\sim 40^\circ$ при $g = 11\bar{2}0$: *b* — пример наклона и аннигиляции ПД с образованием полупетель, *c* — пример перехода смешанной ПД в плоскость интерфейса GaN/AlN, который указан стрелкой.

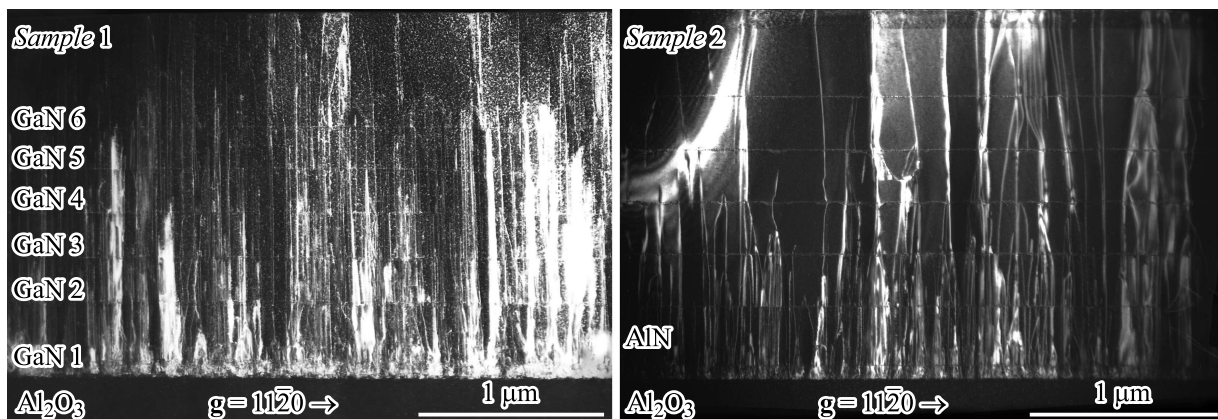


Рис. 3. Темнопольные ПЭМ-изображения поперечных сечений темплетов AlN/*c*-Al₂O₃ образцов № 1 и 2 в отражении $g = 11\bar{2}0$. Вставки GaN пронумерованы на изображении для образца № 1.

в результате встречи со вставкой, далее ПД продолжает свое распространение уже в плоскости интерфейса со вставкой, становясь дислокацией несоответствия. Плотности ПД на рис. 1, где в контрасте находятся винтовые и смешанные дислокации (с ненулевой винтовой компонентой), приблизительно одинаковы, хотя общие плотности ПД (включая краевые), согласно результатам ПЭМ-исследования образцов № 1 и 2 в планарной геометрии (см. таблицу), сильно различаются и составляют $3.4 \cdot 10^{10}$ и $0.8 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ соответственно. Из этих данных следует, что краевые ПД являются основными, и именно их поведение рассматривается далее.

На рис. 3 показано существенно различное поведение краевых ПД в образцах № 1 и 2. В образце № 1 линии этих дислокаций представляют собой прямые вдоль оси

c, а в образце № 2 прямые дислокационные линии не наблюдаются. Очевидно, что наличие вставок GaN не оказывает никакого влияния на плотность краевых ПД.

Необходимым условием сближения и последующей реакции между двумя ПД является отклонение направления их распространения от направления роста. Как показано на рис. 3, для краевых ПД в образце № 1 это условие не выполняется, чем и объясняется их высокая плотность на ростовой поверхности. В образце № 2 пирамидальные фасетки на ростовой поверхности вызывают необходимое для снижения плотности краевых ПД отклонение линий дислокаций от нормального к подложке (рис. 2, *b* и 3).

Данные РД подтвердили высокое структурное качество образца № 2 по сравнению с образцом № 1.

Результаты РД-измерений образцов № 1 и 2 ($N_{\text{ТЕМ}}$ — значения плотности дислокаций по данным ПЭМ)

Номер образца	W_s , arcsec 0002	W_e , arcsec 10 $\bar{1}1$	N_s , 10^9 cm^{-2}	N_e , 10^{10} cm^{-2}	$N_{\text{ТЕМ}}$, 10^{10} cm^{-2}
1	736	2670	1.2	4.0	3.4
2	560	1700	0.7	1.6	0.8

Измерения на трехкристальном дифрактометре угловой ширины на половине максимума интенсивности (далее полуширины W_s) рефлекса 0002 при ω -сканировании давали информацию о разупорядочении плоскостей (0001), параллельных поверхности. Это искажение кристаллической решетки связано с присутствием в слоях ПД с винтовой компонентой \mathbf{b}_c и плотностью N_s , параллельных нормали к растущей поверхности. Плотность N_e ПД с краевой компонентой \mathbf{b}_a оценивалась из измерений полуширины дифракционной кривой 10 $\bar{1}1$, получаемой на двухкристальном дифрактометре со щелью перед счетчиком в кососимметричной геометрии Брэгга (W_e) [12]. Использование измерения полуширины W_e рефлекса 10 $\bar{1}1$ дает существенно меньшую ошибку при оценке N_e , чем использование полуширин для рефлексов 10 $\bar{1}l$ с большими l [13]. Значения полуширины в этом случае определяются главным образом ПД с векторами Бюргерса \mathbf{b}_a . Плотности винтовых и краевых ПД рассчитывались в рамках мозаичной модели [14] по формуле $N_i = W_i^2 / (4.35b_i^2)$, где $i = s, e$ относятся к винтовым и краевым ПД соответственно. Результаты РД-измерений приведены в таблице.

Из таблицы видно, что для образца № 2 плотности как винтовых, так и краевых ПД существенно ниже, чем для образца № 1. Более высокое значение плотности ПД, полученное методом РД, по сравнению со значением, полученным с помощью ПЭМ, можно объяснить тем, что методом РД измерялось среднее значение ПД по всей толщине образца, а методом ПЭМ — в верхней части темплейта, где плотность ПД минимальна.

Таким образом, на основе анализа ПЭМ-изображений и данных РД для обоих темплейтов установлено, что в образце № 2 с фасетированной (2D–3D) морфологией, формировавшейся вследствие его роста с использованием ММЭ в слабо металллобогатенных условиях, наблюдаются меньшие плотности ПД, чем в случае образца № 1 с 2D-поверхностью, достигнутой из-за сильно металллобогатенных условий ММЭ во время его роста. Кроме того, показано, что в обоих образцах ультратонкие вставки GaN с трехмерной морфологией эффективно снижают плотность ПД с ненулевой винтовой компонентой за счет перехода части дислокаций в плоскости интерфейсов GaN/AlN.

Благодарности

Исследования методом ПЭМ выполнены с использованием оборудования федерального ЦКП „Материала-

ловедение и диагностика в передовых технологиях“, поддержанного Минобрнауки России (уникальный идентификатор проекта RFMEFI62117X0018).

Финансирование работы

Исследование структурных свойств слоев AlN проведено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 19-29-12041 мк). Исследования эпитаксиального роста структур выполнены частично при поддержке Российского научного фонда (проект № 19-72-30040).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] *Moustakas T.D., Paiella R.* // Rep. Prog. Phys. 2017. V. 80. P. 106501.
- [2] *Hirayama H.* Recent progress in AlGaIn deep-UV LEDs // Light-emitting diode. An outlook on the empirical features and its recent technological advancements. InTech, 2018. P. 127–158.
- [3] *Hartmann C., Dittmar A., Wollweber J., Bickermann M.* // Semicond. Sci. Technol. 2014. V. 29. P. 084002.
- [4] *Sumathi R.R., Gille P.* // J. Mater. Sci.: Mater. Electron. 2014. V. 25. P. 3733–3741.
- [5] *Argunova T.S., Gutkin M.Yu., Je J.H., Kalmykov A.E., Kazarova O.P., Mokhov E.N., Mikaelyan K.N., Myasoedov A.V., Sorokin L.M., Shcherbachev K.D.* // Crystals. 2017. V. 7. P. 163–175.
- [6] *Jmerik V.N., Nechaev D.V., Ivanov S.V.* Kinetics of metal-rich PA molecular beam epitaxy of AlGaIn heterostructures for mid-UV photonics // Molecular beam epitaxy: from research to mass production / Ed. M. Henini. 2nd ed. Elsevier Inc., 2018. Ch. 8. P. 135–179.
- [7] *Nechaev D.V., Aseev P.A., Jmerik V.N., Brunkov P.N., Kuznetsova Y.V., Sitnikova A.A., Ratnikov V.V., Ivanov S.V.* // J. Cryst. Growth. 2013. V. 378. P. 319–322.
- [8] *Rouviere J.-L., Arlery M., Bourret A.* // Microscopy of semiconducting materials. Int. Phys. Conf. Ser. N 157. London: IOP Publ., 1997. P. 173–182.
- [9] *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.
- [10] http://www.matprop.ru/AlN_mechanic
- [11] *Hull D., Bacon D.J.* Introduction to dislocations. 5th ed. Amsterdam: Elsevier, 2011. 257 p.

- [12] *Srikant V., Speck J.S., Clarke D.R.* // J. Appl. Phys. 1997. V. 82. P. 4286–4295.
- [13] *Heinke H., Kirchner V., Einfeldt S., Hommel D.* // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 77. P. 2145–2147.
- [14] *Metzger T., Höpler R., Born E., Ambacher O., Stutzmann M., Stömmer R., Schuster M., Göbel H., Christiansen S., Albrecht M., Strunk H.P.* // Phil. Mag. A. 1998. V. 77. P. 1013–1025.