

06;12

Получение эпитаксиальных слоев оксида цинка на неориентирующих подложках

© Б.М. Атаев, И.К. Камиллов, А.М. Багамадова, В.В. Мамедов, А.К. Омаев, М.Х. Рабаданов

Институт физики Дагестанского научного центра РАН,
367003 Махачкала, Россия

(Поступило в Редакцию 11 января 1999 г.)

Сообщается о первых экспериментах по выращиванию монокристаллических слоев оксида цинка на неориентирующих подложках (поликор и плавленный кварц) методом химических транспортных реакций (ХТР) в проточном реакторе пониженного давления в атмосфере водорода. Для обеспечения автоэпитаксии на поверхность неориентирующей подложки предварительно методом магнетронного распыления нанесен оптимизированный промежуточный слой оксида цинка толщиной 200–1000 Å, представляющий собой текстуру базисной ориентации вне зависимости от ориентирующих свойств подложек. Показано, что последующее выращивание слоев на такой поверхности методом ХТР до толщин 1–5 обеспечивает высокое структурное совершенство, однородность и очень гладкую поверхность, в то время как на части поверхности без буферного слоя осаждаются поликристаллические пленки. Предложенный метод может быть использован для выращивания гетероэпитаксиальных структур и других электронных материалов на неориентирующих подложках методом ХТР.

Получение эпитаксиальных слоев (ЭС) на неориентирующих подложках — поверхности керамики, стекла, плавленного кварца, тугоплавких металлов и т.д. или на поверхности полупроводников с сильно отличающимися постоянными решеток является довольно сложной, но привлекательной задачей для многих прикладных направлений электроники.

Известны подходы с использованием графоэпитаксии (искусственной эпитаксии) [1] и, в частности, получение ЭС оксида цинка на аморфной поверхности кремниевых пластин с рельефом в виде одномерной решетки [2]. Известно также об использовании тонких промежуточных слоев, полученных магнетронным распылением (метод позволяет получить текстурированные слои базисной ориентации с хорошей адгезией и на неориентирующих подложках), для усовершенствования структуры и однородности ЭС оксида цинка на сапфире [3], где показано, что существенный эффект может быть достигнут даже в случае ориентированных подложек за счет включения механизма автоэпитаксии. Другие работы, где удавалось получить ЭС на неориентирующих подложках, нам неизвестны.

В данной работе использованы тонкие (200–1000 Å) промежуточные текстурированные слои ZnO, полученные методом магнетронного распыления (ММР), с целью выращивания ЭП ZnO высокого качества на неориентирующих подложках (поликор и плавленный кварц) в проточном реакторе пониженного давления (ПРПД) методом ХТР. Дополнительный интерес представляло также изучение возможности стабилизации роста слоев базисной ориентации при химическом транспорте, поскольку получение ЭС оксида цинка этой ориентации даже на таких хорошо ориентированных подложках, как (0001) Al₂O₃, сопряжено с определенными затруднениями [4].

Для эксперимента использовались подложки 20 × 15 mm поликора и плавленного кварца как материалы, выдерживающие температуру выше 900 К и обладающие высокими механическими свойствами. Промежуточные слои наносились ММР на постоянном токе с использованием таблеток — мишеней диаметром 4 см и толщиной 2–3 мм. С целью обеспечения устойчивого разряда при *dc*-магнетронном распылении в атмосфере Ar:O₂ = 4 : 1 в порошок ZnO чистоты ОСЧ добавлялся 1% Ga₂O₃ по весу (для *rf*-распыления этого не требуется), смесь тщательно перемешивалась и после прессования мишень отжигалась при 1400 К в течение 10–12 h. Ток разряда не превышал 100 mA, толщина слоев контролировалась по времени распыления и составляла 200–1000 Å. Промежуточный слой наносился только на половину площади подложки, что обеспечивало ряд удобств для сравнительных измерений и исключало неточности, связанные с возможной невоспроизводимостью технологических параметров при раздельном выращивании слоев с использованием буферного слоя и без него. После нанесения промежуточного слоя подложки переносились в ПРПД, описание которого и способ оптимизации температурных режимов в зонах испарения и осаждения приведены в [5]. При этом использовались таблетки из ОСЧ ZnO диаметром 3 см и длиной 3 см. Толщина ЭС достигала 1–5 μm. Структурное совершенство контролировалось рентгенодифракционным и электронографическим методами. Изучались также особенности экситонной люминесценции с обоих участков подложки: там, где поликристаллические слои, и там, где ЭС на оптимизированных буферных слоях.

Рентгенодифракционные исследования проводились на дифрактометре ДРОН-2 с использованием Cu K_α-излучения, монохроматизированного с помощью кристалла пирографита. На рис. 1 приведены дифрактограммы

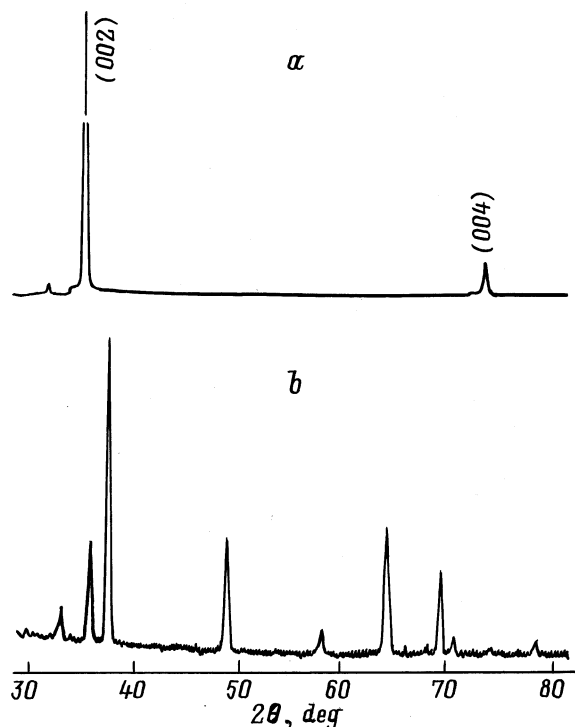


Рис. 1. Дифрактограммы пленок ZnO, полученных методом ХТР с буферным слоем (*a*) и на чистой поверхности плавленого кварца (*b*).

слоев оксида цинка: *a* — получена с части подложки с предварительно нанесенным промежуточным слоем, *b* — без промежуточного слоя на чистой поверхности плавленого кварца. Можно видеть, что дифрактограмма *a* соответствует высокоориентированным слоям с базисной ориентацией, в то время как *b* — характерная дифрактограмма поликристаллических пленок оксида цинка. Наличие только ряда отражений (*00l*) на дифрактограмме *a* не позволяет еще делать окончательный вывод о монокристалличности слоев, поскольку в использованном методе фокусировки отражения появляются только от блоков, параллельных поверхности пленки. Поэтому слои дополнительно исследовались на электронографе ЭМР-100. Характерная электронограмма приведена на рис. 2. На основании совместных исследований делался вывод о монокристалличности пленок, полученных с использованием промежуточных слоев. Изучение кривых качания вокруг пика (*002*) показало, что угол разориентации блоков не превышает 0.5° . Заметим также, что результаты структурного анализа показывают сравнимое качество слоев на неориентирующей подложке с промежуточным покрытием при сопоставлении даже с ориентирующей (см., например, [6], где описаны слои (*1120*) ZnO/(*0112*) Al₂O₃, полученные ММР). Изучение морфологии поверхности подтверждает полученные результаты.

Отдельный интерес представляло исследование ультрафиолетовой фотолюминесценции (УФЛ) ЭС ZnO, по-

скольку особенности тонкой структуры экситонных спектров дают дополнительную информацию о совершенстве кристаллической решетки (см., например, [7]). Изучались спектры УФЛ при 77 К с обоих участков подложки плавленого кварца: ЭС с использованием буферных слоев и поликристаллических пленок оксида цинка. На рис. 3 приведены соответствующие спектры, полученные на стандартной установке с использованием монохроматора SPM-2. Спектр *a* характерен для совершенной кристаллической структуры и обладает преобладающим излучением в линию свободного экситона A1 и менее интенсивным излучением в полосе связанного экситона *J_d* (подобные спектры изучены и идентифицированы в [7]). Спектр *b* соответствует поликристаллическим пленкам, отличается интенсивной полосой в области 369 нм, а излучение свободного экситона, как правило, не наблюдается. Отношения интенсивностей 1LO/2LO и их полуширины также свидетельствуют в пользу сказанного — спектр *b* соответствует существенно более дефектной пленке.

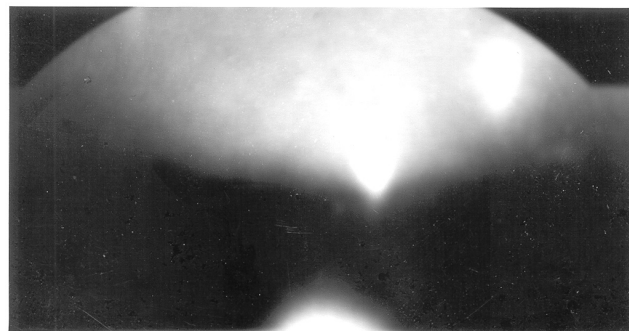


Рис. 2. Электронограмма ЭС ZnO на подложках плавленого кварца с буферным слоем.

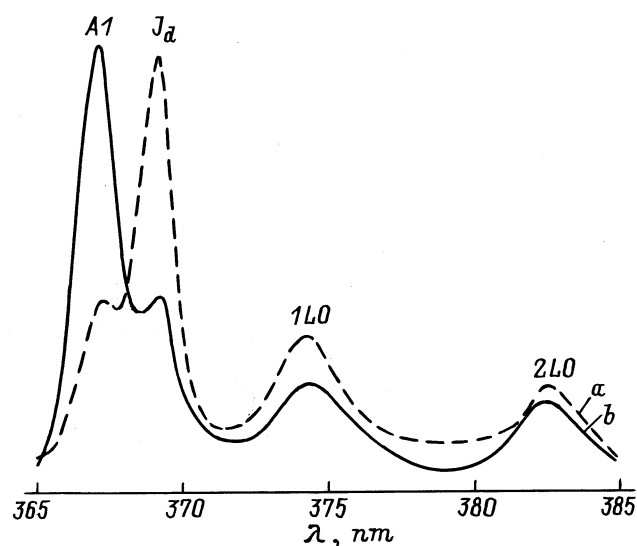


Рис. 3. Спектры экситонной фотолюминесценции пленок ZnO, полученных с использованием буферного слоя (*a*) и на поверхности плавленого кварца (*b*).

Таким образом, использование промежуточных слоев, во-первых, позволяет получать высокоориентированные слои на неориентирующих подложках, во-вторых, качество этих слоев существенно выше, чем пленок, полученных ММР. Некоторое усложнение процедуры выращивания, связанное с двухстадийным процессом, по нашему мнению, компенсируется достижением такого совершенства, которое не обеспечивается ни ХТР, ни ММР по отдельности. Мы также полагаем, что при дальнейшей оптимизации параметров промежуточных слоев могут быть получены более совершенные ЭС оксида цинка на неориентирующих подложках. Результаты работы в этом направлении, а также об использовании буферных слоев на других типах неориентирующих подложек мы сообщим в ближайшее время.

В заключение следует заметить, что авторы не видят причин, по которым предложенный метод нельзя было бы использовать для получения ЭС других электронных материалов методом ХТР на неориентирующих подложках.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант № 98-02-16141.

Список литературы

- [1] *Шевталь Н.Н.* Закономерности реального кристаллообразования и некоторые принципы выращивания монокристаллов. Рост кристаллов. Т. 10. М.: Наука, 1974.
- [2] *Клыкков В.И., Гладков Н.М.* Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук. 1985. № 1. С. 92.
- [3] *Shiosaki T., Ohnishi S., Kawabata A.* // J. Appl. Phys. 1979. Vol. 50. N 5. P. 3113.
- [4] *Семилетов С.А., Багамадова А.М., Кузнецов Г.Ф.* и др. // Кристаллография. 1979. Vol. 23. N 2. P. 377.
- [5] *Абдуев А.Х., Атаев Б.М., Багамадова А.М.* // Изв. АН СССР. Неорган. материалы. 1987, № 11. С. 1928.
- [6] *Shiosaki T., Ohnishi S., Nurakami Y.* et al. // J. Cryst. Growth. 1978. Vol. 45. P. 346.
- [7] *Абдуев А.Х., Адуков А.Д., Атаев Б.М.* и др. // Опт. и спектр. 1981. Т. 50. Вып. 6. С. 1137.