

06

## Анализ дефектов упаковки в нитриде галлия с использованием преобразования Фурье высокоразрешающих изображений

© Д.А. Кириленко<sup>1</sup>, А.А. Ситникова<sup>1</sup>, А.В. Кремлёва<sup>1,2</sup>,  
М.Г. Мынбаева<sup>1,3,4</sup>, В.И. Николаев<sup>1,3,4</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург

<sup>2</sup> Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет „ЛЭТИ“ им. В.И. Ульянова (Ленина)

<sup>3</sup> ООО „Совершенные кристаллы“, Санкт-Петербург

<sup>4</sup> Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики

E-mail: Demid.Kirilenko@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 7 августа 2014 г.

Приведены результаты исследования дефектов упаковки в нитриде галлия по изображениям просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения с помощью преобразования Фурье. Показано, что данный метод позволяет не только определять тип дефекта упаковки, но и измерять непосредственно вектор смещения. Это позволило объяснить особенности контраста на электронно-микроскопических изображениях структур с высокой плотностью дефектов упаковки (более  $10^6 \text{ см}^{-1}$ ). Обнаружено, что компонента вектора смещения в плоскости (0001) в таких структурах может заметно отличаться от ожидаемой величины  $\frac{1}{3}[01\bar{1}0]$ , свойственной одиночным дефектам.

Перспективность применения нитрида галлия (GaN) в оптоэлектронике обуславливает активные исследования, связанные с разработкой технологии получения его объемных кристаллов высокого структурного совершенства. Основными задачами разработчиков являются получение пластин, вырезанных из объемного GaN, для использования в качестве собственных подложек для эпитаксиального роста оптоэлектронных структур на основе нитридов третьей группы, а также рост неполярных или полуполярных слоев GaN. При изучении свойств получаемого материала исследователи сталкиваются с необходимостью детального исследования образующихся в нем дефектов кристаллической струк-

туры различной природы и, в частности, дефектов упаковки [1,2], плотность которых может достигать величин более  $10^6 \text{ cm}^{-1}$  [3]. Как известно, дефекты упаковки могут оказывать влияние на электронные и оптические свойства структур [4] и, следовательно, на качество оптоэлектронных приборов, создаваемых на их основе.

Существуют различные методы исследования дефектов кристаллической структуры. Одним из них является просвечивающая электронная микроскопия (ПЭМ), которая позволяет изучать независимо отдельные дефекты и определять их кристаллографические характеристики. В арсенале ПЭМ имеются различные методы анализа кристаллической структуры. Одним из достаточно широко используемых является так называемый метод геометрического фазового анализа (geometric phase analysis, GPA), основанный на обработке ПЭМ-изображений высокого разрешения (ВР-ПЭМ) с помощью преобразования Фурье [5]. Метод GPA позволяет определять локальные вариации периода кристаллической решетки, а также сдвига кристаллических плоскостей, посредством разложения прямого изображения кристаллической структуры на фурье-компоненты и анализа вариаций фазы данных компонент. Отличительной особенностью данного метода является возможность точного измерения локальных параметров кристаллической структуры, что, в частности, позволяет достаточно непосредственно определять вектор смещения дефекта упаковки. В данной работе продемонстрирована возможность определения типа дефекта упаковки с помощью метода GPA. Также показано, что в структурах с высокой плотностью дефектов упаковки вектор смещения может заметно варьироваться от дефекта к дефекту, что объясняет обнаруженные особенности дифракционного контраста от такого типа структур.

Данная работа посвящена результатам анализа дефектов упаковки в нитриде галлия с помощью преобразования Фурье изображений ВР-ПЭМ. Для проведения исследований использовались образцы квази-объемного GaN, полученные хлорид-гидридным методом [6]. Отобранные для исследований образцы существенно различались по плотности дефектов упаковки, содержащихся в их структуре.

Дефект упаковки представляет собой плоскость, разделяющую две области кристалла, сдвинутые относительно друг друга на вектор, не являющийся вектором трансляции кристаллической решетки. Для структуры типа вюрцита (GaN, AlN и т.п.) характерны следующие типы дефектов упаковки в плоскости (0001) [7], характеризующи-

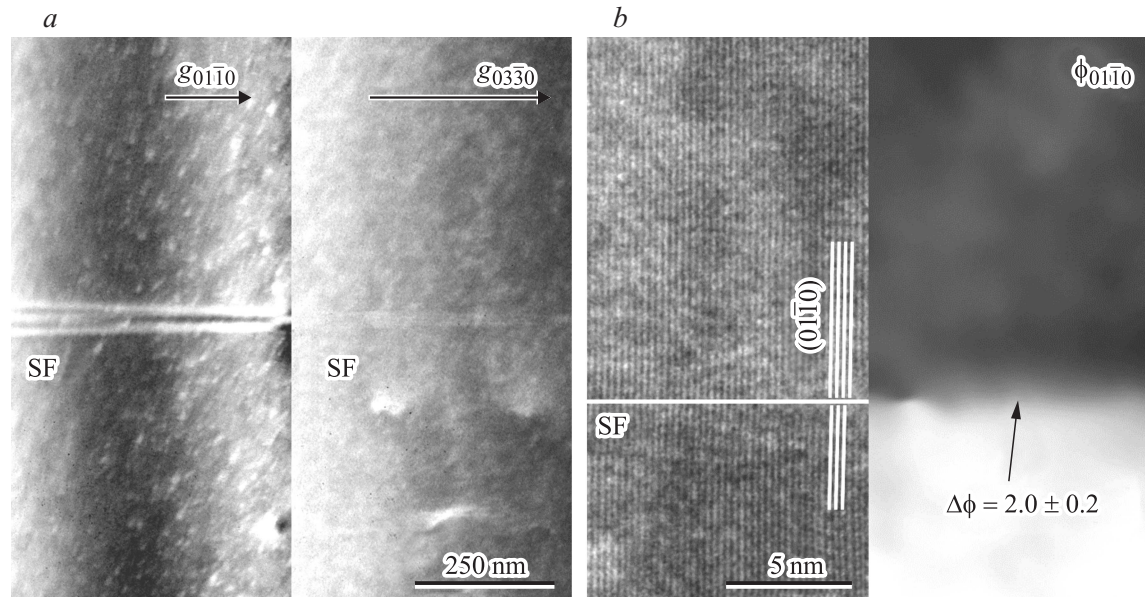
еся различными векторами смещения  $\mathbf{R}$ :  $I_1 (R = \frac{1}{3}[01\bar{1}0] + \frac{1}{2}[0001])$ ,  $I_2 (R = \frac{1}{3}[01\bar{1}0])$  и  $E (R = \frac{1}{2}[0001])$ .

В качестве примера на рис. 1 приводятся изображения одиночного дефекта упаковки, полученные в разных режимах:  $a$  — дифракционный контраст,  $b$  — фазовый контраст. На изображении, полученном в режиме дифракционного контраста (рис. 1,  $a$ ), видно характерное погасание контраста от дефекта упаковки при действующем отражении  $(03\bar{3}0)$ , что свидетельствует о наличии компоненты вектора смещения в плоскости  $(0001)$ , равной  $\frac{1}{3}[01\bar{1}0]$ .

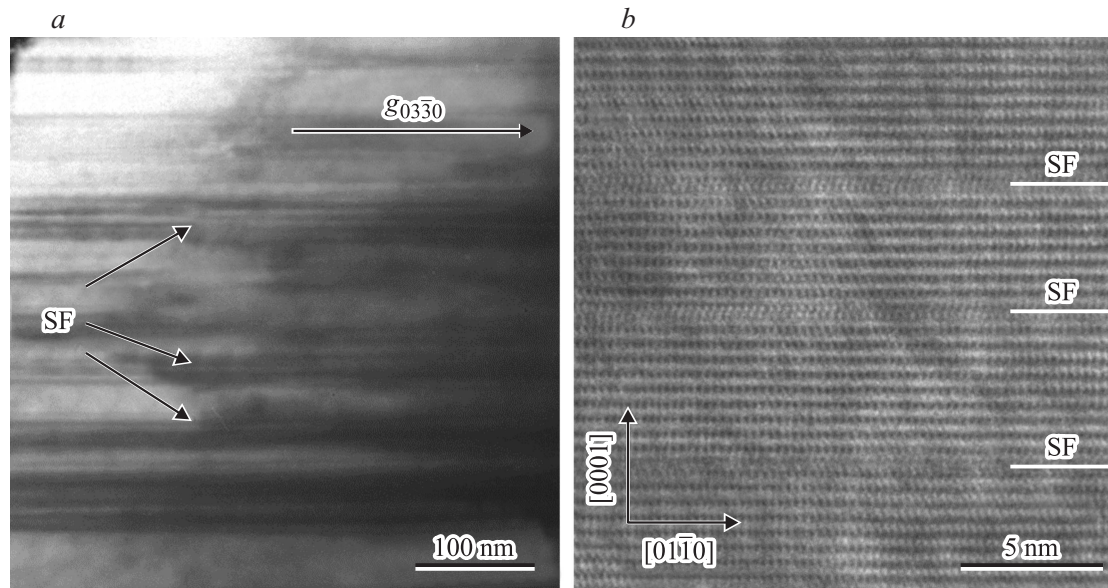
На изображении ВР-ПЭМ, полученном вдоль направления  $[2\bar{1}\bar{1}0]$ , параллельного плоскости дефекта, виден сдвиг кристаллических плоскостей  $(01\bar{1}0)$  при переходе через плоскость дефекта упаковки (рис. 1,  $b$ ). Данный снимок был сделан в режиме получения изображения только одной системы плоскостей для более ясной демонстрации принципа работы данного метода. Карта фазы  $\varphi_{0110}$ , построенная для данных плоскостей, показывает наличие сдвига в направлении  $[01\bar{1}0]$  одной области кристалла относительно другой. Изменение фазы зависит от величины сдвига в направлении, перпендикулярном данным плоскостям, однако сам сдвиг определяется с точностью до единиц периода плоскостей в силу неоднозначности измерения как самой фазы, так и ее измерения:

$$\frac{\Delta\varphi}{2\pi} \pm n = \frac{R}{d}, \quad (1)$$

где  $\Delta\varphi$  — разность фаз дифрагированных электронных волн в разных областях кристалла,  $n$  — целое число,  $R$  — проекция вектора смещения, вызванного дефектом упаковки, на нормаль к данным плоскостям,  $d$  — период плоскостей. Разность фаз (рис. 1,  $b$ ), усредненных по каждой области в отдельности, в данном случае совпадает в пределах погрешности с величиной  $\frac{2}{3}\pi$ , что дает величину сдвига, равную  $\frac{1}{6}[0\bar{1}10]$ . Это, с учетом неоднозначности измерения фазы, соответствует характерной для дефектов упаковки в плоскости  $(0001)$  в структуре типа вюрцита компоненте вектора смещения, равной  $\frac{1}{3}[01\bar{1}0]$ . Данное смещение определяется особенностями кристаллической структуры и соответствует одному из вариантов плотной упаковки. Погрешность измерений определяется уровнем шума на картах фазы, который проявляется в виде неоднородности областей одинаковой фазы. Усреднение фазы по протяженному участку позволяет снизить влияние шума и повысить точность измерений.



**Рис. 1.** Изолированный дефект упаковки в плоскости (0001) GaN в образце с низкой плотностью дефектов. *a* — изображения, полученные в режиме дифракционного контраста при действующих отражениях  $[01\bar{1}0]$  и  $[03\bar{3}0]$ , причем в последнем случае контраст от дефекта практически отсутствует, что связано со сдвигом в плоскости дефекта на величину  $\frac{1}{3}[01\bar{1}0]$ . *b* — изображение высокого разрешения, показывающее сдвиг кристаллических плоскостей  $(01\bar{1}0)$  при пересечении плоскости дефекта упаковки (SF) и карта фазы фурье-компоненты, соответствующей данной системе плоскостей. Обнаруживаемое изменение данной фазы соответствует ожидаемой величине  $\frac{2}{3}\pi$ .



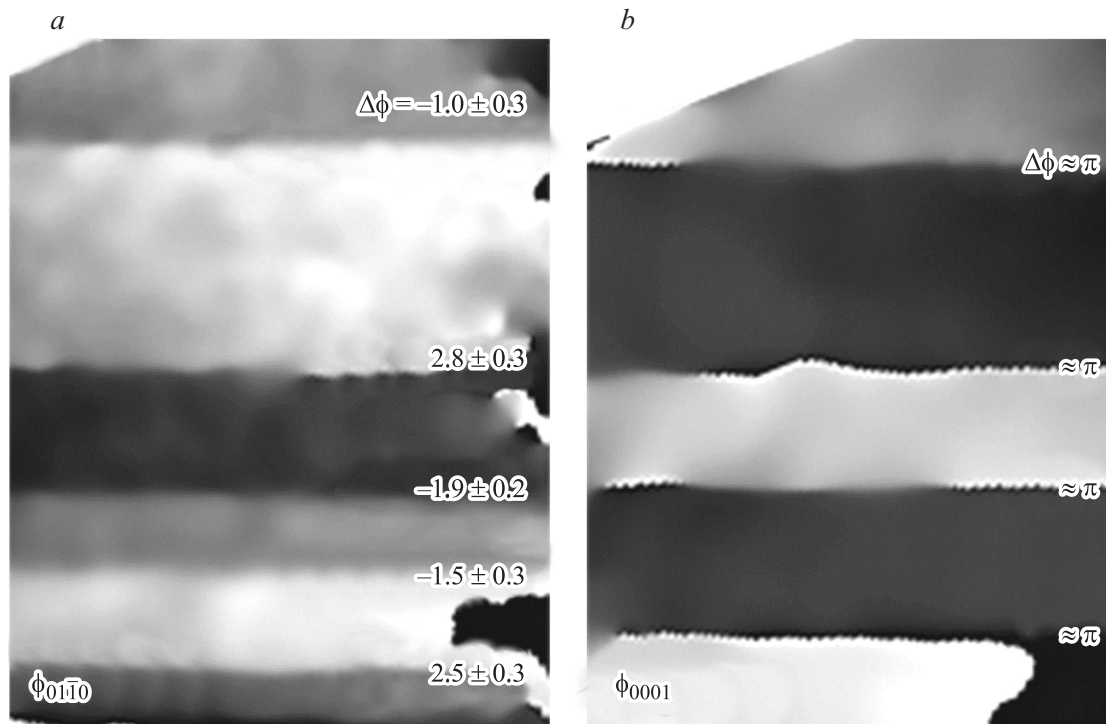
**Рис. 2.** Слой GaN с высокой концентрацией дефектов упаковки. *a* — темнопольное ПЭМ-изображение в дифракционном отражении ( $03\bar{3}0$ ), *b* — изображение структуры дефектов упаковки с высоким разрешением.

Далее метод GPA был применен при исследовании образцов, в которых наблюдалась высокая плотность дефектов упаковки (рис. 2, *a*). Существенной особенностью данных дефектов явилось то, что они были отчетливо видны на темнопольном изображении, полученном при действующем отражении ( $0\bar{3}\bar{3}0$ ), в то время как в структуре типа вюрцита при таких условиях контраст от дефектов упаковки должен существенно ослабляться и практически исчезать.

На рис. 2, *b* приведен фрагмент изображения ВР-ПЭМ, иллюстрирующий присутствие указанных дефектов упаковки в структуре исследованного материала.

По изображениям высокого разрешения был проведен анализ методом GPA с определением сдвига обеих систем плоскостей (вертикальной и горизонтальной), на основании чего были построены карты фазы (рис. 3, *a* и *b*) плоскостей  $(01\bar{1}0)$  и  $(0001)$  соответственно. Измерения сдвига в направлении  $[01\bar{1}0]$  показали, что в данном случае его величина заметно отличается от  $\frac{1}{3}[01\bar{1}0]$ , причем отклонение может достигать 15%, что видно по тому, насколько измеренные скачки фазы отличаются от величины  $\frac{2}{3}\pi \approx 2.1$ . В то же время некоторые сдвиги совпадают с данной величиной в пределах погрешности. Несоответствие компоненты вектора смещения, лежащей в плоскости  $(0001)$ , данных дефектов упаковки объясняет наличие контраста от них на темнопольном изображении на рис. 2, *a*.

Особенностью метода GPA в применении к анализу дефектов упаковки в GaN является также возможность определять наличие второй, параллельной направлению  $[0001]$ , компоненты вектора смещения. Это становится возможным благодаря явлению двойной дифракции, которое приводит к появлению запрещенных отражений  $(0001)$  на дифракционной картине и соответствующих им пятен на преобразовании фурье-изображения ВР-ПЭМ, что позволяет устанавливать наличие сдвига на одну атомарную плоскость, составляющую лишь половину элементарной ячейки вюрцита. На рис. 3, *b* приведена карта фазы изображения плоскостей  $(0001)$ , иллюстрирующая наличие такого сдвига. Разность фаз между сопряженными областями близка в данном случае к величине  $\pi$ , что соответствует характерной величине вектора смещения  $\frac{1}{2}[0001]$ . По этой причине такой метод наиболее эффективно применять к полным изображениям кристаллической структуры, полученным при ориентации оси зоны кристалла параллельно электронному пучку.



**Рис. 3.** *a* — карта фазы изображения плоскостей  $(01\bar{1}0)$ , на которой обозначены изменения фазы, связанные с дефектами упаковки; *b* — карта фазы плоскостей  $(0001)$ .

Таким образом, обнаружено, что в слоях GaN с высокой плотностью дефектов упаковки вектор смещения в плоскости (0001) может быть дробным по отношению к величине  $\frac{1}{3}[01\bar{1}0]$ , определяемой кристаллографией данного материала. Вследствие этого такой дефект упаковки не может рассматриваться как фрагмент кубической структуры в гексагональном вюрците и соответственно уровни связанной с ним мини-зоны должны отличаться от рассчитанных в таком приближении [8], что, например, повлияет на положение соответствующих полос в спектрах люминесценции, вызванных наличием дефектов упаковки [9].

Таким образом, карты фазы, полученные для двух перпендикулярных систем плоскостей, позволяют непосредственно определить тип дефектов упаковки, которые в данном случае относятся к типу  $I_1$ , поскольку вектор смещения имеет компоненту как перпендикулярную плоскости дефекта, так и параллельную.

В заключение отметим, что метод GPA, основанный на анализе фазы фурье-компонент высокоразрешающих изображений, позволяет не только определять тип дефекта упаковки, но и измерять реальную величину различных компонент вектора смещения. Посредством этого было обнаружено, что в слоях GaN с высокой концентрацией дефектов упаковки компонента вектора смещения в плоскости (0001) может быть дробной по отношению к обычной для данного типа дефектов величине  $\frac{1}{3}[01\bar{1}0]$ . Это, в свою очередь, должно особенным образом отразиться на электронных и оптических свойствах такого рода структур.

Анализ проводился с использованием программного обеспечения, разработанного авторами в виде дополнения к программе Digital Micrograph (Gatan Inc.).

Работа выполнена с использованием оборудования регионального ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ (Санкт-Петербург, Россия).

М.Г. Мынбаева благодарит фонд РФФИ, грант № 13-08-00809-А за частичную поддержку работы.

## Список литературы

- [1] Wu F., Lin Y.-D., Chakraborty A. et al. // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 96. Art. 231 912.
- [2] Fischer A.M., Wu Z., Sun K., Wei Q., Huang Y., Senda R., Iida D., Iwaya M., Amano H., Ponce F.A. // Appl. Phys. Express. 2009. V. 2. Art. 041 002.



- [3] *Zakharov D.N., Liliental-Weber Z., Wagner B. et al. // Phys. Rev. B. 2005. V. 71. Art. 235 334.*
- [4] *Kuang J., Cao W. // Appl. Phys. Lett. 2013. V. 103. Art. 112 906.*
- [5] *Hÿtch M.J., Snoeck E., Kilaas R. // Ultramicroscopy. 1998. V. 74. N 3. P. 136.*
- [6] *Nikolaev V., Golovatenko A., Mynbaeva M., Nikitina I., Seredova N., Pechnikov A., Bougrov V., Odnobludov M. // Phys. Stat. Sol. C. 2014. V. 11. N 3–4. P. 502.*
- [7] *Drum C.M. // Philos. Mag. 1965. V. 11. N 110. P. 313.*
- [8] *Rebane Y.T., Shreter Y.G., Albrecht M. // Phys. Stat. Sol. A. 1997. V. 164. P. 141.*
- [9] *Reshchikov M.A., Morkoç H. // J. Appl. Phys. 2005. V. 97. Art. 061 301.*