

06

Рентгеновская дифрактометрия темплейтов AlN/c-сапфир, полученных методом плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии

© В.В. Ратников, Д.В. Нечаев, В.Н. Жмерик, С.В. Иванов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург
E-mail: ratnikov@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 26 ноября 2015 г.

Методами рентгеновской дифрактометрии изучены темплейты AlN/c-сапфир, полученные плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксией. Продемонстрированы преимущества крупнозернистых нуклеационных слоев AlN, полученных с помощью высокотемпературной (780°C) эпитаксии с повышенной миграцией ЭПМ адатомов. Использование 3.5-nm вставок GaN (при их 3D-росте в N-обогащенных условиях) позволило получить темплейты с незначительными остаточными макронапряжениями и относительно узкими полуширинами (FWHM) кривых дифракционного отражения 0002 и 10 $\bar{1}$ 5.

Для роста эпитаксиальных структур на основе AlN-нитридов из-за отсутствия коммерчески доступных гомоэпитаксиальных подложек широко используются темплейты AlN/c-сапфир. Их структурное качество и деформационное состояние определяют значительные различия параметров решетки (для AlN/c-сапфир: +11%) и коэффициентов температурного расширения (КТР, для AlN/c-сапфир: -44%) [1], приводя к высоким концентрациям дефектов (прежде всего прорастающих дислокаций) и упругим напряжениям. Последние ведут к изгибу темплейтов, растрескиванию и отслоению слоев. Задачей работы было получение низкодефектных слабонапряженных темплейтов AlN/c-сапфира. В случае применения плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии (ПА МПЭ) для получения темплейтов используются следующие технологические приемы:

а) рост на начальной стадии низко- или высокотемпературных зародышевых слоев (ЗС) AlN с трехмерной (3D) модой роста;

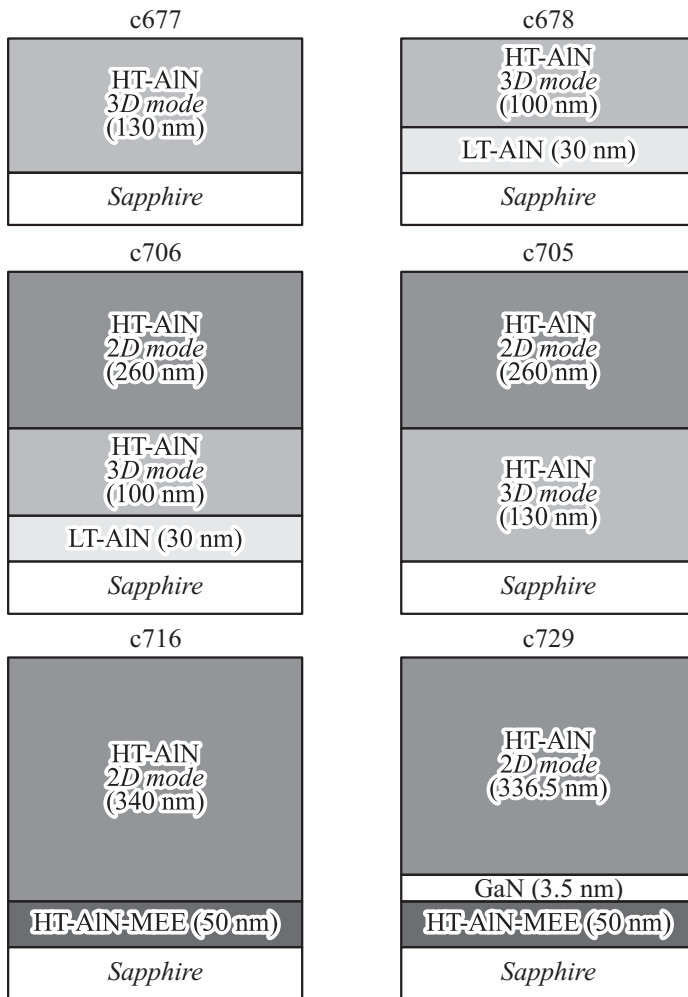


Рис. 1. Схематические изображения исследуемых темплайтов AlN/c-сапфир.

б) рост ЗС с использованием либо непрерывной (ПА МПЭ), либо попеременной подачи ростовых потоков Al и N (ЭПМ [2]);

в) использование при росте темплейтов AlN тонких вставок GaN;

г) рост темплейтов AlN с использованием обычной 2D-моды непрерывного роста как в металл-обогащенных условиях, так и металл-модулированной эпитаксии [3].

Структуры образцов представлены на рис. 1. Для их роста использовался поток активированного азота $F^N \approx 0.4$ (ML)/s. В режиме ЭПМ скорость роста AlN составляла ~ 0.25 ML/s. В начале слои темплейтов HT-AlN толщиной 100–130 nm выращивались в азот-обогащенных условиях роста ($F^{III}/F^N = 0.85$, F^{III} — поток металлов III группы) при температуре $T_S = 780^\circ\text{C}$ как на низкотемпературном ($T_S = 550^\circ\text{C}$) ЗС LT-AlN толщиной 30 nm (с678), так и непосредственно на c-сапфировой подложке (с677). Эти условия обеспечивали рост всех этих слоев в трехмерной (3D) моде. В ходе 2-го этапа исследований на этих образцах с помощью стандартной ПА МПЭ выращивались слои HT-AlN (с706, с705) до суммарной толщины AlN 390 nm в слегка металл-обогащенных условиях ($F^{III}/F^N = 1.05$) при температуре $T_S = 780^\circ\text{C}$, при которых реализовалась двухмерная (2D) мода роста. Аналогичные условия роста верхнего слоя AlN использовались на 3-м этапе исследований для образцов с716 и с729. В обоих образцах для роста ЗС HT-AlN толщиной 50 nm использовалась ЭПМ при температуре $T_S = 780^\circ\text{C}$, но в образце с729 после его роста температура подложки снижалась до $T_S = 700^\circ\text{C}$ и в N-обогащенных условиях выращивалась вставка 3D-GaN толщиной 3.5 nm. После введения GaN продолжался высокотемпературный рост AlN в 2D-моду до общей толщины 390 nm при тех же параметрах роста, что и в предыдущих образцах (с716, с706, с705).

Дефектная структура всех темплейтов AlN/c-сапфир исследовалась методами рентгеновской дифрактометрии. Из измерений радиуса кривизны по формуле Стоуни рассчитывались остаточные латеральные макронапряжения в темплейтах. FWHM (w) трехкристальной (ТКД) ω -моды сканирования для симметричного 0002 и кососимметричного (skew-symmetric) 10 $\bar{1}$ 5 отражений использовались для оценки плотности вертикальных винтовых и краевых дислокаций соответственно [4]. Для контроля скорости роста и морфологии слоев использовались лазерная рефлектометрия и дифракция отраженных быстрых электронов (ДОБЭ) соответственно. Последняя методика использовалась также

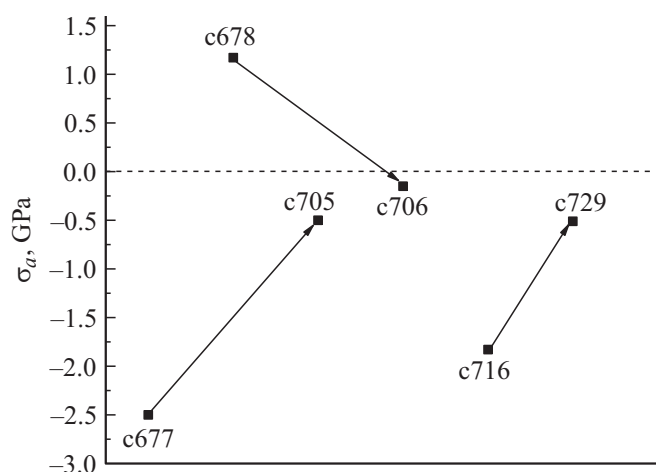


Рис. 2. Остаточные напряжения в исследуемых темплейтах.

для оценки упругих напряжений в процессе роста гетероструктур AlN/GaN/AlN [5].

Анализ результатов измерений, представленных в таблице и на рис. 2, позволил сделать следующие выводы:

1. Использование низкотемпературного ЗС LT-AlN в AlN темплейте с678 приводит к возрастанию в 6 (2.5) раз плотности вертикальных винтовых (краевых) прорастающих дислокаций в сравнении с HT-AlN слоем в темплейте с677, весь рост которого проходил при высокой температуре $T_S = 780^\circ\text{C}$.

Величина изгиба ($1/R$) меньше для с678 и его знак (положительный для вогнутых образцов) указывает на присутствие в образце остаточных латеральных растягивающих напряжений, в то время как величина и отрицательный знак изгиба образца с677 говорят о больших (по величине) компрессионных напряжениях в нем.

Подобное поведение дефектов и напряжений может быть объяснено существенной разницей внутреннего строения этих образцов. В темплейте с678 во время роста низкотемпературного зародышевого LT-AlN слоя на с-сапфире в 3D-моду формируется мелкозернистый слой, мор-

Темплейты AlN/сапфир (0001): плотности прорастающих винтовых (N_{sw}) и краевых (N_{ed}) дислокаций, полученные из полуширин w симметричного 0002 и кососимметричного 10 $\bar{1}$ 5 рефлексов соответственно

Sample	w 0002, arcsec	N_{sw} , 10^9 cm^{-2}	w 10 $\bar{1}$ 5, arcsec	N_{ed} , 10^{10} cm^{-2}
c677	1644	6.0	3306	6.1
c678	4032	35.4	5256	15.4
c716	1080	2.5	1858	1.9
c705	1822	7.2	2124	2.5
c706	2237	10.9	4146	9.6
c729	733	1.2	1946	2.1

фология которого наследуется растущим выше высокотемпературным 3D-НТ-AlN слоем. Согласно [6] мелкозернистый рост приводит к генерации сильных латеральных растягивающих напряжений (и деформаций ϵ_{growth}) в слое. Возникающая при охлаждении от 780 до 20°C термодформация из-за разницы КТР для AlN ($4.2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$) и c-сапфира ($7.5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$) является компрессионной и равна $\epsilon_T = -2.5 \cdot 10^{-3}$. Поскольку оцениваемая из радиуса кривизны подложки остаточная деформация ($\epsilon_{\text{residual}} = \epsilon_{\text{growth}} + \epsilon_T$) имеет положительный знак, то это свидетельствует о значительной ($> +2.5 \cdot 10^{-3}$) деформации растяжения при температуре роста c678. В то же время компрессионный характер ($R < 0$) остаточных напряжений (деформаций) для слоя НТ-AlN, выращенного в 3D-моде (c677), свидетельствует о том, что во время роста упругие напряжения в слое $\epsilon_{\text{growth}} < +2.5 \cdot 10^{-3}$.

2. На втором этапе исследований увеличение толщины темплейтов AlN c705 и c706 в 3 раза (до 390 nm) при их наращивании в 2D-моду привело в обоих образцах к существенному улучшению структурного качества слоев, связанного со снижением плотности как винтовых, так и краевых прорастающих дислокаций. Это следует из приводимого в таблице уменьшения полуширин $w(0002)$ и $w(10\bar{1}5)$ (за исключением $w(0002)$ для c705). При этом структурное качество образца с крупнозернистым ЗС НТ-AlN (c705) значительно выше, чем у образца с мелкозернистым ЗС ЛТ-AlN (c706). При увеличении толщин слоев снижаются также остаточные напряжения. Для пары c677–c705 они снизились в 5 раз, а в паре c678–c706 в 8 раз. В обоих образцах

остаточные напряжения были компрессионными, но в первой паре они более чем в 3 раза превышали напряжения во второй паре (см. таблицу).

3. Повышение структурного качества было достигнуто на III этапе исследований в образцах с716 и с729, в которых использовался относительно тонкий (50 nm) ЗС НТ-AlN, выращенный ЭПМ с попеременной подачей компонентов роста при температуре $T_S = 780^\circ\text{C}$. Для сравнения на этих слоях выращивались НТ-AlN буферные слои до толщины 390 nm в тех же условиях ПА МПЭ, использовавшихся для роста верхних слоев в темплейтах с705 и с706.

Во-первых, для темплейта с716 было обнаружено существенное снижение плотностей прорастающих дислокаций обоих типов, что объясняется снижением вероятности их генерации в зародышевых слоях с большим размером зерна, сформированных с помощью высокотемпературной ЭПМ, по сравнению с высокой вероятностью зарождения дислокаций в мелкозернистых ЗС, выращенных низкотемпературной стандартной ПА МПЭ.

Во-вторых, эти темплейты обнаружили повышение остаточных напряжений в 5 и 12 раз в сравнении с с705 и с706 соответственно (рис. 2). Стрелки указывают на изменение напряжений при росте на образце следующего субслоя. Это, вероятно, связано с крупнозернистой структурой зародышевого слоя, полученного ЭПМ при высоких температурах, что приводит к снижению растягивающих ростовых напряжений (как уже говорилось выше в п. 1). В результате компрессионная деформация в слое AlN на $c\text{-Al}_2\text{O}_3$, возникающая при охлаждении гетероструктуры, приводит к высоким остаточным напряжениям сжатия в слое.

4. Дальнейшее развитие инженерии темплейтов AlN было связано с использованием тонкой 3D-GaN вставки в темплейте с729. В результате данный образец продемонстрировал значительное (в 2.5 раза) снижение остаточных напряжений и двукратное уменьшение плотности прорастающих винтовых дислокаций (см. таблицу). Однако при этом наблюдалось незначительное возрастание плотности прорастающих краевых дислокаций.

В [7] показано, что в случае роста слоев AlN с компрессионными упругими напряжениями одним из механизмов их релаксации является отклонение прорастающих вертикальных дислокаций от направления роста [0001], что приводит к снижению плотности прорастающих дислокаций за счет междислокационного взаимодействия. Действительно, та-

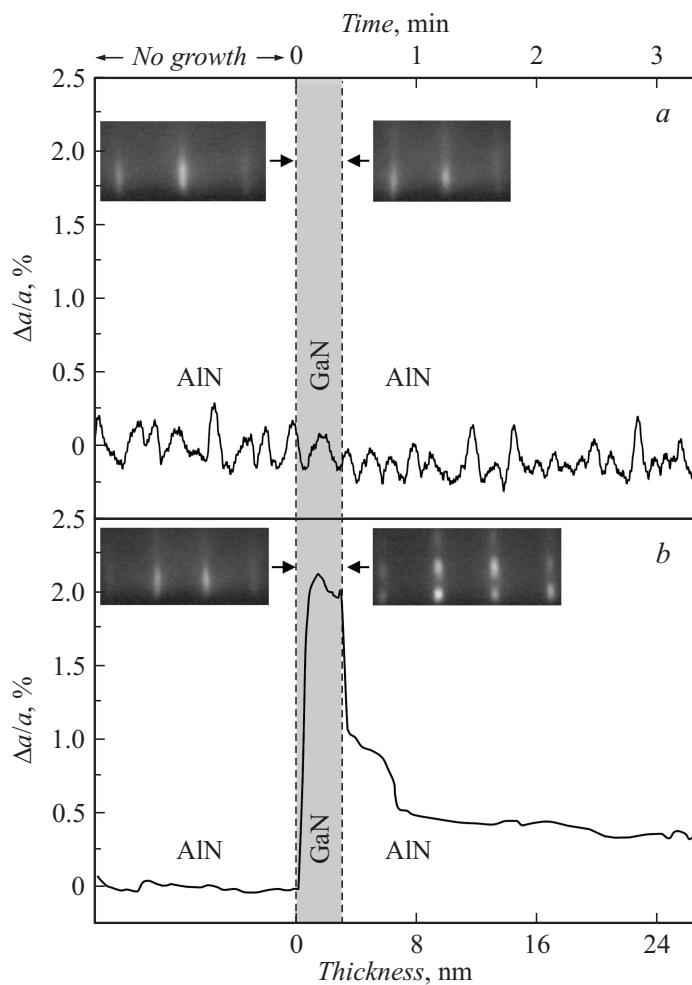


Рис. 3. Изменение постоянной решетки a в процессе роста вставки GaN в 2D- (*a*) и 3D-модах (*b*) по данным ДОБЭ. Контроль мод роста осуществлялся с помощью картин ДОБЭ, приведены на врезках.

кие отклоненные (загибающиеся) дислокации имеют misfit-компоненту, что приводит как к релаксации компрессионных напряжений в растущих слоях, так и к снижению уровня дефектности в них из-за аннигиляции прорастающих дислокаций, их загибания в плоскость интерфейса, образования дислокационных полупетель и др.

Другим механизмом релаксации упругих напряжений, как показано в [8], является образование сетки дислокаций несоответствия на интерфейсе GaN/AlN, лежащих в плоскости (0001). Эти дислокации также могут взаимодействовать с прорастающими дислокациями, что может приводить к переориентации последних в плоскость интерфейса, т.е. к ограничению их распространения в вертикальном (ростовом) направлении.

С помощью ДОБЭ нами были проведены измерения изменения латеральной постоянной решетки во время роста гетероструктур AlN/GaN/AlN с различными стехиометрическими условиями роста GaN [5], что позволило сделать выводы о генерации/релаксации упругих напряжений в этих структурах. На рис. 3, *a* показано, что в случае 2D-моды роста GaN при металл-обогащенных условиях реализуется псевдоморфный рост (т.е. латеральная постоянная решетки в гетероструктуре не изменяется, поверхность роста — гладкая, согласно ДОБЭ на врезке к рис. 3, *a*), в то время как в случае 3D-моды роста в N-обогащенных условиях происходит почти полная релаксация упругих напряжений (рис. 3, *b*). Именно такая вставка 3D-GaN использовалась в структуре *s729* для реализации обоих вышеописанных механизмов фильтрации прорастающих дислокаций (в первую очередь винтовых). Кроме того, в случае полной релаксации упругих напряжений во вставке 3D-GaN последующий рост слоя 2D-AlN должен приводить к генерации растягивающих напряжений в этом слое, что объясняет меньшие остаточные упругие напряжения в структуре *s729* (рис. 2).

Отметим, что оцениваемые плотности дислокаций для исследованных темплейтов AlN толщиной не выше 390 nm можно считать приемлемыми. Ранее нами было показано, что при возрастании толщины темплейта AlN (до 2 μm) и числа вставок 3D-GaN до шести плотности прорастающих винтовых и краевых дислокаций могут быть снижены до величин $1 \cdot 10^8$ и $3.8 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$ соответственно [9].

Таким образом, в работе продемонстрировано, что рост 3С AlN на *c*-сапфире с помощью ЭПМ, а также применение при дальнейшем росте буферных слоев 2D-AlN тонких (3.5 nm) ненапряженных вставок

3D-GaN позволяет получить сравнительно низкодефектные темплейты AlN с невысокими компрессионными напряжениями.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 3-02-12231-ofi-m).

Список литературы

- [1] Properties of Group III Nitrides / Ed. by J.H. Edgar. London: INSPEC, 1991.
- [2] *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.
- [3] *Jmerik V.N., Mizerov A.M., Nechaev D.V., Aseev P.A., Sitnikova A.A., Troshkov S.I., Kop'ev P.S., Ivanov S.V.* // J. Cryst. Growth. 2012. V. 354. P. 188.
- [4] *Moram M.A., Vickers M.E.* // Rep. Prog. Phys. 2009. V. 72. P. 036 502.
- [5] *Нечаев Д.В., Жмерик В.Т., Мизеров А.М., Копьев П.С., Иванов С.В.* // Письма в ЖТФ. 2012. Т. 38. В. 9. С. 96.
- [6] *Nix W.D., Clemens B.V.* // J. Mater. Res. 1999. V. 14. P. 3467.
- [7] *Romanov A.E., Speck J.S.* // Appl. Phys. Lett. 2003. V. 83. P. 2569.
- [8] *Bai J., Wang T., Lee K.B.* et al. // Surf. Sci. 2008. V. 602. P. 26.
- [9] *Ivanov S.V., Nechaev D.V., Sitnikova A.A., Ratnikov V.V., Yagovkina M.A., Rzhetski N.V., Lutsenko E.V., Jmerik V.N.* // Semicond. Sci. Technol. 2014. V. 29. P. 084 008.