

06

Исследование элементарных процессов МОС-гидридной эпитаксии наногетероструктур на основе арсенида галлия методом атомно-силовой микроскопии

© П.Б. Болдыревский,¹ Д.О. Филатов,¹ А.Д. Филатов,¹ И.А. Казанцева,¹ М.В. Ревин,¹ П.А. Юнин²

¹ Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия

² Институт физики микроструктур РАН, 603950 Нижний Новгород, Россия
e-mail: b Pavel2@rambler.ru

Поступило в Редакцию 10 октября 2019 г.

В окончательной редакции 10 октября 2010 г.

Принято к публикации 18 ноября 2019 г.

С помощью атомно-силовой микроскопии исследованы элементарные процессы выращивания гетероструктур (Al,Ga,In)As на разориентированных подложках GaAs (001) методом МОС-гидридной эпитаксии при пониженном давлении. Установлено, что рост эпитаксиальных слоев GaAs и AlGaAs происходит по слоисто-ступенчатому механизму с образованием макроступеней. Рост псевдоморфных слоев InGaAs/GaAs (001) также происходит по слоисто-ступенчатому механизму с образованием макроступеней. Однако если толщина псевдоморфного слоя In_xGa_{1-x}As/GaAs (001) превышает некоторое критическое значение, зависящее от мольной доли InAs в составе твердого раствора (x), на поверхности слоя InGaAs наблюдается образование дефектов роста в виде трехмерных островков, плотность которых увеличивается с ростом толщины слоя InGaAs. Образование трехмерных островков InGaAs связано с релаксацией упругих напряжений в псевдоморфном слое InGaAs/GaAs (001) по механизму Странски–Крастанова.

Ключевые слова: арсенид галлия, AlGaAs, InGaAs, МОС-гидридная эпитаксия, дефектообразование, механизм Странски–Крастанова.

DOI: 10.21883/JTF.2020.05.49185.331-19

Введение

Газофазная эпитаксия с использованием металлоорганических соединений и гидридов в качестве исходных веществ (МОС-гидридная эпитаксия, англ. Metal Organic Chemical Vapor Deposition — MOCVD) [1], наряду с молекулярно-лучевой эпитаксией (МЛЭ) [2], является основным технологическим процессом формирования нано-гетероструктур полупроводниковых соединений типа A^{III}B^V, перспективных материалов СВЧ и оптоэлектроники [2,3]. В целом основные кинетические характеристики МОС-гидридной эпитаксии GaAs и тройных твердых растворов на его основе достаточно хорошо изучены, что обеспечивает их промышленное применение, однако повышение характеристик современных полупроводниковых приборов СВЧ и оптоэлектроники определяет необходимость уточнения и развития возможностей МОС-гидридной эпитаксии применительно к указанным прикладным областям. Целью настоящей работы является изучение элементарных процессов эпитаксиального роста наноразмерных гетероструктур AlGaAs/GaAs(001) и InGaAs/GaAs(001), входящих в состав многослойных структур для гетеротранзисторов с высокой подвижностью электронов типа p -HEMT (англ. High Electron Mobility Transistors, HEMT) [4,5], а также инжекционных гетеролазеров [6]. Проведенные исследования основаны на использовании метода

атомно-силовой микроскопии (AFM) для сравнительного анализа морфологии поверхности эпитаксиальных слоев (ЭС) твердых растворов, формируемых в процессах МОС-гидридной эпитаксии. Метод AFM обладает широкими возможностями исследований количественных трехмерных характеристик морфологии поверхности полупроводниковых структур в нанометровом масштабе [7]. Ранее метод AFM был успешно применен для изучения элементарных процессов роста гомоэпитаксиальных слоев GaAs(001) методом МОС-гидридной эпитаксии [8,9]. В настоящей работе метод AFM применяется для исследования элементарных процессов роста гетероструктур AlGaAs/GaAs(001) и InGaAs/GaAs(001) методом МОС-гидридной эпитаксии при пониженном давлении.

Экспериментальная часть

Эпитаксиальное наращивание полупроводниковых гетерослоев проводили на модернизированной установке Eriquip VP502-RP, снабженной горизонтальной реакционной камерой и индукционным нагревом вращающегося дискового подложкодержателя. Поддерживалась близкая к оптимальной для данной эпитаксиальной системы частота вращения ~ 60 rpm [9]. Использовались стандартные подложки GaAs диаметром 50 mm с кристал-

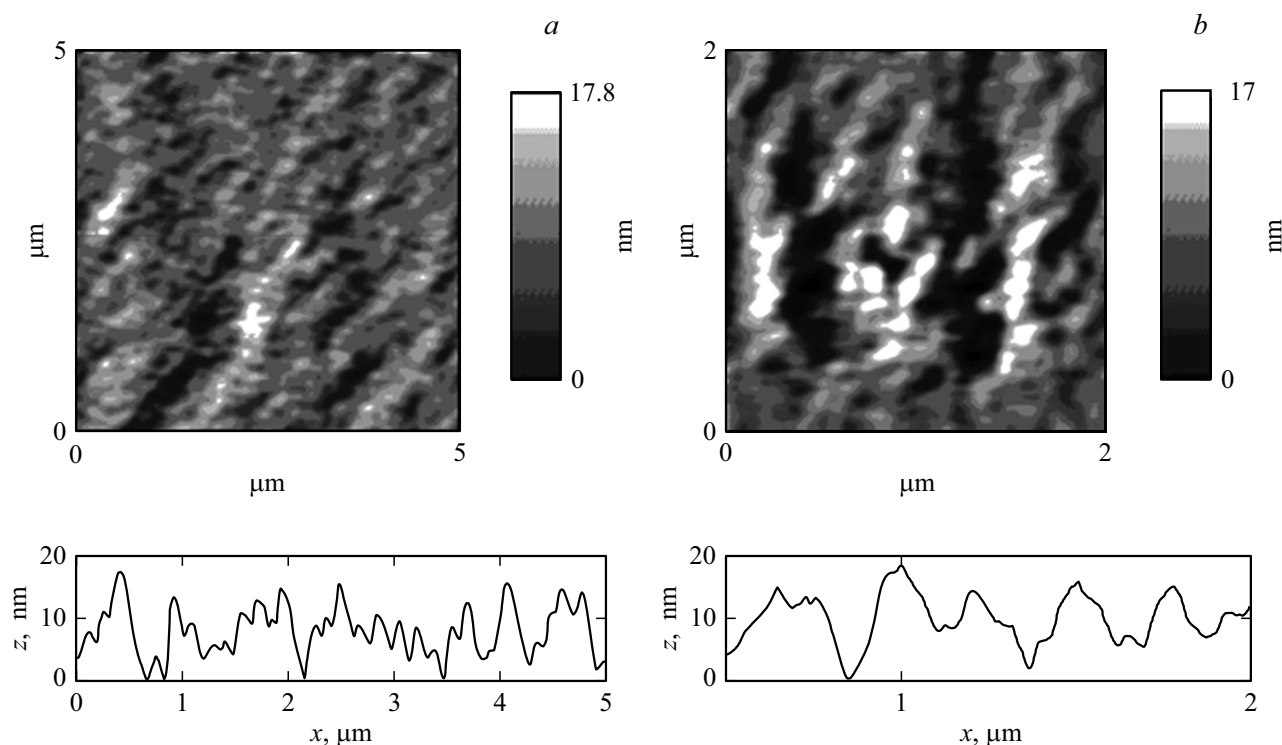


Рис. 1. AFM-изображения и профили поверхности ЭС GaAs(001) (a) и гетероструктуры $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ (b).

лографической ориентацией (001), разориентированные на 2° в направлении [110]. В качестве исходных металло-органических соединений (МОС) для эпитаксии GaAs и тройных твердых растворов AlGaAs и InGaAs использовали соответственно триметилгаллий (ТМГ) $\text{Ga}(\text{CH}_3)_3$, триметилалюминий (ТМА) $\text{Al}(\text{CH}_3)_3$ и триметилиндий (ТМИ) $\text{In}(\text{CH}_3)_3$, в качестве источника As — арсин AsH_3 . Превышение концентрации AsH_3 в потоке газовой смеси над концентрацией МОС составляло ~ 40 . Перед началом процесса осаждения проводили отжиг подложек в реакционной камере при температуре эпитаксии 620°C в атмосфере газа-носителя (водород H_2) и AsH_3 в течение 5 min. Экспериментальные образцы получали при общем пониженном давлении газовой среды в реакционной камере $p = 10^4$ Pa и скорости эпитаксиального роста ≈ 0.5 nm/s, что соответствует основным режимам получения приборных структур. ЭС твердых растворов выращивали на поверхности буферных слоев GaAs толщиной $d \approx 150$ nm. Толщины ЭС измерялись с помощью интерферометра Talysurf CCI 2000. Неопределенность измерения толщины ЭС не превышала 1.0 nm.

Общее кристаллическое структурное совершенство ЭС и состав твердых растворов определялись методом двухкристалльной рентгеновской дифрактометрии на дифрактометре Bruker D8 Discover. Кривые качания вблизи рефлекса (004) снимались с круглым коллиматором, формирующим пучок диаметром ≈ 1 mm, в симметричной геометрии и в геометрии скользящего падения, что обеспечивает соответствующую глубину

экстинкции. Неопределенность измерений угла дифракции составляла $\sim 0.0005^\circ$.

Для исследования морфологии поверхности гомо- и гетероэпитаксиальных слоев использовали метод AFM в контактной моде и режимах постоянной силы, постоянной высоты и латеральных сил [10]. Исследования проводились при комнатной температуре в атмосферных условиях на установке Solver Pro (производитель — компания NT-MDT, Россия) со сканирующей головкой Smeпа А. Использовались кремниевые AFM-зонды производства компании NT-MDT марки CSG-01 с радиусом кривизны острия зонда $R_p \approx 10$ nm. Относительная неопределенность измерений координат в плоскости поверхности образца x, y в области значений $1 \mu\text{m} < x, y < 70 \mu\text{m}$ составляла не более 5%, относительная неопределенность измерения высоты поверхности (координата z) в диапазоне $z < 10$ nm составляла $< 10\%$.

Результаты и обсуждение

Согласно результатам рентгенодифракционных исследований, значения ширины кривых качания вблизи рефлекса (004) для гетероструктуры $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ и ЭС GaAs(001) ($d = 150$ nm) составляли ≈ 0.005 и $\approx 0.004^\circ$ соответственно, что свидетельствует о высоком кристаллическом совершенстве ЭС.

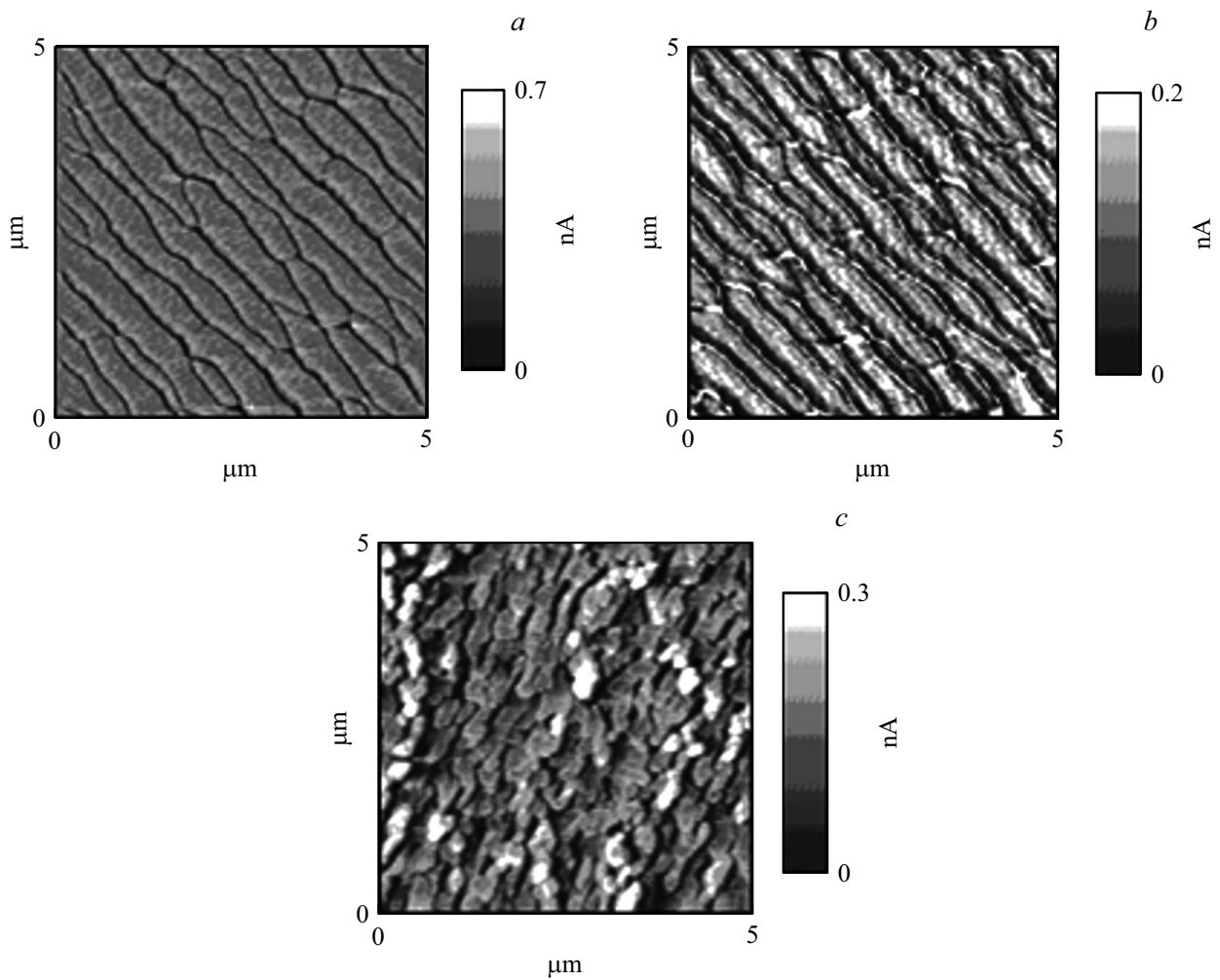


Рис. 2. AFM-изображения поверхности гетероструктур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$: толщина d , nm: a — 12, b — 8, c — 50, состав, x : a — 0.19, b, c — 0.24.

На рис. 1 приведены AFM-изображения и профили поверхности ЭС GaAs(001) (рис. 1, a) и гетероструктуры $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ (рис. 1, b), полученные в режиме отображения латеральных сил. На поверхности обоих образцов наблюдается регулярная система периодических ступеней роста, что указывает на слоисто-ступенчатый механизм роста ЭС с образованием макроступеней, характерный для МОС-гидридной эпитаксии полупроводниковых соединений типа $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$ на разориентированных подложках. Формирование макроступеней связано с присутствием хемосорбированных атомов водорода и не до конца расщепленных продуктов пиролиза МОС на растущей поверхности, что тормозит движение моноатомных ступеней роста и стимулирует их группировку в эшелоны макроступеней [11]. Следует заметить, что, несмотря на близкие параметры кристаллических решеток и коэффициентов термического расширения материалов, составляющих гетероструктуру $\text{AlGaAs}/\text{GaAs}(001)$, наблюдается определенное различие морфологии растущей поверхности GaAs и $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$. Период макросту-

пеней L на поверхности ЭС GaAs(001) $L \approx 0.5 \mu\text{m}$ (рис. 1, a) существенно превышает период ступеней на поверхности гетероструктуры $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ $L \approx 0.33 \mu\text{m}$ (рис. 1, b). Наблюдаемая средняя высота макроступеней h на поверхности гетероструктуры $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ была меньше средней высоты макроступеней на поверхности ЭС GaAs(001) ($h \approx 12$ и 18 nm соответственно). Различие в параметрах макроступеней на поверхности эпитаксиальных слоев GaAs и AlGaAs может быть связано с тем, что энергия отрыва метильных радикалов в молекулах ТМА больше, чем в молекулах ТМГ [3], поэтому отщепление метильных радикалов $-\text{CH}_3$ от атомов Al при присоединении их к краям моноатомных ступеней роста происходит медленнее, чем от атомов Ga при прочих равных условиях. В связи с этим торможение моноатомных ступеней остаточными продуктами реакции при росте AlGaAs происходит более эффективно, чем при росте GaAs, и, как следствие, эшелонирование ступеней роста и формирование макроступеней при эпитаксиальном росте AlGaAs/GaAs(001) происходит более интенсивно.

Параметры эпитаксиальных гетероструктур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$

Толщина слоя $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, nm	Состав: мольная доля InAs, x	Поверхностная плотность дефектов роста N_s , cm^{-2}
8.0	0.19	–
12.0	0.19	–
40.0	0.20	–
50.0	0.20	$1.0 \cdot 10^7$
8.0	0.24	$3.0 \cdot 10^7$
50.0	0.24	$1.0 \cdot 10^9$

На рис. 2 приведены AFM-изображения (в режиме отображения латеральных сил) поверхности гетероструктур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ с различными значениями толщины и состава ЭС твердых растворов (параметры всех исследуемых образцов $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ приведены в таблице).

На поверхности ЭС $\text{In}_{0.19}\text{Ga}_{0.81}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ толщиной $d = 12$ nm (рис. 2, *a*) наблюдается регулярная система макроступеней роста, аналогичная обнаруженной на поверхности гомоэпитаксиальных структур $\text{GaAs}(001)$. Это свидетельствует о том, что рост псевдоморфного слоя $\text{In}_{0.19}\text{Ga}_{0.81}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ происходит по механизму Франка–ван-дер-Мерве.

На поверхности ЭС $\text{In}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ толщиной $d = 8$ nm (рис. 2, *b*) на фоне периодической системы макроступеней роста, характерной для слоисто-ступенчатого двумерного роста псевдоморфного гетерослоя $\text{InGaAs}/\text{GaAs}(001)$ по механизму Франка–ван-дер-Мерве, наблюдаются дефекты роста в виде отдельных наностроек InGaAs , выступающих над поверхностью псевдоморфного двумерного слоя. Вероятно, возникновение данных дефектов обусловлено спонтанным локальным срывом двумерного слоисто-ступенчатого роста и переходом к образованию дискретных зародышей трехмерных нанокристаллов (механизм Странски–Крастанова [12]). Наиболее вероятно формирование таких дефектов в местах локального усиления упругих деформаций в псевдоморфном слое (например, вследствие локальных флуктуаций состава твердого раствора $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$). Плотность дефектов на поверхности образца $N_s \approx 3 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$. На поверхности ЭС $\text{In}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ толщиной $d \approx 50$ nm (рис. 2, *c*) плотность трехмерных наностроек была значительно выше ($N_s \approx 1 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$), чем на поверхности образца с $d = 8$ nm (рис. 2, *b*), при этом трехмерные наностройки занимают значительную часть поверхности структуры. Повышенная плотность трехмерных наностроек на поверхности образца с ЭС $\text{In}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ толщиной $d \approx 50$ nm может быть связана с тем, что в данном образце толщина слоя InGaAs существенно превышает критическую толщину перехода от слоевого к трехмерному росту для $x = 0.24$. Согласно данным, приведенным в таблице, гетерослой InGaAs с наиболее совершенной морфологией поверхно-

сти могут быть получены в диапазоне толщин 8–40 nm и молярных долей $\text{In } x = 0.19\text{--}0.20$.

Заключение

Результаты работы показывают, что рост гомоэпитаксиальных слоев GaAs и гетерослоев $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$ на разориентированных подложках $\text{GaAs}(001)$ (угол разориентации $\sim 2^\circ$ в направлении $[110]$) в процессе МС-гидридной эпитаксии при пониженном давлении происходит по слоисто-ступенчатому механизму с образованием макроступеней роста. Образование макроступеней и различия в кинетике их формирования для эпитаксии GaAs и гетерослоев $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$ связаны с адсорбционно-десорбционными процессами на растущей поверхности при химическом взаимодействии основных компонентов газовой фазы. На основе проведенных AFM-измерений можно заключить, что рост тонких псевдоморфных гетерослоев $\text{InGaAs}/\text{GaAs}(001)$ происходит по механизму Франка–ван-дер-Мерве, однако при повышении концентрации In в составе твердого раствора на поверхности роста возникают дефекты в виде трехмерных островков InGaAs , плотность которых возрастает с увеличением толщины гетерослоя. Возникновение подобных дефектов связано с релаксацией упругих напряжений в псевдоморфном слое InGaAs путем перехода от двумерного роста к образованию трехмерных наностроек (механизм Странски–Крастанова).

Благодарности

Измерения методом AFM выполнены с использованием оборудования центра коллективного пользования — Научно-образовательного центра „Физика твердотельных наноструктур“ Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] *Stringfellow G.B.* Organometallic Vapor-phase Epitaxy: Theory and Practice. Boston: Academic Press, 1999. 572 p.
- [2] *Herman M.A., Richter W.* Epitaxy-Physical Principles and Technical Implementation. Berlin-Sitter: Springer, 2004. 507 p.
- [3] *Irvine S., Capper P., Kasap S., Willoughby A.* Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (MOVPE): Growth, Materials Properties and Applications. Hoboken: Wiley, 2019. 424 p.
- [4] *Ali F.* HEMTs and HBTs: Devices, Fabrication, and Circuits. Norwood: Artech House, 1991. 392 p.
- [5] Pseudomorphic HEMT Technology and Applications. / Ed. by Ross R.L., Svensson S.P., Lugli P. Berlin-Heidelberg: Springer, 1996. 320 p.
- [6] *Kapon E.* Semiconductor Lasers. Boston: Academic Press, 1999. 453 p.

- [7] *Giessibl F.J.* // Rev. Modern Phys. 2003. Vol. 75. N 3. P. 949–983.
- [8] Болдыревский П.Б., Филатов Д.О., Казанцева И.А., Смотрин Д.С., Ревин М.В. // Неорганические материалы. 2016. Т. 52. № 10. С. 1–6. [*Boldyrevskii P.B., Filatov D.O., Kazantseva I.A., Smotrin D.S., Revlin M.V.* // Inorganic Materials. 2016. Vol. 52. N 10. P. 985–989.]
- [9] Болдыревский П.Б., Филатов Д.О., Казанцева И.А., Ревин М.В., Смотрин Д.С., Юнин П.А. // ЖТФ. 2018. Т. 88. Вып. 2. С. 219–223. [*Boldyrevskii P.B., Filatov D.O., Kazantseva I.A., Revlin M.V., Smotrin D.S., Yunin P.A.* // Tech. Phys. 2018. Vol. 63. N 2. P. 211–215.]
- [10] *Magonov S.N.* Surface Analysis with STM and AFM. Experimental and Theoretical Aspects of Image Analysis. Wienhelm: Wiley-VCH, 1996. 323 p.
- [11] *Hata K., Shigekawa H., Ueda T., Akiyama M., Okano T.* // Jpn. J. Appl. Phys. B. 2000. Vol. 39. Part 1. N 7. P. 4404–4407.
- [12] Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots. / Ed. Sugawara M. Boston: Academic Press, 2011. 384 p.