

06

## Морфология поверхности полуполярных GaN-слоев при эпитаксии на наноструктурированной подложке Si

© В.Н. Бессолов,<sup>1</sup> Е.В. Коненкова,<sup>1</sup> Т.А. Орлова,<sup>1</sup> С.Н. Родин,<sup>1</sup> А.В. Соломникова<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет СПбГЭТУ „ЛЭТИ“,  
197022 Санкт-Петербург, Россия  
e-mail: lena@triat.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 12 января 2022 г.

В окончательной редакции 21 февраля 2022 г.

Принято к публикации 21 февраля 2022 г.

Изучена морфология поверхности слоев полуполярного нитрида галлия, синтезированных на наноструктурированных подложках Si(100) либо Si(113) соответственно с *V*-образным либо *U*-образным профилем поверхности. Морфология поверхности полуполярных слоев свидетельствует, что разное отношение высоты к ширине (аспектное соотношение) блоков GaN(11-22) и GaN(10-11) связано с более высокой скоростью роста грани GaN(11-22), чем GaN(10-11) и разными скоростями роста полуполярной и полярной граней кристалла при зарождении слоя на наноструктурированной подложке.

**Ключевые слова:** морфология поверхности, полуполярный нитрид галлия, наноструктурированная подложка кремния.

DOI: 10.21883/JTF.2022.05.52376.12-22

### Введение

Полуполярные и неполярные слои GaN привлекают внимание исследователей, начиная с работы, в которой авторы доложили об увеличении интенсивности фотолюминесценции в светодиодных InGaN/GaN-структурах, свободных от пьезоэлектрической поляризации [1]. Применение микроструктурированных чужеродных подложек для синтеза полуполярных слоев GaN является перспективным методом гетероэпитаксии [2,3]. Так, например, структурированная подложка сапфира с плоскостью (22-43) позволила получить светодиоды InGaN(20-21)/GaN с длиной волны излучения 490 nm [4], а структурированная подложка *m*-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> позволила синтезировать светодиоды с зеленым цветом свечения InGaN(11-22) [5].

В последние два десятилетия значительные усилия были направлены на получение III-нитридных полупроводников на кремнии (Si) для целей оптической коммуникации и интеграции нитрид-галлиевой и кремниевой электроники. Первый светодиод на основе GaN, выращенный на Si [6], был продемонстрирован еще 1998 году. В настоящее время оптоэлектронные устройства на основе GaN/Si в основном базируются на полярных InGaN/GaN-структурах, в которых в активных областях присутствует нежелательное сильное поляризационное поле. Выращивание полуполярных III-нитридных излучателей является одним из возможных решений этой проблемы, поскольку ожидается, что полуполярные и неполярные структуры обладают большим потенциалом в повышении внутренней квантовой эффективности све-

тодиодов [7], и в более эффективном внедрении атомов индия, особенно в GaN(11-22) слои [8].

В настоящее время предпринимаются попытки синтезировать полуполярные нитриды галлия и алюминия на микро- [3] и наноструктурированных подложках Si(100) [9,10], в которых предлагается для синтеза использовать наклонную грань Si(111).

Полуполярный GaN(11-22) на кремнии удается получать в основном за счет роста на структурированных кремниевых Si(113)-подложках с полосатыми канавками [11].

Настоящая работа посвящена изучению морфологии поверхности слоев полуполярных GaN(10-11) и GaN(11-22), синтезированных на наноструктурированных подложках — NP-Si(100) и NP-Si(113). Для выполнения поставленной цели формировалась поверхностная *V*-образная (рис. 1, *a*) или *U*-образная (рис. 1, *b*) структуры с периодом 75 nm, с высотой наклонных нанохребтов 75 nm.

### 1. Эксперимент

Наномаска формировалась в результате двухстадийного процесса, изложенного в [12]. Слои AlN и GaN на NP-Si(100)- и NP-Si(113)-подложках были выращены методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений (MOCVD) на модифицированной установке EpiQuip с горизонтальным реактором аналогично [10]. Водород использовался в качестве несущего газа, а аммиак, триметилгаллий и триметилалюминий в качестве прекурсоров. Структуры состояли из буферного слоя

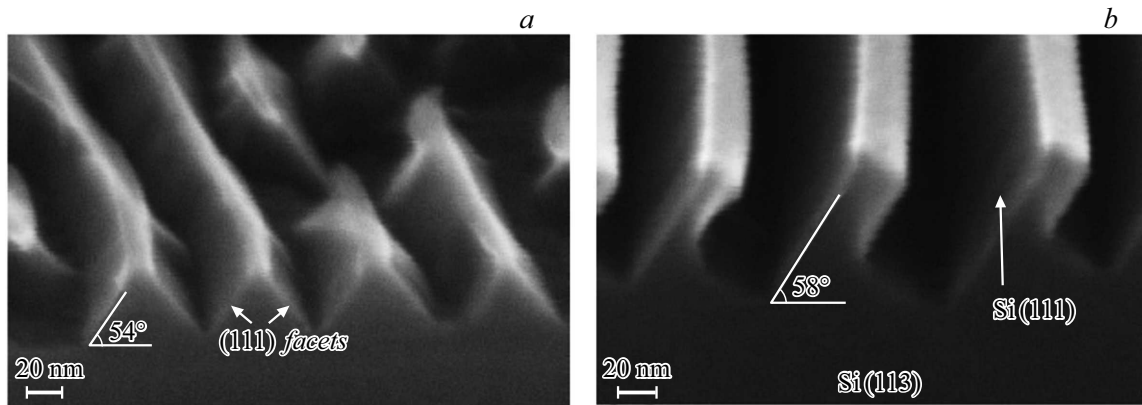


Рис. 1. РЭМ изображение наноструктурированных подложек: NP-Si(100) — *a*, NP-Si(113) — *b*.

AlN толщиной  $\sim 35$  nm и нелегированного слоя GaN толщиной  $\sim 1$   $\mu$ m.

Измерения морфологии поверхности образцов проводились с помощью атомно-силовой микроскопии в полуконтактном режиме измерений на сканирующем зондовом микроскопе SolverNEXT.

В ходе технологического эксперимента в одинаковых температурно-временных режимах выращивались полуполярные слои GaN(11-22) на NP-Si(113) и GaN(10-11) на NP-Si(100) и для сравнения полярный GaN(0001) на плоской подложке Si(111).

## 2. Результаты

Рентгенодифракционный анализ показал, что слои GaN имеют полуширину кривой рентгеновской дифракции  $\omega_\theta \sim 30'$  для структур GaN(11-22)/NP-Si(113) и  $\omega_\theta \sim 30'$  для GaN(10-11)/NP-Si(100), и  $\omega_\theta \sim 22'$  для GaN(0002)/Si(111).

Атомно-силовая микроскопия (АСМ) поверхности слоев показала существенное различие морфологии слоя GaN(0001), синтезированного на плоской поверхности подложки Si(111), и слоев GaN(10-11) и GaN(11-22), синтезированных на наноструктурированных подложках NP-Si(100) и NP-Si(113) соответственно. Поверхность слоя GaN(0001) содержала дефекты глубиной около 50 nm, но неоднородность слоя на площадке  $40 \times 40$   $\mu$ m составляла не больше 20 nm (рис. 2, *a, b*). Поверхность полуполярного слоя GaN(10-11) имела выраженный асимметричный характер, присущий блокам полуполярного нитрида галлия, которые возникают из-за асимметричных свойств подложки NP-Si(100) после бомбардировки ионами  $N_2$ , как это изложено [10]. Величина неоднородности поверхности в таких структурах на площади  $30 \times 30$   $\mu$ m была около 150–250 nm (рис. 2, *c, d*). Следует отметить, что при сканировании в направлении, перпендикулярном канавкам, расстояние между пиками горбов в слое GaN(10-11) было равно 3–5  $\mu$ m и существенно отличается от подобного расстояния, заданного подложкой NP-Si(100) —

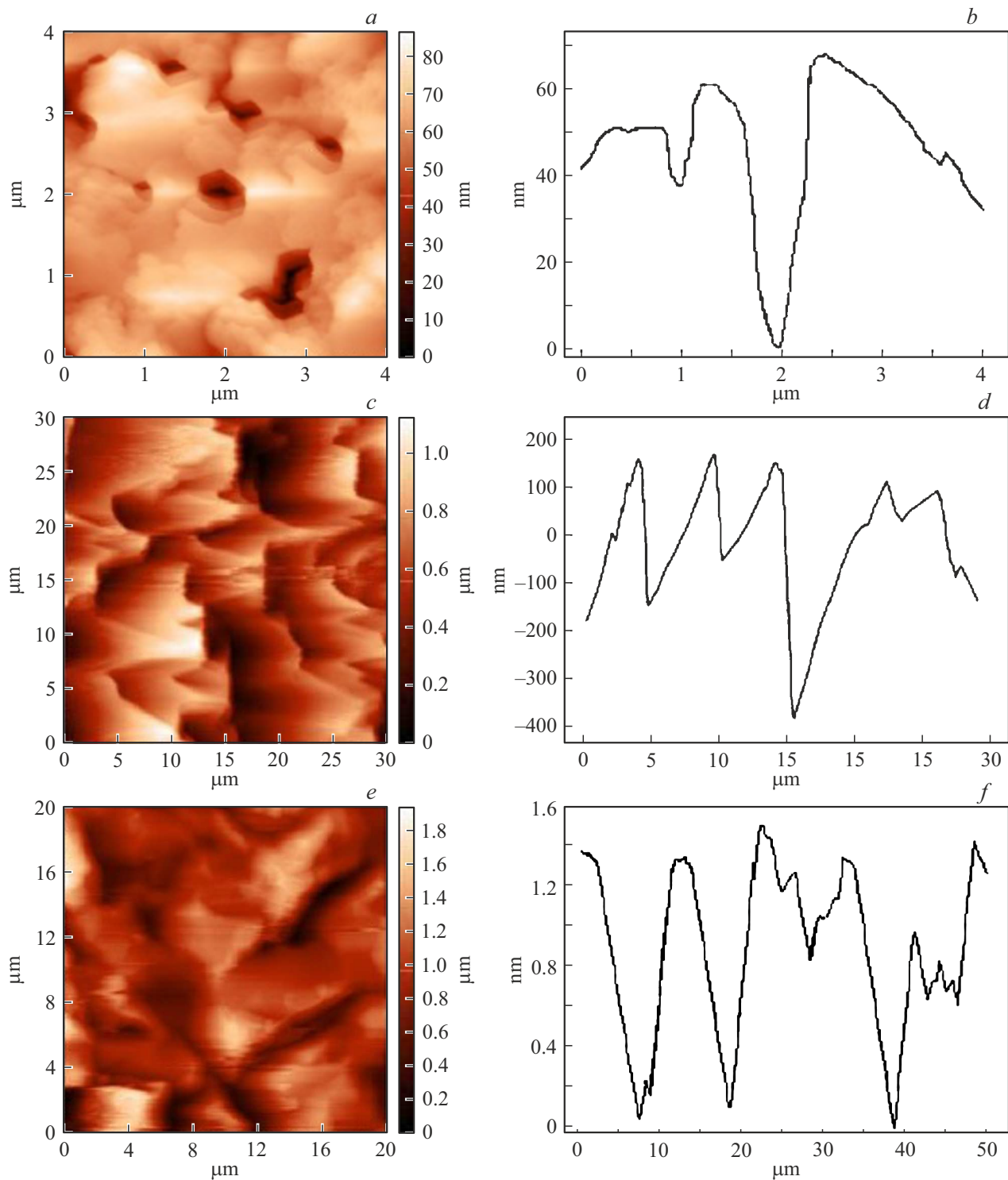
75 nm (рис. 1, *a*, рис. 2, *c, d*). Поверхность полуполярного слоя GaN(11-22) при аналогичном сканировании по площади  $50 \times 50$   $\mu$ m имела характер прямоугольных блоков размером  $4 \times 10$   $\mu$ m, между которыми наблюдаются провалы величиной до 1.3  $\mu$ m. Расстояние между горбами в слое GaN(11-22) по данным АСМ составляло около 10  $\mu$ m (рис. 2, *e, f*). Следовательно, аспектное отношение (отношение размеров высоты к ширине) блоков полуполярного нитрида галлия составляет 0.04 для GaN(10-11) и 0.13 для Ga(11-22) (рис. 2).

## 3. Обсуждение

Формирование слоев GaN на NP-Si(100)- и NP-Si(113)-подложках происходит по островковому механизму на открытой грани Si(111) наноканавок, причем ориентация нанокристаллитов в массиве задается направлением плоскости Si(111) в NP-Si(113) и NP-Si(100).

При синтезе нитрида галлия эволюция морфологии будет определяться скоростью роста слоя, зависящей от ориентации граней поверхности кристаллов. Как известно, для грани (111) любой атом, адсорбированный на эту поверхность, будет необратимо встраиваться в структуру кристалла. Для грани (111) рост поверхности осуществляется по механизму случайного добавления, и ни один из адсорбированных атомов не вырывается обратно в паровую фазу [13]. Поверхности с большими скоростями роста часто полностью пропадают, т.е. в термодинамически равновесном кристалле будут оставаться только поверхности с наименьшими энергиями поверхности. Это и должно приводить к формированию на поверхности полуполярных плоскостей GaN(10-11) и GaN(11-22) при использовании канавок с плоскостями Si(111).

Ранее было отмечено, что при селективной газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений на гранях GaN мезаполосков предварительно сформированных локальной эпитаксией в окнах  $Si_3N_4$  при использовании водорода в качестве газа-носителя рост GaN(0001) происходит преимущественно в латеральном направлении.



**Рис. 2.** АСМ изображение и профиль поверхности структур: *a, b* — GaN(0001)/Si(111); *c, d* — GaN(10-11)/NP-Si(100), *e, f* — GaN(11-22)/NP-Si(113).

Согласно экспериментальным результатам [14], повышение температуры роста приводит к увеличению высоты и уменьшению диаметра при эпитаксии в атмосфере водорода, т.е. аспектное соотношение увеличивается. Напротив, аспектное соотношение уменьшается с ростом температуры в условиях газа-носителя азота [15].

В процессе MOCVD можно выделить два механизма переноса массы на поверхности наноструктурированной подложки: диффузия в паровой фазе и поверхностная диффузия. Молекулы с одинаковой вероятностью включаются в эпитаксиальную структуру по всей площади наклонной грани Si(111) наноструктурированных подло-

жек NP-Si(100) и NP-Si(113), если эффективная длина диффузии превышает половину длины грани. В противном случае будет наблюдаться неравномерное накопление эпитаксиального материала на вершинах граней.

Эффективная длина диффузии в первую очередь зависит от концентрации прекурсоров группы III, поскольку группа V оказывает незначительное влияние на скорость роста. Известно, что длина свободного пробега адатома Al по поверхности AlN невелика и составляет величину около 40 nm [16]. Величина свободного пробега адатома Ga по поверхности GaN различается для полярной (0001) и полуполярной (10-11) граней GaN при MOCVD эпитаксии и составляет 535 и 1430 nm соответственно [17]. Однако имеются сведения, что длина свободного пробега Ga на поверхности GaN при 1040°C значительно больше и может составлять величину 15 μm при эпитаксии в атмосфере водорода [18]. Итак, эпитаксиальный рост буферного слоя AlN на NP-Si(100) и NP-Si(113) проходит в условиях, когда диффузионная длина адатома Al соизмерима с размером грани Si(111) канавки, и это обеспечивает равномерный рост по граням Si(111). В водородной среде диффузионная длина адатома Ga существенно больше расстояния между канавками наноструктурированных подложек, и это приводит к формированию блоков нитрида галлия с большими размерами на подложке. Действительно, из АСМ данных (рис. 2, *d, f*) можно полагать, что размеры блоков, сформированных на поверхности NP-Si(100) и NP-Si(113), близки, что можно связать с примерно одинаковой длиной диффузии атомов Ga в приповерхностном слое, равной 4–10 μm. Поскольку скорость роста GaN(10-11) оказывается существенно меньше скорости роста GaN(11-22), то это приводит к разной величине аспектного соотношения для полуполярных слоев.

Таким образом, морфология поверхности полуполярных слоев свидетельствует, что более высокое аспектное соотношение блоков GaN(11-22), чем GaN(10-11) связано с более высокой скоростью роста полуполярной грани GaN(11-22), чем GaN(10-11) и с различной скоростью роста полуполярных и полярной граней. В целом эти результаты демонстрируют, что морфология полуполярных слоев при эпитаксии на наноструктурированной поверхности формируется в условиях конкуренции полярной и полуполярной плоскости кристалла и сильно отличается от условий роста на плоских полярных поверхностях.

## Благодарности

Авторы благодарят В.К. Смирнова за предоставление наноструктурированных подложек Si(100).

## Финансирование работы

Исследования частично выполнены при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-08-00096.

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] P. Waltereit, O. Brandt, A. Trampert, H.T. Grahn, J. Menniger, M. Ramsteiner, M. Reiche, K.H. Ploog. *Nature*, **406**, 865 (2000). DOI: 10.1038/35022529
- [2] A. Hirai, Z. Jia, M. Schmidt, R. Farrell, S. DenBaars, S. Nakamura, J. Speck, K. Fujito. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 191906 (2007). DOI: 10.1063/1.2802570
- [3] Y. Honda, N. Kameshiro, M. Yamaguchi, N. Sawaki. *J. Cryst. Growth*, **242**, 82 (2002). DOI: 10.1016/S0022-0248(02)01353-2
- [4] J. Song, J. Choi, K. Xiong, Y. Xie, J.J. Cha, J. Han. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **9** (16), 14088 (2017). DOI: 10.1021/acsami.7b01336
- [5] J. Hagggar, Y. Cai, S.S. Ghataora, R.M. Smith, J. Bai, T. Wang. *ACS Appl. Electron. Mater.*, **2**, 2363 (2020). DOI: 10.1021/acsaem.0c00399
- [6] S. Guha, N.A. Bojarczuk. *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 1487 (1998). DOI: 10.1063/1.122181
- [7] Y. Zhao, S.-H. Oh, F. Wu, Y. Kawaguchi, S. Tanaka, K. Fujito, J.S. Speck, S.P. DenBaars, S. Nakamura. *Appl. Phys. Express*, **6**, 062102 (2013). DOI: 10.7567/APEX.6.062102
- [8] Y. Zhao, Q. Yan, C.-Y. Huang, S.-C. Huang, P.S. Hsu, S. Tanaka, C.-C. Pan, Y. Kawaguchi, K. Fujito, C.G. Van de Walle, J.S. Speck, S.P. DenBaars, S. Nakamura, D. Feezell. *Appl. Phys. Lett.*, **100**, 201108 (2012). DOI: 10.1063/1.4719100
- [9] V. Bessolov, A. Zubkova, E. Konenkova, S. Konenkova, S. Kukushkin, T. Orlova, S. Rodin, V. Rubets, D. Kibalov, V. Smirnov. *Phys. Stat. Sol. B*, **256**, 1800268 (2019). DOI: 10.1002/PSSB.201800268
- [10] В.Н. Бессолов, Е.В. Коненкова, С.Н. Родин, Д.С. Кибалов, В.К. Смирнов. *ФТП*, **55** (4), 356 (2021). DOI: 10.21883/FTP.2021.04.50740.9562 [V.N. Bessolov, E.V. Konenkova, S.N. Rodin, D.S. Kibalov, V.K. Smirnov. *Semiconductors*, **55** (4), 471 (2021). DOI: 10.1134/S1063782621040035]
- [11] H. Li, H. Zhang, J. Song, P. Li, Sh. Nakamura, S.P. DenBaars. *Appl. Phys. Rev.*, **7**, 041318 (2020). DOI: 10.1063/5.0024236
- [12] V.K. Smirnov, D.S. Kibalov, O.M. Orlov, V.V. Graboshnikov. *Nanotechnology*, **14**, 709 (2003). DOI: 10.1088/0957-4484/14/7/304
- [13] P. Hartman, W.G. Perdok. *Acta Cryst.*, **8** (9), 521 (1955). DOI: 10.1107/S0365110X55001679
- [14] B.-O. Jung, S.-Y. Bae, Y. Kato, M. Imura, D.-S. Lee, Y. Honda, H. Amano. *Cryst. Eng. Comm.*, **16**, 2273 (2014). DOI: 10.1039/C3CE42266F
- [15] M. Nami, R. Eller, S. Okur, A. Rishinaramangalam, S. Liu, I. Brener, D. Feezell. *Nanotechnology*, **28**, 025202 (2017). DOI: 10.1088/0957-4484/28/2/025202
- [16] C. Bayram, J.A. Ott, K.-T. Shiu, Ch.-W. Cheng, Y. Zhu, J. Kim, M. Razeghi, D.K. Sadana. *Adv. Funct. Mater.*, **24** (28), 4492 (2014). DOI: 10.1002/adfm.201304062
- [17] T. Narita, T. Hikosaka, Y. Honda, M. Yamaguchi, N. Sawaki. *Phys. Stat. Sol. C*, **0** (7), 2154 (2003). DOI: 10.1002/pssc.200303511
- [18] M. Stepniak, M. Wóska, J. Prązmowska-Czajka, A. Stafiniak, D. Przybylski, R. Paszkiewicz. *Electronics*, **9**, 2129 (2020). DOI: 10.3390/electronics9122129