

06.5;08.2

Об успешном опыте гомоэпитаксии слоев β -Ga₂O₃ на собственных подложках

© Д.А. Бауман¹, Д.Ю. Панов¹, В.А. Спиридонов¹, А.Ю. Иванов¹, А.В. Сахаров²,
С.Н. Родин², Н.Д. Прасолов², А.Е. Романов^{1,2}

¹ Университет ИТМО, Санкт-Петербург, Россия

² Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: dabauman@itmo.ru

Поступило в Редакцию 27 октября 2023 г.

В окончательной редакции 21 декабря 2023 г.

Принято к публикации 21 декабря 2023 г.

Предложен способ изготовления подложек из объемных кристаллов оксида галлия β -Ga₂O₃ методом скальвания. На примере выращивания на изготовленных подложках слоев β -Ga₂O₃ и β -(Al_xGa_{1-x})₂O₃ методом эпитаксии из металлоорганических соединений показана возможность их использования для гомоэпитаксии. Проведен анализ морфологии поверхности и структурного качества полученных слоев.

Ключевые слова: оксид галлия, подложки, металлоорганическая газофазная эпитаксия, гомоэпитаксия.

DOI: 10.61011/PJTF.2024.07.57470.19783

Уникальные свойства оксида галлия (прежде всего наиболее стабильной β -фазы), такие как большая ширина запрещенной зоны (от 4.5 до 5.4 eV по разным оценкам [1]) и высокие значения поля пробоя (до 8 MV/cm по расчетам [2], 5.3 MV/cm в приборе [1]), делают этот материал перспективным при изготовлении высоковольтных приборов и ультрафиолетовых датчиков. Бета-фаза оксида галлия обладает и другими преимуществами: контролируемое легирование примесями n -типа, сравнительно высокая подвижность электронов (до 196 cm²/(V·s) [3]), радиационная стойкость [4].

Для изготовления качественного полупроводникового прибора, и в особенности приборов силовой электроники, нужны эпитаксиальные слои с минимальным количеством дефектов. Это в значительной мере определяется выбором материала подложки. Для эпитаксии различных политипов Ga₂O₃ используются разные материалы подложек. В частности, α -Ga₂O₃ и κ -Ga₂O₃ часто выращивают на подложках из искусственного сапфира [5,6]. Есть результаты успешного выращивания слоев α -Ga₂O₃ на поверхности алмаза [7]. Однако наиболее эффективный способ получения низкодефектных слоев состоит в использовании гомоэпитаксии (выращивание структур на „родных“ подложках). Здесь проявляется еще одно преимущество оксида галлия — возможность изготовления объемных кристаллов сравнительно дешевыми способами роста из расплава (прежде всего методом Чохральского [8] или методом Степанова [9]).

В настоящей работе представлены результаты разработки метода выращивания низкодефектных объемных кристаллов β -Ga₂O₃, приготовления подложек из полученных кристаллов, а также выращивания методом металлоорганической газофазной эпитаксии (МОГФЭ) слоев β -Ga₂O₃ и β -(Al_xGa_{1-x})₂O₃ на изготовленных подложках. Главная цель экспериментов по выращива-

нию слоев состояла в демонстрации принципиальной возможности использования подложек для последующей гомоэпитаксии.

Объемные кристаллы β -Ga₂O₃ были выращены на установке „Ника-3“ (ФГУП ЭЗАН, Россия). Для получения расплава использовался иридиевый тигель высотой 26 mm, диаметром 40 mm, помещенный в тепловую зону из диоксида циркония. Нагрев тигля индукционный. Для выращивания объемных кристаллов β -Ga₂O₃ в качестве затравки использовались фрагменты ранее выращенных кристаллов β -Ga₂O₃. Исходным сырьем для расплава служил порошок Ga₂O₃ чистотой 99.999%. Скорость вытягивания кристалла составила около 0.15 mm/min.

Традиционный подход к изготовлению подложек из объемного кристаллического материала требует резки, химической и механической полировки и очистки. Однако в случае монокристалла β -Ga₂O₃ доступен другой способ изготовления подложек [10], использующий природу спайности кристаллов β -Ga₂O₃: тонкие пластинки легко отслаиваются от объемного кристалла по плоскости спайности (100), причем поверхность получаемых пластин (подложек) является достаточно гладкой и не требует дополнительной обработки. Таким образом были получены подложки в виде плоскопараллельных пластин размером около 10 × 15 mm (толщина около 1 mm).

Эпитаксиальный рост слоев β -Ga₂O₃ и β -(Al_xGa_{1-x})₂O₃ на полученных подложках был выполнен на установке для МОГФЭ Epiquip VP-50, модернизированной для роста оксидов. Установка имеет горизонтальный реактор с индукционным нагревом. Рост проводился при температуре 750°C и давлении 100 mbar. Поток несущего газа (азота) составлял 4.5 slm (литр в минуту при стандартных условиях), поток кислорода — 1 slm, потоки триметилгаллия и триметилалюминия

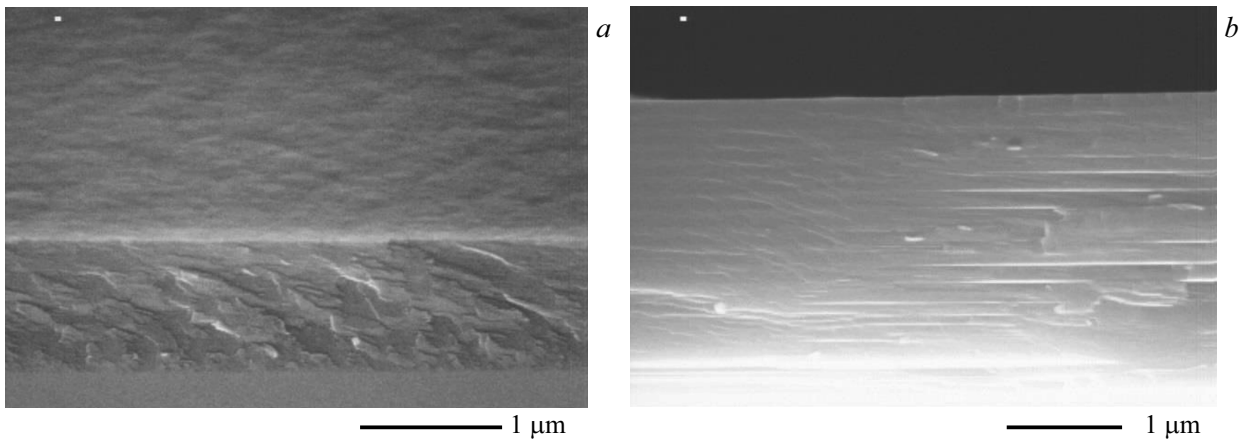


Рис. 1. Изображения слоев на сколе структур, полученные с помощью растрового электронного микроскопа. *a* — образец № 1, слой $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ толщиной около $0.9\ \mu\text{m}$; *b* — образец № 3, система из 11 пар слоев $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3/\beta\text{-(Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$, толщина каждой пары приблизительно $0.16\ \mu\text{m}$, а также нижний слой $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$, прилегающий к подложке, толщиной около $0.9\ \mu\text{m}$.

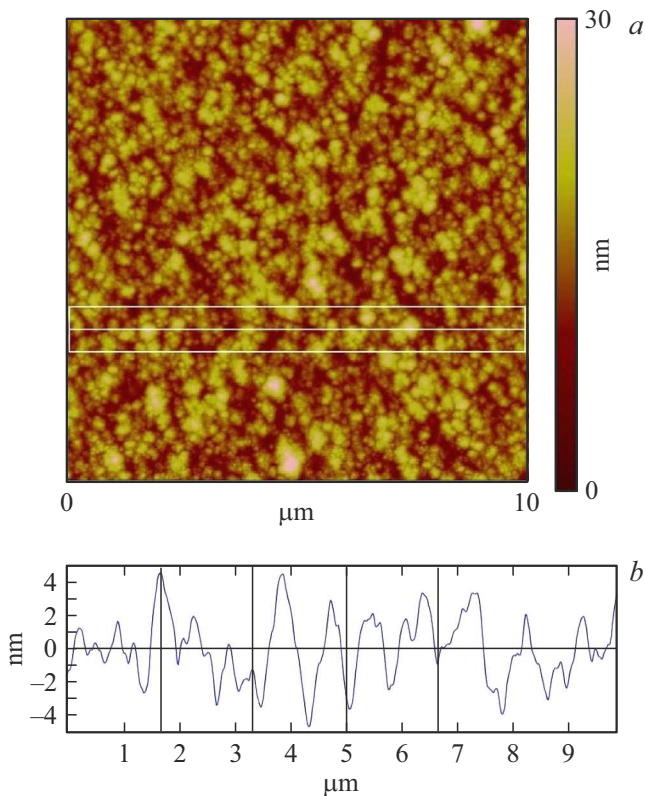


Рис. 2. Морфология поверхности эпитаксиального слоя $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$, полученная с помощью АСМ. *a* — 2D-карта рельефа поверхности; *b* — профиль рельефа поверхности.

составляли 21 и $6\ \mu\text{mol}/\text{min}$ соответственно. Скорость роста была около $750\ \text{nm}/\text{h}$.

Морфология поверхности слоев была изучена с помощью атомно-силовой микроскопии (АСМ) на микроскопе NTEGRA Aura (НТ-МДТ, Россия). Получение изображений сколов и определение толщин слоев осуществлено на растровом электронном микроскопе

(Tescan MIRA-3, Чехия). Элементный состав получен методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (ЭДРС). Анализ фазового состава и кристаллического качества слоев выполнен на рентгеновском дифрактометре ДРОН-8 (НПО „Буревестник“, Россия).

Как было показано в [10], высота ступеней на поверхности подложки, изготовленной описанным способом, составляет около $3\text{--}4\ \text{nm}$. Это сравнимо с шероховатостью серийно производимых подложек и достаточно для проведения процесса эпитаксиального роста. На полученных подложках были выращены слой $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ (образец № 1), слой $\beta\text{-(Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$ (образец № 2), а также система из 11 пар чередующихся слоев $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3/\beta\text{-(Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$, выращенная на более толстом слое $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ (образец № 3). Использование такой системы чередующихся слоев является характерным приемом эпитаксиальных технологий, когда требуется обеспечить бездефектный переход между слоями существенно разного состава. По данным ЭДРС содержание алюминия в образце № 2 составило около $4\ \text{at.}\%$, а в образце № 3 — около $2\ \text{at.}\%$. Невысокое содержание алюминия обусловлено желанием избежать роста сильно напряженных слоев. Изображения слоев на сколе структур приведены на рис. 1.

Морфология поверхности слоя $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ (образец № 1) приведена на рис. 2. Видно, что слой имеет островковую поверхность, характерную для слоев, выращенных на незориентированных подложках. Аналогичный вид имеет поверхность слоев оксида галлия, полученных в работе [11] для углов разориентации подложек менее 0.1° .

Плоскости спайности в $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ существенно влияют на формирование ступеней. Энергия связи адатомов с подложкой на террасах плоскостей (100) меньше, чем энергия связи адатомов с вертикальными стенками ступеней, что должно приводить преимущественно к ступенчатому росту. Например, когда направление

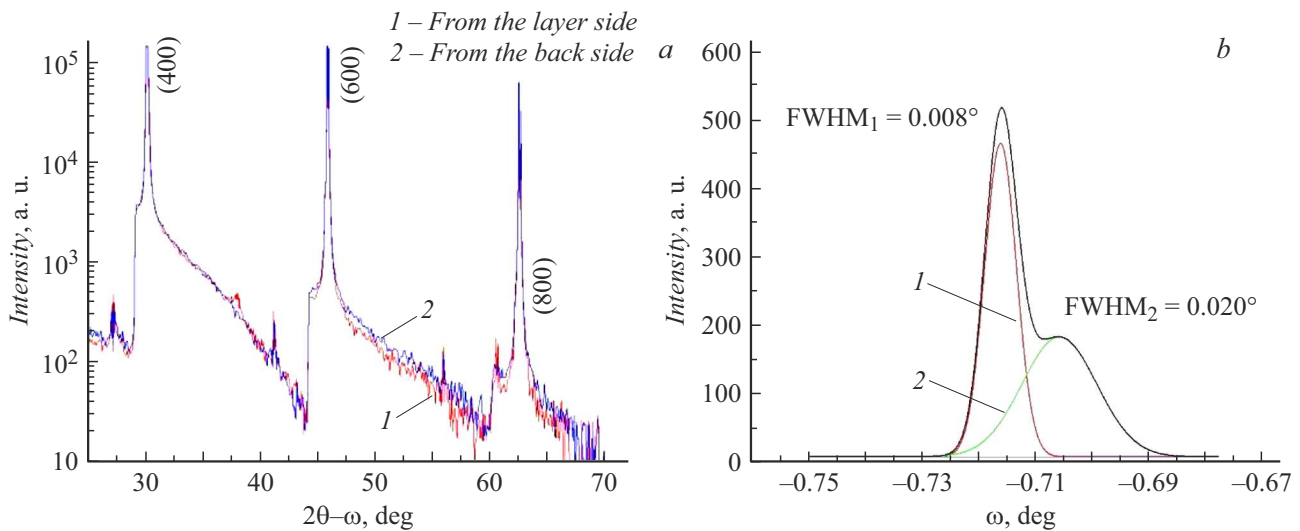


Рис. 3. Результаты рентгенодифрактометрического анализа образца № 3. *a* — спектры $2\theta-\omega$ -сканирования со стороны слоя (1) и со стороны подложки (2); *b* — кривая качания для системы из 11 пар эпитаксиальных слоев $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3/\beta\text{-(Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$.

вертикальной стенки ступени совпадает с направлением $[001]$ или $[00\bar{1}]$, слабая связь на плоскостях (001) образует ступенчатые стенки, состоящие из плоскостей спайности (001) . Если при этом скорости адсорбции на стенке ступени и диффузии адатомов примерно одинаковы вдоль террас, это может приводить к формированию относительно прямых ступеней.

Другим важным фактором, определяющим режим эпитаксиального роста пленки, является температура роста, влияющая на поверхностную диффузию. В работе [12] было показано, что морфология поверхности эпитаксиального слоя $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ существенно улучшается при повышении температуры роста с 800 до 1000°C, хотя эксперименты показали, что при этом происходит падение скорости роста [13].

В нашем случае ростовая поверхность остается ориентированной параллельно плоскости (100) . И несмотря на то что плоскость (100) в целом способствует послойному росту (так называемый *step-flow growth*), из-за отсутствия разориентации подложки (как правило на 0.2–0.3° относительно нормали к ростовой поверхности) плотность затравочных ступеней на исходной подложке невелика, на поверхности подложки преобладают плоские области без ступеней. Кроме того, выбранная температура роста (750°C), вероятно, недостаточна для обеспечения интенсивной поверхностной диффузии. Эти факторы обусловили в наших экспериментах не послойный, а островковый рост слоев.

На рис. 3 приведены $2\theta-\omega$ -спектры рентгеновской дифракции и кривая качания для образца № 3 как наиболее интересной структуры. Из рис. 3, *a* видно, что выращенные слои содержат только β -фазу оксида галлия, что ожидаемо для гомоэпитаксии. Количество алюминия в эпитаксиальных слоях (2 at.%) слишком мало, чтобы заметно деформировать кристаллическую решетку, и

недостаточно для образования α -фазы. Кривая качания для образца № 3 (рис. 3, *b*) распадается на два хорошо различимых отдельных пика. Более интенсивный и узкий пик (кривая 1) является рефлексом от подложки и совпадает с кривой качания, полученной с обратной стороны образца, т.е. со стороны подложки (на рисунке не приведена). Это подтверждает исследованное ранее [8] высокое кристаллическое качество использованных подложек. Более широкий, менее интенсивный и отчасти несимметричный пик (кривая 2), вероятно, относится к системе слоев. Это указывает на то, что система слоев не является монокристаллической, а состоит из слегка разориентированных мозаичных блоков.

Таким образом, в работе описан способ приготовления подложек из объемных кристаллов $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ методом скалывания по плоскости спайности (100) и показана принципиальная возможность выращивания эпитаксиальных слоев на поверхности таких подложек без дополнительной обработки поверхности. Для улучшения качества выращиваемых слоев требуется оптимизация процесса роста, в первую очередь по температуре роста и соотношению потоков прекурсоров. Насколько известно авторам, это первый пример успешной эпитаксии на подложках из оксида галлия, изготовленных в России.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке гранта Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение № 075-15-2021-1349).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] J.A. Spencer, A.L. Mock, A.G. Jacobs, M. Schubert, Y. Zhang, M.J. Tadjer, *Appl. Phys. Rev.*, **9**, 011315 (2022). DOI: 10.1063/5.0078037
- [2] S.I. Stepanov, V.I. Nikolaev, V.E. Bougrov, A.E. Romanov, *Rev. Adv. Mater. Sci.*, **44** (1), 64 (2016). https://www.ipme.ru/e-journals/RAMS/no_14416/06_14416_stepanov.pdf
- [3] A. Bhattacharyya, C. Peterson, T. Itoh, S. Roy, J. Cooke, S. Rebollo, P. Ranga, B. Sensale-Rodriguez, S. Krishnamoorthy, *APL Mater.*, **11** (2), 021110 (2023). DOI: 10.1063/5.0137666
- [4] D.A. Bauman, A.I. Borodkin, A.A. Petrenko, D.Yu. Panov, A.V. Kremleva, V.A. Spiridonov, D.A. Zakgeim, M.V. Silnikov, M.A. Odnoblyudov, A.E. Romanov, V.E. Bougrov, *Acta Astron.*, **180**, 125 (2021). DOI: 10.1016/j.actaastro.2020.12.010
- [5] A.B. Мясоедов, И.С. Павлов, А.И. Печников, С.И. Степанов, В.И. Николаев, *Письма в ЖТФ*, **49** (2), 26 (2023). DOI: 10.21883/PJTF.2023.02.54282.19365 [A.V. Myasoedov, I.S. Pavlov, A.I. Pechnikov, S.I. Stepanov, V.I. Nikolaev, *Tech. Phys. Lett.*, **49** (1), 67 (2023). DOI 10.21883/TPL.2023.01.55353.19365].
- [6] В.И. Николаев, А.Я. Поляков, С.И. Степанов, А.И. Печников, В.В. Николаев, Е.Б. Якимов, М.П. Щеглов, А.В. Чириряка, Л.И. Гузилова, Р.Б. Тимашов, С.В. Шапенков, П.Н. Бутенко, *ЖТФ*, **93** (3), 403 (2023). DOI: 10.21883/JTF.2023.03.54853.231-22 [V.I. Nikolaev, A.Ya. Polyakov, S.I. Stepanov, A.I. Pechnikov, V.V. Nikolaev, E.B. Yakimov, M.P. Scheglov, A.V. Chikiryaka, L.I. Guzilova, R.B. Timashov, S.V. Shapenkov, P.N. Butenko, *Tech. Phys.*, **68** (3), 376 (2023). DOI: 10.21883/TP.2023.03.55813.231-22].
- [7] A.Y. Polyakov, V.I. Nikolaev, S.A. Tarelkin, A.I. Pechnikov, S.I. Stepanov, A.E. Nikolaev, I.V. Shchemerov, E.B. Yakimov, N.V. Luparev, M.S. Kuznetsov, A.A. Vasilev, A.I. Kochkova, M.I. Voronova, M.P. Scheglov, J. Kim, S.J. Pearton, *J. Appl. Phys.*, **129** (18), 185701 (2021). DOI: 10.1063/5.0044531
- [8] Д.А. Закгейм, Д.Ю. Панов, В.А. Спиридонов, А.В. Кремлева, А.М. Смирнов, Д.А. Бауман, А.Е. Романов, М.А. Оdnoblyudov, В.Е. Бугров, *Письма в ЖТФ*, **46** (22), 43 (2020). DOI: 10.21883/PJTF.2020.22.50308.18499 [D.A. Zakgeim, D.I. Panov, V.A. Spiridonov, A.V. Kremleva, A.M. Smirnov, D.A. Bauman, A.E. Romanov, M.A. Odnoblyudov, V.E. Bougrov, *Tech. Phys. Lett.*, **46** (11), 1144 (2020). DOI: 10.1134/S1063785020110292].
- [9] D.A. Bauman, D.I. Panov, V.A. Spiridonov, A.V. Kremleva, A.V. Asach, E.V. Tambulatov, A.V. Sakharov, A.E. Romanov, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **41** (5), 053203 (2023). DOI: 10.1116/6.0002644
- [10] D.A. Bauman, D.I. Panov, D.A. Zakgeim, V.A. Spiridonov, A.V. Kremleva, A.A. Petrenko, P.N. Brunkov, N.D. Prasolov, A.V. Nashchekin, A.M. Smirnov, M.A. Odnoblyudov, V.E. Bougrov, A.E. Romanov, *Phys. Status Solidi A*, **218** (20), 2100335 (2021). DOI: 10.1002/pssa.202100335
- [11] R. Schewski, M. Baldini, K. Irmscher, A. Fiedler, T. Markurt, B. Neuschulz, T. Remmele, T. Schulz, G. Wagner, Z. Galazka, M. Albrecht, *J. Appl. Phys.*, **120** (22), 225308 (2016). DOI: 10.1063/1.4971957
- [12] H. Murakami, K. Nomura, K. Goto, K. Sasaki, K. Kawara, Q.T. Thieu, R. Togashi, Y. Kumagai, M. Higashiwaki, A. Kuramata, S. Yamakoshi, B. Monemar, A. Koukitu, *Appl. Phys. Express*, **8** (1), 015503 (2015). DOI: 10.7567/APEX.8.015503
- [13] В.В. Лундин, С.Н. Родин, А.В. Сахаров, А.Ф. Цацуньников, А.В. Лобанова, М.В. Богданов, Р.А. Талалаев, H. Sun, S. Long, *Письма в ЖТФ*, **48** (4), 44 (2022). DOI: 10.21883/PJTF.2022.04.52085.19081 [V.V. Lundin, S.N. Rodin, A.V. Sakharov, A.F. Tsatsulinikov, A.V. Lobanova, M.V. Bogdanov, R.A. Talalaev, H. Sun, S. Long, *Tech. Phys. Lett.*, **48** (2), 80 (2022). DOI: 10.21883/TPL.2022.02.53585.19081].