

УДК 621.38-022.532

**ФОРМИРОВАНИЕ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ СЛОЕВ AlN И AlGaN
НА ПОДЛОЖКАХ САПФИРА МЕТОДОМ АММИАЧНОЙ
МОЛЕКУЛЯРНО-ЛУЧЕВОЙ ЭПИТАКСИИ**

**Ю.В. Грищенко, И.С. Езубченко, М.Л. Занавескин, И.О. Майборода, М.Ю. Пресняков
Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»**

Статья поступила в редакцию 30 декабря 2015 г.

Аннотация. Эпитаксиальные пленки и гетероструктуры III-нитридов (AlN, GaN) представляют большой интерес для микро и оптоэлектроники. В данной работе исследованы особенности роста слоев AlN и AlGaN методом аммиачной молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках сапфира. В качестве методов исследования применялись дифракция быстрых отраженных электронов, атомно-силовая микроскопия, просвечивающая электронная микроскопия и рентгеновская дифракция. Установлено, что количество островковых образований, характерных для высокотемпературных слоев AlN на сапфировых подложках, может быть уменьшено с 3×10^9 до 2×10^7 на см^{-2} за счет увеличения потока аммиака в процессе осаждения. Показано, что при осаждении высокотемпературных слоев AlGaN в режиме активной десорбции галлия реализуется селективное усиление латеральной компоненты роста в областях с развитой морфологией рельефа. Усиление латеральной компоненты роста приводит к ускоренному переходу к двумерному режиму роста на начальной стадии осаждения и позволяет получить пленки с атомарно гладкими террасами шириной до 1 мкм без проникающих пор, наблюдающихся в слоях AlN. На основе модели TSK предложено описание механизма усиления латерального роста в AlGaN.

Ключевые слова: аммиачная МЛЭ, транзисторы с высокой подвижностью электронов, AlN, AlGaN, усиленный латеральный рост.

Abstract. Epitaxial films and III-nitrides heterostructures (AlN, GaN) have found a wide application at micro and optoelectronics. The properties of AlN and AlGaN high-temperature (HT) films growths on sapphire substrates by means of ammonia MBE were studied at this paper. Reflective high energy electron diffraction (RHEED), atomic-force microscopy (AFM), transmission electron microscopy (TEM) and X-Ray diffraction were used to study the properties of epitaxial films. It was found that density of hillocks in HT AlN layers on sapphire can be reduced from 3×10^9 down to 2×10^7 per cm^2 through the rise of the ammonia flux during growth process. It was shown that deposition of AlGaN films under high Ga desorption led to selective enhancement of lateral growth component at the areas of developed surface morphology. Enhanced lateral growth allowed to achieve accelerated transition to 2-D growth mode at the initial stages of growth and led to formation of stepped surface with terrace width of 1 micron. Also formation of threading pores was completely suppressed. On the basis of terrace-step-kink model (TSK model) the mechanism of lateral growth enhancement was suggested.

Key words: ammonia MBE, high electron mobility transistors, AlN, AlGaN, enhanced lateral growth.

Введение

Благодаря своим уникальным физическим свойствам нитриды металлов третьей группы (GaN, AlN, InN) стали крайне востребованы в микро- и оптоэлектронике. Одной из важнейших областей применений широкозонных нитридных полупроводников является изготовление СВЧ устройств на базе транзисторов с высокой подвижностью электронов (HEMT) [1]. За последние два десятилетия был достигнут невероятный прогресс в развитии нитридной микроэлектроники, однако одним из основных лимитирующих факторов для характеристик нитридных устройств остается недостаточное качество гетероструктур.

Сложность получения гладких низкодефектных пленок нитридов связана с тем, что для их роста приходится использовать подложки, рассогласованные по

структурным параметрам – SiC, Si и Al₂O₃. С точки зрения соотношения цены и рассогласования структурных параметров использование подложек сапфира является наиболее оптимальным. Подложки сапфира имеют значительно меньшее рассогласование параметра решетки и коэффициента температурного расширения по сравнению с кремнием. При этом подложки сапфира имеют на порядок меньшую стоимость, чем пластины карбида кремния аналогичных размеров.

Одним из методов получения нитридных пленок и структур приборного качества является аммиачная молекулярно-лучевая эпитаксия (NH₃ МЛЭ, аммиачная МЛЭ), которая объединяет преимущества газофазной эпитаксии (MOCVD) и плазменной МЛЭ [1], что было показано уже в первых успешных опытах применения аммиачной МЛЭ [2]. В то же время более позднее появление данного метода привело к тому, что процессы формирования нитридных структур с его помощью изучены гораздо хуже, чем для методов MOCVD и плазменной МЛЭ. Сейчас ясно, что для полной реализации всех достоинств аммиачной МЛЭ необходимо глубокое систематическое изучение механизмов формирования эпитаксиальных гетероструктур нитридов с его помощью.

Практический интерес представляет исследование роста нитридов при высоких температурах. Рост пленок AlN методом MOCVD при температурах подложки свыше 1000°C показал, что при данных условиях могут быть получены слои исключительного кристаллического совершенства с гладкой морфологией поверхности [3]. Особое внимание на себя обращают результаты работы [4], авторам которой удалось добиться улучшения морфологии и структурного совершенства слоев AlN за счет использования галлия в качестве сурфактанта. Сурфактантом в эпитаксии называется вещество, которое не встраивается в растущую пленку, однако меняет кинетику ростового процесса [5]. Фактически, сурфактант можно назвать катализатором для ростового процесса.

Для аммиачной МЛЭ продемонстрировано, что высокотемпературный AlN может быть использован в качестве зародышевых и буферных слоев НЕМТ структур для улучшения их качества [6]. В то же время изучению подобных слоев посвящено крайне малое количество работ. Пока еще плохо известно, как структурные и морфологические свойства пленок зависят от условий роста, что не позволяет выработать подходы для получения слоев AlN оптимального качества.

В данной работе мы проводили изучение влияния условий роста на свойства эпитаксиальных пленок AlN и AlGaN, выращенных методом аммиачной МЛЭ на подложках сапфира при температурах выше 1000°C. Результаты, полученные в работе [4] при росте AlN методом MOCVD с использованием галлия в качестве сурфактанта вдохновили нас на то, чтобы проверить, может ли рост AlGaN при высоких температурах позволить получить нитридные пленки более высокого качества. Сначала в работе представлено описание результатов, полученных на слоях AlN, затем приведены данные по росту AlGaN. После описания результатов приведен их анализ и сопоставление данных по AlN и AlGaN. В завершение статьи представлена предполагаемая модель процессов на поверхности AlGaN.

Методика эксперимента

Рост образцов проводился в установке аммиачной молекулярно-лучевой эпитаксии Semiteq STE3N* на подложках сапфира (0001) с углом скоса поверхности 0,2 градуса в направлении оси *m*. Для обеспечения нагрева обратная сторона подложек покрывалась слоем титана толщиной 300 нм. Температура подложки измерялась с помощью инфракрасного пирометра, калиброванного на температуру плавления алюминия (660°C). Подложки подвергались отжигу в условиях высокого вакуума при температуре 850°C с последующей нитридизацией в потоке аммиака 30 sccm в течение 15 минут. Измерение толщин пленок проводилось с помощью лазерного интерферометра. Потоки Al и Ga приведены в единицах скорости роста пленок (0001) AlN и (0001) GaN в мкм/ч, как сделано в работе [7].

Все осаждаемые пленки AlN и AlGaN имели толщину 300 нм. Поверхность слоев была изучена методами дифракции быстрых отраженных электронов (RHEED) и атомно-силовой микроскопии. Методика RHEED так же была использована для определения полярности полученных пленок с помощью наблюдения поверхностных реконструкций [8]. Все выращенные пленки имели металлическую полярность. Перед проведением измерений методом АСМ образцы были подвержены отмывке в органических растворителях, вакуумной сушке и выдержаны в атмосфере паров воды для снятия электростатического заряда, мешающего проведению измерений. Для оценки стехиометрии и структурного совершенства полученных слоев была использована дифракция рентгеновских лучей. Образцы для исследования методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) были подготовлены с помощью механической полировки с последующим травлением ионами аргона. Для проведения локального элементного микроанализа химического состава пленок AlGaN была использована методика энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (ЭДС), реализуемая посредством ЭДС-приставки на ПЭМ.

Исследование образцов пленок AlN

Для изучения влияния ростовых параметров на морфологию слоев AlN была выращена серия из шести образцов пленок нитрида алюминия на подложках сапфира. Три образца были осаждены при величине потока аммиака 60 sccm на температурах 1020°C, 1050°C и 1100°C. Еще три образца были выращены при тех же температурах, но поток аммиака был задан равным 200 sccm. Поток алюминия составлял 200 нм/ч. Для удобства в дальнейшем тексте образцы будут обозначаться в соответствии с параметрами осаждения s60/1020, s60/1050, s60/1100, s200/1020, s200/1050, s200/1100, где первое число обозначает поток аммиака в sccm, а второе – температуру подложки в градусах Цельсия.

В процессе роста пленок велось наблюдение за их поверхностью с помощью метода RHEED, который дает простой критерий для качественной оценки морфологии поверхности. Для монокристаллов с развитой морфологией

и трехмерными образованиями на поверхности характерна точечная картина дифракции, в то время как на гладких поверхностях пятна сливаются в сплошные линии [9]. В первые минуты роста AlN дифракционная картина представляла собой набор точечных пятен (рис.1а), что соответствует стадии образования и разрастания разрозненных зародышевых островков. По мере увеличения толщины пленки на фоне точечных рефлексов начинали проявляться сплошные линии (рис.1б). Дальнейшие изменения дифракционной картины для различных образцов протекали по-разному. Для образца s60/1100 дифракционная картина до самого окончания роста представляла собой суперпозицию точечных рефлексов и линий. При этом сами дифракционные рефлексы становились более узкими. На других образцах наблюдался полный переход от смешанной картины дифракции к линейной (рис.1в), что говорит о формировании рельефа преимущественно гладкой морфологии. Время полного перехода к линейной картине дифракции для данных образцов составляло 15-20 минут, что при заданной скорости роста пленки 200 нм/ч соответствует толщине 50-70 нм. При охлаждении полученных образцов в атмосфере аммиака удалось наблюдать отчетливые дополнительные линии дифракции, которые соответствуют реконструкции поверхности 2x2, что говорит о металлической полярности полученных пленок [8].

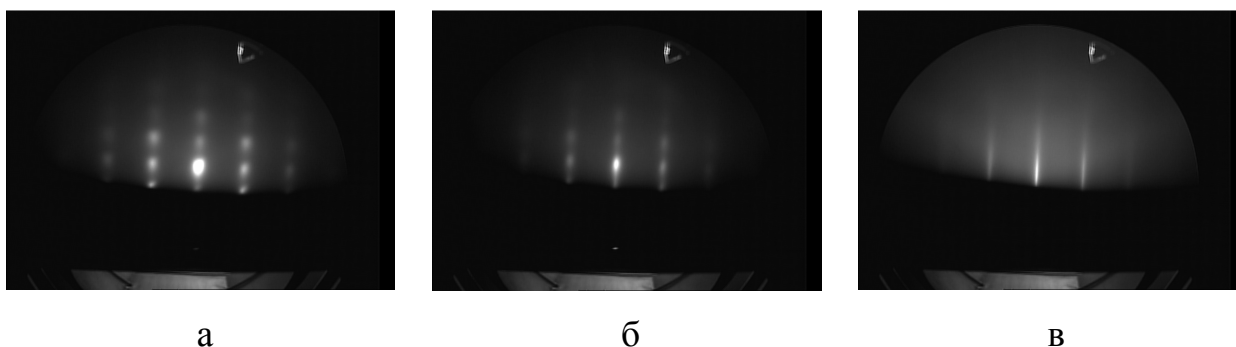


Рис.1. Эволюция паттернов RHEED в процессе роста AlGaIn: (а) трехмерный островковый рост; (б) смешанный рельеф (гладкие участки и островки); (в) гладкая поверхность – двумерный рост.

Изучение поверхности образцов с помощью атомно-силовой микроскопии выявило три типа особенностей рельефа: гладкие террасы со ступенчатыми границами, островковые образования и поры. Островковые образования имели высоту до 40 нм и средний диаметр около 200 нм (рис.2 а,б). Плотность островковых образований зависела от температуры подложки и потока аммиака в процессе осаждения.

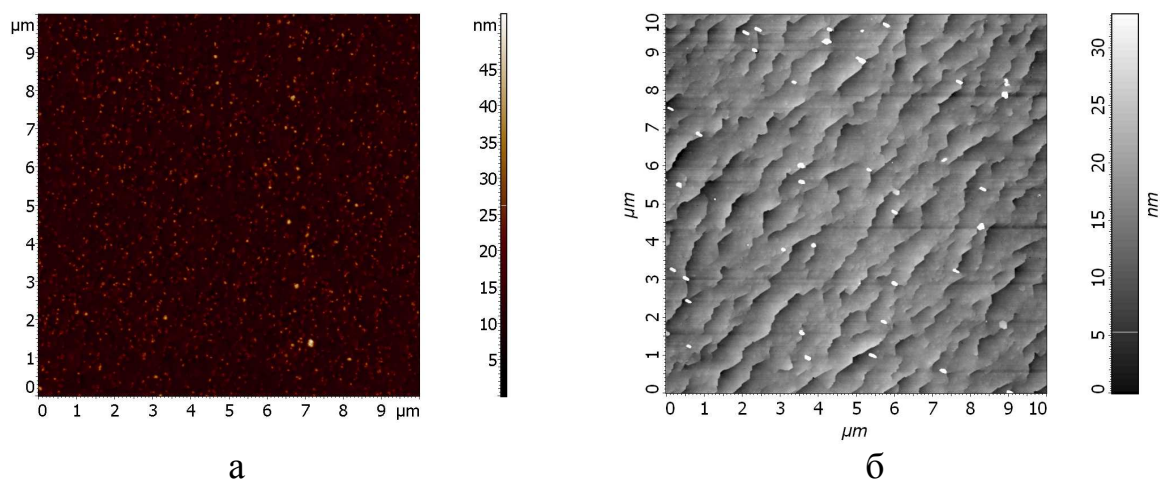


Рисунок 2. АСМ изображения поверхности образцов s60/1100 (а) и s200/1050 (б).

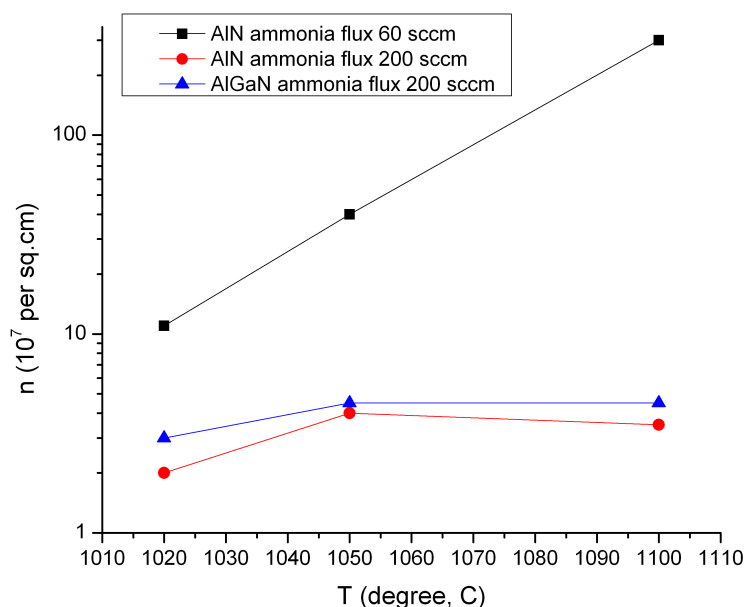


Рис.3. Зависимость количества островков от параметров роста

Из приведенного на рисунке 3 графика видно, что плотность островков возрастает с повышением температуры и снижается при повышении потока

аммиака. На образцах s60/1100 и s200/1020 плотность островков составила порядка 3×10^9 и 2×10^7 на см^2 соответственно. Таким образом, оптимизация ростовых параметров позволяет снизить плотность островковых образований на поверхности AlN более чем на 2 порядка. О наличии подобных островков на поверхности пленок AlN, выращенных методами аммиачной МЛЭ и MOCVD уже сообщалось в других работах [10,11].

На всех образцах кроме s60/1100 отчетливо различались террасы со ступенчатыми границами (рис.2б), причем при более высокой температуре осаждения формировались террасы с более четко очерченными границами. Ширина террас составляла порядка 0,5 мкм, а высота 2-3 нм. Соотношение высоты террас и длины ступеней соответствует углу скоса подложки 0,2 градуса.

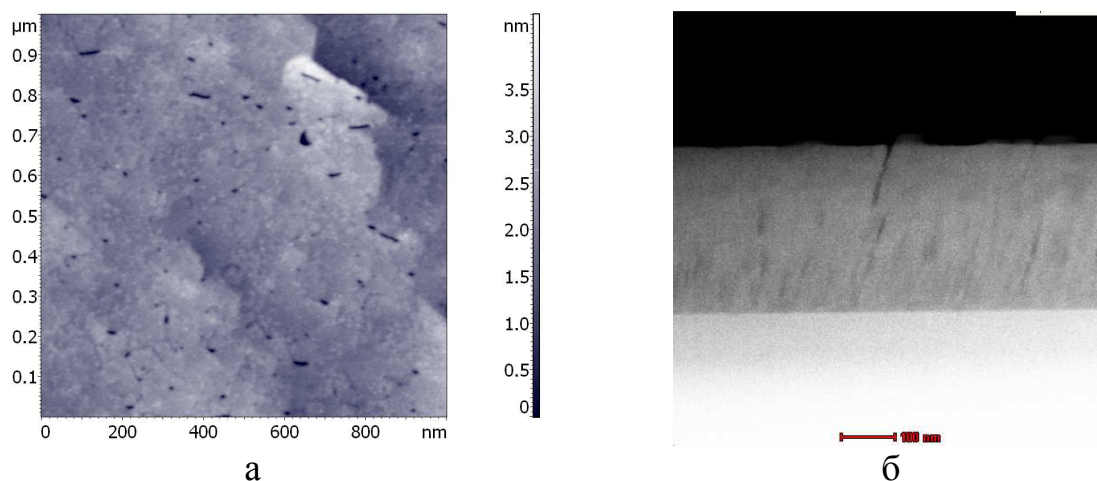


Рисунок 4. Поры в пленках AlN: (а) АСМ изображение поверхности с выходами пор; (б) изображение поперечного среза пленки полученного с помощью ПЭМ.

На всех образцах кроме s60/1100 отчетливо наблюдались поры, количество которых составляло порядка 10^{10} на см^2 (рис.4а). Исследование образцов с помощью просвечивающей электронной микроскопии показало, что наблюдаемые на поверхности пленок поры пронизывают слои AlN насквозь. Важно отметить, что проникающие поры были обнаружены и на образце s60/1100 (рис.4б), хотя на его поверхности поры не наблюдались. Количество

пор практически не менялось в зависимости от использованных ростовых параметров.

Полученные с помощью АСМ данные о рельефе пленок AlN позволили установить, что смешанная картина дифракции, наблюдавшаяся на образце s60/1100, была следствием наличия на его поверхности большого количества островковых образований. По причине малого суммарного объема, островковые образования на других образцах не проявляли себя на дифракционной картине. В результате на всех пленках кроме s60/1100 удалось наблюдать переход от трехмерной стадии роста зародышевых островков к двумерному росту сплошной гладкой пленки.

Поскольку образец s60/1100 резко выделяется из описанной серии, мы хотим особо подчеркнуть, что наблюдаемая морфология и картины дифракции были воспроизведены более чем на 10 образцах, выращенных при потоке аммиака 60 sccm и температуре подложки 1100°C.

Получение и исследование пленок AlGaN

Для оценки влияния галлия на рост высокотемпературных нитридных пленок образцы AlGaN были выращены при параметрах, аналогичных образцам пленок AlN, осажденных при потоке аммиака 200 sccm. Единственное отличие состояло в том, что при росте пленки помимо потока алюминия величиной 0,2 мкм/ч подавался поток галлия величиной 0,27 мкм/ч.

Наблюдение RHEED показало, что для всех образцов AlGaN эволюция дифракционной картины происходила одинаковым образом. В первые минуты роста дифракция представляла собой набор пятен, соответствующих стадии образования трехмерных зародышей небольшого размера, затем на картине дифракции появлялись дополнительные линейные рефлексы. Следующей стадией для всех образцов AlGaN был полный переход к линейной картине дифракции. Важно отметить, что полный переход к линейному паттерну дифракции происходил на пленках AlGaN в течение 5-6 минут, что при измеренных скоростях роста соответствует толщине пленки порядка 20-30 нм. Таким образом, на пленках AlGaN установление двумерного режима роста по

данным RHEED происходит в 2-3 раза быстрее, чем на пленках AlN, что указывает на большую скорость латерального разраствивания.

Наблюдение за осцилляциями отраженного сигнала лазерного интерферометра позволило определить скорость роста пленок, которая для температур 1020°C, 1050°C, и 1100°C составила 330, 245 и 205 нм/ч соответственно. Таким образом, имело место ожидаемое снижение скорости осаждения с повышением температуры за счет десорбции галлия. При росте AlGaN в отсутствие десорбции Ga при температуре 850°C скорость роста составляет 470 нм/ч, т.е. соответствует сумме потоков галлия и алюминия. Для анализа стехиометрического состава полученных пленок AlGaN был использован метод рентгеновской дифракции. Поскольку параметр решетки твердого раствора AlGaN почти линейно зависит от мольной доли галлия, состав пленки может быть определен по величине постоянных решетки, которые напрямую определяются с помощью рентгеновских методов. По результатам измерений было установлено, что мольная доля галлия в образцах, выращенных при температурах 1020°C, 1050°C и 1000°C составила 39%, 18%, и менее 5% соответственно.

Имея данные о стехиометрическом составе пленок, скоростях роста и потоках поступавших на поверхность металлов, мы можем оценить доли встраивания галлия и алюминия при различных температурах по следующим формулам:

$$IR_{Ga} = (V_{AlGaN} \times x) / I_{Ga}, \quad IR_{Al} = V_{AlGaN} \times (1 - x) / I_{Al},$$

где IR (incorporation rate) – коэффициент встраивания, x - мольная доля галлия в $Al_{1-x}Ga_xN$, V_{AlGaN} – скорость роста AlGaN, $I_{Ga,Al}$ – потоки галлия и алюминия. Для всех трех пленок коэффициент встраивания алюминия оказался близок к 1, в то время как для галлия он составил 0.48 для 1020°C, 0.17 для 1050°C и менее 0.05 для 1100°C. При росте AlGaN в отсутствие десорбции Ga при температуре 850°C коэффициент встраивания галлия равен 1, а мольные доли галлия и алюминия составляют 0,55 и 0,45.

При изучении рельефа пленок AlGaIn методом АСМ было установлено, что их поверхность преимущественно состоит из атомарно гладких террас, ограниченных ступенями (рис.5а). Ширина террас на слоях AlGaIn, осажденных при 1050°C и 1100°C в среднем составляла порядка 1 мкм при высоте ограничивающих их ступеней 5-6 нм. Оценка угла наклона террас к плоскости подложки по соотношению между высотой ступеней и шириной террас дает значение близкое к 0,2 градуса, т.е. совпадает с углом скоса подложки. Таким образом, поверхность наблюдаемых террас параллельна плоскости (0001) сапфировой подложки. Подчеркнем, что на террасах отсутствовали признаки наличия пор. На поверхности так же были обнаружены островковые образования высотой до 50 нм и средним диаметром порядка 400 нм (рис 5б). Их количество составило от 4×10^7 до 6×10^7 (рис.3).

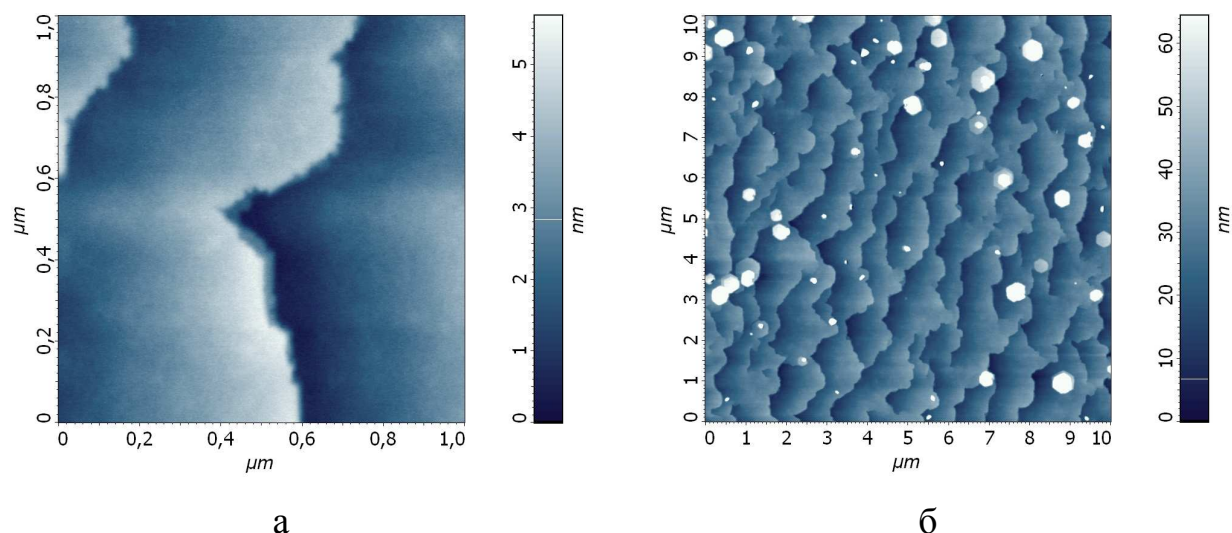
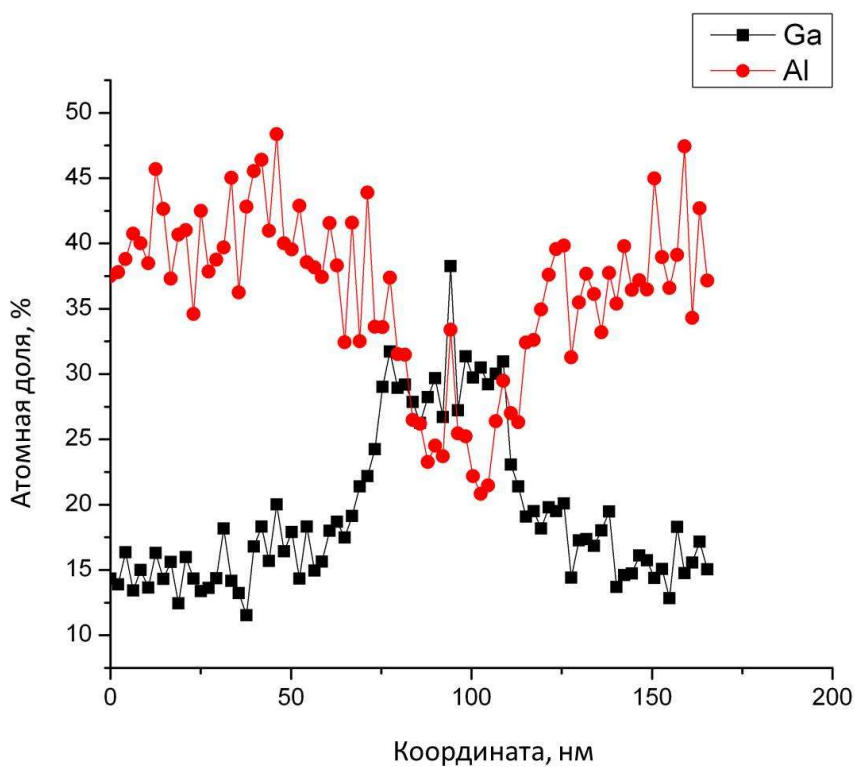
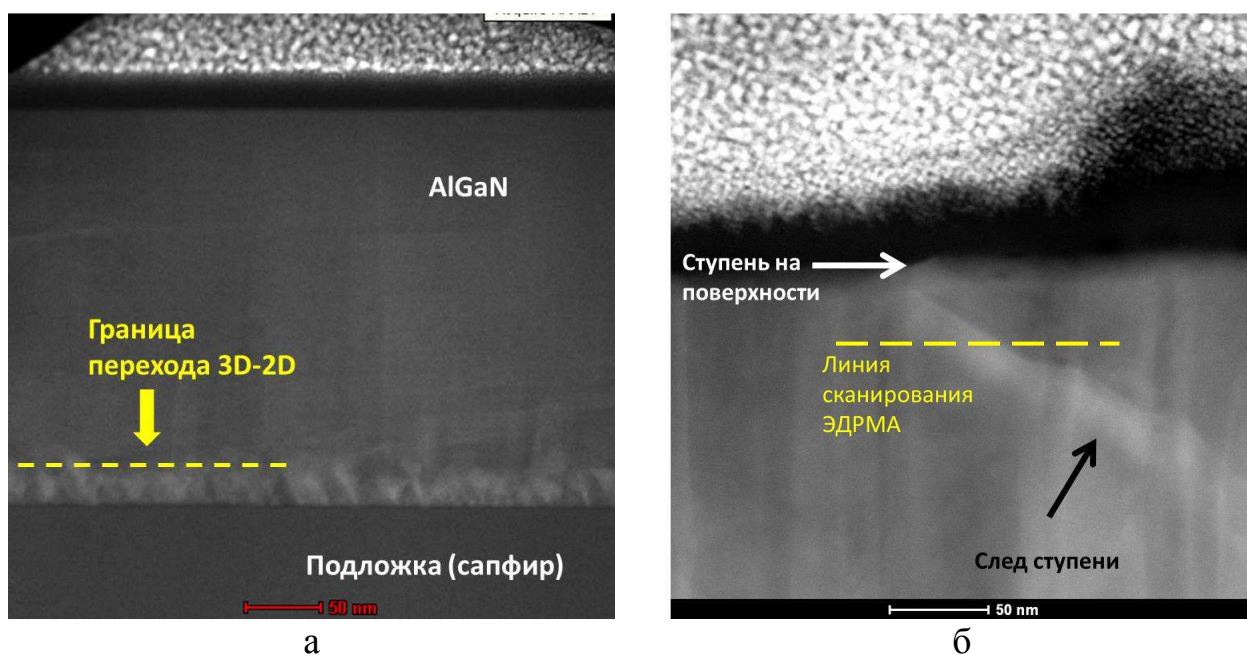


Рис.5. АСМ изображения поверхности пленки AlGaIn, выращенной при 1050°C

Образец AlGaIn, выращенный при температуре 1050°C был исследован методом просвечивающей электронной микроскопии в режиме темного поля. В объеме пленки (рис ба), как и на ее поверхности (рис.5а), не было обнаружено признаков проникающих пор. Таким образом, мы можем уверенно утверждать, что участие галлия позволило подавить формирование пор.

На полученном изображении отчетливо выделяется область, соответствующая стадии формирования и сращивания зародышевых островков, а так же различимы очертания самих островковых зародышей (рис ба). На

изображении видно, что переход к сплошной однородной пленке произошел на толщине порядка 20-30 нм, что хорошо согласуется с границей перехода, установленной с помощью RHEED.



в

Рис.6. Данные ПЭМ для образца AlGaN, выращенного при 1050°C: (а,б) изображение среза образца; (в) распределение концентраций галлия и алюминия вдоль линии, показанной на изображении (б).

Образец для ПЭМ был вырезан из области, содержащей на своей поверхности ступенчатые границы террас (показана белой стрелкой на рис. 6б). От ступени вглубь образца уходит светлая полоса, которую мы интерпретируем как след, оставленный ступенью в процессе увеличения толщины пленки. Справедливость подобной интерпретации подтверждается тем, что рельеф более тонких пленок (200 нм) так же содержит террасы с аналогичными ступенчатыми границами, а значит, начиная с некоторого момента, ступени постоянно присутствуют на поверхности пленки. Кроме того, все ступени, вошедшие в срез образца для ПЭМ так же имели характерный «след» в объеме пленки AlGaN.

В режиме темного поля светлые области соответствуют более интенсивному рассеянию электронов. Было сделано предположение, согласно которому более активное рассеяние в области зародышевого слоя и в «следе» ступени может быть следствием неоднородности пленки по локальному химическому составу.

С помощью методики энергодисперсионного рентгеновского микроанализа (ЭДРМА) был проведен локальный анализ элементного состава пленок вдоль линии, отмеченной на рисунке 6б. Анализ показал, что в областях усиленного рассеяния электронов повышена доля атомов галлия и снижена доля атомов алюминия (рис. 6в). Численная оценка по относительному изменению концентраций галлия и алюминия в исследованных на элементный состав областях показывает, что максимальная мольная доля галлия достигает 55%, а минимальная доля алюминия составляет 45%. Таким образом, в области зародышевого слоя и в «следах» ступеней мольная доля галлия действительно выше, чем по объему кристалла в среднем, причем соотношение мольных долей галлия и алюминия соответствует соотношению их потоков в процессе роста. Полученный результат так же показывает, что очертания островков на границе AlGaN и сапфировой подложки отчетливо различимы именно благодаря повышенному содержанию галлия в них.

Сопоставление результатов исследования AlN и AlGaN

На пленках AlN и AlGaN переход от трехмерной стадии роста к двумерной происходит примерно в 2 раза быстрее, чем на пленках AlN (на толщинах 30 нм и 60 нм соответственно). Оба типа слоев имеют на своей поверхности примерно одинаковое количество островковых образований (рис. 3), однако в случае AlGaN их средний диаметр оказывается примерно в два раза больше и составляет примерно 400 нм. Террасы на AlGaN имеют атомарно гладкий рельеф и среднюю ширину порядка 1 мкм, что в два раза больше, чем на поверхности AlN. Проникающие поры, которые в большом количестве (порядка 10^{10} на см^2) присутствуют в пленках AlN, не обнаружены в слоях AlGaN. Важной особенностью слоев AlGaN является увеличенная мольная доля галлия в области зародышевого слоя и в «следах», оставленных ступенчатыми границами террас в процессе роста пленки.

Таким образом, высокотемпературные пленки AlGaN имеют низкую концентрацию островковых образований и не содержат проникающих пор. Островковые образования уже наблюдались в слоях AlN, выращенных методами MOCVD и аммиачной МЛЭ. Авторы работы [11] смогли показать, что в их случае островки являлись выходами кристаллических дефектов – доменов инверсной полярности. Мы в свою очередь установили, что при травлении в растворе КОН на месте островковых образований формируются гексагональные ямки. Это может указывать как на домены инверсной полярности, так и на винтовые дислокации. Поры, в свою очередь могут быть проникающими дислокациями с открытым ядром [12]. На сегодняшний день хорошо известно, что различные проникающие дислокации в нитридных структурах могут быть источником паразитной проводимости, а также выступать в роли электронных ловушек, вызывая утечки и эффект коллапса тока в нитридных НЕМТ [13]. В этом свете достигнутое снижение плотности островков и устранение пор имеет большое практическое значение.

Механизмы формирования пленок AlGaN в условиях сильной десорбции галлия

Далее мы хотим изложить предполагаемый механизм, который может объяснить полученные экспериментальные результаты. В первую очередь, нужно подчеркнуть, что рост пленок проводился в условиях сильного избытка аммиака и высокой температуре подложки, что исключает полное покрытие поверхности атомами галлия. Это значит, что полученные результаты не могут быть объяснены классической теорией эффекта сурфактанта, в которой вещество-сурфактант полностью покрывает поверхность пленки и тем самым снижает величину барьеров диффузии для адатомов [5]. Хотя наблюдаемые эффекты крайне похожи на действие «классического» сурфактанта, мы полагаем, что в случае осаждения AlGaN в условиях активной десорбции галлия изменение кинетики роста происходит принципиально иному механизму.

Рассмотрим элементарную кинетику роста высокотемпературных пленок AlGaN с помощью модели TSK (terrace-step-kink, так же называемую TLK: terrace-ledge-kink) [14]. Модель была разработана в 50-х годах XX века [15] и получила яркое подтверждение после возникновения туннельной электронной микроскопии [16].

В модели поверхность кристалла рассматривается как совокупность террас и ступеней (рис.7а). Для атома, попавшего на поверхность, возможны несколько процессов. Атом может закрепиться на террасе, мигрировать по террасе, присоединиться к ступеням, мигрировать вдоль ступени, мигрировать из ступени на террасу, а так же десорбироваться с поверхности кристалла в вакуум. Согласно TSK модели вероятности этих процессов определяются количеством ближайших соседей атома и величиной барьеров поверхностной диффузии.

Сравним атом галлия на террасе и атом галлия на ступени (рис.7а). У ступени галлий будет иметь большее число соседей и, соответственно, сможет образовать большее число химических связей с кристаллом. Таким образом,

вероятность отсоединения атома от ступени должна быть ниже, чем вероятность отсоединения атома от террасы.

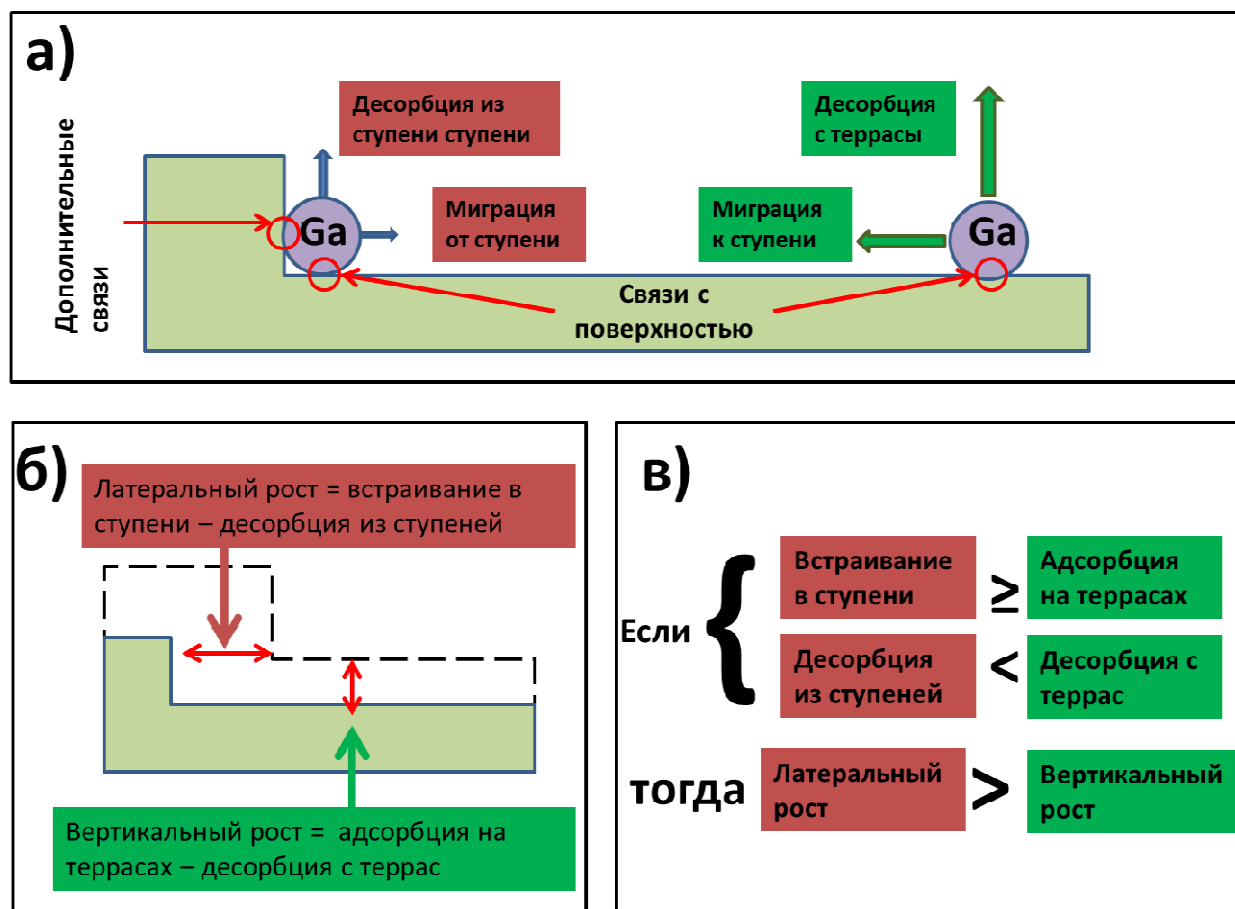


Рис.7 Механизм усиления латерального роста. а) атомы галлия на поверхности; б) вертикальная и латеральная составляющие роста; в) влияние десорбции на компоненты роста.

При осаждении нитридов в условиях избытка аммиака скорость роста пленки определяется потоком металлов, поступающих на поверхность и интенсивностью их десорбции. Ранее нами показано, что алюминий полностью встраивается в растущую пленку AlGaN и изменение скорости роста с повышением температуры происходит исключительно за счет десорбции галлия. Выделим вертикальную и латеральную составляющие роста (рис.7б). Первая будет определять увеличение толщины пленки за счет встраивания атомов на террасах, а вторая - скорость движения границ ступеней. Мы полагаем, что в условиях активной десорбции галлий вносит различный вклад в

вертикальную и латеральную составляющие роста за счет различной величины энергии связи на террасах и у границ ступеней: меньшая вероятность десорбции атомов из ступеней должна приводить к селективной аккумуляции галлия у границ особенностей рельефа и увеличению скорости их латерального разраствания (рис.7в).

Элементный микроанализ состава пленок AlGaN, выращенных при 1050°C, действительно показывает селективность встраивания галлия (рис.6). Выше было сказано, что доля галлия в зародышевом слое и в «следах» ступеней локально достигает 55%. Это значит, что в границы ступеней на 9 атомов алюминия встраивается 11 атомов галлия, хотя в общем объеме кристалла на 9 атомов алюминия приходится только 2 атома галлия. Полагая, что дополнительные атомы галлия вносят вклад именно в латеральный рост, мы можем численно оценить его изменение относительно AlN. Общий приток атомов к границам ступеней и островков в присутствии галлия оказывается в 2,2 раза выше, чем в случае роста AlN, что должно приводить к соответствующему увеличению скорости латерального роста примерно в два раза.

Мы можем сравнить полученную оценку с экспериментальными результатами. Скорость латерального разраствания может быть оценена по времени перехода трехмерного роста зародышевого слоя к двумерному. При участии галлия данный переход происходит примерно в два раза быстрее, чем при росте AlN. Скорость латерального разраствания также должна влиять на размеры объектов на поверхности пленки. На поверхности AlGaN террасы имеют вдвое большую ширину, чем на пленках AlN. Кроме того, средний диаметр островковых образований на AlGaN оказывается примерно в два раза больше, чем для островков на поверхности AlN.

Таким образом, оценка, произведенная на основании предположения о том, что селективность встраивания галлия приводит к увеличению латеральной скорости роста, подтверждается экспериментальными результатами. Хотя проведенные оценки являются грубыми и не учитывают

всей сложности механизмов, имеющих место при эпитаксиальном росте, они дают близкие численные значения и подтверждают усиление латеральной компоненты роста за счет селективной аккумуляции галлия на различных по морфологии участках поверхности.

С практической точки зрения крайне важно то, что данный механизм позволяет реализовать селективное «залечивание» поверхности непосредственно в областях развитого рельефа. Усиленный латеральный рост «включается» только при наличии развитого рельефа и «выключается» после сглаживания поверхности, что хорошо видно на изображении с просвечивающего электронного микроскопа (рис.6а). Мы полагаем, что описанный механизм может отвечать за эффекты, наблюдаемые в работе [4] при использовании галлия в качестве сурфактанта при росте методом MOCVD и в работах [17,18], авторы которых использовали индий как сурфактант для роста нитридных пленок методами аммиачной МЛЭ и MOCVD. Если это действительно так, понимание механизма возникновения наблюдаемых эффектов может помочь теоретически оценить границы и эффективность применения индия и галлия в качестве сурфактантов для аммиачных методов эпитаксии нитридов. Теоретически, селективное усиление латерального роста по описанному механизму может происходить и в других методах эпитаксии многокомпонентных твердых растворов.

Заключение

В данной работе исследованы механизмы роста высокотемпературных (температуры более 1000°C) пленок AlN и AlGaN методом аммиачной эпитаксии на подложках сапфира. Установлено, что формирование островков, которые являются выходами кристаллических дефектов, может быть эффективно подавлено повышением потока аммиака, а так же незначительным снижением температуры подложек в процессе роста AlN. Обнаружено, что рост AlGaN в условиях активной десорбции галлия способствует ускоренному переходу от трехмерной зародышевой стадии роста к двумерной. Сравнение пленок AlGaN с пленками AlN, выращенными при аналогичных условиях

показало, что участие галлия позволяет избежать формирования проникающих пор, плотность которых в AlN составляет порядка 10^{10} на см^2 . Слои AlGaN имеют террасно-ступенчатую морфологию с атомарно гладкими террасами шириной до 1 мкм. На базе модели TSK предложен механизм селективного усиления латеральной компоненты роста при эпитаксии высокотемпературных слоев AlGaN в условиях активной десорбции галлия. Предложенный механизм позволяет качественно объяснить наблюдаемые эффекты и может стать основой для более глубокого теоретического изучения наблюдаемых эффектов.

Литература

1. Stephen W. Kaun, Man Hoi Wong, Umesh K. Mishra, James S Speck. Molecular beam epitaxy for high-performance Ga-face GaN electron devices // *Semicond. Sci. Technol.*, №28 (2013), p. 074001
2. Z. Yang, L.K. Li, W.I. Wang. Highquality GaN and AlN grown by gas source molecular beam epitaxy using ammonia as the nitrogen source // *J. Vac. Sci. Technol. B* 14, 2354 (1996 1996)
3. H Wang et al. The Effect of AlN Nucleation Temperature on the Growth of AlN Films via Metalorganic Chemical Vapor Deposition // *Journal of ELECTRONIC MATERIALS*, Vol. 41, No. 3, 2012
4. T. M. Altahtamouni, J. Li, J.Y. Lin and H.X. Jiang. Surfactant effects of gallium on quality of AlN epilayers grown via metal-organic chemical-vapour deposition on SiC substrates // *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 45 (2012), p. 285103
5. A.-L. Barabasi. Surfactant-mediated surface growth: nonequilibrium theory // *Fractals* vol.1, No. 4, 846-859, 1993
6. Krasovitskiy, D., Alexeev, A., Byrnaz, A., Kokin, S., Pavlenko, M., Petrov, S., Pogorelsky, M., Pogorelsky, Y., Sokolov, I., Sokolov, M., Shkurko, A. and Chaly, V. AlN/AlGaN/GaN/AlGaN multilayer heterostructures with quantum well

channel on heat conducting substrates for power microwave transistors // *Phys. Status Solidi C*, 6: S956–S959 (2009)

7. Fernández-Garrido et al. In situ GaN decomposition analysis by quadrupole mass spectrometry and reflection high-energy electron diffraction // *J. Appl. Phys.* 104, 033541 (2008)

8. A.R.Smith et al. Determination of Wurtzite GaN Lattice Polarity Based on Surface Reconstruction // *App.Phys.Lett.*, 72, 2114, 1998

9. Gabriel Ferro, Hajime Okumura, Toshihide Ide, Sadafumi Yoshida. RHEED monitoring of AlN epitaxial growth by plasma-assisted molecular beam epitaxy // *Journal of Crystal Growth* 210 (2000) 429-434

10. V.G.Mansurov et al. AlN growth on sapphire substrate by ammonia MBE // *Journal of Crystal Growth*, 300 (2007), pp. 145–150

11. Y.Wu, A.Hanlon, J.F.Kaeding, R.Sharma, P.T.Fini, S.Nakamura, J.S.Speck. Effect of nitridation on polarity, microstructure, and morphology of AlN films // *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 84, No. 6, 9 February 2004

12. W. Qian et al. Open-core screw dislocations in GaN epilayers observed by scanning force microscopy and high-resolution transmission electron microscopy // *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 67, N. 16, 1995

13. J. W. P. Hsu et al. Direct imaging of reverse-bias leakage through pure screw dislocations in GaN films grown by molecular beam epitaxy on GaN templates // *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 81, N. 1, 2002

14. M.G.Lagally, Z.Zhang. Thin-film cliffhanger // *Nature*, vol 417, 907, 2002.

15. Burton, W. K., Cabrera, N. & Frank, F. C. The Growth of Crystals and the Equilibrium Structure of their Surfaces // *Phil. Trans. R. Soc. London A* 243, 299–358 (1951)

16. Y.-W. Mo, B. S. Swartzentruber, R. Kariotis, M. B. Webb, and M. G. Lagally. Growth and equilibrium structures in the epitaxy of Si on Si(001) // Phys. Rev. Lett. 63, 2393(1989)
17. Stephen W Kaun, Baishakhi Mazumder, Micha N Fireman, Erin C H Kyle, Umesh K Mishra and James S Speck. Pure AlN layers in metal-polar AlGaN/AlN/GaN and AlN/GaN heterostructures grown by low-temperature ammonia-based molecular beam epitaxy // Semicond. Sci. Technol. 30 (2015) 055010 (8pp)
18. Dongjin Won, Xiaojun Weng, Joan M. Redwing. Metalorganic chemical vapor deposition of N-polar GaN films on vicinal SiC substrates using indium surfactants // Appl. Phys. Lett. 100, 021913 (2012)