НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ВЕСТНИК ИНФОРМАЦИОННЫХ ТЕХНОЛОГИЙ. МЕХАНИКИ И ОПТИКИ

ISSN 2226-1494

нотябрь-декабрь 2016

November-December 2016

Том 16 № 6

Vol. 16 No 6

ISSN 2226-1494 SCIENTIFIC AND TECHNICAL JOURNAL OF INFORMATION TECHNOLOGIES, MECHANICS AND OPTICS

http://ntv.ifmo.ru/en

NHÓOPHAUNOHHAIN TEXHODOTNÁ, MEIAHNKN N OOTNKA

УДК 539.37

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ДИСЛОКАЦИЙ В КРИСТАЛЛАХ AIN ПРИ ВЫРАШИВАНИИ НА ИСПАРЯЕМЫХ ПОДЛОЖКАХ SiC

Т.С. Аргунова^{а,b}, М.Ю. Гуткин^{с-е}, К.Д. Щербачев $^{\rm f}$, О.П. Казарова $^{\rm a}$, Е.Н. Мохов $^{\rm a}$, Джунг Хо Дже $^{\rm b}$

- ^а Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, 194021, Российская Федерация
- ^b Университет науки и технологии, Поханг, 790-784, Республика Корея
- ^с Университет ИТМО, Санкт-Петербург, 197101, Российская Федерация
- ^d Институт проблем машиноведения РАН, Санкт-Петербург, 199178, Российская Федерация
- ^е Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, 195251, Российская Феде-

^f Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС», Москва, 119991, Российская Федерация Адрес для переписки: m.y.gutkin@gmail.com

Информация о статье

Поступила в редакцию 04.09.16, принята к печати 20.10.16

doi: 10.17586/2226-1494-2016-16-6-1038-1047

Язык статьи - русский

Ссылка для цитирования: Аргунова Т.С., Гуткин М.Ю., Щербачев К.Д., Казарова О.П., Мохов Е.Н., Дже Джунг Хо. Распределение дислокаций в кристаллах AIN при выращивании на испаряемых подложках SiC // Научно-технический вестник информационных технологий, механики и оптики. 2016. Т. 16. \mathbb{N} 6. С. 1038–1047. doi: 10.17586/2226-1494-2016-16-6-1038-1047

С помощью высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии и топографии в синхротронном излучении исследовано распределение дислокаций в кристаллах AIN, выращенных на испаряемых подложках SiC. Выращивание слоя AIN в одном процессе с испарением подложки SiC позволило предотвратить релаксацию термоупругих напряжений при остывании структуры путем растрескивания AIN. Сплошные кристаллические пластины толщиной 0,2-1,5 мм были использованы в качестве модельных объектов для изучения дислокационной структуры вблизи интерфейса между AlN и SiC. Анализ ширины пиков брэгговских отражений, формы карт рассеяния в обратном пространстве и топограмм показал, что дислокации формируют мозаичную структуру, принципиально отличную от распределения прорастающих дислокаций в эпитаксиальных пленках GaN. В работе рассмотрена теоретическая модель релаксации напряжений несоответствия в растущем слое AlN. Полученные результаты позволяют уточнить представления о дислокационных процессах при выращивании кристаллов AIN промышленного качества методом сублимации.

Ключевые спова

дислокации, нитрид алюминия, карбид кремния, кристаллы, рентгеновская дифрактометрия, рентгеновская топография, синхротронное излучение, эпитаксиальные пленки, испаряемые подложки, термоупругие напряжения, напряжения несоответствия, релаксация напряжений, мозаичная структура

Благодарности

М.Ю. Гуткин благодарит Российский научный фонд (грант РНФ № 14-29-00086) за поддержку при разработке теоретической модели релаксации напряжений несоответствия в кристаллах AIN, а Е.Н. Мохов благодарит Российский научный фонд (грант РНФ № 16-42-01098) за поддержку при проведении экспериментальных исследований.

DISTRIBUTION OF DISLOCATIONS IN AIN CRYSTALS GROWN ON EVAPORATING SIC SUBSTRATES

T.S. Argunova^{a,b}, M.Yu. Gutkin^{c,d,e}, K.D. Shcherbachev^f, O.P. Kazarova^a, E.N. Mokhov^a, Jung Ho Je^b

Corresponding author: m.y.gutkin@gmail.com

Article info

Received 04.09.16, accepted 20.10.16

doi: 10.17586/2226-1494-2016-16-6-1038-1047

^a Ioffe Institute, RAS, Saint Petersburg, 194021, Russian Federation

^b Pohang University of Science and Technology (POSTECH), Pohang, 790-784, Republic of Korea

^c ITMO University, Saint Petersburg, 197101, Russian Federation

^d Institute of Problems of Mechanical Engineering, Russian Academy of Sciences (IPME RAS), Saint Petersburg, 199178, Russian Federation

^e Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, Saint Petersburg, 195251, Russian Federation

f National University of Science and Technology "MISIS", Moscow, 119991, Russian Federation

Article in Russian

For citation: Argunova T.S., Gutkin M.Yu., Shcherbachev K.D., Kazarova O.P., Mokhov E.N., Jung Ho Je. Distribution of dislocations in AlN crystals grown on evaporating SiC substrates. *Scientific and Technical Journal of Information Technologies, Mechanics and Optics*, 2016, vol. 16, no. 6, pp. 1038–1047. doi: 10.17586/2226-1494-2016-16-6-1038-1047

Abstract

By the use of high-resolution X-ray diffractometry and synchrotron radiation topography, the distribution of dislocations in AlN crystals grown on evaporating SiC substrates is studied. The growth of AlN layer in one process with the evaporation of SiC substrate gave the possibility to prevent the relaxation of thermal stresses through cracking of AlN during cooling the structure. The continuous 0.2-1.5 mm thick plates were used as the model objects for the study of dislocation structure near the AlN/SiC interface. Analysis of the broadening of the Bragg reflection peaks, the shape of scattering maps in reciprocal space and topographs showed that dislocations formed the mosaic structure, different from the distribution of threading dislocations in GaN epilayers. A theoretical model for misfit strain relaxation in the growing AlN layer is suggested. The results enable to clarify the dislocation processes during sublimation growth of industrial quality AlN crystals.

Keywords

dislocations, aluminum nitride, silicon carbide, crystals, X-ray diffractometry, X-ray topography, synchrotron radiation, epitaxial films, evaporation of substrates, thermal stresses, misfit stresses, stress relaxation, mosaic structure

Acknowledgements

M. Yu. Gutkin acknowledges the Russian Science Foundation (grant RSF No. 14-29-00086) for support in the development of a theoretical model of misfit stress relaxation in AlN crystals, and E. N. Mokhov acknowledges the Russian Science Foundation (grant RSF No. 16-42-01098) for support in carrying out experimental research.

Введение

Твердотельные оптоэлектронные устройства, такие как лазеры и светодиоды, излучающие в ультрафиолетовом диапазоне, находят применение в различных областях техники. Нитриды металлов III группы и твердые растворы на их основе способны обеспечить эффективную бесперебойную работу таких устройств. В настоящее время кристаллические пленки нитрида галлия (GaN) успешно используются в производстве светодиодов высокой яркости. Однако в эпитаксиальных пленках GaN, выращиваемых на подложках Si, Al₂O₃ и SiC (карбид кремния), образуются дислокации, плотность которых (практически независимо от типа подложки) достигает $10^8 - 10^{10}$ см $^{-2}$ [1–3]. Методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) было показано, что дислокации прорастают сквозь слой от интерфейса до поверхности вдоль нормали к поверхности [4]. Искажения решетки, вызванные распределением дислокаций, исследовались методами высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии. Было установлено, что пики симметричных отражений от плоскостей решетки, параллельных поверхности, относительно узки, в то время как пики асимметричных отражений от наклонных плоскостей в несколько раз шире [2, 4]. Поскольку симметричные отражения не подвержены влиянию прорастающих дислокаций краевого типа, а уширение асимметричных отражений происходит под влиянием дислокаций обоих типов, это означает, что плотность винтовых дислокаций с вектором Бюргерса **b** = [0001] существенно ниже плотности краевых дислокаций. По данным ПЭМ, различие в плотности дислокаций составляет один-два порядка. Характер распределения дислокаций в пленках GaN обусловлен трехмерным островковым механизмом роста этих пленок [5].

Улучшения качества пленок можно ожидать с появлением коммерческих подложек, близко согласованных с GaN по параметру решетки. Материалом для таких подложек постепенно становится монокристаллический нитрид алюминия (AlN), а методом его получения — сублимация из источника при температуре выше 2000 °С и конденсация паров на подложку SiC. Несоответствие параметров между кристаллическими решетками AlN и SiC составляет 1% — меньше, чем между GaN и SiC (3,5 %). Плотность прорастающих дислокаций в слоях AlN толщиной не менее 3 мм не превышает примерно 10^5 см $^{-2}$ [6, 7], что на 4–5 порядков меньше, чем в пленках GaN толщиной не более 1 мкм [1–3]. Типичное уширение симметричного отражения 0002 в излучении CuK_α составляет примерно 100 угл. сек. [6, 8]. Однако кривые качания асимметричных отражений $10\overline{13}$ и $10\overline{19}$ оказываются приблизительно вдвое шире [7]. Более узкие, по сравнению с GaN, пики асимметричных отражений и пониженная плотность прорастающих дислокаций позволяют предположить различие в распределении дислокаций в слоях AlN и GaN на подложках SiC.

Целью настоящей работы было исследование распределения дислокаций вблизи интерфейса между AlN и SiC. Тип распределения и плотность дислокаций в кристалле можно установить путем анализа уширений и профилей кривых рентгеновских дифракционных отражений. Однако отражения от тонких слоев AlN на относительно толстых подложках SiC уширены, главным образом, под влиянием трещин, поскольку тонкие слои трескаются при остывании по причине большого различия коэффициентов термического расширения AlN и SiC. По мере увеличения толщины качество слоев улучшается. Однако в толстых слоях вклад интерфейса смешан с рассеянием от объема толстого слоя. При отсутствии тонких сплошных слоев AlN, которых просто нет, мы исследовали кристаллические пластины толщиной 0,2–1,5 мм, полученные путем выращивания слоя с одновременным испарением подложки [9, 10].

Экспериментальная процедура

Процесс выращивания слоев AlN с одновременным испарением подложек SiC осуществлялся в контейнере из карбида тантала (TaC) в атмосфере азота (N_2) под давлением 0,01–1,5 бар при температуре 1900–2100 °C в течение 12–20 ч [11]. На дно контейнера помещался источник паров – поликристаллический порошок AlN, предварительно отожженный в течение 20 ч для удаления следов кислорода. Над источником и поблизости от него находилась пластина из TaC, на которой располагалась подложка. Скорости роста и испарения регулировали путем изменения зазоров, расположенных соответственно между подложкой и источником и между подложкой и крышкой контейнера [9]. Подложки диаметром 10–15 мм были вырезаны из кристаллов 6H–SiC с плотностью дислокаций 10^3 – 10^4 см⁻² и отполированы с обеих сторон до толщин 0,1–1 мм.

Нами установлено, что скорость испарения SiC зависит от состава паровой фазы и температуры процесса, а также от ориентации, полярности и геометрических размеров подложек. В среде, содержащей пары А1 и N2, скорость испарения существенно возрастает. Однако не вся поверхность подложки испаряется одинаково интенсивно. Наибольшая скорость испарения наблюдается на краях и в местах выхода дефектов структуры - полостей, микротрубок и прорастающих дислокаций. На остальной поверхности скорость испарения увеличивается незначительно. В процессе продолжительного отжига локальные углубления, быстро разрастаясь, превращаются в полости, которые проникают в растущий кристалл AIN, образуя сквозные лыры. На поверхности (0001) С вероятность образования полостей существенно выше. Неоднородность испарения порождает зависимость от размеров подложки. Тонкие подложки малых размеров испаряются с большей скоростью. Подложки толщиной не более 0,5 мм испаряются преимущественно в параллельном поверхности (латеральном) направлении. Скорость латерального испарения на порядок и более превышает скорость испарения в нормальном направлении, что приводит к резкому уменьшению площади кристалла. Анизотропия испарения полярных граней (0001) проявляется в том, что скорость испарения поверхности (0001) С в 1,5-2 раза ниже, чем (0001) Si. Однако скорость испарения грани (0001) Si неоднородна: на периферии скорость выше, чем в центре, в результате чего испаряемая поверхность становится выпуклой.

С учетом вышеперечисленных особенностей была разработана методика роста кристаллов AlN на испаряемых подложках SiC. Предпочтение отдавалось росту на грани $000\overline{1}$ С. Для ускорения латерального испарения были использованы профилированные подложки с глубокими надрезами. Активизация процессов роста и испарения достигалась путем минимизации зазоров между подложкой и источником, а также между подложкой и крышкой контейнера в сэндвич-системе [9, 11].

Совершенство выращенных кристаллов было изучено методом трехкристальной рентгеновской дифрактометрии в излучении CuK_α на приборе Bruker D8 Discover мощностью 2 кВт. Монохроматором и анализатором служили совершенные кристаллы германия. Кривые ω - и 2θ - ω -сканирования и карты рассеяния в обратном пространстве были измерены в геометрии Брэгга для отражений 0002, 0004 и $10\overline{14}$. Рентгеновские дифракционные топограммы и фазово-контрастные изображения получали на источнике синхротронного излучения (СИ) 3-го поколения в г. Поханге, Южная Корея. На станции 6С излучение от источника размером 495 (по горизонтали)×29 (по вертикали) мкм², расположенного на расстоянии 36 м от образца, имеет собственную расходимость 2,8 (по горизонтали)×0,2 (по вертикали) угл. сек. Пространственная когерентность в вертикальном направлении равна 85 мкм.

Экспериментальные результаты

Трещины всегда присутствуют в тонких слоях AIN, выращенных на относительно толстых подложках SiC. На синхротронных фазово-контрастных изображениях поперечных срезов структур AIN/SiC трещины выявляются в виде линий, распространяющихся от интерфейса к поверхности слоя [10]. Чем толще слой, тем меньшее количество трещин достигает его поверхности. В процессе релаксации термических напряжений при остывании структур растрескивание начинается на интерфейсе, и плотность трещин уменьшается с толщиной слоя. Существенное улучшение сплошности наступает при толщине слоя $t \ge 3$ мм [6, 8, 10]. По нашим наблюдениям, в слоях AIN толщиной $t \le 1$ мм на относительно толстых подложках SiC (0,5–1 мм) плотность трещин составляет примерно 1 мм $^{-2}$. Однако плотность трещин уменьшается в 25–100 раз, когда релаксацию термических напряжений предотвращают путем испарения подложек. В результате пластины AIN толщиной $t \le 1$ мм и площадью 50–100 мм 2 , выращенные на испаряемой подложке, имеют не более 1–2 трещин или остаются сплошными.

На рис. 1 показаны рентгеновские топограммы кристалла AlN. Кристалл выращен на подложке 6H–SiC диаметром 12 мм и толщиной 2,7 мм. Рост происходил на грани $(000\bar{1})$ С при температуре 2010 °C под давлением азота 1 бар в течение 21 часа. За это время толщина слоя достигла 1,5 мм, а подложка полностью испарилась. Подложка не содержала микротрубок, но имела плотность дислокаций на

уровне 10^4 см $^{-2}$. Вследствие неоднородности испарения площадь кристалла AlN без подложки оказалась примерно в 6 раз меньше, чем площадь подложки.

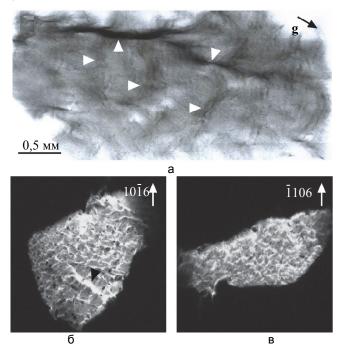


Рис. 1. Рентгеновские топограммы, полученные в синхротронном излучении от кристалла AIN с испаренной подложкой SiC. Полихроматическое излучение. Геометрия Лауэ. Пленка Kodak M100. Изображения границ выглядят двойными, поскольку эмульсионный слой нанесен на обе стороны пленки (а). Монохроматическое излучение с энергией E = 20 кэВ. Геометрия Брэгга. ПЗС-детектор с размером пикселя 16 мкм (б, в)

На топограммах показан образец площадью около 30 мм², вырезанный из исходного кристалла площадью 70 мм². Изображение на рис. 1, а, получено в полихроматическом СИ в геометрии прохождения (Лауэ) и зарегистрировано на высокоразрешающей рентгеновской пленке. На нем видны границы, разделяющие разориентированные области (субзерна). Некоторые границы отмечены стрелками. Вследствие непрерывности спектра контраст формируется только на границах. Границы рассеивают как моза-ичные кристаллы, в результате чего их контраст увеличивается по сравнению с остальными, менее нарушенными участками. Между границами пучки перекрываются или расходятся в зависимости от знака разориентации субзерен по отношению к дифракционному вектору **g**. Области, в которых пучки расходятся и интенсивность отсутствует, имеют белый цвет.

Топограммы на рис. 1, б, в, получены в монохроматическом излучении в геометрии отражения (Брэгга) и записаны на детектор VHR CCD (Photonic science). Спектральная расходимость пучка СИ ограничена светосильным монохроматором — многослойной структурой Ru/C с разрешением $\Delta E/E = 3\%$. Ширина кривой отражения монохроматора для излучения с энергией E = 20 кэВ равна $\Delta \Theta = 48$ угл. сек. Изображения границ субзерен на детекторе имеют белый цвет. Субзерна видны с довольно однородным контрастом. Темный контраст соответствует областям, разориентированным на величину, превышающую расходимость пучка $\Delta \Theta$. Самая крупная и яркая граница, расположенная горизонтально на рис. 1, а, отмечена стрелкой на рис. 1, б. Ее контраст изменяется в зависимости от направления вектора дифракции \mathbf{g} . Когда граница образует большой угол с вектором $\mathbf{g} = 10\overline{1}6$ (рис. 1, б), у нее сильный контраст. Контраст слабеет с уменьшением угла в отражении $\mathbf{g} = \overline{1}106$ (рис. 1, в). Зависимость контраста от направления вектора дифракции доказывает, что это граница разориентации, образованная дислокациями, а не трещина.

Изображения отдельных дислокаций не разрешаются на топограммах из-за перекрытия полей напряжений близко расположенных дислокаций (рис. 1). В геометрии Лауэ (рис. 1, а) перекрытие изображений наступает, начиная с плотности дислокаций выше $10^4 \, \mathrm{cm}^{-2}$. В геометрии Брэгга (рис. 1, б, в) излучение не проникает глубоко в кристалл, и верхний предел можно поднять до $10^5 - 10^6 \, \mathrm{cm}^{-2}$. Таким образом, плотность дислокаций между границами в кристалле AIN оказывается не меньше, чем $10^5 \, \mathrm{cm}^{-2}$.

На рис. 2 показаны трехкристальные кривые распределения интенсивности в зависимости от угла, измеренные путем поворотов образца при неподвижном анализаторе (ω-сканирование) и путем связанного 2θ-ω-сканирования образца и анализатора. Для определения значений полуширины профили кривых аппроксимировались последовательно функциями Гаусса и Войта. Путем сравнения было установлено,

что вблизи центра отражения профили имели гауссову форму. Однако изменение интенсивности на хвостах кривых существенно отклонялось от гауссовой формы. В подавляющем большинстве случаев учет вклада функции Лоренца путем свертки по эмпирической формуле [12] приводил к удовлетворительному соответствию расчетного и экспериментального профилей интенсивности.

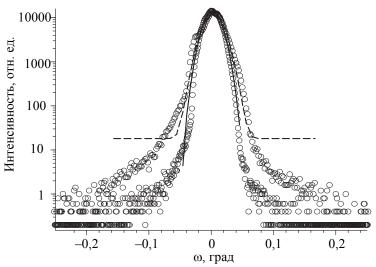


Рис. 2. Трехкристальные кривые распределения интенсивности в зависимости от угла ω , измеренные путем ω - и 20— ω -сканирования в отражении 0004 от кристалла AIN с испаренной подложкой. W_{ω} = 114 угл. сек., $W_{2\theta-\omega}$ = 110 угл. сек. Аппроксимация пиков функциями Гаусса и Войта показана соответственно штриховой и сплошной линиями

Значения полуширины W_{ω} и $W_{2\theta-\omega}$ пиков брэгговских отражений от кристаллов AlN с испаренной подложкой, вычисленные путем аппроксимации функцией Войта, представлены в таблице в сравнении с литературными данными. В настоящее время типичное значение полуширины кривой качания симметричного отражения 0002 от кристалла AlN толщиной t=8 мм на неиспаренной подложке SiC составляет примерно 100 угл. сек. [7]. Однако тонкие слои (t=0,5 мм) имеют широкие кривые качания, около 250 угл. сек. [8]. Структурное качество образцов с удаленной подложкой оказалось не хуже, чем у толстых кристаллов AlN, несмотря на их малую толщину (таблица). По литературным данным, кривая качания, измеренная в асимметричном отражении $10\bar{1}3$ от структуры AlN/SiC [7], почти вдвое шире, чем кривая симметричного отражения 0002. Для пленок GaN, приведенных для сравнения в таблице, пики асимметричных отражений шире симметричных в 2-8 раз [1-3]. Это вызвано тем, что плотность краевых прорастающих дислокаций превышает плотность винтовых на три порядка [3]. Напротив, для образцов с испаренной подложкой пики 0004 и $10\bar{1}4$ имеют очень близкие значения полуширины. В данной работе мы не наблюдали уширения асимметричных отражений по сравнению с симметричными.

Образец	t	0002		0004		1013	1014		1124	N_d
		W_{ω}	$W_{2\theta-\omega}$	W_{ω}	$W_{2\theta-\omega}$	W_{ω}	W_{ω}	$W_{2\theta-\omega}$	W_{ω}	${}^{1}V_d$
AlN ^a	0,6	116	18	96	38		92	39		
AlN ^a	1,5	125	39	114	110		101	51		
AlN/SiC [8]	0,5	250								
AlN/SiC [7]	8	110				200				5·10 ⁵
GaN/SiC [2]	6.10^{-3}	85							180	$10^8 - 10^9$
GaN/SiC [1]		100				300				10^{9}
GaN/SiC [3]	8.10^{-3}	60					470			10^{9}

а Данная работа

Таблица. Сравнение полуширины пиков W_{ω} и $W_{2\theta-\omega}$ [угл. сек.] брэгговских отражений от кристаллов AIN с испаренной подложкой SiC и от структур AIN/SiC и GaN/SiC со слоями толщиной t [мм] и плотностью дислокаций N_d [см $^{-2}$]

Мы установили, что пики 2θ — ω -сканирования здесь существенно уже, чем кривые качания. Это прямо указывает на мозаичное распределение дислокаций в кристаллах AlN с испаренной подложкой. Анализ уширений пиков симметричных отражений по методике Вильямсона—Холла, использованной, например, в работе [2], позволяет сделать приблизительную оценку средней разориентации субзерен τ относительно нормали к поверхности: $\tau = 1$ —2 угл. мин. Карты распределения рассеянной интенсивности вокруг узла обратной решетки 0002 подтвердили, что уширение кривых качания обусловлено преимуще-

ственно разориентаций субзерен, а не деформацией внутри них. Контуры рассеяния были вытянуты вдоль направления [1000], перпендикулярного дифракционному вектору симметричного отражения 0002. Для асимметричного отражения контуры были вытянуты в направлении, перпендикулярном дифракционному вектору асимметричного отражения $10\overline{14}$. Сравнение с данными для пленок GaN [2] явно показывает различие в поведении рассеянной интенсивности. В пленках GaN контуры вокруг узла асимметричного отражения $11\overline{24}$ были вытянуты параллельно поверхности вдоль направления [1000].

Обсуждение результатов

Для пленок GaN на сильно рассогласованных подложках (Si, Al_2O_3 и SiC) тип распределения дислокаций был установлен путем анализа уширений и профилей пиков брэгговских отражений. Однако о дислокационной структуре в слоях AlN/SiC известно сравнительно мало. В то же время AlN считается ближайшим кандидатом на промышленное производство с целью получения слабо рассогласованных подложек для эпитаксии нитридов металлов III группы. Кристаллы AlN диаметром до 43 мм и толщиной 10 мм, имеющие сравнительно низкую плотность дислокаций (10^5 см $^{-2}$), успешно выращиваются на подложках SiC методом сублимации [6]. С одной стороны, путем химического травления установлено, что различие в плотности дислокаций между структурами GaN/SiC и AlN/SiC составляет 4–5 порядков [1–3, 6, 7]. С другой стороны, уширение пиков асимметричных отражений по сравнению с симметричными [7] свидетельствует о высокой плотности прорастающих дислокаций краевого типа. Методами оптической и сканирующей электронной микроскопии установлено, что условия на интерфейсе благоприятны для трехмерного механизма роста слоев [13], поэтому весьма вероятно образование высокой плотности прорастающих дислокаций краевого типа при слиянии разориентированных зерен.

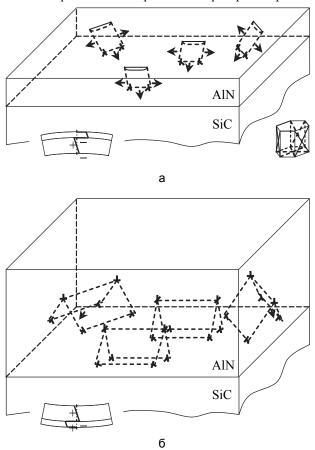


Рис. 3. Схема действия возможных механизмов релаксации напряжений несоответствия при выращивании монокристаллического слоя AIN на испаряющейся подложке SiC. Начальная стадия релаксации за счет зарождения на поверхности сжатого слоя AIN скользящих дислокационных полупетель при толщине слоя, много меньшей, чем толщина подложки (а). Конечная стадия релаксации путем формирования в слое AIN Λ -образных дислокационных конфигураций, обеспечивающих релаксацию напряжений несоответствия как вблизи, так и вдали от интерфейса AIN/SiC (б). На вставках схематично показаны эпюры напряжений несоответствия в поперечном сечении структуры и плоскости пирамидального скольжения в слое AIN

Насколько нам известно, влияние дислокационной структуры на ширину брэгговских отражений от тонких слоев AlN ранее не исследовалось. Трещины в тонких слоях уширяют рентгеновские отражения

гораздо сильнее, чем дислокации. Пластины AIN, полученные путем испарения подложек, имеют хорошую сплошность при субмиллиметровой толщине и представляют собой модельный объект для изучения распределения дислокаций поблизости от интерфейса. В соответствие с выводами других авторов, ссылки на которых приведены выше, мы установили, что в слоях AIN формируется мозаичная дислокационная структура. Результаты, полученные в данной работе, позволяют уточнить представление о распределении дислокаций на начальной стадии роста AIN. Показано, что ни сравнительная ширина пиков симметричных и асимметричных отражений, ни профили дифракционных кривых, ни форма карт рассеяния вокруг узлов обратной решетки не свидетельствуют в пользу того, что дислокации прорастают сквозь всю толщину слоя перпендикулярно его поверхности. Зарождение дислокаций исключительно на интерфейсе и преимущественно в результате преодоления островковой стадии роста не доказано, поскольку сравнительно высокая доля краевых прорастающих дислокаций не подтвердилась данными рентгеновской дифрактометрии. Методом топографии были выявлены субзерна, по большей части разориентированные на величину не выше той, которая получена из анализа уширений пиков: τ = 1–2 угл. мин.

Релаксацию напряжений несоответствия в слоях AlN можно описать генерацией и скольжением дислокаций с поверхности растущего слоя. Рассмотрим теоретическую модель, которая учитывает две основные особенности образования дислокационных структур в слоях AlN, выращиваемых на гексагональных подложках. Во-первых, предполагается, что образование дислокаций несоответствия происходит за счет пирамидального скольжения [14]. Во-вторых, учитывается, что плотность дислокаций быстро уменьшается в направлении от интерфейса между AlN и SiC к свободной поверхности слоя AlN [6, 15–17].

Основная идея модели показана на рис. 3. Будем считать, что на свободной поверхности растущего слоя AIN, который находится в плоском напряженном состоянии двухосного сжатия из-за решеточного несоответствия с подложкой SiC в полярной ориентации, зарождаются скользящие дислокационные полупетли (рис. 3, а). Эти полупетли скользят в направлении к интерфейсу AIN/SiC и одновременно расширяются вдоль него, как показано стрелками на рисунке. Достигнув интерфейса и расширяясь вдоль него, они частично снимают решеточное несоответствие. В то же время в результате зарождения полупетель на поверхности слоя образуются ступеньки, которые могут служить местами предпочтительного зарождения по такому же механизму следующих полупетель, скользящих по соседним плоскостям пирамидального скольжения. Испускание поверхностью этих «вторичных» дислокационных полупетель должно сопровождаться исчезновением поверхностных ступенек. Когда «вторичные» дислокационные полупетли достигают интерфейса, формируются новые Λ-образные дислокационные конфигурации, состоящие из двух дислокационных полупетель, «первичной» и «вторичной», связанных друг с другом дислокационными отрезками, параллельными поверхности слоя (рис. 3, б).

На рис. 4 более подробно показаны последовательные этапы образования Л-образных дислокационных конфигураций. Предположим, что в начальном состоянии на поверхности подложки SiC формируется плоский, когерентно сопряженный с подложкой слой AlN толщиной h, много меньшей толщины подложки (рис. 4, а). При достижении толщиной h некоторого критического значения происходит зарождение дислокационной полупетли с вектором Бюргерса \mathbf{b}_1 , которая скользит по пирамидальной плоскости скольжения в направлении от поверхности слоя AlN к интерфейсу AlN/SiC (рис. 4, б). Этот процесс наблюдался экспериментально и подробно обсуждался в работе [14]. Поверхностная ступенька, которая возникла в результате зарождения дислокационной полупетли, впоследствии зарастает и меняет свою грань на зеркально отраженную относительно плоскости, нормальной к поверхности слоя (рис. 4, в). Этому способствует уменьшение площади свободной поверхности слоя и соответствующая релаксация его поверхностной энергии. В то же время эта поверхностная ступенька по-прежнему остается концентратором напряжений несоответствия и возможным источником новой (вторичной) дислокационной полупетли. Если такая полупетля на ней зарождается, то она имеет вектор Бюргерса \mathbf{b}_2 и скользит симметрично по направлению к испущенной ранее дислокационной петле с вектором Бюргерса ${\bf b}_1$ (рис. 4, г). В результате поверхностная ступенька исчезает, и начинается формирование Л-образной дислокационной конфигурации. Когда вторичная дислокационная петля достигает интерфейса (рис. 4, д), формирование А-образной дислокационной конфигурации завершается с образованием верхнего дислокационного отрезка с вектором Бюргерса \mathbf{b}_3 , замыкающего дислокационные петли с векторами Бюргерса \mathbf{b}_1 и \mathbf{b}_2 .

Заметим, что в процессе испарения подложки SiC распределение напряжений несоответствия в структуре кардинально меняется (ср. вставки на рис. 3, а, и рис. 3, б), и приповерхностные области толстого слоя AlN становятся растянутыми. При этом верхние отрезки Λ -образных дислокационных конфигураций, которые создают сжимающие напряжения в этих областях, частично компенсируют это растяжение. С другой стороны, Λ -образные дислокационные конфигурации частично компенсируют и сжимающие напряжения в областях слоя AlN, прилегающих к интерфейсу, и растягивающие напряжения в испаряющейся подложке SiC. Таким образом, образование Λ -образных дислокационных конфигураций представляется энергетически выгодным на каждой стадии роста AlN на испаряющихся подложках SiC.

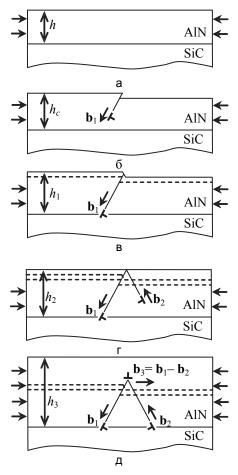


Рис. 4. Теоретическая модель образования Λ -образной дислокационной конфигурации вблизи интерфейса AIN/SiC. Начальное состояние плоского когерентного слоя AIN толщиной h, много меньшей толщины подложки SiC (a). Зарождение дислокационной полупетли с вектором Бюргерса \mathbf{b}_1 , скользящей по плоскости пирамидального скольжения в направлении от поверхности слоя AIN к интерфейсу AIN/SiC при $h=h_c$ (б). Поверхностная ступенька зарастает и меняет свою грань на зеркально симметричную при $h=h_1>h_c$; наклоненный отрезок линии \mathbf{b}_1 -дислокации прорастает от этой грани до интерфейса AIN/SiC. Штриховая линия показывает положение поверхности слоя AIN при $h=h_c$ (в). На поверхностной ступеньке зарождается «вторичная» дислокационная полупетля с вектором Бюргерса \mathbf{b}_2 , которая скользит симметрично относительно полупетли \mathbf{b}_1 -дислокации от поверхности слоя AIN к интерфейсу AIN/SiC при $h=h_2>h_1$. В результате поверхностная ступенька исчезает, и начинает формироваться Λ -образная дислокационная конфигурация. Штриховые линии показывают положения поверхности слоя AIN при $h=h_c$ и $h=h_1$ (г). Конечная Λ -образная дислокационная конфигурация с верхним дислокационным отрезком, имеющим вектор Бюргерса $\mathbf{b}_3=-\mathbf{b}_1-\mathbf{b}_2$ и замыкающим полупетли \mathbf{b}_1 - и \mathbf{b}_2 -дислокаций при $h=h_3>h_2$ (д)

Предложенная теоретическая модель качественно описывает возможный процесс релаксации напряжений несоответствия в слоях AIN, выращиваемых на одновременно испаряющихся подложках SiC, путем зарождения на поверхности слоя AIN дислокационных полупетель, их скольжения по плоскостям пирамидального скольжения к интерфейсу AIN/SiC и последующей трансформацией в Λ -образные дислокационные конфигурации. Учитывая случайное распределение дислокационных источников на поверхности AIN, можно ожидать образования достаточно неоднородной дислокационной структуры, плотность которой должна уменьшаться в направлении от интерфейса AIN/SiC к поверхности слоя AIN. Наклоненные к плоскости интерфейса дислокационные отрезки с векторами Бюргерса \mathbf{b}_1 и \mathbf{b}_2 должны формировать довольно разреженные и неоднородные дислокационные сетки, приводящие к небольшим разориентировкам наклона и кручения в зависимости от типа этих отрезков. В свою очередь, дислокационные отрезки с теми же векторами Бюргерса, лежащие в плоскости интерфейса, обеспечивают частичную релаксацию напряжений несоответствия вблизи интерфейса, а верхние дислокационные отрезки с вектором Бюргерса \mathbf{b}_3 делают то же самое как вблизи интерфейса в слое AIN, так и в удаленных от интерфейса областях этого слоя.

Заключение

Устранение термических напряжений путем испарения подложек SiC в процессе роста слоев AlN позволило получить сплошные кристаллические пластины AlN толщиной 0,2-1,5 мм. Пластины были использованы в качестве образцов для исследования типа дислокационной структуры на начальной стадии процесса выращивания кристаллов AIN методом сублимации. В результате исследования установлено, что брэгговские пики отражений от симметричных (0004) и асимметричных (1014) плоскостей уширены одинаково. Пики 20-с-канирования для отражений 0002, 0004 и 1014 существенно уже, чем ω-кривые качания. Карты рассеяния вокруг узлов обратной решетки отражений 0002 и 1014 показывают, что уширение пиков обусловлено преимущественно разориентациями решетки. На рентгеновских топограммах наблюдаются субзерна, разделенные малоугловыми границами. Величина средней разориентации субзерен примерно 1-2 угл. мин. Таким образом, в тонких кристаллах AlN дислокации формируют мозаичную структуру. Предложена теоретическая модель, которая описывает релаксацию напряжений несоответствия в растущих слоях AIN на испаряющихся подложках SiC путем зарождения на поверхности слоя, скольжения от поверхности слоя к интерфейсу и последующей трансформации дислокационных полупетель. Наклоненные к поверхности слоя дислокационные отрезки этих петель могут формировать мозаичную структуру, наблюдавшуюся в описанных экспериментах.

Литература

- 1. Brandt O., Muralidharan R., Waltereit P., Thamm A., Trampert 1. Brandt O., Muralidharan R., Waltereit P., Thamm A., Trampert A., von Kiedrowski H., Ploog K.H. Critical issues for the growth of high-quality (Al,Ga)N/GaN and GaN/(In,Ga)N heterostructures on SiC(0001) by molecular-beam epitaxy $/\!/$ Applied Physics Letters. 1999. V. 75. N 25. P. 4019-4021.
- Kyutt R.N., Ratnikov V.V., Mosina G.N., Shcheglov M.P. Structural perfection of GaN epitaxial layers according to x-ray diffraction measurements // Physics of the Solid State. 1999. V. 41. N 1. P. 25-31.
- 3. Lee C.D., Ramachandran V., Sagar A., Feenstra R.M., Greve 3. D.W., Sarney W.L., Salamanca-Riba L., Look D.C., Bai S., Choyke W.J., Devaty R.P. Properties of GaN epitaxial layers grown on 6H-SiC(0001) by plasma-assisted molecular beam epitaxy // Journal of Electronic Materials. 2001. V. 30. N 3. P. 162 - 169
- 4. Heying B., Wu X.H., Keller S., Li Y., Kapolnek D., Keller B.P., 4. DenBaars S.P., Speck J.S. Role of threading dislocation structure on the x-ray diffraction peak widths in epitaxial GaN films // Applied Physics Letters. 1996. V. 68. N 5. P. 643-645. doi: 10.1063/1.116495
- 5. Kapolnek D., Wu X.H., Heying B., Keller S., Keller B.P., 5. Mishra U.K., DenBaars S.P., Speck J.S. Structural evolution in epitaxial metalorganic chemical vapor deposition grown GaN films on sapphire // Applied Physics Letters. 1995. V. 67. N 11. P. 1541–1543. doi: 10.1063/1.114486
- Nagai I., Kato T., Miura T., Kamata H., Naoe K., Sanada K., Okumura H. AlN bulk single crystal growth on 6H-SiC substrates by sublimation method // Journal of Crystal Growth. 312. N 19. Ρ. 2699-2704 10.1016/j.jcrysgro.2010.05.044
- Sumathi R.R. Bulk AlN single crystal growth on foreign substrate and preparation of free-standing native seeds // CrystEngComm. 2013. V. 15. N 12. P. 2232-2240. doi: 10.1039/c2ce26599k
- Sumathi R.R., Barz R.U., Straubinger T., Gille P. Structural and surface topography analysis of AlN single crystals grown on 6H-SiC substrates // Journal of Crystal Growth. 2012. V. 360. N 1. P. 193–196. doi: 10.1016/j.jcrysgro.2011.11.054
- Argunova T.S., Gutkin M.Yu., Mokhov E.N., Kazarova O.P., Lim J.-H., Scheglov M.P. Prevention of AlN crystal from cracking on SiC substrates by evaporation of the substrates // Physics of the Solid State. 2015. V. 57. N 12. P. 2473-2478. doi: 10 1134/\$1063783415120057
- 10. Argunova T.S., Gutkin M.Yu., Kazarova O.P., Mokhov E.N., Nagalyuk S.S., Je J.H. Synchrotron x-ray study on crack prevention in AlN crystals grown on gradually decomposing SiC substrates // Materials Science Forum. 2015. V. 821-823. P. 1011-1014. doi: 10.4028/www.scientific.net/MSF.821-823.1011
- 11. Mokhov E., Izmaylova I., Kazarova O., Wolfson A., Nagalyuk S., Litvin D., Vasiliev A., Helava H., Makarov Y. Specific

References

- A., von Kiedrowski H., Ploog K.H. Critical issues for the growth (Al,Ga)N/GaN high-quality and heterostructures on SiC(0001) by molecular-beam epitaxy. Applied Physics Letters, 1999, vol. 75, no. 25, pp. 4019-4021.
- Kyutt R.N., Ratnikov V.V., Mosina G.N., Shcheglov M.P. Structural perfection of GaN epitaxial layers according to x-ray diffraction measurements. Physics of the Solid State, 1999, vol. 41, no. 1, pp. 25-31.
- Lee C.D., Ramachandran V., Sagar A., Feenstra R.M., Greve D.W., Sarney W.L., Salamanca-Riba L., Look D.C., Bai S., Choyke W.J., Devaty R.P. Properties of GaN epitaxial layers grown on 6H-SiC(0001) by plasma-assisted molecular beam epitaxy. Journal of Electronic Materials, 2001, vol. 30, no. 3, pp. 162-169.
- Heying B., Wu X.H., Keller S., Li Y., Kapolnek D., Keller B.P., DenBaars S.P., Speck J.S. Role of threading dislocation structure on the x-ray diffraction peak widths in epitaxial GaN films. Applied Physics Letters, 1996, vol. 68, no. 5, pp. 643-645. doi:
- Kapolnek D., Wu X.H., Heying B., Keller S., Keller B.P., Mishra U.K., DenBaars S.P., Speck J.S. Structural evolution in epitaxial metalorganic chemical vapor deposition grown GaN films on sapphire. Applied Physics Letters, 1995, vol. 67, no. 11,pp. 1541-1543. doi: 10.1063/1.114486
- Nagai I., Kato T., Miura T., Kamata H., Naoe K., Sanada K., Okumura H. AlN bulk single crystal growth on 6H-SiC substrates by sublimation method. Journal of Crystal Growth, vol. 312, no. 19, pp. 2699–2704. 10.1016/j.jcrysgro.2010.05.044
- Sumathi R.R. Bulk AIN single crystal growth on foreign substrate and preparation of free-standing native seeds. CrystEngComm, 2013, vol. 15, no. 12, pp. 2232-2240. doi: 10.1039/c2ce26599k
- Sumathi R.R., Barz R.U., Straubinger T., Gille P. Structural and surface topography analysis of AlN single crystals grown on 6H-SiC substrates. Journal of Crystal Growth, 2012, vol. 360, no. 1, pp. 193-196. doi: 10.1016/j.jcrysgro.2011.11.054
- Argunova T.S., Gutkin M.Yu., Mokhov E.N., Kazarova O.P., Lim J.-H., Scheglov M.P. Prevention of AlN crystal from cracking on SiC substrates by evaporation of the substrates. Physics of the Solid State, 2015, vol. 57, no. 12, pp. 2473-2478. doi: 10.1134/S1063783415120057
- Argunova T.S., Gutkin M.Yu., Kazarova O.P., Mokhov E.N., Nagalyuk S.S., Je J.H. Synchrotron x-ray study on crack prevention in AlN crystals grown on gradually decomposing SiC substrates. Materials Science Forum, 2015, vol. 821-823, pp. 1011-1014. doi: 10.4028/www.scientific.net/MSF.821-823.1011
- Mokhov E., Izmaylova I., Kazarova O., Wolfson A., Nagalyuk S., Litvin D., Vasiliev A., Helava H., Makarov Y. Specific

- features of sublimation growth of bulk AlN crystals on SiC wafers // Physica Status Solidi C. 2013. V. 10. N 3. P. 445–448. doi: 10.1002/pssc.201200638
- Srikant V., Speck J.S., Clarke D.R. Mosaic structure in epitaxial thin films having large lattice mismatch // Journal of Applied Physics. 1997. V. 82. N 9. P. 4286–4295.
- Sumathi R.R., Barz R.U., Gille P., Straubinger T. Influence of interface formation on the structural quality of AlN single crystals grown by sublimation method // Physica Status Solidi C. 2011. V. 8. N 7–8. P. 2107–2109. doi: 10.1002/pssc.201000941
- Floro J.A., Follstaedt D.M., Provencio P., Hearne S.J., Lee S.R. Misfit dislocation formation in the AlGaN/GaN heterointerface // Journal of Applied Physics. 2004. V. 96. N 1. P. 7087–7094. doi: 10.1063/1.1812361
- Miyanaga M., Mizuhara N., Fujiwara S., Shimazu M., Nakahata H., Kawase T. Evaluation of AlN single-crystal grown by sublimation method // Journal of Crystal Growth. 2007. V. 300. P. 45–49. doi: 10.1016/j.jcrysgro.2006.10.233
- Bickermann M., Epelbaum B.M., Filip O., Heimann P., Nagata S., Winnacker A. Structural properties of aluminum nitride bulk single crystals grown by PVT // Physica Status Solidi C. 2008. V. 5. P. 1502–1504. doi: 10.1002/pssc.200778422
- Kamata H., Naoe K., Sanada K., Ichinose N. Single-crystal growth of aluminum nitride on 6H-SiC substrates by an opensystem sublimation method // Journal of Crystal Growth. 2009.
 V. 311. N 5. P. 1291–1295. doi: 10.1016/j.jcrysgro.2008.12.025

- features of sublimation growth of bulk AIN crystals on SiC wafers. *Physica Status Solidi C*, 2013, vol. 10, no. 3, pp. 445–448. doi: 10.1002/pssc.201200638
- 12. Srikant V., Speck J.S., Clarke D.R. Mosaic structure in epitaxial thin films having large lattice mismatch. *Journal of Applied Physics*, 1997, vol. 82, no. 9, pp. 4286–4295.
- Sumathi R.R., Barz R.U., Gille P., Straubinger T. Influence of interface formation on the structural quality of AIN single crystals grown by sublimation method. *Physica Status Solidi C*, 2011, vol. 8, no. 7–8, pp. 2107–2109. doi: 10.1002/pssc.201000941
- Floro J.A., Follstaedt D.M., Provencio P., Hearne S.J., Lee S.R. Misfit dislocation formation in the AlGaN/GaN heterointerface. *Journal of Applied Physics*, 2004, vol. 96, no. 1, pp. 7087–7094. doi: 10.1063/1.1812361
- Miyanaga M., Mizuhara N., Fujiwara S., Shimazu M., Nakahata H., Kawase T. Evaluation of AlN single-crystal grown by sublimation method. *Journal of Crystal Growth*, 2007, vol. 300, pp. 45–49. doi: 10.1016/j.jcrysgro.2006.10.233
- Bickermann M., Epelbaum B.M., Filip O., Heimann P., Nagata S., Winnacker A. Structural properties of aluminum nitride bulk single crystals grown by PVT. *Physica Status Solidi C*, 2008, vol. 5, pp. 1502–1504. doi: 10.1002/pssc.200778422
- 17. Kamata H., Naoe K., Sanada K., Ichinose N. Single-crystal growth of aluminum nitride on 6H-SiC substrates by an open-system sublimation method. *Journal of Crystal Growth*, 2009, vol. 311, no. 5, pp. 1291–1295. doi: 10.1016/j.jcrysgro.2008.12.025

Авторы

Аргунова Татьяна Сергеевна — кандидат физикоматематических наук, старший научный сотрудник, Физикотехнический институт им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург, 194021, Российская Федерация; профессор-исследователь, Университет науки и технологии, Поханг, 790-784, Республика Корея, argunova2002@mail.ru

Гуткин Михаил Юрьевич — доктор физико-математических наук, профессор, Университет ИТМО, Санкт-Петербург, 197101, Российская Федерация; главный научный сотрудник, Институт проблем машиноведения РАН, Санкт-Петербург, 199178, Российская Федерация; профессор, Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, 195251, Российская Федерация, m.y.gutkin@gmail.com

Щербачев Кирилл Дмитриевич кандидат математических наук, старший научный сотрудник. Напиональный исследовательский технологический 119991, «МИСиС», университет Москва, Российская Федерация, kirill.shcherbachev@misis.ru

Казарова Ольга Петровна – старший инженер, Физикотехнический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, 194021, Российская Федерация, mokhov@mail.ioffe.ru

Мохов Евгений Николаевич — доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией, Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, 194021, Российская Федерация, mokhov@mail.interzet.ru

Джунг Хо Дже – доктор, профессор, Университет науки и технологии, Поханг, 790-784, Республика Корея, jhje@postech.ac.kr

Authors

Tatiana S. Argunova – PhD, Senior researcher, Ioffe Institute, RAS, Saint Petersburg, 194021, Russian Federation; Research professor, Pohang University of Science and Technology (POSTECH), Pohang, 790-784, Republic of Korea, argunova2002@mail.ru

Mikhail Yu. Gutkin – Dr. Sci. habil., Professor, ITMO University, Saint Petersburg, 197101, Russian Federation; Chief researcher, Institute of Problems of Mechanical Engineering, Russian Academy of Sciences (IPME RAS), Saint Petersburg, 199178, Russian Federation; Professor, Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, Saint Petersburg, 195251, Russian Federation, m.y.gutkin@gmail.com

Kirill D. Shcherbachev – PhD, Senior researcher, National University of Science and Technology "MISIS", Moscow, 119991, Russian Federation, kirill.shcherbachev@misis.ru

Olga P. Kazarova—senior engineer, Ioffe Institute, RAS, Saint Petersburg, 194021, Russian Federation, mokhov@mail.ioffe.ru

Evgeniy N. Mokhov – D.Sc, Head of laboratory, Ioffe Institute, RAS, Saint Petersburg, 194021, Russian Federation, mokhov@mail.interzet.ru

Jung Ho Je – PhD, Professor, Pohang University of Science and Technology (POSTECH), Pohang, 790-784, Republic of Korea, jhje@postech.ac.kr