

УДК 535.39

ЗАВИСИМОСТИ ОПТИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ПЛЁНОК $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ОТ СОСТАВА И ПОЛЯРНОСТИ ПОВЕРХНОСТИ

С. Н. Свиташева, К. С. Журавлев

Учреждение Российской академии наук

Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова Сибирского отделения РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 13

E-mail: Svitasheva@thermo.isp.nsc.ru

zhur@thermo.isp.nsc.ru

Исследованы оптические свойства Ga- и N-полярных тройных соединений нитридов $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ с мольным содержанием алюминия от 0 до 0,6 неразрушающим бесконтактным методом спектральной эллипсометрии. Установлены корреляционные зависимости сдвига края фундаментального поглощения и поведения действительной и мнимой частей псевдодиелектрической функции от состава x и полярности слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$. Подтверждается, что полярность слоёв, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии, задавалась при формировании зародышевого слоя AlN.

Ключевые слова: спектральная эллипсометрия, нитриды тройных соединений, полярность, молекулярно-лучевая эпитаксия, гетероструктуры.

Введение. Тройные соединения $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ служат основой для изготовления светоизлучающих диодов и фотоприёмников для фиолетового спектрального диапазона, а также мощных транзисторов гигагерцового диапазона на базе GaN/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -гетероструктур [1]. Такие тройные соединения имеют гексогональную структуру без центра симметрии, поэтому у них два неэквивалентных направления роста: Ga-полярное [0001] и N-полярное [000 $\bar{1}$]. Известно, что электрические свойства (концентрация доноров, глубина ловушек и p - или n -тип проводимости), спектры фото- и катодолюминесценции сильно зависят от состава и полярности слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ [2–6]. Кроме того, известно, что ширина запрещённой зоны нитридов изменяется от 3,4 эВ для GaN и до 6,2 эВ для AlN. В предлагаемой работе основное внимание уделено исследованию изменений края поглощения слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ — величине, близкой по значению к ширине запрещённой зоны, но гораздо проще определяемой из эллипсометрических спектров. Зависимость края поглощения от состава плёнки интересна тем, что если она известна *a priori*, то из эллипсометрических спектров можно экспериментально найти энергию края поглощения, а затем состав исследуемой плёнки. Разброс значений E_g , приведённых в [7], не позволяет пользоваться подобными зависимостями без проведения аналогичного анализа получения калибровочной кривой, применимой к конкретным условиям роста структур.

Цель данной работы — исследование неразрушающим бесконтактным методом спектральной эллипсометрии в видимом диапазоне спектра зависимости диэлектрической функции и края оптического поглощения плёнок $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ от их состава и полярности.

Методика эксперимента. Исследуемые структуры выращены в установке молекулярно-лучевой эпитаксии СВЕ 32 фирмы "Riber" (Франция) с *in situ* мониторингом кинетики интенсивности зеркального рефлекса в дифракционной картине, получаемой при отражении электронов высоких энергий от растущего слоя. Структуры имели следующий порядок слоёв: на нитридизованную подложку сапфира с кристаллографической ориентацией (0001) нанесён тонкий (2–5 монослоёв) зародышевый слой AlN (в условиях обогащения по алюминию для формирования слоёв с металлической полярностью или в

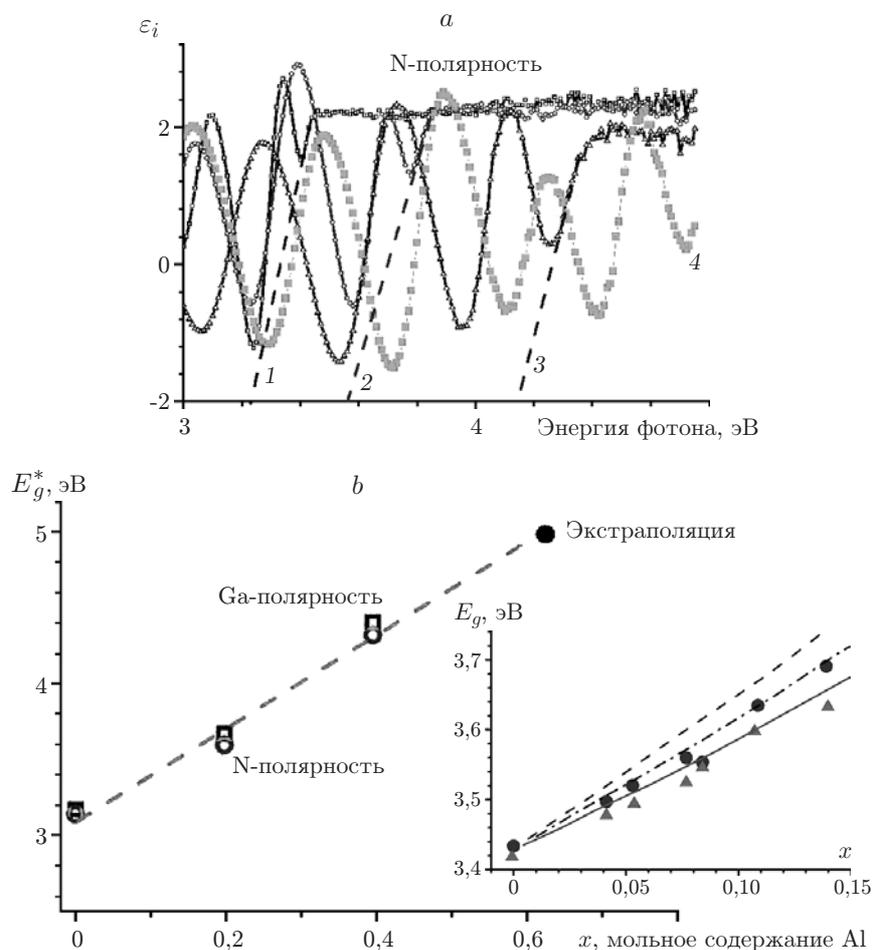


Рис. 1. Зависимость ширины запрещённой зоны для нескольких гетероструктур с различным составом верхнего слоя $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$: *a* — сдвиг края поглощения в эллипсометрических спектрах (кривая 1 — $x = 0$, 2 — 0,2, 3 — 0,4, 4 — 0,6); *b* — изменение энергии края поглощения $E_g^*(x)$, определённое из эллипсометрических спектров гетероструктур, выращенных в ИФП СО РАН, состав верхнего слоя менялся в диапазоне $x = 0-0,6$; на вставке даны зависимости ширины запрещённой зоны $E_g(x)$ при комнатной температуре, полученные из эллипсометрических спектров (●) [7] и из положения пика фотолюминесценции (▲), как функции мольного содержания Al ($x = 0-0,15$), для сравнения приведены значения $E_g(x)$ из работ других авторов (см. [13, 14, 18] в работе [7]): сплошная кривая — [13], штриховая — [14], штрихпунктирная — [18]

условиях обогащения по азоту для получения слоёв с азотной полярностью), затем выращены буферный слой AlN толщиной ~ 250 нм, две сверхрешётки с общей толщиной 90 нм, состоящие из 20 периодов $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{N}/\text{AlN}$, и верхний слой $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ толщиной 200 нм [8–10]. Состав слоя $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ задавался в пределах $x = 0-0,6$ отношением потоков алюминия и галлия, для калибровки которых предварительно измерялись скорости роста слоёв AlN и GaN соответственно. Верхний слой $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ определяет сдвиг края поглощения в мнимой части псевдодиэлектрической функции¹ ε_i , как показано на рис. 1, *a*. В данной работе исследовались две серии образцов N- и Ga-полярности с различным составом x верхнего слоя $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$. Оптические измерения выполнены на спектральном эллипсо-

¹Псевдодиэлектрическая функция вычисляется из эллипсометрических измерений без учёта сложной структуры образца и совпадает с диэлектрической функцией за краем фундаментального поглощения.

метре UVISEL фирмы "Jobin Yvon" (Франция) в области энергии фотонов 1,50–4,75 эВ.

Экспериментальные эллипсометрические спектры. Сдвиг края поглощения в эллипсометрических спектрах для N-полярных слоёв в зависимости от мольного состава показан на рис. 1, *a* и зависимость энергии края поглощения Ga-полярных и N-полярных образцов от мольного состава — на рис. 1, *b*. На вставке приведены зависимости ширины запрещённой зоны E_g слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ от состава, полученные в [7] в малом диапазоне изменения состава ($x = 0-0,15$), которые не противоречат нашим данным, хотя и не совпадают по величине E_g . Несоответствие объясняется тем, что в наших экспериментах край поглощения (E_g^*) находился из эллипсометрических спектров псевдодиэлектрической функции как значение, полученное при пересечении оси энергии прямой, продолжающей линейный участок эллипсометрического спектра на краю фундаментального поглощения. Величина E_g^* близка E_g , хотя практически не зависит от толщины плёнки. Необходимо заметить, что точка для $x = 0,6$ на графике (см. рис. 1, *b*) установлена экстраполяцией экспериментальной зависимости линейной функции, поскольку E_g^* для слоя $\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,4}\text{N}$ лежит за пределами спектрального диапазона используемого эллипсометра (1,50–4,75 эВ). Справедливость такой экстраполяции подтверждается совпадением расчётного значения E_g^* для AlN с приведённым в литературе значением, равным 6,2 эВ. Таким образом, полученная зависимость $E_g^*(x)$ отражает реальную ситуацию и может служить для определения состава слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$.

Влияние полярности слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ на оптические спектры. На рис. 2, *a, b* приведены спектры псевдодиэлектрической функции $\varepsilon(E)$ для образцов $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ одного состава, но разной полярности. Из этих спектров можно наблюдать за смещением края поглощения в мнимой части ε_i и за изменением величин действительной и мнимой частей диэлектрической функции в области энергий выше края поглощения. На рис. 2, *b* для ε_i изменён масштаб оси энергий фотона, чтобы яснее показать сдвиг края поглощения. Из рис. 2 видно, что полярность слоёв влияет не только на положение края поглощения в слоях, но самое неожиданное — на величины ε_r и ε_i при энергиях выше E_g^* , т. е. в области сильного поглощения, где дисперсия указанных величин мала. Обнаружено, что, во-первых, эти изменения зависят от состава слоёв, и, во-вторых, знак изменения действительной части ε_r противоположен знаку изменения мнимой части.

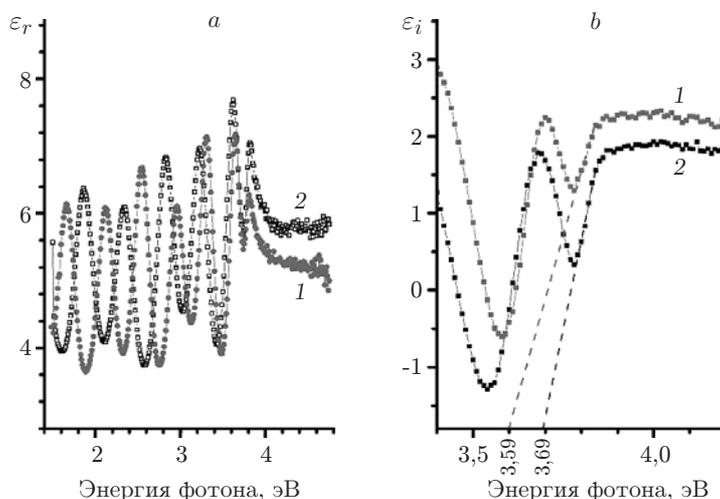


Рис. 2. Псевдодиэлектрическая функция гетероструктур верхнего слоя $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ для $x = 0,2$ (кривые 1 — Ga-полярность, 2 — N-полярность): сравнение её действительной (*a*) и мнимой (*b*) частей

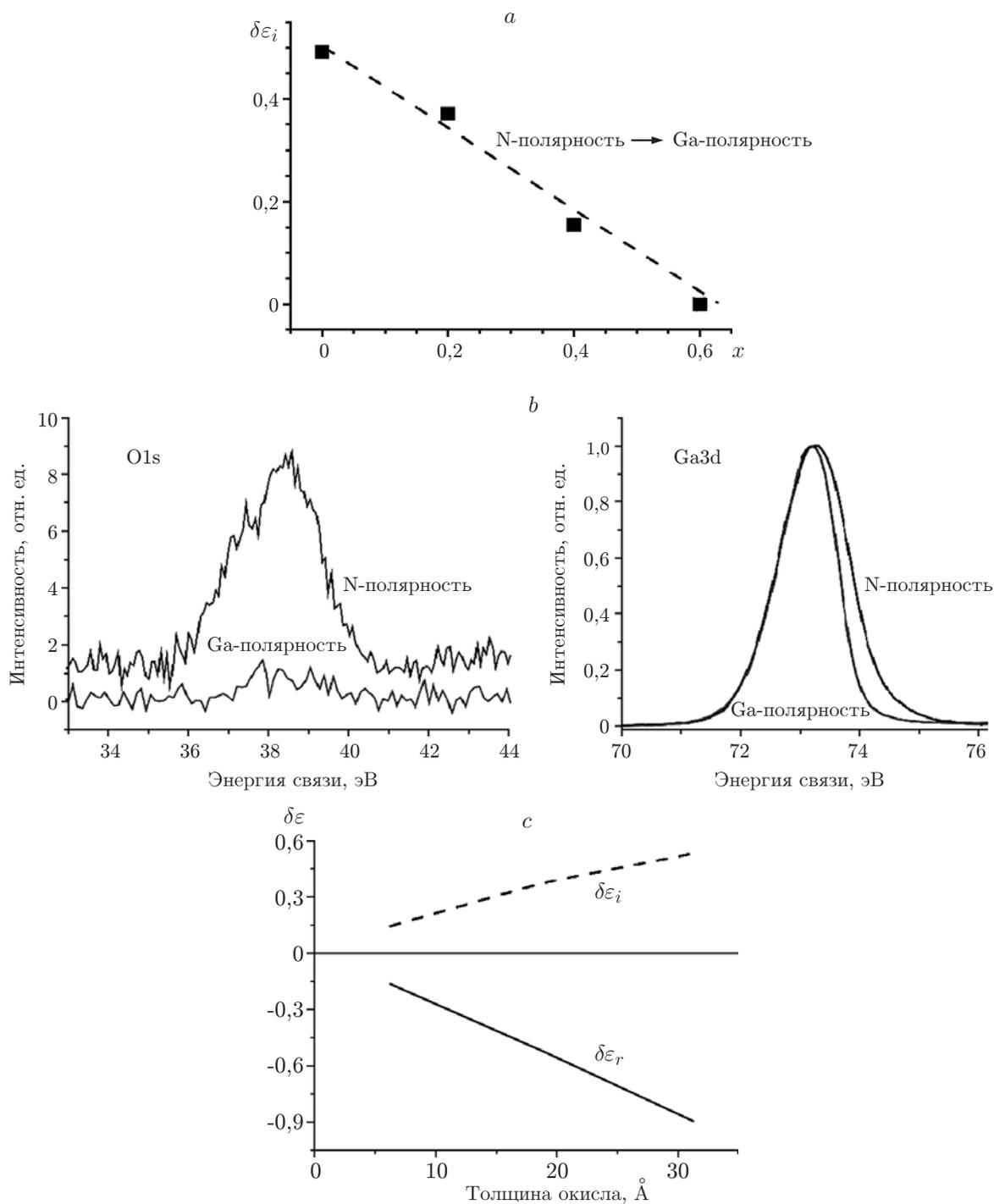


Рис. 3. Изменение свойств плёнки $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$: *a* — экспериментальное приращение мнимой части диэлектрической функции $\delta\epsilon_i$ в области энергий больших, чем E_g , как функция мольного содержания Al в плёнке; *b* — фотоэмиссионные спектры GaN с разной полярностью поверхности; *c* — расчётные изменения действительной $\delta\epsilon_r$ и мнимой $\delta\epsilon_i$ частей диэлектрической функции GaN при образовании на его поверхности окисла Ga_2O_3

Сдвиг $\delta\varepsilon_i(x)$ для слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ различного состава показан на рис. 3, *a*. Данную зависимость можно использовать для контроля состава слоёв, однако при этом следует наблюдать за полярностью анализируемых слоёв. Таким образом, состав слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ можно определять непосредственно из измеренных эллипсометрических спектров без вычислений и моделирования с помощью калибровочных кривых $E_g^*(x)$ или $\delta\varepsilon_i(x)$, показанных на рис. 3, *a*, где $\delta\varepsilon_i = [\varepsilon_i(\text{Ga-полярность}) - \varepsilon_i(\text{N-полярность})]_{E > E_g}$. Экспериментально выявлено, что $\delta\varepsilon_i$ максимальна для слоя GaN ($x = 0$) и уменьшается при увеличении мольного содержания алюминия в слое. Такое необычное поведение оптических спектров слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ не совсем изучено. Отметим, что в работах [6–9] сообщалось о зависимости интенсивности краевой и дефектной «жёлтой полосы» люминесценции от полярности слоёв GaN . Обнаруженные нами изменения эллипсометрических величин в области сильного поглощения света обусловлены, вероятно, различием свойств поверхности слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ разной полярности. Действительно, во-первых, по данным атомно-силовой микроскопии шероховатость N-полярных слоёв немного выше (например, для $x = 0,2$ среднеквадратичная шероховатость СКО = 3,3 нм), чем шероховатость Ga-полярных слоёв (СКО = 3,0 нм тоже для $x = 0,2$) [4]; во-вторых, поверхность N-полярных слоёв окисляется сильнее, чем Ga-полярных, что видно из фотоэмиссионных спектров, приведённых на рис. 3, *b*, которые показывают изменение энергии связи электронов кислорода $\text{O}1s$ и галлия $\text{Ga}3d$ соответственно. Расчёт двухслойной структуры $\text{GaN}-\text{Ga}_2\text{O}_3$ показывает, что наличие окисла галлия на поверхности N-полярных слоёв GaN толщиной $\sim 15 \text{ \AA}$ может объяснить величину и знак наблюдаемых изменений в величинах $\delta\varepsilon_i$ и $\delta\varepsilon_r$ за краем поглощения в диапазоне от 3,9 до 4,0 эВ, как видно на рис. 3, *c*.

Заключение. В данной работе подтверждено, что состав слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ можно определить непосредственно из измеренных эллипсометрических спектров без вычислений и моделирования, используя полученные калибровочные кривые $E_g^*(x)$ или $\delta\varepsilon_i(x)$. Различия эллипсометрических спектров слоёв $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ Ga- и N-полярности в области сильного поглощения света предположительно связаны с различием свойств поверхности этих слоёв.

Авторы выражают благодарность В. Г. Мансурову за предоставленные образцы и О. Е. Терещенко за фотоэлектронные спектры и полезные дискуссии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nakamura S., Fasol G. The blue laser diode. Berlin: Springer, 1997. 343 p.
2. Protasov D. Yu., Tereshchenko O. E., Zhuravlev K. S. et al. Electrical properties and deep traps spectra in AlGaIn films with nitrogen and gallium polarities prepared by molecular beam epitaxy // Physica B. 2009. **404**, N 23–24. P. 4870–4872.
3. Lorenz P., Lebedev V., Niebelschutz F. et al. Spatially resolved photoluminescence of inversion domain boundaries in GaN-based lateral polarity heterostructures // Appl. Phys. Lett. 2001. **79**, N 7. P. 952–954.
4. Zhuravlev K. S., Mansurov V. G., Protasov D. Yu. et al. Electrical properties and deep traps spectra of N-polar and Ga-polar AlGaIn films grown by molecular beam epitaxy in a wide composition range // Journ. Appl. Phys. 2009. **105**. 113712-1–113712-8.
5. Schuck P. J., Mason M. D., Grober R. D. et al. Comparison of N-face and Ga-face AlGaIn/GaN-based high electron mobility transistors grown by plasma-induced molecular beam epitaxy // Jap. Journ. Appl. Phys. Pt. 1. 1999. **38**, N 9A. P. 4962–4968.
6. Dimitrov R., Mitchell A., Wittmer L. et al. Characterization of GaN-based lateral polarity heterostructures // Phys. Status Solidi (c). 2008. **5**, N 6. P. 1965–1967.

7. **Wagner J., Ramakrishnan A., Obloh H. et al.** Spectroscopic ellipsometry analysis of InGaN/GaN and AlGaN/GaN heterostructure using a parametric dielectric function model // MRS'99 (Fall Meeting) Symposium "GaN and Related Alloys". Boston, 1999. W11.54.1–11.54.6.
8. **Svitasheva S. N., Mansurov V. G., Zhuravlev K. S. et al.** Correlation between optical properties of MBE films of AlN and morphology of their surface // Phys. Status Solidi (a). 2008. **205**, N 4. P. 941–944.
9. **Mansurov V. G., Nikitin A. Yu., Galitsyn Yu. G. et al.** AlN growth on sapphire substrate by ammonia MBE // Journ. Cryst. Growth. 2007. **300**, N 1. P. 145–150.
10. **Mansurov V. G., Galitsyn Yu. G., Nikitin A. Yu. et al.** Continuous order-disorder phase transition $(2 \times 2) \rightarrow (1 \times 1)$ on the (0001)AlN surface // Phys. Status Solidi (c). 2007. **4**, N 7. P. 2498–2501.

Поступила в редакцию 15 июля 2011 г.
