

T047141 ELE

Széles tiltottsávú félvezető rétegek növekedése, szintézise és mikroszkópiája

Témavezető: Pécz Béla

Résztevők: Dr. Barna Árpád, Dr. Radnóczy György, Dr. Lábár János, Dr. Tóth Lajos,
Dr. Dobos László, Makkai Zsolt, Radnóczy György Zoltán, Dr. Veisz Bernadett

2004-2007

Támogatás: 8622 eFt

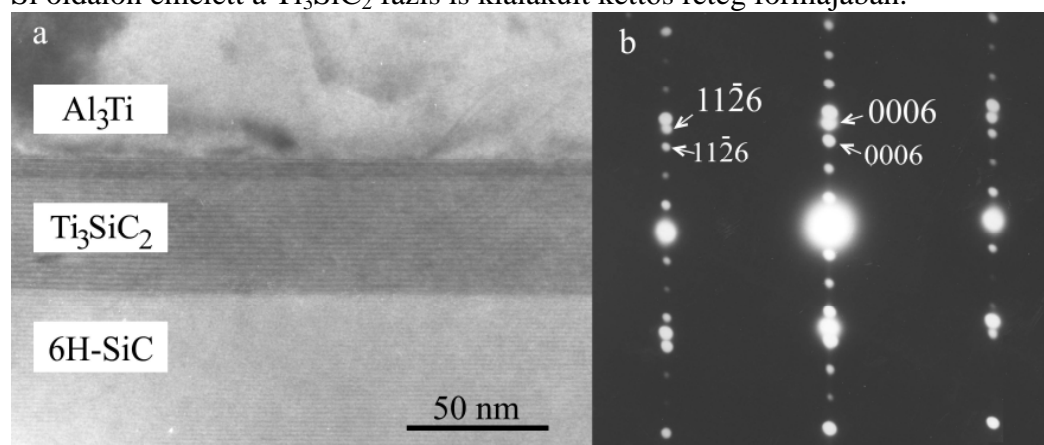
Munkánk során a széles tiltott sávú félvezetők közül a SiC-dal, GaN-del ZnO-dal és kontaktusaikkal foglalkoztunk. Meghatároztuk a jellemző hibákat és a diszlokáció sűrűség értékeket. Sikeresült magyarázatot adnunk a gyémánt és SiC illeszkedésére. Zafír hordozóra növesztett ZnO rétegeket vizsgálva megállapítottuk, hogy MgO puffer réteg képes akár teljesen MgOAl₂O₃ spinel réteggé alakulni, ami csökkenti a misfit-et.

Különböző félvezető nanoszerkezeteket állítottunk elő, mint pl. 300 nm hosszú és 15 nm széles szálaból álló Al_{1-x}In_xN nanofüvet magnetronos porlasztással. A megfigyelt szerkezetet leírtuk (a koncentráció a nanofüv szálainak szélességében változik), hozzá modellt alkottunk és kísérletileg is igazoltuk. Az epitaxiális SiC kristályokat eredményező CO-ban hőkezelt (SiO₂-dal borított) Si szeleteket tovább oxidálva azokból többféle nanoszerkezetet állítottunk elő.

Mind SiC-hoz, mind GaN-hez készítettünk fém kontaktus rétegeket, melyeket átfogóan vizsgáltunk. Megállapítottuk, hogy a p-típusú SiC-hoz ohmos kontaktusként használt Ti₃SiC₂ a Si poláros oldalon alakul ki az Al/Ti kontaktusok hőkezelése során.

Főbb elért eredmények:

1. A munkatervvel összhangban Al/Ti kontaktusokat készítettünk 6H-SiC hordozó egykristály szeleteken egymás utáni porlasztással és egyidejű leválasztással, mind a Si (0001), mind a szén (000 $\bar{1}$) oldalakra. A mintákat 1000°C-on hőkezeltük nitrogénben. A hőkezelt minták fázisanalízisét és morfológiai vizsgálatát transzmissziós elektronmikroszkópiával (TEM) végeztük el. Mivel fenti kontaktusok ohmos kontaktusként használatosak p-típusú SiC-on és korábbi cikkünkben Ti₃SiC₂ ternér fázist azonosítottunk, elsősorban ezen fázis lehetséges előállításának paramétereit vizsgáltuk szisztematikusan. A SiC hordozó polaritásától való jelentős függést tapasztaltunk. A szén oldalon Al₃Ti fázis keletkezett, míg a Si oldalon emellett a Ti₃SiC₂ fázis is kialakult kettős réteg formájában.

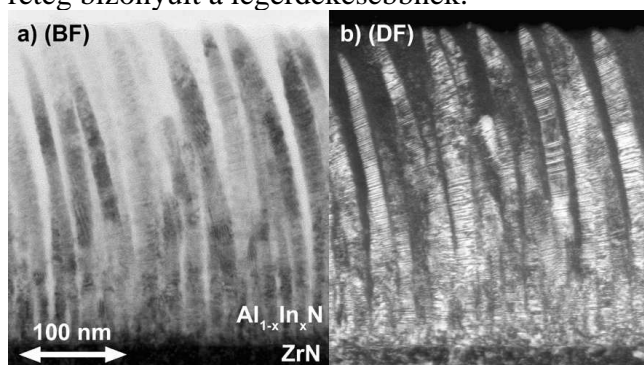


1. ábra: (a) keresztmetszeti kép (b) határolt területű diffrakciós felvétel [1 $\bar{1}$ 00] zónáról. Nagyméretű számjegyek jelölik a SiC, ill. kicsik a Ti₃SiC₂ reflexióit.

A keletkezett fázisok epitaxiásak, az epitaxiás összefüggéseket meghatároztuk. *Appl. Surf. Sci.*, 233 (2004) 360-365

2. 270 μm vastag HVPE módszerrel növesztett GaN réteget vizsgáltunk. A réteget egy kétlépcsős ELO (Epitaxial Lateral Overgrowth) módszerrel zafírra növesztett vékonyabb GaN rétegre növesztették svéd partnereink. Az így növesztett vastag GaN rétegek leválasztását a hordozóról, ma már a világ több laboratóriumában sikerült megoldani, a módszer tulajdonképpen GaN szeletet (free-standing) eredményez. Erről a szeletről sikerült megállapítani, hogy a felületközeleli tartományban a diszlokációk sűrűsége mindössze $2,5 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$, ami igen jó értéknek számít. *J. of Appl. Phys.*, 96 (2004) 799-806

3. Célunk volt, hogy GaN-hez rácsillesztett $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ epitaxiális réteget növezzünk. Ezen rétegeket $\text{MgO}(111)$ -ra porlasztottuk, a hordozót kb. 70 nm vastag ZrN puffer réteg fedte be. A magnetronos porlasztással előállított réteg 2H típusú és a leválasztási hőmérséklettől függően különböző morfológiát mutatott, melyek közül a 300°C -on növesztett réteg bizonyult a legérdekesebbnek.



2. ábra: Az AlInN nanofű keresztmetszete világos ill. sötét látóterű képen.

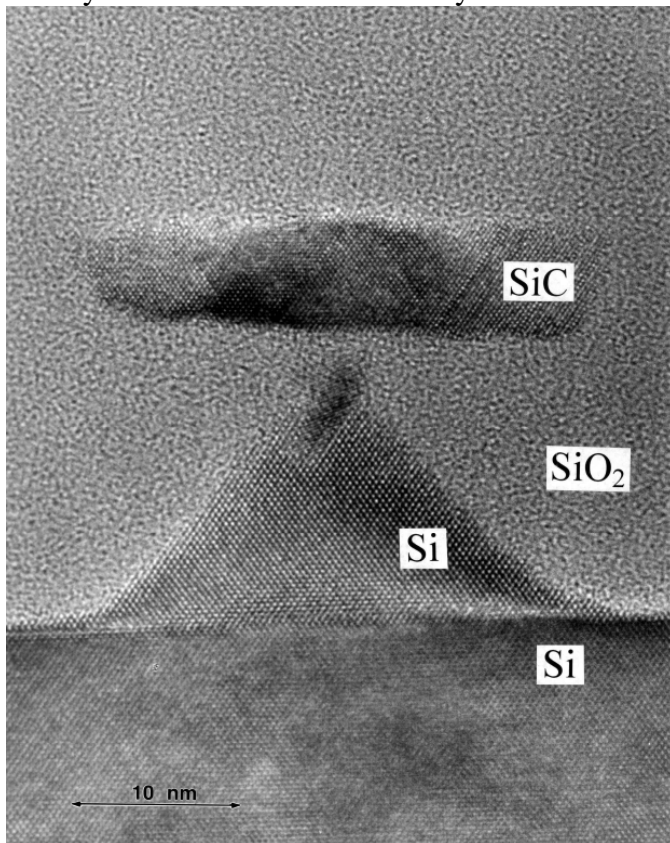
A réteg oszlopokból áll, amelyek mind ugyanabba az irányba elgörbültek és morfológiailag fűszálakra hasonlítanak ezért kapták a nanofű elnevezést. Nanofűvünk tipikusan 300 nm hosszú és 15 nm széles szálaból áll. A porlasztás geometriájának köszönhetően a szálak források felé eső oldalán a közelebbi forrás anyagában dús szerkezet alakul ki, amely a viszonylag alacsony hőmérséklet miatt meg is őrződik, befagy. Mivel az AlInN rácsparamétere az Al/In arányától függ, ezért a rácsparaméter az InN -ben gazdag oldalon nagyobb és ennek következtében az egykristály oszlop elgörbül. A szálak tövében a hordozó/puffer és az AlInN közti epitaxiás összefüggés a következőképpen adható meg:

$$(111)_{\text{ZrN}\&\text{MgO}} \parallel (0001)_{\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}} \quad \text{és} \quad [\bar{1}01]_{\text{ZrN}\&\text{MgO}} \parallel [2\bar{1}\bar{1}0]_{\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}}$$

Nanofűvünk szálai 25 - 28° -ot görbülnek, mivel a szálak egyik oldalától a másik fele haladva az In tartalom mintegy 17 - 18% -ot változik. A megfigyelt szerkezetet leírtuk, hozzá modellt alkottunk és kísérletileg is igazoltuk. *physica status solidi (a)* 202 (2005) R76-R78

4. Már korábban megmutattuk, hogy egykristály gyémántban epitaxiális SiC szemcsék állíthatók elő Si magas hőmérsékletű implantálásával. Újabb cikkünkben (*J. Appl. Phys.* 98, 043503 (2005)) a dózis nagyságának és az implantációs hőmérsékletnek a hatását tanulmányoztuk. Nyilvánvaló, hogy a nagy dózis nagy roncsolást is okoz a gyémánt kristályrácsában, de a kristályhibák egy bizonyos mértékig ki is hőkezelődnek, ha a hőmérséklet elég magas. Egyik megállapításunk, hogy az implantációs hőmérséklet növelése 900°C -ról 1000°C -ra effektíven segít a hibák kihőkezelésében, a keletkezett SiC szemcsék nagyobbak és orientációjuk tökéletesebb lesz. Ugyanakkor a hőmérséklet további emelése nem előnyös, mert a gyémánt grafitizálódik, ami a SiC kristályok létrejöttét hátráltatja.

5. SiC epitaxiális szemcséket állítottunk elő oxiddal fedett Si tetején egy egyszerű eljárással, (magát az eljárást korábban publikáltuk és a BME Atomfizika Tanszékén fejlesztették ki) CO-ban hőkezelve magas hőmérsékleten (karbonizáció). A mintákat termikusan oxidáltuk, ami azt jelentette, hogy a SiC szemcséink körüli egykristály Si-ból amorf SiO_x keletkezett. Ugyanakkor a SiC szigeteink maszkként viselkedtek az oxidáció alatt, így alattuk a kristályos Si-ot megvédték és abból egy piramis maradt vissza. A létrejött nanoszerkezet egy gombához hasonlítható, melynek kalapja köbös SiC (tipikusan 20 nm hosszú szemcsék), míg szára egykristály Si. Sikertült igazolnunk, hogy a SiC szemcsék néhány nm-re elválasztódtak a Si nyaktól.



3. ábra: SiC szemcse, melyet oxidációval

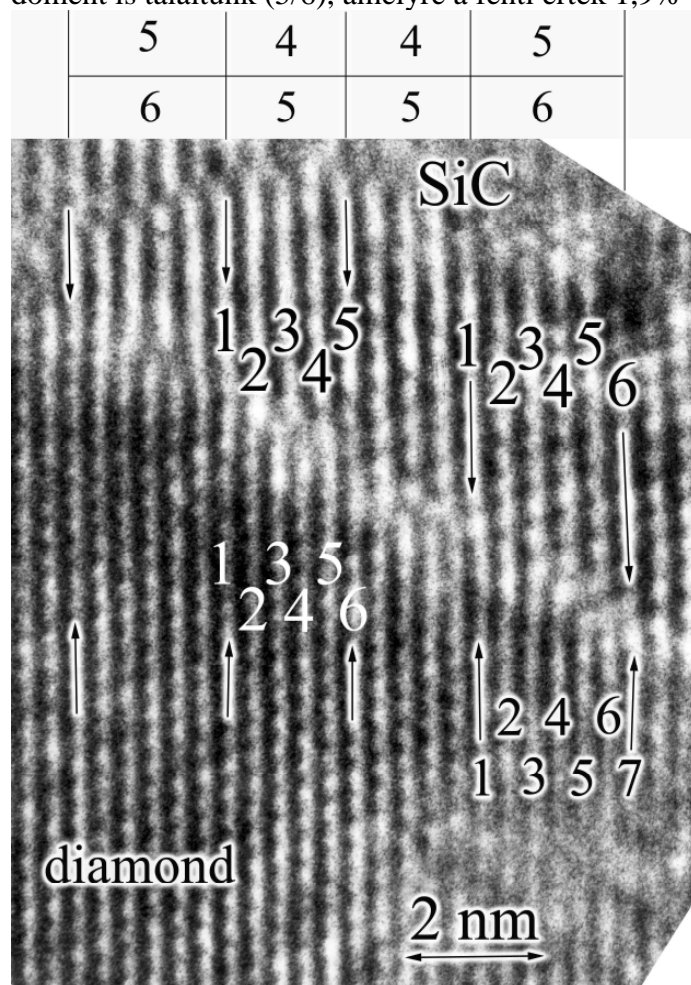
sikerült elválasztani a Si hordozótól.

Természetesen ez a távolság az oxidáció idejével szabályozható. A nanoszerkezetek alkalmazhatóságát memóriatároló eszközökben látjuk. Ugyancsak sikerült igazolnunk, hogy a „nanogomba” szerkezeteket az eredeti folyamatnak alávétve (karbonizáció) újabb SiC szemcsék hozhatók létre a Si felületén, a korábbi SiC szemcséknél mélyebben és akár ezek is elválaszthatók a Si-től további oxidálással. Így különböző szinteken hozhatunk létre SiC nanoszemcséket, amelyek mind azonos irányítottságúak, epitaxiálisak az eredeti Si hordozóhoz. (*Appl. Phys. Lett.* 86, 253109 (2005)). Az eredményeket meghívott előadás formájában is módunk volt ismertetni a SEMINANO 2005 nemzetközi konferencián. Az epitaxiális SiC kristályokat eredményező CO-ban hőkezelt (SiO₂-vel borított) Si szeletek témájában az eddigi eredményeket összegző cikkünk jelent meg a *Surface Science*-ben. *Surface Science*, 601 (2007) 2671-2674

Sikeresen pályáztunk a Rossendorfi Large Scale Facility igénybevételére, ahol C⁺ ionokkal implantáltuk mintáinkat, hogy ezzel nukleációs helyeket hozzunk létre és szén többletet is juttassunk be a mintákba. Az implantáció után az MFA tisztalaborjában a CO-ban és a nitrogénben (kontroll) hőkezelt minták is elkészültek és a mikroszkópos vizsgálatok folyamatban vannak. Az első eredmények értékes publikációt ígérnek.

6. Al, Au, Ti/Al és Ti/Au kontaktusokat párologtunk GaN-re és hőkezeltük azokat 900°C-ig. Nemcsak a kontaktusok elektromos karakterizációját (I-V) hajtottuk végre, de átfogó szerkezeti jellemzést is adtunk róluk röntgendiffrakció és elektronmikroszkópia segítségével. Eredményeink segítettek annak megértését, hogy miért különbözik a még nem hőkezelt Ti/Al kontaktus elektromos karakterisztikája a Ti/Au kontaktusétól. A párologtatás 180°C-os hőmérsékletén ugyanis a Ti/Al rétegben már vegyületfázisok keletkeznek. *Applied Surface Science*, 253, (2006) 655-661

7. Természetes gyémántot magas hőmérsékleten implantálva szilíciummal, ezzel az u.n. ionnyalábos szintézissel sikerült előállítanunk SiC szemcséket, melyek a gyémánttal egymásra rétegezettek a gyémánt implantált zónájában. A keletkezett összes SiC szemcse epitaxiás (kocka a kockán) helyzetben van a gyémántban. Felmerül az a kérdés, hogy miért ez az orientáció alakul ki és hogyan jöhet létre a két rács illeszkedése, amikor a "misfit", azaz a rácsparaméter eltérés a két kristályrács között óriási, 22,3%. Ilyen esetek az u.n. mágikus illeszkedéssel jöhetnek létre, amely azt jelenti, hogy a hordozó kristály m rácssík-távolsága megegyezik a növekvő réteg n rácssík-távolságával, ahol m és n egész számok. Ekkor, ha a növesztett kristály rácsparamétere a kisebb, akkor az illeszkedés úgy is felfogható, hogy abban szabályos periódussal egy-egy extra sík, azaz diszlokáció illeszkedett be, melyeket a meglehetősen szűk irodalom geometriai diszlokációnak is hív. Kiszámoltuk az u.n. megmaradt rácsparaméter eltérést, vagy eltérési paramétert, arra az esetre, amikor a SiC 5 rác síkja illeszkedik a gyémánt 6 rácssík-jához, (köztük 4, ill. 5 rácssík-távolság van, ezért ezt 4/5 illeszkedésnek szokás hívni) és -2,2%-os értéket kaptunk. Elemezve a fenti határfelületről készített atomi felbontású mikroszkópos felvételt azon egy másik illeszkedésű domént is találtunk (5/6), amelyre a fenti érték 1,9%-nak adódott.



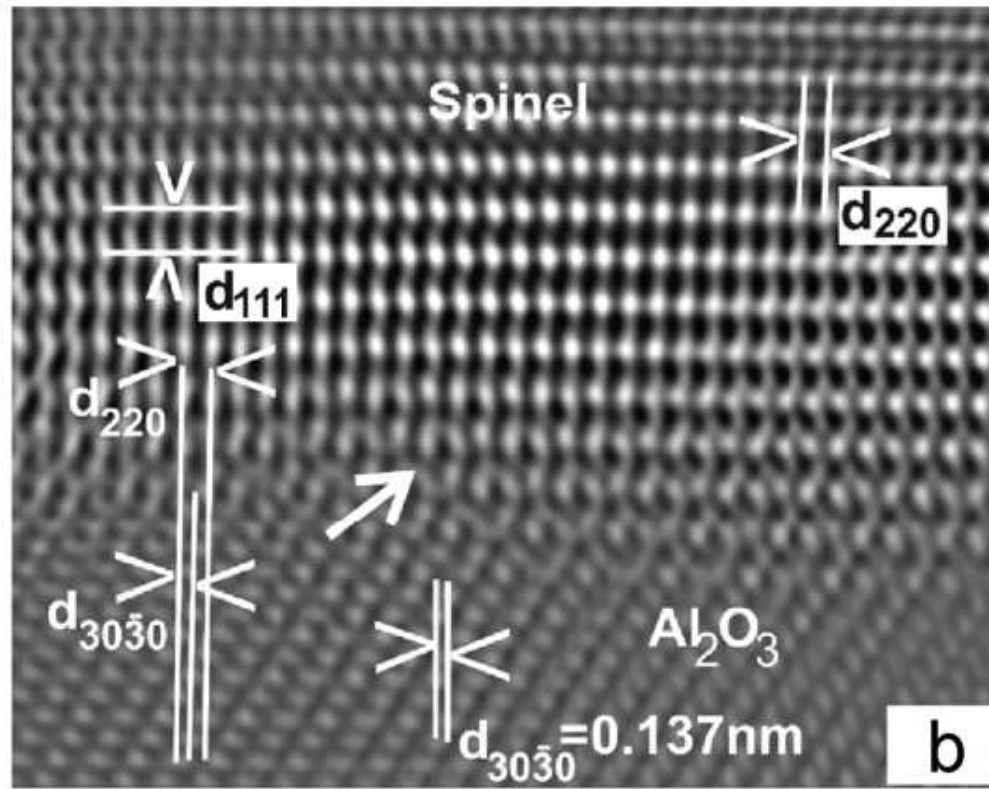
4. ábra: SiC/gyémánt átmenetről készített nagyfelbontású felvétel a 4/5 ill. 5/6 illeszkedésű doménekkal.

A két cella illesztetlenségének ellenkező előjele arra utal, hogy a feszítettség, vagy annak egy része kioltódik. Feltételezve a fenti két illeszkedésű domén szabályos váltakozását 0,1% alatti illeszkedési eltérés adódik, ami már magyarázatot ad az epitaxiás növekedésre. (*Springer Proceedings in Physics, 107 (2006) 159-162*)

8. Al-mal implantált 4H-SiC-ről megállapítottuk, hogy abban már az $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ dózis teljes amorfizációt okoz. Utólagos hőkezeléssel az amorf tartományok természetesen kristályosíthatóak, sőt ez a hőkezelés a beimplantált Al aktiválását is segítheti. A lehetőségeink határait kutatva a fentihez képest kétszeres dózissal implantált, majd hőkezelt hexagonális SiC-ban köbös SiC szemcséket találtunk, melyek kialakulására a következő magyarázatot adtuk: Általában az implantált SiC minták tetején marad egy vékony sáv, amely egykristály marad. A hőkezelés alatti visszakristályosodás így két irányból indul és mindkét határfelületről lemásolja a hexagonális szerkezetet. A legnagyobb dózisú mintánkban azonban a roncsolt réteg már eléri a minta felületét. Ebben az esetben a hőkezelés során az amorf/kristályos SiC határfelületről megindul a 4H típusú kristály növekedése, de a felület közelében a 3C politip nukleálódik, hasonlóan a SiC rétegnövesztéshez, ahol szabad felületen, relatíve alacsony hőmérsékleten mindig a köbös politip nukleálódik. (*J. of Appl. Phys., 100, 093507 (2006) (5 oldal)*)

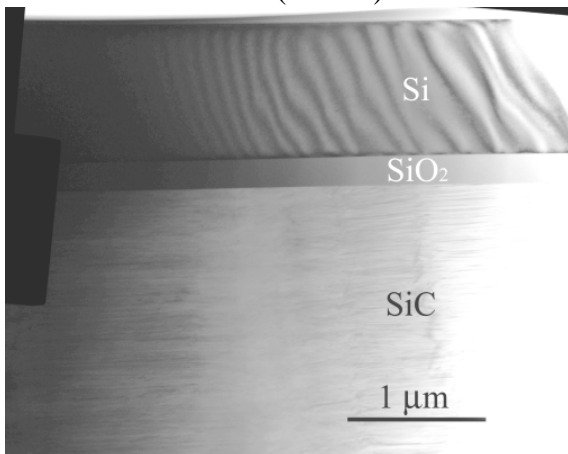
9. Félvezető rétegek vizsgálata során gyakran szükségessé válik a határfelületek síkban való preparálása és vizsgálata. Egy mélyen eltemetett határfelületről azzal párhuzamos TEM fólia készítése viszont általában nagyon fáradságos, sok ellenőrzést igénylő és kis eséllyel kecsegtető feladat (volt). Sikerült egy egyszerű és szellemes módszert kidolgoznunk, amellyel gyakorlatilag 100%-os kihozattal lehet ilyen mintákat készíteni. A módszer azon alapul, hogy a minta két oldalának vékonyítását úgy végezzük, hogy a minta forgásközéppontját tudatosan máshova centráljuk. (*J. of Microscopy, 224(3) (2006) 328*)

10. Az MBE-vel zafír hordozóra növesztett ZnO rétegeket vizsgálva megállapítottuk, hogy MgO puffer réteg használata jelentősen javított a ZnO réteg minőségén. A jellemző kristályhibák diszlokációk, melyek sűrűsége: $4 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, ugyanakkor rétegződési hibákat nem találtunk. Amikor a MgO puffer réteg igen vékony (1 nm körüli) azt tapasztaljuk, hogy eltűnik egy a zafírral végbemenő diffúziós reakció eredményeképpen a ZnO növesztése során. Végeredményként egy spinel réteg alakul ki. A MgOAl_2O_3 spinel réteg kialakulását és annak hatását az epitaxiára tovább tanulmányoztuk és megállapítottuk, hogy az csökkenti a misfitet, mivel minden második (3030) zafír sík illeszkedik a spinel (220) síkjához. (*J. of Appl. Phys., 100 (2006) 103506 (7 oldal)*)



5. ábra: A spinel és a zafír hordozó illeszkedése. *J. of Crystal Growth*, 308 (2007) 314-320

11. Smart-cut és wafer bonding eljárással polikristályos SiC szeletre átvitt vékony Si rétegről megmutattuk, hogy annak felületi durvasága speciális módszerekkel az rms=1 nm alá csökkenthető (6. ábra).



6. ábra: polikristályos SiC hordozóra smart-cut eljárással átvitt vékony Si réteg, melynek felületi durvasága rms < 1 nm.

Az eljárás hexagonális SiC-dal is megismételhető (francia partnerünkénél) és az arra MOCVD-vel növesztett (HEMT) réteg felülete sík, az orientációs összefüggések ugyanazok, mint a vastag egykristály SiC szeletre növesztett GaN esetében. Továbbá a diszlokációk sűrűsége a felület közelében $1-1,4 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, ugyanannyi, mint a klasszikus SiC szeletekre növesztett rétegekben. Ezen eredményeinkből két konferenciaközlemény van nyomdában.

12. Egy neves folyóirat (Contemporary Physics) felkérését elfogadva a témavezető egy kb. 900 oldalas SiC könyvről írt ismertetést, bookreview-t, melyet szerepeltetünk a közlemények listáján, hiszen a projekt témájához tartozik, de annak jellege miatt nem volt lehetőség köszönetnyilvánításra.

A munka során 19 közlemény született, melyek adatait mellékletben feltöltöttük. Ebben a jelentésben csak az egyes eredményekhez tartozó legfontosabb cikkek adatait tüntettük fel.

2008-02-26

Pécz Béla