

金属有机物化学气相沉积生长的 $a(11\bar{2}0)$ 面 GaN 三角坑缺陷的消除研究^{*}

许晟瑞[†] 张进城 李志明 周小伟 许志豪 赵广才 朱庆伟 张金凤 毛维 郝跃

(西安电子科技大学微电子学院, 宽禁带半导体材料与器件教育部重点实验室, 西安 710071)

(2008 年 12 月 4 日收到, 2008 年 12 月 9 日收到修改稿)

用金属有机物化学气相沉积方法在 r 面蓝宝石上生长了非极性 a 面 GaN 薄膜, 通过采用 AlGaIn 多量子阱插入层, 得到了高质量的非极性 GaN 材料. 用原子力显微镜和高分辨 X 射线衍射仪研究了 a 面 GaN 的表面形貌和结晶质量, 发现非极性材料上典型的三角坑缺陷被消除 ($11\bar{2}0$) 面 X 射线双晶摇摆曲线的半峰宽为 $680''$.

关键词: GaN, 原子力显微镜, 高分辨 X 射线衍射仪, 非极性

PACC: 7280E, 7360L

1. 引 言

GaN 以及 III-V 族氮化物在光电子和微电子领域中的研究都取得了巨大的进展. 这种材料可以在高温和比较恶劣的环境下工作, 具有广阔的应用前景, 是目前研究的一个热点^[1,2]. 常规的 GaN 是在极性面 c 面上生长的, GaN 基 HFET 的出色性能主要归因于 AlGaIn/GaN 异质结界面存在着高密度和高迁移率的二维电子气. 这层二维电子气由异质结中较大的导带不连续性以及较强的极化效应所产生, 但是这种极化效应在光电器件中具有较大危害性. 由于极化引起的内建电场的存在使能带弯曲、倾斜, 能级位置发生变化, 强大的极化电场还会使正负电荷在空间上分离, 电子与空穴波函数的交迭变小, 使材料的发光效率大大降低^[3,4]. 为了减小极化电场对量子阱发光效率的影响, 在非极性的 r 面蓝宝石上生长的 a 面 GaN 成为研究的重点. 但由于 a 面 GaN 和 r 面蓝宝石之间存在较大的晶格失配和热失配, 生长的材料较差. 三角坑缺陷是非极性材料中的一个主要特征^[5].

本文利用金属有机物化学气相沉积 (MOVCD) 方法在 r 面蓝宝石上生长了 a 面 GaN, 并通过改变不同的生长条件, 包括不同的成核层, 不同的温度条件和 V 族元素与 III 族元素原子比 (下面简记为 V:III

比), 使三角坑缺陷完全消除, 实现了高质量的非极性材料. 通过高分辨 X 射线衍射仪 (HRXRD) 和原子力显微镜 (AFM) 分析了材料的结晶质量和表面形貌.

2. 实 验

本文研究的 a 面 GaN 材料采用 MOCVD 技术在 r 面蓝宝石衬底上生长得到, 分别以 TEGa, TMAI 和 NH_3 为 Ga 源、Al 源和 N 源, 高纯 H_2 为载气, 生长气压为 5.3×10^3 Pa. 在外延材料生长前, 首先在 N_2 气氛中把蓝宝石衬底加热到 1020°C 处理 5 min, 对衬底表面进行清洁. 在外延生长过程中, 分别采用高温 AlN、低温 AlN、以及由低温 AlN、高温 AlN 和 AlGaIn 组成的多量子阱结构来形成成核层. 低温 AlN 的成核层温度为 630°C , 厚度为 40 nm, 高温 AlN 成核层的温度为 920°C , 厚度为 100 nm; AlGaIn 多量子阱的温度和厚度分别为 1000°C 和 200 nm. 其中 AlGaIn 多量子阱中 Al 的浓度逐渐减小, 在 GaN 和 AlN 之间形成一个浓度渐变的过渡层.

所有性能测试均在室温下进行, 采用型号为 Bruker D8Discover XRD、型号为 Ge220 四晶单色器和型号为 Agilent5500 AFM, 分别进行了非极性材料的 ($11\bar{2}0$) 面 XRD 摇摆曲线、 $2\theta-\omega$ 扫描和表面形貌测量.

^{*} 国家自然科学基金重点项目 (批准号: 60736033) 和国家科技重大专项 (批准号: 2008ZX01002) 资助的课题.

[†] E-mail: shengnuixidian@126.com

3. 结果与讨论

非极性 a 面 GaN 和极性 c 面 GaN 的原子排列如图 1 所示, a 轴 $1\bar{1}\bar{2}0$ 与 c 轴 0001 互相垂直, a 面 GaN 的表面是由不同种类的原子构成, 而 c 面 GaN 的表面则是由同一种原子构成. 极性 GaN 材料的自发极化方向与其表面垂直, 而非极性 GaN 材料的自发极化方向则与其表面平行, 制作成层结构以后可以避免极化效应. 但是在非极性 a 面生长中经常会有三角坑缺陷的形成, 如图 2 所示. 这是因为在成核层的生长过程中, 开始的时候是形成成核岛, 这些岛的侧面分别是 $(10\bar{1}1)$ ($01\bar{1}1$) 和 $(000\bar{1})$ 面, AlN 成核岛随着生长的进行逐渐合并, 最终形成了表面的形貌为三角坑的缺陷^[6]. 该缺陷从 AlN 成核层一直延伸到 GaN 表面. 如果做成异质结或 LED 结构, 就会产生较大的漏电. 为了消除三角坑缺陷, 可以通过调整 V : III 比以及成核层的结构. 特别是使用多量子阱插入层以后, 缺陷逐渐减小并最终消失.

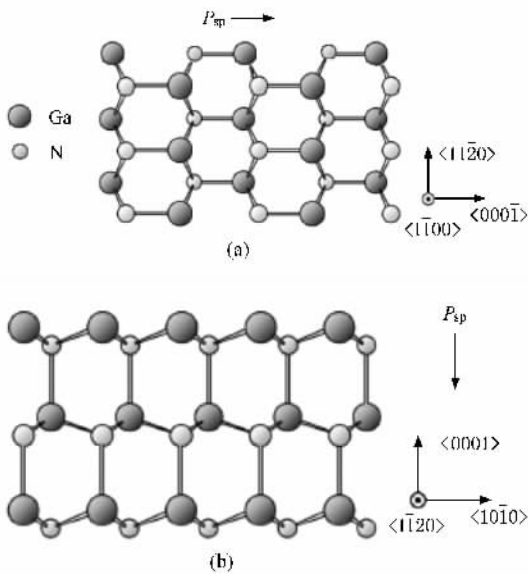


图 1 非极性面和极性面的原子排列比较 (a)非极性 GaN 材料的原子排列 (b)极性 GaN 材料的原子排列

3.1. 高温 AlN 成核层的影响

以高温 $920\text{ }^{\circ}\text{C}$ AlN 作为成核层能消除表面的三角坑缺陷, 但是材料结晶质量较差, XRD 测量半高峰宽在 $2000''$ 左右. 这是由于高温促进横向生长, 但是在成核的过程中没有形成良好的生长晶向, 虽然消除三角坑缺陷, 但是材料整体质量较差. 直接用

高温 AlN 作为成核层并不是一种有效的生长非极性 GaN 的方法. 直接采用高温 AlN 作为成核层的 AFM 表面形貌如图 3 所示. 可以看到, 虽然三角坑缺陷消除但是表面位错较多, 结晶质量也较差. 这体现了表面形貌和结晶质量的矛盾关系.

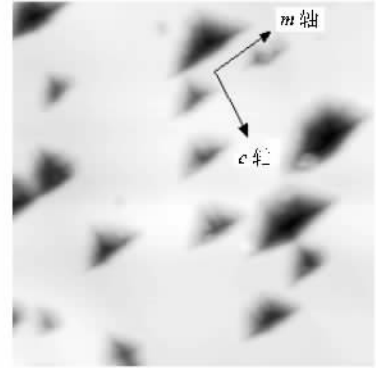


图 2 非极性面 GaN 三角坑的 AFM 照片

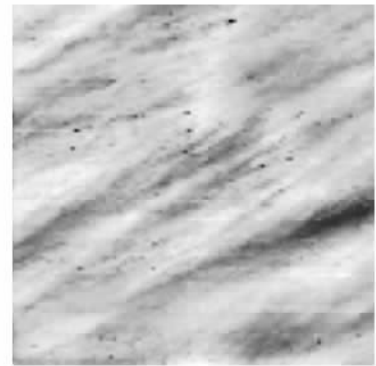


图 3 采用高温 AlN 作成核层的非极性面 GaN 的 AFM 照片

3.2. V : III 比的影响

V : III 比是 GaN 生长中非常重要的因素, 在非极性材料的生长中更是如此, 低的 V : III 比可以提高横向生长速率, 从而可以使三角坑缺陷逐渐合并, 试验中 V : III 比的调节主要调节 NH_3 气的流量, 当 NH_3 气流量从 2000 ml/min 过渡到 1500 ml/min 再到 1000 ml/min 的过程中三角坑逐渐减小, 最终消失. 由于不同的 NH_3 气流量会对生长速率产生重要影响, 采用相同时间的生长样品不具备可比性, 所以采用的样品厚度全部为 $1.5\text{ }\mu\text{m}$. 采用不同 NH_3 气流量的非极性 GaN 表面形貌如图 4 所示.

从图 4 可以看出, 氨气流量从 2000 ml/min 到 1000 ml/min 的过程中三角坑缺陷逐渐减小并消失, 即较低的 V : III 比更利于非极性材料的表面形貌.

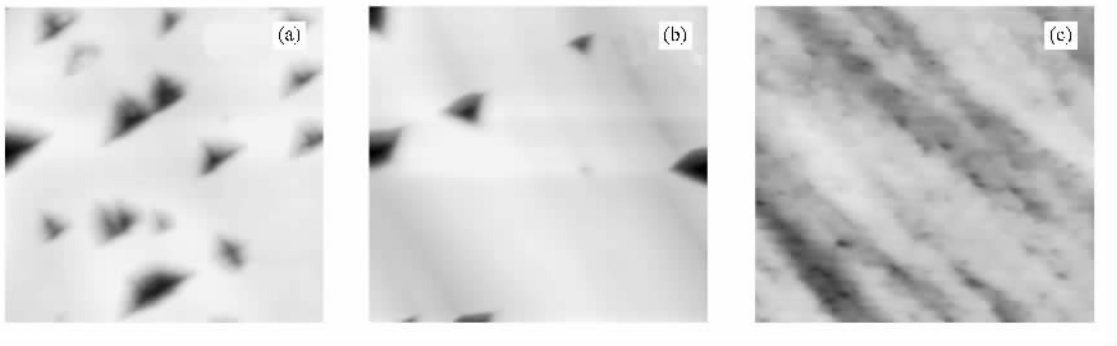


图4 采用不同 NH_3 气流量非极性面 GaN 的 AFM 照片 (a) NH_3 气流量为 2000 ml/min, (b) NH_3 气流量为 1500 ml/min, (c) NH_3 气流量为 1000 ml/min

通过 HRXRD 测试发现采用低 V:III 比的 GaN 材料半高峰宽有了一定程度的降低,在 $1200''$ 左右,即结晶质量有了提高,但是没有质的飞跃。

3.3. AlGaIn 多量子阱

由于非极性 GaN 和衬底蓝宝石之间有较大的晶格失配和热失配,生长过程中的各向异性很严重,会产生较大的应力,为了调节衬底和 GaN 之间的应力,加入了浓度渐变的 10 个高温 AlGaIn 多量子阱,一方面在低温 AlN 和 GaN 之间形成了应力调节层,减小了材料应力;另一方面高温 AlGaIn 层的横向生长速度较快,使表面三角坑缺陷完全消除。通过引入 AlGaIn 多量子阱, GaN 材料结晶质量有了极大的提高,半高峰宽下降到 $680''$ 。相对文献中报道的非极性 a 面 GaN 薄膜(11 $\bar{2}$ 0)面的 X 射线双晶摇摆曲线的半高峰宽为 $800\text{--}1200''$ ^[7-9],我们材料的半高峰宽和表面形貌都有了很大的提高。图 5 为对 a 面 GaN 薄膜用 XRD 进行 2θ - ω 扫描的高分辨衍射图。图中的衍射峰来源于 GaN 的(11 $\bar{2}$ 0)面、AlGaIn 多量子阱的(11 $\bar{2}$ 0)面、以及 r 面蓝宝石衬底的(1 $\bar{1}$ 02)、(2 $\bar{2}$ 04)和(3 $\bar{3}$ 06)面的衍射。

这里没有观测到 GaN 的其他面的衍射峰, GaN 的峰位和 Craven 等所得到的结果一致^[10]。这表明我们获得的外延材料是单一取向的 a 面(11 $\bar{2}$ 0)GaN 材料。如图 6 所示,采用多量子阱插入层以后的非极性 a 面 GaN 的 AFM 形貌图中三角坑完全消除,缺陷密度大大降低,同时解决了表面形貌和结晶质量的问题。

4. 结 论

本文研究了用 MOCVD 技术在 r 面蓝宝石衬底

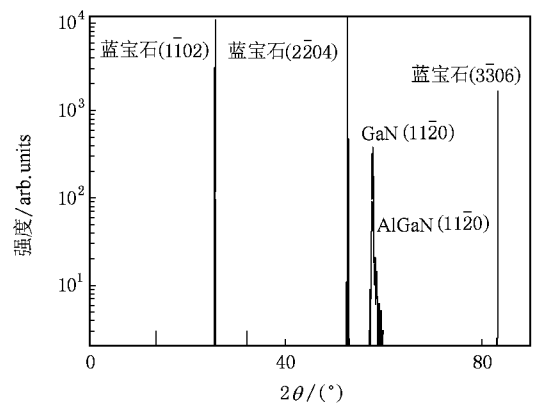


图5 样品沿 GaN(11 $\bar{2}$ 0)衍射面的高分辨 X 射线对称进行 2θ - ω 扫描的结果



图6 采用多量子阱以后非极性面 GaN 的 AFM 照片

上生长的非极性 a 面 GaN,研究了不同缓冲层以及生长条件对材料质量的影响。通过采用多量子阱的结构,材料的结晶质量得到极大的改善,非极性材料当中的典型三角缺陷被消除。这种方法对于非极性 a 面 GaN 材料的研究具有重要的意义。

- [1] Huang J J , Tang T Y , Huang C F , Yang C C 2008 *J. Cryst. Growth* **310** 2712
- [2] Zhang J C , Hao Y , Li P X , Fan L , Feng Q 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1243 (in Chinese) [张进城、郝跃、李培成、范隆、冯倩 2004 *物理学报* **53** 1243]
- [3] Huang J J , Shen K C , Shiao W Y , Chen Y S , Liu T C , Tang T Y , Huang C F , Yang C C 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 231902
- [4] Tuomisto F , Paskova T , Kröger R , Figge S , Hommel B , Monemar D , Kersting R 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 121915
- [5] Wu F , Craven M D , Hwan L S , Speck J S 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 924
- [6] Paskov P P , Schifano R , Monemar B , Paskova T , Figge S , Hommel D 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 093519
- [7] Kuroda M , Ishida H , Ueda T , Tanaka T 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 093703
- [8] Ni X , Fu Y , Moon Y T , Biyikli N , Morkoc H 2006 *J. Cryst. Growth* **290** 166
- [9] Hollander J L , Kappers M J , McAleese C , Humphreys C J 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 101104
- [10] Craven M D , Lim S H , Wu F , Speck J S , Den B S P 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 469

The triangular pits eliminate of $(1\bar{1}20)$ a -plane GaN growth by metal-organic chemical vapor deposition *

Xu Sheng-Rui[†] Zhang Jin-Cheng Li Zhi-Ming Zhou Xiao-Wei Xu Zhi-Hao Zhao Guang-Cai

Zhu Qing-Wei Zhang Jin-Feng Mao Wei Hao Yue

(School of Microelectronics , Key Laboratory of Wide Band-Gap Semiconductor Materials and Devices of Ministry of Education , Xidian University , Xi'an 710071 , China)

(Received 4 December 2008 ; revised manuscript received 9 December 2008)

Abstract

Nonpolar a -plane $(1\bar{1}20)$ GaN has been grown on r -plane $(1\bar{1}02)$ sapphire by metal-organic chemical vapor deposition. The crystal quality has been greatly improved by using the AlGaN multiple-quantum-well interlayers. The surface morphology and the crystal quality were investigated by high resolution X-ray diffraction and atomic force microscopy. The triangular pits were eliminated completely. The precession of the X-ray diffraction symmetric reflection peak full with width at half maximum of $(1\bar{1}20)$ is $680''$.

Keywords : GaN , AFM , HRXRD , nonpolar

PACC : 7280E , 7360L

* Project supported by the Key Program of National Natural Science of China (Grant No. 60736033) and the National Key Science and Technology Special Project (Grant No. 2008ZX01002).

[†] E-mail : shengruixidian@126.com