

界面形核时间对 GaN 薄膜晶体质量的影响

郭瑞花 卢太平 贾志刚 尚林 张华 王蓉 翟光美 许并社

Effect of interface nucleation time of the GaN nucleation layer on the crystal quality of GaN film

Guo Rui-Hua Lu Tai-Ping Jia Zhi-Gang Shang Lin Zhang Hua Wang Rong Zhai Guang-Mei Xu Bing-She

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 64, 127305 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.127305

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.127305>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I12>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[GaN 基高压发光二极管理想因子与单元个数关系研究](#)

[Research on the relationship between ideality factor and number of units of GaN-based high voltage light-emitting diode](#)

物理学报.2015, 64(1): 017303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.017303>

[Si\(110\) 和 Si\(111\) 衬底上制备 InGaN/GaN 蓝光发光二极管](#)

[InGaN/GaN blue light emitting diodes grown on Si\(110\) and Si\(111\) substrates](#)

物理学报.2014, 63(20): 207304 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.207304>

[高迁移率非晶铟镓锌氧化物薄膜晶体管的制备与特性研究](#)

[The preparation and characteristics research of high mobility amorphous indium gallium zinc oxide thin-film transistors](#)

物理学报.2013, 62(7): 077302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.077302>

[含有量子点的双波长 LED 的光谱调控](#)

[The spectrum-control of dual-wavelength LED with quantum dots planted in quantum wells](#)

物理学报.2013, 62(11): 117304 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.117304>

[指数掺杂反射式 GaAlAs 和 GaAs 光电阴极比较研究](#)

[Comparison between exponential-doping reflection-mode GaAlAs and GaAs photocathodes](#)

物理学报.2013, 62(3): 037303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.037303>

界面形核时间对 GaN 薄膜晶体质量的影响*

郭瑞花 卢太平 贾志刚 尚林 张华 王蓉 翟光美 许并社†

(太原理工大学, 新材料界面科学与工程教育部和山西省重点实验室, 太原 030024)

(太原理工大学新材料工程技术研究中心, 太原 030024)

(2014年12月29日收到; 2015年1月28日收到修改稿)

利用金属有机化学气相沉积技术系统研究了界面形核时间对 *c* 面蓝宝石衬底上外延生长 GaN 薄膜晶体质量的影响机理. 用原子力显微镜、扫描电子显微镜、高分辨 X 射线衍射仪以及光致发光光谱仪表征材料的晶体质量以及光学性质. 随着形核时间的延长, 退火后形成的形核岛密度减小、尺寸增大、均匀性变差, 使得形核岛合并过程中产生的界面数量先减小后增大, 导致 GaN 外延层的螺位错和刃位错密度先减小后增大, 这与室温光致发光光谱中得到的带边发光峰与黄带发光峰的比值先增大后降低一致. 研究表明, 外延生长过程中, 界面形核时间会对 GaN 薄膜中的位错演变施加巨大影响, 从而导致 GaN 外延层的晶体质量以及光学性质的差异.

关键词: 低温形核层, 有机金属化学气相沉积, 氮化镓, 位错

PACS: 73.61.Ey, 81.15.Kk, 68.55.-a, 78.55.-m

DOI: 10.7498/aps.64.127305

1 引言

氮化物半导体是目前制备紫外到绿光波段光电子器件最成熟的材料之一^[1,2]. 由于 GaN 和衬底 (Si, GaAs 或蓝宝石等) 之间存在较大的晶格失配以及热失配^[3,4], 在这些衬底上直接高温生长很难获得高质量的 GaN 单晶薄膜. Nakamura^[5] 通过两步生长法获得了高质量的 GaN 薄膜, 即首先在衬底上生长低温 GaN 形核层 (nucleation layer, NL), 以克服 GaN 与蓝宝石界面之间的高失配, 这种技术在近二十年已成功应用于高亮度 GaN 基发光二极管的制备及其产业化. 然而, 两步法生长的 GaN 外延层中仍存在高密度的位错 (10^8 — 10^{10} cm⁻²)^[6]. 相关研究表明螺位错和刃位错在 GaN 基光电子材料中会俘获载流子, 成为非辐射复合中心^[7-9], 从而严重影响了器件的光电特性以及使用寿命. 虽然之前有文献报道优化 NL 有关生长参数可获得高质量的 GaN 薄膜, 诸如形核温度、压

力、V/III 比、速率等^[10-13], 然而关于界面 NL 形核时间对 GaN 外延层的晶体质量以及与光学性质相关的位错演变机制影响的研究仍然很少.

本文通过对两步生长过程中各阶段 GaN 晶体的性能进行表征, 系统分析了界面形核时间对 GaN 外延片质量的影响, 并对其内在的物理机理进行探讨.

2 实验

实验采用 Aixtron 公司生产的 TS300 型金属有机化学气相沉积 (metal-organic chemical vapor deposition, MOCVD) 设备, 在 *c* 面蓝宝石衬底上外延生长 GaN 单晶薄膜. 生长过程中采用高纯氨气 (NH₃) 和三甲基镓 (TMGa) 分别作为氮源和镓源, 氢气作为载气. 首先将蓝宝石衬底在 1075 °C 的氢气气氛中进行处理, 以去除表面的杂质; 然后, 降温到 570 °C 通入氨气氮化衬底; 之后, 通入 TMGa 生长 GaN NL, V/III 比为 1400, 生长时间分别为

* 国家自然科学基金 (批准号: 61475110, 61404089, 21471111)、江苏省太阳能电池材料与技术重点实验室开放研究基金, 常州大学 (批准号: 201205)、山西省科技创新重点团队 (批准号: 2012041011) 和山西省自然科学基金 (批准号: 2014021019-1) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xubs@tyut.edu.cn

105, 180, 315 s, 分别记录为样品 A, B, C; 随后关闭 TMGa, 衬底升温至 1075 °C 对 NL 进行退火处理, 也称为重结晶过程; 最后通入 TMGa, 生长厚度约为 2.5 μm 的 GaN 薄膜. 为了减小不同批次生长的材料性能的波动对实验结果的影响, 三组样品是在除 NL 的生长时间不同外、其他生长参数均相同的情况下连续生长得到. 生长过程中利用波长为 632.8 nm 的激光器进行原位监测以记录 GaN 生长各阶段的反射率强度变化, 如 NL 生长、重结晶、三维以及二维生长过程 [14]. 使用接触模式 SPA-300 HV 原子力显微镜 (AFM) 和 MIRO 3 LMH 扫描电子显微镜 (SEM) 进行表面形貌的分析, 利用 Bruker-D8 高分辨率 X 射线衍射仪 (HRXRD) 和 RPM2000 光致发光 (PL) 设备对 GaN 薄膜的结晶质量和光学性质进行表征.

3 结果与讨论

图 1 是反射率计原位监测记录的不同形核时间生长的 GaN 单晶薄膜的反射率随时间的变化. 第一阶段是界面 NL 的沉积阶段, 最初形核阶段 GaN 在蓝宝石衬底上进行选择性生长, 随着厚度的增加界面 NL 逐渐覆盖衬底的平面区域, 形成由立方相以及六方相小晶粒组成的薄膜 [15]; 第二阶段是 NL 的退火阶段, 即 GaN NL 的分解再结晶阶段, 高缺陷处的 NL 处于一个低能态会在高温阶段分解, 低缺陷处的 NL 则会保留下来, 分解掉的 Ga 原子又会与 NH₃ 反应, 沉积在低位错处的形核岛上 [15], 这就导致了低位错处不断长大, 高位错处消失, 裸露出部分蓝宝石衬底, NL 由薄膜变成粗糙度很大的岛状结构; 第三阶段是三维向二维的过渡生长阶段, 即形核岛开始长大、合并, 在合并处形成界面, NL 由岛状结构再次向膜状结构过渡; 第四阶段是二维生长阶段. 如图 1 所示, 在第一阶段, 三样品的反射率强度随着形核时间的延长而增大, 这说明

NL 厚度随着形核时间延长而增加; 在退火的最后阶段, 由于样品 A 形核时间过短, 退火后形成的形核岛很小, 所以样品 A 的反射强度最接近裸露的蓝宝石的反射强度; 在第三阶段, 随着形核时间的增加, 三维向二维的过渡生长时间延长, 而有研究表明适当延长形核岛聚合时间能有效减小穿透位错密度 [16], 所以样品 B, C 可能具有较低的穿透位错密度. 在第四阶段, 样品 C 的反射率强度以及振幅最低, 表明样品 C 的薄膜表面最粗糙.

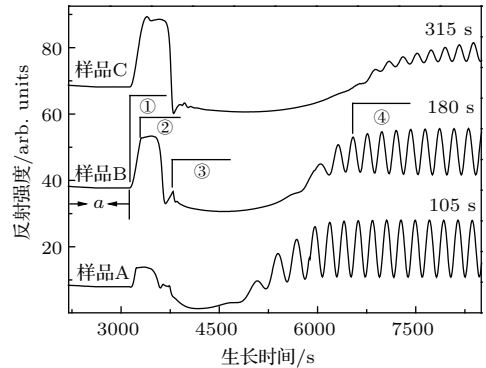


图 1 不同形核时间生长的 GaN 单晶薄膜的反射率随时间的变化. ①—④ 代表不同的生长阶段, a 代表蓝宝石反射强度
Fig. 1. Reflectance waveform of the GaN films with different growth time for low temperature nucleation layers. The points ①—④ correspond to different growth stages; part a represents the sapphire reflectance value.

图 2 是 NL 退火后的 AFM 扫描结果, 扫描范围是 5 μm × 5 μm. 如图 2 所示, 样品 A 形核岛的尺寸最小, 约为 100 nm, 密度最大, 岛与岛间距最小; 样品 B 形核岛尺寸变大, 约为 300 nm, 岛与岛间距变大; 样品 C 形核岛尺寸最大, 约为 600 nm, 但是在大的形核岛之间出现了许多尺寸较小的形核岛, 尺寸仅有 300 nm 左右, 如图 2 中黑色圆圈所示. 样品 B, C 的形核岛间距较大, 这必然使得 GaN 的生长模式由三维生长向二维生长转变的时间延长, 这与图 1 中所得反射率的变化规律一致.

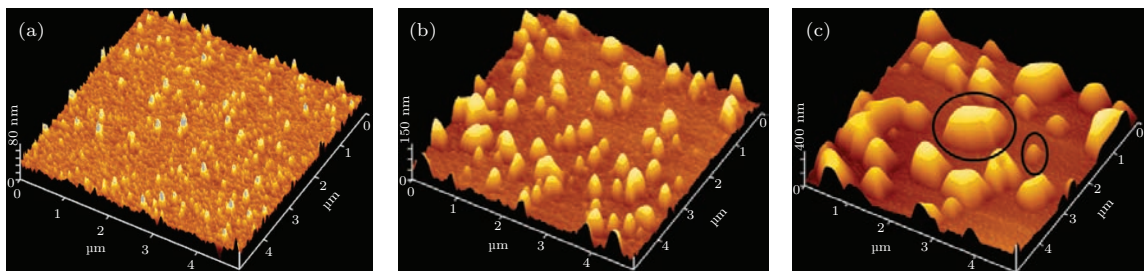


图 2 不同生长时间的 GaN NL 退火后的 AFM 图 (a) 样品 A; (b) 样品 B; (c) 样品 C

Fig. 2. AFM images of the annealed GaN nucleation layer morphology with different growth time: (a) sample A; (b) sample B; (c) sample C.

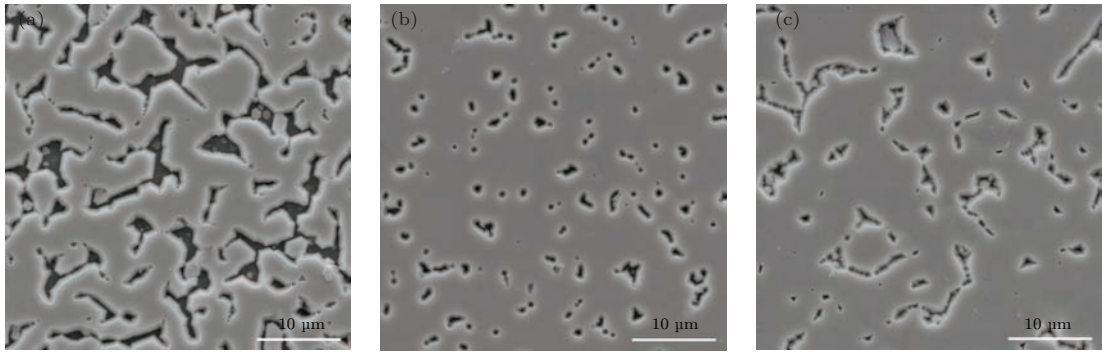


图3 不同生长时间的 GaN NL 三维生长向二维生长转变时的 SEM 图 (a) 样品 A; (b) 样品 B; (c) 样品 C
 Fig. 3. SEM surface morphology of GaN nucleation layer when the growth mode changes from 3D to 2D: (a) sample A; (b) sample B; (c) sample C.

当NL三维生长结束即将开始二维生长时(图1中第三阶段反射率曲线首次上升至峰值处)终断生长,对样品进行SEM测量,结果如图3所示.由图3可见:随着形核时间的延长,形核岛三维生长进行聚合产生的界面数量先减小后增大;形核岛高温聚合时会在岛合并的界面处产生刃位错,并且这些刃位错大部分会穿透外延层[17];形核时间为180 s的样品B形核岛聚合产生的界面数量最小,所以样品B的Ga_N外延层可能具有最小的刃位错.

为了研究不同形核时间对Ga_N外延层晶体质量的影响,对Ga_N的(002)对称面和(102)非对称面做XRD摇摆曲线的表征[18].(002)面半高全宽(full width at half maximum, FWHM)主要反映螺位错密度,(102)面FWHM主要反映刃位错密度[19,20].图4是不同形核时间生长的Ga_N外延层(002)和(102)面摇摆曲线.由图4可知,形核时间为180 s的样品B(002)和(102)面摇摆曲线的FWHM均最小,说明样品B具有最低的螺位错和刃位错密度.

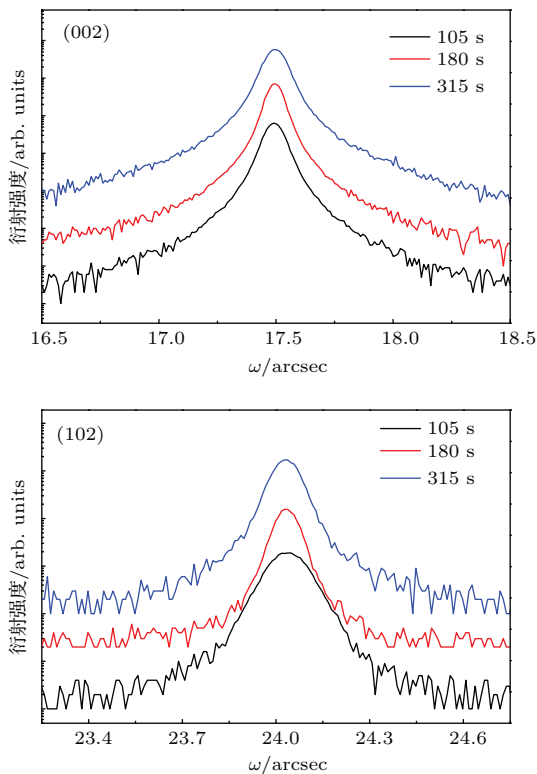


图4 (网刊彩色) 不同形核时间生长的Ga_N外延膜(002)和(102)面摇摆曲线

Fig. 4. (color online) XRD rocking curve of (002) and (102) plane of the Ga_N epilayers with different growth time for low temperature nucleation layers.

为了比较三样品的位错密度大小,通过高分辨率XRD进行 ω 扫描和 Φ 扫描进一步测量Ga_N(002), (004)和(006)晶面来计算Ga_N薄膜的螺位错密度[21].同时测量Ga_N(121)晶面来计算刃位错密度.

由HRXRD对称衍射面的FWHM,利用Williamson-Hall (W-H)外推作图法可以精确地确定横向相干尺寸 $L_{//}$ 和面外倾斜角 α_{tilt} .根据Williamson-Hall外推作图理论,由下式可以计算 α_{tilt} [22-24],

$$\alpha_{\omega}^2 \left(\frac{2 \sin \theta}{\lambda} \right)^2 = \alpha_{\text{tilt}}^2 \left(\frac{2 \sin \theta}{\lambda} \right)^2 + \frac{H^2}{L_{//}^2}, \quad (1)$$

其中, α_{ω} 是以度为单位的FWHM值, α_{tilt} 是面外倾斜角, θ 是布拉格反射角, λ 是X射线波长, $H \approx 0.51$ 与Ga_N柱的近圆柱状相关, $L_{//}$ 是平行于衬底表面的相干长度.

图5是三个样品的Williamson-Hall图,直线是对实验数据的线性模拟. α_{tilt} 的值是模拟直线的斜率,分别是 0.06625° , 0.05586° , 0.07426° .根据位错密度计算公式[24-28]:

$$N_S = \frac{\alpha_{\text{tilt}}^2}{4.35 |b_c|^2}, \quad (2)$$

其中, N_S 是螺位错密度, \mathbf{b}_c 为螺位错的伯格斯矢量且 $|\mathbf{b}_c| = 0.5185 \text{ nm}$.

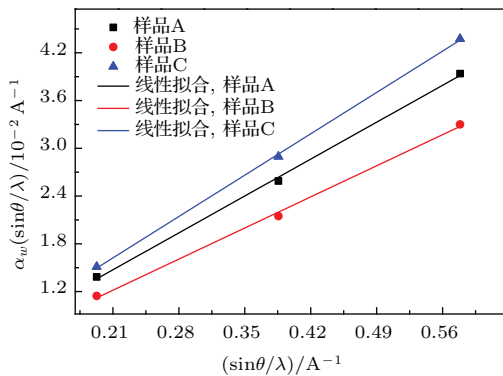


图5 (网刊彩色) $\alpha_\omega \frac{\sin \theta}{\lambda}$ 对 $\sin \theta/\lambda$ 作图的 Williamson-Hall 拟合曲线

Fig. 5. (color online) Williamson-Hall plot of GaN layers for all the samples.

三样品的螺位错密度分别是 1.14×10^8 , 8.12×10^7 , $1.43 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$. 在非对称面 (121) 扫描中, 当样品测试时的倾斜角 χ 为 78.6° 时, ω 扫描和 Φ 扫描 FWHM 几乎相等. 此时面内扭转角 α_{twist} 可用 $\chi = 78.6^\circ$ 时的 ω 扫描和 Φ 扫描 FWHM 的平均值来代替 [24,29,30], 并利用下式计算刃位错密度 [24-28]:

$$N_e = \frac{\alpha_{\text{twist}}^2}{4.35 |\mathbf{b}_e|^2}, \quad (3)$$

其中, N_e 是刃位错密度, \mathbf{b}_e 为螺位错的伯格斯矢量且 $|\mathbf{b}_e| = 0.3189 \text{ nm}$.

三样品的刃位错密度分别是 1.47×10^9 , 4.95×10^8 , $5.78 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$. 计算结果表明, 与样品 A, C 相比, 形核时间为 180 s 的样品 B 的螺位错和刃位错密度均最小.

图6是室温下测试的不同形核时间的 GaN 薄膜的 PL 谱. 从 PL 谱中可看到, 峰值位于 3.44 eV 的带边发射峰, 位于 3.38 eV 处的中性浅施主杂质束缚激子辐射 [31], 内插图显示了位于 2.25 eV 处与晶体缺陷相关的黄带峰 [32,33]. 虽然样品 B 的黄带强度较样品 A 略高, 但远小于样品 C. 样品 B 的带边发光峰与黄带峰的积分强度比 I_b/I_d 为 14.9, 大于样品 A 的 13.1 和样品 C 的 3.5, 这说明样品 B 的带边发光很强, 抑制了黄带发光 [34]. 其次, 导致黄带的直接原因是材料中的 Ga 空位引入的辐射复合中心 [35], 并且刃位错处更容易形成与 Ga 空位相关的复合体点缺陷, 所以刃位错对黄带发光有强烈的影响 [36,37]. PL 光谱结果表明样品 B 的光学性能最好, 这与计算所得样品 B 的位错密度最低、晶体质量最好相一致.

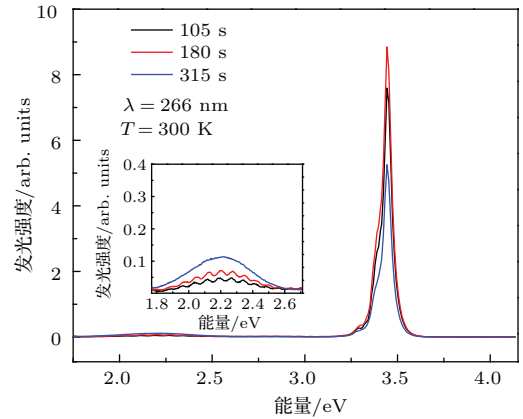


图6 (网刊彩色) 不同形核时间生长的 GaN 外延膜室温 PL 谱

Fig. 6. (color online) Photoluminescence spectra at room temperature of GaN epilayers with different growth time for low temperature nucleation layer.

根据以上分析可知, 样品 B 具有最优的 GaN 晶体质量, 这源于退火后形核岛的密度和尺寸适宜. 有文献报道, 在形核岛的生长过程中, 形核岛内的螺位错会随着岛的横向生长而发生弯曲 [38], 在岛的合并过程中, 界面处弯曲的位错很有可能发生相互作用而湮没 [39,40]. 但是对于样品 A, 其形核岛密度最大, 这导致了螺位错保留在形核岛内, 岛与岛的间距太小, 形核岛内的螺位错还未发生弯曲岛与岛就会合并, 降低了界面处位错相互作用发生湮没的机会, 这与形核岛聚合时间过短必然导致较高的螺位错密度相一致. 由于其形核岛的密度亦很高, 这就造成了形核岛合并时界面的数量很大, 刃位错主要产生于岛与岛合并的界面处, 这样会在界面处产生大量的刃位错. 所以 PL 谱中样品 A 的光学质量较差, I_b/I_d 较低, 这与位错密度较高一致. 样品 B 中形核岛密度较低, 岛与岛间距较大, 这样其形核岛内保留的螺位错很少, 在岛的横向生长过程中有足够的空间发生弯曲并相互作用而湮没 [39,40], 这与形核岛聚合时间适当延长可减小穿透位错相一致. 因此, 外延层中的螺位错密度较低. 另外, 由于样品 B 的形核岛密度较低, 因此岛与岛合并的界面较少, 这样在界面处形成的刃位错较少. 所以样品 B 具有最好的晶体质量以及光学性能. 样品 C 中由于出现许多尺寸较小的形核岛, 使得岛的合并过程中岛与岛不在一个水平面上, 这样界面处弯曲的螺位错很难发生相互作用而湮没在外延层中, 这与形核岛聚合时间过长、穿透位错增加相一致; 另外, 由于小岛数目较多, 导致岛与岛之间界面的数量增加, 并因此增大刃位错密度. 所以样品 C 的晶体质量最差, 光学性能也最差.

4 结 论

本文系统研究了MOCVD法生长的具有不同形核时间的GaN单晶薄膜中位错的演变机理,分析了界面形核时间对外延薄膜晶体质量以及光学性质的影响. 研究发现,形核时间为180 s的样品的晶体质量最好,形核时间过长或过短均会导致晶体质量下降. 通过AFM观察不同形核时间NL退火后的表面形貌,发现形核时间为180 s样品的形核岛密度较小,岛与岛间距较大,这有利于位错在岛横向生长过程中发生互相作用而弯曲,最终湮没在外延层中;另外,岛与岛合并过程中界面数目较低,这样在界面处形成的刃位错密度也会大幅减小. 形核时间小于180 s,形核岛的密度太大、间距太小,不利于界面处的位错发生相互作用;间距太小导致岛与岛合并过程中的界面数量较大,增大了刃位错密度. 形核时间长于180 s,在较大的形核岛间隙存在尺寸较小的形核岛,这些小岛会降低位错横向生长中发生相互作用的概率;另外,小岛又会增加界面数量,增加刃位错产生的可能性. 因此,NL的生长有一最佳的生长时间,通过调控这一重要的生长参数有利于获得高质量的GaN薄膜.

参考文献

- [1] Jia H Q, Guo L W, Wang W X, Chen H 2009 *Adv. Mater.* **21** 4641
- [2] Xu B S, Zhai L Y, Liang J, Ma S F, Jia H S, Liu X G 2006 *J. Cryst. Growth* **291** 34
- [3] Chen W C, Tang H L, Luo P, Ma W W, Xu X D, Qian X B, Jiang D P, Wu F, Wang J Y, Xu J 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 068103 (in Chinese) [陈伟超, 唐慧丽, 罗平, 麻尉蔚, 徐晓东, 钱小波, 姜大朋, 吴锋, 王静雅, 徐军 2014 物理学报 **63** 068103]
- [4] Bao H Q, Li H, Wang G, Song B, Wang W J, Chen X L 2008 *J. Cryst. Growth* **310** 2955
- [5] Nakamura S 1991 *Jpn. J. Appl. Phys.* **30** 1705
- [6] Zhang J F, Nie Y H, Zhou Y B, Tian K, Ha W, Xiao M, Zhang J C, Hao Y 2014 *Chin. Phys. B* **23** 068102
- [7] Lu T P, Li S T, Liu C, Zhang K, Xu Y Q, Tong J H, Wu L J, Wang H L, Yang X D, Yin Y, Xiao G W, Zhou Y G 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 141106
- [8] Xu B S, Yang D, Wang F, Liang J, Ma S F, Liu X G 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 074106
- [9] Zhong C T, Yu T J, Yan J, Chen Z Z, Zhang G Y 2013 *Chin. Phys. B* **22** 117804
- [10] Wang T, Shirahama T, Sun H B, Wang H X, Bai J, Sakai S, Misawa H H 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 2220
- [11] Lu T P, Li S T, Zhang K, Liu C, Xiao G W, Zhou Y G, Zheng S W, Yin Y A, Wu L J, Wang H L, Yang X D 2011 *Chin. Phys. B* **20** 098503
- [12] Kim Y, Subramanya S G, Siegle H, Krug R J, Perlin P, Weber E R 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 6032
- [13] Wu W S, Horng R H, Tseng W H, Lin W T, Kung C Y 2000 *J. Cryst. Growth* **220** 235
- [14] Li S T, Jiang F Y, Fan G H, Fang W Q, Wang L 2007 *Physica B* **391** 169
- [15] Koleske D D, Coltrin M E, Cross K C, Mitchell C C, Allerman A A 2004 *J. Cryst. Growth* **273** 86
- [16] Koleske D D, Fischer A J, Allerman A A, Mitchell C C, Cross K C, Kurtz S R, Figiel J J, Fullmer K W, Breiland W G 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 1940
- [17] Chen J, Zhang S M, Zhang B S, Zhu J J, Shen X M, Feng G, Liu J P, Wang Y T, Yang H, Zheng W C 2003 *J. Cryst. Growth* **256** 252
- [18] Li X B, Wu J J, Liu N L, Han T, Kang X N, Yu T J, Zhang G Y 2014 *Mater. Lett.* **132** 94
- [19] Heying B, Wu X H, Keller S, Li Y, Kapolnek D, Keller B P, DenBaars S P, Speck J S 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 643
- [20] Xu S R, Hao Y, Zhang J C, Zhou X W, Yang L A, Zhang J F, Duan H T, Li Z M, Wei M, Hu S G, Cao Y R, Zhu Q W, Xu Z H, Gu W P 2009 *J. Cryst. Growth* **311** 3622
- [21] Zhang Y, Xie Z L, Wang J, Tao T, Zhang R, Liu B, Chen P, Han P, Shi Y, Zheng Y L 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 056101 (in Chinese) [张韵, 谢自力, 王健, 陶涛, 张荣, 刘斌, 陈鹏, 韩平, 施毅, 郑有焯 2013 物理学报 **62** 056101]
- [22] Zielińska-Rohoznińska E, Regulska M, Harutyunyan V S, Pakula K, Borowski J 2002 *Mater. Sci. Engin. B* **91–92** 441
- [23] Wang J X, Wang L S, Yang S Y, Li H J, Zhao G J, Zhang H, Wei H Y, Jiao C M, Zhu Q S, Wang Z G 2014 *Chin. Phys. B* **23** 026801
- [24] Xu P Q, Jiang Y, Ma Z G, Deng Z, Lu T P, Du C H, Fang Y T, Zuo P, Chen H 2013 *Chin. Phys. Lett.* **30** 028101
- [25] Dunn C G, Koch E F 1957 *Acta Metall.* **5** 548
- [26] Taniyasu Y, Kasu M, Makimoto T 2007 *J. Cryst. Growth* **298** 310
- [27] Metzger T, Höppler R, Born E, Ambacher O, Stutzmann M, Stömmer R, Schuster M, Göbel H, Christiansen S, Albrecht M, Strunk H P 1998 *Philos. Mag. A* **77** 1013
- [28] Chierchia R, Böttcher T, Heinke H, Einfeldt S, Figge S, Hommel D 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 8918
- [29] Zheng X H, Chen H, Yan Z B, Han Y J, Yu H B, Li D S, Huang Q, Zhou J M 2003 *J. Cryst. Growth* **255** 63
- [30] Arslan E, Ozturk M K, Duygulu Ö, Kaya A A, Ozcelik S, Ozbay E 2009 *Appl. Phys. A* **94** 73
- [31] Saron K M A, Hashim M R, Allam N K 2013 *J. Appl. Phys.* **113** 124304
- [32] Zhang L L, Liu Z H, Xiu X Q, Zhang R, Xie Z L 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 208101 (in Chinese) [张李骊, 刘战辉, 修向前, 张荣, 谢自力 2013 物理学报 **62** 208101]
- [33] Cao R T, Xu S R, Zhang J C, Zhao Y, Xue J S, Ha W, Zhang S, Cui P S, Wen H J, Chen X 2014 *Chin. Phys. B* **23** 047804

- [34] Zheng Z Y, Chen Z M, Wu H L, Chen Y D, Huang S J, Fan B F, Xian Y L, Wu Z S, Wang G, Jiang H 2014 *J. Cryst. Growth* **387** 52
- [35] Fang Z L, Kang J Y, Shen W Z 2008 *J. Phys. Chem. C* **112** 17652
- [36] Xu S R, Hao Y, Zhang J C, Jiang T, Yang L N, Lu X L, Lin Z Y 2013 *Nano Lett.* **13** 3654
- [37] Lu T P, Ma Z G, Du C H, Fang Y T, Wu H Y, Jiang Y, Wang L, Dai L G, Jia H Q, Liu W M, Chen H 2014 *Sci. Rep.* **4** 6131
- [38] Benamara M, Liliental-Weber Z, Kellermann S, Swider W, Washburn J, Mazur J, Bourret-Courchesne E D 2000 *J. Cryst. Growth* **218** 447
- [39] Masataka I, Naoki F, Narihito O, Krishnan B, Motoaki I, Satoshi K, Hiroshi A, Isamu A, Tadashi N, Takashi T, Akira B 2007 *J. Cryst. Growth* **300** 136
- [40] Zhao L B, Yu T J, Wu J J, Dai T, Yang Z J, Zhang G Y 2010 *Appl. Surf. Sci.* **256** 2236

Effect of interface nucleation time of the GaN nucleation layer on the crystal quality of GaN film^{*}

Guo Rui-Hua Lu Tai-Ping Jia Zhi-Gang Shang Lin Zhang Hua Wang Rong
Zhai Guang-Mei Xu Bing-She[†]

(Key Laboratory of Interface Science and Engineering in Advanced Materials Ministry of Education and Shanxi Province, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

(Research Center of Advanced Materials Science and Technology, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

(Received 29 December 2014; revised manuscript received 28 January 2015)

Abstract

In this paper, the influences of the growth time of low-temperature (LT) GaN nucleation layer on the crystal quality and optical properties of GaN film are investigated. It is found that the optimal LT nucleation layer growth time can effectively reduce the crystal defects and is favorable to forming the annihilation of dislocations. GaN films are grown on *c*-plane sapphire substrates by metal-organic chemical vapor deposition. Crystal quality and optical properties are characterized by atomic force microscopy (AFM), scanning electron microscopy (SEM), high-resolution X-ray diffraction (HRXRD), and photoluminescence spectra, respectively. In the AFM images, the island density decreases as growth time increases, while the size of island becomes larger and the uniformity of island size deteriorates as growth time increases, leading to the phenomenon that the number of interfaces formed during the nucleation island coalescence, first decrease and then increase as detected by SEM, which also induces the screw dislocation density and edge dislocation density to first decrease and then increase as measured by HRXRD. This first-decrease-and-then-increase variation trend is consistent with the first-increase-and-then-decrease variation trend of the ratio of the band edge emission peak intensity to the yellow luminescence peak intensity tested by photoluminescence, which is confirmed by HRXRD. It is shown that GaN islands with different sizes and densities could lead to different mechanisms of dislocation evolution, thereby forming GaN epitaxial layers with different dislocation densities and optical properties. Through controlling the nucleation time, GaN films with the smallest dislocation density could be obtained.

Keywords: low temperature nucleation layer, metal-organic chemical vapor deposition, gallium nitride, dislocation

PACS: 73.61.Ey, 81.15.Kk, 68.55.-a, 78.55.-m

DOI: 10.7498/aps.64.127305

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61475110, 61404089, 21471111), the Open Research Fund of Jiangsu Key Laboratory for Solar Cell Materials and Technology, Changzhou University, China (Grant No. 201205), the Key Science and Technology Innovative Research Team of Shanxi Province, China (Grant No. 2012041011), and the Natural Science Foundation of Shanxi Province, China (Grant No. 2014021019-1).

[†] Corresponding author. E-mail: xubs@tyut.edu.cn