

分子束外延生长 GaN 薄膜中的一种早期位错结构*

王绍青¹⁾²⁾ 刘全朴²⁾ 叶恒强¹⁾

1)(中国科学院金属研究所固体原子像开放研究实验室, 沈阳 110015)

2)(英国剑桥大学材料科学与冶金学系, 英国剑桥 CB2 3QZ)

(1998 年 4 月 20 日收到)

利用高分辨电子显微术, 对在 GaP 基体上由分子束外延生长六角 GaN 晶体薄膜中的晶体缺陷结构进行了研究. 实验中发现了 GaN 薄膜外延生长过程中产生的一种典型早期刃型位错结构. 此晶体缺陷位于一大块 GaN 晶粒内部, 其外观类似于一段 $(11\bar{2}0)$ 晶界. 它由一条 $(11\bar{2}0)$ 高能孤立晶界段及其两端的两个 $1/6[11\bar{2}0]$ 不完全刃型位错组成. 从大晶格失配材料之间分子束外延生长的机理上对这种缺陷结构的形成进行了解释.

PACC: 6172; 8115; 6855

1 引 言

GaN 是一种新型功能半导体材料. 由于其特有的宽频带高亮度光电特性在光电二极管、彩色显示器及高亮度低能耗新型电光源研制中具有广阔的应用前景.

GaN 半导体薄膜一般由分子束外延生长技术制备, 其基本晶体形态可分为立方和六角两种结构. 由于不存在晶格理想匹配的基体材料用于该晶体薄膜的生产, 通常采用 GaP, Al_2O_3 , GaAs, SiC 和 Si 作为 GaN 的外延生长基体. 这些材料与 GaN 都有较大的晶格失配, 最高者达 20% 以上. 因此, 在外延生长的 GaN 薄膜中, 不可避免地产生了大量的结构缺陷. GaN 半导体材料中晶体缺陷结构对它的物理性能有重要的影响^[1,2]. 因此, 对 GaN 薄膜中晶体缺陷结构与其性质的认识有助于指导促进这种材料物理性能的提高及其在实际中的应用.

本文利用高分辨电子显微术对由分子束外延生长方法制备的六角 GaN 薄膜中的晶界、畴界、线型位错等缺陷结构进行了详细研究, 发现了存在于该半导体薄膜中的一种典型早期刃型位错结构.

2 实验方法

六角 GaN 薄膜采用分子束外延生长技术在 $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})\text{B}$ GaP 基体上外延生长制备^[3]. 制

* 国家攀登计划和英国皇家学会基金资助的课题.

作用于电子显微镜实验的平视(plan-view)观察试样时采取了机械与离子减薄结合的方法. 试样的高分辨原子像观察在剑桥大学材料科学与冶金学系的 JEOL JEM-4000EX 高分辨率电子显微镜上进行. 电子显微镜的工作加速电压为 400 kV. 在对实验高分辨原子像的计算机模拟与定量化分析工作中分别使用了 EMS^[4]和 ATOM^[5]专业计算机软件.

3 结果与讨论

实验中对高分辨原子像的观察沿着薄膜外延生长的方向即六角 GaN 的[0001]方向上进行. 图 1 为一幅在实验观察中获得的一大块 GaN 晶粒的高分辨原子像照片. 从图 1 可看到, 即使在外延生长六角 GaN 薄膜的一块完整晶粒区域内, 仍有很高密度的线型位错存在. 通过 Burgers 矢量回路分析, 可确定出这些线型位错基本上都为纯刃型位错, 具有 $\mathbf{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$ 的 Burgers 矢量. 实验观察到的这种结构缺陷的特点与已有的文献记载基本一致^[6-8]. 另外, 从图 1 还可看到一种独特的晶体缺陷结构. 该缺陷位于图 1 中部, 其外观构成一个在 GaN(11 $\bar{2}$ 0)晶面上的自终止孤立晶界段. 图 2(a)为此缺陷放大后的实验高分辨原子像. 围绕此缺陷整体进行 Burgers 矢量回路分析, 可知其净结果相当于一个 Burgers 矢量为 $\mathbf{B} = 1/3[11\bar{2}0]$ 的刃型位错.

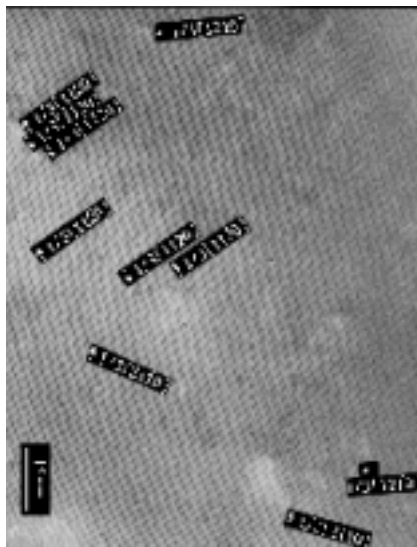


图 1 外延生长六角 GaN 薄膜沿[0001]方向的实验高分辨原子像. 可以看到大量的 $1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$ 刃型位错和在图中心附近的一条类似晶界的独特缺陷结构

由图 1 和图 2(a)可看出该缺陷中的晶界段 EF 部分与一般意义上的晶界的结构有很大不同. 它不是在两块晶粒之间形成的界面, 而是在一大块晶粒内部形成的一种缺陷结构. 通过高分辨原子像的计算机模拟与实验原子像的定量化图像分析, 已经证明: 此晶界段为在 GaN 晶体中抽去一片(11 $\bar{2}$ 0)面上的 Ga/N 原子后所形成的高能界面结构^[9]. 在此界面两边的最近邻原子由 Ga-Ga, N-N 同类原子键连构成. 晶界处的晶格间距为完整晶体中的一半. 在图 2(a)中, 由 E 到 F 晶界上局部原子像在形貌上的变化, 被解释为由于高能晶界晶格弛豫的结果. 由此, 此独特缺陷结构可确定为由 EF 处的两个 Burgers 矢量为 $1/6[11\bar{2}0]$ 的不完全刃型位错与介于 EF 之间的高能晶界段组成, 如图 2(b)所示. 其净效果相当于一个 $1/3[11\bar{2}0]$ 完全刃型位错. 由分子束外延生长的机理及对该缺陷附近实验原子像形态的研究, 我们认为该缺陷是在 GaN 薄膜分子束外延生长过程中形成的一种早期刃型位错结构.

沿着分子束外延生长的方向, 六角 GaN 与基体立方 GaP 之间的晶格失配达 20.4%, 因此, GaN 在 GaP 上生长的初期阶段以形成许多三维小岛的方式进行. 可根据 Pashley 对大晶格失配外延生长的实时观察结果^[10]对该类外延生长的过程进行描述, 即随外延生长的继续, 这些小岛的体积逐渐增大. 当两个相邻的小岛在生长过程中相碰时, 将会发生聚

合或重新晶化过程.如果连接起来的两个小岛之间只有稍微的晶向或位置失配,它们在聚合时将会产生一些刃型位错^[11].重新

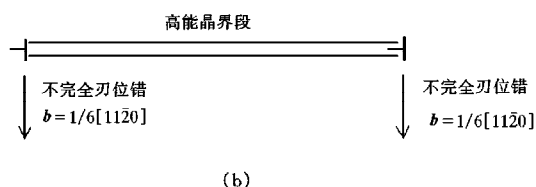
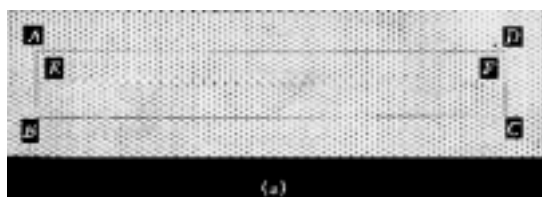


图2 图1中部的独特晶体缺陷放大高分辨原子像(a)和该晶体缺陷结构示意图(b)

晶化发生于两个小岛之间有较大晶体结构差异的情况.随着该过程的继续,生长初期形成的大量 GaN 小岛逐渐合并消失.到最后阶段,分离的 GaN 小岛全部消失,并在 GaP 表面上形成一层连续的 GaN 薄膜.新出现的这层连续 GaN 薄膜中包含许多小的形状各异

的空洞.薄膜外延生长的下一个阶段将对这些空洞进行填充.这又开始了 GaN 在空洞中重新成核、长大并与大块薄膜合并的过程.

早期或初期位错(incipient dislocation)的概念,参见文献[11].如图3所示,假设在一块晶体的内部有一个刃型

位错,如果在此刃型位错的附近存在一个小的晶体空洞,则为达到局部晶格应力的平衡,此空洞内可能隐含一个 Burgers 矢量与其附近的刃型位错反号的刃型位错结构.此时,称该具有隐含刃型位错的晶体空洞所形成的局部结构为一个早期刃型位错结构.现在研究在高分辨率电子显微镜实验中所发现的独特晶体缺陷的周边环境情况.由图1易见,紧邻此独特晶体缺陷的右下方有一个 Burgers 矢量为 $1/3[\bar{1}\bar{1}20]$ 的刃型位错.仔细观察还可看到在这个缺陷的孤立晶界段的右上方有一块与晶界段同长、尺度约为 $23.2\text{ nm} \times 9.8\text{ nm}$

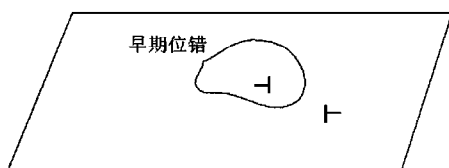


图3 早期刃型位错的典型结构示意图

的近似矩形区域.该区域在象衬度上与周围的大片晶体略有不同.其效果好像是在这块大片完整晶体中的一块镶嵌物.从试样制备的程序及原子像结构分析的结果可知该矩形区域内有着与周边晶体完全相同的原子结构.于是可推知实验中观察到的独特缺陷结构的形成原因:GaN 薄膜在分子束外延生长过程中,在此缺陷处形成了一个晶体空洞.由于该空洞的附近有一个 Burgers 矢量为 $1/3[1\bar{1}20]$ 的刃型位错存在,为达到局部应力平衡,在该空洞的内部便包含了一个 Burgers 矢量为 $1/3[11\bar{2}0]$ 的刃型位错.这是一个正如 Matthews 所称的早期刃型位错的结构.随着分子束外延生长的继续,该空洞被逐渐填满.但是由于此空洞内隐含一个刃型位错,它在被填满后,或者转换成一个完整的刃型位错或者仍残余其早期位错的形式.我们在实验中所观察到的现象正符合后一种结果.因此,在图1高分辨原子像中的独特缺陷结构为在 GaN 薄膜分子束外延生长过程中所残余的一种早期刃型位错结构.

4 结 论

借助于高分辨电子显微术发现了在以 GaP 为基体外延生长六角 GaN 薄膜中的一种早期刃型位错结构. 在 GaN 沿 $[0001]$ 方向的高分辨原子像上, 该独特的缺陷结构由一条 $(11\bar{2}0)$ 高能孤立晶界段及其两端的两个 $1/6[11\bar{2}0]$ 不完全刃型位错组成, 其整体等效于一个 $1/3[11\bar{2}0]$ 完全刃型位错. 这种缺陷结构的形成原因从 GaN 在 GaP 上外延生长的机理方面得到了很好的解释.

感谢英国剑桥大学材料科学与冶金学系的 C. J. Humphreys 教授与 P. D. Brown 博士在试样制备与电子显微镜实验方面给予的热情帮助.

- [1] J. Elsner, R. Jones, P. K. Sitch *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **79**(1997), 3672.
- [2] S. J. Rosner, E. C. Carr, M. J. Ludowise *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **70**(1997), 420.
- [3] T. S. Cheng, L. C. Jenkins, S. E. Hooper *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **66**(1995), 1509.
- [4] P. Stadelmann, *Ultramicroscopy*, **21**(1987), 131.
- [5] S. Q. Wang, *J. Appl. Cryst.*, **28**(1995), 837.
- [6] F. A. Ponce, D. Cherns, W. T. Young *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **69**(1996), 770.
- [7] F. R. Chien, X. J. Ning, S. Stemmer *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **68**(1996), 2679.
- [8] X. H. Wu, L. M. Brown, D. Kapolneck *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **80**(1996), 3228.
- [9] S. Q. Wang, C. P. Liu, *Materials Letters*, to be published.
- [10] D. W. Pashley, *Adv. Phys.*, **14**(1965), 327.
- [11] J. W. Matthews, *Epitaxial Growth* (Academic Press, New York, 1975).

AN INCIPIENT EDGE DISLOCATION IN EPITAXIAL WURTZITE GaN*

WANG SHAO-QING^{1,2)} LIU QUAN-PU²⁾ YE HENG-QIANG¹⁾

1)(Laboratory of Atomic Imaging of Solids, Institute of Metal Research, Academia Sinica, Shenyang 110015)

2)(Department of Materials Science and Metallurgy, University of Cambridge, Cambridge CB2 3 QZ, UK)

(Received 20 April 1998)

ABSTRACT

A structural defect of incipient edge dislocation in epitaxial wurtzite GaN film is confirmed in this paper. The defect is observed as an isolated $(11\bar{2}0)$ boundary segment within one large perfect crystal area by high-resolution electron microscopy. It has the local atom configuration as a part of $(11\bar{2}0)$ high-energy like-atom bonding boundary together with two $1/6[11\bar{2}0]$ partial edge dislocations at its two ends. The origin of the defect is explored from the mechanism of epitaxial growth.

PACC: 6172; 8115; 6855

* Project supported by the National Climbing Program of China and by the Royal Fellowship Programme of British Royal Society.