

# AlN/蓝宝石模板上生长的 GaN 研究\*

汪 莱<sup>†</sup> 王 磊 任 凡 赵 维 王嘉星 胡健楠 张 辰 郝智彪 罗 毅

(清华大学电子工程系,集成光电子学国家重点实验室,清华信息科学与技术国家实验室(筹),北京 100084)

(2010 年 1 月 4 日收到;2010 年 3 月 16 日收到修改稿)

研究了在分子束外延制备的 AlN/蓝宝石模板上采用金属有机物化学气相外延生长的非故意掺杂 GaN 的材料性质. 采用 X 射线衍射(XRD)、透射电镜(TEM)和原子力显微镜研究了 AlN 模板的晶体质量和表面相貌对 GaN 的影响. 结果表明,当 AlN 的表面粗糙度较小时,尽管 AlN 模板的位错密度较高((102)面 XRD  $\omega$  扫描半高全宽 900—1500 arcsec),但生长得到的 GaN 依然具有和在蓝宝石衬底上采用“二步法”生长的 GaN 可比拟的晶体质量((002)面 XRD  $\omega$  扫描半高全宽 200—300 arcsec,(102)面 400—500 arcsec)和表面粗糙度(0.1—0.2 nm). TEM 照片表明 GaN 中位错密度降低的原因是 AlN 中的一部分位错在 AlN 和 GaN 的界面处被终止而未能延伸至 GaN 中. 这可能是因为 Ga 原子尺寸较大,具有修复晶格缺陷的作用. 而当 AlN 的表面粗糙度较大时,Ga 原子在 MOVPE 生长过程中的迁移受到影响,得到的 GaN 晶体质量非常差. 此外,采用范德堡法测量的 GaN 电阻率为  $10^5$ — $10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ ,比蓝宝石衬底上生长的 GaN 高大约 6 个数量级,这被认为是采用 AlN 代替 GaN 低温缓冲层所致.

**关键词:** 氮化镓, 氮化铝, 金属有机物化学气相外延

**PACC:** 6855, 7280E, 7360L

## 1. 引 言

近年来,GaN 基材料因其在蓝光发光器件和高功率电子器件上的应用而引起了广泛的研究兴趣<sup>[1-3]</sup>. 然而,GaN 仍然面临缺乏实用的同质衬底的困扰. 蓝宝石和 SiC 是生长 GaN 基发光二极管(LED)<sup>[4,5]</sup>和高电子迁移率晶体管(HEMT)<sup>[6,7]</sup>使用最普遍的衬底. 和它们相比,AlN 和 GaN 之间具有更小的晶格失配(2.4%)和热膨胀系数(5.2%)失配. 此外,AlN 还具有高的热导率、良好的绝缘性以及不吸收波长 200 nm 以上的光的特点. 这些优势都意味着 AlN 是外延 GaN 材料合适的衬底. 然而,时至今日获得大尺寸的 AlN 体单晶依然十分困难. 因此,外延 GaN 通常是在 AlN/蓝宝石模板上实现的<sup>[4-14]</sup>. AlN 采用金属有机物化学气相外延(MOVPE)或分子束外延(MBE)生长在蓝宝石衬底上,典型的厚度是 1  $\mu\text{m}$ .

1983 年,Yoshida 等人<sup>[8]</sup>报道了采用 MBE 制备 AlN/蓝宝石模板和在其上生长 GaN. 之后,由于“二

步法”的发展,在 AlN 蓝宝石模板上生长的 GaN 的研究并不多见. 直到 2002 年,Sakai 等人<sup>[9]</sup>尝试了采用 MOVPE 在 AlN/蓝宝石衬底上直接生长 GaN,发现其晶体质量比在蓝宝石衬底上采用低温缓冲层生长的 GaN 更好. 最近,Egawa 等人<sup>[10-17]</sup>在 AlN 模板上分别制作了 AlGaIn/GaN HEMTs,InGaIn/GaN LEDs 以及“日盲”肖特基结光探测器. 所有这些器件和生长在蓝宝石衬底上的常规器件相比都表现出了更好的性能.

采用 MOVPE 外延 AlN 会受到 Al 源和 N 源在气相发生的预反应影响,而采用 MBE 外延 AlN 则可以避免预反应的影响,但是由于生长温度低,AlN 的表面相貌一般比较差. 本工作采用 MOVPE 在 MBE 制备的 AlN/蓝宝石模板上生长了 GaN,讨论了 AlN 的晶体质量和表面相貌对 GaN 的影响.

## 2. 实 验

AlN/蓝宝石模板采用 SVT N35 型号等离子体辅助 MBE 系统生长. 衬底温度 820  $^{\circ}\text{C}$ ,通过改变

\* 国家自然科学基金(批准号:60723002,50706022,60977022),国家重点基础研究发展计划(批准号:2006CB302800,2006CB921106),国家高技术研究发展计划(批准号:2007AA05Z429,2008AA03A194),北京市自然科学基金重点项目(批准号:4091001),深圳市产学研和公共科技专项资助项目(批准号:08CXY-14)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: wanglai@tsinghua.edu.cn

MBE 生长的 V/Ⅲ 比条件,一共获得了 4 个晶体质量各不相同的 AlN/蓝宝石模板,分别记作 A1—A4. 其中 A1 采用微富铝条件生长, A2 采用富铝条件生长, A3 大部分采用富氮条件生长,仅表面采用富铝条件生长, A4 采用富氮条件生长,这四个样品的 AlN 层厚度均控制在 1  $\mu\text{m}$  左右. 在经过常规的有机清洗表面后,将 AlN/蓝宝石模板放入 AIXTRON 2000HT 型号 MOVPE 系统进行 GaN 的生长. 首先,在 1040  $^{\circ}\text{C}$  的衬底温度和 40000 Pa 的反应室压强下将 AlN/蓝宝石模板置于氢气和氨气的混合气氛中清洗 2 min. 然后,在同样温度和压强下直接生长 GaN. 三甲基镓和氨气分别作为 Ga 源和 N 源, V/Ⅲ 比为 1000. 采用 A1—A4 模板生长的 GaN 分别记作 G1—G4,其中 G1 和 G3 的名义厚度是 1  $\mu\text{m}$ , G2 的名义厚度是 2  $\mu\text{m}$ , G4 的名义厚度是 4  $\mu\text{m}$ .

在 MBE 和 MOVPE 生长结束后,分别采用 Philips X'pert PRO MRD X 射线衍射仪和 PSIA XE-100 原子力显微镜测量了 AlN 和 GaN 的晶体质量和表面形貌. 采用 JEOL 200CX 透射电镜 (TEM) 观察了 G1 中的位错. 采用范德堡法在一套经校准的自建系统上测量了 G1 和 G3 的电阻率.

### 3. 结果和讨论

表 1 列出了 A1—A4 和 G1—G4 的 XRD  $\omega$  扫描的半高全宽 (FWHM) 和表面均方根粗糙度. 图 1 是 A1—A4 和 G1—G3 的 AFM 图片, G4 由于表面形貌

表 1 A1—A4 和 G1—G4 的 XRD 半高全宽和表面粗糙度

样品	A1	G1	A2	G2	A3	G3	A4	G4
(002) 面 FWHM/arcsec	216	262	165	194	678	287	784	821
(102) 面 FWHM/arcsec	903	427	1506	513	1158	386	1021	1093
表面粗糙度/nm	1.034	0.126	0.362	0.184	0.513	0.150	3.143	—

从上述分析可以看到,当 AlN 的表面粗糙度较低时, GaN 的晶体质量相对 AlN 可以明显提高,这表明 GaN 中的位错密度相对较低. 为了阐明 GaN 中位错密度减小的原因,采用 TEM 观察了 G1 的横截面. 图 2 是得到的 TEM 照片,从中可以清楚地看到 AlN 和 GaN 界面. 在 AlN 中存在着大量延伸至其表面的位错,但是仅有一小部分位错能够穿透界面进入 GaN 中. 这正是 GaN 晶体质量提高的原因. 这个结果可能是由于在 MOVPE 生长 GaN 的过程中, Ga 原子的体积较大且表面迁移能力较强,能够很好的

很差而没有进行测量. 可以看到,所有 AlN 模板的 (102) 面 FWHM 都显得较大. 事实上,这是在蓝宝石衬底上采用 MBE 生长的 AlN 材料的典型值. 尽管如此, G1—G3 的 (102) 面 FWHM 分别只有 427, 513, 386 arcsec. 此外,样品 G1 和 G2 维持了和 AlN 模板相似的 (002) 面 FWHM,而 G3 相比 A3 有明显的降低. 从表面形貌上看, G1—G3 相对 A1—A3 都有了明显的改善,表面形成了清晰的原子台阶,粗糙度和在蓝宝石衬底上生长的 GaN 相似. 上述结果意味着在质量并不好的 AlN 模板上依然可以获得晶体质量较好的 GaN. 值得注意的是 G4,尽管 A4 和 A3 的晶体质量很接近,但是 G4 并没有像 G3 那样表现出明显的 FWHM 减小,而是维持了和 A4 类似的较差的晶体质量. 主要原因是 A4 的表面粗糙度太大,导致 MOVPE 生长 GaN 的过程中 Ga 原子的表面迁移受到影响而无法形成高质量的薄膜. 这个结果表明, AlN/蓝宝石模板的表面形貌是影响其上生长的 GaN 的晶体质量的关键因素,在优化 AlN 的生长条件时,要以保证其表面平整为前提.

另一方面, AlN 的晶体质量也会对 GaN 的晶体质量产生影响. 例如, G2 的 (002) 面 FWHM 已经略小于我们在蓝宝石衬底上采用“二步法”生长的 GaN 的值 (220 arcsec),这主要归因于 A2 的 (002) 面 FWHM 值较小;但其 (102) 面 FWHM 也受到 AlN 的影响而显得较大. 可以预见,如果 AlN 的晶体质量进一步提高,则 GaN 的晶体质量还会更好.

修复 AlN 表面的晶格缺陷,从而抑制了位错向上延伸. 更详尽的生长机理还有待进一步研究.

为了研究 GaN 的电学特性,采用范德堡法对 G1 和 G3 的电阻率进行了测量,分别是  $2.4 \times 10^6$  和  $2.3 \times 10^5 \Omega \cdot \text{cm}$ . 而我们在蓝宝石衬底上采用低温 GaN 缓冲层生长的 GaN 的电阻率典型值是 0.1—1  $\Omega \cdot \text{cm}$ . 可以看到,高绝缘性的 AlN 模板有利于生长高阻 GaN. 之前已有关于在蓝宝石衬底上采用 AlN 缓冲层生长 GaN 的研究<sup>[18]</sup>,也得到了类似的结果. 采用低温 GaN 缓冲层生长的 GaN 电阻率较小的原

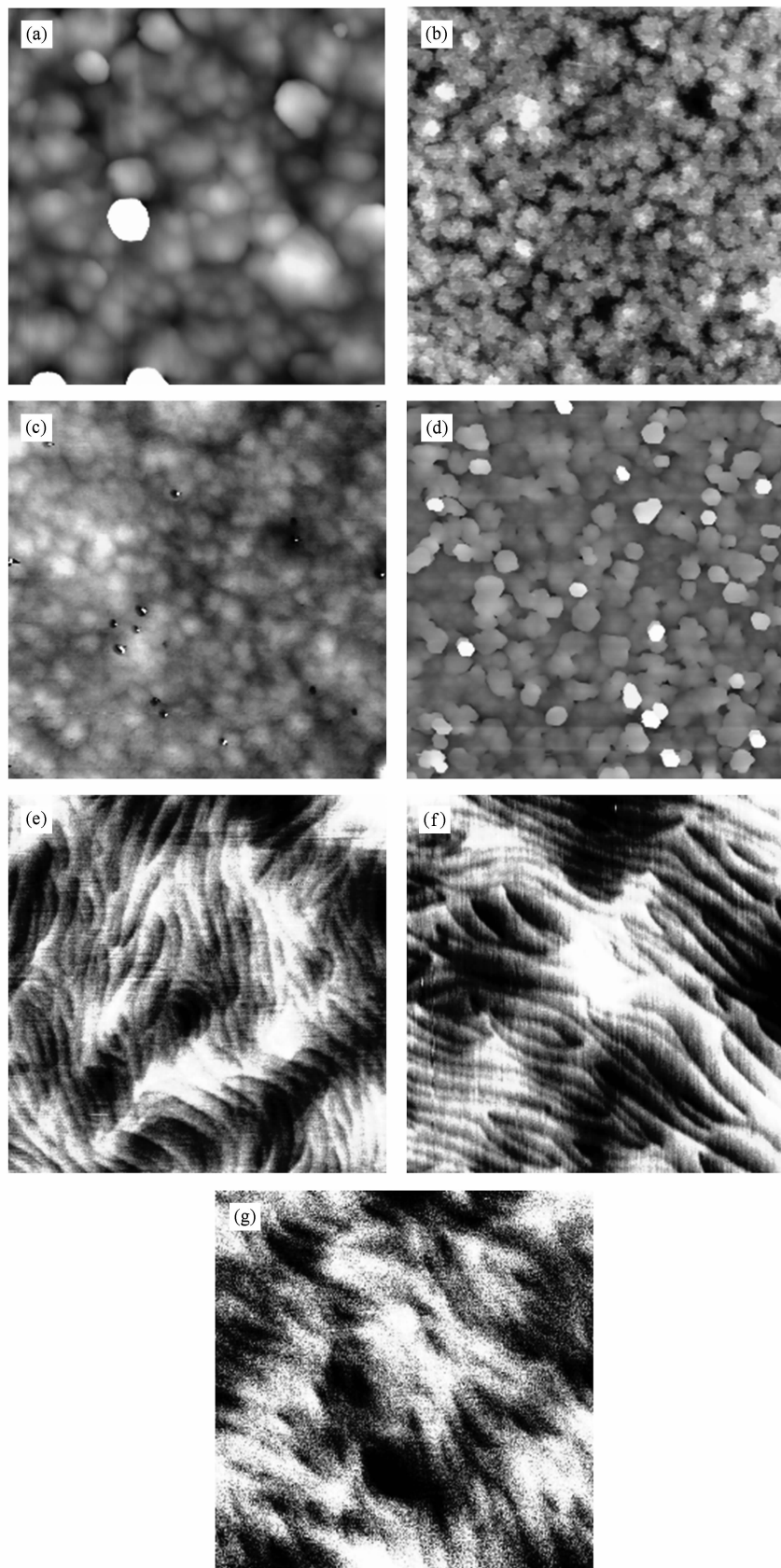


图1 A1—A4 和 G1—G4 的 AFM 照片(样品 A1 (a), A2 (b), A3 (c), A4 (d), G1 (e), G2 (f), G3 (g); 扫描范围 A4 为  $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ , 其余均为  $5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m}$ )

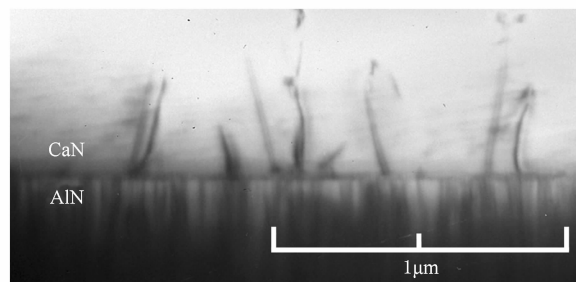


图2 样品 G1 的横截面 TEM 照片(横截面为 GaN 的(2 110)面,衍射矢量  $g = (0110)$ )

因一般认为有两点:一个是在生长过程中蓝宝石中的 O 原子会向 GaN 扩散<sup>[19]</sup>,另外一个是在低温生长的 GaN 缓冲层晶体缺陷非常多<sup>[18]</sup>,上述两点都造成了 GaN 的背景浓度较高.而 AlN 层的引入很好地解决了这个问题<sup>[18]</sup>,所以有利于获得高阻 GaN.进一步,G3 的(102)面 FWHM 比 G1 的要大,相对应的是 G3 的电阻率比 G1 要小.这是因为(102)面 FWHM 主要反映了刃位错的多少<sup>[20]</sup>,而刃位错在 GaN 中通常是作为受主存在的<sup>[21]</sup>.所以 G1 具有更

多的刃位错来补偿 n 型背景浓度,从而电阻率更高.从这一点可以看出,AlN 模板还可以通过影响 GaN 的晶体质量来影响 GaN 的电学特性.

#### 4. 结 论

本文研究了在 MBE 制备的 AlN/蓝宝石模板上采用 MOVPE 生长的 GaN 的材料性质.当 AlN 的表面粗糙度较小时,尽管 AlN 材料的位错密度很高,但是生长的 GaN 具有和在蓝宝石衬底上采用“二步法”生长的 GaN 可比拟的晶体质量和表面粗糙度.透射电镜照片表明 AlN 中的大部分位错被中止在 AlN 和 GaN 的界面处而没有延伸至 GaN 中.这可能是由于采用 MOVPE 外延 GaN 时,Ga 原子的尺寸较大且表面迁移能力较强,具有修复晶格缺陷的作用.而当 AlN 的表面粗糙度较大时,Ga 原子的表面迁移受到影响,从而导致生长的 GaN 晶体质量非常差.此外,在 AlN/蓝宝石模板上生长的 GaN 具有很高的电阻率,比在蓝宝石衬底上采用“二步法”生长的 GaN 高 6 个数量级.

- [1] Nakamura S, Mukai T, Senoh M 1991 *Jpn. J. Appl. Phys.* **30** L1998
- [2] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S, Iwasa N, Yamada T, Matsushita T, Kiyoku H, Sugimoto Y 1996 *Jpn. J. Appl. Phys.* **35** L74
- [3] Khan M A, Bhattarai A, Kuznia J N, Olson D T 1993 *Appl. Phys. Lett.* **63** 1214
- [4] Shao J P, Hu H, Guo W P, Wang L, Luo Y, Sun C Z, Hao Z B 2005 *Acta. Phys. Sin.* **54** 3905 (in Chinese) [邵嘉平、胡卉、郭文平、汪 莱、罗 毅、孙长征、郝智彪 2005 物理学报 **54** 3905]
- [5] Luo Y, Guo W P, Shao J P, Hu H, Han Y J, Xue S, Wang L, Sun C Z, Hao Z B 2004 *Acta. Phys. Sin.* **53** 2720 (in Chinese) [罗 毅、郭文平、邵嘉平、胡 卉、韩彦军、薛 松、汪 莱、孙长征、郝智彪 2004 物理学报 **53** 2720]
- [6] Ren F, Hao Zhibiao, Wang L, Wang L, Li Hongtao, Luo Yi 2010 *Chin. Phys. B* **19** 017306
- [7] Xi G Y, Ren F, Hao Zhibiao, Wang L, Li H T, Jiang Y, Zhao W, Han Y J, Luo Y 2008 *Acta. Phys. Sin.* **57** 7238 (in Chinese) [席光义、任 凡、郝智彪、汪 莱、李洪涛、江 洋、赵 维、韩彦军、罗 毅 2008 物理学报 **57** 7238]
- [8] Yoshida S, Misawa S, Gonda S 1983 *Appl. Phys. Lett.* **42** 427
- [9] Sakai M, Ishikawa H, Egawa T, Jimbo T, Umeno M, Shibata T, Asai K, Sumiya S, Kuraoka Y, Tanaka M, Oda O 2002 *J. Cryst. Growth* **244** 6
- [10] Arulkumaran S, Sakai M, Egawa T, Ishikawa H, Jimbo T, Shibata T, Asai K, Sumiya S, Kuraoka Y, Tanaka M, Oda O 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 1131
- [11] Egawa T, Ohmura H, Ishikawa H, Jimbo T 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 292
- [12] Zhang B J, Egawa T, Liu Y, Ishikawa H, Jimbo T 2003 *Phys. Stat. Sol. (c)* **7** 2244
- [13] Miyoshi M, Ishikawa H, Egawa T, Asai K, Mouri M, Shibata T, Tanaka M, Oda O 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 1710
- [14] Zhang B J, Egawa T, Ishikawa H, Liu Y, Jimbo T 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 3170
- [15] Jiang H, Egawa T, Hao M, Liu Y 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 241911-1
- [16] Miyoshi M, Kuraoka Y, Asai K, Shibata T, Tanaka M, Egawa T 2007 *IEEE Electron. Lett.* **43** 953
- [17] Jiang H, Egawa T 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 121121-1
- [18] Zhou Z T, Guo L W, Xing Z G, Ding G J, Zhang J, Peng M Z, Jia H Q, Chen H, Zhou J M 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 1641
- [19] Yu H, Ozturk M K, Ozcelik S, Ozbay E 2006 *J. Cryst. Growth* **293** 273
- [20] Heinke H, Kirchner V, Einfeldt S, Hommel D 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2145
- [21] Ng H M, Doppalapudi D, Moustakas T D, Weimann N G, Eastman L F 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 821

## GaN grown on AlN/sapphire templates\*

Wang Lai<sup>†</sup> Wang Lei Ren Fan Zhao Wei Wang Jia-Xing Hu Jian-Nan Zhang Chen Hao Zhi-Biao Luo Yi

(*State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics/Tsinghua National Laboratory for Information Science and Technology, Department of Electronic Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

(Received 4 January 2010; revised manuscript received 16 March 2010)

### Abstract

Properties of unintentionally-doped GaN re-grown on molecular beam epitaxy grown AlN/Sapphire templates by metal organic vapor phase epitaxy (MOVPE) are studied in this article. X-ray diffraction (XRD), transmission electron microscope (TEM), and atomic force microscope are used to investigate the influence of the crystal quality and surface morphology of AlN on the GaN. It is found that when surface roughness of AlN is small, the GaN has a full width at half maximum (FWHM) values of XRD rocking curves (200—300 and 400—500 arcsec for (002) and (102) plane  $\omega$ -scan, respectively) and surface roughness (0.1—0.2 nm), which are comparable to those grown on sapphire substrates by using “two-step” method, although the FWHMs of (102) plane XRD  $\omega$ -scan curves of AlN are 900—1500 arcsec. The reason for dislocation reduction in GaN shown by TEM image is that a part of dislocations in AlN are eliminated in the interface between AlN and GaN. This is probably due to the lattice restoration from Ga atoms for their large size. On the other hand, when surface roughness of AlN is large, the surface migration of Ga atoms is restricted during the MOVPE growth, which results in a poor GaN quality. Moreover, the resistivity of GaN confirmed with Van der Pauw method is between  $10^5$  and  $10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ , which is about six orders of magnitude higher than that in GaN grown on sapphire substrates. This is attributed to the replacement of low temperature GaN buffer layer by the AlN.

**Keywords:** GaN, AlN, metal organic vapor phase epitaxy

**PACC:** 6855, 7280E, 7360L

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60723002, 50706022, 60977022), the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2006CB302800, 2006CB921106), the High Technology Research and Development Program of China (Grant Nos. 2007AA05Z429, 2008AA03A194), Beijing Natural Science Foundation of China (Grant No. 4091001), the Industry Academia and Research combining and Public Science and Technology Special Program of Shenzhen, China (Grant No. 08CXY-14).

<sup>†</sup> E-mail: wanglai@tsinghua.edu.cn