

Si 衬底 InGaN/GaN 多量子阱 LED 外延材料的微结构*

李翠云^{1,2,†} 朱 华^{1,2} 莫春兰¹ 江风益¹

(1 南昌大学教育部发光材料与器件工程研究中心, 南昌 330047)

(2 景德镇陶瓷学院, 景德镇 333001)

摘要: 用透射电子显微镜(TEM)和 X 射线双晶衍射仪(DCXRD)对在 Si(111)衬底上生长的 InGaN/GaN 多量子阱(MQW)LED 外延材料的微结构进行了观察和分析. 从 TEM 高分辨像观察到, 在 Si 和 AlN 界面处未形成 Si_xN_y 非晶层, 在 GaN/AlN 界面附近的 GaN 上有堆垛层错存在, 多量子阱的阱(InGaN)和垒(GaN)界面明锐、厚度均匀; TEM 和 DCXRD 进一步分析表明 MQW 附近 n 型 GaN 的位错密度为 10⁸ cm⁻²量级, 其中多数为 $b = 1/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 的刃位错.

关键词: GaN; Si 衬底; LED; 位错; TEM; DCXRD

PACC: 0750

中图分类号: TN304

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2006)11-1950-05

1 引言

Ⅲ族氮化物材料适合于制作短波长发光二极管(LED)和激光二极管(LD). 在过去的十几年中, Ⅲ族氮化物高效率蓝绿紫 LED 相继研制成功并实现了产业化. 通常Ⅲ族氮化物材料是用金属有机化学气相沉积(MOCVD)方法在蓝宝石或 SiC 衬底上生长. 由于 Si 衬底的价格比蓝宝石或 SiC 衬底便宜, 且具有面积大、质量高、导电导热性能好、易加工等优点, 故用 Si 材料作为Ⅲ族氮化物材料的生长衬底受到普遍关注. 然而由于 Si 衬底与 GaN 外延层之间巨大的晶格失配和热失配, 这使 Si 衬底上生长的 GaN 材料产生大量的位错及裂纹. 近几年来, 有些研究人员采用低温 AlN 缓冲层^[1]、AlGaIn/AlN 插入层^[2]、超薄 AlN 润湿层^[3]、Si_xN_y 插入层^[4]、GaN/AlN 超晶格^[5,6]等来提高 Si 衬底上 GaN 的质量和降低位错密度, 但位错密度仍达 10⁹ cm⁻²量级.

GaN 中的位错会导致器件漏电流提高、少数载流子寿命缩短, 并且成为杂质迅速扩散的途径, 是制约 GaN 基发光器件性能的一个重要因素. 本文采用高分辨透射电子显微镜和 X 射线双晶衍射仪对本工程中心在 Si(111)衬底上生长的器件质量的无龟裂的 GaN 基多量子阱 LED 外延材料进行了分析和研究.

2 实验

实验所用样品为本工程中心在 Si(111)衬底上采用 LP-MOCVD 方法生长的 InGaN/GaN 多量子阱(MQW)LED 外延材料, 其生长方法在文献[7]已报道, 结构如图 1 所示, 外延材料中含有 5 个量子阱.

掺 Mg 的 p 型 GaN 层
InGaN MQW
掺 Si 的 n 型 GaN 层
未故意掺杂的 GaN 层
GaN 缓冲层
AlN 缓冲层
Si(111)衬底

图 1 Si(111)衬底上 InGaN/GaN MQW LED 结构示意图
Fig.1 Structure diagram of InGaN/GaN MQW LED on Si(111) substrate

用 Bede QC200 X 射线双晶衍射仪(DCXRD)分析样品的结晶性能, X 射线源为 CuK α 1 ($\lambda = 0.154056\text{nm}$), 功率为 80W(40kV \times 2mA). 用透射电子显微镜(TEM)对样品的微结构进行观察和分析. TEM 分析截面样品采用常规方法制备, 先将薄膜对粘, 然后用金属线切割机切成薄片, 再用砂纸机

* 国家高技术研究发展计划资助项目(批准号:2003AA302160)

† 通信作者. Email:xyhcy@yahoo.com.cn

2006-03-28 收到, 2006-05-28 定稿

械减薄至 $50\mu\text{m}$, 并凹坑减薄到 $30\mu\text{m}$, 最后用 3.5keV 氩离子减薄至电子束透明. 样品在 JEOL 2010 高分辨透射电子显微镜上进行分析, 其工作电压为 200kV , 点分辨率为 0.23nm .

3 结果与讨论

图 2 为本文样品的 Si 衬底和 AlN 缓冲层界面处的高分辨像, 从图中可清晰分辨立方与六方结构的界面, 其堆垛次序从 ABCABC 到 ABAB 变化. 通常在 Si(111) 上生长 AlN, 由于 Si—N 的键能很大, 界面处 Si 衬底遇活性 N 易形成无定形的 Si_xN_y , 影响 GaN 的生长质量. 图中 Si 和 AlN 之间清晰的界面表明界面处未形成 Si_xN_y 非晶层, 但存在许多由 AlN 和 Si 的晶格失配产生的失配位错, 这些位错可弛豫 AlN 与 Si 衬底晶格失配和热失配产生的应力.

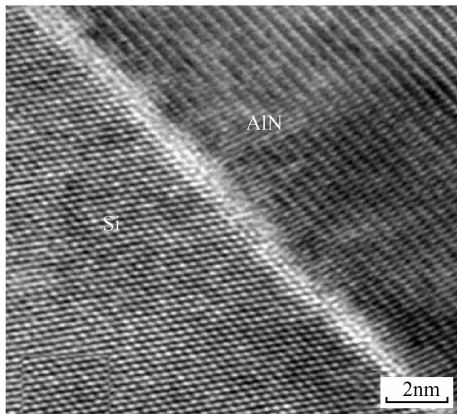


图 2 Si(111)衬底 GaN LED 结构中 AlN/Si 界面处的高分辨像
Fig.2 HRTEM images in interface regions of AlN and Si

图 3 显示了样品在 GaN/AlN 界面附近的 GaN 的高分辨像, 从图中观察 GaN 为六方结构, GaN/AlN 界面附近的 GaN 上存在平行于 (0001) 面的堆垛层错, 其形成可能与 GaN, AlN 的晶格失配有关. Wu 等人^[8]认为 GaN 外延层与 AlN 缓冲层间的结构失配可以被 Shockley ($b = 1/3\langle 10\bar{1}0 \rangle$) 和 Frank ($b = 1/6\langle 20\bar{2}3 \rangle$) 不全位错所容纳, 不全位错可降低外延膜的应变能, 改变晶体的堆垛次序, 在界面附近区域产生较多的堆垛层错. Marec 等人^[9]提出, 当失配位错发生分解时会在外延层中形成层错, 而张应力场更有利于位错的分解和层错的产生. 本文样品是在 Si 衬底上外延生长的, GaN 与 Si 之间巨大的热膨胀系数差促使 LED 外延膜处于张应力状态, 这种张应力也可能是堆垛层错产生的原因.

图 4(a) 显示了本文样品 InGaN/GaN MQW 的 TEM 明场像. 从图中可以看出量子阱为 5 个周

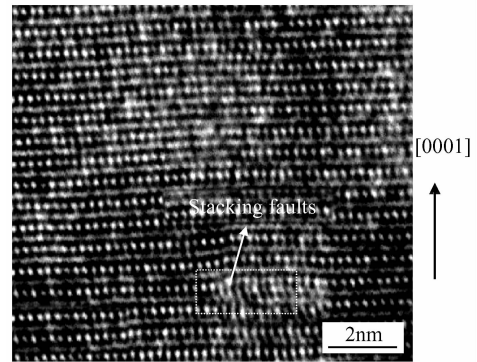


图 3 Si(111)衬底 GaN LED 结构中 GaN/AlN 界面附近的 GaN 的高分辨像 (GaN 的生长方向为 [0001])
Fig.3 HRTEM image near the GaN/AlN interface (GaN growth direction is [0001])

期, 且阱 (InGaN) 和垒 (GaN) 界面明锐, 表明生长的量子阱结构质量良好; 图 4(b) 是该样品 InGaN/GaN MQW 的高分辨像, 由于 In 原子对电子的原子散射因子比 Ga 原子的大, 黑色条纹为阱 (In-

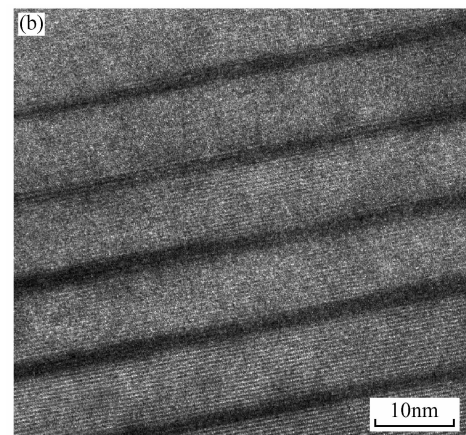
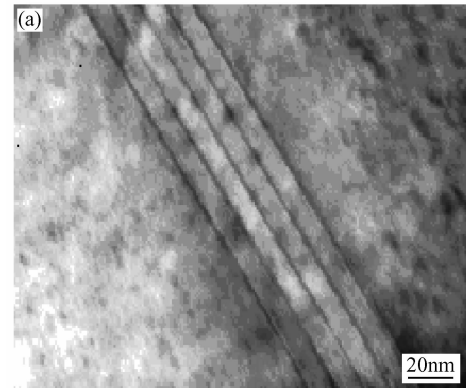


图 4 Si(111)衬底上的 InGaN/GaN MQW 的 TEM (a) 明场像; (b) 高分辨像
Fig.4 InGaN/GaN MQW on Si(111) substrate (a) Cross-sectional bright-field TEM images; (b) HRTEM images

GaN), 白色条纹为垒(GaN). 从图中观察, 阱和垒的厚度较为均匀, 由标尺量得阱(InGaN)层厚约为 2nm, 垒(GaN)层厚约为 8.5nm, 相邻层与层间距为 0.5nm, 与 GaN 的 c 轴晶格常数(0.5185nm)接近.

图 5 是在本文样品 InGaN/GaN 多量子阱附近的 GaN 外延层的 TEM 明场像, 从 TEM 估算, 在 MQW 附近的 n 型 GaN 的位错密度约为 10^8cm^{-2} 量级. 在图中可看到有部分位错直接穿过 MQW, 也有部分位错终止于 MQW 处, 从而降低了 MQW 上方 p 型 GaN 的位错密度. GaN 中的位错可分为三种类型^[10], $b = \langle 0001 \rangle$ 的螺位错、 $b = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$ 的刃位错和 $b = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle$ 的混合位错. 文献[11]曾报道多量子阱能阻挡螺位错和混合位错, 刃位错可直接穿过 MQW. 文献[12]认为螺位错在材料生长过程中高温岛相遇前产生, 而刃位错源于高温岛相遇时晶粒取向偏离形成的小角晶界, 刃位错和混合位错能在滑移面 $\{0001\}$ 和 $\{10\bar{1}0\}$ 滑移, 它们能相互弯曲彼此湮灭或沿平行界面的方向生长, 从而降低了位错密度. 在图 5 中看到的终止于 MQW 处的位错可能与这两种因素均有关.

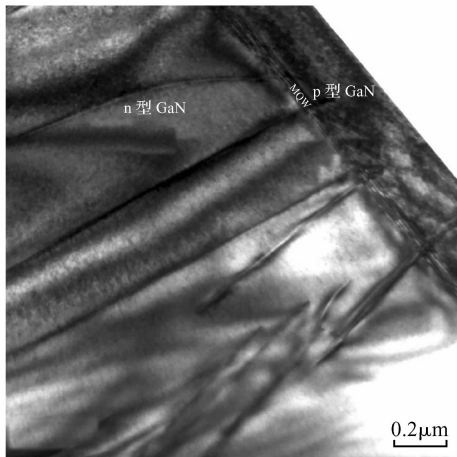


图 5 Si(111)衬底 GaN LED 结构中多量子阱附近的 GaN 的 TEM 明场像($g = [1\bar{1}01]$)

Fig. 5 Cross-sectional bright-field TEM image of GaN epilayer near InGaN/GaN MQW($g = [1\bar{1}01]$)

DCXRD 也可用来表征 GaN 外延膜中的位错密度^[13~16]. 通过测量(002)面和(302)面的 ω 扫描半高宽(FWHM)可分别计算 GaN 外延膜的螺位错和刃位错密度^[15,16].

表 1 为样品在(002), (104), (103)和(102)面 DCXRD ω 扫描 FWHM 值. 其中(002)和(102)面 ω 扫描 FWHM 分别为 $340''$ 和 $409''$, 这表明本文样品结晶质量较高.

表 1 Si(111)衬底 GaN LED 材料 DCXRD ω 扫描的 FWHM 值

Table 1 FWHM values of ω rocking curves for(hkl) reflections of GaN LED on Si(111) substrate

衍射面	(002)	(104)	(103)	(102)
FWHM/ $''$	340	363	379	409

采用 Lattice-rotation 模型^[13]将不同倾斜角度晶面的 ω 扫描 FWHM 进行拟合, 拟合公式为:

$$\Gamma_{hkl} = \sqrt{(\Gamma_1 \cos\phi)^2 + (\Gamma_2 \sin\phi)^2}$$

其中 Γ_{hkl} 为(hkl)面的 ω 扫描 FWHM 值; ϕ 为该衍射面的倾斜角度. 拟合结果如图 6 所示, 实验数据与拟合曲线吻合很好. 通过拟合曲线可推知(302)面的 ω 扫描 FWHM 为 $460''$.

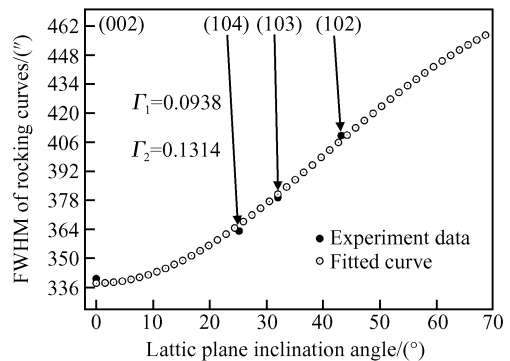


图 6 Si(111)衬底 GaN LED 材料的 DCXRD ω 扫描 FWHM 随倾斜角增加的变化曲线. 标示点为实验数据, 曲线为拟合线.

Fig. 6 FWHM of DCXRD ω -scans of GaN LED on Si(111) substrate as a function of inclination angle ϕ . The symbols are experimental data and the lines are fit to them.

位错密度的计算公式为^[15]:

$$D_{\text{dis}} = D_1 + D_2$$

$$D_1 = \beta_{(002)}^2 / 4.36 b_{\text{screw}}^2$$

$$D_2 = \beta_{(302)}^2 / 4.36 b_{\text{edge}}^2$$

其中 D_1 为螺位错密度; D_2 为刃位错密度, 混合位错密度包含在 D_1, D_2 之中; $\beta_{(002)}$ 和 $\beta_{(302)}$ 分别为(002)面和(302)面的 ω 扫描 FWHM 值; b_{screw} 和 b_{edge} 分别为螺位错和刃位错的伯格斯矢量($b_{\text{screw}} = \langle 0001 \rangle$, $b_{\text{edge}} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$).

由此计算得到 Si(111)衬底 InGaN/GaN LED 材料的位错密度 $D_1 = 2.3 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$, $D_2 = 1.1 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$, D_2 是 D_1 的近 5 倍. 这表明本文样品中的位错多数为 $b = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$ 的刃位错, 螺位错和混合位错相对较少. 从以上 XRD 结果计算总位错密度为 $D_{\text{dis}} = 1.3 \times 10^9 \text{cm}^{-2}$, 比 TEM 估算得到的结果 10^8cm^{-2} 量级偏大. 为此我们作如下解释: TEM 估算的位错密度是 LED 外延膜 MQW 附近的 GaN

材料的位错;而由 DCXRD 计算的位错密度则反映的是整个 LED 外延膜(包括缓冲层)的平均位错密度;MQW 附近的 GaN 的位错密度比缓冲层附近的 GaN 的位错密度要低得多(TEM 结果显示了本文样品在 GaN 缓冲层附近的位错密度高达 10^{11} cm^{-2} (图略)).由此可知,样品 Si 衬底 GaN 基 LED 材料在 MQW 附近的 GaN 的位错密度与目前市场上商用的蓝宝石衬底上生长的 GaN 材料的位错密度相当.

另外,我们也对由该样品制成的 LED 芯片的发光性能进行了测试.室温下,注入 20mA 正向电流时,电致发光峰值波长为 460nm,半高宽约 28nm,发光光强为 20mcd,这些结果与目前市场上蓝宝石衬底上的 GaN 基蓝光 LED 接近,详细报道可参考文献[7].

4 结论

用透射电镜和 X 射线双晶衍射仪对 Si(111)衬底上生长的 InGaN/GaN MQW LED 外延材料的微结构进行了观察和分析.在 Si 和 AlN 界面处未形成 Si_xN_y 非晶层, MQW 的阱(InGaN)和垒(GaN)界面明锐,厚度均匀;MQW 附近的 n 型 GaN 的位错密度约 10^8 cm^{-2} 量级.通过电致发光测试,本文样品制成的 LED 发光性能良好.这些结果表明:本研究在 Si 衬底上突破了 GaN 基材料的生长技术,材料的晶体质量和光学特性与蓝宝石衬底上生长的 GaN 材料相当.

参考文献

- [1] Dadgar A, Blasing J, Diex A, et al. Metalorganic chemical vapor phase epitaxy of crack-free GaN on Si(111) exceeding 1mm in thickness. *Jpn J Appl Phys*, 2000, 39: L1183
- [2] Ishikawa H, Zhao G Y, Nakada N, et al. GaN on Si substrate with AlGaN/AlN intermediate layer. *Jpn J Appl Phys*, 1999, 38: L492
- [3] Lu Yuan, Liu Xianglin, Lu Dacheng, et al. Investigation of GaN layer grown on Si(111) substrate using an ultrathin AlN wetting layer. *J Cryst Growth*, 2002, 236: 79
- [4] Lee K J, Shin E H, Lin K Y. Reduction of dislocations in GaN epilayers grown on Si(111) substrate using Si_xN_y inserting layer. *Appl Phys Lett*, 2004, 85(9): 1504
- [5] Nikishin S A, Faleev N N, Antipov V G, et al. High quality GaN grown on Si(111) by gas source molecular beam epitaxy with ammonia. *Appl Phys Lett*, 1999, 75(14): 2073
- [6] Dobos L, Pecz B, Feltin E, et al. Microstructure of GaN layers grown on Si(111) revealed by TEM. *Vacuum*, 2003, 71: 285
- [7] Mo Chunlan, Fang Wenqing, Pu Yong, et al. Growth and characterization of InGaN blue LED structure on Si(111) by MOCVD. *J Cryst Growth*, 2005, 285: 313
- [8] Wu X H, Brown L M, Kapolnek D, et al. Defect structure of metal-organic chemical vapor deposition-grown epitaxial (0001) GaN/Al₂O₃. *J Appl Phys*, 1996, 80: 3228
- [9] Maree P M, Barbour J C, Veen J F, et al. Generation of misfit dislocations in semiconductors. *J Appl Phys*, 1987, 62: 4415
- [10] Speck J S, Rosner S J. The role of threading dislocations in the physical properties of GaN and its alloys. *Phys B*, 1999, 274: 24
- [11] Hu G Q, Kong X, Wan L, et al. Microstructure of GaN films grown on Si(111) substrates by metalorganic chemical vapor deposition. *J Cryst Growth*, 2003, 256: 420
- [12] Wu X H, Fini P, Tarsa E J, et al. Dislocation generation in GaN heteroepitaxy. *J Cryst Growth*, 1998, 190: 231
- [13] Heinke H, Kirchner V, Einfeldt S, et al. X-ray diffraction analysis of the defect structure in epitaxial GaN. *Appl Phys Lett*, 2000, 77(14): 2145
- [14] Lee S R, West A M, Allerman A A, et al. Effect of threading dislocation on the Bragg peakwidths of GaN, AlGaIn, and AlN heterolayers. *Appl Phys Lett*, 2005, 86(24): 241904
- [15] Zhou Jin, Yang Zhijian, Tang Yingjie. X-ray analysis of GaN film grown by hydride vapor phase epitaxy. *Chinese Journal of Luminescence*, 2001, 22(supplement): 80 (in Chinese) [周劲, 杨志坚, 唐英杰, 等. X 射线分析氢化物汽相外延生长 GaN 薄膜. *发光学报*, 2001, 22(增刊): 80]
- [16] Cheng Haiying, Fang Wenqing, Mo Chunlan, et al. Effect of δ -doping on performance of GaN blue LED epitaxial films on Si substrates. *Acta Optica Sinica*, 2006, 26(8): 1269 (in Chinese) [程海英, 方文卿, 莫春兰, 等. δ 掺杂对 Si 衬底 GaN 蓝光 LED 外延膜性能的影响研究. *光学学报*, 2006, 26(8): 1269]

Microstructure of an InGaN/GaN Multiple Quantum Well LED on Si (111) Substrate*

Li Cuiyun^{1,2,†}, Zhu Hua^{1,2}, Mo Chunlan¹, and Jiang Fengyi¹

(1 Education Ministry Engineering Research Center for Luminescence Materials and Devices,
Nanchang University, Nanchang 330047, China)

(2 Jingdezhen Ceramics Institute, Jingdezhen 333001, China)

Abstract: The microstructure of an InGaN/GaN multiple quantum well (MQW) LED on Si (111) substrate is characterized using transmission electron microscopy (TEM) and double crystal X-ray diffraction (DCXRD). High-resolution TEM shows that there is no amorphous layer at the AlN/Si interface. However, stacking faults in the GaN film appear close to the GaN/AlN interface. A very sharp interface between the InGaN and GaN layers reveals the good quality of the MQW material. In addition, TEM and XRD indicate that the dislocation density in the n-GaN layer near the MQW is on the order of 10^8 cm^{-2} , and the major dislocation is pure edge dislocation ($b = 1/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$).

Key words: GaN; Si substrate; LED; dislocation; TEM; DCXRD

PACC: 0750

Article ID: 0253-4177(2006)11-1950-05

* Project supported by the National High Technology Research and Development Program of China (No. 2003AA302160)

† Corresponding author. Email: xyhcy@yahoo.com.cn

Received 28 March 2006, revised manuscript received 28 May 2006

©2006 Chinese Institute of Electronics