

# GSM BE GaN 膜的电子输运性质研究\*

王晓亮 孙殿照 孔梅影 张剑平 曾一平 李晋闽 林兰英

(中国科学院半导体研究所 北京 100083)

**摘要** 用 $\text{NH}_3$ 作氮源的 GSM BE 方法在晶向为(0001)的 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 衬底上生长了非有意掺杂的单晶 GaN 外延膜, GaN 膜呈 N 型导电, 室温时的最高迁移率约为  $120\text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$ , 相应的非有意掺杂电子浓度为  $9.1 \times 10^{17}\text{cm}^{-3}$ . 对一些 GaN 膜进行了变温 Hall 测试, 通过电阻率、背景电子浓度以及 Hall 迁移率随温度的变化研究了 GaN 外延膜的导电机理. 结果表明, 当温度较低时, 以电子在施主中心之间的输运导电为主; 当温度较高时, 以导带中的自由电子导电为主.

PACC: 7280E, 8115G, 7220; EEACC: 2520D, 0510D

## 1 引言

六方 GaN 材料的室温禁带宽度为 3.4eV (365nm), 耐强酸及强碱腐蚀, 热稳定性好<sup>[1]</sup>, 因此该材料在蓝、紫光光电子器件如光发射二极管<sup>[2]</sup>、激光二极管<sup>[3]</sup>、紫外光探测器<sup>[4]</sup>以及高速微电子器件<sup>[5]</sup>方面具有重要的应用前景. 近几年来, GaN 材料的生长、光电性能研究以及器件应用研究为国际研究热点, 并取得了突破性进展, 如用 MOCVD 技术在 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 衬底上制备的 GaN 基蓝光光发射二极管已经商品化<sup>[2]</sup>, 制备的 GaN 基蓝光激光二极管已实现室温连续激射<sup>[3]</sup>, 也制备出了 GaN 基微电子器件<sup>[5]</sup>. 我们用 $\text{NH}_3$ 作氮源的 GSM BE 方法也生长出了光电性能较好的六方 GaN 材料<sup>[6,7]</sup>.

已有人对 GaN 外延膜的电学性能进行了研究<sup>[8-10]</sup>. 然而, 在这一领域仍有很多问题悬而未决, 如: (1) 生长的非有意掺杂 GaN 外延膜通常为 N 型, 且非有意掺杂电子浓度较高, 对这一自掺杂机理的了解尚不十分清楚; (2) P 型 GaN 外延膜仍然较难获得, 对其自补偿机理仍不了解; (3) GaN 外延膜的迁移率与理论值相比仍然较低<sup>[10]</sup>, 其原因也不十分了解. 本文报道我们用国产 GSM BE 设备所生长的非有意掺杂 GaN 外延膜的电学性质以及用变温 Hall 对其导电机理的研究结果.

\* 国家“九五”重点科技攻关计划及博士后科学基金资助项目

王晓亮 男, 1963 年出生, 副研究员, 博士后, 目前从事氮化物材料及器件的研究工作

孙殿照 男, 1942 年出生, 研究员, 目前从事氮化物材料及器件的研究工作

1997-10-22 收到, 1998-03-16 定稿

### 2 实验

GaN 外延膜是用自行改装的国产 GSMBE 系统生长的 氮源用纯度为 99.9995% 的 NH<sub>3</sub>, 镓源用纯度为 7N 的金属 Ga 生长前生长室的背底真空度为 1.33 × 10<sup>-6</sup> Pa 左右, 生长过程中生长室真空度在 1.33 × 10<sup>-2</sup> ~ 1.33 × 10<sup>-4</sup> Pa 之间 生长速率约为 0.4 μm/h 生长温度为 700~ 900 . 采用两步法生长 GaN 外延膜, 即先低温(约 550 )生长一薄层 GaN 缓冲层, 再升高温度生长 GaN 外延膜 生长条件对 GaN 外延膜的质量影响很大, 有关 GSMBE 生长条件对 GaN 外延膜性质的影响将另行发表

用 Van der Pauw 法对所生长的 GSMBE GaN 样品的电学性质进行了室温和变温(80 ~ 550K)Hall 测量 用高纯金属 In 制备欧姆接触电极, 磁场强度的大小为 0.2T, 流过样品的电流约为 10<sup>-3</sup>A.

### 3 实验结果

图 1 给出了我们用 GSMBE 方法生长的一些 GaN 样品的室温 Hall 测量结果, 其中实心方框为我们样品的测试结果, 空心点为文献[11~ 13]中给出的用同类方法生长的 GaN 样品的 Hall 测量结果 由图 1 可以看出, 目前我们用 GSMBE 方法所生长的 GaN 样品(厚度约为 1.0 μm)的 Hall 迁移率已高达 120 cm<sup>2</sup>/(V · s), 相应的室温背景电子浓度低达 9.1 × 10<sup>17</sup> cm<sup>-3</sup>.

图 2、图 3、图 4 给出了三个样品 A、B、C 的变温 Hall 测量结果, 这三个样品的厚度均约为 1.0 μm. 其中图 2 给出了三个样品的电子浓度随温度的变化关系, 图 3 及图 4 分别给出了三个样品的电阻率及 Hall 迁移率随温度的变化关系 三个样品的生长条件及室温 Hall 测量结果如表 1 所示

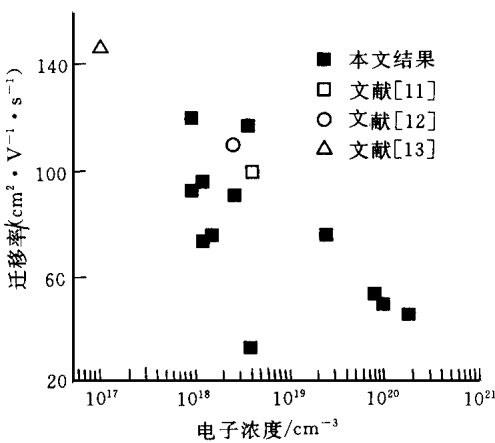


图 1 一些 GaN 外延膜的室温迁移率随背景电子浓度的变化

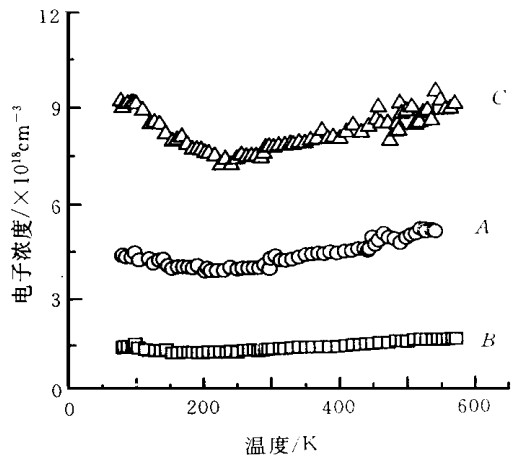


图 2 GaN 外延膜的背景电子浓度随温度的变化

由图 2 可以看出,当温度从 80K 开始升高时,样品中的背景电子浓度先下降,达到某一极小值后,然后开始上升.由图 3 可以看出,样品的电阻率先是随着温度的升高而下降,然后再随着温度的升高而缓慢上升.由图 4 可以看出,当温度从 80K 开始升高时,三个样品的迁移率均随着温度的升高而升高,达到某一极大值后,又随着温度的升高而下降.

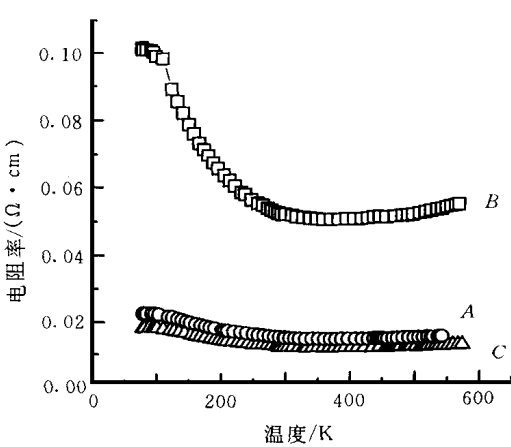


图 3 GaN 外延膜的电阻率随温度的变化

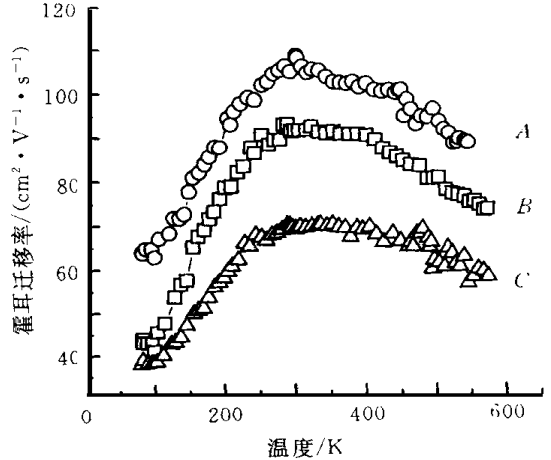


图 4 GaN 外延膜的 Hall 迁移率随温度的变化

表 1 三个样品 A、B、C 的生长条件及室温 Hall 测量结果

样品	生长温度/ K	$\text{NH}_3/(\text{ml} \cdot \text{s}^{-1})$	迁移率/ $(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	电子浓度/ $\text{cm}^{-3}$	电阻率/ $(\Omega \cdot \text{cm})$
A	835	100	108	$3.925 \times 10^{18}$	$1.467 \times 10^{-2}$
B	804	100	92	$1.328 \times 10^{18}$	$5.097 \times 10^{-2}$
C	804	50	70	$7.462 \times 10^{18}$	$1.189 \times 10^{-2}$

## 4 讨论

由图 1 可以看出,总体上,随着背景电子浓度的增加,样品的 Hall 迁移率呈下降趋势,这与理论计算结果相一致<sup>[10]</sup>.但是,在相同的背景电子浓度下,样品的实验 Hall 值比理论值<sup>[10]</sup>低很多,这与其他研究者所得到的结果相一致<sup>[10]</sup>.样品的迁移率是温度、电场强度、掺杂浓度及材料质量的函数.材料质量主要取决于衬底材料及生长条件.一般六方 GaN 材料生长在晶向为 [0001] 的  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  衬底上,由于在生长平面内的晶格失配高达 13.8%<sup>[11]</sup>,热膨胀系数失配高达 25%<sup>[11]</sup>,因此,在生长过程中容易在外延层中引进晶体缺陷和热应力,这些均会使材料的迁移率下降.因此,通过提高 GaN 外延膜的质量,减少晶体缺陷,可使 GaN 外延膜的迁移率得到提高,并最终接近或达到其理论计算值.

由图 2 可以看出,由 Van der Pauw 法测得的三个样品的背景电子浓度均首先随着温度的升高而下降,达到某一极值后,再开始上升.在低温下样品 C 的背景电子浓度随温度的升高而下降的现象尤为明显.在低温下半导体材料的电子浓度随着温度的升高而下降的现象不是一个普遍的现象.早期人们在研究半导体材料 Ge 的电学性质时曾观察到这种现象<sup>[14]</sup>,对用 CVD 方法生长的 GaN 外延膜,也观察到了类似的行为<sup>[8]</sup>.根据掺杂半导体材料的导带自由电子导电理论,在温度较低时,随着温度的升高,载流子浓度应该升高,因此用这一理论

不能解释所观察到的这一现象。但是,如果考虑到低温时的杂质带导电,即可定性地解释图 2 所示的实验现象。由于自掺杂效应,非有意掺杂的 GaN 外延膜通常具有较高的背景电子浓度,在温度较低时,大部分电子分布在施主中心上。由于施主中心浓度较高,施主中心上的电子波函数将有一定程度的交迭,因此,在电场的作用下,施主中心上的电子将会对电导有一定的贡献。

设 GaN 外延膜中的施主中心浓度为  $N_d$ ,起补偿作用的深受主中心浓度为  $N_a$ ,导带自由电子浓度以及其相应的迁移率分别为  $n_c$  和  $\mu_c$ ,施主中心上参与导电的电子浓度及其迁移率分别为  $n_d$  和  $\mu_d$ 。考虑到导带自由电子导电和施主中心导电, Hall 系数  $R_H$  由下式给出<sup>[14, 15]</sup>:

$$R_H = \frac{n_c \mu_c^2 + (N_0 - n_c) \mu_d^2}{q [n_c \mu_c + (N_0 - n_c) \mu_d]^2} \quad (1)$$

$$N_0 = n_c + n_d = N_d - N_a \quad (2)$$

测得的电阻率由下式给出:

$$\rho = \frac{1}{\sigma} = \frac{1}{q [n_c \mu_c + (N_0 - n_c) \mu_d]} \quad (3)$$

如令  $b = \mu_d / \mu_c$ , 则有

$$qR_H = \frac{(1 - b^2)n_c + N_0 b^2}{[(1 - b)n_c + N_0 b]^2} \quad (4)$$

$$\rho = \frac{1}{q \mu_c [(1 - b)n_c + N_0 b]} \quad (5)$$

$$n = \frac{\mathcal{Y}_H}{qR_H} = \frac{[(1 - b)n_c + N_0 b]^2}{(1 - b^2)n_c + N_0 b^2} \quad (6)$$

其中  $n$  为用 Hall 效应测得的电子浓度;  $q$  为电子电量;  $\mathcal{Y}_H$  为 Hall 散射因子。如果  $b$  随温度变化得很慢,由(6)易得到:

- (1) 当  $n_c < N_0 b / (1 + b)$  时,测到的  $n$  将随着温度的升高而减少;
- (2) 当  $n_c = N_0 b / (1 + b)$  时,测到的  $n$  将达到最小值,最小值为

$$n = \frac{4N_0 b \mathcal{Y}_H}{(1 + b)^2} \quad (7)$$

- (3) 当  $n_c > N_0 b / (1 + b)$  时,测到的  $n$  将随着温度的升高而增加

这就定性地解释了图 2 所给出的 GaN 样品的电子浓度随温度的升高而变化的现象。可见,在低温时测到的电子浓度随温度的升高而下降主要是由于在低温时 GaN 外延膜的导电以施主带导电为主,导带自由电子导电为辅;同时也说明了 GaN 外延膜中有高浓度的施主中心,这与非有意掺杂 GaN 外延膜通常具有很高的背景电子浓度相一致。高浓度的施主中心可能就是氮空位<sup>[16]</sup>。

由图 2 可以看出,对样品 A 和样品 B,背景载流子浓度的最小值出现在约 150K 处,说明当温度低于 150K 时,导电以施主中心上的电子导电为主;当温度大于 150K 时,导电则以导带自由电子导电为主。对样品 C,极值发生在约 226K 处,说明对样品 C,当温度低于 226K 时,导电以施主中心上的电子导电为主,当温度高于 226K 时,导电以导带自由电子导电为主。与样品 A 和样品 B 相比,样品 C 的背景电子浓度随温度的变化较快,取得极值的温度也较高,这说明样品 C 中的施主带导电较为明显,且可以持续到较高的温度,这可能与样品 C

中有较多的施主中心有关

图 3 给出了 A、B、C 三个样品的电阻率随温度的变化曲线。三个样品的电阻率先随着温度的升高而下降, 达到某一极小值后, 又随着温度的升高而升高, 这一变化行为与前面给出的公式(5)预测的情况相一致。

图 4 给出了三个样品的 Hall 迁移率随温度的变化曲线, 由图可以看出, 三个样品的迁移率先是随着温度的升高而升高, 达到某一最大值后, 再随着温度的升高而下降, 这一变化行为与一般半导体材料的迁移率随温度的变化行为类似。三个样品均是在室温附近达到迁移率的最大值, 样品 A、B、C 达到最大值的温度分别约为 298、319、333K。在与极值相对应的温度以下, 以电离施主和受主中心散射为主, 因此随着温度的升高, GaN 外延膜的迁移率随着增大; 在极值对应的温度以上, 以晶格振动散射为主, 因此, 随着温度的升高, GaN 外延膜的迁移率下降。另外由图 4 可知, 在室温附近, 与样品 A 相比, 样品 B、C 的迁移率随温度变化较慢, 与最大值对应的温度也较高。这说明与样品 A 相比, 样品 B、C 中杂质电离散射的作用较强, 这可能是由于样品 B、C 中具有更多的散射中心的缘故。

## 5 结论

我们用国产 GSMBE 系统, 用  $\text{NH}_3$  作氮源, 在取向为 C 轴的  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  衬底上生长出了质量较好的非有意掺杂 GaN 外延膜, 非有意掺杂 GaN 外延膜的室温迁移率高达  $120\text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$ , 相应的室温背景电子浓度低至  $9.1 \times 10^{17}\text{cm}^{-3}$ 。用 Van der Pauw 法对一些非有意掺杂 GaN 外延膜进行了变温 Hall 测试, 温度变化范围为 80~ 550K。结果表明, 在温度较低时, 以施主中心上的电子导电为主; 当温度较高时, 以导带自由电子导电为主。

**致谢** 第一作者感谢中科院西安光机所侯洵院士的关怀和鼓励。感谢中科院半导体所王万年副研究员对样品进行了霍尔测试。

## 参 考 文 献

- [1] H. Morkoc, S. Strite, G. B. Gao *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 1994, **76**(3): 1363
- [2] S. Nakamura and J. J. Tietjen, *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **74**: 1687.
- [3] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(11): 1417.
- [4] J. M. Van Hove, R. Hickman, J. J. Klaassen *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(17): 2282
- [5] M. A. Sif Khan, Q. Chen, J. M. Yang *et al.*, *IEEE Electron Device Lett.*, 1996, **17**(7): 325.
- [6] 王晓亮, 孙殿照, 等, *高技术通讯*, 1997, **7**(3): 1.
- [7] 王晓亮, 孙殿照, 孔梅影, 等, *半导体学报*, 1997, **18**(12): 935.
- [8] M. Ilegems and H. C. Montgomery, *J. Phys. Chem. Solids*, 1973, **34**: 885.
- [9] T. Tanaka and A. Watanabe *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **65**(5): 593.
- [10] Gyu-Chul Yi and Bruce W. Wessels, *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**(20): 3028.
- [11] Z. Yang, L. K. Li and W. T. Wang, *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **67**: 1686.
- [12] R. C. Powell, N. -E. Lee, and J. E. Greene, *Appl. Phys. Lett.*, 1992, **60**(20): 2505.
- [13] S. H. Cho, H. Sakamoto, K. Akimoto *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1995, **34**: L236.
- [14] N. F. Mott and W. D. Twose, *Advances in Physics*, 1961, **10**: 107.

- [15] C. S. Hung and J. R. Gliessman, Phys Rev., 1954, **96**: 1226  
[16] P. Boguslawski, E. L. Briggs and J. Bernholc, Phys Rev. B, 1995, **51**(23): 17255

## Electron Transport Properties of GaN Grown by GSMBE

Wang Xiaoliang, Sun Dianzhao, Kong Meiyang, Zhang Jianping,  
Zeng Yiping, Li Jimin, Lin Lanying

(Institute of Semiconductors, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083)

Received 22 October 1997, revised manuscript received 16 March 1998

**Abstract** Single crystalline unintentionally doped GaN films are grown on (0001)  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> substrates by GSMBE method using ammonia as nitrogen source. The highest mobility of these films was about  $120 \text{ cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$  with a corresponding autodoping electron concentration of about  $9.1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . The electron transport properties of these films are investigated by analyzing the results of variable Hall measurements. The Hall results show that the dominant electron transport occurs in the autodoping centers when temperature is low and that conduction through free electrons in the conduction band becomes dominant when temperature becomes higher.

**PACC:** 7280E, 8115G, 7220; **EEACC:** 2520D, 0510D