

蓝宝石衬底上单晶 InN 外延膜的 RF-MBE 生长*

肖红领 王晓亮 张南红 王军喜 刘宏新 韩 勤 曾一平 李晋闽

(中国科学院半导体研究所, 北京 100083)

摘要: 采用低温氮化铟(InN)缓冲层,利用射频等离子体辅助分子束外延(RF-MBE)方法在蓝宝石衬底上获得了晶体质量较好的单晶 InN 外延膜.用光学显微镜观察所外延的 InN 单晶薄膜,表面无钢滴. InN(0002)双晶 X 射线衍射摇摆曲线的半高宽为 14° ;用原子力显微镜测得的表面平均粗糙度为 3.3nm;Hall 测量表明 InN 外延膜的室温背景电子浓度为 $3.3 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$,相应的电子迁移率为 $262 \text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$.

关键词: RF-MBE; 氮化铟; DCXRD; AFM

PACC: 7280C; 7360F; 3220R

中图分类号: TN304.054

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2005)06-1169-04

1 引言

在 III-V 族氮化物中,氮化铟(InN)正受到人们越来越多的关注.与氮化镓(GaN)、氮化铝(AlN)相比,InN 具有最小的有效质量,在理论上具有最高的载流子迁移率^[1],所以它在高速微电子器件方面有着广阔的应用前景.同时在 III-V 族氮化物中,它还具有最小的直接带隙.最近有文献报道,InN 的禁带宽度应该在 0.8eV 左右^[2-6],而不是原先大家所接受的 1.9eV^[7],这样就使得 III-V 族氮化物的发光波长可以从 AlN 的紫外区(6.2eV)延伸到 InN 的红外区(0.8eV),成为制备发光器件的合适材料.但 InN 的体单晶制备非常困难,到目前为止还没有关于其体单晶制备的报道.同时由于 InN 的分解温度低,而且缺少与之相匹配的异质衬底材料,这使得 InN 单晶外延薄膜的制备也变得异常困难.目前人们对 InN 的研究还处于起始阶段,国内还没有 InN 生长方面的相关报道.在国外,Matsuo 等人用 MOVPE 方法在蓝宝石衬底上首先成功地得到了单晶的 InN 外延膜.但 InN 的单晶质量距器件制作的要求还有很大距离,晶体质量还需要进一步改善和提高.

我们通过采用低温 InN 缓冲层技术,用 RF-MBE 方法在国内首次生长出单晶 InN 外延膜,并用双晶 X 射线摇摆曲线(DCXRD)、喇曼光谱、原子力显微镜(AFM)以及 Hall 测量对其晶体质量进行了表征.

2 实验

外延生长是在国产分子束外延设备(RF-MBE)上进行的,N 源由高纯氮气经射频等离子体炉产生,高纯铟作为铟源.衬底为 38mm 的(0001)面蓝宝石衬底,衬底清洗方法参见文献[8,9].生长过程分为以下三个步骤:生长前首先把衬底放入生长室中,在 NH_3 气氛中氮化 10~30min,氮化时的温度和 NH_3 流量分别为 700,175sccm;氮化后再在 350 左右生长 5min 的低温 InN 缓冲层;接着升高温度到 550 生长约 90min 的 InN 外延层,其结构如图 1 所示,最后的生长层厚度约为 600nm.生长过程中氮气的流量为 1.6sccm,等离子体输入功率为 400W,反射功率为 15W,铟炉温度为 712.整个生长过程由反射式高能电子衍射系统(RHEED)进行原位观测.

*国家重点基础研究发展规划(批准号:2002CB311903,G20000683),国家高技术研究发展规划(批准号:2003AA311060)和国家自然科学基金(批准号:60136020,60137020)资助项目

肖红领 男,1976 年出生,博士研究生,目前主要从事 III-V 族氮化物半导体材料的生长研究. Email:hlxiao@red.semi.ac.cn

王晓亮 男,1963 年出生,博士,研究员,博士生导师,目前主要从事氮化物材料、物理及器件研究.

2004-07-26 收到,2004-09-02 定稿

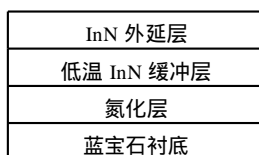


图 1 InN 外延膜生长顺序图

Fig. 1 Growth sequence chart of the InN films

样品的结构性质用双晶 X 射线衍射和喇曼光谱进行分析,表面形貌用光学显微镜及原子力显微镜观察,电学性质用 Van de Pauw-Hall 测量表征,使用铟作为欧姆电极.

3 结果与讨论

在生长过程中利用 RHEED 进行观察,发现蓝宝石衬底在氮化后的 RHEED 像有很明显的 AlN RHEED 条纹(图 2(a)),表明在氮化过程中蓝宝石衬底的表面形成了一薄层 AlN;而在低温 InN 缓冲层开始生长后衍射图样变成了带点状的条纹(图 2(b)),并且带点状的 RHEED 条纹一直持续到外延 InN 生长的结束,表明外延层出现三维岛状生长.图 3 所示的 AFM 测量结果也证实了这一点,原子力显微镜扫描图显示生长表面由三维岛状晶粒构成,表面 $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ 范围内原子力显微镜扫描的均方根粗糙度(RMS)为 3.3nm.

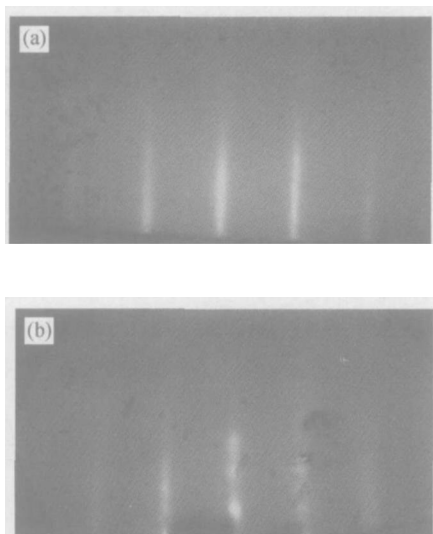


图 2 蓝宝石衬底氮化后(a)和 InN 开始生长后(b)的 RHEED 图样

Fig. 2 RHEED patterns observed during the growth (a) After nitridation of the sapphire substrate; (b) After the deposit of InN film

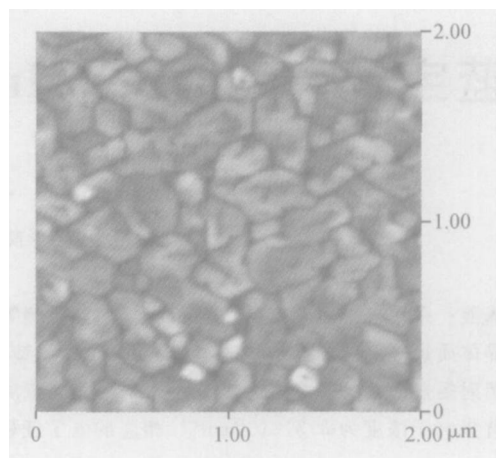


图 3 InN 表面 AFM 形貌图

Fig. 3 Surface AFM image of the InN film

图 4 为 InN 样品的 X 射线衍射 -2 扫描谱和 InN(0002)的 X 射线衍射峰摇摆曲线图谱.由 -2 衍射图可以看到 InN(0002)和 InN(0004)衍射峰,说明 InN 外延层晶体取向性很好.晶体 InN(0002)衍射峰的衍射角 2θ 为 31.32° ,由此得到 InN 晶格常数 c 为 0.574nm ,与文献报道值很好地吻合^[7,10~13];另一个衍射峰为蓝宝石衬底的(0006)衍射峰.值得注意的是并没有观察到单质铟的衍射峰,说明在生长过程中很好地抑制了铟在表面聚集成滴的现象.这个结果显示我们得到了表面无铟滴的单晶六方纤锌矿结构的 InN 薄膜.图 4 的插图给出了该样品的 InN(0002)双晶 X 射线的摇摆曲线,由该图可知 InN(0002)的 FWHM 仅为 $14'$,表明我们在蓝宝石衬底上获得了具有较好结晶质量的 InN 外延膜.

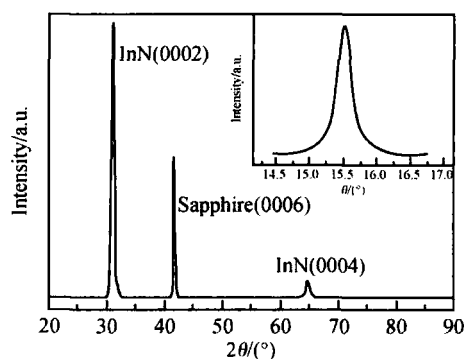
图 4 InN 样品 X 射线 -2 扫描谱Fig. 4 -2 XRD profiles of the InN film

图 5 为在背散射配置下,选用 514.5nm 的氩离子激光器作为光源时 InN 外延膜的室温喇曼光谱图.从图中可以分别看到六方纤锌矿结构 InN 的 A_1

(LO) (590cm^{-1}), E_2 (high) (491cm^{-1}) 和 E_2 (low) (88cm^{-1}) 峰. 另外一个为蓝宝石衬底峰, 在图中标为 S. 在六方纤锌矿结构的 InN 喇曼光谱中, E_2 (high) 的半高宽被认为能够很好地反映晶体的质量, 在我们的实验结果中, E_2 (high) 的半高宽只有 6.9cm^{-1} , 这也可以与文献[14]所报道的 InN 结果相比较.

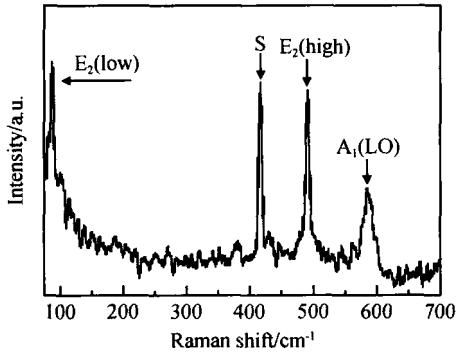


图 5 蓝宝石衬底上 InN 样品室温喇曼光谱

Fig. 5 Typical Raman spectrum of the InN film grown on the sapphire substrate

我们还对所获得的 InN 单晶外延材料进行了电学性能测量, 结果得到 InN 样品的室温电子迁移率为 $262\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, 其背景电子浓度为 $3.3 \times 10^{18}\text{cm}^{-3}$.

4 结论

用 RF-MBE 方法在蓝宝石衬底上生长得到了 InN 单晶外延薄膜. X 射线衍射谱、喇曼光谱表明所获得的 InN 外延层具有较好的晶体质量, InN (0002) 峰双晶 X 射线摇摆曲线的半高宽为 14° ; 喇曼测试得到的散射谱 E_2 (high) 的半高宽为 6.9cm^{-1} ; Hall 测试得到的 InN 外延膜的室温电子迁移率为 $262\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$.

参考文献

- [1] O'Leary S K, Foutz B E, Shur M S, et al. Electron transport in wurtzite indium nitride. *J Appl Phys*, 1998, 83: 826
- [2] Davydov V Y, Klochikhin A A, Seisyan R P, et al. Absorption and emission of hexagonal InN evidence of narrow fundamental band gap. *Phys Status Solidi B*, 2002, 229(3): R1
- [3] Davydov V Y, Klochikhin A A, Emtsev V V, et al. Band gap of InN and In-rich $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ alloys ($0.36 < x < 1$). *Phys Status Solidi B*, 2002, 230(2): R4
- [4] Wu J, Walukiewicz W, Yu K M, et al. Unusual properties of the fundamental band gap of InN. *Appl Phys Lett*, 2002, 80: 3967
- [5] Wu J, Walukiewicz W, Yu K M, et al. Small band gap bowing in $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$ alloys. *Appl Phys Lett*, 2002, 80: 4741
- [6] Matsuoka T, Okamoto H, Nakao M, et al. Optical bandgap energy of wurtzite InN. *Appl Phys Lett*, 2002, 81: 1246
- [7] Tansley T L, Foley C P. Optical band gap of indium nitride. *J Appl Phys*, 1986, 59: 3241
- [8] Wang J X, Sun D Z, Wang X L, et al. High-quality GaN grown by gas-source MBE. *J Crystal Growth*, 2002, 227: 386
- [9] Wang Xiaoliang, Sun Dianzhao, Kong Meiyang, et al. High quality GaN grown by GSMBE. *Chinese Journal of Semiconductors*, 1997, 18(12): 935 (in Chinese) [王晓亮, 孙殿照, 孔梅影, 等. 高质量 GaN 材料的 GSMBE 生长. *半导体学报*, 1997, 18(12): 935]
- [10] Strite S, Chandrasekhar D, Smith DJ, et al. Structural properties of InN films grown on GaAs substrates: observation of the zincblende polytype. *J Cryst Growth*, 1993, 127: 204
- [11] Gesseke G. Theory of observed cyclotron-resonance-linewidth behavior. *Semicond Semimet*, 1966, 2: 63
- [12] Osamura K, Naka S, Murakami Y. Preparation and optical properties of $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ thin films. *J Appl Phys*, 1975, 46: 3432
- [13] Wakahara A, Yoshida A. Heteroepitaxial growth of InN by microwave-excited metalorganic vapor phase epitaxy. *Appl Phys Lett*, 1989, 54: 2984
- [14] Davydov V Y, Emtsev V V, Goncharuk I N, et al. Experimental and theoretical studies of phonons in hexagonal InN. *Appl Phys Lett*, 1999, 75: 3297

RF-MBE Growth of an InN Epilayer on Sapphire Substrate *

Xiao Hongling, Wang Xiaoliang, Zhang Nanhong, Wang Junxi, Liu Hongxin,
Han Qin, Zeng Yiping, and Li Jinmin

(*Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

Abstract: InN films with low-temperature InN buffer layer are successfully grown on sapphire substrates by radio-frequency plasma-excited molecular beam epitaxy. No indium droplets on the surface of the grown InN films. Atomic-force-microscopy, reflection high-energy electron diffraction, double-crystal X-ray diffraction (DCXRD), and Raman spectra are used to characterize the InN films. The results show that the InN films have good crystallinity, with full width at half maximum of InN (0002) DCXRD peak of 14° . The room temperature Hall mobility of the films is $262\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$.

Key words: RF-MBE; InN; DCXRD; AFM

PACC: 7280C; 7360F; 3220R

Article ID: 0253-4177(2005)06-1169-04

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Nos. G20000683, 2002CB311903), the National High Technology R & D Program of China (No. 2003AA311060), and the National Natural Science Foundation of China (Nos. 60136020, 60137020)

Xiao Hongling male, was born in 1976, PhD candidate. He is majoring in crystal growths of GaN nitride. Email: hlxiao@red.semi.ac.cn

Wang Xiaoliang male, PhD, professor, advisor of PhD candidates. His research interests focus on nitride materials, physics, and related devices.

Received 26 July 2004, revised manuscript received 2 September 2004

©2005 Chinese Institute of Electronics