

生长温度对 RF-MBE 外延 InAlGa_N 的影响*

王保柱[†] 王晓亮 王晓燕 王新华 郭伦春 肖红领 王翠梅 冉军学
王军喜 刘宏新 李晋闽

(中国科学院半导体研究所, 北京 100083)

摘要: 利用射频等离子体辅助分子束外延(RF-MBE)技术在蓝宝石衬底上外延了铟铝镓氮(InAlGa_N)薄膜,研究了生长温度对 RF-MBE 外延 InAlGa_N 薄膜的影响. X 射线衍射测量结果表明,不同生长温度下外延生长的 InAlGa_N 薄膜均为单一晶向. 卢瑟福背散射(RBS)测量结果表明,随着生长温度的提高,InAlGa_N 外延层中 In 的组分单调降低,Al 和 Ga 的组分都有所增加. 扫描电镜(SEM)的测试结果表明,在较高温度下(600 和 590℃)生长的 InAlGa_N 存在裂纹,580℃生长的四元合金表面比较平整,在 570℃温度下生长的 InAlGa_N 表面存在很多颗粒状突起.

关键词: RF-MBE; 铟铝镓氮; XRD; RBS; SEM

PACC: 7280E; 7360F; 3220R

中图分类号: TN304.054

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)S0-0197-03

1 引言

GaN 基紫外发光二极管(UV-LED)在白光照明、生物和化学检测等领域有着重要的潜在应用,因而近年来 GaN 基 UV-LED 的材料生长和器件结构研究引起人们的广泛关注^[1~3]. 由于 AlGa_N 晶体质量较差,制备高性能的 GaN/AlGa_N 基 UV-LED 很困难. InAlGa_N 四元合金由于 In 分凝效应的存在对于晶体质量不是很敏感,因而广泛应用于紫外特别是发射波长小于 365nm 的紫外 LED 和激光二极管(LD)中^[4]. 此外,InAlGa_N 四元合金的晶格常数和带隙可以独立调节,通过调节 Al 和 In 的组分,不但可以获得不同的带隙,还可以得到与 InGa_N 或 GaN 晶格相匹配的异质结或量子阱结构,这样就降低或者消除了因晶格失配导致的压电效应,从而具有更高的发光效率和更稳定的发光波长. 生长高质量的 InAlGa_N 面临的一个主要问题是选择合适的生长温度,因 AlN, GaN 和 InN 的键长和分解温度差异大,生长时原子在表面的迁移速率和解吸附温度差异也比较大. InAlGa_N 四元材料和相关的 LED, LD 结构大都采用 MOCVD 生长,2000 年 Lima^[5] 等人首次采用 MBE 技术生长了 InAlGa_N 四元材料,为 InAlGa_N 材料的生长和研究开辟了新的途径.

本文利用 RF-MBE 技术在蓝宝石衬底上外延了单晶 InAlGa_N 薄膜. 利用 X 射线衍射(XRD), 卢瑟福背散射(RBS)和扫描电镜(SEM)等技术研究了生长温度对 InAlGa_N 四元合金的结构、组分和形貌的影响.

2 实验

InAlGa_N 四元材料的外延生长是在国产 RF-MBE 上进行的,氮源由高纯氮气经射频等离子体炉产生,高纯的铟、铝和镓分别作为铟、铝和镓源,衬底为直径 38mm 的(0001)面蓝宝石. 生长过程分为以下 4 个步骤:生长前首先把衬底放入生长室中,在 NH₃ 气氛中氮化 10~30min,氮化时的温度和 NH₃ 流量分别为 700℃, 175sccm;氮化后在衬底上生长 5nm 左右的高温 AlN(HT-AlN)缓冲层,然后再生长 500nm 左右的 GaN 层,具体的生长工艺见文献[6],最后在 GaN 层的上面生长 100nm 左右的 InAlGa_N,具体结构如图 1 所示. InAlGa_N 四元材料生长过程中氮气的流量为 1.6sccm,等离子体输入功率为 400W, 铟炉、铝炉和镓炉温度分别为 585, 1030 和 850℃,衬底温度分别为 570, 580, 590 和 600℃.

RBS 测量采用能量为 2.0MeV 的⁴He⁺离子束,探测角为 165°,探测器的分辨率为 18keV. 采用

* 中国科学院知识创新工程重要方向(批准号:KGCX2-SW-107-1),国家自然科学基金(批准号:60606002),国家重点基础研究发展规划(批准号:2002CB311903,2006CB604905,513270605)资助项目

[†] 通信作者. Email: wangbz@semi.ac.cn

2006-11-23 收到

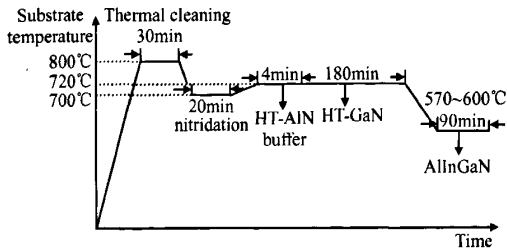


图 1 InAlGaN 外延膜的生长示意图

Fig. 1 Growth sequence chart of the InAlGaN film

日本理学(Rigaku)SLX-1AL 型 X 射线衍射仪对样品进行了三晶 X 射线衍射摇摆曲线的测量. 采用 Cambridge S-360 型扫描电镜观察样品表面.

3 结果与讨论

图 2 给出了 InAlGaN/GaN 结构的 $\omega/2\theta$ 扫描谱. 在 $\omega/2\theta$ 扫描中只有 GaN(0002)和 InAlGaN 的(0002)的衍射峰, 说明 InAlGaN 外延膜获得了单晶取向. 随着生长温度的降低, InAlGaN(0002)的衍射峰逐渐向左移动, 说明外延层中的 In 组分随着生长温度的降低而逐渐增加. 其中 580°C 生长的 InAlGaN 在 c 轴方向晶格和 GaN 比较匹配, InAlGaN(0002)的衍射峰几乎和 GaN 的(0002)衍射峰重合到一起. 当生长温度降低到 570°C 时, 外延层由富 Al 的 InAlGaN 逐渐过渡到富 In 的 InAlGaN.

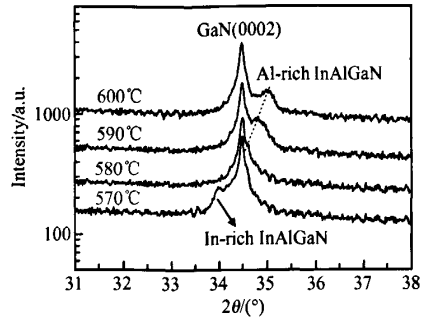


图 2 InAlGaN/GaN 结构的 X 射线衍射谱

Fig. 2 XRD spectra of InAlGaN/GaN structure

表 1 RBS 测量得到的 InAlGaN 外延层的组分

Table 1 Contents of InAlGaN acquired by RBS

Growth temperature/°C	In/%	Ga/%	Al/%
600	1.2	58.4	40.4
590	4.9	56.5	38.6
580	9.1	54.3	36.6
570	21.0	47.4	31.6

为了确定 InAlGaN 外延膜中各元素的组分, 我们对样品进行了卢瑟福背散射谱的测量. 表 1 给出了通过 RBS 测量得到的 InAlGaN 四元合金中 In, Al 和 Ga 的组分百分比. 随着生长温度的降低, InAlGaN 四元合金中 In 的组分迅速升高, Al 和 Ga 的组分都有所降低. 这是因为 MBE 生长 InAlGaN 是一个 III 金属过量的过程, MBE 生长 InAlGaN 中 In, Al, Ga 的组分满足如下的公式^[7]:

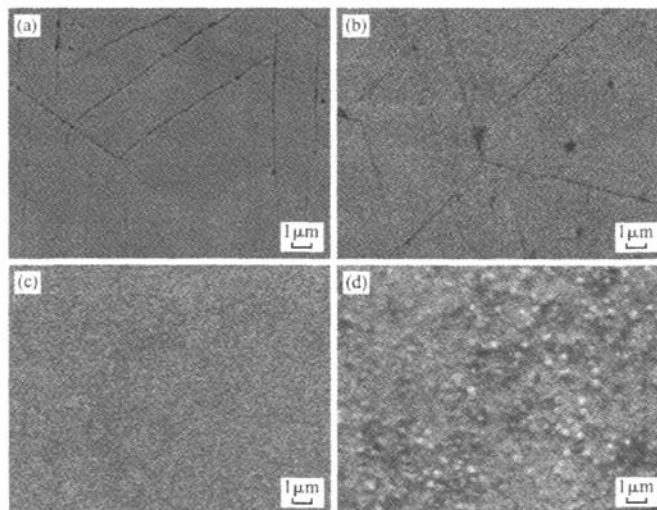


图 3 不同生长温度下生长的 InAlGaN 的扫描电镜图片 (a)600°C; (b)590°C; (c)580°C; (d)570°C

Fig. 3 SEM images of InAlGaN grown at different temperatures (a)600°C; (b)590°C; (c)580°C; (d)570°C

$$\Phi_{\text{In}} \leq \frac{\Phi_{\text{N}} - (\Phi_{\text{Ga}} + \Phi_{\text{Al}})}{\Phi_{\text{N}}} \quad (1)$$

其中 $\Phi_{\text{In}}, \Phi_{\text{Al}}, \Phi_{\text{Ga}}$ 和 Φ_{N} 分别为 In, Al, Ga 和 N 的流速。

图 3 给出了 InAlGaN 外延层的 SEM 照片。在较高的温度下(600℃和 590℃)生长的 InAlGaN 存在裂纹,主要原因是 InAlGaN 中的 Al 组分很高,In 组分较低,远离和 GaN 晶格匹配的 Al/In 比(4.7)^[8],合金中存在着比较大的张应力,造成合金表面出现裂纹。在 580℃下生长的 InAlGaN 的 In 和 Al 的组分分别为 9.1% 和 31.6%,较接近 4.7,所以样品表面比较光滑没有出现裂纹。在 570℃生长的 InAlGaN 由于生长温度较低,In 组分很高,表面存在很多颗粒状突起。

4 结论

利用 RF-MBE 技术在蓝宝石衬底上外延了单晶 InAlGaN 薄膜。研究表明,随着生长温度的提高 InAlGaN 外延层中 In 的组分单调降低,Al 和 Ga 的组分都有所提高。在较高的温度下(600℃和 590℃)生长的 InAlGaN 存在裂纹,580℃生长的材料比较平整,在 570℃温度下生长的 InAlGaN 表面存在很多颗粒状突起。

参考文献

- [1] Hirayama H. Quaternary InAlGaN-based high-efficiency ultraviolet light-emitting diodes. *J Appl Phys*, 2005, 97: 91101
- [2] Liu J P, Jin R Q, Zhang J C, et al. Indium mole fraction effect on the structural and optical properties of quaternary AlInGaN. *J Phys D: Appl Phys*, 2004, 37: 2060
- [3] Liu Y, Egkashi T, Ishikawa H, et al. High-temperature-grown quaternary AlInGaN epilayers and multiple quantum wells for ultraviolet. *J Cryst Growth*, 2004, 264: 159
- [4] Chen C H, Huang L Y, Chen Y F, et al. Mechanism of enhanced luminescence in $\text{In}_x\text{Al}_y\text{Ga}_{1-x-y}\text{N}$ quaternary alloys. *Appl Phys Lett*, 2002, 80: 1397
- [5] Lima A P, Miskys C R, Karrer U, et al. Growth of quaternary AlInGaN/GaN heterostructures by plasma-induced molecular beam epitaxy. *J Cryst Growth*, 2000, 220: 341
- [6] Hu Guoxin, Wang Xiaoliang, Sun Dianzhao, et al. Two-dimensional electron gas materials with AlN/GaN superlattice structure grown by radio-frequency plasma-assisted molecular beam epitaxy. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2003, 24(6): 602 (in Chinese) [胡国新, 王晓亮, 孙殿照, 等. RF-MBE 生长 AlN/GaN 超晶格结构二维电子气材料. *半导体学报*, 2003, 24(6): 602]
- [7] Monroy E, Gogneau N, Jalabert D, et al. In incorporation during the growth of quaternary III-nitride compounds by plasma-assisted molecular beam epitaxy. *Appl Phys Lett*, 2003, 82: 2242
- [8] Oder T N, Li J, Lin J Y, et al. Photoresponsivity of ultraviolet detectors based on $\text{In}_x\text{Al}_y\text{Ga}_{1-x-y}\text{N}$ quaternary alloys. *Appl Phys Lett*, 2000, 77: 791

Effects of Growth Temperature on the InAlGaN Epilayer by RF-MBE*

Wang Baozhu[†], Wang Xiaoliang, Wang Xiaoyan, Wang Xinhua, Guo Lunchun, Xiao Hongling, Wang Cuimei, Ran Junxue, Wang Junxi, Liu Hongxin, and Li Jinmin

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

Abstract: Single crystalline InAlGaN films are grown on sapphire substrate by radio-frequency plasma-excited molecular beam epitaxy (RF-MBE). With the increase of growth temperature, the In content decreases, while the Al and Ga content increase. The InAlGaN grown at high temperature (600℃ and 590℃) has some cracks on the surface. The surface of InAlGaN grown at 580℃ is very smoothing. There were some hillocks on the surface of InAlGaN film grown at 570℃.

Key words: RF-MBE; InAlGaN; XRD; RBS; SEM

PACC: 7280E; 7360F; 3220R

Article ID: 0253-4177(2007)S0-0197-03

* Project Supported by the Knowledge Innovation Project of Chinese Academy of Sciences (No. KGX2-SW-107-1), the National Natural Science Foundation of China (No. 60606002), and the State Key Development for Basic Research of China (Nos. 2002CB311903, 2006CB604905, 513270605)

[†] Corresponding author. Email: wangbz@semi.ac.cn

Received 23 November 2006