

竖直式 HVPE 反应系统的理论模拟与 GaN 厚膜生长

马平[†] 段 垚 魏同波 段瑞飞 王军喜 曾一平 李晋闽

(中国科学院半导体研究所, 北京 100083)

摘要: 根据流体动力学模型, 研究了反应气体在反应室内的浓度分布, 以及反应室的温场分布. NH_3 浓度在衬底附近分布均匀, 而 GaCl 浓度在衬底中心区域较大, 周边较小. 实验结果表明, 外延层在中心区生长速率为 $260\mu\text{m/h}$, 周边为 $140\mu\text{m/h}$. X 射线摇摆曲线半高宽为 $141''$. O 杂质的引入, 使得样品具有较强的黄光发射.

关键词: 氢化物气相外延; 理论模拟; GaN

PACC: 6855; 7855; 8280

中图分类号: O472

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)S0-0253-04

1 引言

GaN 材料具有宽禁带、高击穿电压、高电子迁移率、化学性质稳定、耐高温、耐腐蚀等特点, 非常适合制作抗辐射、高温、大功率和高密度集成的电子器件以及蓝、绿、紫外光电器件^[1~4]. 氢化物气相外延 (HVPE) 是早期研究 III-V 族氮化物最成功的外延技术, 在 20 世纪 80 年代以前是制备 GaN 材料的主要方法. 该方法具有设备简单、生长速度快等优点, 可以生长均匀大尺寸 GaN 厚膜, 作为进一步生长的衬底. 本文的研究是采用我们自行设计的竖直式 HVPE 反应系统, 以 HCl 和 Ga 反应生成的 GaCl 作 III 族源, NH_3 作为 V 族源, N_2 作载气. 我们利用计算流体动力学模型对反应系统的温度场分布以及 GaCl 和 NH_3 的浓度分布进行模拟, 并根据模拟结果进行优化生长.

2 理论模拟

图 1 所示为我们自行设计研制的竖直式双管 HVPE 反应系统. 该系统是一个三温区石英反应器, 其中衬底所处的生长区位于上方, 衬底朝下; 镓舟所处的反应区在下方, 中间为过渡区. 三温区系统的设计保证了较大范围内存在恒温区, 生长区在上的设计避免了因气体对流对生长造成的影响. 反应区温度为 850°C , 生长区温度为 1050°C , 中间过渡区温度为 1000°C .

本工作采用有限体积法对反应室里的气流动力

学进行了模拟计算. 我们设定 HCl 流量为 0.02slm , 与之混合的氮气为 0.7slm ; 氨气流量为 1.0slm , 与之混合的氮气为 0.5slm , 总的氮气载气流量为 3.0slm . 为了方便计算, 我们假设 HCl 流经 Ga 表面后, 全部转化为 GaCl, GaCl 出口面积为 0.22cm^2 , 与衬底距离为 5.3cm ; NH_3 喷嘴面积为 0.88cm^2 , 与衬底的距离为 12cm . 相关的气体热力学参数见参考文献^[5, 6].

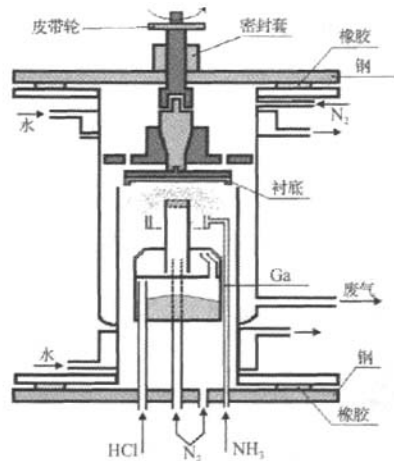


图 1 竖直式 HVPE 反应系统

Fig. 1 Vertical HVPE reaction system

图 2 所示为绝热情况下反应系统的温场分布模拟图. 模拟结果表明反应区和生长区在较大范围内都存在恒温区, 这样保证了反应的完全和生长的均

[†] 通信作者. Email: maping@semi.ac.cn

2006-12-12 收到, 2006-12-28 定稿

匀性.图 3、图 4 分别为反应室中 NH_3 和 GaCl 的浓度分布. 图示表明 NH_3 在衬底附近分布较均匀, 而 GaCl 在衬底周围分布不均匀, 中间浓度相对较大, 周边较小. 由于 GaN 的生长速率主要取决于 HCl , 也就是 GaCl 的流量, 根据模拟结果, 衬底中间的生长速率比周边有所增加.

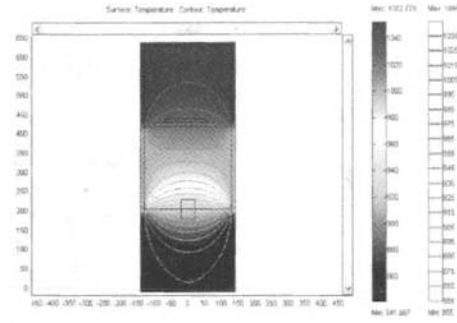


图 2 绝热情况下反应系统的温度场模拟图

Fig. 2 Thermal simulation of reaction system under adiabatic

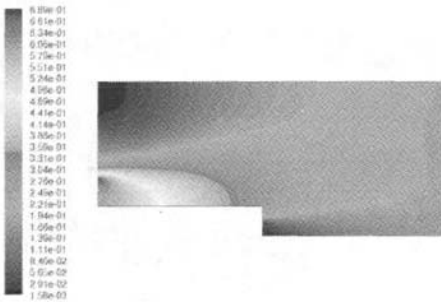


图 3 反应系统中 NH_3 的浓度分布图

Fig. 3 Distribution of NH_3 concentration in reaction system

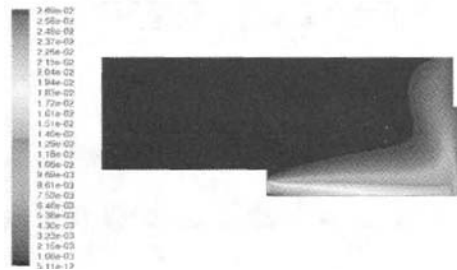


图 4 反应系统中 GaCl 的浓度分布图

Fig. 4 Distribution of GaCl concentration in reaction system

3 实验结果

为了便于 GaN 成核, 提高生长的均匀性, 在 HVPE 生长之前, 我们先用 MOCVD 生长一层 $2\mu\text{m}$ 厚 GaN 作模板. 生长时各路气体流量均采用模拟计算时使用的数据. 在 1050°C 下生长 1h, 图 5 为所得样品的表面和截面形貌. 外延层表面平整、光亮, 可见生长台阶. 但生长速度不均匀, 中心区为 $260\mu\text{m/h}$, 周边为 $140\mu\text{m/h}$, 与我们的模拟结果相一致.

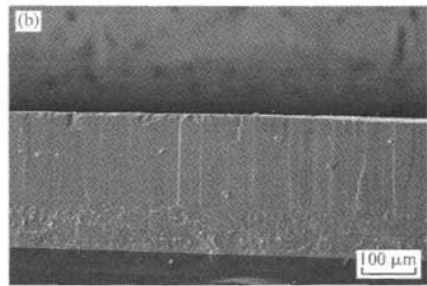
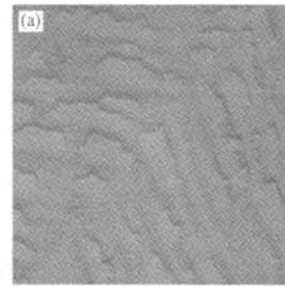


图 5 (a) 样品表面形貌; (b) 样品截面形貌

Fig. 5 (a) Surface morphology of sample; (b) Morphology of cross-section

图 6 为 GaN 样品双晶衍射的摇摆曲线. 测得其半高宽为 $141''$, 说明样品具有很高的晶体质量. 图 7 为该样品的室温光致发光谱, 激发源为 He-Cd 激光器 (325nm). 除了位于 3.4eV 左右的带边发射外, 样品在 2.2eV 左右显示了很强的黄光发射, 这可能与样品中较多的杂质(缺陷)有关. 俄歇电子能谱分析(溅射 6min 后)表明样品中含有一定数量的杂质氧, 如图 8 所示. 外延层中的黄光发射可能与氧杂质有关. 杂质氧在 GaN 中主要占居氮原子位置, 形成 O_N 缺陷^[7], 而在未掺杂的 n- GaN 中, 镓空位 (V_Ga) 的形成能最低^[8], 且 V_Ga 的迁移势垒只有 1.9eV ^[9], 因此 V_Ga 在生长和退火过程中很容易发

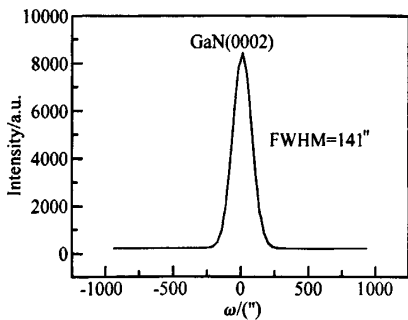


图 6 GaN(0002)向 X 射线摇摆曲线
Fig.6 DCXRD for (0002)GaN

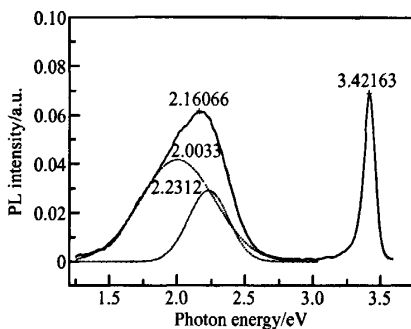


图 7 GaN 薄膜的室温光致发光谱
Fig. 7 PL spectra for GaN at room temperature

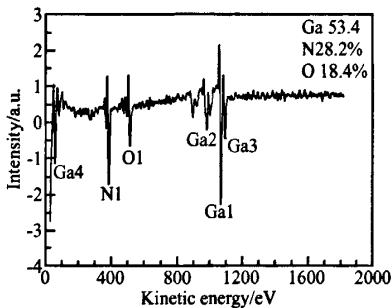


图 8 GaN 样品的俄歇电子能谱
Fig. 8 Auger electron spectrum for GaN

生迁移,与 O_N 结合形成稳定的 $(V_{Ga}O_N)$ 复合缺陷,该缺陷在 GaN 中作为深受主能级,引起黄光发射.

4 结论

利用流体动力学模型,对自行设计的垂直式 HVPE 外延系统的空间配置进行了理论模拟.计算结果表明,反应区和生长区都存在较大范围的恒温区. NH_3 浓度在衬底附近分布较均匀,而 GaCl 在衬底周围分布不均匀.根据模拟结果进行的生长实验表明样品表面平整、光亮,中间区生长速率为 $260\mu m/h$,周边为 $140\mu m/h$, ω 曲线半高宽为 $141''$,说明样品结晶质量很高. O 杂质的介入使得样品黄光发射较强.

参考文献

- [1] Nakamura S, Senoh M, Iwasa N, et al. High-power InGaN single-quantum-well-structure blue and violet light-emitting diodes. Appl Phys Lett, 1995, 67:1868
- [2] Xu G Y, Salvador A, Kim W, et al. High speed, low noise ultraviolet photodetectors based on GaN p-i-n and AlGaIn(p)-GaIn(i)-GaIn(n) structures. Appl Phys Lett, 1997, 71:2154
- [3] Amano H, Hiramatsu K, Kito M, et al. Zn related electroluminescent properties in MOVPE grown GaN. J Cryst Growth, 1988, 93:79
- [4] Amano H, Akasaki I, Hiramatsu K, et al. Effects of the buffer layer in metalorganic vapour phase epitaxy of GaN on sapphire substrate. Thin Solid Film, 1998, 163:415
- [5] Aujol E, Napierala J, Trassoudaine A, et al. Thermodynamical and kinetic study of the GaN growth by HVPE under nitrogen. J Cryst Growth, 2001, 222:538
- [6] Safvi S A, Perkins N R, Horbon M N, et al. Effect of reactor geometry and growth parameters on the uniformity and material properties of GaN/sapphire grown by hydride vapor-phase epitaxy. J Cryst Growth, 1997, 182:233
- [7] Wang H, Chen A B. Calculation of shallow donor levels in GaN. J Appl Phys, 2000, 87:7859
- [8] Limpijumnong S, Van de Walle C G. Diffusivity of native defects in GaN. Phys Rev B, 2004, 69:035207

Theoretical Simulation of Vertical HVPE Reactor and GaN Thick Film Growth

Ma Ping[†], Duan Yao, Wei Tongbo, Duan Ruifei, Wang Junxi,
Zeng Yiping, and Li Jinmin

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

Abstract: According to the model of fluid dynamic, distribution of gas concentration, as well as the thermal field, in the reactor was simulated. NH_3 concentration distributes homogeneously around the substrate, while GaCl concentration is larger in center than that in the periphery. The experimental results show that the growth rate is $260\mu\text{m/h}$ in center and $140\mu\text{m/h}$ in the periphery, respectively. The FWHM is 141° . It is O impurity that arouses the strong yellow luminescence.

Key words: HVPE; theoretical simulation; GaN

PACC: 6855; 7855; 8280

Article ID: 0253-4177(2007)S0-0253-04

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

Received 12 December 2006, revised manuscript received 28 December 2006