

生长温度对 MOCVD 外延生长 InGaN 的影响*

王莉莉[†] 王 辉 孙 菟 王 海 朱建军 杨 辉 梁骏吾

(中国科学院半导体研究所 集成光电子国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 采用金属有机化学气相沉积(MOCVD)方法,在 GaN/蓝宝石复合衬底上生长了 InGaN 薄膜,并研究了生长温度对 InGaN 薄膜的 In 组分、结晶品质和发光特性的影响.实验中发现随着生长温度的降低,InGaN 薄膜中的 In 组分提高,但结晶品质显著下降.X 射线衍射(XRD)联动扫描的结果显示即使在 In 组分增大至 0.57 时也没有发现相分离现象,光致发光(PL)谱测量的结果表明 InGaN 薄膜的 PL 峰位随着 In 组分升高而向低能方向移动,半高宽随着 In 组分增加而增加.

关键词: InGaN; X 射线衍射; 光致发光

PACC: 7850G; 6110; 7855

中图分类号: TN304.2*3

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)S0-0257-03

1 引言

III 族氮化物是宽禁带直接带隙材料,其物理和化学性质稳定,在光电子领域和电学器件方面有着广阔的应用前景.特别是 InGaN 合金发光效率高,室温下禁带宽度可从 0.7eV 扩展到 3.4eV^[1],发光覆盖红外到紫外的波段范围,通常用作 LED,LD 等光电器件的有源区,是制作高效光电器件的理想材料之一,因此受到了广泛的关注.但是,由于缺少晶格匹配的衬底材料,含高 In 组分 InGaN 的生长是非常困难的,而且研究发现 InGaN 生长过程中 In 组分分布存在涨落,容易出现相分离现象^[2~4].为了更好地理解 MOCVD 生长 InGaN 过程中对组分等产生影响的各种因素所起的作用,本文研究了生长温度对 InGaN 薄膜的 In 组分、结晶质量以及发光特性的影响.

2 实验

生长在水平式 MOCVD 反应室中进行,生长反应室压力保持在 1 个大气压,生长温度为 550~700℃,使用高纯氨气(NH₃)作为 N 源,三乙基镓(TEG)与三甲基铟(TMI)分别作为 Ga 源和 In 源,载气为氮气.生长过程中首先在蓝宝石(0001)衬底上采用传统的二步法生长 3μm 的 GaN,随后在其上生长厚度约为 200nm 的 InGaN.采用 X 射线双晶衍射(DC-XRD)确定样品的 In 组分及分析晶体

质量,利用光致发光谱(PL)研究了 InGaN 样品的发光特性.

3 结果与讨论

图 1 给出了在 550~700℃ 生长温度范围内通过 XRD 测定的 InGaN 薄膜中的 In 组分及(0002)摇摆曲线的半高宽(FWHM)随生长温度的变化.从图中可以看出,In 组分随着生长温度的升高而降低,这说明在其他生长参数不变的情况下,生长温度对于 InGaN 外延薄膜中 In 的并入有着重要影响.因为高温下 In—N 键变得不稳定,而且 In 原子的解吸附速率亦会随着生长温度的升高而加快,所以

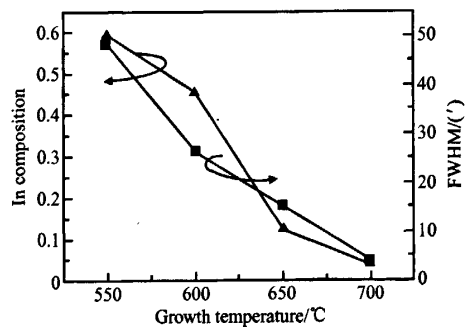


图 1 In 组分及 XRD(0002)摇摆曲线的 FWHM 与生长温度的关系

Fig. 1 Temperature-dependent In composition and FWHM of (0002)

* 国家自然科学基金资助项目(批准号:60506001,60576003)

[†] 通信作者. Email: wangll@red.semi.ac.cn

2006-11-20 收到,2006-12-08 定稿

实际掺入的 In 组分随着生长温度升高而降低。

XRD(0002)摇摆曲线的半高宽反映了薄膜的结晶品质.如图 1 所示,(0002)摇摆曲线的半高宽随生长温度升高而降低,表明 InGaN 薄膜的结晶品质随温度升高而得到了改善.一方面,温度升高,In 的组分降低导致 $In_xGa_{1-x}N$ 与衬底 GaN 的晶格失配减小,从而使得 $In_xGa_{1-x}N$ 中的缺陷密度有所降低;另一方面,随着生长温度的提高,原子的表面迁移能力增强,反应原子更容易找到能量最低点,这也会提高 $In_xGa_{1-x}N$ 的结晶品质.

图 2 为 In 组分为 0.57 的 InGaN 的 XRD (0002) ω - 2θ 衍射图.从图中可以明显看到两个衍射峰,比较强的峰是 GaN 衬底(34.56°)的衍射峰,在其左侧为 InGaN (32.5°)衍射峰,没有出现 InN (31.5°)衍射峰.高斯拟合两个峰都是单峰,根据 Vegard 定理计算该样品的 In 组分约为 0.57.由图 2 可以看到,即使在 In 组分高达 0.57 时也没有出现相分离现象,这一结果说明可以通过改变生长温度来控制 InGaN 中 In 的组分.

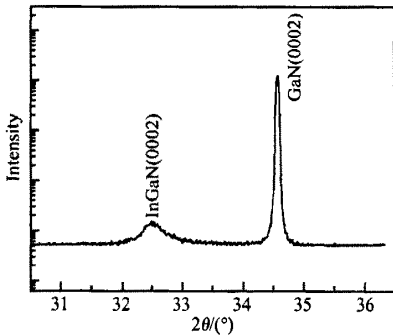


图 2 $In_{0.57}Ga_{0.43}N$ 的 XRD (0002) ω - 2θ 衍射图
Fig. 2 XRD (0002) ω - 2θ diffraction spectrum of $In_{0.57}Ga_{0.43}N$

图 3(a) 给出了 $T = 10K$ 下,不同 In 组分的 $In_xGa_{1-x}N$ 样品的 PL 谱.随着 In 组分的降低,PL 峰位向高能方向移动.图 3(b) 给出了 PL 谱的峰位随 In 组分的变化,其中的数据既包括本组研究的结果也包括文献^[5,6]报道的结果.我们发现图 3(b) 中的数据可以用 $E_g = 3.5 - 2.5x - bx(1-x)$ 很好地拟合,其中由拟合所获得的弯曲因子 $b = 2.5eV$.

图 4 给出了 InGaN 样品光致发光峰的半高宽随 In 组分的变化.随着 In 组分($0 < x < 1$)的增加,PL 峰的半高宽升高.由于 In 的掺入会伴随着合金无序的产生,In 组分的增加就意味着合金无序加大,同时还引起 $In_xGa_{1-x}N$ 与衬底 GaN 的晶格失配增大,两者都会导致非均匀应变增加,恶化 In-

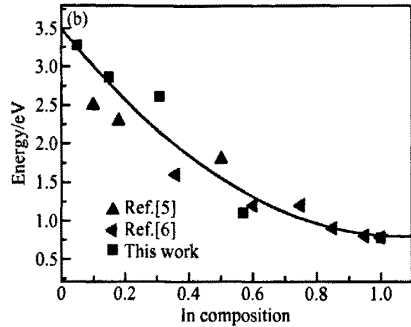
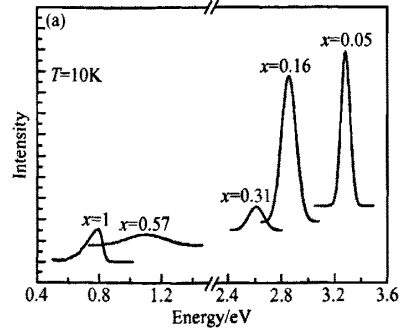


图 3 (a) $T = 10K$ 时不同 In 组分的 $In_xGa_{1-x}N$ 样品的 PL 谱;(b) $In_xGa_{1-x}N$ 样品 PL 谱的峰位随 In 组分的变化(包括本组和文献^[5,6]报道的数据)

Fig. 3 (a) PL spectra of $In_xGa_{1-x}N$ samples at $T = 10K$; (b) PL peak energy of $In_xGa_{1-x}N$ studied in this work and from Refs. [5, 6] as a function of In composition

GaN 合金的发光性能. In 组分增加到 1 时(InN), PL 峰的半高宽急剧降低,因为此时合金无序不再存在,只需要考虑晶格失配的影响,样品的发光性能相比于 In 组分为 0.57 时的 InGaN 有明显提高.

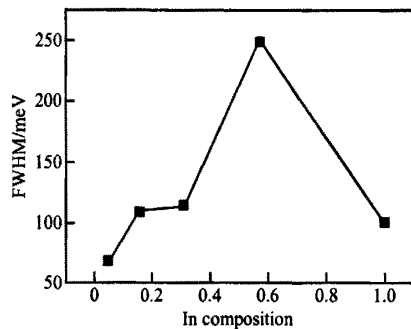


图 4 $In_xGa_{1-x}N$ 样品光致发光峰的半高宽随 In 组分的变化
Fig. 4 FWHM of $In_xGa_{1-x}N$ samples as a function of In composition

4 结论

我们研究了生长温度对 MOCVD 生长 InGaN 的影响. 降低生长温度会提高 InGaN 合金的 In 组分, 但是生长温度的降低和 In 组分的增大会恶化 InGaN 的晶体质量. XRD 的分析结果表明, 即使在 In 组分增大至 0.57 时 InGaN 也没有出现相分离现象. PL 谱测量的结果表明, InGaN 薄膜的 PL 峰位随着 In 组分升高而向低能方向移动, 半高宽随着 In 组分的增加而升高.

参考文献

[1] Wu J, Walukiewicz W, Li S X, et al. Effects of electron con-

centration on the optical absorption edge of InN. *Appl Phys Lett*, 2004, 84: 2805

[2] Ho I H, Stringfellow G B. Solid phase immiscibility in GaInN. *Appl Phys Lett*, 1996, 69: 2701

[3] Shimizu M, Kawaguchi Y, Hiramatsu K, et al. Metalorganic vapor phase epitaxy of thick InGaN on sapphire substrate. *Jpn J Appl Phys*, 1997, 36: 3381

[4] Chang C A, Shih C F, Chen N C, et al. In-rich $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$ films by metalorganic vapor phase epitaxy. *Appl Phys Lett*, 2004, 85: 6131

[5] 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: 4

[6] Kim M H, Cho J K, Lee I H, et al. Metalorganic molecular beam epitaxy of InGaN layers and their optical properties. *Phys Status Solidi A*, 1999, 176: 269

Influence of Temperature on MOCVD Growth of InGaN*

Wang Lili[†], Wang Hui, Sun Xian, Wang Hai, Zhu Jianjun, Yang Hui, and Liang Junwu

(State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: InGaN thin films are grown on GaN/sapphire composite substrate by metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD) between 550°C and 700°C. The effect of growth temperature on the properties of the InGaN films is studied by means of X-ray diffraction (XRD) and photoluminescence (PL). InGaN with higher In composition was obtained at a lower temperature. However, low growth temperature and high In composition degrade the crystal quality of InGaN. The XRD measurement indicated that there is no phase separation in the sample with In composition as high as 0.57. The PL peak energy shifts to lower energy with increasing In composition, and the full width at half width (FWHM) of the PL peak increases with increasing In composition.

Key words: InGaN; X-ray diffraction; photoluminescence

PACC: 7850G; 6110; 7855

Article ID: 0253-4177(2007)S0-0257-03

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Nos. 60506001, 60576003)

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

Received 20 November 2006, revised manuscript received 8 December 2006