

GaN/AlGa_N 超晶格透射电镜分析*

陈伟华 胡晓东[†] 章 蓓 黎子兰 潘尧波 胡成余 王 琦
陆 羽 陆 敏 杨志坚 张国义

(北京大学人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京大学宽禁带半导体研究中心,
北京大学物理学院凝聚态和材料物理研究所, 北京 100871)

摘要: 用 MOCVD 法生长了 120 周期的 GaN/Al_{0.14}Ga_{0.86}N 超晶格, 激光剥离技术被有效地用于 GaN/AlGa_N 超晶格截面透射电镜样品的制作. 用透射电子显微镜观察到了清晰的超晶格及晶胞周期结构, 电子衍射也表明生长的超晶格样品质量较好. 在透射电镜图中看到了 Al, Ga 原子的聚居点, 这些聚居点达到应力临界时将可能成为新缺陷的起点. 同时观察到 GaN 缓冲层中的线缺陷大多呈现弯曲的弧形, 这是外延生长导致的.

关键词: GaN/AlGa_N 超晶格; 透射电镜; 激光剥离

PACC: 4255P; 6116D; 7360L

中图分类号: TN304.2⁺3

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2005)S0-0028-04

1 前言

近年来 GaN 基氮化物半导体器件应用得到越来越多的关注, 尤其 GaN 基激光二极管(LD)及发光二极管(LED)已成为半导体领域的研究热点^[1~5]. 金属有机物化学气相外延(metal-organic chemical vapor deposition, MOCVD)是 GaN 基材料较普遍的生长方法, 通常使用蓝宝石(Al₂O₃)做生长的衬底. GaN/AlGa_N 超晶格(superlattice structure, SLS)目前广泛地用于大多数 LD 中的限制层(cladding layer), 在器件中起着重要的作用^[3,4]. 超晶格的结构及组分通常按经验生长条件生长, 因而生长后检测超晶格的结构及组分对优化 MOCVD 的生长程序, 改善超晶格的性能都有重要意义. 超晶格的结构及内部缺陷的形貌可以很直观地用透射电镜(transmission electron microscopy, TEM)观测^[5~9]. 传统的截面透射电镜样品的制作由于蓝宝石的硬度高, 减薄过程中易碎裂的特点使得制样的周期长且成功率低. 我们在制备截面透射电镜样品时用激光剥离技术首先把 GaN 外延薄膜从蓝

宝石转移至硅片上, 然后再按常规程序制作截面透射电镜样品, 这给制样带来了极大的方便. 由于蓝宝石和 GaN 之间的晶格失配及热膨胀系数的差异, 在蓝宝石和 GaN 之间的界面处产生沿生长方向延伸的缺陷(extended defect), 这些缺陷起着释放应力的作用, 并对器件的寿命、发光强度等性能有重要的影响^[7]. 本文利用 TEM、电子衍射法对生长的超晶格样品的结构及缺陷做了分析.

2 实验

实验中所用的样品是用 Thomasswan MOCVD 系统在蓝宝石(Al₂O₃)(0001)面上生长的, 由生长速率及生长时间来控制样品设计的结构为非掺杂 [GaN(2.5nm)/Al_{0.14}Ga_{0.86}N(2.5nm)]_{120x}/2μm GaN/Al₂O₃(0001). 为了方便制作透射电镜样品, 首先用环氧胶把样品粘在硅片上, 为方便解理采用表面为(100)的硅片. 激光剥离使用 KrF 准分子激光器, 光子能量为 5.0eV, 脉冲激光剥离, 脉冲激光能量密度 600mJ. 用 Hitachi-9000 透射电子显微镜对样品做了截面观测.

* 国家高技术研究发展计划(批准号: 2001AA313110, 2001AA313060, 2001AA313140 和 2005AA319020), 国家自然科学基金(批准号: 60077022, 60276034, 50228202 和 60477011)资助项目

[†] 通信作者, Email: huxd@pku.edu.cn

2004-09-13 收到, 2004-12-02 定稿

3 结果和分析

图 1 给出了 GaN/AlGaIn 超晶格截面高分辨透射电镜图,图 1(a)显示了明暗相间的清晰的 GaN/AlGaIn 超晶格图像.由于 Al 原子对电子的原子散射因子比 Ga 原子的小,黑色条纹为 GaN,白色的是 AlGaIn,GaN/AlGaIn 超晶格的周期为 6nm,GaN 层和 AlGaIn 层的厚度几乎相同均约为 3nm,这和生长时设定的各层厚度 2.5nm 是相近的,说明我们的 MOCVD 生长可控性是较好的.从图 1(b)中可明显看到 GaN/AlGaIn 超晶格分布,且超晶格生长的层

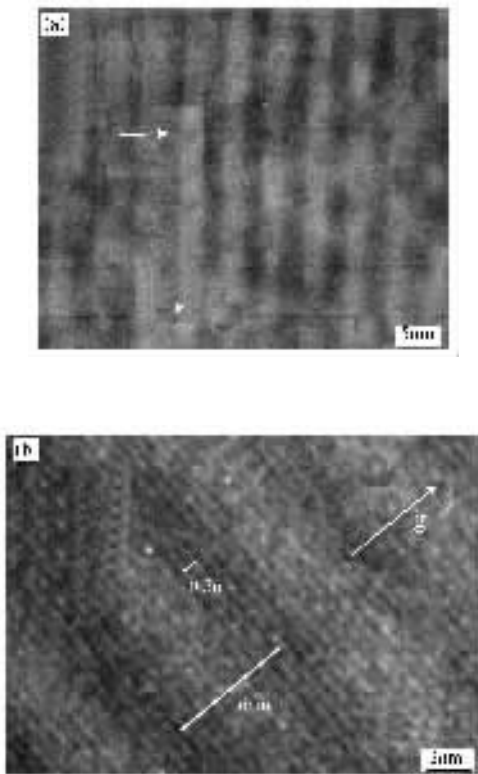


图 1 GaN/AlGaIn 超晶格样品的截面高分辨透射电镜图 (b)中分别标出了超晶格的周期和 GaN[0001]方向上的晶胞间距,生长方向为[0001].

Fig. 1 High-resolution cross-sectional TEM image showing the structure of the GaN/AlGaIn SLS. The period of GaN/AlGaIn SLS and the GaN crystal lattice are marked respectively, the crystal growth direction is [0001].

状结构清晰可见,晶格排列较好.测得的层间距为 0.5nm,与 GaN 晶格常数 c (0.5185nm) 非常接近,所以看到的层状结构周期为[0001]方向上的晶胞周期.在同一张电镜图中同时看到超晶格的周期结构

及生长方向的晶胞层次,这对了解超晶格结构,改善 MOCVD 生长程序有重要意义.透射电镜图中除某些区域 GaN/AlGaIn 超晶格界线不是很分明造成明暗条纹的模糊外,还发现有一些衬度较大的黑白小区域,我们认为这些白色小区域对应 Al 原子密度相对较大的区域,而黑色小区域 Ga 原子密度相对较大. Al, Ga 原子的聚居引起的应力达到临界值时将成为新的缺陷的起点.其形成机理还有待进一步研究.对超晶格做了选区电子衍射,如图 2 所示,(0002)衍射点的放大图中除 GaN(0002)衍射点外还有一个卫星斑点,其距(0002)衍射点中心距离较大,表明这是超晶格的衍射斑点,说明超晶格在结构上是清晰和优良的.

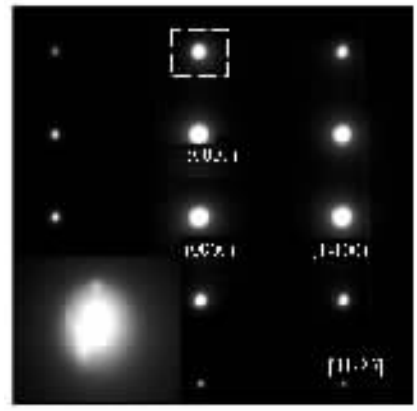


图 2 GaN/AlGaIn 超晶格电子衍射图 插图为放大的(0002)衍射点.

Fig. 2 Electron diffraction pattern showing characteristic of GaN/AlGaIn SLS region. The inset is an enlargement of the (0002) reflection.

图 3 给出了外延层的透射电镜图,可清楚看到剥离严重损伤的区域、轻度损伤的区域及无损伤区域.包括剥离分解的厚度,激光剥离影响总厚度约为 $1.4\mu\text{m}$,而一般 LD, LED 的缓冲层均在 $2\mu\text{m}$ 以上,所以激光剥离对器件的制作以及截面透射电镜样品的制作都是有效的手段(有关激光剥离损伤将另文论述).可以看到从剥离面延伸至超晶格且平行于生长方向的缺陷,这种缺陷在 GaN 基材料中很普遍,一般认为这种缺陷为线缺陷^[9],这些缺陷一直延伸到剥离无损伤区域,是外延生长时产生的线缺陷.图 3(b)中显示的线缺陷周围局部扭曲的超晶格,也说明了这些缺陷是生长时产生的,而非激光剥离的损伤产生的.测得这种平行线缺陷之间的平均距离约为 $0.7\mu\text{m}$,缺陷密度为 $2 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$,这和文献^[8]是

一致的. 我们发现, 样品中的线缺陷在缓冲层中都有一定的弯曲, 如箭头所示, 形成圆弧形, 分析认为这主要是由外延生长引起的, 这和文献[7, 9]中描述的环形、半环形稍有差异. 由图 3(b) 可直观地看到线缺陷对超晶格的影响, 可粗测出单个缺陷对超晶格的影响范围为半径 150nm, 它使超晶格扭曲的角度约为 12° .

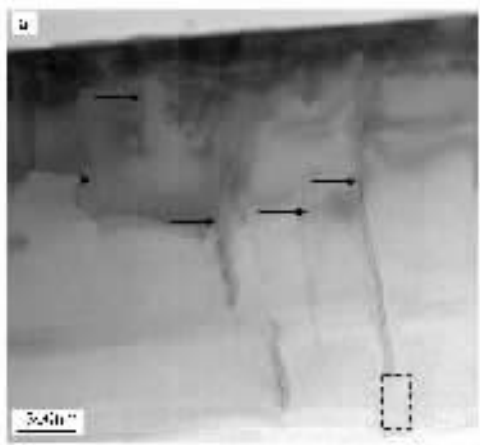


图 3 GaN 外延层中的缺陷 图(b)为放大的局部线缺陷.

Fig. 3 Dislocations in GaN epilayer (b) is the enlargement of part of one thread dislocation.

4 结论

采用激光剥离技术、透射电子显微镜、电子衍射等手段对 MOCVD 生长的非掺杂 GaN/AlGaIn 超晶格做了一定的研究. 首先用激光剥离技术把 GaN

基材料外延薄膜从硬度较高的衬底上转移是制作透射电镜样品的有效方法, 这种制作电镜样品的方法非常具有实用性, 但应注意剥离损伤的深度. 透射电子显微镜、电子衍射结果都反映出超晶格的质量较好, 用透射电镜看到了比较清晰的超晶格图像, 其 $[0001]$ 方向上的晶胞排列层次清晰可见. 我们还发现了 Al, Ga 金属原子高密度小区域, 认为如果达到应力的临界, 将诱导新缺陷的形成. 平行于生长方向延伸的大多数缺陷为线缺陷, 且大多呈现弧形, 这是外延生长所特有的.

致谢 感谢北京大学激光镀膜实验室聂瑞娟老师, 北京大学电子光学与电子显微镜国家重点实验室张小平老师在仪器操作及实验指导等方面大量的帮助.

参考文献

- [1] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S, et al. InGaIn/GaN/Al-GaN-based laser with modulation-doped strained-layer superlattices. *Jpn J Appl Phys*, 1997, 36: L1568
- [2] Aktas O, Fan Z F, Mohammed S N, et al. High temperature characteristics of AlGaIn/GaN modulation doped field-effect transistors. *Appl Phys Lett*, 1996, 69: 3872
- [3] Nakamura S. InGaIn-based LEDs and laser diodes. *Proc SPIE Int Soc Opt Eng*, 1999, 3749: 2
- [4] Mmasui S, Matsuyama Y, Yanamoto T, et al. 365nm ultraviolet laser diodes composed of quaternary AlInGaIn alloy. *Jpn J Appl Phys, Part 2*, 2003, 42: L1318
- [5] Wu M F, Zhou Shengqiang, Yao Shude, et al. High precision determination of the elastic strain of InGaIn/GaN multiple quantum wells. *J Vac Sci Technol B*, 2004, 22: 920
- [6] Bai Jie, Wang Tao, Liu Yuhuai. Influence of pyramidal defects on photoluminescence of Mg-doped AlGaIn/GaN superlattice structures. *Jpn J Appl Phys*, 2002, 41: 5909
- [7] Ponce F A, Bour D P, Götz W, et al. Homoepitaxy of GaN on polished bulk single crystals by metalorganic chemical vapor deposition. *Appl Phys Lett*, 1996, 68(7): 917
- [8] Liu R, Bell A, Ponce F A. Atomic arrangement at the AlN/ZrB₂ interface. *Appl Phys Lett*, 2002, 81(17): 3182
- [9] Lu C J, Bendersky L A, Chang K, et al. Dissociation and evolution of threading dislocations in epitaxial Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO₃ thin films grown on (001) LaAlO₃. *J Appl Phys*, 2003, 93: 512

TEM Analysis on GaN/AlGa_N SLS*

Chen Weihua, Hu Xiaodong[†], Zhang Bei, Li Zilan, Pan Yaobo, Hu Chengyu,
Wang Qi, Lu Yu, Lu Min, Yang Zhijian, and Zhang Guoyi

(School of Physics State Key Lab for Mesoscopic Physics, Research Center for Wide Gap Semiconductor,
Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: 120 periods of GaN/Al_{0.14}Ga_{0.86}N superlattice structure (SLS) are grown by metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD) on Al₂O₃(0001) single crystal substrates. The technology of laser lift-off is effectively used to prepare specimens for cross-section TEM. Transmission electron microscopy (TEM) reveals the good quality of undoped AlGa_N/GaN SLS, and the periods of crystal lattice as well. Electron diffraction also shows the good quality of AlGa_N/GaN SLS. In TEM images we find the assemble phenomenon of Al atoms or Ga atoms. These areas would induce new dislocations if the stress reaches the critical value. Most of the thread dislocations in GaN buffer layer shape like arcs, resulting in epitaxial growth.

Key words: GaN/AlGa_N SLS; TEM; laser lift-off

PACC: 4255P; 6116D; 7360L

Article ID: 0253-4177(2005)S0-0028-04

* Project supported by the National High Technology Research and Development Program of China(Nos. 2001AA313110, 2001AA313060, and 2001AA313140, and 2005AA319020) and the National Natural Science Foundation of China(Nos. 60077022, 60276034, 50228202, and 60477011)

[†] Communication author. Email: huxd@pku.edu.cn

Received 13 September 2004, revised manuscript received 2 December 2004

©2005 Chinese Institute of Electronics