

立方相 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaAs}(100)$ 的 MOCVD 外延生长*

冯志宏 杨 辉 徐大鹏 赵德刚 王 海 段俐宏

(中国科学院半导体研究所 集成光电子学国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 利用 MOCVD 生长技术在 GaAs(100) 衬底上生长了高质量的立方相 AlGaN 薄膜。通过光致发光 (PL)、扫描电镜 (SEM) 分析了不同 NH_3 流量、不同生长温度对 AlGaN 外延层的结晶质量和表面形貌的影响。发现相对高的 NH_3 流量和相对高的生长温度可以提高 AlGaN 外延层的结晶质量。

关键词: MOCVD; 立方相 AlGaN; 光致发光; 扫描电镜; 低值氧化物

PACC: 7280E; 7855; 7865

中图分类号: TN 304. 2⁺ 3

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2002)02-0161-04

1 引言

以 GaN 为代表的第三代半导体 III-V 族氮化物是最重要的宽禁带半导体材料体系之一。它们特有的带系范围、优良的光电特性和材料的机械性质使其在光学器件、电子器件等领域有着广泛的应用前景^[1]。

目前, 大多数蓝、绿发光二极管和激光器都是以蓝宝石为衬底的六方结构, 并且实现了商品化^[2]。而以 GaAs 为衬底生长的立方相 GaN 具有价格便宜、易于解理、可以制作电极的优点, 而且立方相生长温度低, 有利于 In 的掺入, 使以 GaAs 为衬底生长立方基 GaN 蓝、绿发光二极管和激光器具有巨大的潜力。Yang *et al.*^[3] 在国际上首次实现立方 GaN p-n 结蓝光发光二极管, 又实现了 GaN/InGaN : Zn/GaN 双异质结蓝、绿光发光二极管。但目前的亮度还远达不到以蓝宝石为衬底的六方 LED。为了实现高亮度的发光二极管特别是激光器, 必须采取异质结结构。Al_xGa_{1-x}N/GaN 异质结是必不可少的。可是, 立方 AlGaN 的生长十分困难, 晶体质量相对较

差, 大大影响了器件的质量。迄今为止, 有关立方 AlGaN 的报道特别少^[4,5]。本文主要研究了不同 NH_3 流量、不同生长温度对 AlGaN 外延层的结晶质量和表面形貌的影响, 摸索出了生长高质量 AlGaN 薄膜的合适生长条件。

2 实验

我们用传统水平式 MOCVD 进行样品生长。用 TEGa、TMAl 和 NH_3 分别作为镓源、铝源和氮源, H_2 作为载气。以 Si 掺杂的 GaAs(100) 作为衬底。在生长过程中反应室的压力始终保持在 10⁴Pa。首先在 550℃ 生长厚约 20~30nm 的 GaN 缓冲层, 接着在 820℃ 生长厚约 600nm 的 GaN 层。然后, 在 GaN 层上面生长厚约 200nm 的 AlGaN 外延层。生长 AlGaN 外延层时, NH_3 流量分别为 50、100、200、500mL/min, 其中生长温度为 820℃。 NH_3 流量为 500mL/min, 生长温度为 860℃, 其它条件相同。

光致发光 (PL) 测试在室温下进行。激发光源是波长为 325nm 的 He-Cd 激光器。扫描电镜照片是在型号为 JSM、加速电压 15kV 的扫描电镜上进行的。

* 国家自然科学基金资助项目

冯志宏 男, 1973 年出生, 实研, 目前从事 GaN 材料与器件研究。

杨 辉 男, 1961 年出生, 研究员, 目前从事半导体材料与器件研究。

2001-06-05 收到, 2001-07-20 定稿

© 2002 中国电子学会

3 结果及讨论

图 1 是四个不同 NH_3 流量、不同生长温度 AlGaN 外延层光致发光谱。图 1 曲线 $a \sim c$ 的 NH_3 流量分别为 50、100、500 mL/min, 生长温度为 820°C。曲线 d 的 NH_3 流量为 500 mL/min, 生长温度为 860°C, 其它条件相同。从图中可以看出光致发光谱存在三个峰。其中峰位在 325 nm 的峰是 He-Cd 激光峰, 峰位约在 365 nm 的发光峰是立方 AlGaN 的带边发射峰, 而 535 nm 的发光峰是与杂质、缺陷有关的深能级宽化的发射峰。在光致发光谱中没有观察

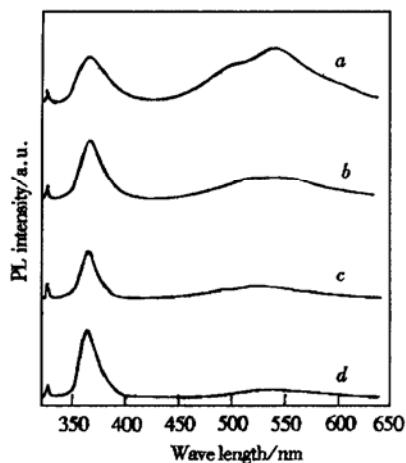


图 1 不同 NH_3 流量、不同生长温度 AlGaN 外延层光致发光谱

Fig. 1 Photoluminescence spectra of cubic AlGaN epilayers with different NH_3 flow rates and different growth temperatures

到六方相 AlGaN 的峰。Atsushi Nakadaira 和 Hide-nao Tanaka^[4]确定了立方相 AlGaN 的 PL 峰位和 Al 组分 x 的关系: $E = 3.20 + 1.85x$, 可以得到 Al 组分 x 约为 0.11。从图 1 中的曲线 a 和 c 明显看出, 随着 NH_3 流量的增加, 立方 AlGaN 的带边发射峰的强度相对增加、带边发射峰的半宽减小, 同时深能级发射峰的峰强相对减弱。这表明随着 NH_3 流量的增加, AlGaN 外延层的晶体质量和光学性质提高。从图 1 中的曲线 d 可以看出, 在 NH_3 流量为 500 mL/min 下继续增加生长温度, 带边发射峰的半宽基本不变, 而深能级发射峰的峰强相对带边发射峰的峰强继续减弱。这表明相对高的生长温度能提高 AlGaN 外延层的晶体质量和光学性质。

为了更清楚说明不同 NH_3 流量、不同生长温度对 AlGaN 外延层晶体质量的影响。我们用两个指标, 即 AlGaN 外延层光致发光半宽和带边发射峰与深能级宽化发射峰强度比来定量分析。光致发光半宽和带边发射峰与深能级宽化发射峰强度比可以反映样品中 AlGaN 的晶体质量和光学性质。如图 2 所示, 随着 NH_3 流量的增加, 立方 AlGaN 的带边发射峰的半宽减小。当 NH_3 流量为 500 mL/min 时, AlGaN 的带边发射峰的半宽只有 16.8 nm。从图 3 可以看出, 随着 NH_3 流量的增加, 带边发射峰与深能

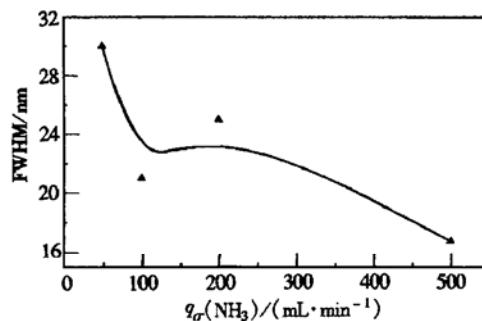


图 2 生长温度为 820°C、不同 NH_3 流量 AlGaN 外延层带边发射峰半宽

Fig. 2 Full width at half maximum of the AlGaN band-edge emission peak as a function of NH_3 flow rates

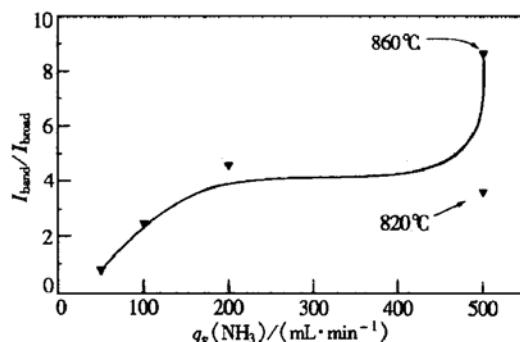


图 3 不同 NH_3 流量 AlGaN 外延层带边发射与深能级宽化发射峰强度比。其中 NH_3 流量为 500 mL/min 时的生长温度是 820°C 和 860°C

Fig. 3 Intensity ratio of the band-edge emission peak to broad emission peak as a function of NH_3 flow rates. When the flow rate of NH_3 is 500 mL/min, the growth temperature is 820°C and 860°C.

级宽化发射峰强度比增加。当 NH_3 流量为 500 mL/min、生长温度为 860°C 时, 带边发射峰与深能级宽

化发射峰强度比达到最大值。这说明在该条件下,样品AlGaN有强的带边发射和相对弱的宽化深能级发射。从而说明该立方AlGaN具有较好的晶体质量和光学性质。

一般来说,生长温度过高不利于MOCVD材料的生长。然而,对于与Al有关的合金生长,相对高的生长温度是很重要的。因为Al极容易与O结合形成低值氧化物(suboxide),从而导致低的光致发光效率,抑制了强的带边发射。而在相对高的生长温度下,Al的低值氧化物极易挥发,从而减少了氧的沾污,提高了带边峰光致发光效率,降低了深能级宽化发射峰的相对峰强^[6],进而提高了立方AlGaN的光学性质和结晶质量。

图4分别是NH₃流量为100mL/min、生长温度820℃和NH₃流量为500mL/min、生长温度860℃立方AlGaN的表面形貌。样品(a)的表面形貌呈山丘状。而样品(b)的表面形貌是一种典型的层状(terrace)结构。它们都是沿着[110]方向拉长。从表面形貌可以看出,在相对高的NH₃流量下,相对高的生长温度可以增加Ga原子表面迁移率,使其足够到达生长的小岛边缘,从而形成层状结构。同时高的生长温度,Al的低值氧化物极易挥发,从而减少了表面的沾污,有利于表面的二维生长,进而改善了立方AlGaN的晶体质量。这与上面对立方AlGaN光致发光的分析结果是一致的。

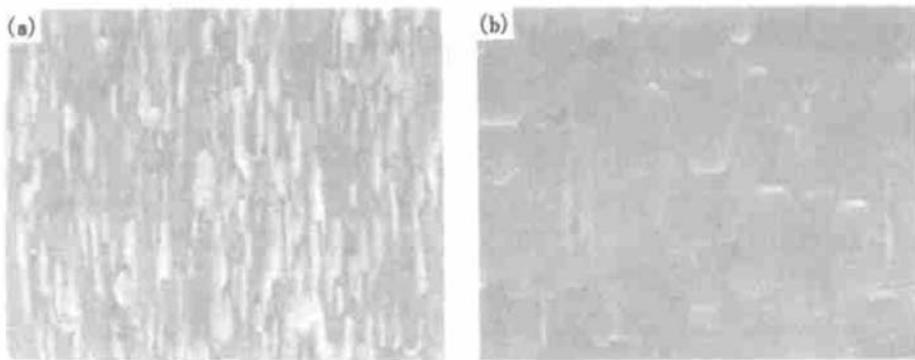


图4 AlGaN的表面形貌 (a) NH₃ 流量为 100mL/min, 生长温度 820℃; (b) NH₃ 流量为 500mL/min, 生长温度 860℃

Fig. 4 Surface morphology of cubic AlGaN (a) The flow rate of NH₃ is 100mL/min and the growth temperature is 820℃; (b) The flow rate of NH₃ is 500mL/min and the growth temperature is 860℃.

4 结论

利用MOCVD生长技术在GaAs(100)衬底上生长了高质量的立方相AlGaN薄膜,其中Al的组分为11%。通过对不同NH₃流量、不同生长温度AlGaN外延层的光学性质、晶体质量和表面形貌分析,发现在相对高的NH₃流量下,高的生长温度Al的低值氧化物极易挥发,从而减少了氧的沾污,提高了带边峰光致发光效率,降低了深能级宽化发射峰强度。同时,相对高的生长温度有利于立方AlGaN表面的二维层状生长,进而提高了立方AlGaN薄膜的晶体质量。

参考文献

- [1] Strite S, Morkoc H. J Vac Sci Technol B, 1992, 10(4): 1237
- [2] Nakamura S, et al. Appl Phys Lett, 1997, 70: 1417
- [3] Yang H, Zheng L X, Li J B, et al. Appl Phys Lett, 1999, 74: 2498
- [4] Nakadaira A, Tanaka H. Appl Phys Lett, 1997, 70: 2720
- [5] Xu Dapeng, Yang Hui, Zhao Degang, et al. Strain analysis of cubic AlGaN/GaN grown on GaAs (100) substrate by MOVPE. Chinese Journal of Semiconductors, 1999, 20(10): 921(in English) | 徐大鹏, 杨辉, 赵德刚, 等. MOVPE生长的立方相AlGaN/GaN的应变分析. 半导体学报, 1999, 20(10): 921]
- [6] Tsai M J, Tashima M M, Moon R L. J Electron Mater, 1984, 13: 437

MOCVD Growth of Cubic $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaAs}(100)^*$

Feng Zhihong, Yang Hui, Xu Dapeng, Zhao Degang, Wang Hai and Duan Lihong

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

Abstract: Cubic $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ films with good quality are grown on the $\text{GaAs}(100)$ substrates by metallorganic chemical vapor deposition (MOCVD). Photoluminescence (PL) and scanning electron microscope (SEM) are used to analyze the crystalline quality and the surface morphology of the epitaxial layers. It is found that both the relatively big fluxes of NH_3 and the relatively high growth temperature will improve the quality of crystalline and the surface morphology of cubic $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ films.

Key words: MOCVD; cubic AlGaN; PL; SEM; suboxide

PACC: 7280E; 7855; 7865

Article ID: 0253-4177(2002)02-0161-04

* Project supported by National Natural Science Foundation of China

Feng Zhihong male, was born in 1973. He is engaged in the research on GaN materials and devices.

Yang Hui male, was born in 1961. He is professor and engaged in the research on semiconductor materials and devices.

Received 5 June 2001, revised manuscript received 20 July 2001

©2002 The Chinese Institute of Electronics