

V / III 比和生长温度对 RF-MBE InN 表面形貌的影响*

肖红领 王晓亮 韩 勤 王军喜 张南红 徐应强 刘宏新 曾一平 李晋闽 吴荣汉

(中国科学院半导体研究所 材料中心, 北京 100083)

摘要: 由于生长 InN 所需平衡氮气压较高, 而且 InN 分解温度比较低, 因此在生长 InN 时 In 原子很容易在表面聚集形成 In 滴, 使 InN 外延膜的表面形貌变差, 影响 InN 外延膜质量的提高. 通过研究 V / III 比和生长温度对 RF-MBE 生长 InN 外延膜表面形貌的影响, 发现 V / III 比和生长温度对 InN 外延膜表面 In 滴的量有重要影响. 通过选择合适的 V / III 比和生长温度, 得到了表面平整光亮、无 In 滴的 InN 外延膜.

关键词: InN; RF-MBE; XRD

PACC: 3220R; 7280C; 7360F

中图分类号: TN304.2

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2005)S0-0016-04

1 引言

由于新型半导体材料氮化铟(InN)在微电子和光电子领域具有重要的应用前景, 因此近年来受到人们越来越多的关注. 原来人们普遍认为 InN 的禁带宽度为 1.9eV^[1], 但最近有报道说 InN 的禁带宽度应该是 0.8eV 左右^[2~6]. 这就使得 III-V 族氮化物的发光波长范围可以覆盖从 AlN 的紫外区(6.2eV)到 InN 的红外区(0.8eV), 成为制备多种颜色发光器件的合适材料; 同时也使得三元化合物 InGaN 材料的禁带宽度与太阳光谱几乎完美匹配, 成为制备新型高效太阳能电池的理想材料. 另外, 因 InN 有很高的理论电子迁移率^[7], 因此, 它也是一种制备高速电子器件的理想材料. 由于高质量 InN 材料难以制备, 因此严重影响了对其物性和器件研究的进展.

InN 体单晶制备非常困难, 目前还没有相关报道. 虽有少数关于 InN 外延膜制备和光学性质研究的报道, 但仍处于研究的初始阶段. 由于缺少与之相匹配的衬底材料, 使得 InN 单晶外延薄膜的制备变得更加困难. InN 的分解温度比较低, 生长温度窗口

窄, 在外延生长过程中极易在表面形成 In 滴, 这是目前 InN 生长过程中的迫切需要解决的问题之一.

本文研究了用 RF-MBE 技术生长 InN 过程中 V / III 比和生长温度对 InN 表面形貌的影响, 有效地抑制了 In 滴在生长表面的形成, 在蓝宝石衬底上得到了表面平整光亮的 InN 单晶外延膜.

2 实验

所有 InN 样品都是用改装的国产分子束外延设备生长的. N 源由高纯氮气经射频等离子体炉产生, 高纯 In 作为 In 源. 使用衬底为 37.5mm 的 C 面蓝宝石衬底, 衬底的清洗方法见参考文献[8]. 衬底装入生长室后, 首先将衬底温度升高到 800~1000℃除气, 时间为 10~30min; 然后在 NH₃ 气氛中将衬底温度调整到 700~800℃, 氮化 10~30min; 最后将衬底温度降低到生长温度生长 InN 外延层. 生长过程中氮气的流量固定, 等离子体输入功率也固定. V / III 比的改变由调节 In 炉温度控制, 生长温度的改变由调节衬底温度控制. 各样品的生长参数

* 国家重点基础研究发展规划(批准号:2002CB311903 和 G20000683)、国家高技术研究发展规划(批准号:2003AA311060)和国家自然科学基金(批准号:60136020 和 60137020)资助项目

肖红领 男, 1976 年出生, 博士研究生, 目前主要从事 III-V 族氮化物半导体材料的生长研究. Email: hlxiao@red.semi.ac.cn

王晓亮 男, 1963 年出生, 博士, 研究员, 博士生导师, 目前主要从事氮化物材料、物理及器件研究.

2004-09-08 收到, 2004-11-25 定稿

©2005 中国电子学会

如表 1 所示.

表 1 InN 样品的生长参数以及外延膜中 InN 的相对含量

Table 1 Growth parameters of different samples

Sample	Growth temperature/°C	T-indium/°C	Content of InN/%
A	540	725	4.5
B	540	720	6.6
C	540	718	10.6
D	540	715	13.8
E	540	710	25.9
F	545	710	59.6
G	549	710	86.3
H	555	710	100

用反射高能电子衍射(RHEED)系统对整个生长过程进行原位观测. 样品的结构和质量用 X 射线衍射进行分析, 样品中 InN 的相对含量由 X 射线衍射谱中 InN(0002)衍射峰强度跟 InN(0002)衍射峰强度与 In(101)衍射峰强度之和的比来表征.

3 结果与讨论

图 1 为 A, B, C, D 和 E 五个 InN 样品的 X 射线衍射 $\theta-2\theta$ 扫描谱图, 可以看到所有五个样品的 X 射线衍射谱中都有两个明显的衍射峰, 经分析可知, 位于 $2\theta=31.3^\circ$ 处的峰来源于 InN 外延膜的(0002)衍射峰; 位于 $2\theta=32.9^\circ$ 处的峰来源于外延膜表面的 In 滴, 属于 In 的(101)衍射峰. 从图 1, 图 2 和表 1 可以看出, 在生长温度保持一定(540°C)的情况下, 外延膜表面的 In 滴数量随着 In 束源炉温度的降低(V/Ⅲ的升高)而减少, InN 的含量则随着 In 束源炉温度的降低(V/Ⅲ的升高)逐渐升高. 当 In 束源炉的温度从 725°C 降低到 710°C 时, InN 外延膜中 InN 的含量从 4.5% 升高到 25.9%.

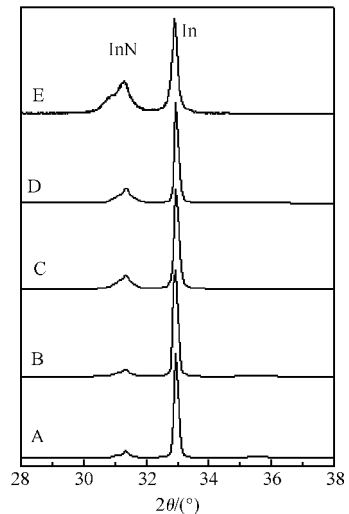


图 1 InN 样品 X 射线衍射 $\theta-2\theta$ 扫描谱

Fig. 1 Typical XRD profiles of the InN films grown with different In cell temperature

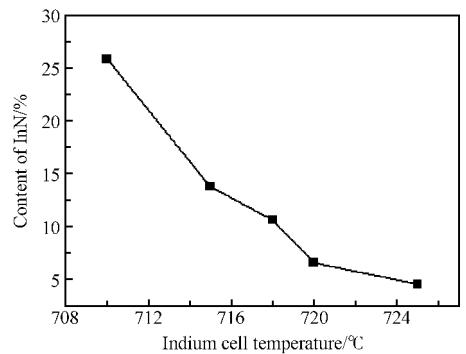


图 2 样品中 InN 含量百分比随 In 炉温度变化关系

Fig. 2 In cell temperature (V/Ⅲ ratio) dependence of InN content in InN films grown at 540°C

图 3 给出了样品 A, E 和 H 的光学显微镜表面像. 从图中可以清楚地看到由于 In 束源炉温度的降低, InN 外延膜表面 In 滴的密度显著减小. 以上结

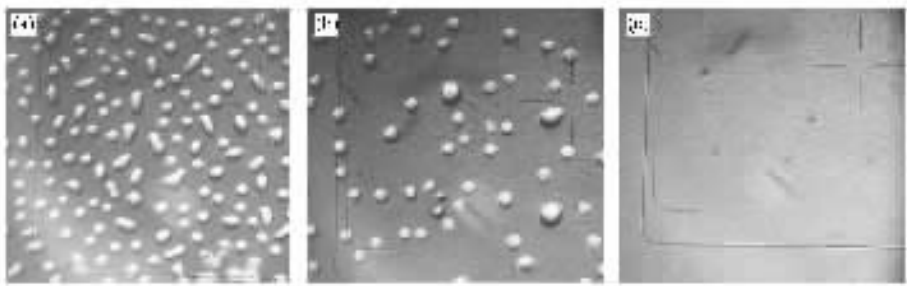


图 3 InN 样品 A, E 和 H 的表面光学显微镜照片 (a) 样品 A; (b) 样品 E; (c) 样品 H

Fig. 3 Surface optical micrographs of InN samples A(a), E(b), and H(c)

果表明:在外生长 InN 外延膜的过程中, V/III 比过低可以导致在 InN 外延层表面形成 In 滴,因此在一定的生长温度下,选择合适的 V/III 比对改善提高 InN 外延膜的质量极为重要。

图 4 为 E, F, G 和 H 四个 InN 样品的 X 射线衍射 $\theta-2\theta$ 扫描谱图. 在这四个样品的生长过程中, In 束源炉温度保持在 710°C 不变, 但生长温度从 540°C 变到 555°C (见表 1). 从该图可以看到, E, F 和 G 三个样品的 X 射线衍射谱中都有 $\text{InN}(0002)$ 衍射峰和 $\text{In}(101)$ 衍射峰, 而样品 H 的 X 射线衍射谱中则只有 $\text{InN}(0002)$ 衍射峰. 从表 1 和图 5 可以看出, 随着 InN 外延膜生长温度的升高, 样品中 In 的含量逐渐降低, InN 的含量逐渐升高, 从 25.9% 升高到 100%.

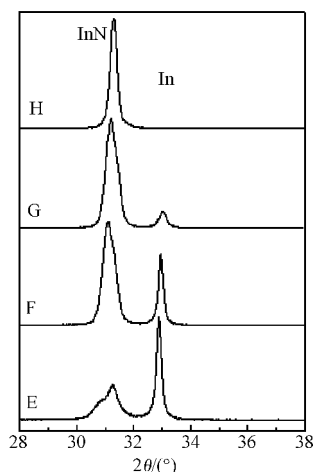


图 4 InN 样品 X 射线衍射 $\theta-2\theta$ 扫描谱

Fig. 4 Typical XRD profiles of the InN films grown at different temperature

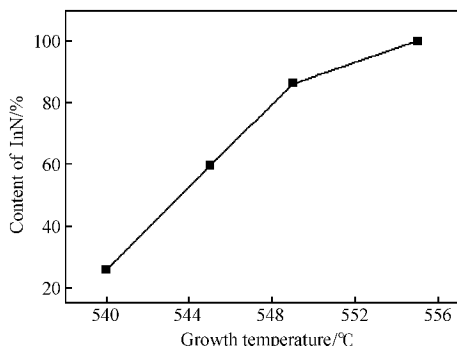


图 5 样品中 InN 含量百分比随生长温度变化关系

Fig. 5 Growth temperature dependence of InN content in InN films grown at the fixed V/III ratio

从图 3 给出的样品 E 和 H 表面的光学显微照片, 可以看出, 样品 H 表面平整光滑, 没有 In 滴. 从以上讨论可知, 在 InN 外延层表面形成 In 滴的另外一个可能原因就是生长温度过低, 导致在衬底表面的 In 原子迁移性变差, 聚集在一起形成 In 滴, 因此, 在一定的 V/III 比下, 选择合适的生长温度对改善和提高 InN 外延膜的质量也极为重要。

4 结论

本文研究了用 RF-MBE 技术在蓝宝石衬底上生长 InN 外延膜过程中 V/III 比和生长温度对外延层表面形成 In 滴的影响, 发现 V/III 过低或者生长温度过低都会导致在外延层表面形成 In 滴. 通过调节 V/III 比和生长温度生长出了表面平整光亮、无 In 滴的 InN 单晶外延层。

参考文献

- [1] Tansley T L, Foley C P. Optical band gap of indium nitride. *J Appl Phys*, 1986, 59: 3241
- [2] Davydov V Y, Klochikhin A A, Seisyan R P, et al. Absorption and emission of hexagonal InN evidence of narrow fundamental band gap. *Phys Status Solidi B*, 2002, 229: R1
- [3] 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: R4
- [4] Wu J, Walukiewicz W, Yu K M, et al. Unusual properties of the fundamental band gap of InN . *Appl Phys Lett*, 2002, 80: 3967
- [5] Wu J, Walukiewicz W, Yu K M, et al. Small band gap bowing in $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$ alloys. *Appl Phys Lett*, 2002, 80: 4741
- [6] Matsuoka T, Okamoto H, Nakao M, et al. Optical bandgap energy of wurtzite InN . *Appl Phys Lett*, 2002, 81: 1246
- [7] O'Leary S K, Foutz B E, Shur M S, et al. Electron transport in wurtzite indium nitride. *J Appl Phys*, 1998, 83: 826
- [8] Wang J X, Sun D Z, Wang X L, et al. High-quality GaN grown by gas-source MBE. *J Cryst Growth*, 2002, 227: 386

Effect of V/III Flux Ratio and Growth Temperature on Indium Droplet Formation During RF-MBE Growth of InN*

Xiao Hongling, Wang Xiaoliang, Han Qin, Wang Junxi, Zhang Nanhong,
Xu Yingqiang, Liu Hongxin, Zeng Yiping, Li Jinmin, and Wu Ronghan

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

Abstract: Due to the low dissociation temperature and high equilibrium vapor pressure of nitrogen, the preparation of indium nitride (InN) epilayers is very difficult. Especially, Indium (In) droplets formation during epitaxial growth of InN films is a serious problem for achieving high quality films. In this paper, the effect of both V/III flux ratio and growth temperature on the formation of indium droplets and the surface morphology of the InN films is studied by radio-frequency plasma-assisted molecular beam epitaxy (RF-MBE). It is found that the density of indium droplets decreases with increasing in V/III flux ratio and growth temperature. The possible mechanism for In droplets formation was suggested based on these experiments. Finally, single crystal InN films without In droplets on the surface are achieved by optimizing the V/III flux ratio and growth temperature.

Key words: InN; RF-MBE; X-ray diffraction

PACC: 3220R; 7280C; 7360F

Article ID: 0253-4177(2005)S0-0016-04

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Nos. G20000683, 2002CB311903), the National High Technology Research and Development Program of China (No. 2003AA311060), and the National Natural Science Foundation of China (Nos. 60136020, 60137020)

Xiao Hongling male, was born in 1976, PhD candidate. He is majoring in crystals growth of III-V nitrides. Email: hlxiao@red.semi.ac.cn
Wang Xiaoliang male, was born in 1963, PhD, professor, advisor of PhD candidates. His research interests focus on nitride materials, physics and related devices.

Received 8 September 2004, revised manuscript received 25 November 2004

©2005 Chinese Institute of Electronics