

MOCVD 法侧向外延生长高质量 GaN*

陈 俊 张纪才 张书明 朱建军 杨 辉

(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: 利用金属有机物气相外延法(MOCVD),在 GaN/蓝宝石复合衬底上,采用侧向外延生长技术制备出高质量的 GaN 外延膜,并对其进行扫描电镜、X 射线双晶衍射、透射电镜测量和分析.发现完全合并后的 GaN 外延层的表面平整,晶体质量较衬底有大幅的提高,透射电镜进行微区位错观察发现窗口区穿透位错大部分发生转向,侧向生长区下方的穿透位错被掩膜阻断.

关键词: GaN; 侧向外延; 穿透位错

PACC: 7280E; 6855; 6170J

中图分类号: TN304.2+3

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2005)S0-0106-03

1 引言

GaN 基材料自引入缓冲层技术之后一段时期内,继续提高 GaN 质量的尝试在很大程度上只限于优化二步法的工艺参数,外延层质量没有大的改善,主要原因是 GaN 和衬底之间的晶格失配和热失配过大,导致外延层中产生大量的晶体缺陷($> 10^8 \text{cm}^{-2}$). Kato 把侧向外延技术引入到 GaN 生长中,使位错密度降低至 10^6cm^{-2} 量级^[1]. 1997 年, Nakamura 利用此技术成功制备出寿命超过 10^4h 的 GaN 激光器,随后实现器件的商品化^[2]. 目前,侧向外延技术已经成为 GaN 基激光器制备的关键技术之一. 本文采用低压 MOCVD 侧向外延技术,制备出适用于 GaN 基激光器制作的高质量 GaN 外延膜,并对侧向外延 GaN 的晶体质量进行表征.

2 实验

采用 MOCVD 法在蓝宝石(0001)衬底上用传统的二步法生长 $2 \mu\text{m}$ 的 GaN,随后用等离子增强化学气相沉积(PECVD)方法沉积 50nm 的 SiN_x . 采用标准光刻和刻蚀工艺制作窗口为 $3 \mu\text{m}$,周期为 $23 \mu\text{m}$ 的长条图形. 掩膜条沿 $\langle 1\bar{1}00 \rangle_{\text{GaN}}$ 方向. 侧向外延生长压力为 $6 \sim 10 \text{kPa}$,温度为 $1040 \sim 1080^\circ\text{C}$,

TMGa 和氨气流量分别为 25sccm 和 $3 \sim 5 \text{slm}$,载气为氢气,反应室的总流量为 10slm . 随后用 Cambridge S-360 扫描电镜观察样品表面和截面. 使用日本理学 SLX-1A 型双晶衍射仪研究侧向外延 GaN 的结构特征. 采用 Philips CM200 透射电子显微镜观察样品中的穿透位错.

3 结果与讨论

图 1 为侧向外延 GaN 完全合并后的 SEM 像. 由图可见,二次外延后 GaN 表面相当平整,原子力显微镜测得样品表面的 RMS 粗糙度为 $\sim 2.8 \text{nm}$ ($30 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$),进一步证实侧向外延 GaN 表面平整,适于器件制作. 由图还可得到,侧向外延 GaN 厚度达 $\sim 4 \mu\text{m}$ 时,相邻的 GaN 侧向生长前沿开始合

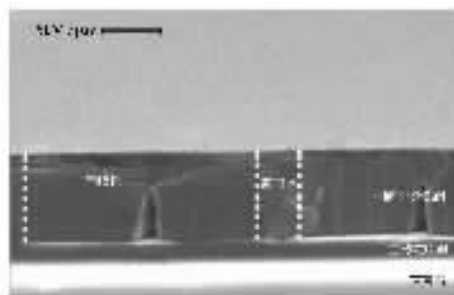


图 1 完全合并后侧向外延 GaN 样品的扫描电镜图像
Fig. 1 A SEM picture of coalesced ELOG GaN

* 国家自然科学基金(批准号:69825107),国家自然科学基金及香港研究资助局联合基金(批准号:5001161953,N-HKU028100)资助项目
2004-11-20 收到,2004-12-18 定稿

并形成平整表面,由此计算得到侧向外延生长合并之前平均的纵横生长速率之比为 2.5.

无论是采用 HVPE^[3] 还是 MOCVD^[4] 法侧向外延生长 GaN,沿垂直于掩膜条纹的方向上,掩膜区上方侧向生长的 GaN 的晶面偏离窗口区 GaN 的晶面,即侧向生长区与窗口区垂直生长的 GaN 之间存在 *c* 轴方向上的取向差,形成晶面倾斜(wing tilt).图 2 为侧向外延 GaN 层(0002)面 X 射线倒空间 mapping. 晶面倾斜会导致倒空间 mapping 中衍射峰沿 ω 轴方向的分裂.图 2 中只观察到一个衍射峰,而且衍射峰沿 ω 方向没有明显的分离,说明侧向生长区域相对窗口区 GaN 不存在取向差,即没有晶面倾斜.为了进一步研究侧向外延 GaN 相对于衬底 GaN 的结构性能变化,分别测量两者的(0002)及(11 $\bar{2}$ 4)的双晶摇摆曲线,结果如图 3 所示.侧向外延 GaN 的(0002)半高宽从二步法 GaN 衬底的 270'' 降到 180'',(11 $\bar{2}$ 4)的半高宽则从衬底 GaN 的 338'' 降低到侧向外延 GaN 的 270''.(0002)和(11 $\bar{2}$ 4)摇摆曲线的半高宽分别反映 GaN 晶体中螺位错和刃位错密度的信息.侧向外延 GaN 相对于衬底 GaN 的(0002)及(11 $\bar{2}$ 4)半高宽都有大幅度的降低,说明采用侧向外延技术后 GaN 外延层中的平均位错密度明显降低.

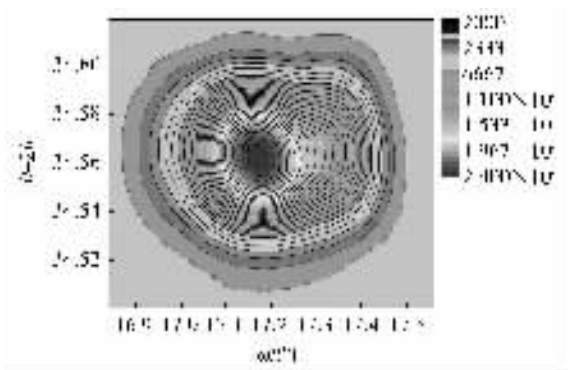


图 2 完全合并后侧向外延 GaN 样品的(0002)倒空间 mapping
Fig.2 (0002) X-ray reciprocal space mapping of coalescenced ELOG

图 4 为侧向外延 GaN 窗口区附近在不同衍射矢量下的截面透射电镜图像.其中衍射矢量为 $g=1\bar{2}10$ 时,观察到 GaN 中穿透位错的刃位错分量的信息,衍射矢量为 $g=0002$ 时,观察到 GaN 中穿透位错的螺位错分量的信息.由图可见,二步法 GaN 中由于 GaN 与蓝宝石之间大的晶格失配和热失配形

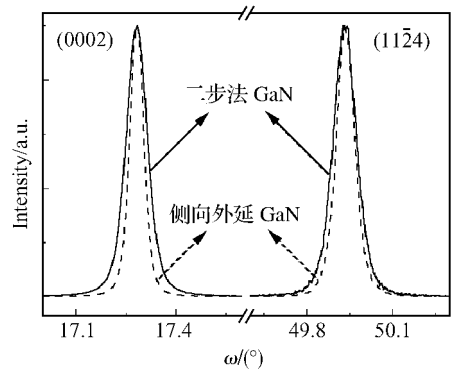


图 3 侧向外延 GaN 与衬底 GaN 的(0002)、(11 $\bar{2}$ 4) X 射线双晶摇摆曲线 实线为衬底,虚线为侧向外延 GaN.
Fig.3 (0002) and (11 $\bar{2}$ 4) X-ray rocking curves of ELOG GaN and GaN template Solid lines indicate results for GaN template and dashed line for ELOG GaN.

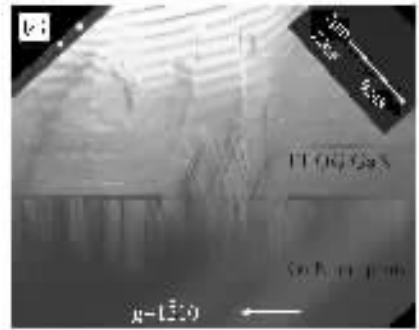


图 4 侧向外延 GaN 窗口区附近的截面透射电镜图像 (a) $g=1\bar{2}10$;(b) $g=0002$.
Fig.4 TEM images of ELOG GaN in the vicinity of window region for $g=1\bar{2}10$ (a) and $g=0002$ (b)

成大量的穿透位错,穿透位错主要为混合型位错(对应于在图 4(a)及(b)中都观察到的位错线).此外,从图 4 可以看出,SiN_x 掩膜层阻断了所有从 GaN 缓冲层与蓝宝石衬底界面延伸到掩膜下方的穿透位错.在窗口区域,有少量从 GaN 缓冲层与蓝宝石衬底界面延伸到掩膜窗口的穿透位错穿过窗口区,进

入二次生长的 GaN 中. 但是如图 4(a) 所示, 这些位错大部分在侧向外延生长了大约 $2\mu\text{m}$ 内发生转向, 只有少量的位错继续延伸直至样品的表面(如图 4(b) 所示). 因此, 使用侧向外延生长方法, 不仅大幅度降低了侧向生长区域的位错密度, 而且还降低了窗口区的位错密度, 使二次外延 GaN 的晶体质量大大提高. 截面像 TEM 的观察结果与 X 射线衍射结果一致.

4 结 论

采用 MOCVD 方法, 侧向外延 GaN 完全合并后, GaN 外延层表面平整, 无晶面倾斜, 晶体质量相对于 GaN 衬底明显改善. TEM 分析发现: 窗口区的穿透位错大部分发生转向; 掩膜阻断源于 GaN 衬底的穿透位错, 侧向生长区域位错密度大幅度降低.

致谢 感谢中国科学院物理研究所电镜中心张 在透射电镜制样及观察分析中提供的帮助.

参 考 文 献

- [1] Kato Y, Kitamura S, Hiramatsu K, et al. Selective growth of wurtzite GaN and $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ on GaN/sapphire substrates by metalorganic vapor phase epitaxy. *J Cryst Growth*, 1994, 144: 133
- [2] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S, et al. InGaN/GaN/Al-GaN-based laser diodes with modulation-doped strained-layer superlattices. *Jpn J Appl Phys*, 1997, 36: L1568
- [3] Sakai A, Sunakawa H, Usui A. Transmission electron microscopy of defects in GaN films formed by epitaxial lateral overgrowth. *Appl Phys Lett*, 1998, 73: 481
- [4] Marchand H, Wu X H, Ibbetson J P, et al. Microstructure of GaN laterally overgrown by metalorganic chemical vapor deposition. *Appl Phys Lett*, 1998, 73: 747

Epitaxial Lateral Overgrowth of High Quality GaN by MOCVD*

Chen Jun, Zhang Jicai, Zhang Shuming, Zhu Jianjun, and Yang Hui

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

Abstract: High quality of GaN epilayers are obtained by epitaxial lateral overgrowth (ELOG) in a metalorganic chemical vapor deposition on GaN/sapphire composite substrate. The ELOG sample is characterized by scanning electron microscope (SEM), double-crystal X-ray diffraction, and transmission electron microscope (TEM). It is found that the coalesced GaN layer exhibits smooth surface and the crystalline quality is greatly improved with respect to that of GaN template. TEM results indicate that all the threading dislocations under the mask have been blocked, and most of the threading dislocations within window region have been directed away from along c axis.

Key words: GaN; epitaxial lateral overgrowth; threading dislocation

PACC: 7280E; 6855; 6170J

Article ID: 0253-4177(2005)S0-0106-03

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China(No. 69825107), the National Natural Science Foundation of China, and the Research Grants Council of HongKong Joint Program(No. 5001161953, N-HKU028100)