

# 分子束外延 GaN/GaAs 立方相异质结构的电子显微分析\*

韩培德<sup>1,3</sup> 杨海峰<sup>1</sup> 杨辉<sup>2</sup> 林耀望<sup>2</sup> 张泽<sup>1</sup> 李新峰<sup>2</sup> 周增圻<sup>2</sup>

(1 中国科学院凝聚态物理中心 北京电子显微镜实验室 北京 100080)

(2 中国科学院半导体研究所 国家光电子工艺中心 北京 100083)

(3 中国科学院半导体研究所 半导体材料科学开放实验室 北京 100083)

**摘要** 运用透射电子显微镜分析了分子束外延的立方相 GaN/GaAs 异质微观结构。在 GaN 外延层中,观察到大量的、不对称的{111}面缺陷(层错和微孪晶),以及失配位错在该大失配界面上的非优化排列,并对面缺陷的生成机理进行了讨论

**PACC:** 6170J, 6170P, 6855

## 1 引言

随着 GaN 及其化合物在蓝光和绿光波长的光电子器件方面的应用<sup>[1,2]</sup>,使它成为当前人们研究的热点课题。GaN 有两种相结构:稳态的纤维锌矿六方相和亚稳态的闪锌矿立方相。一般来说,六方相 GaN 生长在具有六角对称的平面上,目前主要采用(0001)α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(蓝宝石)作衬底<sup>[3]</sup>;而立方相 GaN 则生长在立方相衬底的(001)面上,如 GaAs<sup>[4]</sup>。尽管 p 型掺杂的六方相 GaN 已经获得成功,但对掺杂的控制还很困难<sup>[2,5]</sup>,且蓝宝石衬底和 GaN 外延膜没有共同的解理面,以致于用此异质结构很难做成常规的端面发光的激光器。而立方相 GaN 却能克服这些缺点,它既可以随意掺杂<sup>[6]</sup>,又有共同的解理面。虽然立方相 GaN 的带隙(3.2eV)比六方相 GaN 的带隙(3.4eV)少 0.2eV,但仍在蓝、绿光波长的范围。另外, GaAs 是目前应用广泛的化合物半导体,在其上生长 GaN 必将为 GaN 的应用开辟更为广阔的前景。然而 GaN/GaAs 的失配(20%)是很大的,这不可避免地会在 GaN 外延层中产生大量的缺陷,目前其主要表现为层错和微孪晶,而且贯穿整个外延层<sup>[7,8]</sup>,这样会导致无辐射的光电复合中心的形成,并阻碍其应用。在本文中,我们运用透射电子显微镜观察和分析分子束异质外延 GaN/GaAs (001)微观结构,澄清了这些缺陷形成的原因,从而为提高 MBE 生长立方相 GaN 的相纯度及其完整性打下一个坚实的基础。

\* 本课题由国家自然科学基金(69676009)和国家博士后流动基金提供赞助

韩培德 男,1960年生,博士后,目前从事金属有机化学气相沉积的研究

杨海峰 男,1973年生,硕士,目前从事半导体异质结构的透射电子显微学研究

杨辉 男,1961年生,研究员,目前从事氮化镓半导体材料和器件的研究

1998-07-08 收到,1998-08-26 定稿

## 2 实验过程

分子束外延生长 GaN/GaAs 的过程如下: 先生长 GaAs 过渡层 200~300nm, 以获得高质量的 GaAs 表面, 然后在此基础上再转换入立方相 GaN 的外延生长。整个外延生长过程中, 采用反射高能电子衍射仪实时观测, 并及时把握住由 GaAs 衍射斑点转变为 GaN 衍射斑点外延生长条件。GaAs 分子束外延生长的典型参数如下: 衬底为 (100) 偏向  $110^\circ$  2~3 的 GaAs, 外延生长温度为 580~600 °C, Ga 源炉温度为 1150 °C, As 源炉温度为 300 °C, 生长速率为 1.0  $\mu\text{m}/\text{h}$ 。我们采用氮等离子体源外延生长 GaN, 通过氮等离子体发生装置的电压或电流和氮气流量来控制激活氮的数量, 与此同时调整 Ga 源的温度 (960~1050 °C), 以获得立方相 GaN 生长合适的 V/III 比。V/III 比值偏低有利于高质量 GaN 的生长, 若过低则外延表面易形成 Ga 滴。衬底温度在 500~680 °C 范围内调节。其详情请参见文献[4]。

透射电镜样品的制备则采用常规的方法, 首先把两片样品有膜的一面用胶对粘, 用夹具夹紧, 放在加热台上加热约 90 分钟, 冷却后用线切割机切成约 0.5mm 厚的小薄片, 然后用腊沾在小柱上, 用砂纸进行机械减薄, 减至约 0.25mm, 抛光后翻面, 继续用砂纸机械减薄, 一直减至约 20 $\mu\text{m}$ , 接着放在 dimple 仪器上抛光减薄至约 10 $\mu\text{m}$ , 最后在离子薄化器上用 Ar<sup>+</sup> 离子减至电子透明。对样品的制备取两个相互垂直的  $110^\circ$  方向, 样品的分析全部在 JE-OL-2010 高分辨电子显微镜上进行, 加速电压为 200kV, 点分辨率为 0.19nm。

## 3 结果和讨论

图 1(见图版 D) 为沿  $[\bar{1}10]$  带轴方向投影的高分辨电子显微像, 其极化方向由大角度会聚束电子衍射来确定。从该样品中观察到外延膜内存在许多层错和微孪晶, 在更大的范围内测得界面偏向角为  $3^\circ$ ; 即界面法线  $[001]$  绕  $[\bar{1}10]$  轴偏向  $[110]$  方向。界面的晶格出现一薄层亮的衬度, 这可能是在大失配下的晶格扭曲造成的。经仔细观察, 界面处的失配位错不仅有 Lomer 型, 而且还存在 60 型和层错底端的不全位错, 这与 Trampert 在成核初期观察到仅有 Lomer 型失配位错的情况略有不同<sup>[7]</sup>。而且, 我们发现这些失配位错的间距并非是最佳的, 这可借助于下列公式<sup>[9]</sup>来讨论残余应变

$$\epsilon = f - \delta = \frac{a_s - a_1}{a_1} - \frac{b \cdot e [110]}{nd (110)} \quad (1)$$

其中  $a_k, a_s$  分别为外延膜和衬底的晶格常数;  $b$  为位错的柏格斯矢量;  $e [110]$  为  $[110]$  方向的单位矢量;  $d (110)$  为  $(110)$  面间距;  $n$  为两相邻失配位错间  $\{111\}_{\text{GaN}}$  晶格面的个数。若以  $n$  为横坐标,  $\epsilon$  为纵坐标, 则  $e \sim n$  对应关系可由图 2(见图版 D) 来表示。曲线 I 对应着失配位错全为 Lomer 型的情况, 此时,  $5\{111\}_{\text{GaN}} // 4\{111\}_{\text{GaAs}}$  为残余应变最小; 曲线 II 对应着失配位错全为 60 型的情况, 此时,  $3\{111\}_{\text{GaN}} // 2\{111\}_{\text{GaAs}}$  为应变最小; 曲线 III 对应着 Lomer 和 60 型失配位错交替出现的情况, 此时,  $4\{111\}_{\text{GaN}} // 3\{111\}_{\text{GaAs}}$  为应变最小。如果每个位错间距增加一个  $\{111\}$  晶格面, 则上述三种情况中的残余拉应变会猛增到 3.3%~7.5%。如果平均减少一个  $\{111\}$  面, 薄膜则处于压应变, 其残余应变值剧烈上升到 -10%~-20%。由此可见, 任何失配位错相对位置的微小变化都会引起残余应变极大的波动, 而这样大的应变波动很容易导致其它缺陷(如 60 全位错、90 和 30 不全位错)的形成, 这就可以解释为什么有如

此大量的层错 而要消除这些层错的关键,是怎样在最初生长中释放应力应变,并设法使失配位错处于优化的排列 为此,我们在MBE 外延生长初期运用反射高能电子衍射仪实时监测,严格控制外延生长条件(包括生长温度, Ga 源温度与 V/III比),促使失配位错处于优化排列状态,从而提高立方相 GaN 晶体的相纯度及其完整性

图 3(见图版 I)为沿 $[\bar{1}10]$ 带轴方向投影的界面附近的高分辨象 在该截面出现了更多的层错和孪晶,其中有一直径为约 20nm 的纳米孪晶 该孪晶与基体(包括 GaN 外延膜和 GaAs 衬底)相对旋转了  $39^\circ$ ;界面为 $(2\bar{2}1)_T // (001)_{GaAs}$ ,在纸面内沿界面向右为 $[\bar{1}14]_T // [\bar{1}10]_{GaAs}$ ,这里下标 T 表示 GaN 孪晶 因此界面的失配度降低为:

$$f_2 = \frac{d(\bar{1}10)_{GaAs} - 4d(\bar{1}14)_{GaN}}{d(110)_{GaAs}} = -6.6\% \quad (2)$$

并处在压应变状态 失配度的降低,直接导致界面能量的减少,这是形成孪晶的主要原因之一 但为什么不会形成 $(114)_{GaN} // (001)_{GaAs}$ 的生长,至今仍不清楚 也许是由于拉应变和压应变不能同时存在于同一薄膜内的缘故吧

对比图 3 和图 1 可以得出,图 3 中 $(\bar{1}11)$ 和 $(\bar{1}\bar{1}1)$ 面上的面缺陷要多于图 1 中 $(111)$ 和 $(\bar{1}\bar{1}1)$ 面上的,这与缺陷的固有性质有关 在闪锌矿结构的拉应变薄膜中, $(\bar{1}11)$ 和 $(\bar{1}\bar{1}1)$ 面上的位错为  $\beta$  型,而在 $(111)$ 和 $(\bar{1}\bar{1}1)$ 面上的位错为  $\alpha$  型 一般来说,闪锌矿结构的  $\beta$  型位错能量要小于  $\alpha$  型位错能量<sup>[10]</sup>,加之,绕 $[\bar{1}10]$ 轴有一偏向角,所以图 1 中的面缺陷要少些 而在无偏向角的方向(见图 3),GaN 不得不以其它形式来进行其应变的弛豫,如微孪晶 因此,我们建议绕 $[\bar{1}10]$ 轴形成偏向角,或绕 $[100]$ 轴,使得在 $[\bar{1}10]$ 和 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 两个方向都形成偏向角

#### 4 结论

综上所述,我们在 $(\bar{1}10)$ 和 $(110)$ 两个相互垂直的横截面上,用高分辨透射电子显微镜分析了分子束异质外延 GaN/GaAs(001)的微观结构 在立方相 GaN 薄膜中观察到大量的、不对称的面缺陷(层错和微孪晶),即: $(\bar{1}11)$ 和 $(\bar{1}\bar{1}1)$ 面上的缺陷多于 $(111)$ 和 $(\bar{1}\bar{1}1)$ 面上的,这是  $\alpha$  型层错固有的性质,以及衬底表面的偏向角抑制了  $\alpha$  型层错的缘故 另外,还讨论了层错和微孪晶形成的机制:失配位错间距的非优化是引起层错的原因之一,而失配能量的减小则是形成微孪晶的原因之一 运用透射电子显微镜与 MBE 生长中反射高能电子衍射的实时监测相结合,可以实现严格控制 MBE 外延生长条件,有利于提高立方相 GaN 生长的相纯度及其完整性

#### 参 考 文 献

- [1] Shuji Nakamura, Takashi Mukai and Masayuki Senoh, Appl Phys Lett, 1994, **64**(13): 1687~ 1689
- [2] Shuji Nakamura, Gerhard Fasol, The Blue Diodes, (Springer-verlag Berlin Heidelberg 1997), p. 1~ 5, p. 177~ 260
- [3] X. H. Wu, L. M. Brown, D. Kapolnek *et al*, J. Appl Phys, 1996, **80**(6): 3228~ 3237.
- [4] H. Yang, O. Brandt and K. Ploog, Phys Stat Sol (b), 1996, **194**: 109~ 120
- [5] S. Strite, M. E. Lin and H. Morkoc, Thin Solid Films, 1993, **231**: 197~ 210
- [6] J. I. Pankove, In Diamond, Silicon Carbide and Related Wide Bandgap Semiconductors, Edited by J. T. Glass, R. Messier and Pittsburgh PA, 1990, p. 515

- [ 7 ] A. Trampert, O. Brandt, H. Yang *et al* , Appl Phys Lett , 1997, **70**(5): 583~ 585
- [ 8 ] Oliver Brandt, Hui Yang, Jochen R. Muellerhaeuser *et al* , Materials Science and Engineering, 1997, **B43**: 215~ 221.
- [ 9 ] J. W. Matthews, Chapter 8 in Epitaxial Growth, Part B, edited by J. W. Matthews (Academic, New York 1975), p. 559.
- [10] S. Takeuchi, K. Suzuki, K. Maeda *et al* , Philosophical Magazine A, 1984, **50**(2): 171~ 178

## Electron Microscopy Analysis of GaN/GaAs Cubic Heterostructure Grown by MBE

Han Peide<sup>1,3</sup>, Yang Haifeng<sup>1</sup>, Yang Hui<sup>2</sup>, Lin Yaowang<sup>2</sup>,  
Zhang Ze<sup>1</sup>, Li Xinfeng<sup>2</sup>, Zhou Zengqi<sup>2</sup>

(1 Beijing Laboratory of Electron Microscopy, Center for Condensed Matter Physics,  
The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

(2 National Research Center for Optoelectronic Technology, Institute of Semiconductor,  
The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083)

(3 Laboratory of Semiconductor Materials Science, Institute of Semiconductor,  
The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083)

Received 8 July 1998, revised manuscript received 26 August 1998

**Abstract** A cubic GaN/GaAs heterostructure grown by molecular beam epitaxy (MBE) is studied by transmission electron microscopy. It is observed that a lot of {111} planar defects (stacking faults and microtwins) distributed asymmetrically in this GaN film and misfit dislocations lay non-optimally at the interface. The mechanism of forming planar defects is discussed.

**PACC:** 6170J, 6170P, 6855