

高质量 GaN 材料的 GSMBE 生长*

王晓亮 孙殿照 孔梅影 张剑平 付荣辉
朱世荣 曾一平 李晋闽 林兰英

(中国科学院半导体研究所材料科学中心 北京 100083)

摘要 在国内首次用 NH_3 作氮源的 GSMBE 方法在 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 衬底上成功地生长出了高质量的 GaN 单晶外延膜. GaN 外延膜的(0002)X 射线双晶衍射峰回摆曲线的半高宽最窄为 $8'$; 背景电子浓度最低为 $2.7 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$, 霍尔迁移率最好为 $91 \text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$; 室温光致发光谱上只观察到一个强而锐的带边发光峰, 谱峰位于 363nm 处, 室温谱峰半高宽最窄为 8nm (75meV).

PACC: 6855, 7280E, 8115G, 7855; **EEACC:** 2520D, 0510D

1 引言

宽禁带氮化物材料在蓝紫光电子器件及高温微电子器件领域具有广阔的应用前景, 因此得到了世界各国的高度重视. 用 MOCVD 技术在 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 衬底上制备的 GaN 基蓝光发射二极管已经商品化^[1], 制备的 GaN 基蓝光激光二极管已实现室温连续激射^[2]. 尽管 MBE 技术具有生长温度低, 不需要任何后处理即可得到 P 型 GaN 材料等优点, 但氮化物的 MBE 技术尚处于发展的早期阶段, 有许多问题有待研究, 目前的主攻方向是降低背景电子浓度、提高材料的光电质量等. 本文报道我们用 NH_3 作氮源在 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 衬底上用 GSMBE 技术生长 GaN 材料所取得的新进展.

2 实验

GSMBE 系统由国产 MBE 系统改装而成. 氮源用 NH_3 气, 镓源用固态源. NH_3 气态源炉温度保持在 800°C 左右. 衬底用(0001) Al_2O_3 , 衬底的清洁处理及生长方法见文献[3]. 因生长条件不同, GaN 外延层的生长速率可在每小时几十纳米到 0.5 微米之间变化, 外延膜的厚度在 $0.4 \sim 2 \mu\text{m}$ 范围. 所有样品均未有有意掺杂. 外延层的结晶学性质用 X 射线双晶衍射谱及 X 射线双晶衍射回摆曲线来表征, 所用仪器为日本理学(Rigaku)SLX-1AL 型 X 射线双晶衍射仪. 用 Van der Pauw 法测量外延层的电学性质. 用光致发光谱测量外延层的光学性质, 激发光源为 He-Cd 激光器, 激发波长为 325nm .

* 国家“九五”重点科技攻关计划及博士后科学基金资助项目

王晓亮 男, 1963 年生, 博士后, 副研究员, 目前从事氮化物材料及器件的研究工作

孙殿照 男, 1942 年生, 研究员, 目前从事氮化物材料及器件的研究工作

1997 年 5 月 4 日收到初稿, 1997 年 9 月 8 日收到修改稿

3 实验结果

图 1 给出了一个典型样品 BN14 的 X 射线双晶衍射谱测量结果. 由图可以看到三个衍射峰, 其中二个为 GaN 膜的衍射峰, 分别为(0001)面的二级及四级衍射峰; 另一个衍射峰为蓝宝石衬底(0001)面的六级衍射峰. 图 2 给出了该样品 BN14 及样品 BN22 的(0002)X 射线双晶衍射峰的回摆曲线, 由该图可知, 其半高宽分别为 $8'$ 和 $36'$ 样品 BN14 的(0002)X 射线双晶衍射回摆曲线的半高宽低于用同类方法在同样取向的蓝宝石衬底上 GaN 的外延结果^[4,5].

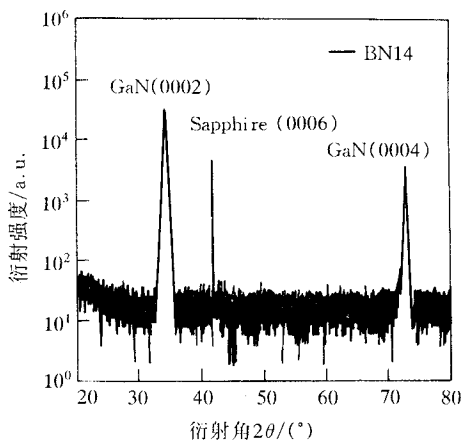


图 1 样品 BN14 的 X 射线双晶衍射曲线

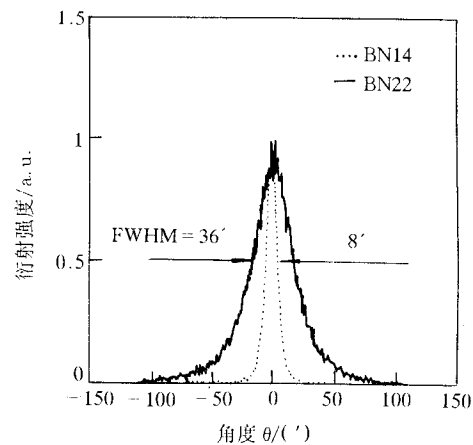


图 2 样品 BN14 及 BN22 的(0002) X 射线双晶衍射回摆曲线

表 1 给出了用 Van der Pauw 法对二个典型样品 BN14 及 BN22 的 Hall 及(0002)X 射线双晶衍射回摆曲线测量结果, 为了比较, 表中也给出了对样品 BN12 的测量结果^[3]. 这三个样品均未有有意掺杂. 由表 1 可见, 样品 BN22 在室温下的背景电子浓度为 $2.7 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$, 电子迁移率为 $91 \text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$. 根据我们所掌握的资料, 这一结果接近或达到了国外在 1995 年左右所报道的用同种方法生长 GaN 外延膜所取得的较好结果^[4,5], 说明 GaN 外延层具有较好的质量. 与样品 BN12 和样品 BN14 相比, BN22 的背景电子浓度降低了一个多数量级, 迁移率提高了将近一倍. 降低背景电子浓度、提高迁移率是通过提高生长温度和提高氮源的纯度以及提高生长室的背景真空度来实现的.

表 1 样品 BN12、BN14 及 BN22 的 Hall 及 X 射线双晶衍射测量结果

样品	厚度/ μm	电阻率/ $(\Omega \cdot \text{cm})$	霍尔因子	载流子浓度/ cm^{-3}	迁移率/ $(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	(0002)X 射线衍射峰回摆曲线的半高宽/ $(')$
BN12	1.6	2.498×10^{-3}	0.96791	5×10^{19}	50	11.0
BN14	2.0	1.498×10^{-3}	0.99988	9.1×10^{19}	46	8.0
BN22	1.2	2.558×10^{-2}	0.94384	2.7×10^{18}	91	36.0

图 3 给出了三个样品的室温光致发光谱测试结果. 由图 3 可见, 在光致发光谱上只能观察到一个锐而强的带边发光峰, 其峰值波长为 363nm (3.416eV). 样品 BN12 和样品 BN14

室温光致发光谱的半高宽均为 14nm, 样品 BN22 的半高宽则低至 8nm(75meV). 样品 BN22 的室温光致发光谱的半高宽与文献^[6]中报道的用同类方法生长的 GaN 膜的半高宽相同. 在样品的光致发光谱上只观察到一个强而锐的带边发光峰, 未观察到与缺陷相关的黄色发光带^[7], 说明样品具有较高的质量.

在生长 GaN 样品 BN12 和 BN14 时, 我们尽量使二者具有完全相同的生长过程和生长条件: 取 NH₃ 流量约为 40sccm, 缓冲层生长温度约为 550℃, 缓冲层厚度约为 30nm, 生长 GaN 外延层的温度约为 730℃, Ga 束源炉温度约为 820℃. 由于二者的生长条件基本相同, 因此, 二者的 X 射线双晶衍射测试结果和电学测量结果(表 1) 基本相近, 室温光致发光谱测试结果(图 3)也基本一致. 生长 GaN 样品 BN22 时, 生长条件不同于样品 BN12 和 BN14:

(1) 生长 BN22 的温度比生长 BN12 和 BN14 的温度高约 50℃; (2) 生长 BN22 时所用 NH₃ 源的纯度为 99.9995%, 比生长 BN12 和 BN14 时所用 NH₃ 源的纯度高; (3) 生长 BN22 时的生长室的背底真空度比生长 BN12 和 BN14 时高约一个数量级. 通常认为未有意掺杂 GaN 膜具有较高的背景电子浓度是由于 GaN 膜中的氮空位^[8]及源材料、生长环境中存在的施主杂质(如氧等)^[9]. 由于提高生长温度可增加 NH₃ 在生长表面上的裂解效率, 使 GaN 膜中的氮空位减少, 源材料纯度的提高及生长环境的更加清洁减少了可能进入外延层的施主杂质的数量, 因此样品 BN22 具有较低的背景电子浓度、较高的迁移率及较好的光学性质. 但是, 与样品 BN12 和 BN14 相比, BN22 的 X 射线双晶衍射峰的半高宽较大, 根据生长过程我们认为这是由于样品 BN22 的缓冲层质量不够好引起的. 通过改善缓冲层的质量, 可进一步提高外延层的质量.

4 结论

在国内首次使用 NH₃ 作氮源的 GSMBE 方法成功地在(0001)Al₂O₃ 衬底上生长出了高质量的 GaN 单晶外延膜. GaN 膜的(0002)X 射线双晶衍射峰回摆曲线半高宽最好为 8'; 非有意掺杂电子浓度低至 $2.7 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$; 霍尔迁移率最好为 $91 \text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$; 在室温光致发光谱上只观察到一个强而锐的带边发光峰, 峰值波长约为 363nm, 室温谱峰半高宽最窄为 8nm(75meV).

致谢 第一作者感谢中国科学院西安光机所侯洵院士的关怀和鼓励. 中国科学院半导体所王小军博士及研究员杨辉博士对样品进行了光致发光谱测试, 并与第一作者进行了非常有益的讨论, 在此表示衷心感谢; 感谢研究员王玉田、副研究员高维宾及王万年对样品进行了 X 射线双晶衍射和霍尔测试.

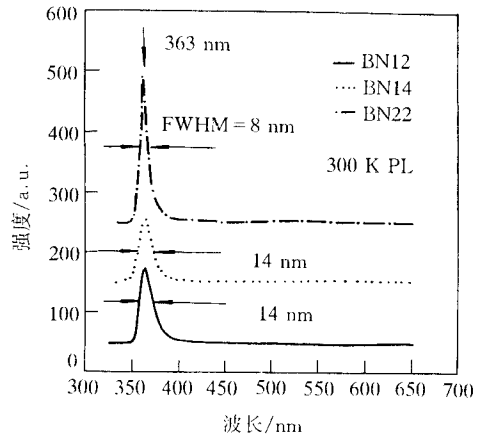


图 3 样品的室温光致发光谱

参 考 文 献

- [1] S. Nakamura and J. J. Tietjen, *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **74**: 1687.
- [2] S. Nakamura *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(7): 868.
- [3] 王晓亮,孙殿照,李小兵,等,高技术通讯,1997, **3**: 1~3.
- [4] R. C. Powell, N. -E. Lee and J. E. Greene, *Appl. Phys. Lett.*, 1992, **60**(20): 2505.
- [5] Z. Yang, L. K. Li and W. I. Wang, *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **67**: 1686.
- [6] O. Gluschenkov, J. M. Myoung, K. H. Shim *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(7): 811~813.
- [7] Jorg Neugebauer and Chris G. Van de Walle, *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**(4): 503.
- [8] P. Boguslawski, E. L. Briggs and J. Bernholc, *Phys. Rev. B*, 1995, **51**(23): 17255.
- [9] R. D. Dupuis, *J. Cryst. Growth*, 1997, **178**: 56.

High Quality GaN Grown by GSMBE

Wang Xiaoliang, Sun Dianzhao, Kong Meiyong, Zhang Jianping, Fu Ronghui,
Zhu Shirong, Zeng Yiping, Li Jinmin and Lin Lanying

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

Received 4 May 1997, revised manuscript received 9 September 1997

Abstract High quality gallium nitride single crystalline epitaxial layer has been achieved on (0001) sapphire substrate by GSMBE using ammonia as nitrogen source for the first time in China. The narrowest full width at half maximum (FWHM) of the (0002) double crystal X-ray diffraction rocking curve is 8 arcmin. The undoped electron concentration as low as $2.5 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ can be obtained. The highest Hall mobility achieved is about $91 \text{cm}^2 / (\text{V} \cdot \text{s})$. On room temperature photoluminescence spectra, an intense and narrow band edge emission peaked at 363nm can be observed with a narrowest FWHM of 8nm (75meV); the yellow emission in the energy range of 500~600 nm is not noticeable, which signifies the high quality of the film.

PACC: 6855, 7280E, 8115G, 7855; **EEACC:** 2520D, 0510D