

文章编号:1673-9981(2014)03-0169-04

AlN/蓝宝石模板上生长的 $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 薄膜 结构与光学性能研究^{*}

王君君,刘宁炆,张 康,张志清,赵 维,范广涵,张 娜,陈志涛

广东省工业技术研究院(广州有色金属研究院),广东 广州 510650

摘 要:采用 MOCVD 方法在 AlN/蓝宝石模板上生长高铝组分 $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 薄膜,并采用高分辨率 XRD(HRXRD)及阴极荧光(CL)方法对其进行了表征.结果表明, AlGaN 薄膜产生了相分离,其原因为厚膜中的应力弛豫及 Al 原子低的表面迁移率.

关键词:相分离;AlN/蓝宝石模板; $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$

中图分类号:TN304.2

文献标识码:A

AlGa_N 材料可广泛应用于紫外光电子器件及高频、高功率、耐高温电子器件,因而受到极大的关注^[1-2].近年来,人们对 AlGa_N 基器件的研究取得了很大进展^[3-6],突出表现在 AlN/蓝宝石模板上生长 AlGa_N 材料及其质量改进. AlGa_N 基器件性能的进一步提高依赖于对 AlGa_N 材料特性的深入研究.由于 Al-N 键和 Ga-N 键特性的差异,Al 摩尔组分对 AlGa_N 的质量有重大影响,并将影响材料的光、电、热等其它性能.对不同 Al 摩尔组分的 AlGa_N 性能的研究已有诸多报道, P. Chen 等人报道了在 Al-GaN/GaN(Al 摩尔组分为 0.23 和 0.4)异质结生长过程中有岛状结构形成,并解释了这种岛状结构可能是由于材料表面原子迁移率不同而形成的^[7]. Sun Q 等人用阴极荧光方法研究发现,在 $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{N}$ 薄膜生长方向上 Al 的分布相对均匀,而横向则发生相分离^[8]. Pinos A 等人通过室温扫描近场 PL 光谱测量了 AlN 摩尔组分从 0.3 到 0.5 变化的 AlGa_N 外延膜的势能起伏^[9].然而,更高 Al 组分的 AlGa_N 薄膜性能的报道还很少见.本文采用高分辨 XRD 和低温阴极荧光表征方法研究了 $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 薄膜的结构性能及光学性能.

1 实验部分

本实验的样品是采用金属有机物气相沉积法(MOCVD)在 AlN/蓝宝石模板上生长 $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 薄膜.膜的生长温度为 1050 °C,生长压力为 5×10^3 Pa,三甲基镓(TMGa)、三甲基铝(TMAI)及氨气分别作为 Ga 源、Al 源和 N 源.高纯氢气为载气,稀释的硅烷(SiH_4)为 n 型掺杂剂.首先在 AlN/蓝宝石模板上沉积一层 0.5 μm 厚非掺杂的 AlGa_N 薄膜,然后再生长 1.0 μm 掺硅的 AlGa_N 薄膜.在沉积过程中,保持 AlGa_N 中 Al 组分不变,当 SiH_4 流量分别为 0, 0.1, 0.5, 0.7, 1.0 L/min 时,生长得到的样品分别命名为样品 A, B, C, D, E. A~E 5 个 AlGa_N 薄膜样品的膜厚均为 1.5 μm.实验中还制备了样品 F 作为对比, F 是在 AlN/蓝宝石模板上只生长 0.5 μm 的 AlGa_N 膜,不生长厚 1.0 μm 掺硅的 AlGa_N 膜.

采用 Bruker 公司生产的 D8 型高分辨率 X 射线衍射仪,对所制备的样品进行 ω -2 θ 扫描以研究其结构性能,该衍射仪的 X 射线为 Cu 的 $K\alpha$ 线,其波长值 $\lambda = 1.05 \times 10^{-6}$ m.通过配有 CL 设备的扫描电镜,在 10 K

收稿日期:2013-11-12

^{*} 基金项目:广东省战略性新兴产业 LED 专项(项目编号 2010A081001001, 2011A081301003, 2012A080301003, 2012A080302002);广州市应用基础研究项目(编号 2013J4100014)

作者简介:王君君(1987-),女,江西九江人,工程师,硕士.

温度下对样品的表面形貌及光学特性进行测试。

2 实验结果与讨论

2.1 XRD 测试结果

图1为A,B,C,D,E五个样品的XRD测试结果.由图1可知,五条谱线均出现了AlGaIn和AlN的峰,且每条谱线出现了三个AlGaIn的峰.图2为从5个样品XRD扫描结果中截取的存在三个AlGaIn峰的谱图.通过AlN和GaIn晶格常数线性插值计算得到,样品中Al组分大约为60%.当SiH₄流量从0到1 L/min变化,AlGaIn峰的位置呈S形变化,这可能是由于多种机制共同作用的结果,如Si原子对AlGaIn晶格产生的影响,以及在外延生长过程中不同Si掺杂水平对应力所起的调控作用^[10-12].确切的影响机制需进一步研究.

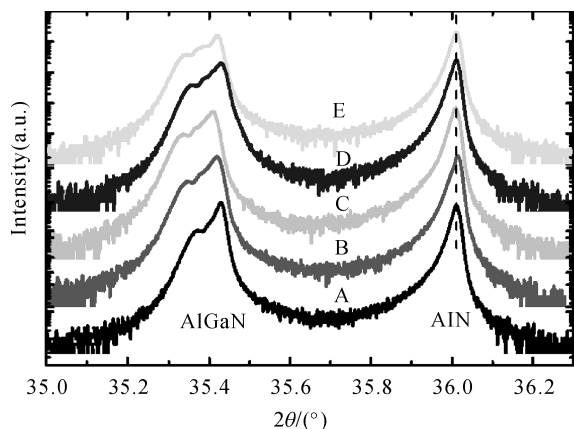


图1 样品A,B,C,D,E的XRD ω - 2θ 扫描图谱

Fig. 1 XRD ω - 2θ scanning spectra of sample A, B, C, D and E

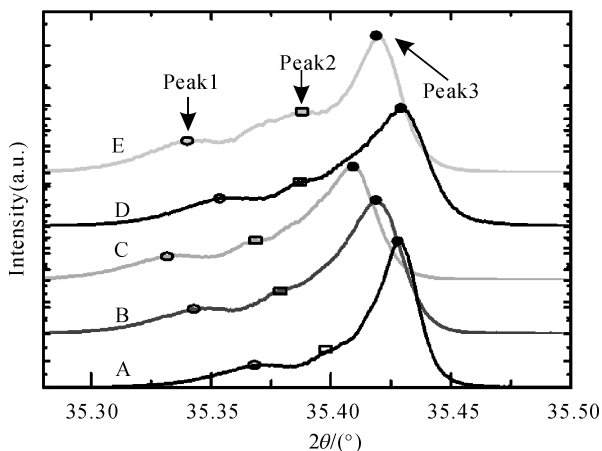


图2 样品XRD ω - 2θ 扫描图谱(AlGaIn峰)

Fig. 2 XRD ω - 2θ scanning spectra of samples (AlGaIn peak)

每个样品出现了三个AlGaIn的峰.为找出三个峰的来源,将样品D和样品F的XRD扫描结果进行对比,如图3所示.由图3可知,样品F只出现一个AlGaIn峰,角度为 35.34° ,与其他五个样品中第一个AlGaIn峰的位置相近.因此,我们可得出,峰1来源于样品中下面厚 $0.5\ \mu\text{m}$ 非掺杂的AlGaIn层,而峰2和峰3来源于上面厚 $1.0\ \mu\text{m}$ 掺Si的AlGaIn层.

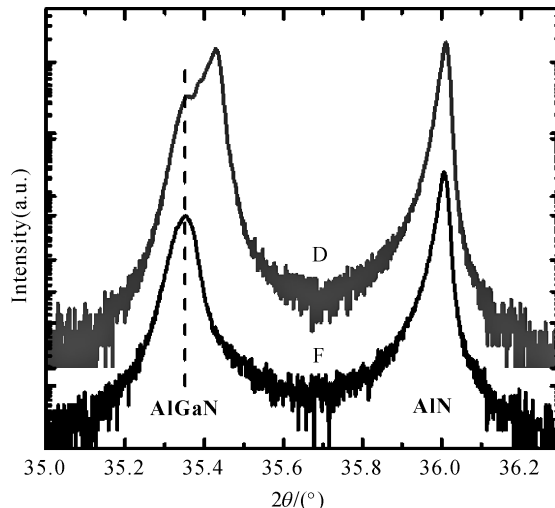


图3 样品D和F的XRD扫描结果对比图

Fig. 3 Comparison of XRD results between sample D and sample F

2.2 阴极荧光测试结果

为进一步研究相分离现象(峰2和峰3),采用阴极荧光方法对样品的光学性能进行研究.图4为样品B的阴极荧光图谱及拟合结果.从图4可发现有两个相差4 nm的发射峰(252 nm和256 nm),证明上一层掺Si的AlGaIn膜确实有两个相存在.此现象与XRD结果相吻合.

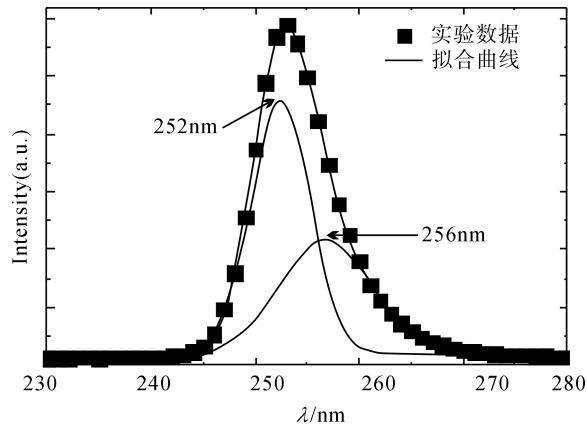


图4 在10 K下,样品阴极荧光图谱及拟合结果

Fig. 4 Monochromatic CL images and the fitting curve at 10K

图5为样品A,B,C,E在温度为10 K时的单色阴极荧光图像.由图5可知,样品A,B,C,E均未出现裂纹,4个样品都出现双波长发射(各发射波长见图5).这再一次证明峰2和峰3来自上一层的AlGaIn膜,即AlGaIn膜中出现了相分离现象.材料中产生相分离的原因可能包括生长过程中应力变化、位错、富Al晶粒的形成等^[13].1.5 μm 厚非掺杂的样品A出现相分离现象(产生峰2和峰3),而0.5

μm 厚非掺杂的样品F则未发生相分离,说明相分离的产生与膜的厚度有关.1.5 μm 厚掺Si样品B~E均出现相分离现象,排除了Si掺杂是引起相分离的原因.由此可见,厚膜中的应力弛豫促使薄膜发生相分离.另外,由于Al原子的表面迁移率很低,不同原子间的表面迁移率差异导致样品表面发生聚集.因此,本文将相分离的产生归因于厚膜中的应力弛豫及Al原子低的表面迁移率.

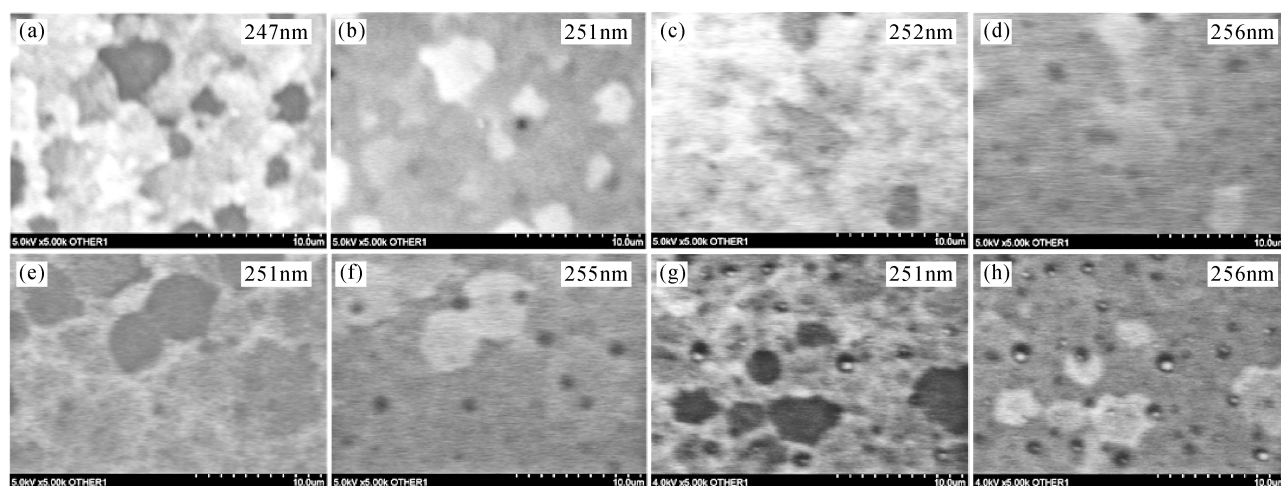


图5 样品在10K下的单色阴极荧光图像

(a)(b)样品A;(c)(d)样品B;(e)(f)样品C;(g)(h)样品E

Fig. 5 Monochromatic CL images of sample A taken at (a) $\lambda=247$ nm and (b) $\lambda=251$ nm; sample B at (c) $\lambda=252$ nm, (d) $\lambda=256$ nm; sample C at (e) $\lambda=251$ nm and (f) $\lambda=255$ nm; sample E at (g) $\lambda=251$ nm and (h) $\lambda=256$ nm.

3 结 论

采用MOCVD法在AlN/蓝宝石模板上生长的 $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 膜,通过高分辨XRD及阴极荧光测试表明 $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 膜出现了相分离现象,其原因为厚膜中的应力弛豫及Al原子低的表面迁移率.

参考文献:

- [1] YOSHIDA H, KUWABARA M, YAMASHITA Y, et al. AlGaIn-based laser diodes for the short-wavelength ultraviolet region[J]. New J Phys, 2009, 11: 125013.
- [2] AHMAD I, KRISHNAN B, ZHANG B, et al. Dislocation reduction in high Al-content AlGaIn films for deep ultraviolet light emitting diodes[J]. Phys. Status Solidi A, 2011, 208: 1501-1503.
- [3] ZEIMER U, KUELLER V, KNAUERA A, et al. High quality AlGaIn grown on ELO AlN/sapphire templates[J]. J Cryst Growth, 2013, 377: 32.
- [4] KIM M, FUJITA T, FUKAHORI S, et al. AlGaIn-based deep ultraviolet light-emitting diodes fabricated on patterned sapphire substrates[J]. Appl Phys Express, 2011, 4: 092102-092102-3.
- [5] PENG D, YAN J C, WANG J X, et al. 282-nm AlGaIn-based deep ultraviolet light-emitting diodes with improved performance on nano-patterned sapphire substrates[J]. Appl Phys Lett, 2013, 102: 241113-241116.
- [6] TSUBASA N, KENICHIRO T, HIROSHI S, et al. Combination of Indium-Tin Oxide and SiO_2/AlN dielectric multilayer reflective electrodes for ultraviolet-light-emitting diodes[J]. Jpn J Appl Phys, 2013, 52: 08JG07-08JG07-3.
- [7] CHEN P, CHUA S J, MIAO Z L. Phase separation in AlGaIn/GaN heterojunction grown by metalorganic chemical vapor deposition[J]. J Cryst Growth, 2004, 273: 74-78.
- [8] SUN Q, HUANG Y, WANG H, et al. Lateral phase sep-

- ation in AlGa_N grown on GaN with a high-temperature AlN interlayer [J]. Appl Phys Lett, 2005, 87, 121914.
- [9] PINOS A, LIUOLIA V, MARCINKEVICIUS S, et al. Localization potentials in AlGa_N epitaxial films studied by scanning nearfield [J]. J Appl Phys, 2011, 109, 113516.
- [10] FENG Lei, HAN Jun, XING Yan-hui, et al. Optimized growth and composition investigation of AlGa_N materials with high Al composition [J]. J. Optoelec. Laser, 2012, 23, 9.
- [11] CANTU P, WU F, WALTEREIT P, et al. Si doping effect on strain reduction in compressively strained Al_{0.49}Ga_{0.51}N thin films [J]. Appl Phys Lett, 2003, 83, 674.
- [12] XIE J Q, MITA S, RICE A, et al. Strain in Si doped GaN and the fermi level effect [J]. Appl Phys Lett, 2011, 98, 202101 - 202101-3.
- [13] KHAN M, SHATALOV M, MARUSKA H, et al. Investigation of the Heterogeneous decomposition of ammonia in an inverted, stagnation-point flow reactor [J]. Jpn J Appl Phys: Part 1, 2005, 44, 7191-7206.

A study on structural and optical properties of Al_{0.6}Ga_{0.4}N films grown on AlN/sapphire templates

WANG Junjun, LIU Ningyang, ZHANG Kang, ZHANG Zhiqing, ZHAO Wei, FAN Guanghan, ZHANG Na, CHEN Zhitao
Guangdong General Research Institute for Industrial Technology (Guangzhou Research Institute for Non-ferrous Metals), Guangzhou 510650, China

Abstract: In this work, Al_{0.6}Ga_{0.4}N films grown on AlN/sapphire templates by metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD) system were characterized by high resolution XRD and low temperature cathodoluminescence (CL) methods. It's found that there exists phase separation phenomenon in the films by XRD measurements. The optical properties obtained from CL spectra confirmed this phenomenon further. The generation of phase separation is attributed to stress relaxation in thick films and the low surface mobility of Al atoms.

Key words: Phase separation; AlN/sapphire templates; Al_{0.6}Ga_{0.4}N