

文章编号:1000-6281(2011)06-0512-05

# Si 衬底 GaN 基多量子阱外延材料的 TEM 研究

李翠云, 占腊生

(景德镇陶瓷学院机电学院, 江西 景德镇 333001)

**摘要:** 本文采用高分辨透射电子显微技术对在 Si 衬底生长的 GaN 基多量子阱外延材料的位错特征、外延层与衬底的晶体取向关系及界面的结晶形态等微观结构进行了分析和研究。结果表明: Si 衬底生长的 GaN 与衬底有一定的取向关系; 材料在 MQW 附近的穿透位错密度达  $10^8 \text{ cm}^{-2}$  量级, 且多数为刃型位错; 样品 A 的多量子阱下方可见平行于界面方向的位错, 本文认为这可能是由于 AlN/Si 界面上的  $\text{Si}_x\text{N}_y$  形成的多孔形态促使外延层进行侧向生长, 使位错在高温 GaN 层沿横向弯曲所致, 这样可进一步降低穿过量子阱的位错密度, 有利于提高材料质量。

**关键词:** GaN; Si 衬底; 位错; TEM

**中图分类号:** TN304; TG115.21+5.3 **文献标识码:** A

GaN 半导体材料为直接带隙材料, 是制作蓝、绿发光二极管(LED), 激光二极管(LD) 和高温大功率集成电路的理想材料, 在信息显示和固态照明等领域具有广阔的应用前景<sup>[1,2]</sup>。尽管人们对 GaN 材料及器件的应用已进行了广泛的研究, 但还有一些重要的问题有待解决。首先, 在材料生长中, 由于没有匹配的衬底, 外延生长的 GaN 薄膜往往含有大量的缺陷。尤其是 Si 具有质量高、成本低、集成工艺成熟等特点, 在 Si 上外延生长 GaN 具有很好的应用前景。但是, Si 与 GaN 存在很大的晶格失配与热膨胀系数差异, 致使外延生长时产生很大的应力, 诱生大量的位错及裂纹。近年来, 有些研究组采用不同条件的缓冲层、插入层和超晶格等技术<sup>[3~6]</sup> 来提高 Si 衬底上 GaN 的质量和降低位错密度。其次, GaN 中缺陷特别是位错的本质以及它对外延层的影响还不太清楚, 有研究认为位错影响 GaN 的热导率<sup>[7]</sup>, 对黄光发射也有影响<sup>[8]</sup>。因此, 对 GaN 中位错等缺陷进行更深入研究是非常必要的。透射电子显微镜(TEM) 具有高分辨率、直接成像特点, 能更直观更准确地分析材料内部各微区的结构和缺陷特征。本实验利用高分辨透射电子显微技术对 Si 衬底上生长的 GaN 基多量子阱外延材料的位错特征、外延层与衬底的晶体取向关系、界面的结晶形态等微观结构和缺陷进行了详细的研究。

## 1 实验

实验所用样品 A、B 为 Si 衬底上采用 MOCVD

方法生长的 GaN 基多量子阱外延材料。样品的结构包括 AlN 缓冲层、GaN 缓冲层、掺硅的 n 型 GaN 层、五个周期 InGaN 与 GaN 所形成的量子阱结构和 p 型 GaN 层。样品 A 与样品 B 生长过程基本相同, 厚度相近。

使用 TEM 对样品的微结构进行观察和分析。TEM 分析的截面样品制备方法是: 先将薄膜对粘, 采用金属线切割机切成薄片, 用砂纸机械减薄至厚度约  $80 \mu\text{m}$ , 再凹坑减薄直到中心最小厚度约  $15 \mu\text{m}$ , 最后用氩离子减薄至透明。样品在分辨率为  $0.23 \text{ nm}$  的 JEOL 2010 型高分辨透射电子显微镜(HRTEM) 上观察, 工作电压为  $200 \text{ kV}$ 。

## 2 结果与讨论

图 1 为样品的缓冲层区域 TEM 截面像。图中可见 Si、AlN 和 GaN 层界面分明, AlN 缓冲层主要是弛豫部分由 Si 与 GaN 间大的晶格失配和热失配产生的张应力; GaN 缓冲层则进一步减少外延膜中的应力。GaN 缓冲层呈三维岛状生长, 这种生长模式能够增大晶粒, 减小晶粒取向偏差以减少晶界, 从而减少应力, 改善材料的质量<sup>[9]</sup>。图中还表明两样品在近 GaN / AlN 界面很薄的一层区域内位错密度极高, 随生长过程位错密度急剧下降。并且有些区域能观察到位错的弯曲和半位错环的存在, 通过半位错环的形成, 位错密度进一步降低。在接近 GaN / AlN 界面附近存在高位错密度是由于在 GaN 小岛

收稿日期:2011-09-05; 修订日期:2011-10-16

基金项目:国家自然科学基金资助项目(No. 11073010)。

作者简介:李翠云(1971-), 女(汉族), 江西景德镇人, 副教授。E-mail: clyl71@163.com

与 AlN 缓冲层间的结构失配可以被较多的 Shockley 和 Frank 不全位错所容纳<sup>[10]</sup>。Shockley 不全位错是由相邻不同原子堆垛顺序的岛间合并时产生的,柏氏矢量为  $b = 1/3 \langle 10 \bar{1}0 \rangle$ 。Frank 不全位错是界面

附近区域由于切应变使得晶体颗粒扭转而形成的堆垛顺序改变形成的,柏氏矢量为  $b = 1/2 \langle 0001 \rangle$ 。在六方 GaN 中 Shockley 和 Frank 不全位错只能位于 (0001) 面,不会沿薄膜上方延伸。

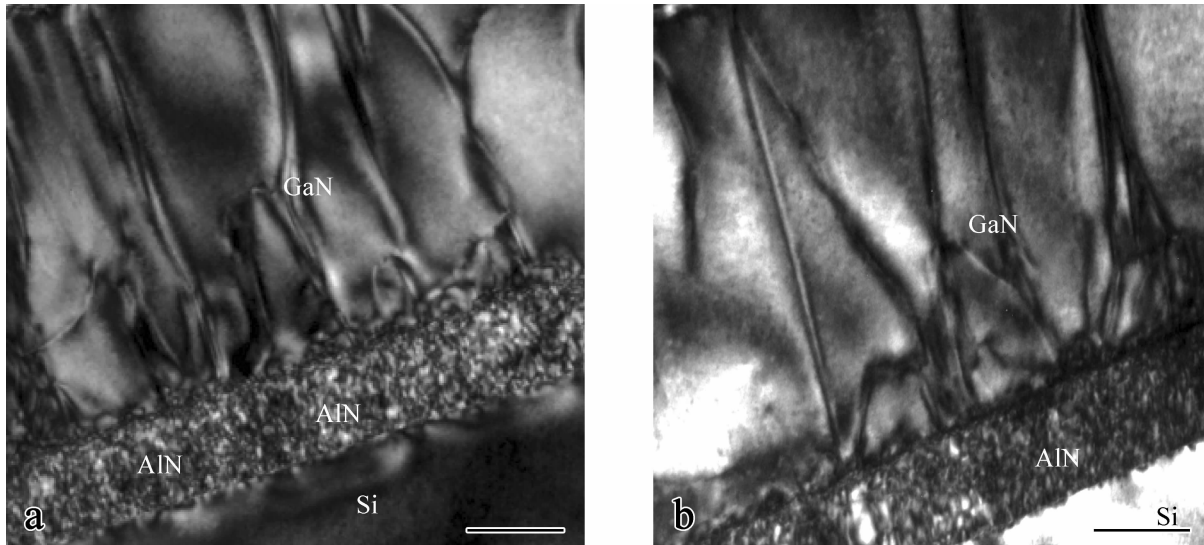


图1 样品缓冲层区域的 TEM 像 (Bar = 100 nm)。a: 样品 A; b: 样品 B  
Fig. 1 Cross-sectional TEM images of the two sample buffer layer. a: Sample A; b: Sample B

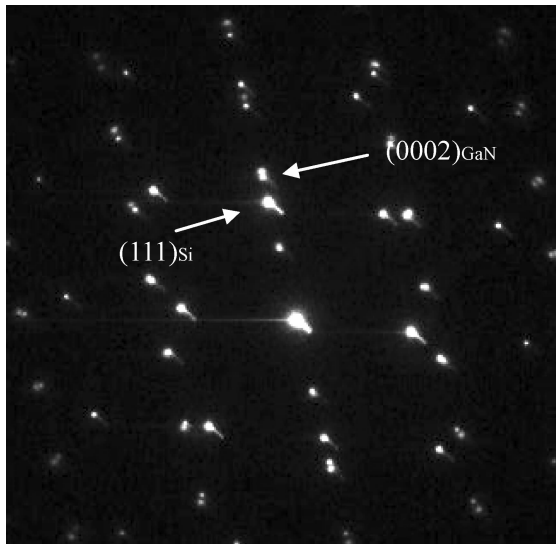


图2 Si、AlN 及 GaN 界面区域的选区电子衍射图。  
Fig. 2 Selected area diffraction pattern.

图2 给出 A、B 样品 Si、AlN 及 GaN 界面区域的选区电子衍射 (SEAD) 图 (两样品电子衍射图特征相同), 其电子束方向沿 GaN 的  $[11 \bar{2}0]$  晶向。由于 AlN 缓冲层很薄, 且 AlN 与 GaN 的晶格常数接近, 所以 AlN 的衍射斑点几乎与 GaN 的重叠。由图可分辨六方相与立方相的衍射斑点, 并确定两样品中的 GaN 与 Si 衬底存在如下生长取向关系:  $(0001)_{\text{GaN}} // (111)_{\text{Si}}, [11 \bar{2}0]_{\text{GaN}} // [110]_{\text{Si}}$ 。

为进一步揭示样品在衬底与缓冲层界面的微观特性, 本文对其进行了 HRTEM 像的观察, 图3 分别为 A、B 两样品在 Si 衬底和 AlN 缓冲层界面处的 HRTEM 像。沿界面在不同区域观察, 样品 A 的 AlN/Si 界面上, 许多区域的界面模糊, 可见厚度不均匀的非晶层存在; 而样品 B 的 AlN/Si 界面清晰, 未见非晶层。对于 AlN/Si 界面上非晶层的形成原因, 一般文献报道<sup>[11-14]</sup> 都认为在 Si 衬底上生长 AlN 缓冲层时, 界面处 Si 遇活性 N 易形成无定形的  $\text{Si}_x\text{N}_y$ 。而 Hu 等<sup>[15]</sup> 却认为 AlN/Si 界面的非晶层, 除了  $\text{Si}_x\text{N}_y$  可能还有以下方面的原因, 即失配位错的产生可驰豫 Si 与 AlN 界面的部分应变, 但还有部分应变会聚集在界面, 随薄膜厚度的增加, 样品沿 AlN/Si 界面的应变累积较大时, 则会引起邻近界面的原子结构产生差异, 使邻近界面的 AlN 缓冲层处于非晶态。本文则认为 A、B 两样品厚度相差不大, 如果 AlN/Si 上的非晶层是由聚集在界面的应变引起, 则两样品的 AlN/Si 界面上都会形成非晶层, 而图3b 显示样品 B 的 AlN/Si 界面是清晰的, 所以样品 A 的 AlN/Si 界面形成的非晶层是  $\text{Si}_x\text{N}_y$  的可能性很大。

图4 和图5 分别是样品 A、B 在多量子阱 (MQW) 附近的外延层的 TEM 截面像。图4(a,b)、图5(a,b) 分别代表在同一个区域拍摄的两个不同衍

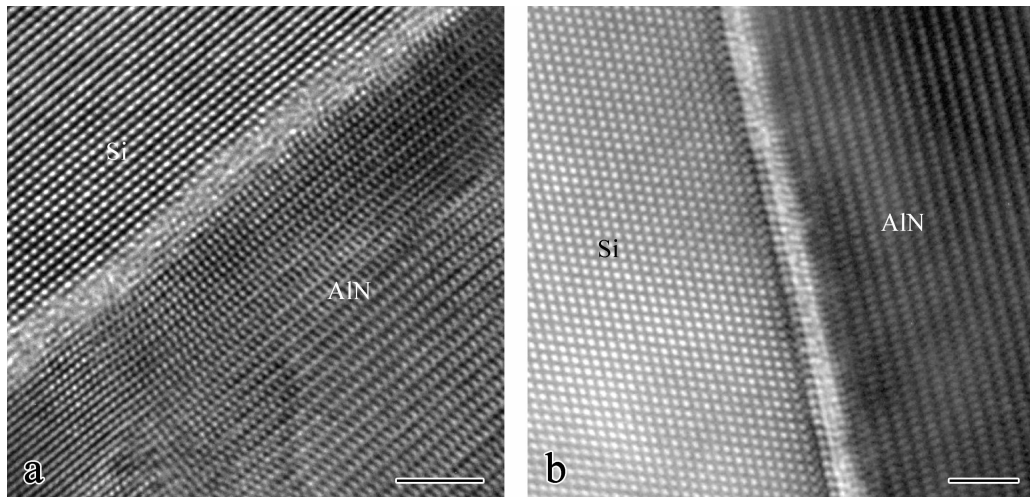


图3 AlN/Si界面的HRTEM像(Bar=2 nm)。a:样品A; b:样品B

Fig.3 HRTEM images taken from the interface regions of AlN/Si. a: Sample A; b: Sample B

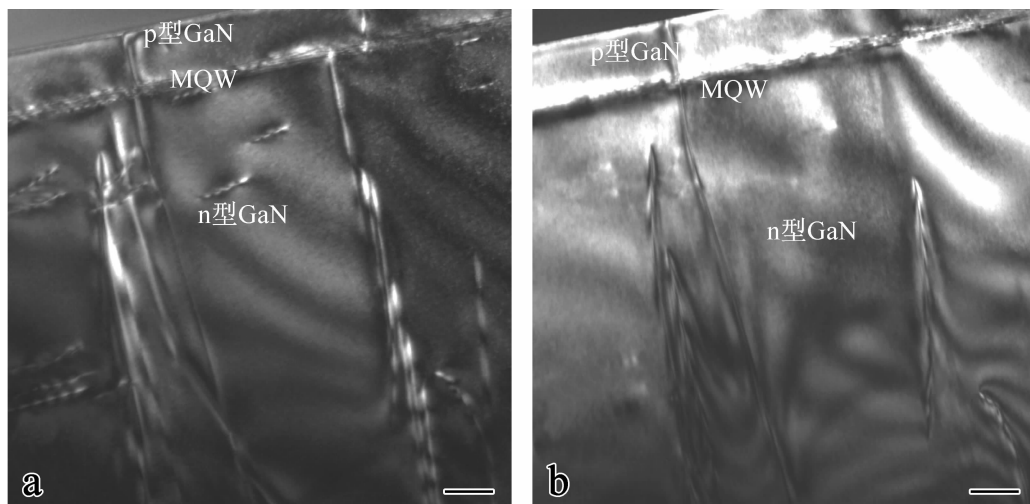


图4 样品A在不同双束条件下的量子阱附近的TEM像(Bar=0.2 μm)。a:  $g = 1 \bar{1}00$ ; b:  $g = 0002$

Fig.4 Cross-sectional two-beam TEM images of InGaN MQW of the Sample A. a:  $g = 1 \bar{1}00$ ; b:  $g = 0002$

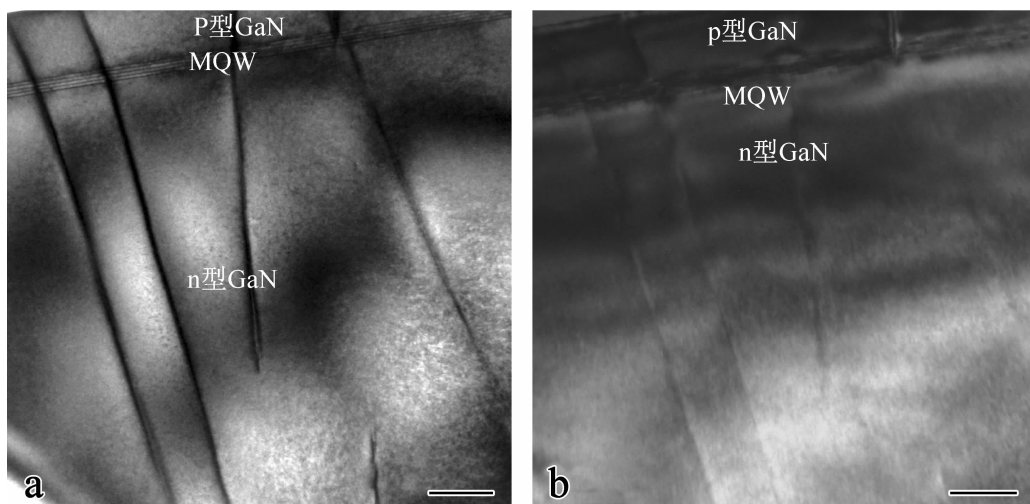


图5 样品B在不同双束条件下的量子阱附近的TEM像(Bar=0.2 μm)。a:  $g = 1 \bar{1}00$ ; b:  $g = 0002$

Fig.5 Cross-sectional two-beam TEM images of InGaN MQW of the Sample B. (a):  $g = 1 \bar{1}00$ ; (b):  $g = 0002$

射矢量双光束条件下的 TEM 像。由图可见样品 A、B 在 MQW 附近的位错有由缓冲层延伸的位错,还有应力诱生的位错。高密度的位错相互作用,有些位错终止于 GaN 体内;也有部分位错穿透多量子阱结构,伸向盖帽层,形成穿透位错。除此之外,样品 A 中还可见有些位错平行于量子阱方向,不能穿过量子阱,有些区域还看到位错环,样品 B 中却未看见。前文分析样品 A 的 AlN/Si 界面上形成的非晶层是  $\text{Si}_x\text{N}_y$  的可能性很大,据文献[16,17]报道,适当厚度的  $\text{Si}_x\text{N}_y$  会形成多孔形态,会促使外延层进行侧向外延生长,使位错在高温 GaN 层沿横向方向弯曲,进一步降低外延层位错密度。所以,本文推测样品 A 中的这些平行于界面方向的位错可能是由 AlN/Si 界面的  $\text{Si}_x\text{N}_y$  形成的多孔形态促使位错在高温 GaN 层沿横向弯曲而形成的。这些位错不能到达量子阱,从而减少了 n 型 GaN 层穿过量子阱的位错。由 TEM 估算,样品 A、B 穿过量子阱的位错密度分别约  $6 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 、 $8 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ ,样品 A 在 MQW 附近的穿透位错密度低于样品 B。这也表明通过外延层的横向合并,使位错沿横向弯曲,有助于降低外延层穿过量子阱的位错密度,从而提高材料的质量。

有的研究者<sup>[18]</sup>已经确定了 GaN 薄膜中存在的三种基本线型位错,即柏氏矢量分别为: $\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$  的纯刃位错, $\vec{b} = \langle 0001 \rangle$  的纯螺位错和  $\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle$  的混合位错。根据  $g \cdot b = 0$  的原则, $\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$  的纯刃位错,在  $g$  矢量为  $\langle 0002 \rangle$  的双束像中消光, $\vec{b} = \langle 0001 \rangle$  的螺位错沿衍射矢量  $\vec{g} = \langle 1\bar{1}00 \rangle$  方向观察不到, $\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle$  的混合位错沿  $\vec{g} = \langle 0002 \rangle$  和  $\vec{g} = \langle 1\bar{1}00 \rangle$  方向都能看到。图 4a、图 5a 中出现的多数位错在图 4b、图 5 b 中消光,这表明两样品中以  $\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$  的纯刃位错居多,而螺位错和混合位错较少。

### 3 结论

本文采用高分辨透射电子显微技术对在 Si 衬底生长的 GaN 基多量子阱外延材料的位错密度及位错类型、外延层与衬底的晶体取向关系、界面的结晶形态等微观结构进行了分析和研究。结果表明:Si 衬底生长的 GaN 与衬底有一定的取向关系;材料在 MQW 附近的穿透位错密度具有  $10^8 \text{ cm}^{-2}$  量级,且多数为纯刃位错;样品 A 沿 AlN/Si 界面上的  $\text{Si}_x\text{N}_y$  的多孔形态促使外延层进行侧向外延生长,使位错在高温 GaN 层沿横向弯曲,从而减少外延层穿

过量子阱的位错。

### 参考文献:

- [1] Youn C J, Jeong T S, Han M S, et al. Influence of various activation temperatures on the optical degradation of Mg doped InGaN /GaN MQW blue LEDs [J]. J Cryst Growth, 2003, (250): 331-338.
- [2] Nakamura S, Pearton S, et al. The roles of structural imperfections in InGaN-based blue light-emitting diodes and laser diodes[J]. Science, 1998, 281:956.
- [3] Dadgar A, Blasing J, Diex A, et al. Metalorganic chemical vapor phase epitaxy of crack-free GaN on Si (111) exceeding 1mm in thickness [J]. Jpn J Appl. Phys, 2000,39:L1183.
- [4] Zhao G Y, Nakada N, et al. GaN on Si substrate with AlGaIn/AlN intermediate layer[J]. Jpn J Appl Phys, 1999, 38:L492.
- [5] Lu Y, Liu X L, Lu D C, et al. Investigation of GaN layer grown on Si(111) substrate using an ultrathin AlN wetting layer[J]. J Crystal Growth, 2002, 236: 79.
- [6] Lee K J, Shin E H, Lin K Y. Reduction of dislocations in GaN epilayers grown on Si (111) substrate using  $\text{Si}_x\text{N}_y$  inserting layer [J]. Appl Phys Lett, 2004, 85 (9): 1504.
- [7] Kotchetkov D, Zou J, Balandin A, et al. Effect of dislocations on thermal conductivity of GaN layer [J]. Appl Phys Lett, 2001, 79 (26): 4136-4138.
- [8] Qiu X G, Segawa Y, Xue Q K, et al. Photoluminescence of wurtzite GaN thin film on SiC substrate [J]. Appl Phys Lett, 2000, 77 (9): 1316-1318.
- [9] Mo C L, Fang W Q, Pu Y, et al. Growth and characterization of InGaIn blue LED structure on Si (111) by MOCVD[J]. J Cryst Growth, 2005,285:31.
- [10] Wu X H, Brown L M, Kapolnek D, et al. Defect structure of metal-organic chemical vapor deposition-grown epitaxial(0001) GaN/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [J]. J Appl Phys, 1996, 80:3228.
- [11] Liu C H, Chuang R W, Chang S J, et al. InGaIn/GaN MQW blue LEDs with GaN/ SiN double buffer layers[J]. Mater Sci Eng B,2004, 111:214.
- [12] Nikishin S A, Faleev N N, Antipov V G, et al. High quality GaN grown on Si(111) by gas source molecular beam epitaxy with ammonia[J]. Appl Phys Lett, 1999, 75:2073.
- [13] Schenk H P D, Kipshidze G D, Lebedev V B, et al. Epitaxial growth of AlN and GaN on Si(111) by plasma-assisted molecular beam epitaxy [J]. J Cryst Grow, 1999, 201/202:359.

- [14] Dobos L, Pecz B, Feltin E, et al. Microstructure of GaN layers grown on Si (111) revealed by TEM [J]. Vacuum, 2003, 71:285.
- [15] Hu G Q, Kong X, Wan L, et al. Microstructure of GaN films grown on Si (111) substrates by metalorganic chemical vapor deposition [J]. J Cryst Growth, 2003, 256:416.
- [16] Wang T, Morishima Y, Naoi N, et al. A new method for a great reduction of dislocation density in a GaN layer grown on a sapphire substrate [J]. J Cryst Growth, 2000, 213:188.
- [17] Sakai S, Wang T, Morishima Y, et al. A new method of reducing dislocation density in GaN layer grown on sapphire substrate by MOVPE [J]. J Cryst Growth, 2000, 221:334.
- [18] Speck J S, Rosner S J, et al. The role of threading dislocations in the physical properties of GaN and its alloys [J]. Phys B, 1999, 274:24.

## TEM Studies of GaN MQW layer grown on Si substrate

LI Cui-yun, ZHAN La-sheng

(Jingdezhen Ceramics Institute, Jingdezhen Jiangxi 333001, China)

**Abstract:** The microstructure of GaN layer grown on Si (111) substrate was characterized using transmission electron microscopy (TEM). The results show that GaN is hexagonal (and single crystalline), and that the orientation relationships are  $(0001)_{\text{GaN}} // (111)_{\text{Si}}$ ,  $[\bar{11}20]_{\text{GaN}} // [110]_{\text{Si}}$ . The dislocation density reaches  $10^8 \text{ cm}^{-2}$  in n-GaN layer near MQW of the two samples, the main of which are pure edge dislocations ( $\vec{b} = 1/3 \langle \bar{11}20 \rangle$ ). Dislocation below the quantum well in sample A is found to be parallel to the interface between the buffer layer and extension. The nanometer-sized holes in a thin  $\text{Si}_x\text{N}_y$  layer probably enhance lateral growth and then decrease the dislocation density through the quantum well.

**Keywords:** GaN; Si substrate; dislocation; TEM