

文章编号: 0258-7025(2009)Supplement 2-0378-04

蓝宝石衬底分子束外延生长 GaN 薄膜的原位 椭偏光谱分析

苑进社 刘颖丹 潘德芳

(重庆师范大学物理学与信息技术学院光学工程重点实验室, 重庆 400047)

摘要 通过研究蓝宝石衬底分子束外延(MBE)生长 GaN 薄膜过程中原位椭偏光谱,发现常规蓝宝石衬底 MBE 生长 GaN 薄膜的位错缺陷主要起源于缓冲层升温过程中应变能的释放程度。采用蓝宝石邻晶面衬底可有效地抑制 GaN 外延层中螺旋位错缺陷的产生。结果表明,利用蓝宝石邻晶面衬底 MBE 生长 GaN 薄膜是抑制螺旋位错、改善薄膜质量的有效途径。

关键词 光谱学; GaN 薄膜; 分子束外延; 椭偏光谱; 位错缺陷

中图分类号 O433; O484 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL200936s2.0378

Investigation on the In-Situ Spectroscopic Ellipsometry of GaN Films Grown on Sapphire Substrates by Molecular Beam Epitaxy

Yuan Jinshe Liu Yingdan Pan Defang

(Key Laboratory of Optical Engineering, Department of Physics and Information Technology,
Chongqing Normal University, Chongqing 400047, China)

Abstract The mechanism of dislocation formed and strain released in GaN epitaxial layer grown on sapphire substrates by molecular beam epitaxy (MBE) was investigated by comparative analysis of the in-situ spectroscopic ellipsometry (SE) data. It has been found that the dislocation density was related to the extent of strain relaxation in GaN film grown on just sapphire substrate during buffer layer ramping and that threading and spiral dislocation was suppressed effectively by using vicinal sapphire substrates. The results indicate that using vicinal sapphire substrates is a practicable way to suppress spiral dislocation and to improve crystal structure of GaN films.

Key words spectroscopy; GaN film; molecular beam epitaxy; spectroscopic ellipsometry; dislocation defect

1 引 言

目前, GaN 半导体薄膜材料已成为研制高温、高功率、高速短波长光电子器件和新型微电子器件的重要材料, 并已取得重大进展。但由于 GaN 外延层与蓝宝石衬底之间的晶格常数和热膨胀系数失配, 致使在 GaN 单晶薄膜异质外延中, 产生大量的结构缺陷。特别是在分子束外延(MBE)中, 产生的线位错密度高达 $10^8 \sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, 引发多种表面结构缺陷^[1,2]。GaN 单晶薄膜中的线位错缺陷形成的散射中心影响发光器件的性能; 螺旋型线位错在其中心可形成纳米尺度的管道, 这些纳米级的空洞对

接触金属、掺杂剂和其他杂质形成扩散通道, 严重影响器件的电学特性^[3,4]。因此, 减少 GaN 单晶薄膜生长过程中产生的结构缺陷成为亟待解决的关键技术问题。

MBE 是制备高质量 GaN 薄膜的重要技术之一, 特别是可原位监控生长过程, 所制备的薄膜材料可广泛应用于各种光电探测器和微电子器件。近几年来, 通过选择优化 MBE 生长速度与温度, 特别是在成功利用射频(RF)等离子体源和电子回旋共振(ECR)微波等离子体源辅助技术之后, 制备的 GaN 薄膜质量大幅提高, 但样品的表面平整度远不及金

基金项目: 博士启动基金(06XLB008, 08XLB003)资助课题。

作者简介: 苑进社(1959—), 男, 教授, 博士, 主要从事氮化物半导体材料的制备与光电子器件等方面的研究。

E-mail: jesseyuan@cqnu.edu.cn

属有机物气相外延(MOVPE)技术生长的 GaN 薄膜^[5]。理论分析认为,MBE 生长 GaN 过程中产生的较高的位错密度是丘状螺旋生长的起源,而 Ga 原子的扩散长度较短导致表面扩散受限,可能是较高的位错密度产生的主要原因。采用衬底偏晶向法形成单原子高度台阶的邻晶面,使薄膜生长实现台阶流动(SF)模式,可抑制螺旋位错的出现得到平滑表面的薄膜^[6]。本文通过对比分析蓝宝石常规和邻晶面衬底 MBE 生长 GaN 薄膜中在线原位椭圆(SE)光谱,研究探讨了外延层中应变能释放过程和位错缺陷生成机制。

2 GaN 薄膜的原位 SE 光谱

2.1 椭圆光谱基本原理

电磁波在介质中传播时,相对介电常数代表介质中分子的极化效应。对于离子键成分占 39% 的 GaN 半导体材料,GaN 分子在极化过程中总是存在损耗。电磁波在 GaN 材料中传播时,交变电场的作用使 GaN 中正负离子相对于平衡位置发生位移,部分电场能量转化为 GaN 晶体晶格振动能量。这种极化过程存在的能量损耗通常用相对复介电常数来描述,此时相对介电常数 ϵ_r 为虚数,可假定 $\epsilon_r = \epsilon_1 + i\epsilon_2$,材料的基本光学常数折射率 n 和消光系数 K 以及相对介电常数的实部 ϵ_1 和虚部 ϵ_2 都是入射光波长的函数,折射率和消光系数与复介电常数的函数关系式为^[7]

$$n(\lambda) = \left\{ \frac{[\epsilon_1(\lambda)^2 + \epsilon_2(\lambda)^2]^{1/2} + \epsilon_1(\lambda)}{2} \right\}^{1/2}, \quad (1)$$

$$K(\lambda) = \left\{ \frac{[\epsilon_1(\lambda)^2 + \epsilon_2(\lambda)^2]^{1/2} - \epsilon_1(\lambda)}{2} \right\}^{1/2}. \quad (2)$$

光经过两种介质界面时的反射和透射光强与材料的光学常数相联系。就反射光谱而言,只要不是在正入射情况下测量,垂直于入射面偏振的电矢量和平行于入射面偏振的电矢量其振幅反射系数不同,具体可描述为

$$r_s = \frac{\cos \theta_0 - [(n + iK)^2 - \sin^2 \theta_0]^{1/2}}{\cos \theta_0 + [(n + iK)^2 - \sin^2 \theta_0]^{1/2}}, \quad (3)$$

$$r_p = \frac{(n + iK)^2 \cos \theta_0 - [(n + iK)^2 - \sin^2 \theta_0]^{1/2}}{(n + iK)^2 \cos \theta_0 + [(n + iK)^2 - \sin^2 \theta_0]^{1/2}}. \quad (4)$$

由此可见,对斜入射的偏振光,经介质表面反射后其电矢量振幅和相位都会改变。对于椭圆偏振光其反射光的振幅反射系数之比为^[8]

$$\frac{r_p}{r_s} = \tan \psi \exp(i\Delta), \quad (5)$$

(5)式中 $\tan \psi$ 为入射面内偏振的电矢量与垂直于入射面内偏振的电矢量的相对振幅衰减, Δ 为反射引起的两个电矢量间的相位差。由(3)~(5)式计算可得

$$n^2(\lambda) = K^2(\lambda) + \sin^2 \theta \left\{ 1 + \tan^2 \theta \frac{\cos^2(2\psi) - \sin^2(2\psi) \sin^2(2\Delta)}{[1 + \sin(2\psi) \cos \Delta]^2} \right\}, \quad (6)$$

$$K(\lambda) = \frac{\sin^2 \theta \tan^2 \theta \sin(4\psi) \sin \Delta}{2n(\lambda) [1 + \sin(2\psi) \cos \Delta]^2}. \quad (7)$$

由(6)式和(7)式可知,在某一波长的入射光实验条件下,测出 ψ, Δ 和入射角 θ 就可求出该波长下材料的折射率和消光系数。再由(1)式,(2)式即可得出被测样品在相应波长的介电常数的实部 ϵ_1 和虚部 ϵ_2 。

2.2 GaN 薄膜的外延生长和原位 SE 光谱分析

利用 EIKO RF-MBE 系统配备的椭圆光谱仪测量基于 GaN 薄膜生长过程中在线原位 SE 数据。在有效界面近似条件下,通过选用适当模型采用 FastDyn 数据处理运算程序进行数据拟合,获得了 MBE 生长 GaN 薄膜的基本光学常数谱。基于蓝宝石常规和邻晶面衬底 MBE 生长 GaN 薄膜原位椭圆光谱实验数据,用色散基本理论,分析外延层中应变能释放过程。图 1 为常规蓝宝石衬底生长 1 号样品生长过程原位 SE $\langle \epsilon_1 \rangle$ 图谱,图 2 为邻晶面蓝宝石衬底生长过程原位 SE $\langle \epsilon_1 \rangle$ 图谱。原位 SE $\langle \epsilon_1 \rangle$ 图谱显示的是所生长样品复介电函数的实部 $\langle \epsilon_1 \rangle$ 随生长时间的进化过程,从蓝宝石衬底氮化开始, $\langle \epsilon_1 \rangle$ 逐渐上升,见图中标识 A。大约生长几个单原子层后达到峰值,然后 $\langle \epsilon_1 \rangle$ 开始下降,表明 GaN 缓冲层以层状和岛状混合模式即 S-K 模式开始生长。氮化物薄膜与蓝宝石衬底的晶格常数失配,在外延缓冲层

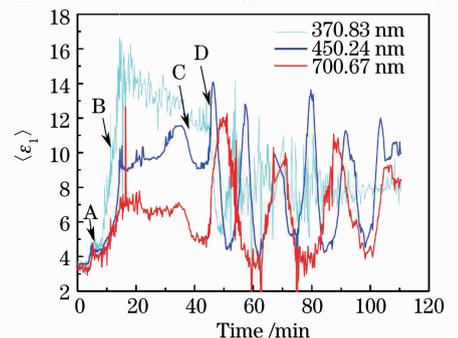


图 1 常规蓝宝石衬底 MBE-GaN 薄膜生长过程的 SE $\langle \epsilon_1 \rangle$ 图谱

Fig. 1 In-situ spectroscopic ellipsometry (SE) $\langle \epsilon_1 \rangle$ of GaN epitaxial layer grown on sapphire substrates by molecular beam epitaxy

中积累应变能。当应变能释放时,在沉积物与界面处的高能量激发岛形成。 $\langle \epsilon_1 \rangle$ 的下降标志着外延 GaN 缓冲层在氮化的蓝宝石衬底上出现第一次应变能释放过程。在这个 S-K 模式生长阶段,所形成的岛尺度约几十个纳米;此时 SE 光谱的变化与缓冲层的厚度及粗糙度相关,较长的探测光波长达到峰值较晚。如图中 700 nm 和 450 nm 的探测光 ϵ_1 出现峰值比 370 nm 的探测光的峰值滞后。随着缓冲层的厚度增加和迁移增强外延(MEE)技术的应用缓冲层表面趋于光滑,SE 谱急剧上升直到出现峰值,见图中 B 处;然后趋于平缓下降,缓冲层生长结束。

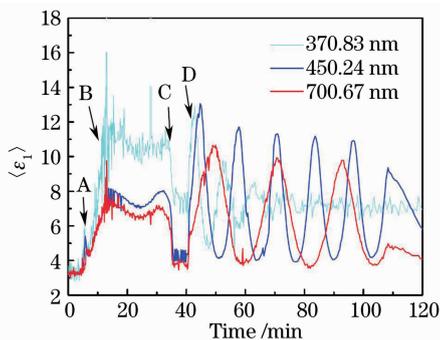


图 2 邻位蓝宝石衬底 MBE-GaN 薄膜生长过程的 SE $\langle \epsilon_1 \rangle$ 图谱

Fig. 2 In-situ spectroscopic ellipsometry (SE) $\langle \epsilon_1 \rangle$ of GaN epitaxial layer grown on vicinal sapphire substrates by molecular beam epitaxy

在缓冲层升温至 750 °C 附近, $\langle \epsilon_1 \rangle$ 急剧下降,如图中 C 处,这表明外延层出现第二次应变能释放过程。随后 700,450 和 370 nm 的 3 种探测波长的 SE 光谱中 $\langle \epsilon_1 \rangle$ 急剧上升表明 GaN 外延层开始生长,见图中 D 处。在 D 之后, $\langle \epsilon_1 \rangle$ 随着 GaN 外延层厚度的增加导致干涉效应波长为 700 和 450 nm 的探测光随时间出现周期性振荡。而 370 nm 波长探测光由于 GaN 外延层的带边吸收,使得 370 nm 波长的探测光在生长约 60 min 后,外延层厚度生长到约 350 nm 时趋于平缓。对比分析两种衬底生长 GaN 薄膜的原位 SE 光谱的变化规律,发现两种衬底在氮化和缓冲层生长时都出现应变能释放弛豫过程;但两种衬底的两次应变能释放程度显著不同,尤其是第二次应变能释放时。常规蓝宝石衬底在缓冲层升温时不仅 370 nm 探测光的 $\langle \epsilon_1 \rangle$ 谱线未出现而且 700,450 nm 探测波长的 $\langle \epsilon_1 \rangle$ 谱线同步对应下降,其下降斜率远小于邻晶面衬底相应过程 $\langle \epsilon_1 \rangle$ 谱线下降的斜率,见图中标示 C 处。这可能就是常规蓝宝石

衬底 MBE 外延生长 GaN 薄膜出现较高位错密度的机制^[9,10]。应变能释放不完全,使线位错缺陷弯曲,应变能的积累,出现岛状生长。结果导致外延层形成丘状螺旋结构,引起表面粗糙^[11,12]。这一推测可以从随后的外延层生长过程的 SE 图谱得到证实。由图中 $\langle \epsilon_1 \rangle$ 谱可见,从标示 D 开始邻晶面衬底外延层生长出现均匀光滑的因厚度变化引起的干涉峰谷谱线。而常规衬底的 700,450 nm 干涉峰谷明显不对称和不均匀,薄膜的光学质量较差。

通过原位真实时间 SE 图谱分析发现,在 GaN 薄膜外延生长过程中,出现两次应变能释放的过程。第一次出现在缓冲层生长过程中,第二次出现在缓冲层升温过程中。由于 GaN 与蓝宝石衬底的晶格失配,自组织的微晶结构通过倾斜或旋转变向释放应变能量。在缓冲层的生长过程中,这些不同方向的微晶结合导致出现位错。在缓冲层升温过程中,表面原子迁移和蒸发使线位错缺陷弯曲或消失,出现第二次应变能释放过程,这一过程对于减少线位错至关重要^[13]。比较两种衬底上外延生长 GaN 薄膜的 SE 图谱,可以认为常规蓝宝石衬底 MBE 外延生长 GaN 薄膜中较高的螺旋位错密度是在缓冲层应变能释放过程中产生的。采用邻晶面衬底可实现台阶流动模式 S-K 生长 GaN 薄膜,从而有效抑制螺旋位错的形成。

3 结 论

通过原位真实时间 SE 光谱研究发现,在缓冲层的生长过程中,自组织的微晶结构通过旋转变向释放应变能量,导致不同方向的微晶结合出现位错。在缓冲层升温过程中,表面原子迁移和蒸发可使线位错缺陷弯曲或消失,这一过程对于减少线位错至关重要。研究结果进一步证实了采用衬底偏晶向法形成单原子高度台阶的邻晶面,可以抑制螺旋位错的产生,改善 MBE 生长 GaN 薄膜的表面质量。因此,在 GaN 薄膜外延生长过程中,控制生长高质量的缓冲层是减少位错密度、制备高质量薄膜的关键。

致谢 日本千叶大学光电子学 VBL 实验室吉川明彦教授提供了实验条件,特此感谢。

参 考 文 献

- 1 M. H. Xie, L. X. Zheng, S. H. Cheung *et al.*. Reduction of threading defects in GaN grown on vicinal SiC. 0001 by molecular-beam epitaxy [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2000, **77**(8): 1105~1107
- 2 Zhibiao Zhao, Ming Qi, Aizhen Li. Investigation of dislocation

- density of GaN with single-and doublebuffer layer grown on sapphire (0001) by RF-plasma assisted MBE [J]. *Materials Science and Engineering*, 2002, **B95**: 308~313
- 3 H. Heinke, V. Kirchner, S. Einfeldt *et al.*. Analysis of the defect structure of epitaxial GaN [J]. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 1999, **176**: 391~395
- 4 B. Heying, E. J. Tarsa, C. R. Elsass *et al.*. Dislocation mediated surface morphology of GaN [J]. *J. Appl. Phys.*, 1999, **85**(9): 6470~6476
- 5 K. Jeganathan, M. Shimizu, H. Okumura. Reduction of dislocations in GaN epilayers using templated three-dimensional coherent nanoislands [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **86**: 191908
- 6 X. Q. Shen, M. Shimizu, T. Yamamoto *et al.*. Characterizations of GaN films and GaN/AlN super-lattice structures grown on vicinal sapphire (0 0 0 1) substrates by RF-MBE [J]. *J. Crystal Growth*, 2005, **278**: 378~382
- 7 M. Y. Mandy, Leung, Aleksandra B. Djuricic *et al.*. Refractive index of InGaN/GaN quantum well [J]. *J. Appl. Phys.*, 1998, **84**(11): 6312~6316
- 8 Shen Xuechu. Semiconductor Spectra and Optical Properties [M]. Beijing: Science Press, 2002. 13~38
沈学础. 半导体光谱和光学性质 [M]. 北京: 科学出版社, 2002. 13~38
- 9 G. Yu, G. Wang, H. Ishikawa *et al.*. Optical properties of wurtzite structure GaN on sapphire around fundamental absorption edge (0.78~4.77 eV) by spectroscopic ellipsometry and the optical transmission method [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(24): 3209~3211
- 10 N. A. Sanford, L. H. Robins, A. V. Davydov *et al.*. Refractive index study of Al_xGa_{1-x}N films grown on sapphire substrates [J]. *J. Appl. Phys.*, 2003, **94**(5): 2980~2991
- 11 Pan Yongqiang, Wu Zhensen, Hang Lingxia. Optical thin films interfaces roughness cross-correlated properties and light scattering [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(6): 916~920
潘永强, 吴振森, 杭凌侠. 光学薄膜界面粗糙度互相关特性与光散射 [J]. *中国激光*, 2008, **35**(6): 916~920
- 12 Wang Zhenhua, Wu Yonggang, Sang Tian *et al.*. Reflection spectra properties of guided-mode resonance filters with buffer layer [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(7): 1425~1428
王振华, 吴永刚, 桑田等. 带缓冲层的导模共振滤光片反射光谱特性 [J]. *光学学报*, 2008, **28**(7): 1425~1428
- 13 K. Xu, N. Yano, A. W. Jia *et al.*. In-situ real-time analysis on strain relaxation process in GaN growth on sapphire by RF-MBE [J]. *J. Crystal Growth*, 2002, **237-239**: 998~1002