

氮化铝薄膜的光学性能

颜国君¹ 陈光德¹ 邱复生¹ Zhaoyan Fan^{2,3}

(1 西安交通大学理学院应用物理系, 西安 710049)

(2 美国西北大学电子与计算机工程系, 伊利诺伊 60208)

(3 美国堪萨斯州立大学物理系, 堪萨斯 66506)

摘要 分别使用 X 衍射仪和紫外(190 nm~800 nm)分光光度仪, 测量了用分子束外延法生长在 SiC(001) 基底面上的 AlN 薄膜的 X 衍射、透射谱和不同温度下的吸收谱. X 衍射表明: 实验所用的 AlN 薄膜在 *c* 轴存在应变和应力, 该应变和应力主要是由于 AlN 的晶格常量与基底 SiC 的晶格常量不匹配所致. 透射谱表明: AlN 薄膜的禁带宽度大约为 6.2 eV; 而其对应的吸收谱在 6.2 eV 处存在一个明显的台阶, 此台阶被认为是 AlN 薄膜中的带边自由激子吸收所产生, 忽略激子的结合能(与禁带宽度相比), 则该值就对应为 AlN 的禁带宽度. 而其对应的不同温度下(10 k~293 k) 的吸收谱的谱线的形状和位置无明显的变化表明: 温度对 AlN 薄膜的禁带宽度亦无明显的影响, 这主要是由于在 AlN 薄膜中存在着应力所致.

关键词 AlN 薄膜; 透射谱; 吸收谱; 禁带带宽; 自由激子

中图分类号 O472 **文献标识码** A

0 引言

AlN 具有直接带隙结构, 很宽的禁带宽度. 在先进电子应用方面, AlN 是所有技术陶瓷中最令人鼓舞的^[1]: 它具有高的热导率、大的电阻率、低的介电常量、高的机械强度和与硅相近的热膨胀系数, 所以被认为是电子器件中理想的基底材料. 而其高的热稳定性和化学稳定性、宽的直接带隙结构和超快的声速特性, 使它特别适用于紫外频谱区域的光学器件和表面声一波器件中. 它与 GaN、InN 组成的三元系, 其禁带宽度从 1.9 eV 到 6.2 eV 之间可调, 使其适用于做从黄光到紫外光的发光器件和探测器件中^[2,3], 因此对其光学性质的研究成为近年来研究的一个热点. 目前对 AlN 在理论上已有一些研究^[4~6], 但是关于其光学性能的实验数据还是不多^[7~16]. 本文分别测量了用分子束外延法(简称 MBE)生长在 SiC(001) 基底面上的 AlN 薄膜的 X 射线衍射、透射谱和不同温度下的吸收谱, 测量结果表明: 对本实验所用的样品, 在样品内存在有较大的内应变, 其直接禁带宽度约为 6.2 eV. 而温度对吸收谱线的形状和位置无明显的变化, 这是由于实验所用的 AlN 薄膜中存在的内应变所致.

1 实验及讨论

实验中所用的 AlN 薄膜在一个定制的 MBE 室内合成, MBE 室由一个 1500l/sec 的低温泵进行泵浦. 活性氮 AsTEX Compact ECR 供给. 用法拉第

杯来控制总的离子流量. 99.9999% 的纯铝用努森扩散室进行蒸发. 铝的沉积速率用一个紧靠近基底的水冷石英晶体监控器进行测量. 质量流控制器用来调整 99.999% 的氮气的流量. 面积为 1 cm² 的 SiC(001) 基底的背面涂敷一层碳膜以确保 1.54 μm 的光学高温计测温准确. SiC 基底在装入 MBE 室之前, 必须进行去脂、刻蚀、清洗, 然后装入 MBE 室. MBE 室缓慢抽气后, SiC 基底在 1075 °C 热清洗 15 min, 当反射高能电子衍射的花样为条纹花样时, 表明基底表面是干净且光滑的. 然后点燃氮等离子体, 关闭努森室的窗口, 打开氮源开始薄膜的生长. 在生长薄膜时, 下列参量维持为常量: 氮气流量为 0.8 sccm, 沉积室内的压力为 2.666 × 10⁻³ Pa, ECR 微波功率为 60 W, 磁铁电流为 17 A. 在此条件下, 由法拉第杯测量出的氮离子流量为 4 × 10¹⁴ cm⁻² s⁻¹. 最终沉积得到的样品的膜厚为 200 nm.

生长在 SiC(001) 基底面上 AlN 薄膜的 X 射线的衍射图如图 1. X 衍射的靶材为 Cu²⁹, 其 X 射线的

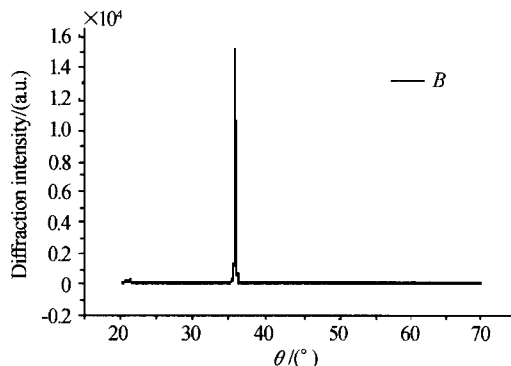


图 1 X 衍射图
Fig. 1 X-ray diffraction

波长为 0.1542 nm. 由图 1 可以看出 AIN(001) 晶面衍射峰处的 2θ 等于 35.98° . 由布喇格方程

$$2d\sin\theta = n\lambda$$

把 $n=1, \theta=17.99^\circ, \lambda=0.1542$ nm 代入上式可得: $d=0.2496$ nm, 而 AIN(001) 晶面的晶面间距国际公认的 $d=0.2491$ nm, 由此可得在 AIN 薄膜的【001】晶面上的应变为 2%, 该应变近似为对应的 AIN 薄膜【100】和【010】晶向与 SiC【100】和【010】晶向的晶格常量不匹配所致.

图 2 为用紫外分光光度仪 UV-2501PC 在室温测量的 AIN 的透射谱. 由图 2 中可知, AIN 薄膜的禁带边在 200 nm 附近, 即对应的 AIN 的禁带宽度为 6.2 eV. 这与 Han-Yong Joo^[11]、Regina Y. Krupitskaya^[12] 等人的结果一致; 而在 280 nm 左右的肘肩为与碳相关的缺陷所引起^[10].

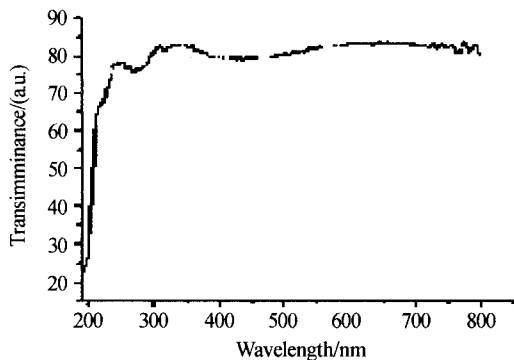


图 2 SiC 基底上的 AIN 薄膜的透射谱

Fig. 2 Transmittance spectrum of AIN film

图 3 为 AIN 薄膜从 10 k 到室温 (293 k) 等不同温度下的吸收谱, 其中纵坐标定义为: $\log(I_0/I_1)$, 其中 I_0, I_1 分别对应为入射光和透射光的强度. 由图 3 可知: 吸收谱曲线大约在 200 nm 和 240 nm 处出现两个明显的凸肩, 而且随着波长的减少, 吸收增大; 随着温度的变化, 吸收曲线无明显的变化. 在 240 nm 处的凸肩为低温装置样品室的窗口吸收所产生, 由于该窗口与外界大气相通, 温度基本保持不变, 故随着样品室的温度降低, 该凸肩的形状和位置无明显变化. 200 nm 处的吸收曲线的凸肩与 H. Yamashita^[8] 等人报道的结果相一致. 该吸收曲线的凸肩起始大约在 210 nm 处, 在 200 nm 处呈现凸肩结构. 凸肩起始位置大约在 210 nm 处 (对应的能量大小为 5.9 eV) 与 Xiao Tang^[10] 等人报道的 5.94 eV 非常接近. 在吸收谱中, 我们可以看到: 即使是在 10 k 的情况下, 在 200 nm 处的凸肩存在一个较宽的宽度, 所以不能由吸收谱曲线精确确定 AIN 的直接间隙带宽. 然而参照 GaN 在直接间隙带边的吸收谱曲线^[17,18], 可以把 AIN 在 200 nm 处及其凸肩吸收理解为由带间吸收和直接间隙带边处的自由激

子吸收所产生, 而 AIN 薄膜中存在的残余应力引起了激子吸收峰的宽化使吸收曲线呈现不出单一的激子吸收峰而出现凸肩结构 (膜中的残余应力可以由膜的 X-衍射看出). 当把 200 nm 处的凸肩结构理解为由带边自由激子吸收所引起时, 激子的结合能一般比较小^[8], 这样如果忽略激子的结合能, 就可以把 200 nm 理解为 AIN 的直接间隙带宽, 对应的能量为 6.2 eV. 由自由激子吸收的温度特性, 在低温时, 带边自由激子的吸收谱曲线将变得更加明显, 且位置向短波长方向移动. 而由图 3 对应不同温度下的吸收曲线, 可以明显看出: 在 10 k 到 293 k 的温度范围内, 不同温度下的 AIN 的吸收曲线在 200 nm 处的凸肩形状和位置都无明显的变化, 这是由于实验的 AIN 样品中存在有残余内应变, 这可以从 AIN 薄膜的 X-衍射图看出. 在吸收谱中, 与碳相关的缺陷引起的吸收没有观察到.

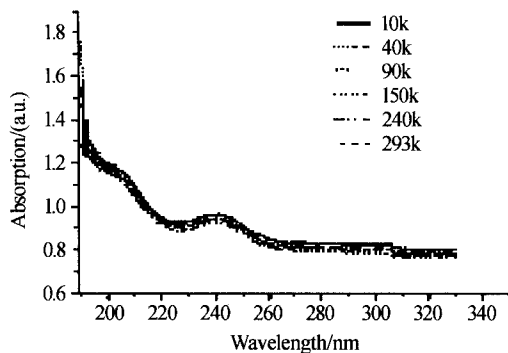


图 3 AIN 薄膜在不同温度下的吸收

Fig. 3 Absorption spectrum of AIN at different temperature

2 结论

本文对用 MBE 法沉积在 SiC(001) 面上的 AIN 薄膜进行了 X-衍射、透射谱和不同温度下的吸收谱的测量和分析, 测量和分析结果表明: 用 MBE 法沉积在 SiC(001) 面的 AIN 薄膜内存在一定的残余应力和应变, 该残余应力和应变为 AIN 薄膜晶面和相应的基底晶面上的晶格常量不匹配所致; 其直接间隙带宽约为 6.2 eV, 且随着温度的变化, 该间隙带宽基本保持不变.

参考文献

- 1 Calka A, Nikolov J I. Direct synthesis of AIN and Al-AIN composites by room temperature magneto ball milling; the effect of milling condition on formation of nanostructures. *Nanostructure Materials*, 1995, **6**(1-4): 409~412
- 2 Kawashima T, Yoshikawa H, Adachi S, et al: Optical properties of hexagonal GaN. *J Appl Phys*, 1997, **82**(7): 3528~3535
- 3 范隆, 郝跃, 冯倩, 等. SiC/AIN 上外延 GaN 薄膜的黄带发光与晶体缺陷的关系. *光子学报*, 2003, **32**(8): 977

- ~980
Fan L, Hao Y, Fen Q, *et al.* *Acta Photonica Sinica*, 2003, **32**(8):977~980
- 4 Kobayashi, Sankey O F, Volz S M, *et al.* Semiempirical tight-binding band structures of wurtzite semiconductors: AlN, CdS, CdSe, ZnS, and ZnO. *Phys Rev B*, 1983, **28**(2):935~945
 - 5 Ching W Y, Harmon B N. Electronic structure of AlN. *Phys Rev B*, 1986, **34**(8):5305~5308
 - 6 Christensen N E, Gorczyca I. Optical and structural properties of III-V nitrides under pressure. *Phys Rev B*, 1994, **50**(7):4397~4415
 - 7 Guo Q X, Nishio M, Ogawa H, *et al.* Temperature effect on the electronic structure of AlN. *Phys Rev B*, 2001, **64**(11):113105~113107
 - 8 Yamashita H, Fukui K, Misawa S, *et al.* Optical properties of AlN epitaxial thin films in the vacuum ultraviolet region. *J Appl Phys*, 1979, **50**(2):896~898
 - 9 Gautier M, Duraud J P, Gressus C Le. Electronic structure of an AlN film produced by ion implantation studied by electron spectroscopy. *J Appl Phys*, 1987, **61**(2):574~580
 - 10 Tang X, Hossain F, Wangchotigul K, *et al.* Near band-edge transition in aluminum nitride thin films grown by metal organic chemical vapor deposition. *Appl Phys Lett*, 1998, **72**(12):1501~1503
 - 11 Joo H Y, Kim H J. Spectrophotometric analysis of aluminum nitride thin film. *J Vac Sci Technol A*, 1992, **17**(3):862~870
 - 12 Krupitskaya R Y, Auner G W. Optical characterization of AlN films grown by plasma source molecular beam epitaxy. *J Appl Phys*, 1998, **84**(5):2861~2865
 - 13 Guo Q X, Nishio M, Ogawa H. Optical properties of aluminum nitride. *Phys Rev B*, 1997, **55**(24):15987~15988
 - 14 Onuma T, Chichibu S F, Sota T, *et al.* Exciton spectra of an AlN epitaxial film on (0001) sapphire substrate grown by low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy. *Appl Phys Lett*, 2002, **81**(4):652~654
 - 15 Kuokstis E, Zhang J, Fareed Q, *et al.* Near-band-edge photoluminescence of wurtzite-type AlN. *Appl Phys Lett*, 2002, **81**(15):2755~2757
 - 16 Nam K B, Li J, Nakarmi M L, *et al.* Deep ultraviolet picosecond time-resolved photoluminescence studies of AlN epilayers. *Appl Phys Lett*, 2003, **82**(11):1694~1696
 - 17 Kosicki B B, Dowell R J, C > Burgiel J. Optical absorption and vacuum-ultraviolet reflectance of GaN thin films. *Phys Rev Lett*, 1970, **24**(25):1421~1423
 - 18 Dingle R, Sell D D, Stokwski S F, *et al.* Absorption, Reflectance, and luminescence of GaN single crystals. *Phys Rev B*, 1971, **3**(2):497~500

The Optical Properties of AlN Film

Yan Guojun¹, Chen Guangde¹, Qiu Fusheng¹, Zhaoyan Fan^{2,3}

¹ Applied physic department, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049

² Department of Electrical Computer Engineering, Northwestern University, Evanston, Illinois 60208, USA,

³ Department of Physics, Kansas State University, Manhattan, Kansas 66506, USA

Received date: 2004-11-15

Abstract An X-diffraction, a transmittance spectrum and absorption spectrums at different temperatures of an AlN film deposited on a (001) SiC substrate by MBE were measured on a X-diffractometer and an UV spectrophotometer (190nm~800nm) respectively. The X-diffraction spectrum shows that; there are strains in the c-axial orientation of the AlN, these strains are caused by the mismatching of crystal lattice constant of the AlN and the SiC substrate, and these strains will cause the stresses in the AlN film; the transmittance spectrum of the AlN shows that; the direct-band-gap of the AlN is about 6.2 eV; and obvious "knees" or a "shoulders" structure around 6.2 eV existing in the absorption spectrums are considered to be caused by the free excitonic absorptions in the AlN film, if not considered the formation energy of the free exciton, 6.2 eV is the value of the direct-band-gap of the AlN film; the "knees" or the "shoulder" structure and position don't change with the temperature in the absorption spectrums of the AlN shows that; the temperature doesn't influence the value of the direct-band-gap of the AlN obviously, this is probable, which is caused by the stresses existing in the AlN film.

Keywords AlN film; Transmittance spectrum; Absorption spectrum; The direct-band-gap energy; Free exciton



Yan Guojun was born in 1974. Now he is a doctor in Xi'an Jiaotong University and has issued a few papers in Chinese Journal. Recently his interests include the synthesis of III-V nanocrystals and their optical characters.