

AlGa_N 表面相分离的同位微区荧光光谱 和高空间分辨表面电势表征*

刘博阳^{1)2)3)#} 宋文涛^{1)2)#} 刘争晖^{1)2)†} 孙晓娟⁴⁾ 王开明²⁾ 王亚坤¹⁾²⁾
张春玉²⁾ 陈科蓓²⁾ 徐耿钊¹⁾²⁾ 徐科^{1)2)‡} 黎大兵⁴⁾

1) (中国科学技术大学纳米技术与纳米仿生学院, 苏州 215123)

2) (中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所, 苏州 215123)

3) (中国科学技术大学纳米科学技术学院, 苏州 215123)

4) (中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 长春 130033)

(2020年1月14日收到; 2020年4月7日收到修改稿)

AlGa_N 是制备深紫外光电器件和电子器件的重要材料. 随着 Al 组分的增加, AlGa_N 材料表面容易出现局域组分不均匀的相分离现象, 进而影响器件的性能. 为了探索相分离的微观机制, 本文采用了同位的共聚焦微区荧光光谱和扫描开尔文探针显微术对不同 Al 组分的 AlGa_N 表面相分离现象进行了表征. 三片样品的 Al 组分比分别约为 0.3, 0.5 和 0.7. 本文采用的基于双频锁相的扫描开尔文探针显微术, 可获得高空间分辨 (约 10 nm) 的表面电势像. 在微区荧光光谱中出现明显相分离现象的区域, 利用此方法获得的表面电势像可以清晰地观察到犬牙交错的台阶及其表面凹坑边缘的电势变化, 对应组分的不均匀性. 随着台阶转入台阶流的形态, 表面凹坑逐渐缩小和合并, 台阶和凹坑边缘不再出现明显的电势畴界, 光谱中相分离的现象消失. 实验结果表明, AlGa_N 表面的台阶和凹坑边缘是产生组分不均匀性, 进而在光谱中产生相分离现象的主要原因; 结合同位微区荧光光谱, 高分辨的扫描开尔文探针显微术是一种有效的表征 AlGa_N 相分离微观机制的方法.

关键词: 铝镓氮, 相分离, 扫描开尔文探针显微术, 荧光光谱

PACS: 73.61.Ey, 64.75.Qr, 73.61.-r, 07.79.Lh

DOI: 10.7498/aps.69.20200099

1 引言

AlGa_N 作为一种直接带隙宽禁带半导体材料, 随着 Al 组分比例的变化, 其带隙可在 3.4 到 6.2 eV 之间调节. 近年来, AlGa_N 材料被广泛应用于固态深紫外光电器件领域, 包括深紫外发光二极管、激光器和光电探测器等^[1-3]. 此外 AlGa_N 也是制备高电子迁移率晶体管和高压击穿电压的肖特基

二极管等电子电力器件的重要材料^[4-8]. 这些器件的性能都严重依赖于其中 AlGa_N 材料的晶体质量. 尤其是对于高 Al 组分的 AlGa_N 材料, 由于外延生长过程中 Al 和 Ga 的表面迁移速率差异很大, 容易出现局域组分不均匀的相分离现象^[9-11]. 这可能会造成局域态增加, 影响载流子输运与光发射过程, 从而使器件发光性能下降, 产生期望之外的发光峰^[12,13]. 为提高器件性能, 在生长工艺上, 人们通过调控生长过程中的应力等方法, 探索如何有效地抑制相分离现象^[14]; 在测试分析上, 也试图通过

* 国家重点研发计划 (批准号: 2016YFB0400101)、国家自然科学基金 (批准号: 11804369) 和中国科学院关键技术人才资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: zhliu2007@sinano.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: kxu2006@sinano.ac.cn

各种方法对相分离背后的微观机制进行研究, 从而为改进工艺提供支撑. 相分离的一个主要特征是在荧光光谱中出现多个发光峰. 通常的微区荧光光谱空间分辨率在微米尺度^[9], 适用于 10 μm 以上较大的 V 型坑和缺陷结构周围的光谱变化, 对应于组分的不均匀性. 对于更小的结构, 可以使用阴极射线荧光光谱 (CL)^[15,16] 和扫描近场光学探针显微术 (SNOM)^[10,17–19] 的方法进行测量, 分辨率在 100 nm 左右. 例如 Knauer 等^[15] 使用 CL 的方法, 在台阶边缘发现有组分不均匀引起的发光峰偏离. Pinos 等^[10,18] 采用 SNOM 的方法, 在 AlGa_{0.3}N 表面岛状结构的边缘, 发现有近场荧光光谱峰的偏移, 对应 Ga 组分在台阶附近的富集现象.

本文采用了同位的共聚焦微区荧光光谱和扫描开尔文探针显微术对不同 Al 组分的 AlGa_{0.3}N 表面相分离现象进行了表征. 其中采用的基于双频锁相的单次扫描开尔文探针显微术^[20], 可将表面电势的分辨率提高到小于 10 nm. 在微区光谱中出现相分离现象的区域, 利用此方法获得的表面电势像可以清晰地观察到犬牙交错的台阶及其表面凹坑边缘的电势变化, 对应于组分的不均匀性. 随着台

阶转入台阶流的形态, 凹坑逐渐缩小和合并, 台阶和凹坑边缘不再出现明显的电势畴界, 光谱中相分离的现象消失. 实验结果表明, 结合同位微区荧光光谱, 高分辨的扫描开尔文探针显微术是一种有效的表征 AlGa_{0.3}N 相分离微观机制的方法.

2 实验

实验采用的样品为金属有机化合物化学气相沉积生长的三片 AlGa_{0.3}N 样品, 文中的样品编号分别为 Al_{0.3}Ga_{0.7}N, Al_{0.5}Ga_{0.5}N 和 Al_{0.7}Ga_{0.3}N, 对应的 Al 组份比分别为 0.3, 0.5 和 0.7. AlGa_{0.3}N 外延层生长在有 AlN 模板的蓝宝石衬底上. 使用冷场发射扫描电镜 (日本 HITACHI 公司的 S-4800 SEM) 对三片样品进行了观察, Al_{0.3}Ga_{0.7}N, Al_{0.5}Ga_{0.5}N 和 Al_{0.7}Ga_{0.3}N 样品的 SEM 剖面图分别如图 1(a)、图 1(b) 和图 1(c) 所示, 其中对 AlGa_{0.3}N 层和 AlN 层的厚度进行了标记.

采用椭圆偏仪对三片样品的吸收系数进行了测量. 椭圆偏仪型号为 J.A.Woollam 公司的 M-2000DI 光谱型椭圆偏振测量仪. 通过拟合椭圆偏仪测得的反

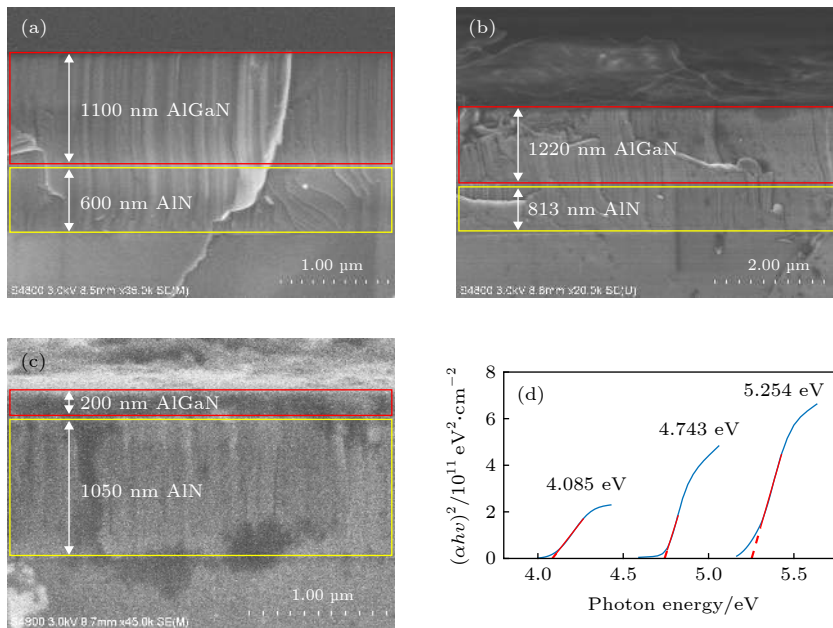


图 1 (a) Al_{0.3}Ga_{0.7}N 样品剖面的 SEM 图; (b) Al_{0.5}Ga_{0.5}N 样品剖面的 SEM 图; (c) Al_{0.7}Ga_{0.3}N 样品剖面的 SEM 图; (a), (b) 和 (c) 图中分别用红框和黄框标记了 AlGa_{0.3}N 层与 AlN 层的位置, 并在框中显示了测量得到的厚度; (d) 中从左至右分别为 Al_{0.3}Ga_{0.7}N, Al_{0.5}Ga_{0.5}N 和 Al_{0.7}Ga_{0.3}N 样品利用椭圆偏仪测量得到的吸收系数拟合带隙的结果

Fig. 1. (a) The SEM image of the Al_{0.3}Ga_{0.7}N Sample; (b) the SEM image of the Al_{0.5}Ga_{0.5}N Sample; (c) the SEM image of the Al_{0.7}Ga_{0.3}N Sample. The AlGa_{0.3}N and AlN layers in (a), (b) and (c) are marked with red and yellow squares respectively, in addition with the thickness labeled. (d) From left to right, the curves show the absorption coefficients of Al_{0.3}Ga_{0.7}N, Al_{0.5}Ga_{0.5}N and Al_{0.7}Ga_{0.3}N samples, respectively. The absorption coefficients are measured by an ellipsometer and the band gaps are fitted out and labeled.

射谱可获得样品的折射率 n 与消光系数 k , 由 k 获得吸收系数 α , 从而确定三片样品的禁带宽度.

微区荧光光谱是采用实验室自主研制的一套深紫外共聚焦时间分辨荧光光谱系统获得的, 激发光源为 195—300 nm 可调节的飞秒脉冲光源, 激光通过 25 倍反射式物镜聚焦到样品表面, 激发的荧光通过同样的物镜收集后, 通过一系列滤光片, 聚焦到 100 μm 的针孔后, 被光谱仪接收, 从而获得共聚焦荧光光谱. 该设备的光谱空间分辨率在 2 μm 左右. 由于三片样品的带隙跨度大, 不同样品的激发波长有所不同: 对于 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$ 样品采用 266 nm 波长的脉冲激光, 平均功率约为 1 mW; 对于 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ 样品采用 226 nm 波长的脉冲激光, 平均功率约为 1.2 mW; 对于 $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ 样品采用 195 nm 波长的脉冲激光, 平均功率约为 0.5 mW.

表面电势通过 Bruker Multimode 原子力显微镜扫描获得, 由光学显微镜中的标记点实现与微区荧光光谱的同位测试. 利用我们自主研制和扩展的双频锁相的单次扫描开尔文探针显微术, 可将表面电势的分辨率提高到小于 10 nm. 目前应用较广的抬高模式开尔文探针显微术测试表面电势时, 是在第一次形貌扫描的基础上, 将针尖抬高数十纳米, 沿着形貌扫描的轨迹扫描, 同时在导电探针上施加与形貌扫描同频率的交流电压, 通过在针尖上补偿针尖和样品间的电势差, 使得交流电压引起的探针机械振动消失. 针尖上补偿的电势差即为测量得到的表面电势. 而本文中采用的双频锁相的单次扫描方法, 在形貌扫描的同时, 额外采用针尖的第二共振频率施加在导电探针上, 从而实现在单次扫描中同时获得形貌与表面电势像. 由于不需要针尖抬高, 因此电势的空间分辨率可以得到较大的提高^[20]. 实验采用 Bruker 公司的 SCM-PIT 导电针尖, 形貌测试采用的第一本征频率约为 67.04 Hz, 表面电势测试采用的第二本征频率约为 420.94 Hz. 在本文对 AlGa_N 样品表面的表征中, 用该方法可以清晰地分辨表面电势的畴界, 典型的分辨率可达到约 19 nm (详见图 2(b) 及相关讨论).

3 结果与分析

3.1 带隙拟合和组分估算

图 1(d) 显示了通过椭偏仪测量得到的吸收系数拟合带隙的结果. AlGa_N 为直接带隙半导体, 根据 Tauc 公式^[21,22], 吸收系数 α 和光子能量 $h\nu$ 有以

下关系:

$$(\alpha h\nu)^2 \propto h\nu - E_g, \quad (1)$$

其中 E_g 为带隙, h 为普朗克常量, ν 为光子频率. 对 $(\alpha h\nu)^2$ 随 $h\nu$ 变化的曲线中的线性部分进行拟合, 其在横轴上的截距即对应带隙. 从图 1(d) 可以看出, $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$, $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ 和 $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ 三片样品拟合得到的带隙分别为 4.085 eV, 4.743 eV 和 5.254 eV, 对应的光子波长为 303.5 nm, 261.4 nm 和 236.0 nm. AlGa_N 作为三元合金, 可以根据 Vegard 定律^[23] 估算 Al 组分比例的大小 x :

$$E_g = xE_{\text{AlN}} + (1-x)E_{\text{GaN}} - bx(1-x), \quad (2)$$

其中, E_{AlN} 为 AlN 的带隙, 取为 6.20 eV; E_{GaN} 为 GaN 的带隙, 取为 3.42 eV^[24], b 为弓参数^[25], 这里取为 1, 则可估算三片样品 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$, $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ 和 $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ 的 Al 组分比例为 0.32, 0.56 和 0.73. 这与样品生长时设定的组分比例目标 0.3, 0.5 和 0.7 接近.

3.2 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ 的荧光光谱和表面电势

$\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ 样品的 Al 组分比例约为 0.5. 该样品的表面性质不太均匀, 测量表面不同位置时, 出现了两种典型的荧光光谱, 分别如图 2(a) 和图 3(a) 所示, 其对应的表面形貌和表面电势像如图 2(c)—(f) 和图 3(c)—(f) 所示.

从图 2(a) 可以看到 3 个荧光峰, 明显分离为两组, 峰位分别为 261.0, 305.3 和 314.1 nm, 根据 (2) 式可以估算 3 个发光峰对应的组分比分别为 0.57, 0.30 和 0.26. 第一个发光峰的位置和预期的 0.5 组分比的 AlGa_N 发光峰位置基本一致, 也和椭圆偏仪测量得到的带隙位置接近. 第二个峰与第三个峰则对应了两个明显富 Ga 的组分, 这说明该区域有明显的相分离现象. 这两个深能级峰位与第一个峰在光子能量上相距约 0.7 eV, 其可能的来源是由于缺少 Al 形成的 (阳离子空位-杂质) 缺陷, 例如带一个负电荷的 $(V_{\text{Al}}-2O_{\text{N}})^{-1}$ 空位缺陷^[26]. 图 2(c) 和图 2(d) 为大范围 (10 μm) 的表面形貌像和表面电势像, 可以看到其台阶呈现犬牙交错的形态. 台阶表面有大量的凹坑, 凹坑处的表面电势与周围台面位置的电势明显不同. 图 2(e) 和图 2(f) 为小范围 (3 μm) 的表面形貌像和表面电势像, 从表面形貌像可以看到凹坑的形状很不规则, 呈现扭曲的条带状, 从表面电势像看, 各个凹坑处的电势与周围

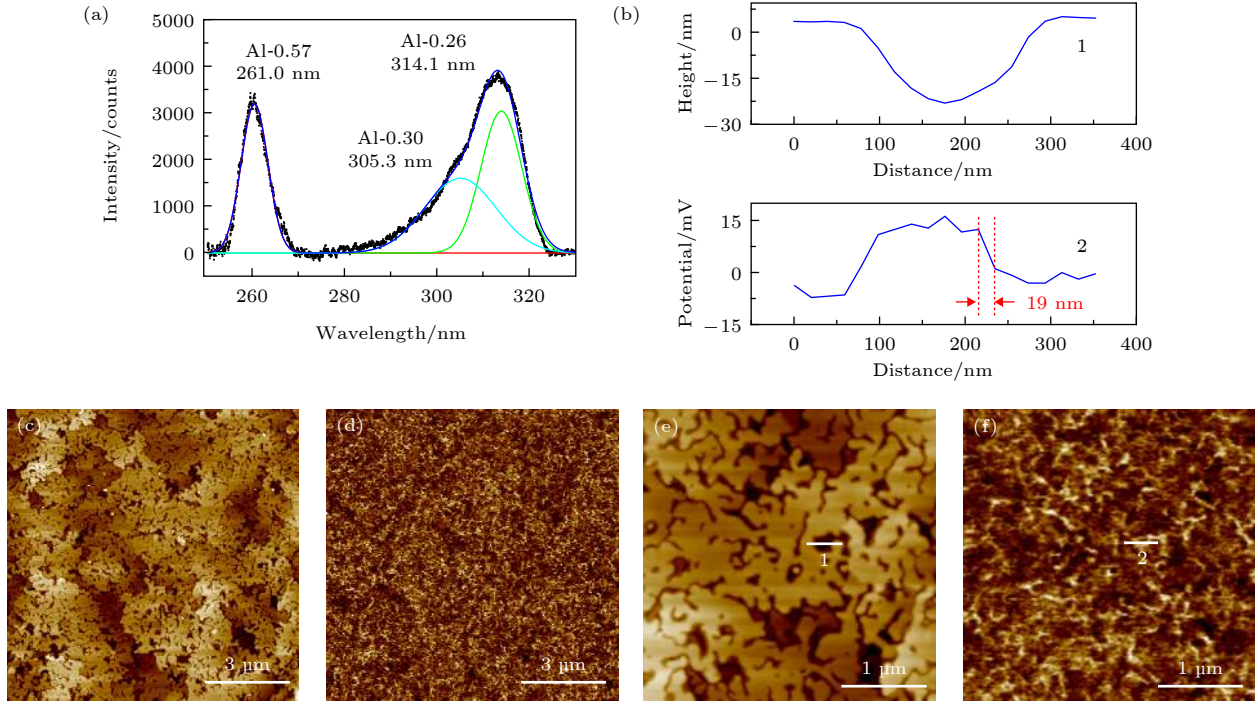


图 2 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ 样品表面有明显相分离现象的区域 (a) 该区域的典型荧光光谱; (b) 上图和下图分别为形貌和表面电势的剖面图, 对应于图 (e) 中标记 1 的位置和图 (f) 中标记 2 的位置; 如红线所示, 下图电势剖面图的下降沿宽度约为 19 nm, 说明了我们采用的双频单次扫描开尔文探针显微术的典型空间分辨率; (c) 和 (d) 扫描尺寸为 $10\ \mu\text{m}$ 时的表面形貌像及对应表面电势像; (e) 和 (f) 扫描尺寸为 $3\ \mu\text{m}$ 时的表面形貌像及对应表面电势像; 图 (e) 中白色横线标记 1 和图 (f) 中标记 2 对应同一位置

Fig. 2. The area with obvious phase separation phenomenon on the $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ sample surface. (a) A typical photoluminescence spectrum of the area. (b) Profiles of the topography and the surface potential shown in plot 1 and 2, respectively. The profile of the topography is extracted from mark 1 in panel (e). The profile of the surface potential is extracted from the mark 2 in panel (f). The width of the falling edge marked by red lines in the profile of the surface potential is about 19 nm. This value presents the typical spatial resolution of the single-pass Kelvin force probe microscopy we applied. (c) and (d) The topography image and the surface potential image, respectively, obtained at the same area with a scan size of $10\ \mu\text{m}$. (e) and (f) The topography image and the surface potential image, respectively, obtained at the same area with a scan size of $3\ \mu\text{m}$. The white lines marked by 1 in panel (e) and 2 in panel (f) are picked at the same position.

有明显的不同. 图 2(e) 中标记 1 和图 2(f) 中标记 2 的位置对应同一个凹坑, 其形貌和电势的剖面图分别对应图 2(b)-1 和图 2(b)-2 中. 从剖面图中可见凹坑的深度约为 26 nm, 对应电势比周围台面高出约 23 mV. 从以上表面电势像中可以看到凹坑和台面位置呈现界限分明的两种电势区域, 很可能对应两种不同的组分. 由于 Ga 和 Al 组分在表面的迁移速率有很大差异, Ga 原子的迁移率远大于 Al 原子^[9-11]. 因此 Al 组分的分布可能相对均匀. 而凹坑包含的位错和台阶等缺陷可以减缓 Ga 原子的迁移速率, 因此相对台面位置, 有利于形成富集 Ga 的区域^[10,11,27], 相应可能形成大量的 Al 空位-杂质缺陷, 对应图 2(a) 中的深能级发光峰.

图 2(b) 下图的表面电势剖面图中, 用红线标记了电势畴界的边缘位置: 下降沿的宽度约为 19 nm, 这反映了我们所采用的双频单次扫描开尔

文探针显微术在应用于 AlGa_{0.5}N 半导体材料时可达到的典型分辨率.

图 3(a) 中的荧光峰则没有出现明显的相分离现象, 单峰拟合的峰位为 265.9 nm, 和椭偏仪测量得到的带隙位置接近. 该发光波长根据前述 (2) 式估算的组分为 0.54, 也接近 0.5 的组分比预期. 从图 3(c) 所示的对应区域的原子力显微镜形貌像可以看到, 其表面台阶形态和图 2 中有相分离区域的形貌迥异, 主要是由一些数微米大小的岛状台面构成, 图 3(d) 的表面电势像显示岛状台阶的边缘电势和周围有一定的区别, 但台面上电势基本均匀. 从图 3(e) 所示的小范围 ($3\ \mu\text{m}$) 的表面形貌可以看到, 台面上依然存在凹坑, 但凹坑数量大大减少, 凹坑面积和图 2 相比也大大缩小. 图 3(b)-1 显示的是一处较大的凹坑处的形貌剖面图, 可以看到该凹坑的深度和图 2(b)-1 中的凹坑相比, 深度减

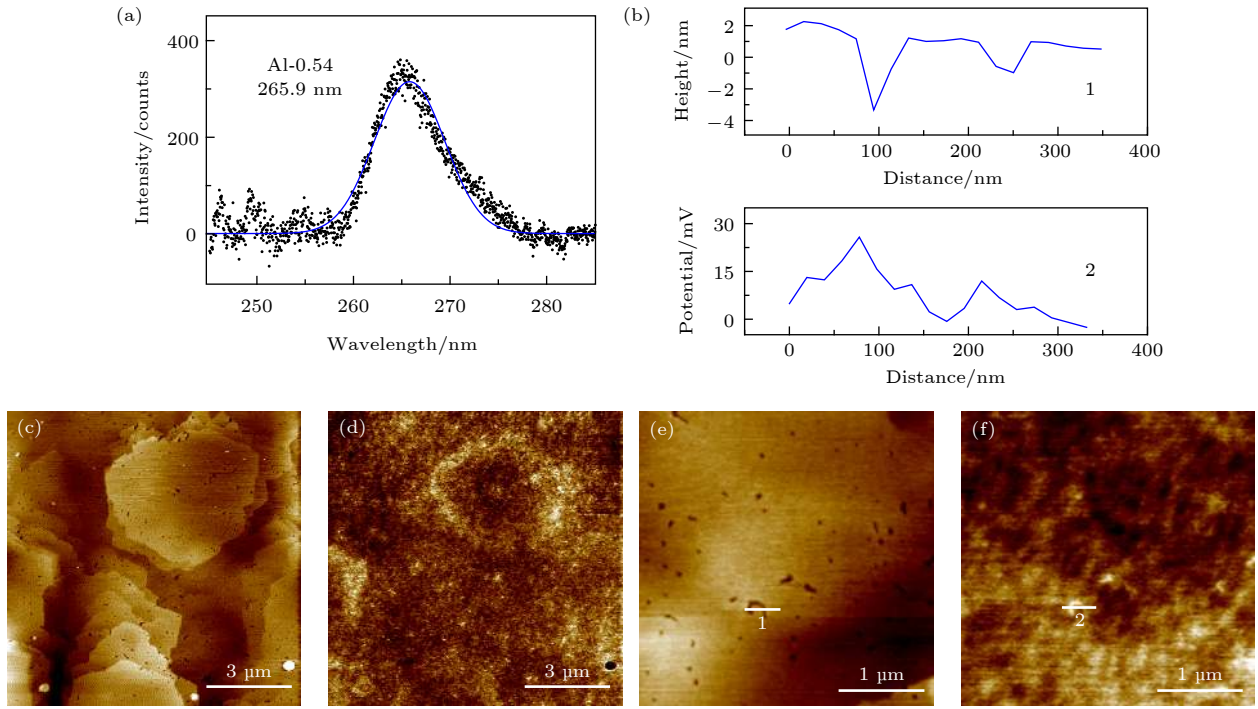


图3 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ 样品表面没有明显相分离现象的区域 (a) 该区域的典型荧光光谱; (b) 上图和下图分别为形貌和表面电势的剖面图, 对应图 (e) 中标记 1 的位置和图 (f) 中标记 2 的位置; (c) 和 (d) 扫描尺寸为 $10\ \mu\text{m}$ 时的表面形貌像及对应表面电势像; (e) 和 (f) 扫描尺寸为 $3\ \mu\text{m}$ 时的表面形貌像及对应表面电势像; 图 (e) 中白色横线标记 1 和图 (f) 中标记 2 对应同一位置

Fig. 3. The area without phase separation phenomenon on the $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ sample surface. (a) A typical photoluminescence spectrum of the area. (b) Profiles of the topography and the surface potential shown in the plot 1 and 2, respectively. The profile of the topography is extracted from mark 1 in panel (e). The profile of the surface potential is extracted from the mark 2 in panel (f). (c) and (d) The topography image and the surface potential image, respectively, obtained at the same area with a scan size of $10\ \mu\text{m}$. (e) and (f) The topography image and the surface potential image, respectively, obtained at the same area with a scan size of $3\ \mu\text{m}$. The white lines marked by 1 in panel (e) and 2 in panel (f) are picked at the same position.

小到 3—6 nm, 对应的表面电势 (图 3(b)-2) 比周围高出约 10—25 mV. 而图 3(d) 中更小的凹坑处的电势没有呈现明显的畴界. 可见该区域随着台阶逐渐转向台阶流生长, 台面不再支离破碎, 凹坑逐渐合并, 其大小和数量大大减少, 从而抑制了 Ga 原子在台阶边缘的富集, 同时也抑制了相分离现象的出现.

3.3 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$ 和 $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ 的荧光光谱和表面电势

Al 组分为 0.3 的 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$ 样品和 Al 组分为 0.7 的 $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ 样品表面形态比较均匀, 其典型的荧光光谱、表面形貌和表面电势像分别显示在图 4 和图 5 中.

$\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$ 样品的荧光光谱如图 4(a) 所示, 呈现出轻微的相分离的现象, 多峰拟合的结果表明其荧光峰峰位为 304.9 和 311.4 nm, 对应由 (2) 式计算得到的 Al 组分为 0.31 和 0.27. 其 $10\ \mu\text{m}$

和 $3\ \mu\text{m}$ 范围的表面形貌如图 4(c) 和图 4(e) 所示, 其台阶形态与前述 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ 样品中没有相分离现象的区域类似, 呈现岛状台面, 台面上表面电势基本均匀; 有少量的凹坑. 图 4(e) 和图 4(f) 中标记的位置是一个较大的凹坑结构, 其深度在 30 nm 左右, 表面电势比周围低约 15 mV. 可以看到这个样品在凹坑周围虽然可能有一定的组分不均匀现象, 但由于凹坑较少, 所以在光谱中已经看不到明显相分离的现象.

$\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ 样品的荧光光谱如图 5(a) 所示, 呈现出轻微的相分离的现象, 多峰拟合的结果表明其荧光峰峰位为 236.3 和 239.9 nm, 对应由 (2) 式计算得到的 Al 组分为 0.73 和 0.70, 这与椭圆仪测试得到的带隙结果基本一致. 其 $10\ \mu\text{m}$ 和 $3\ \mu\text{m}$ 范围的表面形貌如图 5(c) 和图 5(e) 所示, 台阶呈现典型的台阶流形态, 只有极少量的凹坑分布. 从图 5(d) 和图 5(f) 的电势像可以看得, 电势中没有出现明显的畴界. 从图 5(b) 中电势的剖面图可

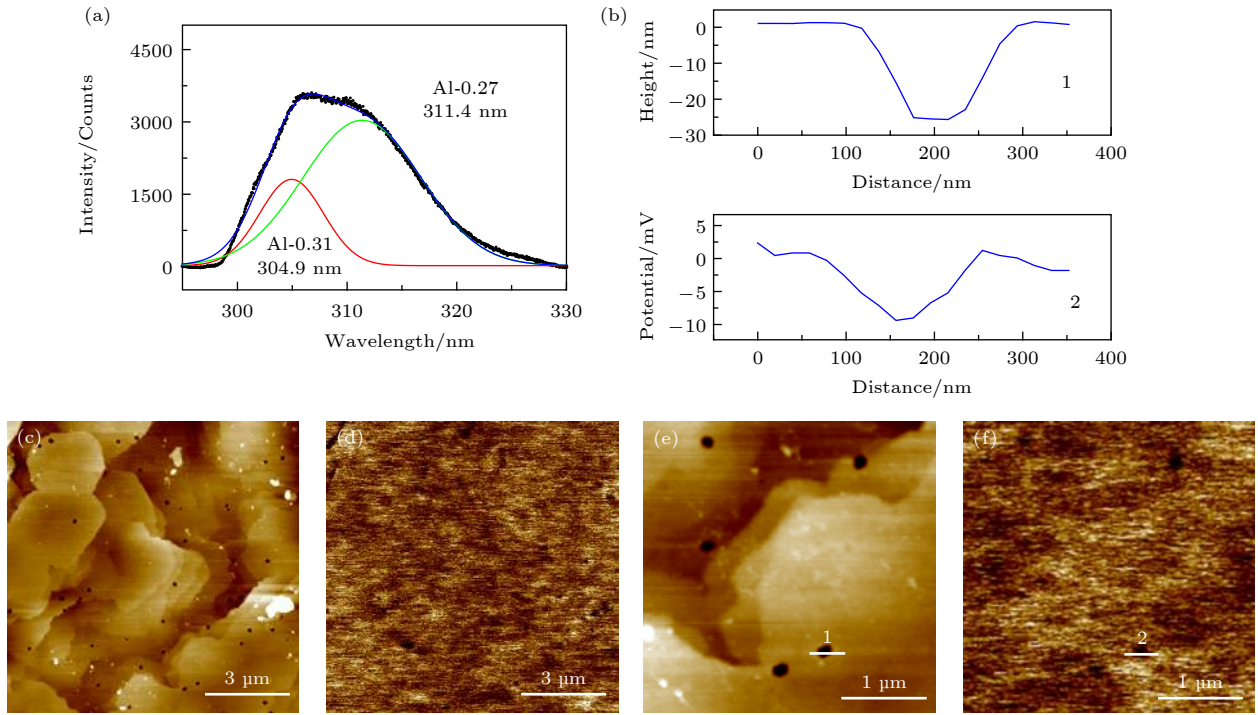


图 4 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$ 样品表面 (a) 该区域的典型荧光光谱; (b) 上图和下图分别为形貌和表面电势的剖面图, 对应图 (c) 中标记 1 的位置和图 (f) 中标记 2 的位置; (c) 和 (d) 扫描尺寸为 $10\ \mu\text{m}$ 时的表面形貌像及对应表面电势像; (e) 和 (f) 扫描尺寸为 $3\ \mu\text{m}$ 时的表面形貌像及对应表面电势像; 图 (e) 中白色横线标记 1 和图 (f) 中标记 2 对应同一位置

Fig. 4. The area on the $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$ sample surface. (a) A typical photoluminescence spectrum of the area. (b) Profiles of the topography and the surface potential shown in the plot 1 and 2, respectively. The profile of the topography is extracted from mark 1 in panel (e). The profile of the surface potential is extracted from the mark 2 in panel (f). (c) and (d) The topography image and the surface potential image, respectively, obtained at the same area with a scan size of $10\ \mu\text{m}$. (e) and (f) The topography image and the surface potential image, respectively, obtained at the same area with a scan size of $3\ \mu\text{m}$. The white lines marked by 1 in panel (e) and 2 in panel (f) are picked at the same position.

以看到, 其电势起伏在 $5\ \text{mV}$ 左右. 可见在这种形态的表面, 没有 Ga 元素的富集现象, 也基本没有出现相分离.

3.4 相分离微观结构相的形成机理

在上述内容中, 通过同位微区荧光光谱与高空间分辨表面电势表征的方法, 对 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$, $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}$ 和 $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ 三片样品表面的多个区域进行了对比与分析, 发现表面平坦区域的表面电势往往较为单一、稳定; 台阶边缘或表面凹坑处表面电势则明显异于其他平坦区域, 可能对应于荧光光谱中的富 Ga 和深能级的发光峰. 这与之前文献中的报道相符. 例如, Knauer 等^[15]曾在 2013 年使用 CL 方法在岛状形貌的台阶边缘发现了由组分波动引起的发光峰偏离 (类似于图 4 和图 5 中有轻微相分离的光谱) 和 Al 空位-杂质缺陷引起的深能级发光 (类似于图 2 中有明显相分离的光谱). Pinos 等^[10]曾在 2011 年采用 SNOM 的方法, 在 AlGaN

表面数微米的岛状结构的边缘发现有近场荧光光谱峰的偏移, 类似于图 4 和图 5 中有轻微相分离的光谱.

我们认为 AlGaN 表面产生相分离微观结构相的主要原因在于 Al 原子与 Ga 原子的表面迁移速度不同^[9-11], 从而与台阶和缺陷相互作用形成不同组分比的微观结构相. 在 AlGaN 的生长过程中, 相邻的岛逐渐合并形成更大的岛, 岛与岛合并的边缘位置容易产生位错等缺陷, 从而形成类似图 2 原子力显微镜形貌图中的凹坑结构, Ga 原子的迁移率远大于 Al 原子^[9-11], 而凹坑包含的位错和台阶等缺陷结构可减缓 Ga 原子的迁移速率, 因此相对其他位置, 有利于形成富 Ga 而少 Al 的区域^[10,11,27], 进而可能包含大量的 Al 空位-杂质缺陷, 形成类似图 2 荧光光谱中的深能级发光. 随着生长过程的推进, 岛状生长转入台阶流的形态, 表面凹坑大大减少, 则深能级的发光基本消失. 这时相分离的情况主要出现在岛状结构的边缘, 由于台阶对 Ga 原子

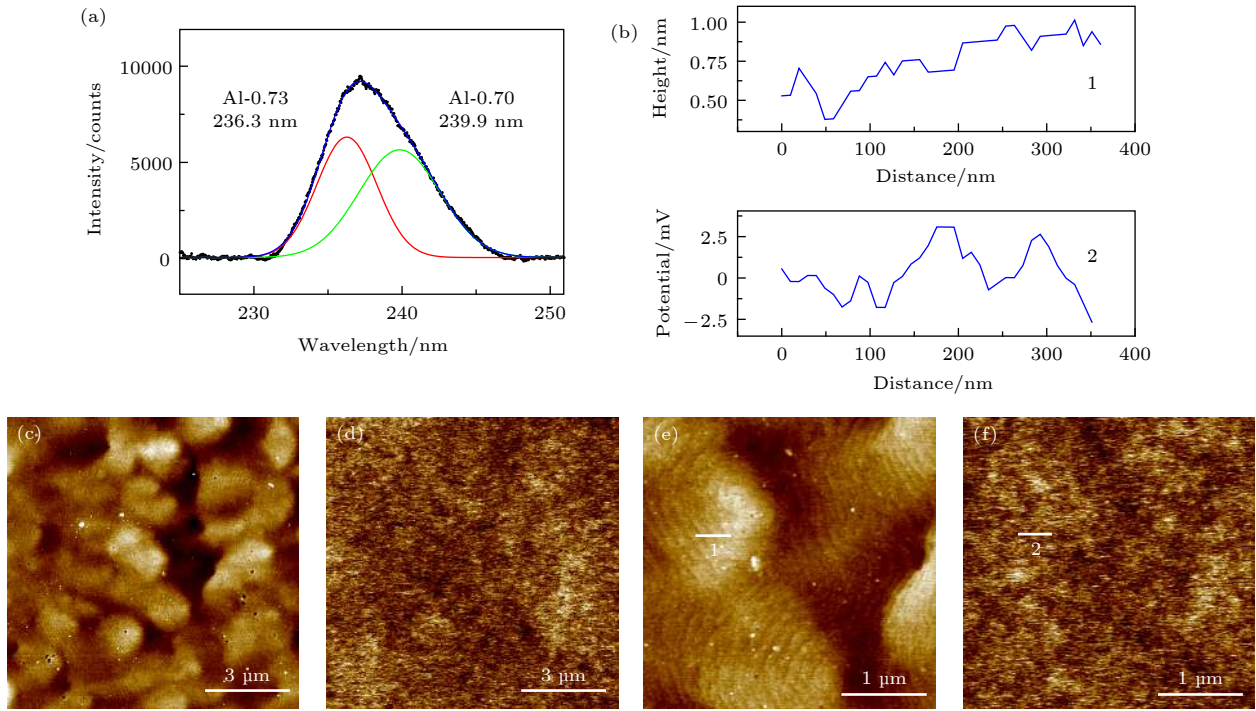


图5 $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ 样品表面 (a) 该区域的典型荧光光谱; (b) 上图和下图分别为形貌和表面电势的剖面图, 对应图 (e) 中标记 1 的位置和图 (f) 中标记 2 的位置; (c) 和 (d) 扫描尺寸为 $10\ \mu\text{m}$ 的表面形貌像及对应表面电势像; (e) 和 (f) 扫描尺寸为 $3\ \mu\text{m}$ 时的表面形貌像及对应表面电势像; 图 (e) 中白色横线标记 1 和图 (f) 中标记 2 对应同一位置

Fig. 5. The area on the $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ sample surface. (a) A typical photoluminescence spectrum of the area. (b) profiles of the topography and the surface potential shown in the plot 1 and 2, respectively. The profile of the topography is extracted from mark 1 in panel (e). the profile of the surface potential is extracted from the mark 2 in panel (f). (c) and (d) the topography image and the surface potential image, respectively, obtained at the same area with a scan size of $10\ \mu\text{m}$. (e) and (f) the topography image and the surface potential image, respectively, obtained at the same area with a scan size of $3\ \mu\text{m}$. The white lines marked by 1 in panel (e) and 2 in panel (f) are picked at the same position.

的阻滞引起组分的轻微波动, 从而在光谱中产生类似图 4 和图 5 的轻微相分离的光谱.

4 结 论

本文采用了同位的共聚焦微区荧光光谱和扫描开尔文探针显微术对不同 Al 组分的 AlGa_N 表面相分离现象进行了研究. 其中 Al 组分比例为 0.5 的样品表面不同区域呈现出有相分离和无相分离的两种典型荧光光谱. 其中有相分离的区域台阶形态支离破碎, 犬牙交错, 表面存在大量凹坑. 在高分辨的表面电势像中凹坑的表面电势和周围界限分明, 显示这些凹坑边缘可能是富 Ga 的区域, 是荧光光谱出现相分离现象的来源. 无相分离的区域台阶形态呈现岛状结构, 台面的凹坑尺寸和深度都大大缩小, 岛状台阶的边缘电势有一定起伏, 但台阶表面电势基本均匀. Al 组分为 0.3 和 0.7 的样品的荧光光谱中只有轻微的相分离现象, 对应的台

阶形态分别为岛状台面和台阶流的形态, 共同特征是表面仅有少量的凹坑结构, 凹坑边缘虽然有明显的电势起伏, 但由于凹坑数量较少, 不足以引起光谱中产生明显的相分离现象. 实验表明, AlGa_N 表面的台阶和凹坑边缘是产生组分不均匀性, 进而在光谱中产生相分离现象的主要原因; 结合同位微区荧光光谱, 高分辨的扫描开尔文探针显微术是一种有效的表征 AlGa_N 相分离微观机制的方法.

参考文献

- [1] Cai Q, Li Q, Li M, Tang Y, Wang J, Xue J J, Chen D J, Lu H, Zhang R, Zheng Y D 2019 *IEEE Photonics J.* **11** 6801507
- [2] Li D B, Jiang K, Sun X J, Guo C L 2018 *Adv. Opt. Photonics* **10** 43
- [3] Yang W H, Li J C, Lin W, Li S P, Chen H Y, Liu D Y, Yang X, Kang J Y 2013 *AIP Adv.* **3** 052103
- [4] Liu J, Wang L Q, Huang Z X 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 248501 (in Chinese) [刘静, 王琳倩, 黄忠孝 2019 物理学报 **68** 248501]
- [5] Zhang Z R, Fang Y L, Yin J Y, Guo Y M, Wang B, Wang Y G, Li J, Lu W L, Gao N, Liu P, Feng Z H 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 076801 (in Chinese) [张志荣, 房玉龙, 尹甲运, 郭艳敏,

- 王波, 王元刚, 李佳, 芦伟立, 高楠, 刘沛, 冯志红 2018 *物理学报* **67** 076801]
- [6] Tang W X, Hao R H, Chen F, Yu G H, Zhang B S 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 198501 (in Chinese) [唐文昕, 郝荣晖, 陈扶, 于国浩, 张宝顺 2018 *物理学报* **67** 198501]
- [7] Zhang L, Lin Z Y, Lou J, Wang S L, Zhang J C, Hao Y, Dai Y, Chen D Z, Guo L X 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 247302 (in Chinese) [张力, 林志宇, 罗俊, 王树龙, 张进成, 郝跃, 戴扬, 陈大正, 郭立新 2017 *物理学报* **66** 247302]
- [8] Guo H J, Duan B X, Yuan S, Xie S L, Yang Y T 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 167301 (in Chinese) [郭海君, 段宝兴, 袁嵩, 谢慎隆, 杨银堂 2017 *物理学报* **66** 167301]
- [9] Chen P, Chua S J, Miao Z L 2004 *J. Cryst. Growth* **273** 74
- [10] Pinos A, Liuolia V, Marcinkevicius S, Yang J, Gaska R, Shur M S 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 113516
- [11] Wang X L, Zhao D G, Jiang D S, Yang H, Liang J W, Jahn U, Ploog K 2007 *J. Phys. Condens. Matter* **19** 176005
- [12] Bryan I, Bryan Z, Mita S, Rice A, Hussey L, Shelton C, Tweedie J, Maria J P, Collazo R, Sitar Z 2016 *J. Cryst. Growth* **451** 65
- [13] Jiang K, Sun X J, Ben J W, Shi Z M, Jia Y P, Wu Y, Kai C H, Wang Y, Li D B 2019 *Crystengcomm* **21** 4864
- [14] Luong T T, Ho Y-T, Wong Y Y, Chang S, Chang E Y 2018 *Microelectron. Reliab.* **83** 286
- [15] Knauer A, Kueller V, Zeimer U, Weyers M, Reich C, Kneissl M 2013 *Phys. Status Solidi A* **210** 451
- [16] Sun Q, Wang H, Jiang D S, Jin R Q, Huang Y, Zhang S M, Yang H, Jahn U, Ploog K H 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 123101
- [17] Marcinkevicius S, Jain R, Shatalov M, Yang J, Shur M, Gaska R 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 241108
- [18] Pinos A, Marcinkevicius S, Liuolia V, Yang J W, Gaska R, Shur M S 2012 *Physica Status Solidi C: Current Topics in Solid State Physics* Royal Inst Technol (KTH), Stockholm, Sweden, Jun 19–23, 2011 p1617
- [19] Tamulaitis G 2011 *Mater. Sci.-Medzg.* **17** 343
- [20] Li G Y, Mao B, Lan F, Liu L M 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 113701
- [21] Liu Y, Li Q X, Wan L Y, Kucukgok B, Ghafari E, Ferguson I T, Zhang X, Wang S C, Feng Z C, Lu N 2017 *Appl. Surf. Sci.* **421** 389
- [22] Tauc J, Grigorovici R, Vancu A 1966 *Phys. Status Solidi* **15** 627
- [23] Koide Y, Itoh H, Khan M R H, Hiramatu K, Sawaki N, Akasaki I 1987 *J. Appl. Phys.* **61** 4540
- [24] Takeuchi K, Adachi S, Ohtsuka K 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 023306
- [25] Nepal N, Li J, Nakarmi M L, Lin J Y, Jiang H X 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 242104
- [26] Nepal N, Nakarmi M L, Lin J Y, Jiang H X 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 092107
- [27] Sun Q, Huang Y, Wang H, Chen J, Jin R Q, Zhang S M, Yang H, Jiang D S, Jahn U, Ploog K H 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 121914

Characterization of phase separation on AlGa_{0.3}N surfaces by *in-situ* photoluminescence spectroscopy and high spatially resolved surface potential images*

Liu Bo-Yang^{1)2)3)#} Song Wen-Tao^{1)2)#} Liu Zheng-Hui^{1)2)†} Sun Xiao-Juan⁴⁾
Wang Kai-Ming²⁾ Wang Ya-Kun¹⁾²⁾ Zhang Chun-Yu²⁾ Chen Ke-Bei²⁾
Xu Geng-Zhao¹⁾²⁾ Xu Ke^{1)2)‡} Li Da-Bing⁴⁾

1) (School of Nano-Tech and Nano-Bionics, University of Science and Technology of China, Suzhou 215123, China)

2) (Suzhou Institute of Nano-Tech and Nano-Bionics, Chinese Academy of Sciences, Suzhou 215123, China)

3) (Nano Science and Technology Institute, University of Science and Technology of China, Suzhou 215123, China)

4) (Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China)

(Received 14 January 2020; revised manuscript received 7 April 2020)

Abstract

AlGa_{0.3}N is a key material for deep ultraviolet optoelectronic and electronic devices. With the increase of the Al composition ratio, the phase separation on the surface, caused by small-scale compositional fluctuations, is prone to affecting the performance of the device. In order to explore the mechanism of the phase separation on a nanoscale, the AlGa_{0.3}N wafers with different quantities of Al compositions are investigated by the confocal photoluminescence spectroscopy and the single-pass Kelvin force probe microscopy. The composition ratios of Al for the three samples are about 0.3, 0.5, and 0.7, respectively. The single-pass Kelvin force probe microscopy based on dual-frequency phase-locking is used to obtain high spatially resolved (about 10 nm) surface potential images. In the area where the phase separation phenomenon is obvious in the photoluminescence spectrum, the sharp change of the surface potential can be observed at the irregular steps and the edges of the surface pits. The potential changes can be ascribed to the inhomogeneous composition distribution. In the area where the topography turns into step flow, the surface pits shrink and merge. No obvious surface potential domain boundaries appear at the steps nor on the edges of the surface pits. Meanwhile, the phase separation phenomenon in the photoluminescence spectrum almost disappears. Our experiments show that the steps and the edges of the surface pits on AlGa_{0.3}N surfaces are main reasons for small-scale compositional fluctuations and the phase separation in the spectrum. Combining with *in-situ* confocal photoluminescence spectra, high spatially resolved surface potential image by single-pass Kelvin force probe microscopy is an effective method to characterize the phase separation on AlGa_{0.3}N surface on a nanoscale.

Keywords: AlGa_{0.3}N, phase separation, Kelvin force probe microscopy, photoluminescence spectroscopy

PACS: 73.61.Ey, 64.75.Qr, 73.61.-r, 07.79.Lh

DOI: 10.7498/aps.69.20200099

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2016 YFB0400101), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11804369), and the CAS Key Technology Talent Program.

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: zhliu2007@sinano.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: kxu2006@sinano.ac.cn