宽禁带半导体材料与器件专题

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2022012802

ScAlN 缓冲层厚度对 Si(100)衬底上 GaN 外延层的影响

尹浩田[1]，丁广玉[1]，韩　军[1*]，邢艳辉[1]，邓旭光[2*]

（1. 北京工业大学 微电子学院 光电技术教育部重点实验室，北京 100124；
2. 中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所 纳米加工平台，江苏 苏州 215123）

摘　要： 采用脉冲直流磁控溅射方法在 Si(100)衬底上制备了 ScAlN 薄膜。以溅射的 ScAlN 作为缓冲层，在 Si(100)衬底上用金属有机化学气相沉积(MOCVD)技术外延了 GaN 薄膜。使用高分辨 X 射线衍射、原子力显微镜和拉曼光谱研究了 ScAlN 缓冲层的厚度对 ScAlN 缓冲层和 GaN 外延层的影响。研究结果表明，ScAlN 缓冲层的厚度是影响 GaN 薄膜晶体质量的重要因素。随着 ScAlN 厚度的增加，ScAlN 的(002)面 X 射线衍射摇摆曲线半高宽持续减小，GaN 的(002)面 X 射线衍射摇摆曲线半高宽先减小后增大。当 ScAlN 缓冲层厚度为 500 nm 时，得到的 GaN 晶体质量最好，其中 GaN(002)面的 X 射线衍射摇摆曲线半高宽为 0.38°，由拉曼光谱计算得到的张应力为 398.38 MPa。

关键词： Si(100)衬底；氮化镓；ScAlN；磁控溅射

中图分类号： TB383.2　**文章编号：** 1001－5868(2022)03－0517－05

Effect of ScAlN Buffer Layer Thickness on GaN Epitaxial Layer on Si(100) Substrate

YIN Haotian[1], DING Guangyu[1], HAN Jun[1], XING Yanhui[1], DENG Xuguang[2]

(1. Key Lab. of Opto-electronics Technology of the Ministry of Education, College of Microelectronics, Beijing University of Technology, Beijing 100124, CHN; 2. Nanofabrication Facility, Suzhou Institute of Nano-Technology and Nano-Bionics of the Chinese Academy of Sciences, Suzhou 215123, CHN)

Abstract: ScAlN thin films were first prepared on Si (100) substrate by pulsed DC magnetron sputtering. Then, GaN thin films were epitaxial grown on Si (100) substrate with metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD) by using ScAlN as the buffer layer. The influence of the thickness of ScAlN buffer layer on ScAlN buffer layer and GaN epitaxial layer is investigated by high resolution X-ray diffraction, atomic force microscopy (AFM) and Raman spectroscopy. The results show that the thickness of ScAlN buffer layer is an important factor affecting the crystal quality of GaN thin films. With the increase of ScAlN thickness, the full width at half maximum (FWHM) of ScAlN (002) X-ray diffraction rocking curve continues to decrease, and the FWHM of GaN (002) X-ray diffraction rocking curve first decreases and then increases. When the thickness of ScAlN buffer layer is 500 nm, the crystal quality of GaN is the best, the FWHM of GaN (002) X-ray diffraction rocking curve is 0.38°, and the tensile stress calculated by Raman spectrum is 398.38 MPa.

Key words: Si (100) substrate; GaN; ScAlN; magnetron sputtering

收稿日期：2022－01－28.
基金项目：国家自然科学基金项目(61574011)；北京市自然科学基金项目(4182015,4182014).
* **通信作者：**韩　军，邓旭光.
E-mail： hanjun@bjut.edu.cn；
xgdeng2011@sinano.ac.cn.

0 引言

GaN 具有宽禁带、高热导率以及高电子迁移率等性能，被广泛应用于光电子与电子器件，如发光二极管（Light Emitting Diode，LED）、激光二极管（Laser Diode，LD）以及高电子迁移率晶体管（High Electron Mobility Transistor，HEMT）等[1-4]。一方面，得益于 GaN 优异的材料特性，GaN HEMT 完美地契合了 5G 无线通信技术需求，从而在多个领域加速了技术进步。另一方面互补金属氧化物半导体（Complementary Metal Oxide Semiconductor，CMOS）工艺在成本、集成度和功耗等方面存在巨大优势，因此采用 CMOS 工艺的毫米波通信系统是将来无线通信电路发展的必然结果。目前，CMOS 技术基于 Si(100)衬底，而 GaN HEMT 基于 Si(111)衬底，这使得 CMOS 技术与 GaN HEMT 器件的集成存在较大的工艺复杂度和较高的生产成本。因此，如何在 Si(100)衬底上制备高质量 GaN 薄膜成为实现 CMOS 技术和 GaN HEMT 器件集成的首要问题。

GaN 和 Si(100)衬底之间存在很大的晶格失配和热失配，高温生长 GaN 时容易产生过大的应力并对 Si(100)衬底造成熔融刻蚀，这严重降低了 GaN 的晶体质量与性能。因此，在蓝宝石衬底上直接外延高质量 GaN 缓冲层的成功经验不适用于 Si(100)衬底。在 Si(100)衬底上外延 GaN 通常采用 AlN 作为缓冲层[5]，由于 AlN 与 GaN 之间仍存在 2.5% 的晶格失配，所以 AlN 缓冲层限制了后续外延 GaN 晶体质量的提升，这是目前 Si(100)衬底上外延高质量 GaN 材料存在的一个问题。2013 年剑桥大学 Moram 课题组[6]研究表明 AlN 中掺入少量的 Sc 元素后会发生晶格膨胀，当 Sc 含量达到 20% 时形成的 ScAlN 与 GaN 仅存在 0.4% 的晶格失配，可进一步降低缓冲层与 GaN 之间的晶格失配。因此本文采用 Sc 含量为 20% 的 ScAlN 作为缓冲层外延 GaN 薄膜。由于薄膜的性能与膜厚密切相关[7-8]，且缓冲层厚度对高温 GaN 外延层有很大的影响[9]，本文首先在 Si(100)衬底上利用脉冲直流磁控溅射系统制备了不同厚度的 ScAlN 缓冲层，对 ScAlN 的形貌和晶体质量进行了表征，随后用 MOCVD 在不同厚度的缓冲层上外延了 GaN，并研究了 ScAlN 缓冲层厚度对 GaN 外延层表面形貌、晶体质量、应力等性能的影响。

1 实验

本研究利用 Orbotech 公司的 SPTS's Sigma® fxP 磁控溅射设备在 5.08 cm(2 inch)的 Si(100)衬底上溅射了不同厚度的 ScAlN 薄膜，分别为 50，100，500 和 1 000 nm。根据缓冲层厚度的不同，将样品依次标记为 A，B，C，D。溅射所用靶材为 Sc 含量 20% 的 ScAl 合金靶，工作气体和反应气体分别为纯度 99.999 5% 的 Ar 和 N_2。在溅射前用丙酮、异丙醇和去离子水分别对衬底超声清洗 5 min，然后在真空度为 139.988 5 Pa 的预处理腔室内用 450 ℃热板加热 5 min 以去除衬底表面的水汽。通过抽真空使溅射腔的本底气压小于 $6.666\,1\times10^{-6}$ Pa，基板温度固定为 200 ℃。溅射不同厚度的 ScAlN 薄膜后，为了验证 ScAlN 薄膜对 GaN 材料的影响，将溅射后的样品置于 NIPPON SANSO MOCVD 中在常压下直接外延厚度约 2 μm 的单层 GaN。采用 H_2 作为载气，TMGa 和 NH_3 分别用作 Ga 源和 N 源，Ⅴ/Ⅲ为 6 000，温度 1 070 ℃。

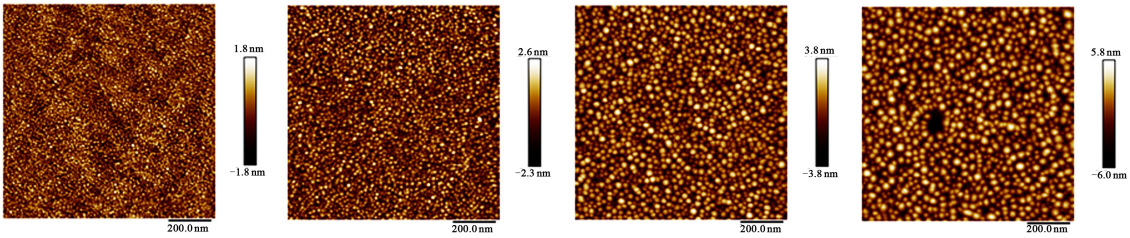
采用 Bruker 公司的 Dimension 3100 型原子力显微镜（AFM）在轻敲模式下对 ScAlN 缓冲层的表面形貌进行测试；通过 PANalytical 公司的 pw3040/60 型高分辨 X 射线衍射仪（HRXRD）测试 ScAlN 和 GaN 的(002)面摇摆曲线；利用 Raith 公司的 eLINE Plus 型扫描电子显微镜（SEM）测试外延 GaN 后样品的表面形貌；GaN 材料所受应力采用 HORIBA JobinYvon 公司的 Hr800 激光共聚焦显微拉曼光谱仪进行测试表征。

2 结果和讨论

图 1 为 AFM 测试的不同厚度 ScAlN 缓冲层样品的表面形貌，ScAlN 表面微晶的横向尺寸和高度均随薄膜厚度的增加而增加，因此 ScAlN 表面粗糙度也随之增大，分别为 0.506，0.734，1.15 和 1.77 nm。这是因为在生长过程中，随着薄膜厚度的增加，衬底表面的 ScAlN 小岛逐渐合并成大岛，导致形成的 ScAlN 表面微晶结构不断增大，表面粗糙度变大。

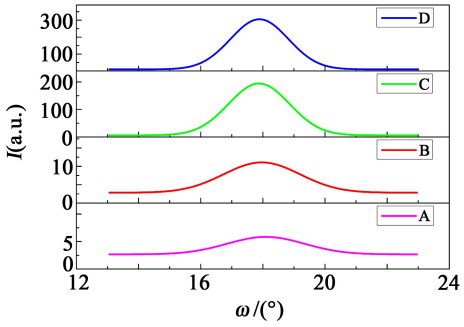
图 2(a)和(b)分别显示了 ScAlN 缓冲层(002)面 XRD 摇摆曲线及其半高宽（FWHM）随 ScAlN 厚度的变化关系。从图中可以看出，样品 A，B，C，D 的摇摆曲线衍射峰强度依次增大，表明 ScAlN 的(002)晶面衍射强度随着缓冲层厚度的增加不断增大；同时，ScAlN 的(002)面 FWHM 从 2.95°减小至

2.19°，表明 ScAlN 的晶体质量随厚度的增大而变好。通常薄膜的晶体质量与晶粒尺寸大小相关，晶粒尺寸越大，薄膜晶体质量越好[10]。因此，随着缓冲层厚度的增加，ScAlN 的晶粒尺寸逐渐增大，这与 AFM 测试结果表现一致。

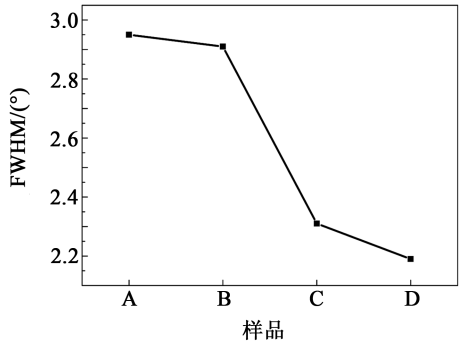


（a）　50 nm　　（b）　100 nm　　（c）　500 nm　　（d）　1 000 nm

图 1　不同厚度 ScAlN 缓冲层的 AFM 表面形貌



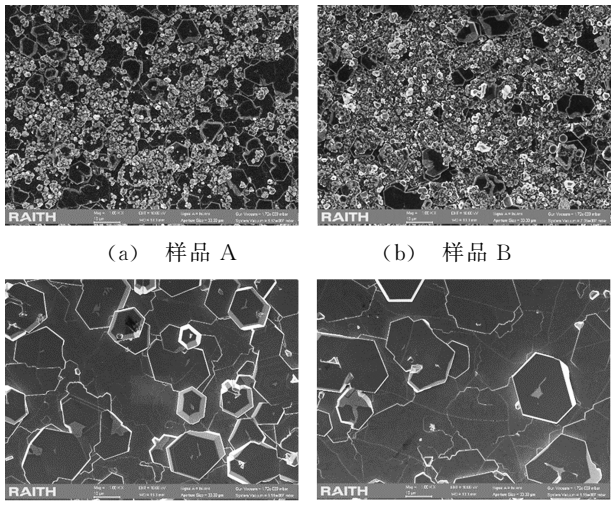
（a）　样品(002)面摇摆曲线



（b）　ScAlN(002)FWHM 变化趋势

图 2　不同样品中 ScAlN 缓冲层的 XRD 结果

随后在这些不同厚度的 ScAlN 缓冲层样品上继续用 MOCVD 外延 GaN 层，用 SEM 测试了外延 GaN 层后各个样品的表面形貌，如图 3 所示，其中图 3(a)～(d)分别对应样品 A～D。从图中可以看出，样品 A 和 B 上的 GaN 表面由尺寸较小的不规则的多边形拼接而成，且表面附着大量的颗粒物。样品 C 和 D 中的 GaN 表面有合并成膜的趋势，其中样品 D 表面的六边形 GaN 岛比样品 C 表面的 GaN 岛更大，这可能是受 ScAlN 缓冲层表面的微晶影响，缓冲层表面微晶尺寸越大，所得 GaN 外延层表面的 GaN 岛也越大。同时，在样品 D 的表面出现一些较小的裂纹，这是因为缓冲层厚度的增加使 GaN 外延层中的应力变大，当应力达到一定程度时会出现裂纹以释放应力。



（a）　样品 A　　（b）　样品 B

（c）　样品 C　　（d）　样品 D

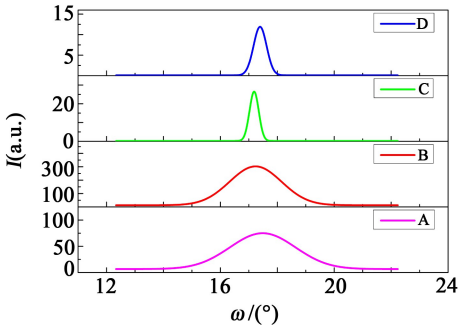
图 3　不同样品中 GaN 的表面形貌

图 4(a)和(b)分别为样品 A～D 上外延 2 μm 厚 GaN 材料的(002)面 XRD 摇摆曲线和 GaN(002)FWHM 变化趋势。由图 4 可知，随 ScAlN 厚度的增加，GaN(002)FWHM 先减小后增大，当缓冲层厚度为 500 nm 时 GaN 的(002)面 FWHM 最小，为 0.38°。由于(002)面摇摆曲线半宽主要受到螺型穿透位错密度影响，GaN 的螺型穿透位错密度可以通过下式计算[11]：

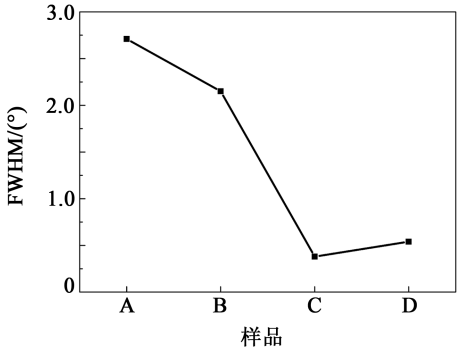
$$\rho_{\mathrm{screw}}=\frac{\beta^2}{4.35b^2} \tag{1}$$

其中，ρ_{screw}，β 和 $b=0.5185$ nm 分别表示位错密度、摇摆曲线半高宽以及伯格斯矢量长度。计算所得样品螺型穿透位错密度如表 1 所示。样品 C 上生长的 GaN 与样品 A 和 B 上生长的 GaN 相比，螺型穿透位错密度减小了两个数量级，这是因为随着

ScAlN 缓冲层厚度的增加，ScAlN 缓冲层的晶体质量不断改善，因此传递到 GaN 中的位错密度随之减少；随着缓冲层厚度继续增大，样品 D 中 GaN 的螺型穿透位错密度反而增大，表明 GaN 的晶体质量变差。由图 3 得知样品 D 表面的 GaN 层中出现大量裂纹，这些裂纹的存在是导致 GaN 晶体质量下降的主要原因。因此，样品 C 中外延的 GaN 晶体质量最好，即外延 GaN 的最优 ScAlN 缓冲层厚度为 500 nm。



(a) 不同 GaN 样品的(002)面 XRD 摇摆曲线



(b) GaN(002)FWHM 变化趋势

图 4 样品 A～D 上外延 2 μm 厚 GaN 材料的(002)面 XRD 摇摆曲线和 GaN(002)FWHM 变化趋势

表 1 ScAlN 和 GaN 的(002)面 FWHM 以及 GaN 的螺型穿透位错密度

样品	A	B	C	D
ScAlN(002) FWHM/(°)	2.95	2.91	2.31	2.19
GaN(002) FWHM/(°)	2.71	2.15	0.38	0.54
ρ_{screw}/cm^{-2}	1.91×10^{11}	1.20×10^{11}	3.75×10^{9}	7.58×10^{9}

图 5 为不同样品的 GaN 拉曼测试曲线，图中所示均为 GaN 的 E_2(high)声子散射峰，虚线为无应力状态下 GaN 的 E_2(high)峰位(567.6 cm^{-1})。可以看出，随缓冲层厚度增加，样品 A～D 中 GaN 的 E_2(high)峰位分别位于 567.400，567.442，565.966，566.444 cm^{-1}，相比于标准峰位均发生了红移，表明 GaN 薄膜中存在张应力。根据 $\Delta\omega = k\sigma$ 计算薄膜应力，其中 $\Delta\omega$ 为 GaN 的 E_2(high)拉曼峰位频移，σ 为薄膜双轴应力，k 为 GaN 的拉曼应力因子(−4.2 cm^{-1}/GPa)[12]。计算得到四个样品的应力依次为 48.76，38.52，398.38，281.84 MPa。可以看出，缓冲层厚度较薄时 GaN 外延层的应力很小，这是因为样品表面由大量不均匀的 GaN 岛构成，尚未连接成膜，GaN 岛之间存在大量的空隙可以释放应力。当缓冲层厚度达到 500 nm 时，GaN 薄膜的应力值最大，随着缓冲层厚度达 1 000 nm，GaN 的应力反而减小，这是因为当缓冲层厚度为 1 000 nm 时 GaN 膜中出现裂纹，一部分应力被释放。

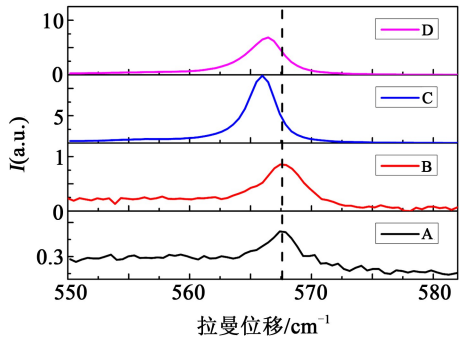


图 5 不同厚度的 ScAlN 缓冲层上 GaN 的拉曼光谱

3 结论

本文研究了 ScAlN 缓冲层厚度对 GaN 外延层晶体质量的影响。随着缓冲层厚度的增大，ScAlN 的晶体质量变好，同时表面粗糙度随之增大。原因是，ScAlN 的厚度增加使衬底表面的柱状小岛逐渐合并形成大岛，导致形成的 ScAlN 结晶度提高，表面微晶结构不断增大。当缓冲层厚度为 500 nm 时，在缓冲层上外延生长的 GaN 晶体质量最好，张应力最大。这是因为随着缓冲层厚度的增加，GaN 的结晶度明显提高，位错密度减小。当缓冲层厚度达到 1 000 nm 时，过大的拉应力使 GaN 外延层产生裂纹，导致 GaN 晶体质量下降，同时拉应力被释放。因此，选择适当厚度的 ScAlN 缓冲层可以有效提高 Si(100)衬底上 GaN 外延层的晶体质量。

参考文献：

[1] Jin X M, Trieu S, Chavoor G J, et al. Enhancing GaN LED efficiency through nano-gratings and standing wave analysis [J]. Nanomaterials, 2018, 8(12): 1045.

[2] 杨超普，方文卿，毛清华，等. InGaN/GaN 多量子阱蓝光 LED 外延片的变温光致发光谱[J]. 发光学报，2019，40(7)：891-897.
Yang C P, Fang W Q, Mao Q H, et al. Temperature-dependent photoluminescence spectra of InGaN/GaN multiple

quantum wells blue LED wafers [J]. Chinese J. of Luminescence, 2019, 40(7): 891-897.

[3] Peart M R, Borovac D, Sun W, et al. AlInN/GaN diodes for power electronic devices[J]. Appl. Phys. Express, 2020, 13(9): 091006.

[4] Tripathy S, Lin V K X, Dolmanan S B, et al. AlGaN/GaN two-dimensional-electron gas heterostructures on 200 mm diameter Si(111)[J]. Appl. Phys. Lett., 2012, 101(8): 082110.

[5] Schulze F, Dadgar A, Bläsing J, et al. GaN heteroepitaxy on Si(001)[J]. J. of Crystal Growth, 2004, 272: 496-499.

[6] Zhang S, Fu W Y, Holec D, et al. Elastic constants and critical thicknesses of ScGaN and ScAlN[J]. J. of Appl. Phys., 2013, 114(24): 243516.

[7] 刘　静, 胡胜龙, 刘仲武, 等. 磁控溅射法制备的 FePt 薄膜的结构与性能[J]. 磁性材料及器件, 2020, 51(2): 9-15.
Liu Jing, Hu Shenglong, Liu Zhongwu, et al. FePt thin films with improved structure and magnetic properties by magnetron sputtering[J]. J. of Magnetic Materials and Devices, 2020, 51(2): 9-15.

[8] 钟秋雨, 刘　昕, 陈　川, 等. 膜厚对 NiFe 单层膜及 NiFe/FeMn 双层膜性能的影响对比研究[J]. 磁性材料及器件, 2020, 51(4): 1-6, 13.
Zhong Qiuyu, Liu Xin, Chen Chuan, et al. Comparative study on influnece of film thickness on the properties of NiFe monolayers and NiFe/FeMn bilayers [J]. J. of Magnetic Materials and Devices, 2020, 51(4): 1-6, 13.

[9] 邓旭光, 韩　军, 邢艳辉, 等. AlN 成核层厚度对 Si 上外延 GaN 的影响[J]. 光电子·激光, 2013, 24(7): 1338-1343.
Deng X G, Han J, Xing Y H, et al. Effect of AlN nucleation layer thickness on the quality of GaN grown on Si(111)[J]. J. of Optoelectronics·Laser, 2013, 24(7): 1338-1343.

[10] Liu Y, Yang Z L, Long X J, et al. Effects of thickness and interlayer on optical properties of AlN films at room and high temperature[J]. J. of Vacuum Science & Technol. A, 2021, 39(4): 043402.

[11] Lee S R, West A M, Allerman A A, et al. Effect of threading dislocations on the Bragg peakwidths of GaN, AlGaN, and AlN heterolayers[J]. Appl. Phys. Lett., 2005, 86(24): 241904.

[12] Kisielowski C, Krüger J, Ruvimov S, et al. Strain-related phenomena in GaN thin films[J]. Phys. Rev. B, 1996, 54(24): 17745-17753.

作者简介：

尹浩田(1995—)，男，河北省石家庄市人，硕士生，主要研究方向为宽禁带半导体材料的外延生长；

韩　军(1964—)，男，浙江省杭州市人，博士，教授，主要从事半导体光电子材料的外延生长；

邓旭光(1987—)，男，内蒙古呼和浩特市人，硕士，高级工程师，主要从事 GaN 材料生长和 HEMT 器件制备。