

文章编号: 1000-7032(2021)06-0810-08

## 高温热处理 $a$ 面 AlN 表面形貌演变机理

隋佳恩<sup>1,2</sup>, 贲建伟<sup>1,2</sup>, 臧行<sup>1,2</sup>, 蒋科<sup>1,2</sup>, 张山丽<sup>1,2</sup>, 郭冰亮<sup>3</sup>,  
陈洋<sup>1,2</sup>, 石芝铭<sup>1,2</sup>, 贾玉萍<sup>1,2</sup>, 黎大兵<sup>1,2</sup>, 孙晓娟<sup>1,2\*</sup>

(1. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所 发光学及应用国家重点实验室, 吉林 长春 130033;

2. 中国科学院大学 材料科学与光电工程中心, 北京 100049; 3. 北京北方华创微电子装备有限公司, 北京 100049)

**摘要:** 非极性  $a$  面 AlN ( $a$ -AlN) 能够从根本上解决极性 AlN 引起的量子限制斯塔克效应问题, 是提升 AlGaIn 发光器件效率的有效途径。但是, 非极性 AlN 生长面临更大的挑战, 目前难以实现低缺陷密度、高平整表面的非极性  $a$ -AlN。高温热处理是一种提高 AlN 质量的有效方法, 但在热处理过程中, 非极性  $a$ -AlN 的表面形貌演变的物理机理尚不明确, 直接影响了  $a$ -AlN 表面改善与质量提升。本研究通过对  $a$ -AlN 薄膜在不同条件下进行高温热处理, 对样品的表面形貌演变过程进行了表征与分析, 并结合第一性原理计算, 揭示了高温热处理对非极性  $a$ -AlN 表面的影响及其物理机理。结果表明, 在高温热处理过程中, Al、N 原子更趋向于从  $a$  面与  $m$  面分解, 而在  $c$  面吸附, 使得  $a$ -AlN 样品表面在高温热处理过程中出现了沿  $c$  轴方向的高取向性条纹原子台阶形貌, 进而提高  $a$ -AlN 材料质量。本研究为实现高质量非极性  $a$ -AlN 材料及紫外发光器件提供了重要基础。

**关键词:**  $a$ -AlN; 高温热处理; 表面形貌演变; 结合能

中图分类号: O482.31 文献标识码: A DOI: 10.37188/CJL.20210111

## Mechanism of $a$ -AlN Surface Morphology Evolution by High Temperature Annealing

SUI Jia-en<sup>1,2</sup>, BEN Jian-wei<sup>1,2</sup>, ZANG Hang<sup>1,2</sup>, JIANG Ke<sup>1,2</sup>, ZHANG Shan-li<sup>1,2</sup>, GUO Bing-liang<sup>3</sup>,  
CHEN Yang<sup>1,2</sup>, SHI Zhi-ming<sup>1,2</sup>, JIA Yu-ping<sup>1,2</sup>, LI Da-bing<sup>1,2</sup>, SUN Xiao-juan<sup>1,2\*</sup>

(1. State Key Laboratory of Luminescence and Applications, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China;

2. Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

3. Beijing NAURA Microelectronics Equipment, Beijing 100049, China)

\* Corresponding Author, E-mail: sunxj@ciomp.ac.cn

**Abstract:** Nonpolar  $a$ -AlN is the fundamental method to eliminate quantum-confined Stark effect, and further improve the efficiency of AlGaIn-based devices such as light-emitting diodes. However, it is hard to obtain high quality nonpolar  $a$ -AlN on heterogeneous substrates because the large and inhomogeneous mismatch between the heterogeneous substrate and the epitaxial layer. High temperature annealing is an effective and repeatable method to improve the quality of AlN templates. However, the physical mechanism is still not clear on how the high temperature annealing method effects the surface morphology of non-polar AlN, which affects the quality improvement of  $a$ -AlN. In this work, the surface evolution of the  $a$ -AlN with high temperature annealing has been investigated and the mechanism of how the thermal annealing effects on the surface evolution has been explored both

收稿日期: 2021-03-26; 修订日期: 2021-04-22

基金项目: 国家自然科学基金(61922078 61874118 62004127) 资助项目

Supported by National Natural Science Foundation of China(61922078 61874118 62004127)

by experiment and first-principles calculations. It is found that the Al/N atoms tend to decompose along  $a$ - $m$ -plane AlN and reabsorb along  $c$ -plane AlN, which result in the phenomenon that the area of ordered stripes along  $c$ -axis increases with higher annealing temperature or longer annealing time. The research will provide deeper understanding on the mechanism of the HTA effect on  $a$ -AlN, which will be benefit to the fabrication of  $a$ -AlN related devices.

**Key words:**  $a$ -AlN; high temperature annealing; surface morphology evolution; binding energy

## 1 引言

AlN 是第三代半导体的典型代表,具有直接宽带隙(6.2 eV)、良好的化学稳定性和热稳定性等优势,并且能够解决外延 AlGaIn 材料开裂的问题,是深紫外发光二极管(Light-emitting diode, LED)普遍采用的基底材料。目前,AlN 材料通常生长在  $c$ -sapphire 衬底上,由于 Al 原子与 N 原子电荷中心不重合,使得 AlN 成为极性材料,存在强自发极化与压电极化效应。基于极性 AlN 外延的 AlGaIn 深紫外 LED 中的强极化效应引起量子阱中电子、空穴波函数的分离,即量子限制斯塔克效应(Quantum-confined Stark effect, QCSE),直接降低深紫外 LED 的量子效率,成为制约深紫外 LED 效率提升的重要原因。

为了降低 AlN 基光电子器件中的 QCSE,提出了对量子垒进行 Si 掺杂<sup>[7]</sup>、适度降低 AlGaIn 基紫外 LED 量子垒中 Al 组分<sup>[8]</sup>等多种方案。但是,这些方法均无法从本质上消除 QCSE 的影响。消除 QCSE 效应最根本的方法是利用非极性面的 AlN 基底材料(包括  $a$  面以及  $m$  面,其中  $a$ -AlN 更有利于后续的外延生长<sup>[9]</sup>),进而获得非极性面的量子阱结构。

但是,相比在  $c$ -sapphire 衬底上生长极性  $c$ -AlN,非极性  $a$ -AlN 生长面临更大的挑战,目前尚难以实现高质量  $a$ -AlN 材料。其主要原因如下:(1)  $c$ -AlN 生长在  $c$ -sapphire 衬底上,尽管  $c$ -AlN 与  $c$ -sapphire 之间存在大的晶格失配,但是各个方向的失配度是均匀的。而  $a$ -AlN 生长在  $r$ -sapphire 衬底上,  $a$ -AlN 与  $r$ -sapphire 之间失配度大且不均匀:平行于  $c$  轴方向  $a$ -AlN 与  $r$ -sapphire 衬底之间的失配度为 -2.8%,而垂直于  $c$  轴方向  $a$ -AlN 与  $r$ -sapphire 衬底之间的失配度为 13.1%<sup>[10]</sup>。因此,难以在  $r$ -sapphire 衬底上实现高质量非极性 AlN 的生长。(2) 对于  $a$ -AlN 而言,沿着  $a$  轴方向

的 Al—N 键能相比  $c$  轴方向的键能弱,引起  $a$ -AlN 中的晶粒比  $c$ -AlN 更容易发生扭转和倾斜,致使  $a$ -AlN 薄膜中缺陷密度增加,使得生长高质量  $a$ -AlN 面临巨大的挑战<sup>[11]</sup>。

研究人员尝试了多种方法来改善  $a$ -AlN 层的结晶质量。如金属有机化合物化学气相沉积(Metal-organic chemical vapor deposition, MOCVD)生长  $a$ -AlN 时,提出选用不同偏角的  $r$  蓝宝石衬底<sup>[12]</sup>、利用不同缓冲层(GaN、AlGaIn 等)<sup>[13]</sup>以及在图形化  $a$ -AlN 模板上进行外延横向过生长(Epitaxial lateral overgrowth, ELO)等提高  $a$ -AlN 外延层结晶质量的方法<sup>[14]</sup>。其中 ELO 方法可以获得结晶质量较高的  $a$ -AlN 外延层,其(11 $\bar{2}$ 0)面 X 射线(X-ray diffraction, XRD)衍射摇摆曲线(XRD rocking curve, XRC)半高全宽(Full width at half maximum, FWHM)值约为 700",但是图形化衬底制备难度较高,并且再外延的  $a$ -AlN 层需要生长到一定厚度( $\sim 6 \mu\text{m}$ )才能实现合并,难以实现大规模应用<sup>[15]</sup>。与 MOCVD 法相比,磁控溅射法具有均匀性高、重复性好等优势,因此适合大规模应用。然而,溅射 AlN 薄膜面内晶粒扭转倾斜程度较大,材料质量有待进一步提高<sup>[16]</sup>。在  $r$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 衬底上直接溅射  $a$ -AlN 薄膜的 XRC FWHM 最小值约为 7 200"<sup>[17]</sup>。有研究人员利用 ZnO 作为缓冲层制备了  $a$ -AlN 层,其沿  $m$  轴和  $c$  轴的(11 $\bar{2}$ 0)面 XRC FWHM 分别为 4 212"和 5 112"<sup>[18]</sup>。缺陷密度较大,因此如何提高磁控溅射  $a$ -AlN 晶体质量成为研究的重点。近年来,高温热处理方法被证明是一种可以提高  $c$ -AlN 晶体质量的有效方法<sup>[19-20]</sup>,受此启发,研究人员也尝试利用高温热处理法来提高  $a$ -AlN 的结晶质量。2016 年, Lin 等探究了缓冲层生长温度对  $a$ -AlN 质量的影响,利用高温热处理方法提高了  $a$ -AlN 外延层的结晶质量,其(11 $\bar{2}$ 0)面沿  $m$  轴最小的 XRC FWHM 值为 770"<sup>[21]</sup>。同年,该课题组通过优化缓冲层厚

度,将高温热处理  $a$ -AlN 薄膜(1120)面沿  $m$  轴的 XRC FWHM 值降低至  $660''$ <sup>[22]</sup>。2017 年, Jinno 等对磁控溅射  $a$ -AlN 薄膜进行高温热处理,其(1120)面 XRC FWHM 由未退火时  $\sim 8\ 000''$  降低至退火后  $\sim 3\ 600''$ , 结晶质量得到显著提升<sup>[23]</sup>。但是,高温热处理影响  $a$ -AlN 表面形貌的物理机理尚不明确,制约了  $a$ -AlN 材料的进一步应用。

本文对高温热处理  $a$ -AlN 表面形貌演变进行了深入研究,利用原子力显微镜(Atomic force microscope, AFM)分析  $a$ -AlN 表面形貌演变过程,利用第一性原理计算 Al 原子、N 原子的结合能,揭示了  $a$ -AlN 表面形貌演变机理,并建立了理论模型。结果表明,在高温热处理过程中 Al、N 原子更趋向于从  $a$  面与  $m$  面分解,而在  $c$  面吸附,使得  $a$ -AlN 样品表面在高温热处理过程中出现了沿  $c$  轴方向的条纹形貌,提升了  $a$ -AlN 原子排布的方向性。本研究为高质量  $a$ -AlN 薄膜及高性能深紫外 LED 研制提供了基础。

## 2 实 验

利用超高真空磁控溅射系统在 2 英寸  $r$ -sapphire(1102)衬底上沉积  $a$ -AlN 薄膜,反应室气体为氮气( $N_2$ )与氩气(Ar)的混合气体, $N_2$ 和 Ar 的流量分别为 120 mL/min 和 25 mL/min,反应室压力为  $1.066 \times 10^{-5}$  Pa ( $8 \times 10^{-8}$  Torr),溅射功率为 3 500 W,溅射温度为 600 °C,  $a$ -AlN 薄膜厚度为 200 nm。利用高温退火系统,在  $N_2$  气氛中对  $a$ -AlN 进行高温热处理。

通过 Multimode 8 型号原子力显微镜表征  $a$ -AlN 表面形貌,通过 SHIMADZU UV-3101PC 型号紫外-可见分光光度计表征  $a$ -AlN 光学特性。所有测试均在室温下完成。

## 3 结果与讨论

图 1 为  $a$ -AlN 表面形貌随热处理温度变化的 AFM 表征结果,图 1(a)~(d)分别为  $a$ -AlN 在 0, 1 600, 1 700, 1 750 °C 温度下热处理 60 min 的表面形貌。由图可知,未经过热处理的  $a$ -AlN 样品表面形貌呈随机分布的岛状形貌,如图 1(a)所示。该岛状形貌的形成主要与磁控溅射制备  $a$ -AlN 薄膜的物理过程相关:靶材表面被高能粒子轰击出的溅射粒子随机沉积在衬底表面,并在衬底表面发生迁移,最终聚集形成随机的岛状形貌。与未经退火处理的样品相比,在 1 600 °C 温度下

退火 60 min 的  $a$ -AlN 样品表面形貌并无明显变化;但是在 1 700 °C 温度下退火 60 min 后,  $a$ -AlN 样品表面出现了沿  $c$  轴方向规则排列的条纹,表明  $a$ -AlN 模板表面形成高取向性条纹的阈值温度在 1 600 ~ 1 700 °C 之间。并且随着退火温度升高,  $a$ -AlN 表面条纹形貌的面积逐渐增大(如图 1(c)、(d)所示)。

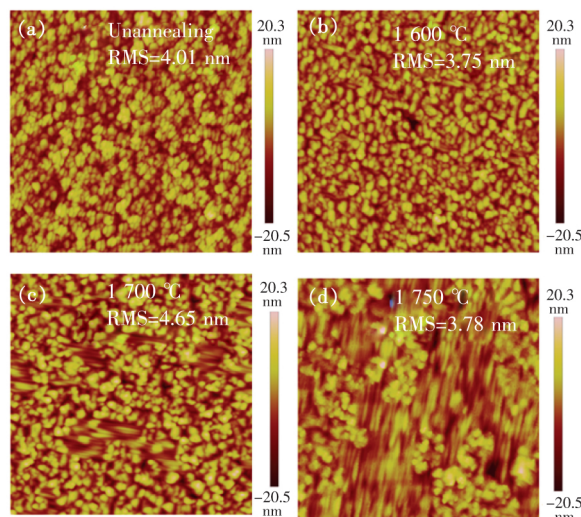


图 1  $a$ -AlN 在 0 °C (a)、1 600 °C (b)、1 700 °C (c) 和 1 750 °C (d) 退火 60 min 后的表面形貌 AFM 图。

Fig. 1 AFM images of  $a$ -AlN surface morphology annealed at 0 °C (a), 1 600 °C (b), 1 700 °C (c) and 1 750 °C (d) for 60 min.

为进一步探究高取向性条纹形貌形成机理,在相同热处理温度条件下,探索  $a$ -AlN 表面形貌与热处理时间的演变关系。由于 1 750 °C 退火过程会破坏样品表面(该现象将在后文进行讨论),因此热处理温度选择为 1 700 °C。图 2(a)~(d)分别为  $a$ -AlN 在 1 700 °C 下热处理 120, 180, 240, 480 min 后的表面形貌。由该表征结果可知,  $a$ -AlN 样品表面规则化排列条纹与退火时间直接相关:随着热处理时间的增加,  $a$ -AlN 薄膜表面的条纹形貌面积逐渐增大,在 1 700 °C 热处理 480 min 的条件下,  $a$ -AlN 表面演变为高取向性条纹原子台阶形貌。该实验结果表明,高温热处理  $a$ -AlN 过程中的高取向性条纹原子台阶形貌演变是一个持续演变的过程。由于高温为  $a$ -AlN 中 Al、N 原子运动提供了能量,  $a$ -AlN 薄膜在高温热处理过程中原子重新排布有可能是引起高取向性条纹原子台阶形貌演变的主要原因。

图 2  $a$ -AlN 在 1 700 °C 退火 120 min (a)、180 min (b)、240 min (c)、480 min (d) 后的表面形貌 AFM 图。

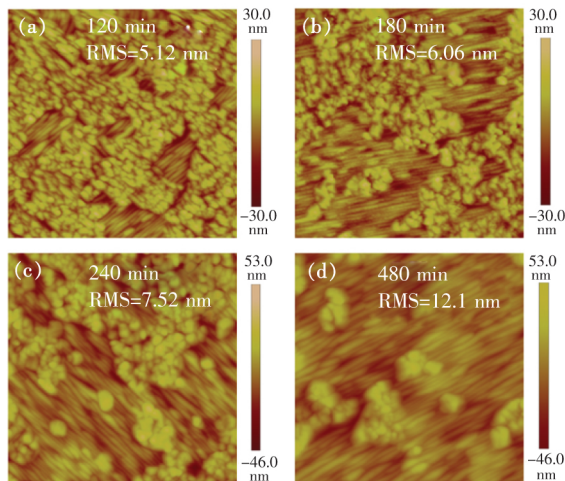


Fig. 2 AFM images of  $a$ -AlN surface morphology annealed at 1700 °C for 120 min (a), 180 min (b), 240 min (c) and 480 min (d).

利用第一性原理分析了  $a$ -AlN 薄膜的原子行为。计算采用基于密度泛函的维也纳从头模拟软件包<sup>[24]</sup>,用普度-伯克-恩泽霍夫<sup>[25]</sup>形式的密度泛函来描述交换关联作用,在投影缀加平面波赝势<sup>[26]</sup>的框架下,截断能选取为 400 eV。在电子结构优化时,能量和力的收敛结构分别取  $10^{-4}$  eV 和 0.2 eV/nm。采用 slab 模型计算原子表面吸附能,真空层设置为大于 2.0 nm,其中模拟  $c$  面、 $m$  面、 $a$  面的超胞大小分别为: 1.63 nm × 1.88 nm × 2.81 nm、1.56 nm × 1.51 nm × 2.90 nm、1.51 nm × 1.63 nm × 2.94 nm,采用包含  $\Gamma$  点的  $1 \times 1 \times 1$  的  $K$  点取样。底层的 AlN 固定以保持体相构型。为了加快计算收敛,slab 模型底部的 Al 和 N 原子分别用带电荷 1.25e 和 0.75e 的分数氢原子饱和。根据公式:

$$E_{\text{bind}} = E_{\text{slab+adatom}} - E_{\text{slab}} - E_{\text{free adatom}}, \quad (1)$$

计算了吸附原子吸收模型的结合能,其中  $E_{\text{bind}}$  是 Al/N 原子的原子结合能,  $E_{\text{slab+adatom}}$  代表整个体系的总能量,  $E_{\text{slab}}$  和  $E_{\text{free adatom}}$  分别是完整 slab 基底和自由 Al/N 原子的能量。根据该公式定义,结合能为负值代表结合后的体系更稳定,结合能数值越低代表结合能力越强。

不同晶面上 Al/N 原子的稳定吸附构型如图 3(a) 所示,在  $c$  面 (0001) 上,Al/N 原子倾向于吸附在六元环中心的位置,在非极性的  $m$  面 (1010) 和  $a$  面 (1120) 上,Al/N 原子倾向于吸附在理想晶格附近的位置。Al 原子在  $a$  面、 $m$  面的结合能接

近,分别为 -2.67 eV 和 -2.75 eV,数值上明显高于在  $c$  面结合能 -4.41 eV,表明 Al 原子在  $a$  面和  $m$  面的结合能力弱于  $c$  面;N 原子在  $a$  面、 $m$  面、 $c$  面结合能逐步递减,分别为 -0.83, -2.47, -8.41 eV,表明 N 原子在  $a$  面、 $m$  面和  $c$  面的结合能力呈逐步升高的趋势。为进一步解释 Al、N 原子在  $a$ -AlN 表面的扩散过程,采用表面撒点取样的方法<sup>[27]</sup>,对  $a$ -AlN (1120) 面不同位点 Al/N 原子的势能面进行计算。结果如图 3(b) 所示,Al 原子在 [0001] 方向的迁移势垒约为 0.24 eV,在 [1100] 方向的迁移势垒约为 0.68 eV;N 原子在 [0001] 方向的迁移势垒约为 0.74 eV,在 [1100] 方向的迁移势垒约为 1.90 eV。 $a$ -AlN 上 Al/N 原子的迁移均表现出很强的各项异性,在 [0001] 方向的迁移势垒要明显低于 [1100] 方向,这有利于  $a$ -AlN 表面 [0001] 方向的侧向生长。

根据结合能与迁移势垒的计算结果,在热处理温度更高以及热处理时间更长的条件下, $a$ -AlN 表面的 Al/N 原子更趋向于从  $m$  面解离进而暴露出一部分  $m$  面,由于相邻的  $m$  面和  $a$  面呈  $30^\circ$  夹角,使得  $a$ -AlN 表面呈现出高度有序的条纹形貌。同时解离出的 Al/N 原子倾向于在表面沿 [0001] 方向迁移,进而在  $c$  面吸附,使条纹倾向于在侧向 ( $c$  方向) 继续生长,导致条纹结构更加显著。根据计算结果建立了模型来描述  $a$ -AlN 表面在高温退火过程中的解离和再吸附过程,如图 3(c) 所示,在高温热处理的过程中, $m$  面上的 Al/N 原子最先倾向于解离出来,暴露的  $a$  面、 $m$  面形成表面条纹;解离出来的 Al、N 原子吸附在  $c$  面导致条纹进一步地侧向生长,最终形成了沿着  $c$  方向的高取向性条纹原子台阶形貌。

$a$ -AlN 薄膜表面形貌的演变将影响材料质量及光学特性。图 4 为  $a$ -AlN 薄膜透射光谱、禁带宽度与高温热处理温度、时间的关系曲线。其中,图 4(a) 为  $a$ -AlN 薄膜在不同温度下热处理 60 min 的透射光谱。由图可知,随着热处理温度升高, $a$ -AlN 薄膜的光学透过率逐渐增大,其原因分析如下:未进行高温热处理的  $a$ -AlN 表面为无规则的岛状形貌,高密度岛会对光线产生不规则散射作用,从而使  $a$ -AlN 透光性能降低;随着退火温度升高,Al/N 原子在  $a$ -AlN 表面的势能面; (c) 高温热处理过程中  $a$ -AlN 分解和再吸附的表面形态

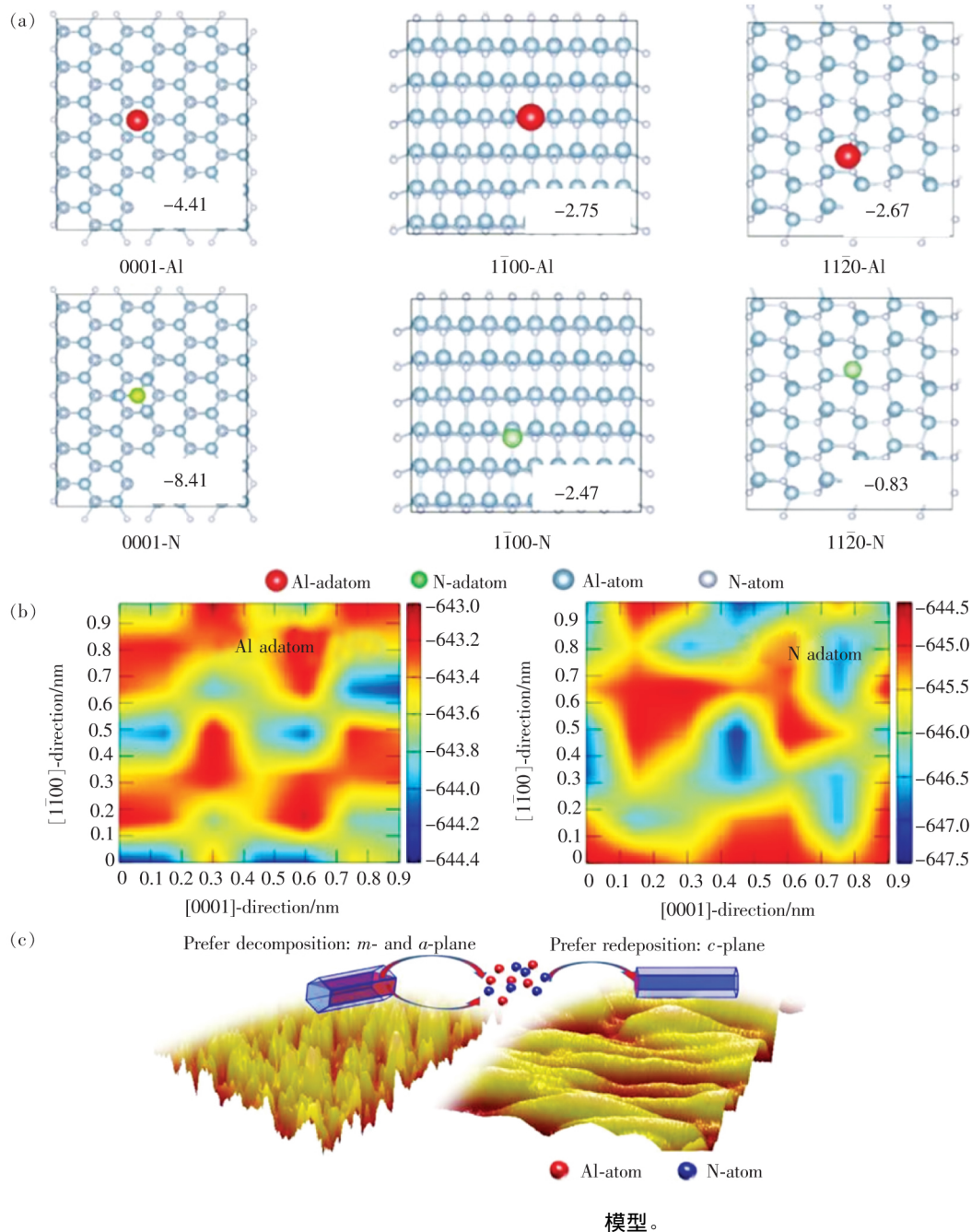


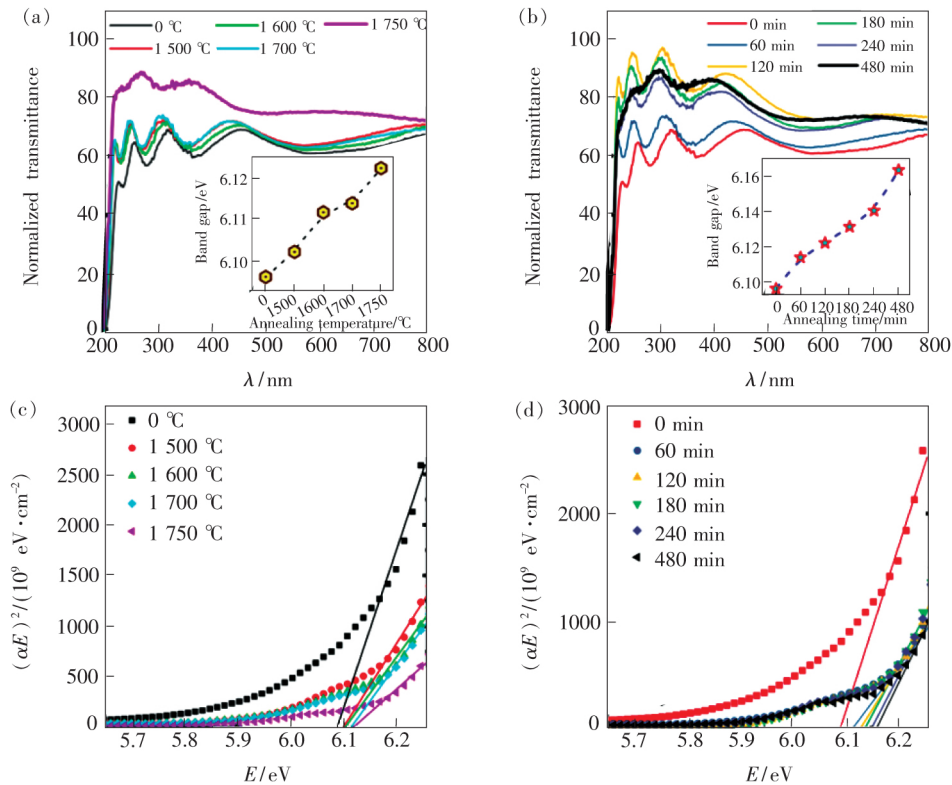
Fig. 3 (a) Optimized adsorption structure of Al/N on different AlN surfaces. (b) Potential energy surface for Al/N adatom on ( $11\bar{2}0$ ) AlN surface. (c) Surface morphology model of the decomposition and redeposition of  $a$ -AlN during high temperature annealing process.

度升高  $\mu$ -AlN 薄膜表面形成沿着  $c$  方向的高取向性条纹原子台阶形貌,降低了光散射,提升了光在  $a$ -AlN 中的透过能力。

在延长热处理时间的条件下,  $a$ -AlN 薄膜的透射光谱呈现与退火温度相同的趋势,即随着高温热处理时间的延长,  $a$ -AlN 薄膜的透光能力增强,如图 4(b) 所示,再次证明了  $a$ -AlN 薄膜沿着  $c$

方向的高取向性条纹原子台阶形貌显著提升了透光能力。膜厚会对薄膜样品弱吸收区吸收系数及折射率造成影响,进而导致透射光谱振荡周期畸变<sup>[28]</sup>。图 4(a)、(b) 中过高温(1750 °C 退火 60 min) 及过长时间(1700 °C 退火 480 min) 热处理  $a$ -AlN 样品,其光学透射谱振荡周期明显畸变,该结果表明过高的退火温度及过长的退火时间会

图 4 (a) 不同温度下热处理 60 min 的  $a$ -AlN 薄膜的光学透射谱,插图显示了在不同温度下热处理 60 min 的  $a$ -AlN 层的



禁带宽度; (b) 不同热处理时间的  $a$ -AlN 薄膜的光学透射谱,插图显示不同热处理时间的  $a$ -AlN 层的禁带宽度; (c) 不同退火温度条件下  $(\alpha E)^2$  与  $E$  的关系曲线; (d) 不同退火时间条件下  $(\alpha E)^2$  与  $E$  的关系曲线。

Fig. 4 (a) Optical transmission spectra of AlN templates annealed at different temperature for 60 min and the illustration shows the band gap of  $a$ -AlN. (b) Optical transmission spectra of AlN template annealed at 1700 °C under different annealing time, and the illustration shows the band gap of  $a$ -AlN. (c) Dependence of  $(\alpha E)^2$  to  $E$  with different annealing temperature. (d) Dependence of  $(\alpha E)^2$  to  $E$  with different annealing time.

使  $a$ -AlN 膜厚均匀性遭到破坏。

通过对透射光谱曲线进行分析拟合可计算  $a$ -AlN 薄膜的禁带宽度,从而反映  $a$ -AlN 薄膜的结晶质量。拟合  $a$ -AlN 薄膜禁带宽度的公式如下所示:

$$\alpha E = A(E - E_g)^{1/2}, \quad (2)$$

其中  $\alpha$  为吸光系数,  $E$  为光子能量,  $A$  为材料常数,  $E_g$  为禁带宽度。利用透射光谱得到吸收系数  $\alpha$  并通过该公式可计算得到  $(\alpha E)^2$  与光子能量  $E$  的关系曲线,如图 4(c)、(d) 所示。上述公式成立条件为入射光子能量  $E$  大于材料禁带宽度  $E_g$ , 因此将关系曲线中高光子能量部分进行线性拟合,拟合直线与  $x$  轴交点即为样品的禁带宽度。拟合所得禁带宽度结果如图 4(a) 以及图 4(b) 中插图所示,  $a$ -AlN 薄膜的禁带宽度随着热处理温度升高以及退火时间延长而增大。随着热处理温度升高到 1750 °C,  $a$ -AlN 薄膜的禁带宽度从 6.09 eV 增加到 6.12 eV; 在 1700 °C 热处理条件下, 当

热处理时间增加至 480 min,  $a$ -AlN 薄膜的带隙宽度由 6.11 eV 增加到 6.16 eV, 更加趋近于 AlN 单晶体块材料的禁带宽度 ( $\sim 6.2$  eV), 证明  $a$ -AlN 薄膜在高温热处理过程中薄膜结晶质量得以提高。因此, 通过对  $a$ -AlN 材料的透射光谱分析可以得出结论, 高温热处理可使  $a$ -AlN 发生原子解离、迁移、再吸附, 从而形成高取向性条纹原子台阶形貌, 提高了薄膜的透光能力与结晶质量。

## 4 结 论

本文研究了高温热处理对  $a$ -AlN 薄膜表面形貌演变的影响及物理机理。结果表明, 高温热处理为 Al、N 原子运动提供了能量, 由于 Al、N 原子在  $a$ -AlN 的  $a$  面以及  $m$  面结合能力低于在  $c$  面的结合能力, 导致在高温热处理过程中 Al、N 原子更趋向于从  $a$  面与  $m$  面解吸附, 同时解离出的 Al/N 原子倾向于在表面沿 [0001] 方向迁移, 并在  $c$  面吸附, 使得随着退火温度升高与退火时间延

长  $a$ -AlN 薄膜表面由岛状形貌演变成高取向性条纹原子台阶形貌, 进而引起  $a$ -AlN 薄膜光学特性和晶体质量的提升。本研究对获得高质量  $a$ -AlN 以及解决 AlGaIn 深紫外 QCSE 具有重要意义。

本文专家审稿意见及作者回复内容的下载地址:  
<http://cjil.lightpublishing.cn/thesisDetails#10.37188/CJL.20210111>.

### 参 考 文 献:

- [ 1 ] LI D B ,JIANG K ,SUN X J *et al.* . AlGaIn photonics: recent advances in materials and ultraviolet devices [J]. *Adv. Opt. Photonics* ,2018 ,10( 1) :43-110.
- [ 2 ] BEN J W ,SUN X J ,JIA Y P *et al.* . Defect evolution in AlN templates on PVD-AlN/sapphire substrates by thermal annealing [J]. *CrystEngComm* ,2018 ,20( 32) :4623-4629.
- [ 3 ] JIANG K ,SUN X J ,BEN J W *et al.* . The defect evolution in homoepitaxial AlN layers grown by high-temperature metal-organic chemical vapor deposition [J]. *CrystEngComm* ,2018 ,20( 19) :2720-2728.
- [ 4 ] BRYAN I ,BRYAN Z ,BOBEA M *et al.* . Homoepitaxial AlN thin films deposited on  $m$ -plane (  $\bar{1}100$  ) AlN substrates by metalorganic chemical vapor deposition [J]. *J. Appl. Phys.* ,2014 ,116( 13) :133517.
- [ 5 ] KIM H S ,LIN J Y ,JIANG H X *et al.* . Piezoelectric effects on the optical properties of GaN/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N multiple quantum wells [J]. *Appl. Phys. Lett.* ,1998 ,73( 23) :3426-3428.
- [ 6 ] MASUI H ,NAKAMURA S ,DENBAARS S P *et al.* . Nonpolar and semipolar III-nitride light-emitting diodes: achievements and challenges [J]. *IEEE Trans. Electron Devices* ,2010 ,57( 1) :88-100.
- [ 7 ] ZHANG Z H ,LIU W ,JU Z G *et al.* . Self-screening of the quantum confined Stark effect by the polarization induced bulk charges in the quantum barriers [J]. *Appl. Phys. Lett.* ,2014 ,104( 24) :243501-1-5.
- [ 8 ] CHANG J Y ,CHANG H T ,SHIH Y H *et al.* . Efficient carrier confinement in deep-ultraviolet light-emitting diodes with composition-graded configuration [J]. *IEEE Trans. Electron Devices* ,2017 ,64( 12) :4980-4984.
- [ 9 ] AKASAKA T ,KOBAYASHI Y ,MAKIMOTO T. Growth of nonpolar AlN(  $\bar{1}1\bar{2}0$  ) and (  $\bar{1}100$  ) films on SiC substrates by flow-rate modulation epitaxy [J]. *Appl. Phys. Lett.* ,2007 ,90( 12) :121919.
- [ 10 ] VENNÉGUÈS P ,BOUGRIOUA Z. Epitaxial orientation of III-nitrides grown on  $R$ -plane sapphire by metal-organic-vapor-phase epitaxy [J]. *Appl. Phys. Lett.* ,2006 ,89( 11) :111915-1-3.
- [ 11 ] FAN R ,HAO Z B ,CHEN Z *et al.* . High quality AlN with a thin interlayer grown on a sapphire substrate by plasma-assisted molecular beam epitaxy [J]. *Chin. Phys. Lett.* ,2010 ,27( 6) :068101-1-4.
- [ 12 ] SHIBATA T ,ASAI K ,NAKAMURA Y *et al.* . AlN epitaxial growth on off-angle  $R$ -plane sapphire substrates by MOCVD [J]. *J. Cryst. Growth* ,2001 ,229( 1-4) :63-68.
- [ 13 ] MIYAGAWA R ,MIYAKE H ,HIRAMATSU K.  $a$ -plane AlN and AlGaIn growth on  $r$ -plane sapphire by MOVPE [J]. *Phys. Status Solidi C* ,2010 ,17( 7-8) :2107-2110.
- [ 14 ] OKADA N ,KATO N ,SATO S *et al.* . Growth of high-quality and crack free AlN layers on sapphire substrate by multi-growth mode modification [J]. *J. Cryst. Growth* ,2007 ,298: 349-353.
- [ 15 ] OKADA N ,KATO N ,SATO S *et al.* . Epitaxial lateral overgrowth of  $a$ -AlN layer on patterned  $a$ -AlN template by HT-MOVPE [J]. *J. Cryst. Growth* ,2007 ,300( 1) :141-144.
- [ 16 ] 贲建伟. AlN 材料中缺陷调控及物性研究 [D]. 长春: 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 2019.  
 BEN J W. *Defect Control and Physical Properties of AlN* [D]. Changchun: Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, 2019. ( in Chinese)
- [ 17 ] MATSUNAMI N ,KAKIUCHIDA H ,SATAKA M *et al.* . XRD characterization of AlN thin films prepared by reactive RF-sputter deposition [J]. *Adv. Mater. Phys. Chem.* ,2013 ,3( 1) :101-107.
- [ 18 ] FOXON C T ,NOVIKOV S V ,STANTON N M *et al.* . Free-standing zinc-blende ( cubic ) GaN substrates grown by a molecular beam epitaxy process [J]. *Phys. Status Solidi B* ,2008 ,245( 5) :890-892.
- [ 19 ] MOGAMI Y ,OSAWA A ,OZAKI K *et al.* . Enhanced strain relaxation in AlGaIn layers grown on sputter-based AlN templates [J]. *Phys. Status Solidi B* ,2020 ,257( 4) :1900590.

- [20] NAGAMATSU K ,LIU X T ,UESUGI K *et al.* . Improved emission intensity of UVC-LEDs from using strain relaxation layer on sputter-annealed AlN [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.* ,2019 58( SC) : SCCC07-1-4.
- [21] LIN C H ,YAMASHITA Y ,MIYAKE H *et al.* . Fabrication of high-crystallinity  $a$ -plane AlN films grown on  $r$ -plane sapphire substrates by modulating buffer-layer growth temperature and thermal annealing conditions [J]. *J. Cryst. Growth* , 2017 468: 845-850.
- [22] LIN C H ,TAMAKI S ,YAMASHITA Y *et al.* . Effects of AlN buffer layer thickness on the crystallinity and surface morphology of 10- $\mu$ m-thick  $a$ -plane AlN films grown on  $r$ -plane sapphire substrates [J]. *Appl. Phys. Express* ,2016 9( 8) : 081001-1-4.
- [23] JINNO D ,OTSUKI S ,SUGIMORI S *et al.* . Characterization and optimization of sputtered AlN buffer layer on  $r$ -plane sapphire substrate to improve the crystalline quality of nonpolar  $a$ -plane GaN [J]. *J. Cryst. Growth* ,2017 480: 90-95.
- [24] AMMANN M W ,BRODHOLT J P ,DOBSON D P. DFT study of migration enthalpies in MgSiO<sub>3</sub> perovskite [J]. *Phys. Chem. Miner.* ,2009 36( 3) : 151-158.
- [25] PERDEW J P ,BURKE K ,ERNZERHOF M. Generalized gradient approximation made simple [J]. *Phys. Rev. Lett.* , 1996 77( 18) : 3865-3868.
- [26] KRESSE G ,JOUBERT D. From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method [J]. *Phys. Rev. B* , 1999 59( 3) : 1758-1775.
- [27] JINDAL V ,SHAHEDIPOUR-SANDVIK F. Density functional theoretical study of surface structure and adatom kinetics for wurtzite AlN [J]. *J. Appl. Phys.* ,2009 105( 8) : 084902-1-6.
- [28] 余云鹏,林舜辉,黄翀,等. 非晶硅薄膜厚度均匀性对其透射光谱的影响 [J]. 汕头大学学报(自然科学版),2004, 19( 1) : 50-54.
- YU Y P ,LIN S H ,HUANG C *et al.* . Effect of thickness homogeneity on optical transmittance spectra of a-Si: H films [J]. *J. Shantou Univ. ( Nat. Sci. )* ,2004 19( 1) : 50-54. ( in Chinese)



隋佳恩(1995 -),男,山东威海人,硕士研究生,2018年于山东大学获得学士学位,主要从事宽禁带半导体材料生长的研究。

E-mail: sui jiaen18@ mails. ucac. ac. cn



孙晓娟(1981 -),女,辽宁朝阳人,博士,研究员,2012年于中国科学院长春光学精密机械与物理研究所获得博士学位,主要从事氮化物宽禁带半导体材料与光电器件的研究。

E-mail: sunxj@ ciomp. ac. cn