

# 异质外延 GaN 及其三元合金薄膜 的 RBS/channeling 研究\*

姚淑德 吴名枋 陈守元 孙胜权 张 勇

(北京大学技术物理系 北京 100871)

**摘要** 本文阐述了用 RBS/channeling 技术研究异质外延 GaN 及其三元合金薄膜的重要性和必要性,报道了实验测量出的 GaN 及其三元合金 AlGa<sub>x</sub>N、InGa<sub>x</sub>N 膜的结构,给出了较为准确的元素种类、成分配比、薄膜厚度、合金元素的浓度随深度的分布、结晶品质、晶轴取向等信息,测出了几种薄膜的背散射沟道谱与随机谱之比  $\chi_{\min}$  值(Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N 的  $\chi_{\min}$  值可低至 1.17%)和沟道坑的半角宽  $\Psi_{1/2}$ (GaN 的半角宽为 0.74°),对于其他测试方法无法给定的中间层的情况及不同衬底对成膜的影响,本文亦有明确的说明

EEACC: 7140, 051D, 0550, 4110

## 1 引言

蓝光发光器件是半导体光电子研究中的重要课题<sup>[1]</sup>, GaN 及其三元合金 In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N、Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 在所有组分下都为直接带隙材料,禁带宽度可以由 1.9eV 连续变化到 6.2eV<sup>[2]</sup>,具有许多优良的物理和化学性质.近几年来,外延生长 GaN 技术及其在蓝光发光管(LED)方面的应用取得了很大的进展<sup>[3]</sup>,使对 GaN 体系的研究进入了新阶段.然而,在结构研究中,现行的一些测试手段在准确测定薄膜各层厚度、组分配比、掺杂元素的分布等问题上遇到了困难,而卢瑟福背散射(Rutherford Backscattering Spectrometry-RBS)/沟道(Channeling)分析则可以很好地解决这些问题.RBS/channeling 技术是一种十分有效且快捷无损地研究异质外延薄膜的手段,利用它可以获得薄膜合金层和过渡层的组分、厚度、杂质分布、结晶品质、应变及晶轴相对取向等重要信息,特别适合分析厚度为几个 nm~1μm 的薄膜样品,对轻基体上的重元素的分析尤为灵敏<sup>[4]</sup>.迄今为止,大量有关 GaN 的研究文章中很少提到采用这一手段.我们将 RBS/channeling 技术引入以 GaN 为基础的 III-V 族氮化物的研究过程中,对测试薄膜结构和优化成膜条件起了十分有益的作用

\* 北京大学重离子物理研究所国家教委开放实验室资助课题

姚淑德 女,1946 年出生,副教授,北京大学技术物理系核物理教学实验室主任,长期从事离子束分析、离子束改性和离子束合成新材料等核技术在材料科学中的应用研究工作  
1997-10-14 收到,1998-07-17 定稿

## 2 实验介绍

### 2.1 实验条件

RBS/channeling 实验是在北京大学技术物理系的  $2 \times 1.7 \text{ MV}$  静电加速器的专用管线上进行。实验条件如下: 入射 He 离子的能量为  $2.0 \text{ MeV}$ , 束流垂直于靶面入射, 束斑约为  $1.0 \times 1.0 \text{ mm}$ , Au-Si 面垒探测器位于与入射方向成  $165^\circ$  的后位向上, 即探测散射角为  $165^\circ$  的粒子, 探测器距靶面  $8.0 \text{ cm}$ , 探测器前的准直孔为  $1.0 \times 2.0 \text{ mm}$ , 用来作能量刻度的标准样品为在单晶硅(100)衬底上厚度约为  $6 \text{ nm}$  的 Au-Ag-Ge 薄膜

### 2.2 实验内容

(1) 测试分析 GaAs,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  和  $\text{ErSi}_{1.7}$  等不同衬底上外延生长 GaN 的 RBS 随机谱和沟道谱, 比较衬底对外延膜结晶品质的影响

(2) 测试分析  $\text{Al}_2\text{O}_3$  衬底上生长的 GaN 及其三元合金  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  和  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  的 RBS 谱, 重点分析了外延膜和中间 GaN 层的厚度, 外延膜 In/Ga, Al/Ga 的组分比及其与禁带宽度等物理性能的对应关系, In, Al 在三元合金体系中的浓度分布, 及杂质元素

(3) 由  $\text{Al}_2\text{O}_3$  衬底上外延生长的 GaN、InGaN 和 AlGaIn 的背散射随机谱和沟道谱, 求出各种薄膜近表面区 RBS 沟道谱和随机谱计数的比值—— $\chi_{\text{min}}$  值, 并测试了样品的沟道坑和半角宽  $\Psi_{1/2}$  值

## 3 实验的结果与讨论

### 3.1 背散射谱的分析

GaAs 为衬底的 GaN 的背散射谱有一显著特点: 不管外延层 GaN 有多厚, 在外延层和衬底的交界处总有一个小尖峰, 这是由于 Ga 和 As 的原子序数很接近, As 的原子序数只比

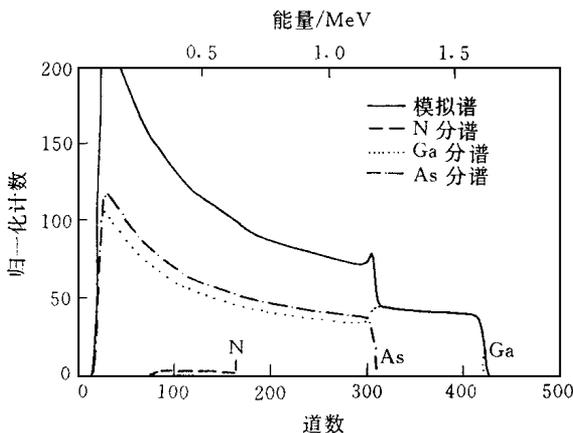


图 1 500nm GaN/GaAs 背散射模拟谱

Ga 大 2, 使衬底层 As 谱的前沿与外延层 Ga 谱的后沿相叠加, 造成总谱上有一小尖峰, 尖峰的右侧的道数和即表示出 GaN 的厚度, 因此 GaAs 衬底上 GaN 层的厚度在背散射谱上一目了然, 非常容易测量和分析。图 1 所示为用 RUMP<sup>†</sup> 程序模拟的 500nm GaN/GaAs 的背散射谱。其中接近横轴标注的 N 和 Ga 分别是它们的表面位置。

(2)  $\text{Al}_2\text{O}_3$  衬底上  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  的背散射随机谱分析: 分析了 3 块结构类似, 但掺 Al 含量不同的 AlGaIn 样品。用别的方法不易区分测试, 如用 X 射线衍射

<sup>†</sup> RUMP 程序是从国外引进的专为模拟 RBS 实验谱而设计的软件, 它使用的是蒙特卡罗方法

(XRD) 确定时, 由于掺杂元素的组分  $x$  值较小, 晶格常数变化较小, XRD 的峰位变化也较小, 因而很难确定  $x$  值; 光致发光光谱 (PL) 有时受杂质浓度、缺陷、束缚激子等因素的影响, 峰位值与  $x$  值的对应关系也不确定; 当 InGaN 生长在 GaN 外延层上时, 由于层间没有明显界限, 用扫描电子显微镜 (SEM) 等方法也只能观察其形貌, 但很难精确测定各层的厚度<sup>[5]</sup>. 用 RBS 方法就可以很好解决地这两个问题. 经测试背散射谱, 并用 RUMP 程序模拟, 我们分别得到 Al 与 Ga 的不同组分及衬底与合金膜之间的 GaN 层的厚度, 见表 1.

表 1 RBS 法测试 Al<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>N/GaN/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 样品的结构

	$x$	AlGa <sub>x</sub> N 膜厚度/nm	GaN 膜厚度/nm	$X_{\text{min}}/\%$
样品 1	0.06	500	450	1.34
样品 2	0.15	517	355	1.17
样品 3	0.25	700	253	1.64

图 2 是 Al<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>N 的背散射谱, 图中分别标出了 Ga、Al、N 表面位置, Ga 峰道数差展示了 GaN + AlGa<sub>x</sub>N 的总厚度, Ga 谱有个明显的特点, 即有两个台阶, 可视为三个部分: 谱中最右边的台阶表示合金中的 Ga 的产额, 中间的台阶是合金中的 Al 与 Ga 的共同产额, 由这两部分的宽度可求出合金层的厚度; 谱左边高台阶是 GaN 层中的 Ga 的产额与合金层中 Al 的产额叠加的结果. Al 的组分越大, 两个台阶的高度差越大. 由此看来, 尽管 GaN 层和合金层都有 Ga, 背散射谱仍然很好识别. 另外, 从谱中还可以看到 Ga 向衬底略有扩散.

(3) InGa<sub>x</sub>N 膜背散射谱的解析: 由于 In 原子序数大, 在 RBS 谱中, 表面 In 元素的峰位在 Ga 峰的右边, 当合金不很厚时, In 谱的峰与 Ga 谱的峰是分立的两个峰. 合金层的厚度可由 In 峰的宽度根据相关公式

计算或用程序模拟求得. 经用 RUMP 程序拟合, 合金结构为 165nm In<sub>0.03</sub>Ga<sub>0.97</sub>N/275nm GaN/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. 经对背散射谱的分析及坐标变换, 还得到了 In 的浓度随深度的分布, In 原子浓度在合金层内呈高斯分布, 最大浓度为 1.5% 左右. 我们曾在 InGa<sub>x</sub>N 的背散射谱中分析出含有 Si 杂质存在的信息, 帮助制膜者严格检查了各道制膜及测试工序, 清除了不必要的干扰. 当然, 由于用 RUMP 程序拟合是一种使模拟计算谱与实验谱逐步逼近的过程, 因而也会给薄膜的元素组分和厚度测量带来微小的误差, 但比台阶仪或其他方法仍精确得多, 且背散射技术具有无损样品、快捷、多信息的综合分析等优点, 是一种常规的测试薄膜厚度和元素组分的好方法.

### 3.2 沟道分析

(1) 沟道谱与随机谱在近表面区域的高度比  $H_A/H$  定义为最低产额  $X_{\text{min}}$ , 完美晶体的  $X_{\text{min}}$  一般在 1% ~ 3% 范围内<sup>[6]</sup>. 在采用的几种衬底中, 蓝宝石 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 上外延生长的 GaN 及其

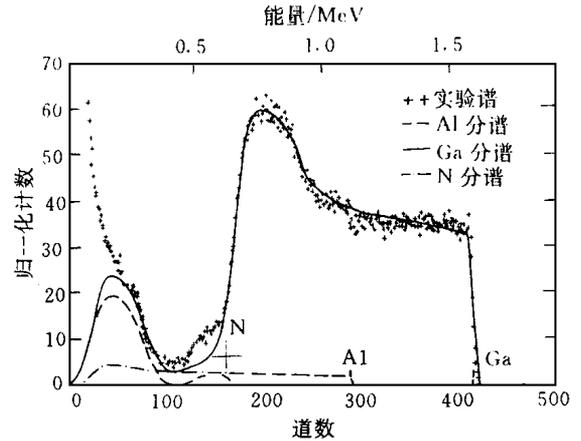


图 2 Al<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>N/GaN/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的背散射实验谱与模拟谱

合金的结晶品质皆较好, GaN、InGaN、AlGaIn 的  $X_{\text{min}}$  值分别可达 2.7% (见图 3)、7.2% 和 1.2%, GaN、AlGaIn 接近于完美晶体

(2) 对 GaN/AlO<sub>3</sub> 和 InGaN/GaN/AlO<sub>3</sub> 样品测试了对应于 0001 轴的角扫描谱即沟道坑(见图 4), 得到的角扫描半角宽  $\Psi_{1/2 \text{ GaN}}(\text{Ga}) = 0.74^\circ$ ;  $\Psi_{1/2 \text{ InGaN}}(\text{Ga}) = 0.83^\circ$ ; 从这两个数据判断, 含有少量 In 的 InGaN 薄膜的晶格常数应大于 GaN. 图中左右肩不完全对称, 说明在作角扫描时入射束相对中心轴略有偏离, 右侧低是受到了面沟道的影响

(3) 把 InGaN 的沟道谱与随机谱作比较, Ga 部分的最低产额  $X_{\text{min}} = 7.2\%$ , In 部分的最低产额  $X_{\text{min}} = 13.7\%$ , 如果把 In 作为对 Ga 的替位元素, 可由此算出替位率:

$$f = (1 - X_{\text{min}}(\text{杂质})) / (1 - X_{\text{min}}) = (1 - 13.7\%) / (1 - 7.2\%) = 93\%$$

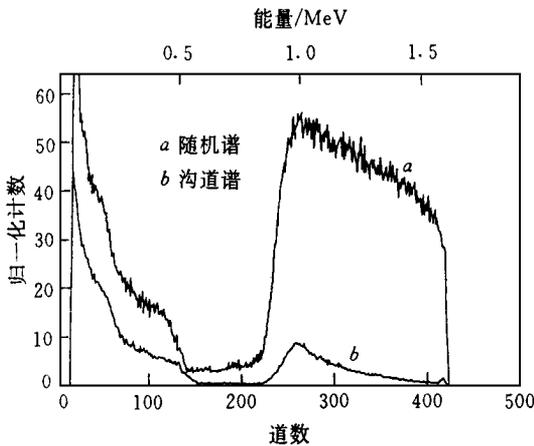


图 3 GaN/AlO<sub>3</sub> 的背散射随机谱与沟道谱

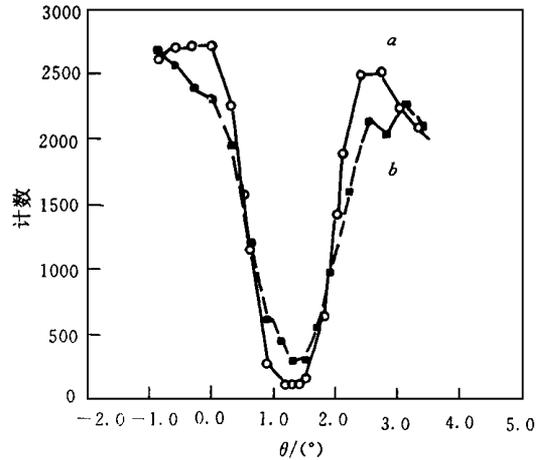


图 4 GaN (曲线 a) 和 InGaN (曲线 b) 的角扫描谱

## 4 结论

AlO<sub>3</sub> 衬底上可外延生长高结晶品质的 GaN 及三元合金 In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 和 Al<sub>k</sub>Ga<sub>1-x</sub>N. 用 RBS/channeling 技术测试分析, 可得到较为准确的 GaN 层和外延层的厚度、元素组分、杂质浓度及分布、结晶品质和晶轴取向等重要信息. 在以 GaN 为基础的 III-V 族氮化物的研制和结构分析过程中, RBS/channeling 技术是不可缺少的重要手段

致谢 所测样品由北大物理系张国义教授、大连理工大学电磁系顾彪教授提供, 深表谢意

## 参 考 文 献

- [ 1 ] S. Strite and H. Morkoc, *J. Vac. Soc. Technol.*, 1991, **B9**: 1924  
[ 2 ] 党小忠, 张国义, 等, *半导体光电*, 1996, **17**(1): 65~ 69  
[ 3 ] S. Nakamura, M. Senoh, T. Mukai, *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **64**: 1687.  
[ 4 ] Wev-Kan Chu, *Backscattering Spectrometry*, 1978, 89~ 122  
[ 5 ] 张国义, 童玉珍, 等, *光子学报*, 1995, **24**(Z3): 6~ 10  
[ 6 ] Wev-Kan Chu, *Backscattering Spectrometry*, 1978, 223~ 275

## Rutherford Backscattering and Channeling Study of Heteroepitaxial GaN and Its Ternary Alloy

Yao Shude, Wu Mingfang, Chen Shouyuan, Sun Shengquan, Zhang Yong

*(Department of Technical Physics, Peking University, Beijing 100871)*

Received 14 October 1997, revised manuscript received 17 July 1998

**Abstract** GaN, AlGa<sub>x</sub>N and InGa<sub>x</sub>N crystalline films were formed by metalorganic vapour phase epitaxy method. The structures of these films were studied by Rutherford backscattering spectrometry and channeling. We got many properties of the films, such as their chemical component, thickness, dopant density versus depth, the crystalline quality, the orientation of the crystallographic axis. Some alloy films  $\chi_{\text{min}}$  value (Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N's  $\chi_{\text{min}}$  value is as low as 1.17%) and half angle width (half-width of GaN is 0.74°) were measured. We also got the property of the buffer layer of the films and the influence of different substrates on the growth of the films. It shows that GaN and its ternary alloy with high crystalline quality can be heteroepitaxially grown on the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> substrate.

**EEACC:** 7140, 0510D, 0550, 4110