

线形拟合在 X 射线衍射研究 GaN 薄膜材料结构时的必要性*

陈志涛[†] 徐 科 杨志坚 苏月永 潘尧波 杨学林 张 酣 张国义

(北京大学物理学院 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京大学宽禁带半导体研究中心, 北京 100871)

摘要: 利用高分辨 X 射线衍射仪(XRD)分析了长时间退火前后的 GaN 样品. 通过对各个样品的(0002)面摇摆曲线进行线形拟合及分析,发现虽然退火后摇摆曲线的半峰宽变大,但面外倾斜角(tilt)的值却变小,从而螺型穿透位错(TD)密度变小,这与化学腐蚀实验的结果一致. 我们的结果表明,线形拟合在利用 XRD 研究 GaN 薄膜材料结构的过程中是十分必要的,而不能用摇摆曲线的展宽直接表征 TD 密度.

关键词: 高分辨 XRD; 摇摆曲线; 穿透位错

PACC: 7280E; 6110

中图分类号: O72 **文献标识码:** A **文章编号:** 0253-4177(2006)08-1378-04

1 引言

GaN 基半导体在发光二极管(LED)、激光器(LD)、紫外探测器以及高温大功率电子器件等方面有广泛的应用,引起了人们极大的兴趣^[1,2]. 但是,由于 GaN 等衬底之间大的晶格失配和热失配,使 GaN 外延层中缺陷密度非常高(穿透位错密度达 $10^7 \sim 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)^[3]. 理论和实验均表明,穿透位错(TD)直接影响着 GaN 材料本身以及 GaN 基光电子器件的性能和寿命,因此对 TD 的研究一直都是 GaN 基半导体材料及器件研究领域中的一个重要方面. 作为一种研究材料结构的有力手段,高分辨 X 射线衍射仪(XRD)已经被广泛用来表征 GaN 中的 TD 密度,从而进一步研究 TD 与材料性能的关系^[4~6]. 但是,人们往往直接利用 X 射线衍射摇摆曲线的半峰宽来表征 TD 密度^[7,8]. 本文通过对长时间热处理前后的 GaN 样品(0002)面摇摆曲线进行线形拟合及分析,发现半峰宽和螺型 TD 密度并不是单调关系,即半峰宽的值越大并不意味着螺型 TD 密度越高,这与化学腐蚀实验结果一致. 我们的结果表明,直接利用衍射摇摆曲线的半峰宽来表征 GaN 薄膜材料的微结构不是很确切,这直接揭示了线形拟合的重要性和必要性.

2 实验

实验中所用的 GaN 样品是在(0001)面蓝宝石

衬底上采用低压金属有机化学气相沉积(LP-MOCVD)的方法生长的,三甲基镓(TMGa)和氨气(NH₃)分别作为 Ga 和 N 的源材料,氢气用作生长 GaN 的载气. 将一块 GaN 样品分割成七块(编号为 S1~S7),其中四块(S1~S4)在氮气气氛下 800 °C 分别退火 24h 和 48h. 高分辨 X 射线测量采用的是配有四晶单色仪的 Philips X Pert MRD, X 射线的波长为 0.15406nm. 化学腐蚀实验是在 KOH 熔融液中进行,腐蚀温度和时间分别是 240 °C 和 13min. 用 Amray1910FE 扫描电子显微镜直接观察被腐蚀过的样品的表面形貌.

3 结果与讨论

生长在蓝宝石衬底上的 GaN 外延层被认为是马赛克结构,图 1 给出了这种结构的示意图. 描述这种结构的三个基本参数分别是横向相干长度(L)、面外倾斜角(tilt)和面内扭转角(twist),其中 tilt 和螺型 TD($b = 0001$)相关,而 twist 和刃型 TD($b = 1/3 \ 1120$)相关,通过 tilt 和 twist 的值可以直接分别换算出螺型 TD 密度和刃型 TD 密度^[9]. (0002)面摇摆曲线的展宽主要是由有限 L 和 tilt 引起的,L 引起的加宽为洛伦茨函数 $L(x)$ 分布,而 tilt 引起的加宽是高斯分布 $G(x)$,对(0002)面摇摆曲线用 Pseudo-Voigt 函数 $PV(x) = (1-f) \times G(x) + fL(x)$ 进行线形拟合分析就可以得到 tilt 和 L 两个结构参数^[9]. 图 2 是样品 S2 的(0002)面

*国家自然科学基金资助项目(批准号:60376005)

[†]通信作者. Email: zhtchen@pku.edu.cn

2005-12-26 收到,2006-03-06 定稿

的线形拟合效果图。

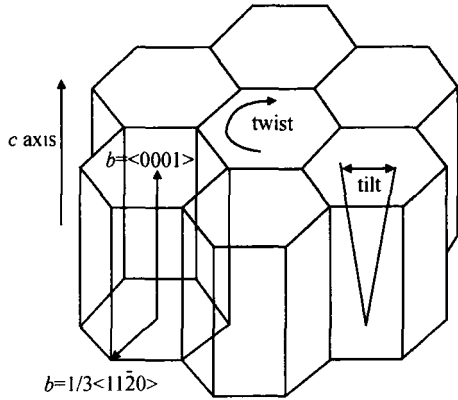


图 1 马赛克结构模型示意图 $b = 1120$ 的刃型穿透位错导致了面内扭曲 twist; $b = 0001$ 的螺型穿透位错导致了面外倾斜 tilt.

Fig. 1 Model of the mosaic structure Edge dislocation with $b = 1120$ result in twist and the screw dislocation with $b = 0001$ result in the tilt.

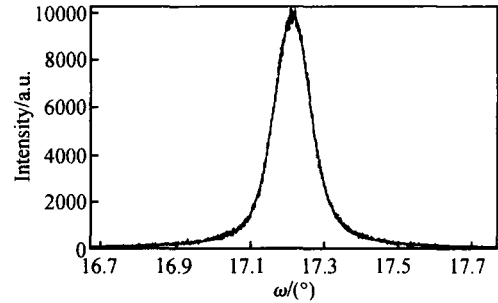


图 2 样品 S2 的摇摆曲线用 Pseudo-Voigt 函数拟合效果图
Fig. 2 Profile-fitting result of (0002) rocking curve of sample 2

表 1 列出了各个样品的(0002)面摇摆曲线半峰宽的测量值,经过线形拟合得到的 tilt 和 L 的值以及根据 tilt 的值换算得到的螺型 TD 密度.很明显,经长时间退火后,样品(0002)面的半峰宽的值增大,如果简单认为(0002)面半峰宽的值与螺型 TD 密度

表 1 七个样品的退火条件及微结构参数

Table 1 Annealing conditions and microstructural parameters of the seven samples

样品号	S1	S2	S3	S4	S5	S6	S7
退火时间/h	48	24	24	24	as-grown	as-grown	as-grown
(0002)半峰宽/(°)	0.1135	0.1189	0.1185	0.1176	0.1082	0.1056	0.1066
面外倾斜/(°)	0.0474	0.0535	0.05	0.054	0.0744	0.0717	0.0722
横向相干长度/nm	303	344	322	350	555	600	589
XRD 线形拟合得到的螺型 TD 密度/cm ⁻²	0.59 × 10 ⁸	0.74 × 10 ⁸	0.65 × 10 ⁸	0.76 × 10 ⁸	1.44 × 10 ⁸	1.34 × 10 ⁸	1.36 × 10 ⁸
化学腐蚀实验得到的螺型 TD 密度/cm ⁻²	0.51 × 10 ⁸	0.66 × 10 ⁸	0.61 × 10 ⁸	—	1.27 × 10 ⁸	—	1.30 × 10 ⁸

存在单调关系,那么就会得出经退火后样品螺型 TD 密度增大的结论.然而,恰恰相反,利用线形拟合出来的 tilt 值退火后较退火前变小,因为 tilt 的值反映出了螺型 TD 密度的大小,根据 tilt 的值换算得到的螺型 TD 密度的值也列在表 1 中,很明显,长时间退火后样品中的螺型 TD 密度变小.

为了进一步验证该结论,我们做了化学腐蚀实验,因为 KOH 熔融液腐蚀只能够显示螺型 TD,腐蚀坑密度就是螺型 TD 的密度^[10].表 1 列出了所测的五个样品的腐蚀坑密度值,可见,通过对 XRD 摇摆曲线分析和化学腐蚀实验两种途径得到的螺型 TD 密度的值非常一致.两种方法的结果均表明,退火后样品中螺型 TD 密度减小.图 3 为样品 S3 和 S5 经腐蚀后的 SEM 形貌图,可见,退火后的样品 S3 的腐蚀坑密度明显小于退火前的样品 S5.

既然经长时间退火后 tilt (或螺型 TD 密度)减小,那为什么实际测到的(0002)面摇摆曲线的半峰宽的值经退火后反而增大呢?如上所述,(0002)面摇摆曲线的展宽除了与 tilt 有关外,还与横向相干长度 L 有关,L 越小,(0002)面的摇摆曲线越宽.

表 1 列出了经拟合得到的 L 值,从表中可见,经长时间退火后,虽然 tilt 变小,但 L 也明显变小,L 变小所导致的(0002)面曲线的增宽大于由于 tilt 变小而导致的曲线的变窄,从而导致了最后所测量到的结果:(0002)面摇摆曲线的半峰宽的值退火后较退火前变大.或者反过来说,(0002)面摇摆曲线的半峰宽的值变大是由于 L 变小而导致的,并不意味着 tilt (或螺型 TD 密度)变大.由此可以看出,对摇摆曲线进行线形拟合在利用 XRD 来表征分析位错密度时的必要性.

4 结论

通过对长时间退火前后 GaN 样品(0002)面摇摆曲线进行线形拟合分析,发现退火后虽然半峰宽的值变大,但螺型 TD 密度却变小.横向相干长度 L 变小是退火样品(0002)面摇摆曲线半峰宽增大的原因所在.因此,我们的实验结果指出,线形拟合在利用 XRD 来分析 GaN 薄膜材料微结构时的重要性的必要性,直接用摇摆曲线半峰宽表征位错密

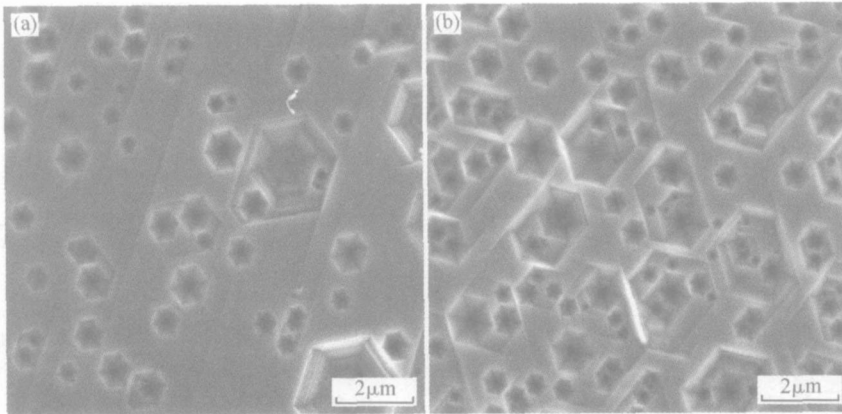


图 3 样品 S3(a) 和 S5(b) 在相同条件下腐蚀后的扫描电子显微镜形貌图 相应的腐蚀坑密度分别为 0.61×10^8 和 $1.27 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$ 。

Fig. 3 Plan-view SEM images of sample 3(a) and sample 5(b), etched in the same condition. Etch-pit densities are measured to be 0.61×10^8 and $1.27 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$, respectively.

度是不全面的,而需要通过对摇摆曲线进行线形拟合分离出真正由于穿透位错所导致的线形展宽,所分离出的展宽的值才与材料的位错密度有直接的单调关系。

参考文献

- [1] Nakamura S, Senoh M, Iwasa N, et al. High-brightness In-GaN blue, green and yellow light-emitting diodes with quantum well structure. *Jpn J Appl Phys*, 1995, 34:L797
- [2] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S, et al. InGaN/ GaN/ Al-GaN-based laser diodes with modulation-doped strained-layer superlattices. *Jpn J Appl Phys*, 1997, 36:L1568
- [3] Weimann N G, Eastman L F. Scattering of electrons at threading dislocations in GaN. *J Appl Phys*, 1998, 83:3656
- [4] Yu L P, Shi J Y, Wang Y Z, et al. Study of different type of dislocations in GaN thin films. *J Cryst Growth*, 2004, 268:484
- [5] Heinke H, Kinchner V, Einfeldt S, et al. X-ray diffraction analysis of the defect structure in epitaxial GaN. *Appl Phys Lett*, 2000, 77:2145
- [6] Srikant V, Speck J S, Clarke D R. Mosaic structure in epitaxial thin films having large lattice mismatch. *J Appl Phys*, 1997, 82:4286
- [7] Heying B, Wu X H, Keller S, et al. Role of threading dislocation structure on the X-ray diffraction peak widths in epitaxial GaN film. *Appl Phys Lett*, 1995, 68(5):643
- [8] Shi J Y, Yu L P, Wang Y Z, et al. Influence of different types of threading dislocations on the carrier mobility and photoluminescence in epitaxial GaN. *Appl Phys Lett*, 2002, 80:2293
- [9] Metzger T, Hopler R, Bom E, et al. Defect structure of epitaxial GaN films determined by transmission electron microscopy and trip-axis X-ray diffractometry. *Philosophical Magazine A*, 1998, 77:1013
- [10] Lu M, Chang X, Li Z L, et al. Etch pits and threading dislocations in GaN films grown by metal-organic chemical vapour deposition. *Chinese Physics Letters*, 2003, 20:398

Necessity of Profile-Fitting when Using X-Ray Diffraction to Analyze GaN Thin Films^{*}

Chen Zhitao[†], Xu Ke, Yang Zhijian, Su Yueyong, Pan Yaobo,
Yang Xuelin, Zhang Han, and Zhang Guoyi

(State Key Laboratory for Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics, Research Center for Wide-band Semiconductors, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: High-resolution X-ray diffraction is utilized to analyze the micro-structure of annealed and as-grown GaN thin films grown by metalorganic chemical vapor deposition. Profile-fitting analyses indicate that the annealed ones have larger full widths at half maximum of (0002) rocking curve and lower densities of screw-type threading dislocations than the as-grown samples. A chemical etching experiment supports the above results. Our results indicate that profile-fitting is necessary when XRD is used to characterize the structure of GaN thin films.

Key words: high-resolution X-ray diffraction; rocking curve; threading dislocation

PACC: 7280E; 6110

Article ID: 0253-4177(2006)08-1378-04

^{*}Project supported by the National Natural Science Foundation of China(No. 60376005)

[†]Corresponding author. Email: zhtchen@pku.edu.cn

Received 26 December 2005, revised manuscript received 6 March 2006

©2006 Chinese Institute of Electronics