

# GaN 晶体中堆垛层错的高分辨电子显微像研究

万 威 唐春艳 王玉梅 李方华<sup>†</sup>

(中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100080)

(2004 年 10 月 10 日收到, 2005 年 1 月 25 日收到修改稿)

借助高分辨电子显微像结合解卷处理的方法研究了 GaN 晶体中的堆垛层错. 简要介绍了高分辨电子显微像的解卷处理原理, 指出通过解卷处理可以把本来不直接反映待测晶体结构的高分辨电子显微像转换为直接反映晶体结构的图像. 用高分辨电子显微像观察了 GaN 晶体中的堆垛层错, 对高分辨电子显微像作了解卷处理. 在解卷像上清晰可见缺陷核心的原子排列情况, 据此确定了层错的类型. 此外, 还讨论了解卷处理在研究晶体缺陷中的效用.

关键词: GaN, 晶体缺陷, 高分辨电子显微学, 解卷处理

PACC: 6170P, 7280E

## 1. 引 言

GaN 是一种在光电和高功率、高频率器件中有广泛应用前景的半导体材料<sup>[1]</sup>. 但现今的生产工艺还难以长出大块的 GaN 单晶, 且产品的缺陷密度很高. 这些缺陷会显著影响材料的能带结构, 从而影响有关器件的光学和电学性质. 因此, 研究这些缺陷核心的原子配置对于理解材料特性有重要的意义.

高分辨电子显微术是研究晶体结构和缺陷的一种重要且有效的方法. 目前中等加速电压(200—400kV)透射电子显微镜的分辨本领约为 0.2nm—0.16nm. 即使高分辨电子显微镜的分辨本领接近晶体中的原子间距, 但由于成像过程中受物镜像差、聚焦条件、电子相干性、晶体厚度等的影响, 显微像不一定能正确反映晶体结构. 为此, 李方华等建立并发展了高分辨电子显微像的解卷处理技术, 将任意条件下拍摄的高分辨电子显微像恢复为结构像<sup>[2-5]</sup>. 早期的解卷处理技术着眼于对完整晶体的研究, 应用于测定微小晶体的结构<sup>[2]</sup>. 近期着重于缺陷晶体的研究, 应用于测定晶体缺陷核心的原子配置, 测定晶体缺陷的类型<sup>[2, 4-8]</sup>. 对于 200kV 场发射电镜拍摄的高分辨电子显微像, 分辨率只有 0.2nm. 通过解卷处理, 不仅使本不直接反映晶体结构的像转换为结构像, 而且把像的分辨率提高到 0.14nm<sup>[4, 6-8]</sup>. 本文

用 200kV 非场发射电镜研究 GaN 中的堆垛层错. 尽管从原理上解卷处理无助于提高像分辨率, 但仍尝试对高分辨电子显微像作解卷处理, 以研究堆垛层错的类型.

## 2. 解卷处理与动力学衍射校正

### 2.1. 解卷原理

在弱相位物体近似下, 像的强度  $I(\mathbf{r})$  可以表达为

$$I(\mathbf{r}) = 1 + 2\sigma\varphi(\mathbf{r}) * \mathcal{F}^{-1}[\mathcal{T}(H)], \quad (1)$$

其中  $\sigma = \pi/\lambda U$ , 称相互作用常数,  $\lambda$  表示电子波长,  $U$  表示电镜加速电压,  $\varphi(\mathbf{r})$  为晶体的投影势分布函数,  $\mathcal{F}^{-1}$  和  $*$  分别为反傅里叶变换和卷积符号,  $\mathcal{T}(H)$  为衬度传递函数. 对 (1) 式作傅里叶变换得

$$\mathcal{I}(H) = \delta(H) + 2\sigma F(H)\mathcal{T}(H), \quad (2)$$

$\mathcal{I}(H)$  是像强度的傅里叶变换,  $F(H)$  表示  $\varphi(\mathbf{r})$  的傅里叶变换, 当试样为晶体时, 它代表结构因子,  $\delta(H)$  表示 Dirac  $\delta$  函数. 由 (2) 式可见, 对于一幅高分辨电子显微像, 若  $\mathcal{T}(H)$  已知, 则可计算得  $F(H)$ .  $F(H)$  的反傅里叶变换即为晶体的投影势函数  $\varphi(\mathbf{r})$ , 它对应于晶体中的原子排布.

用于高分辨电镜观察的晶体很薄, 特别是为拍摄到高质量高分辨电子显微像的试样厚度一般小于

<sup>†</sup> E-mail: lifh@aphy.iphy.ac.cn

10nm,且不满足弱相位物体近似,但大都满足赝弱相位物体近似<sup>[9]</sup>.按照赝弱相位物体近似像衬理论,(1)式仍能成立,不过 $\varphi(r)$ 应换成 $\varphi'(r)$ ,

$$I(r) = 1 + 2\sigma\varphi'(r) * \mathcal{F}^{-1}[T(H)], \quad (3)$$

$\varphi'(r)$ 为赝电势投影函数.当晶体的厚度小于临界值时, $\varphi'(r)$ 给出的赝电势投影图的峰位置与 $\varphi(r)$ 给出的电势投影图一样,只是峰高不同. $\varphi'(r)$ 中的重原子的峰偏低,而轻原子的峰偏高.于是原则上仍可以按(2)式作解卷处理,相应地(2)式中的 $F(H)$ 应换成 $F'(H)$ ,它是 $\varphi'(r)$ 的傅里叶变换,称赝结构因子.这样,可用上述方法求得 $F'(H)$ ,对 $F'(H)$ 作反傅里叶变换即可得到 $\varphi'(r)$ .

由上可见,解卷的关键是求定衬度传递函数 $T(H)$ . $T(H)$ 与成像的各种电子光学参量有关.其中,电镜加速电压、球差系数、色差系数和电子束发散度大体上已知或易于从实验测定,而离焦量则很难确定.实验中调节物镜电流,当试样边缘非晶区的衬度最低时,大致对应于正焦的调节.可是,非晶区与待测晶体区的高度往往不同,而且非晶总有一定厚度,所以这种估测离焦量的方法是很粗略的.若待测晶体区域附近有较大的非晶区,则可用非晶区的“Thon Diffractiongram”方法确定离焦量<sup>[10]</sup>,不过两个区域的高度仍未必一致.为了测定完整晶体的结构,推荐用最大熵方法<sup>[3]</sup>或 Sayre 方程法<sup>[11]</sup>确定离焦量.而对于测定晶体缺陷的结构,相应的完整晶体结构变为已知,此时不妨借助非晶区测得大致的离焦量,然后在其两侧一定范围内设置一系列尝试离焦量,再分别用尝试离焦量对高分辨电子显微像的完整区域进行解卷,根据解卷像与完整晶体结构的符合程度来判断正确的离焦量.

## 2.2. 动力学衍射效应校正方法

实践证明,晶体愈薄,解卷处理的效果愈好.晶体厚度对解卷处理的影响源于动力学电子衍射效应.为了把解卷处理技术扩展至稍厚些的晶体试样,文献[5]报道了一种校正动力学衍射效应的方法.该文献指出,缺陷晶体弥散衍射的强度分布随晶体厚度的变化是单调的,从而提出了借助完整晶体的结构因子来校正动力学衍射效应的方法.设 $F^d(H)$ 为解卷像的傅里叶变换,称解卷像的衍射图.图中的衍射斑是弥散的.令 $|F^d(H)|_i$ 表示衍射 $H$ 第 $i$ 个像素中的振幅值,令校正之后的值为

$$|F^d(H)|_i^{\text{校正}} = \frac{|F(H)|}{\sum_i |F^d(H)|_i} |F^d(H)|_i. \quad (4)$$

(4)式的物理意义是令校正之后每个衍射斑的积分振幅等于完整晶体的结构因子振幅.在实际操作中,解卷处理与校正动力学衍射效应合为一体.先针对每个尝试离焦量计算出对应的尝试的 $|F^d(H)|_i^{\text{校正}}$ ,对校正后的尝试衍射图作反傅里叶变换,得一幅尝试电势投影图,最后从一系列尝试电势投影图中挑选出最佳者,是为解卷像.

## 3. 实验方法

实验所用的 GaN 样品属六方晶系,晶胞参数 $a = 0.3171\text{nm}$ , $c = 0.5179\text{nm}$ .沿 $[11\bar{2}0]$ 方向 Ga 原子和 N 原子不重叠,适合用高分辨电子显微像研究其缺陷结构.电镜试样是玛瑙乳钵研碎的 GaN 晶片,用乙醇分散后置于多孔碳膜上.用 JEM-2010 高分辨电镜观察,电镜的分辨本领接近 0.19 nm.

## 4. GaN 缺陷晶体高分辨电子显微像的解卷处理

### 4.1. $[11\bar{2}0]$ 高分辨像

图 1 为一幅 GaN 的 $[11\bar{2}0]$ 高分辨电子显微像,右上角嵌了对应的电子衍射花样,左上角是 GaN 完整晶体沿 $[11\bar{2}0]$ 方向的投影结构模型.因为拍摄时偏离了 Scherzer 聚焦<sup>[12]</sup>条件,所以像的衬度不直接反映晶体结构,但是可以看出,像的中部偏右下有一片面缺陷(见箭头所指处).

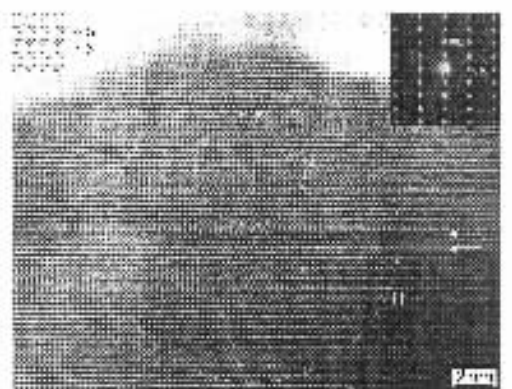


图 1 GaN 晶体的 $[11\bar{2}0]$ 高分辨电子显微像,左上角嵌入的是完整六方 GaN 晶体沿此方向上的投影结构模型,右上角是对应的电子衍射花样

## 4.2. 傅里叶滤波

从图 1 中的面缺陷附近选取一块完整晶体区域(圆 I),对其作傅里叶变换得衍射图(图 2(a)).为去除噪声,对衍射图上的各衍射斑进行振幅积分.方法是,以各衍射斑振幅的最大值对应的像素为中心,以半径  $R$  为 3 个像素和 5 个像素划出两个圆形区域.

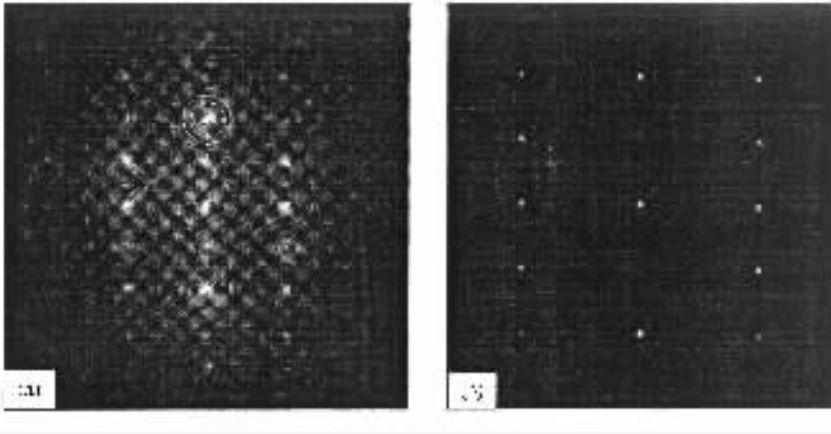


图 2 (a) 图 1 中 I 圆标出的区域的傅里叶变换图 (b) 经滤波、强度积分和扣除背底的衍射图

除背底的衍射积分振幅图(图 2(b)).

## 4.3. 离焦量测定

摄像时调整物镜电流,借助晶体试样边缘非晶区的衬度估计出大致的正焦位置,从而估计出图 1 所示的高分辨电子显微像的离焦量在  $-60\text{nm}$  附近.在  $0$  到  $-100\text{nm}$  之间设置一系列尝试离焦量  $\Delta f_{\text{trial}}$ ,步长为  $2\text{nm}$ ,并计算出系列衬度传递函数值  $T_{\text{trial}}(H)$ ,然后针对每一个尝试离焦量,一一进行解卷. $T_{\text{trial}}(H)$ 可表达为

$$T_{\text{trial}}(H) = \sin\chi_1(H) \exp[-\chi_2(H)], \quad (5)$$

其中,

$$\chi_1(H) = \pi C_s \chi^3 H^4 / 2 + \pi \lambda \Delta f_{\text{trial}} H^4, \quad (6)$$

$$\chi_2(H) = \pi^2 \lambda^2 D^2 H^4 / 2, \quad (7)$$

式中  $C_s$  代表物镜的球差系数, $\lambda$  为电子波长, $D$  为色差引起的离焦量高斯分布的标准差.由(2)式,当  $H$  不为 0 时,有

$$F'_{\text{trial}}(H) = \frac{i(H)}{2\sigma T_{\text{trial}}(H)}. \quad (8)$$

将各参数( $C_s = 0.5\text{mm}$ ,  $\lambda = 0.00251\text{nm}$ ,  $D = 8\text{nm}$ )和一系列尝试离焦量  $\Delta f_{\text{trial}}$  代入(6)(7)和(5)式,即计算出一系列  $T_{\text{trial}}(H)$ .代之入(8)式,可得到一系列

对环形区域( $3 \text{ 像素} < R < 5 \text{ 像素}$ )进行振幅平均,得到的平均振幅值视为背底.将内圆内( $R < 3 \text{ 像素}$ )的每一个像素的振幅减去背底后积分,即为衍射点最后的积分振幅.将此振幅值赋给中心点,保持中心点原来的相位不变,而将衍射图上所有其余的像素振幅值设为零.最后依照衍射消光规律删除禁阻衍射,并弃去远超出电镜信息极限的衍射点,得滤波和扣

尝试结构因子  $F'_{\text{trial}}(H)$ .然后,忽略衍射图的透射斑,对  $F'_{\text{trial}}(H)$  作反傅里叶变换即得一系列尝试的电势投影图  $\varphi'_{\text{trial}}(r)$ .在得到的一系列  $\varphi'_{\text{trial}}(r)$  图中,显示出白点或黑点.据此可把  $\varphi'_{\text{trial}}(r)$  大致可分为四组:1) 尝试离焦量从  $0$ — $-20\text{nm}$ , 图上显示黑点;2) 尝试离焦量从  $-20$ — $-50\text{nm}$ , 图上显示白点;3) 尝试离焦量从  $-50$ — $-80\text{nm}$ , 图上显示黑点;4) 尝试离焦量从  $-80$ — $-100\text{nm}$ , 图上显示白点.图 3 是分别从 1)—4) 四组图中挑出的衬度最清楚的图,右下角标出对应的尝试离焦量.由成像原理可知,以正确的离焦量作解卷得到的解卷像上原子应显示为黑点,于是可排除图 3(b)和(d),而且,对比 GaN 沿  $[11\bar{2}0]$  方向的投影结构模型(图 1 左上角)可见,图 3(c)最符合 GaN 的结构,由此可确定图 1 所示高分辨电子显微像的离焦量为  $-62\text{nm}$ .图中的黑点对应于 Ga 原子,电镜的分辨本领不足以显示 N 原子.

## 4.4. 晶体缺陷区的解卷像

可以认为,以上所取的缺陷区域与 4.2 节所取的完整区的高度基本相同.于是,用 4.3 节确定的离焦量( $-62\text{nm}$ )对该缺陷区域作解卷处理,取像上包含缺陷的一块区域(图 1 中标注 II 的圆),作傅里叶变换后得衍射图(图 4(a)).衍射图中的衍射斑均沿

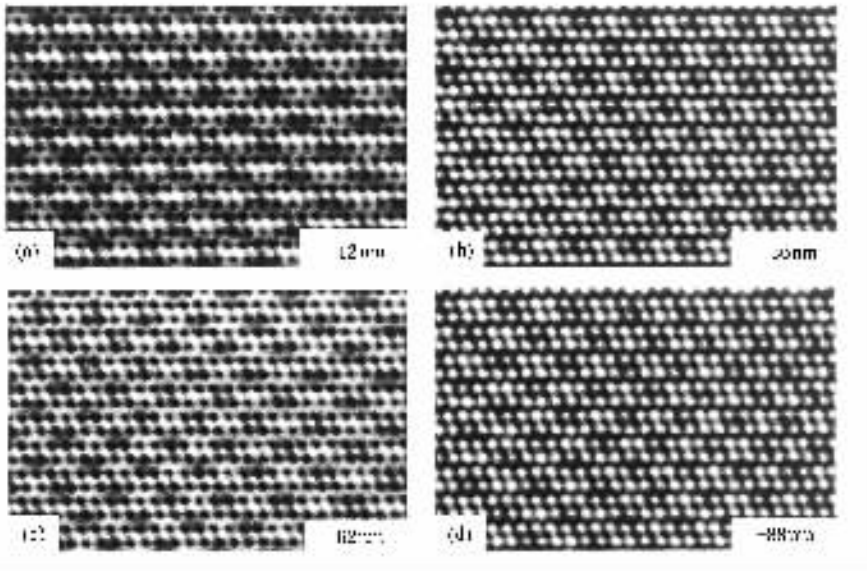


图3 图1中I圆标出区域的解卷像及其对应的尝试离焦量

垂直于面缺陷方向拉长,拉长部分携带了面缺陷原子结构的信息.衍射图的傅里叶滤波方法与完整区的类似,以每个衍射斑振幅最大处为中心取两个同心圆,半径分别为7个和9个像素.计算两个圆之间环形区域平均振幅值,视为背底,从内圆内每个像素的振幅中减去其对应的背底,而保持原来的相位不变.与完整区域不同的是,因缺陷信息在衍射图上是弥散的,故不能对内圆的振幅进行积分,仅将衍射图上内圆以外的像素振幅全部设为零.这样,每个衍射斑均为圆形,其振幅值呈一定的分布.

将空间频率  $H$ 、离焦量  $\Delta f$  ( $-62\text{nm}$ )和各项电子光学参数代入(6)(7)和(5)式可计算出  $T(H)$ ,对衍射图4(a),由(8)式进行解卷,可得相应的  $F^d(H)$ .为去除晶体厚度的影响,依(4)式作动力学

衍射振幅校正.对每个衍射斑  $H$ ,计算振幅积分  $\sum_{i \in \text{衍射斑内}} |F^d(H)|_i$ ,由 GaN 完整晶体原子模型计算相应的结构因子  $F(H)$ ,得到校正系数

$$K_H = |F(H)| / \sum_i |F^d(H)|_i.$$

将衍射斑  $H$  内的每个像素的振幅乘以系数  $K_H$ ,相位保持不变,各像素点之间的相对振幅也没变.值得注意的是,不同衍射斑对应不同的校正系数,而每个衍射斑内像素点的校正系数都相同.这样,经过动力学衍射效应校正之后,各个衍射斑振幅的积分振幅值与对应完整晶体的结构因子相同.

最后,将经过滤波、解卷和动力学衍射效应校正后的衍射图作反傅里叶变换,得电势投影图4(b),即为图1中圆II对应的解卷像.同样,黑点对应Ga

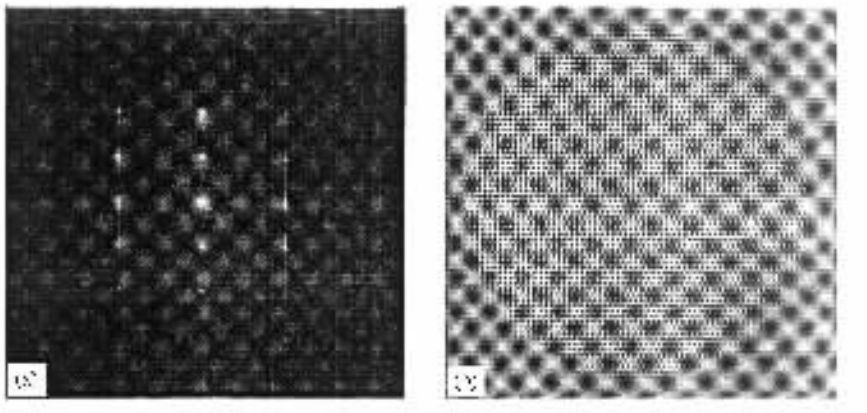


图4 (a)图1中II圆标出区域的傅里叶变换图 (b)图1中II圆标出区域的解卷像

原子位置.

## 5. 堆垛层错的测定

取图 4(b)中缺陷的白框部分放大并调整衬度, 得图 5(a), 右端标出六方密堆积的堆垛符号. 图 5

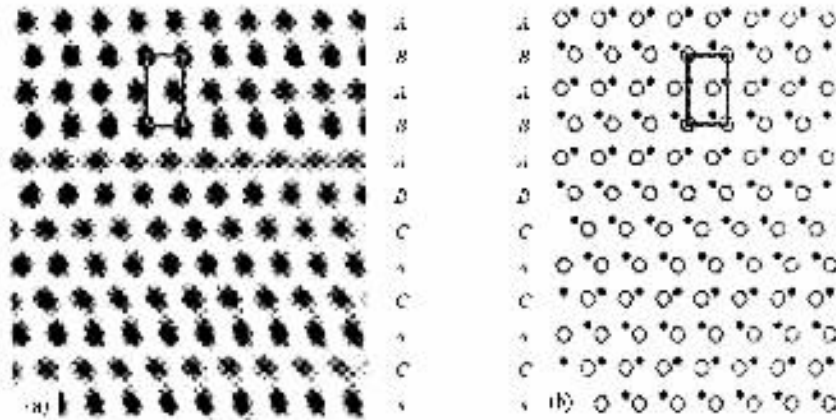


图 5 (a)对应图 4(b)白线框内的放大图. 矩形框为一单胞 (b)六方晶体中的  $I_2$  层错模型. 矩形框为一单胞

## 6. 讨论和结论

由于拍摄高分辨电子显微像时不易确切设置 Scherzer 聚焦条件, 衍射束受衬度传递函数调制而使像畸变, 未必能正确反映晶体结构. 理论和实验证明, 借助于解卷处理, 可消除像的畸变, 获得正确的晶体结构信息. 解卷过程中运用滤波技术可改善图像质量. 确定缺陷晶体结构时, 若完整晶体结构已知, 则可进行动力学衍射校正, 减小晶体厚度对解卷像的影响. 本文用缺陷晶体的高分辨电子显微像的

(b)是六方晶系晶体中的  $I_2$  内禀层错模型<sup>[13]</sup>. 对比图 5(a)和图 5(b)可见, 两者的堆垛顺序是一致的, 均为 ABABCACA. 于是, 图 4(b)中缺陷的右端为  $I_2$  内禀层错, 层错的左端消失处形成 Shockley 不全位错, 层错右端消失在晶体较厚的区域(图 1 中大圆 II 之外).

图像处理技术把不是在 Scherzer 聚焦条件下拍摄的 GaN 高分辨像恢复为结构像, 观察到了 GaN 晶体中  $I_2$  内禀层错的核心结构.

本工作结果说明, 即使电镜的分辨本领不足以分辨开全部原子, 解卷处理仍不失为一种研究晶体缺陷的有效方法. 若使用场发射电镜, 解卷像的分辨率能接近电镜的信息分辨极限, 从而有望能从 GaN [11 $\bar{2}$ 0] 高分辨电子显微像的解卷像上分辨出 N 原子. 例如, 文献[14]报道, 300kV 场发射电镜的 GaN 模拟高分辨电子显微像经过解卷处理后, 能显示 N 原子空位.

- [1] Nakamura S, Mukai T and Senoh M 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 1687
- [2] Li F H 2003 *Zeitschrift für Kristallographie* **218** 279
- [3] Hu J J and Li F H 1991 *Ultramicroscopy* **35** 339
- [4] He W Z, Li F H, Chen H, Kawasaki K and Oikawa T 1997 *Ultramicroscopy* **70** 1
- [5] Li F H, Wang D, He W Z and Jiang H 2000 *J. Electron Microscopy* **49** 17
- [6] Wang D, Li F H and Zou J 2000 *Ultramicroscopy* **85** 131
- [7] Wang D, Chen H, Li F H, Kawasaki K and Oikawa T 2002 *Ultramicroscopy* **93** 139

- [8] Wang D, Zou J, He W Z, Chen H, Li F H, Kawasaki K and Oikawa T 2004 *Ultramicroscopy* **98** 259
- [9] Li F H and Tang D 1985 *Acta. Cryst. A* **41** 376
- [10] Thon F 1971 *Electron Microscopy in Materials Science* (New York: Academic Press)
- [11] Sayer D 1952 *Acta. Cryst.* **5** 60
- [12] Scherzer O 1949 *J. Appl. Phys.* **20** 20
- [13] Lim S H and Shindo D 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 3759
- [14] Wang H B and Li F H 2002 *Acta Metallurgica Sinica* **38** 589 (in Chinese) 王怀斌, 李方华 2002 金属学报 **38** 589

# A study on the stacking fault in GaN crystals by high-resolution electron microscope imaging

Wan Wei Tang Chun-Yan Wang Yu-Mei Li Fang-Hua<sup>†</sup>

( *Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics , Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China* )

( Received 10 October 2004 ; revised manuscript received 25 January 2005 )

## Abstract

The stacking fault in crystals of GaN was studied by high-resolution electron microscope images in combination with image deconvolution. The principle of deconvolution for high-resolution electron microscope images is briefly introduced. It is demonstrated that an image originally does not intuitively reflect the examined crystal structure can be transformed into the structure image. The stacking faults in crystals of GaN were observed with the high-resolution microscope. The image deconvolution was performed for the image , and the atomic configuration in the defect core is seen clearly in the deconvoluted image. Based on this , the type of stacking fault has been determined. Besides , the effectiveness of image deconvolution in studying crystal defects is discussed.

**Keywords :** GaN , crystal defects , high-resolution electron microscopy , image deconvolution

**PACC :** 6170P , 7280E

---

<sup>†</sup> E-mail [lifh@aphy.iphy.ac.cn](mailto:lifh@aphy.iphy.ac.cn)