

# InGaN/GaN 多量子阱的组分确定和晶格常数计算<sup>\*</sup>

丁志博<sup>1)</sup> 王 琦<sup>2)</sup> 王 坤<sup>1)</sup> 王 欢<sup>1)</sup> 陈田祥<sup>1)</sup> 张国义<sup>2)</sup> 姚淑德<sup>1)</sup><sup>†</sup>

1) 北京大学物理学院, 北京 100871)

2) 宽禁带半导体研究中心, 北京 100871)

(2006 年 8 月 30 日收到 2006 年 11 月 7 日收到修改稿)

采用金属有机化学气相沉积(MOCVD)技术以蓝宝石为衬底在 n 型 GaN 单晶层上生长了 InGaN/GaN 多量子阱结构外延薄膜。利用高分辨 X 射线衍射(HRXRD)、卢瑟福背散射/沟道(RBS/channeling)以及光致发光(PL)技术对 InGaN/GaN 多量子阱结构薄膜分别进行了平均晶格常数计算、In 原子替位率计算和 In 组分的定量分析。研究表明: InGaN/GaN 多量子阱的水平和垂直方向平均晶格常数分别为  $a_{\text{epi}} = 0.3195 \text{ nm}$ ,  $c_{\text{epi}} = 0.5198 \text{ nm}$ , In 原子的替位率为 99.3%。利用 HRXRD 和 RBS/channeling 两种分析技术计算 In 的组分分别是 0.023 和 0.026, 并与样品生长时设定的预期目标相符合, 验证了两种实验方法的准确性。而用室温条件下的光致发光谱(PL)来计算 InGaN/GaN 多量子阱中 In 的组分是与 HRXRD 和 RBS/channeling 的实验结果相差很大, 说明用 PL 测试 In 组分的方法是不适宜的。

关键词: InGaN/GaN 多量子阱, 高分辨 X 射线衍射, 卢瑟福背散射/沟道, 光致发光

PACC: 7280E, 6855, 4180G, 7855E

## 1. 引 言

GaN 由于具有直接宽带隙、强化学键、耐高温、抗腐蚀等优良性能, 使之成为制造短波长高亮度发光器件、高温晶体管、高功率晶体管和紫外光探测器的理想材料<sup>[1]</sup>。近年来, 随着 InGaN/GaN 多量子阱(MQWs)结构高亮度蓝光、绿光和黄光发光二极管(LED)的制备成功<sup>[2,3]</sup>, 对三元化合物  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  材料的研究逐步引向深入, 通过变化 In 组分, 其禁带宽度可在 1.95 eV 到 3.40 eV 范围连续调节, 适合作为 GaN 基发光二极管(LED)和激光器(LD)的有源区。目前对 InGaN/GaN 多量子阱结构的发光机理和应用研究较深入, 但是对其组分和结构特性的研究则相对较少。因为一些常规的测试手段在准确测定  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  薄膜的厚度、组分配比、In 元素的分布等问题上都遇到了困难, 而卢瑟福背散射/沟道(RBS/channeling)技术是一种十分有效且快捷无损的研究异质外延薄膜的分析手段, 利用它可获得薄膜合金层和过渡层的组分、厚度、元素分布、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 至 1  $\mu\text{m}$  的薄膜样品。同时, 高分辨率 X 射线

衍射仪(HRXRD)可用来分析外延薄膜的结构特性, 确定其晶格常数, 并可计算得出  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$  多量子阱中各元素的组分含量。本文就是利用 HRXRD 和 RBS/channeling 两种分析技术对在 GaN 基上生长的 InGaN/GaN 多量子阱外延薄膜样品进行了晶格常数计算, 并用两种分析手段分别确定其组分, 与常温下从光致发光(PL)实验上获得的组分信息进行比较。

## 2. 实 验

本文所用样品是采用金属有机化学气相沉积(MOCVD)方法生长的 GaN 基 InGaN/GaN 多量子阱结构外延薄膜, 其中三乙基镓(TEGa)、三甲基铟(TMIn)和蓝氨(B-NH<sub>3</sub>)分别作为 Ga 源、In 源和 N 源, 用高纯度的氢气作为载气。在蓝宝石(0001)衬底上先低温生长厚度约 20 nm 的 GaN 缓冲层, 然后在 1060°C 恒温下生长约 2  $\mu\text{m}$  的 n 型 GaN 单晶层, 随后在相同条件下交替生长约 6 nm 厚的 InGaN 量子阱层和约 8 nm 厚的 GaN 势垒层, In 组分预计控制在 0.02—0.03 之间, 共十个周期。最后再外延生长掺 Mg 的厚度约为 20 nm 的 p 型 GaN 层(图 1 为样品结

\* 国家自然科学基金(批准号: 10375004 和 10575007), 中国比利时科技合作项目(批准号: BIL04/05)资助的课题。

† E-mail: sdyao@pku.edu.cn

构示意图)。

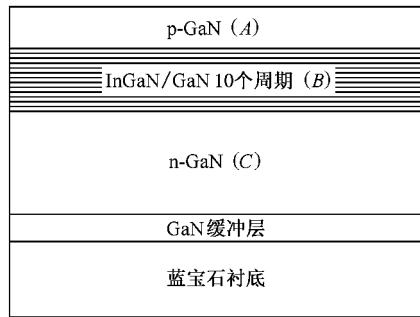


图 1 金属有机化学气相沉积方法生长的 InGaN/GaN 多量子阱结构示意图

高分辨 X 射线衍射(HRXRD)技术是一种无损的研究材料结构的方法<sup>[4]</sup>,非常适合研究单晶或外延膜等晶体取向很好的材料。样品的 X 射线衍射实验采用的是具有 Ge(220)单色器的 Bruker D8-discover 系统,在单色器和探测器前使用的四个狭缝宽度分别是 1.0—1.0—0.6—0.2(mm),X 射线波长为 CuK $\alpha$  ( $\lambda = 0.154056$  nm)。进行了两种不同的扫描测量:1)分别在 0° 和 180° 两个方位角,垂直表面方向对样品的(0004)衍射面进行常规的  $\theta$ —2 $\theta$  扫描;2)非对称模式下分别在两个不同方位角处对 GaN 外延膜的(10 $\bar{1}$ 4)衍射面进行  $\theta$ —2 $\theta$  扫描。通过各衍射面获得的布拉格角,计算 InGaN/GaN 多量子阱水平方向( $a_{\text{epi}}$ )和垂直方向( $c_{\text{epi}}$ )的平均晶格常数,以及 In 的组分和量子阱层单周期厚度。

卢瑟福背散射/沟道(RBS/channeling)实验是在比利时鲁汶大学物理系的  $2 \times 1.7$  MV 的串列加速器上进行的。实验条件如下:入射 He $^+$ 离子的能量为 1.57 MeV, 经过准直, 束流垂直于靶面入射, 束斑约为  $1.1 \times 1.1$  mm, Au-Si 面垒探测器位于与入射离子束成  $167.4^\circ$  的方向上, 即探测散射角为  $167.4^\circ$  的粒子, 能量分辨率为 13 keV, 样品固定在可以三维转动的靶架上, 转动精度为  $0.01^\circ$ , 用作能量刻度的标准样品为在硅衬底上生长厚度约为 450 nm 的 Au-Fe-SiO<sub>2</sub> 薄膜。实验测量了 InGaN/GaN 多量子阱 0001 轴的背散射随机谱和沟道谱, 并计算了样品的结晶品质和 In 原子的替位率, 同时利用 RUMP 程序<sup>[5]</sup>模拟 0001 轴的随机谱, 对 InGaN/GaN 多量子阱的 In 元素组分和外延膜厚度进行了精确定量分析。

样品的光致发光谱(PL 谱)是在室温(300 K)下测量, 激发光源是 He-Cd 激光器 325 nm 线, 激发光

率为 15 mW。采用 InGaAs 探测器探测, 发射光经光栅单色仪分光, 由光电倍增管接收后, 信号经锁相放大器放大, 通过计算机进行数据采集和处理。通过 InGaN/GaN 多量子阱的常温下发光峰位来计算组分。

### 3. 实验结果和分析

图 2 是 InGaN/GaN 多量子阱沿(0004)衍射面的高分辨 X 射线衍射对称  $\theta$ —2 $\theta$  扫描结果。从图中可以清晰地看到 GaN(0004)面的衍射主峰和 InGaN 量子阱的各级衍射峰, 从而利用高斯拟合可以确定各衍射峰的布拉格角。由公式  $L_{\text{W}+\text{B}} = \lambda / (2\Delta\theta_p \cos\theta_B)$ <sup>[6]</sup> 可以计算得出 InGaN/GaN 多量子阱中一个周期的厚度,  $L_{\text{W}+\text{B}}$  是 InGaN 量子阱单层厚度与 GaN 势垒单层厚度之和,  $\Delta\theta_p$  是相邻两级 InGaN 衍射峰的角度之差, 为  $0.46^\circ$ ,  $\theta_B$  是 GaN(0004)面的衍射主峰的布拉格角度, 为  $36.616^\circ$ ,  $\lambda$  是 X 射线波长, 为  $0.154056$  nm。经计算 InGaN/GaN 多量子阱中一个周期的厚度为  $13.6$  nm, 十周期的总厚度为  $136$  nm, 这与在生长样品时预计的单周期厚度  $14$  nm, 总厚度  $140$  nm 的结果十分接近, 验证了该方法的准确性。

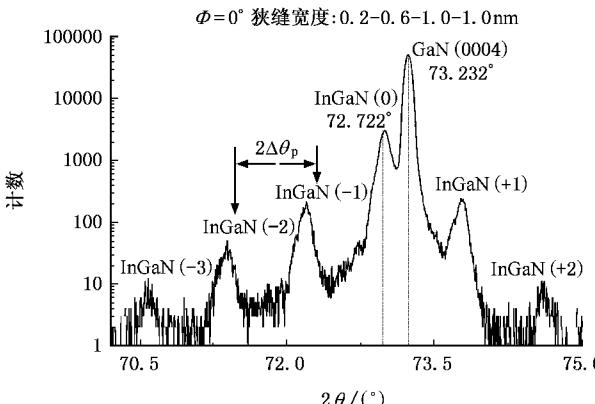


图 2 InGaN/GaN 多量子阱沿(0004)衍射面的高分辨 X 射线衍射对称  $\theta$ —2 $\theta$  扫描图

图 3 是 InGaN/GaN 多量子阱沿(10 $\bar{1}$ 4)衍射面的高分辨 X 射线衍射非对称  $\theta$ —2 $\theta$  扫描结果。由于在 InGaN/GaN 多量子阱结构中, InGaN(0)级衍射峰的布拉格角度就代表了整个量子阱中的平均布拉格角度<sup>[7]</sup>, 所以通过对(0004)和(10 $\bar{1}$ 4)衍射面的  $\theta$ —2 $\theta$  扫描, 可得出 InGaN(0)级衍射峰在对称面和非对称面的布拉格衍射角度, 由布拉格公式  $2d \sin(\theta_B^{\text{MQWs}}) = \lambda$  及六方晶体倒空间公式

$$d_{hkl} = \frac{1}{\sqrt{\frac{4}{3} \left( \frac{h^2 + hk + k^2}{a^2} \right) + \left( \frac{l^2}{c^2} \right)}} \quad [8]$$

可分别计算得出 InGaN/GaN 多量子阱水平方向的平均晶格常数 ( $a_{\text{epi}} = 0.3195 \text{ nm}$ ) 和垂直方向的平均晶格常数 ( $c_{\text{epi}} = 0.5198 \text{ nm}$ ).  $\theta_{\text{B}}^{\text{MQWs}}$  是 InGaN(0) 级衍射峰的布拉格角度,  $\lambda$  是 X 射线波长. 对于应变已经完全释放的外延薄膜样品, 其组分含量的确定可通过 Vegard 定律获得, 但是对于 InGaN/GaN 多量子阱结构的外延薄膜样品, 基本处于应变没有释放状态, 其 In 组分的确定可由公式

$$x = - \frac{a_{\text{epi}} c_{\text{epi}} (1 + \nu) - a_{\text{epi}} c_0^{\text{GaN}} - a_0^{\text{GaN}} c_{\text{epi}} \nu}{a_{\text{epi}} c_0^{\text{GaN}} - a_{\text{epi}} c_0^{\text{InN}} - a_0^{\text{InN}} c_{\text{epi}} \nu + a_0^{\text{GaN}} c_{\text{epi}} \nu}$$

计算得出<sup>[9]</sup>,  $\nu$  为泊松系数, 在 InGaN/GaN 多量子阱结构的六方晶体中,  $\nu = 0.6$ <sup>[10]</sup>,  $a_{\text{epi}}$  和  $c_{\text{epi}}$  分别是 InGaN/GaN 多量子阱水平方向和垂直方向的平均晶格常数,  $a_0^{\text{GaN}} = 0.3189 \text{ nm}$  和  $c_0^{\text{GaN}} = 0.5185 \text{ nm}$  分别是 GaN 单晶水平方向和垂直方向的理论晶格常数,  $a_0^{\text{InN}} = 0.3533 \text{ nm}$  和  $c_0^{\text{InN}} = 0.5693 \text{ nm}$  分别是 InN 单晶水平方向和垂直方向的理论晶格常数. 经计算, In 的组分为  $x = 0.023$ , 下面的 RBS/channeling 实验经 RUMP 程序模拟也得到了相近的结果, 验证了该方法的准确性.

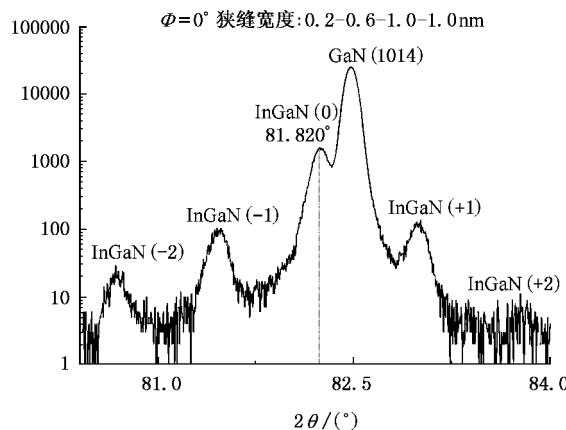


图 3 InGaN/GaN 多量子阱沿(1014)衍射面的高分辨 X 射线衍射非对称  $\theta$ — $2\theta$  扫描图

图 4 是样品的 RBS/channeling 沿 0001 轴的随机谱、沟道谱、及随机谱的模拟谱的结果, 背散射测量时探测束几何关系示意图也插入其中. 横坐标为道址, 也对应从样品散射回的  $\text{He}^+$  能量, 纵坐标为背散射产额. 图中标号 In 的箭头所指位置是  $\text{He}^+$  与 InGaN/GaN 多量子阱结构中(图 1 中 B 层) In 元素发

生背散射后所对应的平均能量位置, In 原子散射谱的半高宽( FWHM )表示 InGaN 量子阱外延膜的厚度, 由于 In 原子在样品中的含量很低, 导致其背散射产额较少, 反映在图谱中, In 的背散射峰就很低. Ga 原子的背散射随机谱位于图中的 A 区域、B 区域和 C 区域, 分别是图 1 中 A 层、B 层和 C 层的 Ga 原子的背散射产额. 借助 RUMP 程序模拟随机谱可知, In 的组分为 0.026, 10 周期的 InGaN/GaN 多量子阱总厚度为 130 nm, 单周期厚度为 13 nm, 这与 HRXRD 的实验结果基本一致. 当离子束沿结晶品质很好的样品晶轴方向入射时, 称作沟道入射, 沟道散射产额会远远低于随机(非沟道)散射的产额<sup>[11]</sup>. 在近表面小内区域内, 沿 0001 轴入射的沟道散射产额与随机入射的产额之比为  $\chi_{\text{min}}$ , 通常  $\chi_{\text{min}}$  是用百分数来表示, 用它来表征单晶的结晶品质. 单晶材料的  $\chi_{\text{min}}$  在 1%—3% 范围内就表示具有完美的结晶品质,  $\chi_{\text{min}}$  越大说明结晶品质越差<sup>[12]</sup>. 样品中 GaN 的结晶品质为  $\chi_{\text{min}}^{\text{Ga}} = 2.1\%$ , InGaN/GaN 多量子阱的结晶品质为  $\chi_{\text{min}}^{\text{In}} = 2.8\%$ , 由公式  $f = (1 - \chi_{\text{min}}^{\text{In}})(1 - \chi_{\text{min}}^{\text{Ga}})$ <sup>[13]</sup> 可以反映 In 原子处于替位位置的概率, 经计算得到 In 原子的替位率为  $f = 99.3\%$ , 表明 In 原子在 InGaN/GaN 多量子阱结构中几乎全部处于替位位置, InGaN 量子阱各层组分分布非常均匀, 具有很好的结晶品质和结构特性.

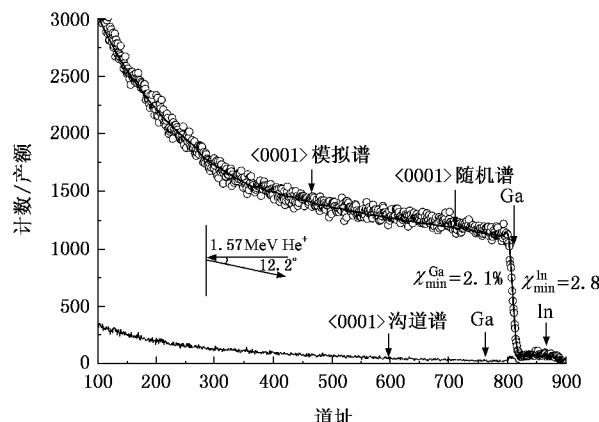


图 4 样品的 RBS/channeling 实验沿 0001 轴的随机谱(○)沟道谱(+)及随机谱的模拟谱(—)

图 5 是样品在室温下(300 K)的光致发光谱. 发光峰位为  $\lambda_{\text{epi}} = 406.67 \text{ nm}$ . 有文献报道 InGaN 薄膜的 In 组分  $x$  是由其室温下的光致发光谱波长, 根据公式  $E_g = 1240/\lambda_{\text{epi}}$  和  $E_g(\text{In}_x \text{Ga}_{1-x} \text{N}) = (1 - x) E_g(\text{GaN}) + x E_g(\text{InN}) + bx(1 - x)$ <sup>[14]</sup> 确定, 室温时

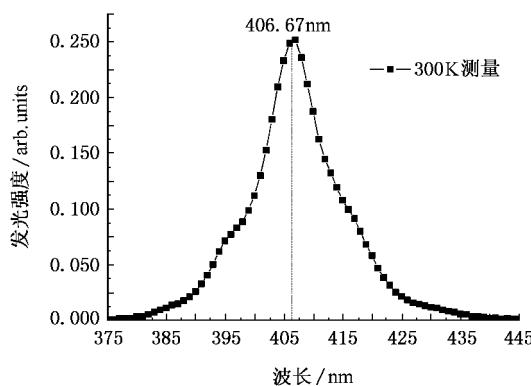


图 5 样品在室温下(300 K)的光致发光谱

$E_g(\text{GaN}) = 3.40 \text{ eV}$ ,  $E_g(\text{InN}) = 1.95 \text{ eV}$ ,  $b$  取 1.0 eV. 计算得到 In 组分为 0.408, 这与样品生长时的 In 组分的设置条件和 HRXRD, RBS/channeling 的实验结果均有很大的出入(见表 1). 究其原因, 由于 InGaN/GaN 多量子阱的光致发光谱会受到杂质、缺陷、束缚激子等因素的影响, 且峰值位置与 In 组分  $x$  值的对应关系

表 1 InGaN/GaN 多量子阱的 HRXRD, RBS/channeling 和 PL 实验结果分析

	In 组分	MQWs/nm	$a_{\text{epi}}/\text{nm}$	$c_{\text{epi}}/\text{nm}$	替位率/%
样品预计结果	0.02—0.03	140	0.3199	0.5200	100
HRXRD 结果	0.023	136	0.3195	0.5198	
RBS 结果	0.026	130			99.3
PL 结果	0.408				

并不明确<sup>[15]</sup>, 因此难以准确测定 In 组分的  $x$  值.

## 4. 结 论

1. 卢瑟福背散射/沟道( RBS/channeling )和高分辨 XRD 衍射技术是分析 InGaN/GaN 多量子阱结构特性, 定量计算外延膜晶格常数和元素组分非常有效的测试方法.

2. 利用 MOCVD 技术生长的 InGaN/GaN 多量子阱的水平和垂直方向平均晶格常数分别为  $a_{\text{epi}} = 0.3195 \text{ nm}$ ,  $c_{\text{epi}} = 0.5198 \text{ nm}$ , 基本达到生长时预计的理论值 ( $a_0 = 0.3199 \text{ nm}$ ,  $c_0 = 0.5200 \text{ nm}$ ).

3. 利用 HRXRD 和 RBS/channeling 两种分析技术计算了 In 的组分, 分别是 0.023 和 0.026, 结果基本一致, 与样品生长时设定的预期目标相符合, 验证了两种实验方法的准确性.

4. In 原子的替位率为 99.3%, 表明 In 原子在 InGaN/GaN 多量子阱结构中几乎全部处于替位位置, InGaN 量子阱各层组分分布非常均匀, 具有很好的结晶品质和结构特性.

5. 借助室温条件下的光致发光谱来计算 InGaN/GaN 多量子阱中 In 组分的方法是不适宜的, 这与 HRXRD 和 RBS/channeling 的实验结果相差很大.

- [1] Nakamura S, Senoh M, Iwasa N, Nagahama S 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 1868
- [2] Kong Y C, Zheng Y D, Chu R M, Gu S L 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1756 ( in Chinese )[ 孔月蝉、郑有、储荣明、顾书林 2003 物理学报 **52** 1756 ]
- [3] Ding Z B, Yao S D, Wang K, Cheng K 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2977 ( in Chinese )[ 丁志博、姚淑德、王 坤、程凯 2006 物理学报 **55** 2977 ]
- [4] Feng Z C, Zhang X, Chua S J, Yang T R, Deng J C, Xu G 2002 *Thin Solid Films* **409** 15
- [5] Doolittle L R 1985 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **B9** 344
- [6] Wu M F, Zhou S Q, Yao S D, Zhao Q and Vantomme A 2004 *J. Vac. Sci. Technol.* **B22** 921
- [7] Kim D J, Moon Y T, Song K M, Park S J 2001 *J. Appl. Phys.* **40** 3085
- [8] Chen D J, Shen B, Zhang K X, Deng Y Z, Fan J, Zhang R, Shi Y, Zheng Y D 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1789 ( in Chinese )[ 陈敦军、沈 波、张开骁、邓咏桢、范 杰、张 荣、施 毅、郑有

2003 物理学报 **52** 1789 ]

- [9] Schuster M, Gervais P O, Jobst B, Hosler W, Averbeck R, Riecher H, Iberl A, Stommer R 1999 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **32** A56
- [10] Srinivasan S, Liu R, Bertram F, Ponce A, Tanaka S, Omiya H, Nakagawa Y 2001 *Phys. Stat. Sol. (b)* **228** 41
- [11] Wang K, Yao S D, Hou L N, Ding Z B, Yuan H T, Du X L, Xue Q K 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2892 ( in Chinese )[ 王 坤、姚淑德、侯利娜、丁志博、袁洪涛、杜小龙、薛其坤 2006 物理学报 **55** 2892 ]
- [12] Zhou S Q, Vantomme A, Zhang B S, Yang H, Wu M F 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 081912
- [13] Chu W K, Mayer J W, Niolet M A 1978 *Backscattering Spectrometry* ( Academic Press )
- [14] Nakamura S, Mukai T, Senoh M 1993 *J. Appl. Phys.* **32** 16
- [15] Takeuchi T, Takeuchi H, Sota S, Sakai H, Amano H, Kasaki I A 1997 *J. Appl. Phys.* **36** 177

# Determination of chemical composition and average crystal lattice constants of InGaN/GaN multiple quantum wells<sup>\*</sup>

Ding Zhi-Bo<sup>1)</sup> Wang Qi<sup>2)</sup> Wang Kun<sup>1)</sup> Wang Huan<sup>1)</sup> Chen Tian-Xiang<sup>1)</sup>  
Zhang Guo-Yi<sup>2)</sup> Yao Shu-De<sup>1)</sup>†

1) Department of Technical Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China

2) Research Center for Wide Gap Semiconductor, School of Physics Peking University, Beijing 100871, China

(Received 30 August 2006; revised manuscript received 7 November 2006)

## Abstract

The samples of InGaN/GaN multiple quantum wells (MQWs) have been grown on (0001) sapphire substrate with n-GaN buffer layer by metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD). According to the results of Rutherford backscattering (RBS) channeling along 0001 axis, the conventional  $\theta$ — $2\theta$  scans normal to GaN (0004) and (10 $\bar{1}$ 4) plane at 0° and 180° azimuth angles and the photoluminescence (PL) properties at room temperature, we concluded that In atoms in the InGaN/GaN MQWs are highly substituted, with the substitution rate over 99%, and the average crystal lattice constants of InGaN/GaN MQWs were calculated accurately ( $a_{\text{epi}} = 0.3195 \text{ nm}$ ,  $c_{\text{epi}} = 0.5198 \text{ nm}$ ), which are almost equal to theoretical data. Using HRXRD and RBS the atomic content of In was determined to be respectively 0.023 and 0.026, the result was consistent with actual growth conditions of InGaN/GaN MQWs. However, there was a great difference compared with In chemical composition obtained by PL properties, which shows that PL properties are not suitable for measuring the In chemical composition in InGaN/GaN MQWs.

**Keywords :** InGaN/GaN multiple quantum wells, HRXRD, Rutherford backscattering/channeling, photoluminescence (PL) properties

**PACC :** 7280E, 6855, 4180G, 7855E

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10375004, 10575007), and the Bilateral Cooperation between China and Flanders (Grant No. BIL04/05).

† Corresponding author. E-mail: sdyao@pku.edu.cn