

基于反射光谱的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 半导体薄膜厚度测量*

刘颖丹,苑进社,潘德芳

(重庆师范大学 物理学与信息技术学院 光学工程重点实验室,重庆 400047)

摘要 氮化镓薄膜是制造蓝紫光电子器件的理想半导体材料之一。三元合金 InGaN 薄膜是优良的全光谱材料而且不同 In 组分的 InGaN 薄膜叠层可用于研制高效率薄膜太阳能电池。精确测量 InGaN 薄膜的厚度有利于研制高效率的光伏器件。本文利用分光光度计实验研究了蓝宝石衬底金属有机物化学气相沉积(MOCVD)技术生长的镓镓氮(InGaN)半导体薄膜的反射光谱。基于薄膜干涉原理,计算分析了 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜的厚度,结果发现利用反射光谱中不同波峰、波谷确定的薄膜厚度相对偏差度的平均值为 4.42%。结果表明用反射光谱的方法测量 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜的厚度是可行的。

关键词 反射光谱; $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜;薄膜厚度测量

中图分类号:O471.1;O439

文献标识码:A

文章编号:1672-6693(2009)04-0098-03

GaN 和 ZnO 都属于宽禁带化合物半导体材料,在光电子学与微电子学领域有广泛的应用^[1]。三元化合物 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 随 In 摩尔组分的变化,其禁带宽度可在 0.7~3.4 eV 范围内调节,对应的光子波长为 365~1 771 nm,是比较理想的全光谱太阳能电池材料。近年来引起众多研究者关注的是不同组分 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜材料叠层结构,这种结构可大大提高太阳能电池的转换效率。因此,准确测量和确定 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 的组分及薄膜厚度,是进一步研发高效率 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜太阳能电池的需要。

目前,确定氮化物薄膜厚度的主要方法是 X 射线法和透射光谱方法。X 射线法通常包含 X 射线反射(XRR)、X 射线荧光(XRF)和 X 射线衍射(XRD)3种方法^[2]。XRR 方法用于厚度测量的最大优点是厚度测量与材料参数无关,所以该方法的应用最为普遍,XRF 和 XRD 方法用于厚度测量时都与材料参数、晶体质量、界面/表面质量等因素有关,均需准确的参考样品。透射光谱方法^[3]则要求薄膜是透明的,且透射率受衬底对光的吸收和反射的影响很大,所以限制了更准确地确定薄膜的厚度。江凤益等人^[4]利用卢瑟福背景散射获得 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 的组分和厚度,均是经验公式的模拟值。本文通过对金属有机物化学气相沉积方法(MOCVD)在蓝宝石衬底上生长的镓镓氮(InGaN)薄膜的反射光谱的研究分析,给出了 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜材料的组分确定方法和薄膜厚度的计算方法。

1 蓝宝石衬底异质外延 InGaN 薄膜的反射光谱

InGaN 异质外延使用的蓝宝石衬底是一种无色透明的晶体,异质外延生长的 InGaN 晶体薄膜通常也是一种透明的晶体。而作为全光谱太阳能电池薄膜材料的 InN/InGaN 则不是透明的晶体,颜色随 In 的组分增大而变深,不再适合用透射光谱测量薄膜厚度。本文提出基于反射光谱测量 InN/InGaN 薄膜的厚度,此方法简便易行适用范围广,且相对于透射光谱测试方法,结果有很大的改善。使用的分光光度计为日立 U-4100,在常温条件下对 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜进行反射光谱的测量,波长范围是 200~2 000 nm。测得的蓝宝石衬底异质外延 InN/InGaN 薄膜的反射光谱曲线见图 1。从反射光谱可以看出,实验样品在 $\lambda = 417$ nm 有很明显的吸收边,对应的带隙宽度为 2.9 eV。三元化合物 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 的 x 由 $E_0(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) = x E_0(\text{InN}) + (1-x) E_0(\text{GaN}) - bx(1-x)$,其中参数 $b = 1.02 \text{ eV}^{[5]}$ 。从而可知样品的 $x = 0.14$,即 $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{N}$ 。

反射光谱曲线中干涉峰的出现是薄膜干涉的结果。图 2 给出了反射光谱薄膜干涉的基本原理图。反射光 1 是入射光在晶体薄膜表面的反射光,而反射光 2 是入射光在 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜下表面反射并透射出上表面的光。当然一束入射光经过蓝宝石衬底 GaN 薄膜产生透射光的过程要更复杂一些,还存在

* 收稿日期 2009-05-06 修回日期 2009-06-29

资助项目:重庆师范大学博士启动基金资助项目(No. 06XLB008)

作者简介:刘颖丹,女,硕士研究生,研究方向半导体光电材料与器件,通讯作者,苑进社,E-mail:jesseyuan@cqnu.edu.cn

更多的光学过程,如 GaN 薄膜中的多次反射(两次以上)以及蓝宝石与 GaN 和空气两个界面的反射。GaN 薄膜中多次反射(两次以上)产生的反射光在整个反射光中所占的比例非常低,可以忽略。

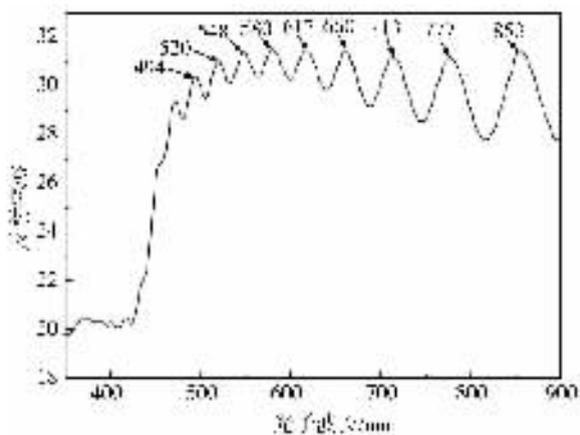


图1 蓝宝石衬底异质外延 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 的反射谱曲线

由于蓝宝石衬底比 GaN 薄膜厚得多, GaN 薄膜厚度通常在 $0.5 \sim 5.0 \mu\text{m}$ 之间,而蓝宝石衬底的厚度通常为 $330 \mu\text{m}$,因此蓝宝石两界面的反射光由于光程的成倍增加而变得非常微弱,也可以忽略。所以,反射光谱曲线的干涉峰主要是直接反射光和 GaN 薄膜中一次反射后的折射光的两种分量,直接反射光和经过一次反射后的折射光发生干涉的条件为

$$\frac{2n_2d}{n_1 \cos \theta} - 2d \tan \theta \sin i = \begin{cases} k\lambda & k=1, 2 \text{ (增强)} \\ (k-1/2)\lambda & k=1, 2 \text{ (减弱)} \end{cases} \quad (1)$$

其中空气的折射率为 $n_1 = 1.0$, GaN 的折射率 n_2 , d 为 GaN 层的厚度, i 为入射角, θ 为折射角。(1)式中的“增强”指的是直接反射光和 GaN 薄膜中经两次反射后的折射光同相位,相互增强,对应于反射光谱曲线的峰值;“减弱”对应于反射光谱曲线的谷值。

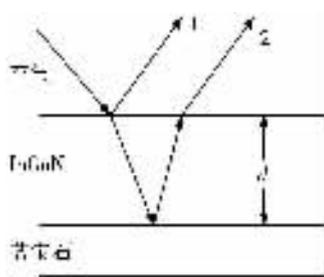


图2 反射干涉模型

可以简化成

$$2n_2d = \begin{cases} k\lambda & k=1, 2 \text{ (增强)} \\ (k-1/2)\lambda & k=1, 2 \text{ (减弱)} \end{cases}$$

如果知道 k 的具体数值,就可以利用干涉峰位的任意一对相邻的波峰和波谷对应的波长计算出薄膜的厚度 d 。由于每个干涉波峰和波谷所对应的 k 很难确定,且由于不同厚度的薄膜, k 值都不相同,因此通常采用消去 k 的方法求出薄膜的厚度。

首先假设在反射光谱的曲线上有一对相邻的波峰波谷,对应的光子波长分别为 λ_1 和 λ_2 ,且 $\lambda_1 < \lambda_2$,空气的折射率 $n_1 = 1.00$,由(1)式可得

$$2n_2d = k\lambda_1 \quad 2n_2d = (k-1/2)\lambda_2$$

引入常数 C_{thick} ,再利用实验测得的一对相邻的峰值和谷值对应的波长 λ_1 和 λ_2 可以确定薄膜的厚度 d 。

$$d = C_{\text{thick}} \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (2)$$

其中 $C_{\text{thick}} = 1/(4n_2)$ 。

已知铟的折射率 $n(0.7 \text{ eV}) = 2.25$,镓的折射率 $n(3.4 \text{ eV}) = 2.67$,根据 M. Y. Leung^[6-11]等人的计算,当 $x=0.14$ 时, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 的折射率 $n = 2.61$,只要从反射光谱曲线上得到一对相邻的波峰和波谷对应的波长,就容易由(2)式得到 InN/InGa_{1-x}N 薄膜的厚度。实际上,从反射光谱上可以得到多组波峰和波谷对应的波长,计算出多个 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜厚度的数值,然后求平均以减少测量误差。

表1给出了利用(2)式计算得到的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜厚度。薄膜厚度约为 1817 nm ,且不同波峰、波谷确定的薄膜厚度相对偏差度的平均值为 4.42% 。

表1 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 的薄膜厚度

λ_1/nm	λ_2/nm	d/nm	相对偏差度/%
481	494	1 751	3.64
505	520	1 677	7.69
532	548	1 745	3.95
563	580	1 840	1.27
599	617	1 967	8.24
640	660	2 023	11.34
688	713	1 880	3.44
746	777	1 791	1.42
816	853	1 802	0.81
902	948	1 780	2.02
1 011	1 071	1 729	4.86
平均值		1 817	4.42

2 薄膜厚度的计算方法

通常的反射光谱测量时 $i \rightarrow 0$, $\theta \rightarrow 0$,所以(1)式

3 结论

采用金属有机物化学气相沉积方法(MOCVD)

在蓝宝石衬底上生长的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜样品,利用分光光度计通过测量样品的反射光谱对 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 样品的组分进行了分析,并根据薄膜干涉原理给出了薄膜厚度的计算方法。结果表明,基于反射光谱确定 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 薄膜中的 In 组分和薄膜厚度是一种简便有效的方法。由于薄膜的折射率不只是入射光波长的函数,还与组元 x 有关,因此关于厚度测量的修正有待于进一步研究。

致谢:感谢光学工程重点实验室房燕老师提供的实验支持。

参考文献:

- [1] 秦国平,孔春阳,阮海波,等. 退火对 N-In 共掺杂 p 型 ZnO 薄膜结构和光电性质的影响 [J]. 重庆师范大学学报(自然科学版) 2008, 25(1) 64-66.
- [2] Terada S, Murakami H, Nishihagi K, et al. Thickness and Density Measurement for New Materials with combined X-ray Technique(ASMC) [C]. Institute of Electrical and Electronics Engineers :America, 1999.
- [3] 张进城,郝跃,李培成,等. 基于透视谱测薄膜厚度 [J]. 物理学报 2004, 53(4) 327-329.
- [4] 江风益,李述体,王立,等. 金属有机物化学气相沉积生长 InGaN 薄膜的研究 [J]. 光学学报, 2001, 21(12) :

- 1463-1466.
- [5] 张永刚. 基于反射谱的 GaN 薄膜厚度在线测量系统 [J]. 电子质量 2004(12) 56-57.
- [6] Mandy M Y L, Aleksandra B D, Herbert E L. Refractive index of InGaN/GaN quantumwell [J]. J Appl Phys, 1998, 84 6312-6317.
- [7] Wright A F, Nelson J S. Bowing parameters for zinc-blende $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$ and $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ [J]. Appl Phys Lett, 1995, 66 : 3051-3054.
- [8] Shaffer P T B. Refractive index, dispersion, and birefringence of silicon carbide polytypes [J]. Applied Optics, 1971, 10 :1034-1036.
- [9] Yu G, Wang G, Ishikawa H, et al. Optical properties of wurtzite structure GaN on sapphire around fundamental absorption edge(0. 78-4. 77eV) by spectroscopic ellipsometry and the optical transmission method [J]. Appl Phys Lett, 1997, 70 3209-3212.
- [10] Feng G, Zhu J J, Shen X M, et al. Thickness measurement of GaN epilayer using high resolution X-ray diffraction technique [J]. Science in China(Series G) 2003, 46 437-440.
- [11] Sanford A, Munkholm A, Krames M R, et al. Refractive index and birefringence of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ films grown by MOCVD [J]. Phys stat Sol 2005(2) 2783-2786.

Thickness Measurement of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ Semiconductor Film Based on Reflection Spectra

LIU Ying-dan, YUAN Jin-she, PAN De-fang

(Key Lab. of Optics and Engineering, College of Physics and Information Technology, Chongqing Normal University, Chongqing 400047, China)

Abstract : Gallium Nitride (GaN) film is one of the most promising semiconductor materials for the fabrication of optoelectronics components in the blue ultraviolet spectral region. The ternary alloy InGaN is one of the very good full-spectrum materials and the superposition of InGaN films with different in composition can greatly improve the conversion efficiency of solar cells. Accurate measurement of InGaN film thickness merits fabricate high efficiency photovoltaic devices. The reflectance spectra of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ semiconductor films grown by metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD) are experimentally investigated by using spectrophotometer in order to measure the thickness of the film. Based on the the principle of film interference, the thickness of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ film is calculated by analyzing the experimental results. It is found that the relative deviation value of the $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ film thickness is 4. 42% on an average when the thickness is calculated with different peak and valley of the reflectance spectra. The results show the thickness measurement with the reflectance spectra method being feasible.

Key words : reflection spectra ; $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ thin film ; measurement of film thickness

(责任编辑 欧红叶)