

## GaN 外延膜的红外椭偏光谱研究

王 静<sup>1,2</sup>, 李向阳<sup>1</sup>, 刘 骥<sup>2</sup>, 黄志明<sup>3</sup>

(1. 中国科学院上海技术物理研究所 传感技术国家重点实验室, 上海 200083;

2. 山东大学 信息科学与工程学院, 山东 济南 250100;

3. 中国科学院上海技术物理研究所 红外物理国家重点实验室, 上海 200083)

**摘要:**利用红外椭偏光谱法(IRSE)对生长在蓝宝石衬底上的非故意掺杂的 GaN 外延膜进行了研究。通过对椭偏光谱的理论计算,拟合了本征 GaN 中的声子振动参量和等离子振荡的频率及阻尼常量,并由此得到了各向异性的折射率和消光系数的色散曲线以及载流子浓度和迁移率。将得到的电学参数同霍尔测量结果进行了比较。

**关键词:**氮化镓; 红外椭偏光谱; 折射率; 载流子浓度; 迁移率

**中图分类号:** TN21 **文献标识码:** A **文章编号:** 1007-2276(2005)05-0544-04

## GaN epilayer by infrared spectroscopic ellipsometry

WANG Jing<sup>1,2</sup>, LI Xiang-yang<sup>1</sup>, LIU Ji<sup>2</sup>, HUANG Zhi-ming<sup>3</sup>

(1. State Key Laboratories of Transducer Technology, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China ; 2. School of Information Science and Engineering, Shandong University, Jinan 250100, China ; 3. National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

**Abstract:** Infrared spectroscopic ellipsometry from 9.5 to 12.5  $\mu\text{m}$  is used to study the nominally undoped GaN on sapphire. The parameters of the lattice vibration oscillators and the plasma are obtained by fitting with the experimental data. Then the anisotropic refractive index is calculated. Further-more, the carrier concentration and the electron mobility from the plasma frequency and the damping constant are derived. The result is compared with that of the Hall measurement.

**Key words:** GaN; Infrared spectroscopic ellipsometry(IRSE); Refractive index; Carrier concentration; Electron mobility

### 0 引言

GaN 和 III 族氮化物材料是近年来光电子领域的研究热点, GaN 材料在生长方面有了重大突破<sup>[1]</sup>, 在基于 GaN 材料的高功率 LED、脉冲连续 LD 以及盲

阳紫外探测器方面也取得了显著成绩<sup>[2]</sup>。GaN 材料折射率和消光系数色散关系的研究对 GaN 基器件尤其是考虑多波段垂直组合的紫外红外复合探测器的研制具有十分重要的意义。虽然有部分研究人员已经对 GaN 红外光学性质进行了探讨, 但这些研究多采用体

收稿日期: 2004-12-27; 修订日期: 2005-03-05

作者简介: 王静(1979-), 女, 山东烟台人, 硕士, 研究方向为半导体光学性质。

材料样品<sup>[3]</sup>或基于 GaN 外延层的各向同性,且多采用红外反射<sup>[4,5]</sup>或拉曼散射<sup>[6]</sup>的实验方法,得到的实验结果也不尽相同。椭圆偏振法具有测量精度高、非损伤性以及能区分不同物理效应等优点。通过实验测量和数据拟合,不但可以得到 GaN 材料的特征,还可以得到电学方面的信息。鉴于测量 GaN 载流子浓度的传统霍尔方法中,欧姆接触问题对测量精度的影响较严重,采用红外椭圆偏光光谱方法研究 GaN 材料的电学性质具有其特有的优势。

本文报道了生长在蓝宝石衬底上的非故意掺杂纤锌矿 GaN 外延膜在 9.0~12.6 μm 中红外波段的椭圆偏光光谱,通过拟合 GaN 薄膜的晶格振动和载流子散射参数,经过计算得到了材料的载流子浓度和迁移率以及折射率和消光系数在此波段范围内的色散关系,并与其他研究成果进行了比较。据悉,这一波段的本征 GaN 材料的光学参数的色散曲线尚未见报道。

## 1 实验

实验样品是在单面抛光的蓝宝石衬底(0001面)上,采用金属有机化学汽相沉积法(MOCVD)制备的非故意掺杂纤锌矿结构 GaN 外延薄膜,其 *c* 轴沿生长方向垂直于衬底表面。样品是在室温下由同时旋转起偏器和检偏器变入射角自动红外椭圆偏仪进行研究<sup>[7]</sup>,其旋转比例为 1:1,测量入射角在 20~90 °C 范围内变化。测量光谱范围为 9.0~12.6 μm 的中红外波段,入射角为 68 °C。

## 2 结果与讨论

椭圆偏振测量术的基本思想是:利用偏振态的 *P* 光和 *S* 光在界面或薄膜上的反射或投射时出现的偏振光振幅和相位的改变来计算所测系统的基本光学参数。其基本方程式是<sup>[8]</sup>:

$$r_p/r_s = \tan \Psi e^{i\Delta} \quad (1)$$

式中  $r_p$  ( $r_s$ ) 为偏振光在与入射面平行(垂直)方向的非涅耳反射系数;  $\tan \Psi$  为  $E_p$  矢量反射波和  $E_s$  矢量反射波的相对振幅衰减;  $\Delta$  给出了反射引起的两个电矢量间的相位差,测量得到的  $\Psi$  和  $\Delta$  是光波长和入射角度的函数。通过测量不同波长下的  $\Psi$  和  $\Delta$  就可

以得到相应波段被测样品的光学常数谱,而不必引用 *K-K* 关系。在 9.0~12.6 μm 范围内,一方面蓝宝石和 GaN 都有强烈的吸收,且受到反射和散射的作用,光到达蓝宝石背面使能量有了很大衰减;另一方面,蓝宝石背面没有抛光,光入射到蓝宝石背面时发生漫反射。由以上两方面原因,蓝宝石的各向异性影响很小,且蓝宝石背面的影响可以忽略。由于 GaN 是非故意掺杂的,所以表面层的影响可以忽略。采用三相模型(空气-GaN-衬底)对实验数据进行拟合。

由于在拟合过程中,将蓝宝石作为各向同性的体材料处理,所以采用了 Schubert 等人报道的关于蓝宝石晶格振动的参数数据<sup>[9]</sup>。

GaN 外延层吸收由两类散射引起。对由晶格振动引起的声子吸收,采用经典的洛仑兹谐振模型:

$$\omega = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{s_j \omega_{o,j}^2}{\omega_{o,j}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j} \quad (2)$$

式中  $\omega_{o,j}$ 、 $s_j$  和  $\gamma_j$  分别为 GaN 第 *j* 个横光学声子模(TO)的振动频率、振子强度和阻尼因子;  $\varepsilon_\infty$  是高频介电常量,包含了所有带间跃迁对介电函数的贡献,取 5.35<sup>[3]</sup>;第二项为与晶格振动相对应的光学声子的贡献。

由于本征 GaN 呈现弱 *n* 型载流子导电,所以需考虑自由载流子吸收效应。采用德鲁德(Drude)模型来描述这种效应:

$$\varepsilon = \varepsilon_\infty + \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma_p} \quad (3)$$

式中  $\omega_p$  为等离子体激元振荡频率;  $\gamma_p$  为阻尼因子。

$$\omega_p = \frac{4\pi n e^2}{m^*}, \quad \gamma_p = \frac{e}{m^* \mu}$$

式中  $n$  为自由载流子浓度;  $e$  为电子电荷;  $m^*$  为电子有效质量;  $\mu$  为载流子迁移率。由拟合得到的  $\omega_p$  和  $\gamma_p$  可以得到  $n$  和  $\mu$ 。在数据处理中,取  $m^* = 0.2m_0$ <sup>[3]</sup>。

拟合的最佳结果是使  $\sigma$  值达到最小<sup>[10]</sup>:

$$\sigma = \frac{1}{N-P-1} \sum_{j=1}^N \left[ \left( \tan \Psi_j^{\text{exp}} - \tan \Psi_j^{\text{calc}} \right)^2 + \left( \cos \Delta_j^{\text{exp}} - \cos \Delta_j^{\text{calc}} \right)^2 \right] \quad (4)$$

式中  $N$  是拟合时采用的实验数据点的数目;  $P$  是拟合过程中模型参数的数目。得到的  $\Psi$  和  $\Delta$  的拟合图形如图 1 所示。

拟合所得的晶格振动参数和载流子散射参数如表 1 所示。

表 1 拟合得到的 GaN 薄膜红外椭偏参数  
Tab.1 Fitted values of the parameters of IRSE

	$\epsilon_\infty$	$\omega_0/\text{cm}^{-3}$	$s$	$\gamma$	$\omega_p^{[a]}/\text{cm}^{-3}$	$\gamma_p^{[a]}$
o	5.35	565	4.6	20	464	277
e	5.35	540	5.1	25	464	277

[a] 没有显示各向异性

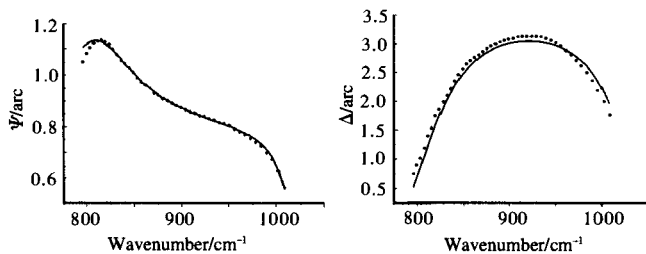


图 1 GaN 薄膜红外椭偏光谱的实验数据(圆点)和理论拟合曲线(实线)

Fig.1 Experimental (dotted lines) and calculated (solid lines) IRSE  $\Psi$  and  $\Delta$

为了与所测的载流子参数比较,对样品进行了霍尔测试,表 2 是红外椭偏与霍尔所测的载流子散射参数。由表 2 可以看出,载流子浓度数值在同一数量级,而载流子迁移率:

$$\mu_{\text{IRSE}} = 0.55\mu_{\text{Hall}}$$

表 2 IRSE 和 Hall 方法得到的载流子浓度和迁移率  
Tab.2 Values of carrier concentration and mobility obtained by IRSE and Hall respectively

	IRSE	Hall
$n/\text{cm}^{-3}$	$4.78 \times 10^{17}$	$1.5 \times 10^{17}$
$\mu/\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$	168	306

李志锋<sup>[5]</sup>和 Kozawa<sup>[6]</sup>等人分别在 GaN 的红外反射实验和拉曼光谱实验中观察到了这种现象,李志锋

等给出了定性解释:由于在红外入射条件下,载流子处于非稳态下,将会有部分载流子处于更高的能量状态下,高能态下载流子弛豫时间  $\tau$  小于稳态的时间,迁移率  $\mu \propto \tau$ ,所以在红外拉曼散射和反射实验中所测得的载流子迁移率要小于霍尔测量的数值。

通过拟合得到复折射率后,可得 GaN 外延层的折射率  $n$  和消光系数  $k$  的色散曲线。如图 2 所示,其中 0.4~1.2  $\mu\text{m}$  的一段曲线取自 Lian 等人<sup>[11]</sup>的研究结果。图中  $n_o, n_e$  分别表示材料的寻常光与反常光的折射率,  $k_o, k_e$  表示寻常光与反常光的消光系数。需要说明的是,参考文献[11]中的模型忽略了消光系数  $k$  的影响,即  $k=0$ 。而文中实验的光谱范围,所关心的材料有较强的吸收。经过简单计算不难发现,材料在这一波段内的吸收系数高达  $10^3 \text{ cm}^{-1}$  的量级。

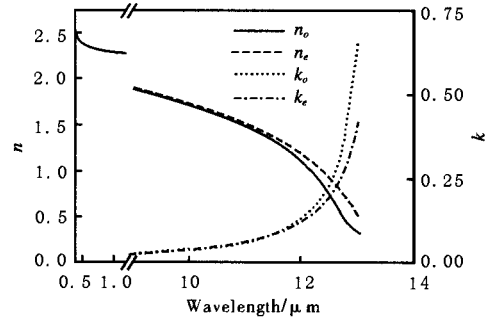


图 2 折射率与消光系数(各向异性)色散曲线  
Fig.2 Curves of refractive index and extinction coefficient

由图 2 可以看出,大约在 12  $\mu\text{m}$  以后折射率出现  $n < 1$  的情况,即介质中的光速大于真空中的光速。实际上,只要考虑到这里讨论的光速是光波的相速度而不是群速度,就可以解释这种现象了。由于反常色散区的严重吸收,不同波长的单色光在传播中弥散严重,群速度已不再有实际意义了<sup>[12]</sup>。

### 3 结论

本文对蓝宝石衬底上非故意掺杂的 GaN 外延膜用红外椭偏方法进行了研究,通过拟合得到了其晶格振动参数、载流子浓度及迁移率。与霍尔测量相比较,发现两者载流子浓度数值相近,而红外椭偏迁移率与霍尔迁移率相差二分之一。可见,红外椭偏方法也是表征 GaN 材料的有力手段之一。同时经过计算还得

到了 GaN 薄膜 9.0~12.6  $\mu\text{m}$  波段的折射率和消光系数。这一波段的本征 GaN 材料的光学参数的色散曲线尚属首次报道。显然,对于目前获得的本征 GaN 材料,其在本文关心的这一波段内有较高的吸收系数。这些结果对红外紫外多波段集成的探测器研制具有重要的参考意义。

#### 参考文献:

- [1] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S, et al. InGaN multi-quantum-well structure laser diodes grown on  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  substrates[J]. Appl Phys Lett, 1996, 68: 2105-2107.
- [2] Monemar B. III-V Nitrides-Important future electronic materials[J]. Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 1999, 10: 227-254.
- [3] Perlin P, Camassel J, Knap W, et al. Investigation of longitudinal-optical phonon-plasmon coupled modes in highly conducting bulk GaN[J]. Appl Phys Lett, 1995, 67: 2524-2526.
- [4] Barker A S, Jr, Ilegems M. Infrared lattice vibrations and free-electron dispersion in GaN[J]. Phys Rev B, 1973, 7: 743-750.
- [5] Li Z F, Lu W, Ye H J, et al. Carrier concentration and mobility in GaN epilayers on sapphire substrate studied by infrared reflection spectroscopy[J]. J Appl Phys, 1999, 86: 2691-2695.
- [6] Kozawa T, Kachi T, Kano H, et al. Raman scattering from LO phonon-plasmon coupled modes in gallium nitride[J]. J Appl Phys, 1994, 75: 1098-1101.
- [7] Herzinger C M, Johs B, McGahan W A, et al. Ellipsometric determination of optical constants for silicon and thermally grown silicon dioxide via a multi-sample, multi-wavelength, multi-angle investigation[J]. J Appl Phys, 1998, 83: 3323-3336.
- [8] Azzam R M A, Bashara N M. Ellipsometry and Polarized Light[M]. North-Holland: Amsterdam, 1997. 283-288.
- [9] Schubert M, Tiwald T E, Herzinger C M. Infrared dielectric anisotropy and phonon modes of sapphire[J]. Phys Rev B, 1999, 61: 8187-8201.
- [10] Kawashima T, Yodhikawa H, Adachi S, et al. Optical properties of hexagonal GaN[J]. J Appl Phys, 1997, 82(7): 3528-3535.
- [11] Lian C X, Li X Y, Liu J. Optical anisotropy of wurtzite GaN on sapphire characterized by spectroscopic ellipsometry[J]. Semicond Sci Technol, 2004, 19: 417-420.
- [12] Jenkins F A, White H E. Fundamentals of Optics[M]. New York: Mc Graw-Hill, 1976. 487-488.

(上接第 543 页)

来源主要是频谱分析仪的内部噪声及数值拟合带来的。同时在推导光脉冲的频谱时,假设相位噪声和振幅噪声是小量且不相关,用于测量时基抖动较大的脉冲时会引入较大的误差。在脉冲的时基抖动很小,而且重复频率较低时,可用谐波分析法来测量其时基抖动和振幅噪声。

#### 参考文献:

- [1] Yoshida E, Nakazawa M. Measurement of the timing jitter and pulse energy fluctuation of PLL regeneratively model-locked fiber-laser[J]. IEEE Photon Technol Lett, 1999, 11: 548-550.
- [2] Shen T M. Timing jitter in semiconductor laser under pseudorandom word modulation[J]. J of Lightwave Technol, 1989, 17: 1394-1399.
- [3] Tsuchida H. Time-domain measurement of pulse-timing fluctuations in a model-locked laser diode[J]. IEEE Photon Technol Lett, 2002, 14: 513-515.
- [4] David A Leep. Spectral measurement of timing jitter in gain-semiconductor lasers[J]. Appl Phys Lett, 1992, 60(20): 2451-2453.
- [5] WANG Yun-cai. Measurement of timing jitter in a pulse LD with phase noise and harmonic analysis methods[J]. Journal of Optoelectronics-Laser (王云才. 用相位噪声和谐波分析法测量激光脉冲的时基抖动. 光电子·激光. 2003, 14(9): 961-964.
- [6] Andrew Finch, ZHU Xiao-nong, Peter N Kean. Noise characterization of mode-locked color-center laser sources[J]. IEEE J of Quantum Electron, 1990, 26(6): 1115-1123.
- [7] PENG Peng-chun, Tseng Hong-Yih, Sien Chi. A Tunable dual-wavelength erbium-doped fiber ring laser using a self-seeded Fabry-Pérot laser diode[J]. IEEE Photon Technol Lett, 2003, 15(5): 661-663.
- [8] ZHANG M, WANG D N, LI H, et al. Tunable dual-wavelength picosecond pulse generation by the use of two Fabry-Pérot laser diodes in an external injection seeding scheme[J]. IEEE Photon Technol Lett, 2002, 14(1): 92-94.
- [9] Yasuhiro Matsui, Satoko Kutsuzawa, Shin Arahira, et al. Generation of wavelength tunable gain-switched pulses from FP MQW lasers with external injection seeding[J]. IEEE Photon Technol Lett, 1997, 9(8): 1087-1089.