

GaN{11-22}半极性面上生长InGaN/GaN 多量子阱的研究

杨国锋 朱华新 郭颖 李果华* 高淑梅

江南大学理学院, 江苏 无锡 214122

摘要 利用选择性横向外延技术生长{11-22}半极性面Ga_N模板,并利用半极性面模板生长InGa_N/Ga_N多量子阱结构。结果表明,生长出的Ga_N模板由半极性面{11-22}面和 c 面组成,多量子阱具有390 nm和420 nm的双峰发光特性,局域阴极发光(CL)测试表明390 nm附近的发光峰来源于半极性面上的量子阱发光,而420 nm左右的发光峰源于 c 面量子阱发光。 c 面量子阱发光相对于斜面量子阱发光发生显著红移是因为在选择性横向外延生长过程中,In组分相比Ga较易从掩模区域向窗口中心区域迁移,形成了中心高In组分的 c 面量子阱,而半极性面上InGa_N/Ga_N多量子阱量子限制斯塔克效应相比于极性面会减弱,此外,相同生长条件下半极性面的生长速率低于极性 c 面的生长速率。

关键词 光学器件;选择性横向外延;Ga_N半极性面;多量子阱;极化效应

中图分类号 TN304.23 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/LOP51.022302

Study on the Growth of InGa_N/Ga_N Multiple Quantum Wells on Ga_N {11-22} Semipolar Plane

Yang Guofeng Zhu Huaxin Guo Ying Li Guohua Gao Shumei

School of Science, Jiangnan University, Wuxi, Jiangsu 214122, China

Abstract Selective area epitaxy is applied to grow Ga_N {11-22} semipolar plane template, followed by InGa_N/Ga_N multiple quantum wells (MQWs) growth. The results indicate that the Ga_N template is composed of the {11-22} side facet and planer c plane, and the MQWs show dual-color emission. Local cathodoluminescence reveals that the 390 nm emission peak originates from the MQWs on semipolar plane, while the 400 nm emission peak results from the MQWs on c plane. The large red-shift in emission wavelength for c plane MQWs compared with that of {11-22} semipolar plane MQWs is due to the indium enrichment originating from additional source supply due to the surface migration effect and lateral vapor-phase diffusion during selective area epitaxy. Another important reason is the reduced polarization effect InGa_N/Ga_N MQWs on semipolar plane. At the same time, the growth rate of the semipolar plane is lower than that of the polar c plane under the same conditions.

Key words optical devices; selective area epitaxy; Ga_N semipolar plane; multiple quantum wells; polarization effect

OCIS codes 230.0250; 230.3670; 230.5590

1 引言

InGa_N/Ga_N多量子阱结构虽然在蓝光和绿光波段的光电器件应用方面得到了广泛研究^[1-7],但是还存在很多亟待解决的难题,例如高In组分材料的生长、同质衬底的生长以及高质量的晶体结构^[8]。选择性外延生长^[9]可以有效改善晶体材料的位错密度从而获得高质量的Ga_N材料,并成为了III族氮化物的研究热点。此

收稿日期: 2013-09-02; 收到修改稿日期: 2013-10-21; 网络出版日期: 2014-01-10

基金项目: 江苏省自然科学基金(11074280)

作者简介: 杨国锋(1985-),男,讲师,主要从事III-V族宽禁带半导体光电材料和器件等方面的研究。

E-mail: gfyang@jiangnan.edu.cn

*通信联系人。E-mail: guohuali@jiangnan.edu.cn

后这一技术又被应用于半极性和非极性材料的生长^[10-11]。

金属氧化物化学气相沉积(MOCVD)中的选择性横向外延生长方法是在 GaN 材料上先沉积 SiO₂ 或者 SiN_x 掩模图形层, 然后进行光刻和湿法腐蚀制备一些点状或者槽状的图形, 最后在图形窗口区域进行 GaN 的二次外延^[12-14]。这一技术后来衍生为通过控制二次外延的生长条件和模板的形状形成一些半极性的 GaN 微结构^[15]。利用这些微结构作为模板可以后续生长一些光电器件结构。

另外, 现在的商业化 InGaN/GaN 基 LED 都是在极性 *c* 面上生长的, 普遍存在着较强的自发极化和压电极化效应, 从而导致量子阱能带的倾斜, 形成了内建电场, 使得电子和空穴波函数空间上分离开, 限制了量子阱的发光效率。同时, 量子阱结构中的量子限制斯塔克效应会导致发光峰位随着注入电流的增大而蓝移。这些问题导致高效率的长波长 *c* 面 GaN 基 LED 的发展受到限制。为了解决这些问题, 非极性面和半极性面上的 LED 生长受到了广泛关注^[16]。相比于 *c* 面生长的光电器件, 非极性面和半极性面上的器件能够获得更高的内量子效率。虽然非极性和半极性 GaN 衬底材料的生长还不成熟, 但是很多研究者已经致力于这种新颖结构的研究, 希望能够从成本上和器件效率上权衡发展, 获得成本低廉、效率优异的光电子器件。

本文通过横向选择性外延生长法沿 [1-100] 方向生长出 GaN{11-22} 半极性面, 并利用此半极性面作为模板生长出具有双峰发光的 InGaN/GaN 多量子阱(MQW)结构。

2 实验

实验选用 2 μm 厚的 GaN 衬底作为生长模板, 然后利用等离子体增强化学气相沉积(PECVD)在 GaN 表面沉积 200 nm SiO₂ 掩模层, 先后通过光刻和湿法腐蚀沿 [1-100] 晶体方向将 SiO₂ 掩模层制备成以 4 μm 周期排列的槽状窗口区域, 相邻窗口之间的距离为 8 μm。图 1(a) 为掩模的光学显微镜图, (b) 为剖面图。

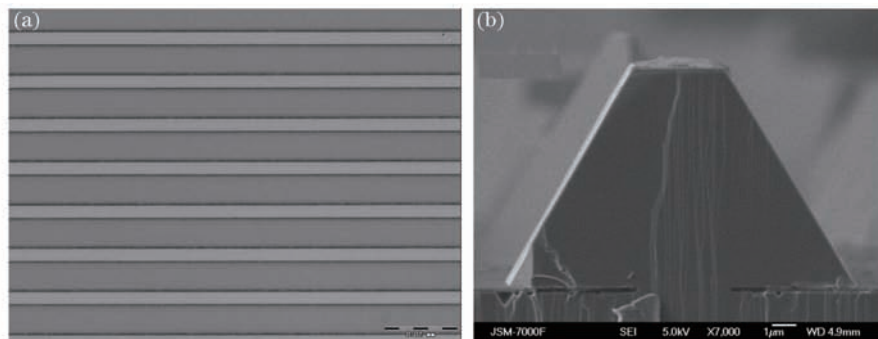


图 1 (a) 沿 [1-100] 方向湿法腐蚀形成的槽状模板; (b) 在 GaN{11-22} 半极性模板上生长 InGaN/GaN 多量子阱的 SEM 剖面图
Fig.1 (a) Micrograph of stripe GaN mask along [1-100] direction; (b) cross-sectional SEM image of InGaN/GaN multiple quantum wells on GaN {11-22} semipolar plane

然后将此模板放在 MOCVD 腔体中进行二次外延, 控制 GaN 生长时间为 30 min, 生长温度和压强分别为 1010 °C 和 4×10^4 Pa。紧接着进行五个周期 InGaN/GaN 多量子阱的生长: GaN 垒层生长温度为 825 °C, InGaN 阱层生长温度为 745 °C, 反应腔体压强控制在 4×10^4 Pa。垒层生长时间 390 s, 三甲基镓(TMGa) 流量为 280 sccm(标准状况下毫升每分); 阱层生长时间 110 s, 三甲基铟(TMIn) 流量设置为 800 sccm, 三甲基镓(TMGa) 流量为 280 sccm。量子阱生长过程中 NH₃ 始终保持在 17 L。理论上控制 InGaN 阱层的生长厚度为 3 nm, GaN 垒层的厚度为 7 nm。最后在量子阱表面覆盖一层 20 nm 盖帽层。

实验采用 JEOL JSM-7000F 场发射扫描电镜(SEM)对样品进行形貌分析。样品的光致发光(PL)谱测试采用 Renishaw inVia 系统, 激发光源为 325 nm He-Cd 激光器。阴极荧光(CL)谱是在扫描显微镜上装配 mono-CL3 荧光探头而获得的。

3 结果与讨论

图 1 (b) 是沿 [1-100] 方向形成的 GaN 半极性微面剖面 SEM 图。从图中可以看出, 生长出的 GaN 半极性面呈梯形剖面, 斜面与底面夹角约为 58°, 梯形结构由斜面 {11-22} 面和平面 (0001) 面组成。形成这种结构的原因是选择性横向外延生长过程中 GaN 半极性面的形成取决于表面能和表面原子的稳定性^[17]。[1-100] 方

向形成的 GaN 半极性面主要倾向于形成稳定的(0001)面和{11-22}面。紧接着利用梯形模板进行多量子阱的生长,就获得了{11-22}半极性面上的 InGaN/GaN 结构。

图 2 是{11-22}半极性面上生长 InGaN/GaN 多量子阱的室温 PL 图。从图中可以看出,除了在 365 nm 左右出现 GaN 衬底的发光峰以外,多量子阱在 390 nm 和 420 nm 附近出现了两个发光峰。为了研究这两个发光峰的起源,利用 CL 测试对量子阱的局域发光进行了研究。如图 3(a)中标志所示,在多量子阱上选取了斜面和顶面两个点进行了点发光测试。从图中可以看到,斜面的点发光除了 GaN 衬底发光外,量子阱发光波长在 390 nm 附近,顶面的量子阱发光峰在 420 nm 左右[图 3(d)]。我们对整个区域进行了 390 nm 和 420 nm 的单色扫描,分别如图 3 (b)和(c)所示,结果证明了斜面区域发光主要是 390 nm 左右的发光,而顶面发光在 420 nm 左右。

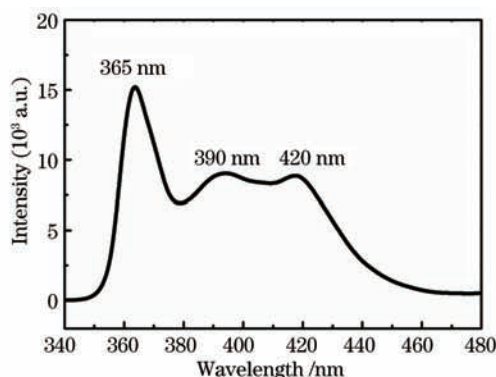


图 2 GaN{11-22}半极性面上 InGaN/GaN 多量子阱的室温 PL 谱

Fig. 2 Room-temperature PL spectrum of InGaN/GaN multiple quantum wells grown on {11-22} semipolar plane

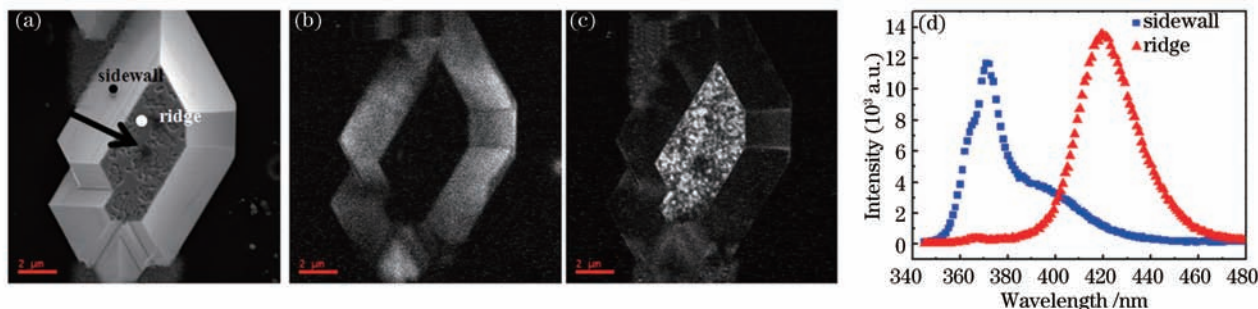


图 3 (a) GaN 半极性面生长 InGaN/GaN 多量子阱平面 SEM 图;(b) SEM 对应区域的 390 nm 单色 CL 谱;(c) SEM 对应区域的 420 nm 单色 CL 谱;(d) GaN 面上 InGaN/GaN 多量子阱斜面和顶点的局域点 CL 谱

Fig.3 (a) SEM image of InGaN/GaN MQWs on GaN semipolar plane. Monochromatic CL image of the MQWs for (b)

$\lambda = 390 \text{ nm}$ and (c) $\lambda = 420 \text{ nm}$. (d) CL spectra of the MQWs at the spots of sidewall and ridge areas

对此量子阱进行了 CL 线扫描,扫描方向如图 3(a)中箭头方向所示。图 4 是 GaN{11-22}半极性面多量子阱的 CL 线扫描谱图。从图中可以看出,在{11-22}半极性面上 InGaN/GaN 多量子阱从斜面向顶点扫描的过程中,发光峰会从 390 nm 变化到 420 nm,这一结果也验证了图 3 中两个发光峰的来源。同时可以发现多量子阱顶面的发光峰相比于斜面发生了约 30 nm 的红移,这主要是由于 MOCVD 选择性横向生长过程中原子迁移引起的。在选择性横向向外延生长过程中,源材料从掩模区域向生长区域的迁移过程(MMR)^[18-19]占据主要作用,III 族原子迁移长度和扩散长度的顺序是 In>Ga>Al^[15],所以在原子迁移过程中,In 组分从斜面向顶面的迁移高于 Ga 原子,形成 c 面的高浓度 In 组分。同时因为半极性面上极化强度的减弱使得 InGaN/GaN 中量子限制斯塔克效应降低,从而也会引起{11-22}面上量子阱的发光峰相对于(0001)面量子阱发生蓝移^[20]。此外,在实际的生长过程中,在相同的生长条件下半极性面量子阱的生长速率低于极性 c 面的生长速率,从而造成斜面 InGaN 阱层的厚度小于平面阱层的厚度,这一现象会引起斜面量子阱中量子限制效应增大,发光峰位蓝移。

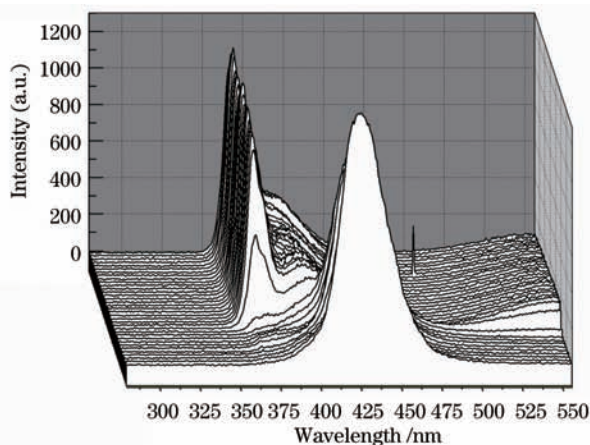


图4 GaN半极性面上InGaN/GaN多量子阱从斜面底端向中心顶点的CL线扫描谱

Fig.4 CL linescans from the sidewall to the ridge for InGaN/GaN MQWs grown on GaN semipolar plane

4 结 论

利用选择性横向外延技术生长{11-22}半极性面Ga₂N模板,并利用此模板生长InGaN/GaN多量子阱结构。生长出的Ga₂N模板由半极性面{11-22}面和c面组成,具有双峰发光特性,局域CL测试表明半极性面上量子阱发光峰在390 nm左右,c面量子阱发光峰在420 nm左右。c面量子阱发光相对于斜面量子阱发光发生显著红移主要是由于选择性横向外延生长过程中,In组分相比Ga较易从掩模区域向窗口中心区域迁移,形成了中心c面量子阱中In组分的富集,另一个原因是半极性面上InGaN/GaN多量子阱量子限制斯塔克效应相比于极性面会减弱,同时半极性和c面量子阱生长速率的不同会造成量子限制效应不同。

参 考 文 献

- 1 S Nakamura, T Mukai, M Senoh, *et al.*. Candela-class high-brightness InGaN/AlGaIn double-heterostructure blue-light-emitting diodes [J]. *Appl Phys Lett*, 1994, 64(13): 1687-1689.
- 2 A K Viswanath, J I Lee, S T Kim, *et al.*. Growth of good quality InGa₂N multiple quantum wells by MOCVD [J]. *J Cryst Growth*, 2004, 260(3-4): 322-326.
- 3 K S Ranaiah, Y K Su, S J Chang, *et al.*. Studies of InGa₂N/GaN multiquantum-well green-light-emitting diodes grown by metalorganic chemical vapor deposition [J]. *Appl Phys Lett*, 2004, 85(3): 401-403.
- 4 Liang Liang, Niu Pingjuan, Yu Liyuan. Influence of electron beam irradiation on GaN-based blue LED [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2010, 47(10): 102301.
梁亮,牛萍娟,于莉媛.电子束辐照对GaN基蓝光LED性能的影响[J].*激光与光电子学进展*, 2010, 47(10): 102301.
- 5 Chen Yingliang, Lü Yijun, Gao Yulin, *et al.*. Photoelectric properties of alternating-current light-emitting diodes [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, 30(12): 3586-3591.
陈莹亮,吕毅军,高玉琳,等.交流发光二极管光电特性的研究[J].*光学学报*, 2010, 30(12): 3586-3591.
- 6 Chen Jian, Wang Qingkang, Li Haihua. Effect of random perturbation of structural parameters on the light extraction efficiency of light emitting diodes with photonic crystal [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, 30(1): 233-236.
陈健,王庆康,李海华.光子晶体结构参数的随机扰动对光子晶体LED出光效率的研究[J].*光学学报*, 2010, 30(1): 233-236.
- 7 Liu Junlin, Qiu Chong, Jiang Fengyi. Research of passivation and anti reflecting layer on GaN based blue LED on silicon substrate [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, 30(10): 2978-2982.
刘军林,邱冲,江风益.Si衬底GaN基蓝光LED钝化增透膜研究[J].*光学学报*, 2010, 30(10): 2978-2982.
- 8 M D McCluskey, L T Romano, B S Krusor, *et al.*. Phase separation in InGa₂N/GaN multiple quantum wells [J]. *Appl Phys Lett*, 1998, 72(14): 1730-1732.
- 9 H Miyake, A Motogaito, K Hiramatsu, *et al.*. Effects of reactor pressure on epitaxial lateral overgrowth of GaN via low-pressure metalorganic vapor phase epitaxy [J]. *Jpn J Appl Phys*, 1999, 38(9): L1000-L1002.
- 10 A E Romanov, T J Baker, S Nakamura, *et al.*. Strain-induced polarization in wurtzite III-nitride semipolar layers [J]. *J*

- Appl Phys, 2006, 100(2): 023522.
- 11 S E Brinkley, Y D Lin, A Chakraborty, *et al.*. Polarized spontaneous emission from blue-green m-plane GaN-based light emitting diodes [J]. Appl Phys Lett, 2011, 98(1): 011110.
 - 12 X Zhang, P D Dapkus, D H Rich. Lateral epitaxy overgrowth of GaN with NH₃ flow rate modulation [J]. Appl Phys Lett, 2000, 77(10): 1496-1498.
 - 13 T S Zheleva, O H Nam, W M Ashmawi, *et al.*. Lateral epitaxy and dislocation density reduction in selectively grown GaN structures [J]. J Cryst Growth, 2001, 222(4): 706-718.
 - 14 P de Mierry, N Kriouche, M Nemoz, *et al.*. Semipolar GaN films on patterned r-plane sapphire obtained by wet chemical etching [J]. Appl Phys Lett, 2010, 96(23): 231918.
 - 15 T Tsuchiya, J Shimizu, M Shirai, *et al.*. InGaAlAs selective-area growth on an InP substrate by metalorganic vapor-phase epitaxy [J]. J Cryst Growth, 2005, 276(3-4): 439-445.
 - 16 P Waltereit, O Brandt, A Trampert, *et al.*. Nitride semiconductors free of electrostatic fields for efficient white light-emitting diodes [J]. Nature, 2000, 406(6798): 865-868.
 - 17 K Hiramatsu, K Nishiyama, M Onishi, *et al.*. Fabrication and characterization of low defect density GaN using facet-controlled epitaxial lateral overgrowth (FACELO) [J]. J Cryst Growth, 2000, 221(1-4): 316-326.
 - 18 K Hiruma, T Haga, M Miyazaki. Surface migration and reaction mechanism during selective growth of GaAs and AlAs by metalorganic chemical vapor deposition [J]. J Cryst Growth, 1990, 102(4): 717-724.
 - 19 K Yamaguchi, M Ogasawara, K Okamoto. Surface-diffusion model in selective metalorganic chemical vapor deposition [J]. J Appl Phys, 1992, 72(12): 5919-5925.
 - 20 F Bernardini, V Fiorentini, D Vanderbilt. Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides [J]. Phys Rev B, 1997, 56(16): R10024-R10027.