

高 Q 值 GaN 碟状微米谐振腔的光学特性研究

何耿^{1,2,3}, 徐俞^{4*}, 曹冰^{1,2,3**}, 王钦华^{1,2,3}, 徐科⁴

¹苏州大学光电科学与工程学院, 江苏 苏州 215006;

²苏州大学江苏省先进光学制造技术重点实验室, 江苏 苏州 215006;

³苏州大学教育部现代光学技术重点实验室, 江苏 苏州 215006;

⁴中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所, 江苏 苏州 215123

摘要 通过氢化物气相外延(HVPE)方式在蓝宝石衬底上获得了 GaN 微米碟,其几何形态为规则的正六边形且表面平整,直径约为 27 μm ,高度为 15 μm 。光致发光(PL)实验结果表明,微米碟垂直方向和水平方向的光学谐振模式存在差异,其中水平方向支持回音壁模式(WGM)振荡。在室温条件下采用高能脉冲激光照射微米碟,当激励光功率超过 7.8 μW 时,PL 光谱在波长 374 nm 附近获得多模式激光信号,其中 WGM 激光占优势,品质因子可达 3742。最后采用 COMSOL 仿真软件对谐振腔进行光场模拟,并分析了其光学模式特性。

关键词 光学器件; 氮化镓; 回音壁模式; 微米碟激光器; 紫外激光

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202040.1223001

Study of Optical Properties of High-Q GaN Disk-Shaped Microresonant Cavity

He Geng^{1,2,3}, Xu Yu^{4*}, Cao Bing^{1,2,3**}, Wang Qinhua^{1,2,3}, Xu Ke⁴

¹School of Optoelectronic Science and Engineering, Soochow University, Suzhou, Jiangsu 215006, China;

²Jiangsu Key Laboratory of Advanced Optical Manufacturing Technologies, Soochow University, Suzhou, Jiangsu 215006, China;

³Key Laboratory of Modern Optical Technologies, Ministry of Education, Soochow University, Suzhou, Jiangsu 215006, China;

⁴Suzhou Institute of Nano-Tech and Nano-Bionics, Chinese Academy of Sciences, Suzhou, Jiangsu 215123, China

Abstract In this study, a GaN microdisk is fabricated on a sapphire substrate by hydride vapor phase epitaxy (HVPE). The microdisk has a flat surface and a regular hexagonal shape with a diameter and height of approximately 27 μm and 15 μm , respectively. Photoluminescence (PL) experimental results show that the optical resonance modes of the microdisk are different in the vertical and horizontal orientations, with the latter supporting the whispering gallery mode (WGM) oscillation. When the microdisk is irradiated by a high-energy pulsed laser at room temperature with an excitation light power larger than 7.8 μW , a multimode laser signal near 374 nm wavelength is obtained in the PL spectra, in which the WGM laser is dominant, and the quality factor can reach 3742. Finally, using the COMSOL simulation software, a light field simulation is performed on the resonant cavity to analyze its optical mode characteristics.

Key words optical devices; GaN; whispering gallery mode; microdisk laser; ultraviolet laser

OCIS codes 230.0250; 230.3990; 230.4000

1 引 言

III-V 族氮化物是当前十分热门的光电半导体

材料之一,在照明显示、光学通信、生物医学传感等方面具有广泛的应用前景^[1-3]。其中 GaN 由于具有宽直接带隙(≈ 3.4 eV)和较高激子结合能

收稿日期: 2020-02-21; 修回日期: 2020-03-19; 录用日期: 2020-03-23

基金项目: 国家自然科学基金国家重点项目(61734008)、国家自然科学基金(61574097,61604170,61604169)、国家重点研发计划(2017YFB0404100)、国家重大科研仪器设备研制专项(11327804)

* E-mail: yxu2007@sinano.ac.cn; ** E-mail: bingcao@suda.edu.cn

(≈ 24 meV),因而在紫外(UV)激光应用领域有突出的优势;此外 GaN 材料在紫外波段还具有很高的折射率,达到了 2.6,这使得在 GaN 晶体界面处可形成很高的折射率差,满足作为光学微腔的条件。当前,微型激光器的纳米结构通常分为线形微腔和盘形微腔两种类型^[4-5]。其中线形微腔大多支持两端面谐振的法布里-珀罗(F-P)模式激光出射,而盘形微腔结构可支持回音壁模式(WGM)激光在光学腔中振荡。相比 F-P 模式微腔,后者独特的内壁全反射机制具有更低的光学损耗和更高的品质因子^[6],因此对其进行更加深入的研究是十分有意义的。

近年来有很多关于 WGM 微米碟激光器的报道。科学家通过使用各种生长方法来获得用于激光发射的高质量微米碟,并分析了其光学特性^[7-9]。2013 年,Baek 等^[10]在石墨烯上生长了直径为 8 μm 的 GaN 微米碟激光器,在波长 374 nm 附近获得了 4 个激光峰信号,其激光阈值为 250 kW/cm^2 ,品质因子(Q)值可达 1200,并且通过数值计算确定激光器内光振荡为 WGM。此外,一些学者也在尝试通过蚀刻工艺来获得理想的微米碟激光器^[11]。2018 年,Zhu 等^[4]通过光刻、干法蚀刻及溶液各向同性湿法蚀刻技术制备了单模紫外 GaN 微米碟激光器,其激发功率为 260 kW/cm^2 ,Q 值为 1270。总体来说,当前对于微米碟激光器的研究热点主要集中在寻找新技术降低激光阈值,以获得更高的品质因子。本文以石墨烯为缓冲层,通过氢化物气相外延(HVPE)方式在蓝宝石衬底上生长 GaN 微米碟,将第一次转移至单晶硅上的 GaN 微米碟作为微米碟激光器进行激射,获得了高达 3742 的 Q 值,并对其各方向的选模特性进行了分析和讨论。

2 实 验

2.1 样品制备

获得几何形态和晶体质量良好的 GaN 微米碟是提升激光器光学特性的关键。将石墨烯作为生长缓冲层可以有效地降低 GaN 与衬底材料之间晶格失配和热失配的影响,减小 GaN 的内应力^[12]。通过等离子体增强化学气相沉积(PECVD)法,在直径为 5.08 cm 的蓝宝石上生长了多层石墨烯(MLG)结构,随后运用 HVPE 生长技术,通过两步法生长 GaN 微米碟结构。GaN 微米碟激光器的结构如图 1 所示。

样品制备具体流程:将免清洗的蓝宝石衬底放入反应炉中,在温度 600 $^{\circ}\text{C}$ 下用 H_2 对蓝宝石进行生长预处理,随后在 625 $^{\circ}\text{C}$ 的条件下通入体积流量为



图 1 微米碟激光器的结构示意图

Fig. 1 Structural diagram of microdisk laser structure

2.5 mL/min 的 CH_4 和 2.5 mL/min 的 H_2 ,在功率为 50 W 的等离子体源照射下生长 90 min 获得 MLG;然后通过两步法生长 GaN 微米碟,将衬底转移到 HVPE 系统中;在 600 $^{\circ}\text{C}$ 的 H_2 气氛中退火 10 min,使石墨烯形成掩模,随后在相同的温度下生长 GaN 缓冲层,V 族氮源和 III 族镓源的流量比为 180,载气 N_2 和 H_2 的体积流量比为 1:1;最后升温至 1040 $^{\circ}\text{C}$ 生长 GaN 微米碟,V/III 的流量比从 180 降到 30,载气成分不变。

2.2 晶体质量表征

GaN 微米碟作为光学微腔及增益物质,其几何形态和缺陷水平直接影响光学微腔局域光和光增强的能力。图 2 为实验获得的 GaN 微米碟样品顶部及侧面的扫描电镜(SEM)图,可以得到,微米碟直径在 27 μm 左右,高度在 15 μm 左右;GaN 微米碟呈规则的六边形结构,这是由于 GaN 本身是六方纤锌矿晶格结构;GaN 微米碟的表面较为平整,没有坑、孔等缺陷;微米碟的侧面尽管有部分半极性的倾斜面,但总体上十分陡直,且较为光滑,这有利于降低光在谐振腔内水平方向的散射损耗^[13]。

为了定性分析 GaN 微米碟的缺陷水平,采用阴极荧光(CL)和光致发光(PL)方法,结果如图 3 所示。GaN 内的缺陷会引起该区域载流子的非辐射复合,因此在激励发光时,缺陷密度较高的地方将会比较暗,而晶体质量较好的地方则发光较强。从图 3(a)中可以发现,微米碟整体发光良好,说明实验当中获得的 GaN 微米碟具有较好的内部晶体质量。从图 3(b)中可以发现,在 368 nm 波长附近有一个强峰,其对应 GaN 自由激子发光峰;而在波长为 550 nm 附近有一个强度很弱、带宽很宽的黄光信号。黄光信号被认为与 GaN 内部杂质及缺陷造成的深能级发光有关,因此黄光峰强度大大弱于本征峰,说明 GaN 微米碟内缺陷较少^[14]。

2.3 发光特性

为了了解光学微腔内光振荡的特性,进行了不同方向的光激励与光信号接收实验,结果如图 4

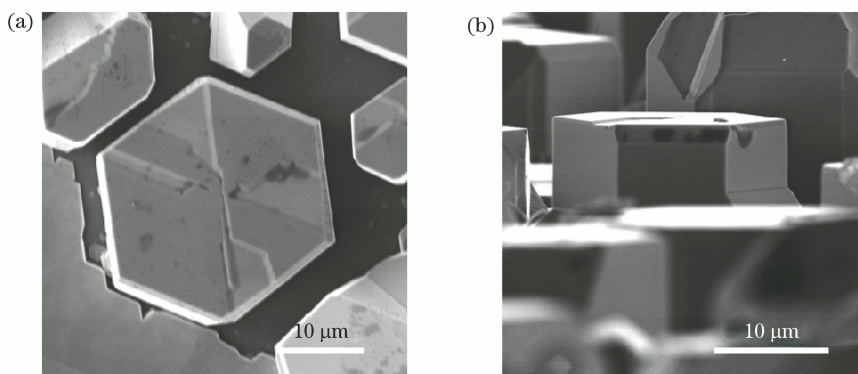


图 2 GaN 微米碟的 SEM 图。(a) 顶面; (b) 侧面

Fig. 2 SEM image of GaN microdisk. (a) Top surface; (b) side surface

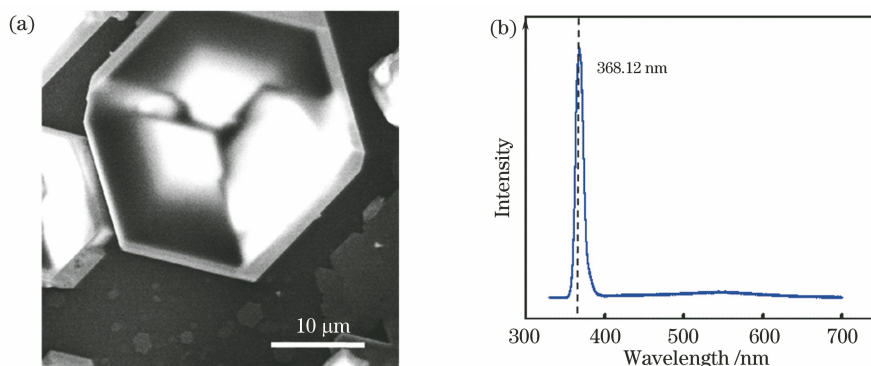


图 3 GaN 微米碟的缺陷水平。(a) CL 图; (b) PL 光谱

Fig. 3 Defect level of GaN microdisk. (a) CL image; (b) PL spectrum

所示。在低能量紫外连续光源照射下,当光谱仪信号接收方向与 GaN 微米碟 C 轴平行时,在波长 365 nm 处有一个峰值,在波长 370 nm 附近出现了“波纹”状信号,且相邻两个尖峰的中心波长差约为 1.036 nm,如图 4(a) 所示。从图 4(b) 可知,当光谱仪信号接收方向垂直 C 轴时,只在某些特定角度才

能获得到振荡信号,这可能与光在水平方向上的振荡路径和出射角度有关;在波长 371.8 nm 处增加了一个 GaN 束缚激子峰,同样出现“波纹”状信号,相邻尖峰波长差值从短波的 0.44 nm 向长波方向不断增加直至 0.58 nm。波长差随波长的增加而增加是由 GaN 材料的色散导致的。

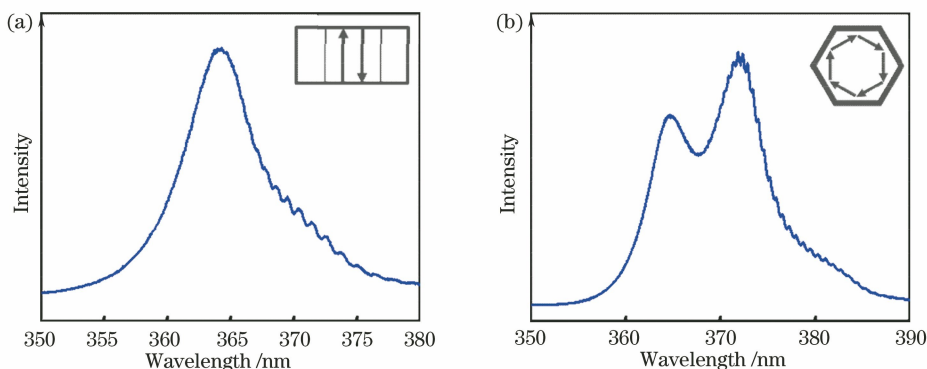


图 4 PL 光谱图。(a) 信号接收方向平行 C 轴; (b) 信号接收方向垂直 C 轴

Fig. 4 PL spectra. (a) Receiving direction parallel to C axis; (b) receiving direction vertical to C axis

微米碟内谐振光波长差公式^[15]为

$$\Delta\lambda = \lambda^2 / [L(n - \lambda dn/d\lambda)], \quad (1)$$

式中: L 为光在光学谐振腔内沿光路循环一周的长度; n 为 GaN 材料的折射率; $dn/d\lambda$ 描述色散关系。其中 n 与 λ 的关系式为

$$n^2 - 1 = 2.60 + \frac{1.75\lambda^2}{\lambda^2 - 0.256^2} + \frac{4.1\lambda^2}{\lambda^2 - 17.86^2}. \quad (2)$$

已知微米碟直径为 27 μm , 高度为 15 μm , 波长为 374 nm, 可由图 4 插图对应路径计算获得 L 。平行 C 轴与垂直 C 轴方向模式间距分别为 1.153 nm

和 0.527 nm,这与实验结果基本对应,因此可以认为平行 C 轴方向的光在样品顶面以及底面发生反射形成 F-P 模式振荡,垂直 C 轴方向的光沿样品侧壁发生反射形成 WGM 振荡。同时,从图 4 中可以明显看出,在当前激励能量下没有激光信号出现,“波纹”状信号证明 GaN 微米碟内光学振荡的发生。

为了提升泵浦源强度,以获得 GaN 微米碟激光出射,使用高能脉冲紫外激光作为光源,其波长为 325 nm,线宽为 100 fs,振荡频率为 1 kHz,照射光斑直径为 16 μm ,光学显微镜的放大倍率为 40。同时,为了消除微米碟之间距离过近导致光腔耦合进而激光信号不稳定,使用洁净的超细探针将独立的 GaN 微米碟转移至单晶硅衬底上。GaN 与蓝宝石衬底之间存在二维石墨烯插入层,因此剥离微米碟是十分容易的。随后,将脉冲激光照射在 GaN 样品上,调节激励功率获得了微米碟激光器的变功率 PL 光谱图,如图 5 所示,其中插图为激励时的光镜图。实验结果表明,当激励光功率达到 7.8 μW 时,光谱中出现尖峰,继续加大激励功率,其半峰全宽 (FWHM) 突然降低至 0.10 nm,该现象证实 GaN 微米碟内出现了激光;同时,PL 光谱中相邻激光峰的波长间距为 0.475 nm,与 WGM 计算结果相对应,证实该微米碟激光器支持 WGM 激光出射;当激励能量提升至 9.0 μW 时,可以得到多模激光出射信号,其中心波长在 374.2 nm 附近,这与其他报道的 372 nm 中心波长相比存在明显的红移,这是由温度上升导致的能带收缩效应引起的^[16]。通过品质因子计算公式:

$$Q = \lambda / \Delta\lambda, \quad (3)$$

获得该激光器稳定 Q 值高达 3742,证实获得的 GaN 微米碟激光器具有十分良好的光学性能。

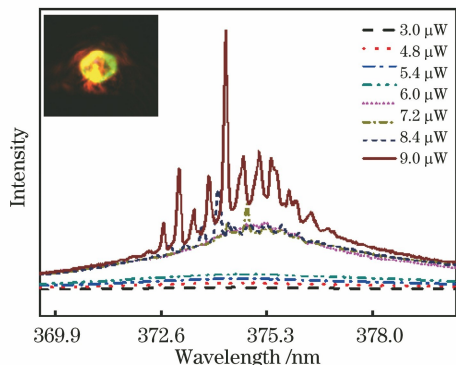


图 5 GaN 微米碟激光器在不同功率下的 PL 光谱图,插图为光镜图

Fig. 5 Dependent-power PL spectra of GaN microdisk laser and light microscope image shown in inset

为了进一步证实实验中 GaN 微米碟激光器的光学振荡模式,采用二维 COMSOL 光学仿真软件对光场进行分析。其主要流程为:建立几何模型,尺寸大小与实际实验对应,并设定材料为 GaN,在六边形材料外部设置空气层,以符合实验测试条件,在最外层界面设置散射边界条件来降低出射光在边界反射造成的实验误差。随后划分网格,并对特征频率进行计算,其光场分布结果如图 6 所示,可以看出,六边形光腔内的光强主要分布在外围,而中心光强较弱,该现象符合 WGM 的光强分布,进一步证实获得的 GaN 微米碟激光器为 WGM 光振荡。此外,光场分布显示其内部存在高阶径向模式^[17]。

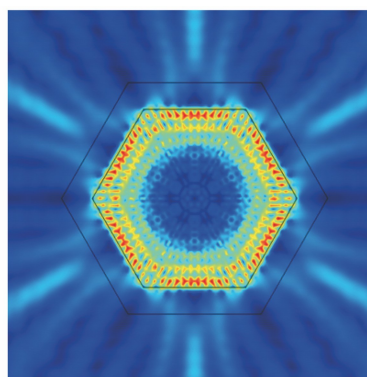


图 6 二维 COMSOL 光场仿真结果

Fig. 6 Simulation results of 2D-COMSOL light field

3 分析与讨论

从 PL 实验结果中可以发现,所获得的 GaN 微米碟可以作为良好的光学微腔,其 Q 值可以达到 3742。 Q 值的大小通常与微米碟的结构、几何尺寸、表面粗糙程度及晶体缺陷水平有关。其中 Q 值与尺寸的关系式^[18]为

$$Q = \frac{\pi m n r R^{m/4}}{\lambda (1 - R^{m/2})} \sin \frac{2\pi}{m}, \quad (4)$$

式中: m 为多边形腔体的侧面数; r 为外接圆半径; R 为光在界面处的反射率。随着六边形直径的增大, Q 值会不断增大。结合实验结果发现,通过 HVPE 获得的 GaN 微米碟具有规则的六边形几何形态,并且其直径达到了 27 μm ;其次发现微米碟表面光滑,侧壁陡直,晶体内的缺陷较少,这些都有有效提升了激光器的 Q 值;此外将 GaN 微米碟与衬底分离,可以有效地减少激光器内从底部泄漏进蓝宝石衬底的光,降低了光学损耗,这对进一步降低激光阈值和提升光学品质都有很大的帮助。

另一方面,实验中还存在一个问题,即在不同接收方向存在不同光学振荡模式,然而在高能量光激励实验中却只接收到 WGM 的激光信号。这与激光器的模式竞争有关,即在激励初期,两种振荡同时得到增益,然而随着光强不断增大,对光起更强反馈作用的振荡模式将淘汰弱反馈作用的光模式。同时 GaN 生长初期会在底部形成大量的层错,层错会降低底部对光的反射率,一定程度上也会破坏 F-P 模式的光振荡效果^[19]。

4 结 论

通过 HVPE 方式在蓝宝石衬底上生长了 GaN 微米碟,研究证实其具有良好的几何形态与晶体质量;通过其不同方向上光学谐振模式实验,证实信号接收方向平行 C 轴时为 F-P 模式振荡,垂直 C 轴时为 WGM 振荡,并在高功率光激发条件下获得了多模式激光信号,激光阈值功率为 $7.8 \mu\text{W}$, Q 值高达 3742,与同类型报道结果相比具有明显优势。COMSOL 仿真结果证实微米碟激光器支持 WGM 激光出射。分析了影响 Q 值高低的因素,认为激光器内 WGM 光学模式占主导地位主要与激光器的模式竞争有关。本工作对 III-V 族半导体微纳发光器件的研究具有重要意义。

参 考 文 献

- [1] Wu J, Walukiewicz W, Yu K M, et al. Superior radiation resistance of $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$ alloys: full-solar-spectrum photovoltaic material system[J]. *Journal of Applied Physics*, 2003, 94(10): 6477-6482.
- [2] Flack T J, Pushpakaran B N, Bayne S B. GaN technology for power electronic applications: a review [J]. *Journal of Electronic Materials*, 2016, 45(6): 2673-2682.
- [3] Wang Y P, Wang X H, Wang P. Identifying single cell types via whispering gallery mode optical microcavities[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(2): 0207028.
王亚平, 王秀翊, 王璞. 回音壁模式光学微腔识别细胞类型[J], *中国激光*, 2017, 47(2): 0207028.
- [4] Zhu G Y, Li J P, Li J T, et al. Single-mode ultraviolet whispering gallery mode lasing from a floating GaN microdisk[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(4): 647-650.
- [5] Gwo S, Shih C K. Semiconductor plasmonic nanolasers: current status and perspectives[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2016, 79(8): 086501.
- [6] Wang M H, Zhu G P, Zhu H Q, et al. Morphology-dependent WGMs photoluminescence characteristics from micro/nano-structural ZnO samples [J]. *Acta Optica Sinica*, 2014, 34(s1): s116001.
王马华, 朱光平, 朱汉清, 等. 纳米氧化锌中回音壁模发光特性的形貌依赖 [J]. *光学学报*, 2014, 34(s1): s116001.
- [7] Czekalla C, Sturm C, Schmidt-Grund R, et al. Whispering gallery mode lasing in zinc oxide microwires[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(24): 241102.
- [8] Shubina T V, Pozina G, Jmerik V N, et al. III-nitride tunable cup-cavities supporting quasi whispering gallery modes from ultraviolet to infrared [J]. *Scientific Reports*, 2016, 5: 17970.
- [9] Yu N S, Dong D P, Qi Y, et al. Synthesis of hexagonal ZnO microdisk on InN substrate by aqueous method and its optical properties[J]. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2016, 27(10): 10468-10472.
- [10] Baek H, Lee C H, Chung K, et al. Epitaxial GaN microdisk lasers grown on graphene microdots [J]. *Nano Letters*, 2013, 13(6): 2782-2785.
- [11] Sellés J, Brimont C, Cassabois G, et al. Deep-UV nitride-on-silicon microdisk lasers [J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 21650.
- [12] Qi L, Xu Y, Li Z Y, et al. Stress analysis of transferable crack-free gallium nitride microrods grown on graphene/SiC substrate [J]. *Materials Letters*, 2016, 185: 315-318.
- [13] Liu H T, Zhang H L, Dong L, et al. Growth of GaN micro/nanolaser arrays by chemical vapor deposition [J]. *Nanotechnology*, 2016, 27(35): 355201.
- [14] Xu Y, Cao B, He S Y, et al. Evolution of threading dislocations in GaN epitaxial laterally overgrown on GaN templates using self-organized graphene as a nano-mask[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(10): 102105.
- [15] Bhowmik A K. Polygonal optical cavities [J]. *Applied Optics*, 2000, 39(18): 3071-3075.
- [16] Zhang Y Y, Feng C, Wang T, et al. GaN hemispherical micro-cavities [J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(3): 031110.
- [17] Wang D Q, Zhu T T, Oliver R A, et al. Ultra-low-threshold InGaN/GaN quantum dot micro-ring lasers [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(4): 799-802.
- [18] Yu D S, Chen Y J, Li B J, et al. Structural and lasing characteristics of ultrathin hexagonal ZnO nanodisks grown vertically on silicon-on-insulator substrates [J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 91(9): 091116.
- [19] Gu H, Ren G Q, Zhou T F, et al. Study of optical properties of bulk GaN crystals grown by HVPE [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2016, 674: 218-222.