

垒掺 In 提高 InGaN/GaN 多量子阱发光特性^{*}

邢艳辉[†] 韩 军 刘建平 邓 军 牛南辉 沈光地

(北京工业大学电子信息与控制工程学院, 北京 100022)

(2007 年 1 月 25 日收到, 2007 年 6 月 5 日收到修改稿)

利用金属有机物化学气相淀积技术在蓝宝石衬底上生长 InGaN/GaN 多量子阱结构. 对多量子阱垒层掺 In 和非掺 In 进行了比较研究. 结果表明, 垒掺 In 的样品界面质量变差, 但明显增加了光致发光谱的峰值强度和积分强度, 带边峰与黄光峰强度之比增大, 降低了表面粗糙度. 利用这两种结构制备了相应的发光二极管(LED)样品. 通过电致发光测量可知, 垒掺 In 的 LED 比非掺 In 的 LED 有较高的发光强度和相对均匀的波长. 这主要是由于垒掺 In 后降低了阱与垒之间晶格失配的应力, 从而降低了极化电场, 提高了辐射复合效率.

关键词: InGaN/GaN 多量子阱, X 射线双晶衍射, 原子力显微镜, 光致发光

PACC: 7855, 6855

1. 引 言

高质量的 InGaN 合金在蓝绿光发光二极管(LED)和激光器上有着较重要的地位. InGaN 量子阱 In 组分的起伏或 InGaN 量子阱结构的内极化电场引起带隙能量变化, 载流子局域等特性已有很多的报道^[1,2]. 然而, InGaN 的一些基本问题一直困扰着人们. 如由于 InN 的低裂解温度要求, InGaN/GaN 量子阱生长温度不能高于 900 °C, 但在低温生长原子表面迁移率低、氮的裂解效率低, 增加了 N 空位, 其结果是 GaN 垒层晶体质量变差. 另外, InGaN 与 GaN 之间大的晶格失配在器件的有源层产生明显的双轴应力, 尤其是 InGaN/GaN, InGaN/AlGaIn 异质结构, 垒层应力的直接大小影响位错密度和量子阱质量. Chichibu 等^[3]报道了垒层掺 Si 的 InGaN/GaN 量子阱的性质. 文献^[4]详细研究了垒层掺 Si 对光学性质和结构的影响. 随着垒层掺 Si 量的增加, 一级和二级超晶格卫星峰半高宽明显地变窄. 然而, 在高掺杂情况下, Si 原子从垒扩散到阱, 导致阱和垒都被 Si 掺杂^[5], 光致发光(PL)波长出现蓝移. 由此可知, 减小 GaN 垒层不良效果对提高器件的特性是十分重要的. 本文采用对 InGaN/GaN 多量子阱(MQW)垒层少量掺 In, 引入 In 成分将对全层的应力和应力量子

阱有显著的效果, 量子阱跃迁能量和发光强度有了明显的变化, 而且也改善了材料的表面形貌. 作为比较, 也研究了垒非掺 In 的样品. 通过 PL 和 X 射线双晶衍射(DCXRD)测试, 对光学特性进行了比较分析. 为进一步说明问题, 又生长了这两种对应结构的 LED 样品, 并做了电致发光(EL)测量.

2. 实 验

所有样品均是在美国 Veeco 公司生产的 D180 型金属有机物化学气相淀积(MOCVD)设备上制备的. 外延淀积以直径为 50 mm 的蓝宝石 c 面(0001)作为衬底, 采用三甲基镓(TMGa)、三甲基铟(TMIIn)、高纯氨(NH₃)分别作为 Ga、In、N 源. 硅烷(SiH₄)用作 n 型掺杂源, 氮气用作各层的载气. 首先, 蓝宝石衬底在氢气条件下, 1100 °C 热处理, 去除表面杂质. 在蓝宝石衬底上先低温(550 °C)生长 30 nm 厚的 GaN 缓冲层, 然后升温到 1080 °C 生长本征 GaN, 厚度为 2.2 μm, 生长速率为 1.75 μm/h. 再生长 n 型 Si 掺杂 GaN 层, 生长温度为 1080 °C, 生长速率为 2.34 μm/h, 厚度为 3 μm. 多量子阱结构直接生长在 n-GaN 层上, MQW 结构具有 5 个周期为 3 nm 的 In_xGa_{1-x}N ($x = 0.15-0.18$)量子阱层和 10 nm 的 GaN 垒层, 垒和阱的生长温度分别是 850 和 745 °C, V 族源与 III 族

^{*} 北京市自然科学基金(批准号: D0404003040221)资助的课题.

[†] E-mail: xingyanhui@bjut.edu.cn

源摩尔比(V/III)为 18000, MQW B 结构的垒中掺入 0.02 的 In, MQW A 结构的垒中没有掺 In. 样品 LED A 和样品 LED B 的结构分别是在 MQW A 和 MQW B 结构基础上制备的, 即生长完 MQW 后, 又生长 0.2 μm 厚的 p 型 GaN 盖层. 详细生长条件列于表 1.

表 1 样品 MQW A 和样品 MQW B 的生长条件

样品	生长温度/ $^{\circ}\text{C}$	V/III	TMIn 流量/ $\mu\text{mol}\cdot\text{min}^{-1}$
MQW A	垒	850	18000
	阱	745	18000
MQW B	垒	850	18000
	阱	745	18000

DCXRD 采用 BEDE 公司生产的 QC 200 系统, Ge (004) 单色, $\text{Cu K}\alpha$ 辐射, 通过反射镜的 X 射线聚焦在样品上, 光斑直径不到 1 mm, ω 精度为 $1''$, 2θ 精度为 $0.9''$, 对样品在 (002) 面做 ω - 2θ 联动扫描. 室温 PL 测量的激发光源采用 325 nm 波长 He-Cd 激光器, 激发功率为 6 mW, 光斑直径为 0.3 mm. 使用 Veeco 公司生产的 Nanoscope III a 型原子力显微镜 (AFM) 观察 InGaN 的 MQW 表面形貌. EL 测量采用 Accent 公司生产的快检系统, 对直径为 50 mm 的 LED 外延片, 在 720 $^{\circ}\text{C}$, 30 min 退火后, 样品表面制成 In 接触, 用于 EL 测试.

3. 实验结果及讨论

3.1. MQW 的光学特性分析

InGaN/GaN MQW 的界面特性通过 DCXRD 测试, 图 1(a) 和 (b) 分别显示了 MQW A 和 MQW B 的 ω - 2θ (002) 衍射曲线. 从图 1 可以看出, 这两个样品均有较高级数卫星峰和 Pendellösung 干涉条纹, 表明 InGaN/GaN MQW 界面陡峭. 然而, 比较这两个样品的衍射曲线可知 MQW A 比 MQW B 有更好的界面特性, 因为 MQW A 的高级卫星峰清楚、更加尖锐、衍射强度较强, 卫星峰的半高宽也较小, 可以清楚地看到第四级卫星峰. 我们知道, 任何界面的粗糙或合金起伏都将降低衍射波的干涉, Pendellösung 干涉条纹消失. MQW B 的卫星峰的展宽, 主要是由于 In 掺入垒后 InGaN/GaN MQW 结构应力弛豫, 周期波动所导致的, 因此垒层 In 的成分引入, 可以明显地影响整个垒层的应力和量子阱层的应力. 垒层应力的大小还可以直接影响位错密度、量子阱的质量和极性

内建电场.

由于刃位错将产生晶格面内倾斜, 使卫星峰在面内方向加宽, 我们分别又对两个 MQW 样品的 (102) 做联动扫描. 由于 (102) 面衍射信号较弱, 在 MQW A 中几乎观察不到卫星峰, 在 MQW B 中只观察到微弱的卫星峰, 所以不能对 (102) 联动扫描的每一个卫星峰做 ω 扫描, 只能对 (102) 联动扫描的结果基于以下位错密度 ρ 公式^[6]加以推测:

$$\rho = \frac{\beta^2}{4.35b^2},$$

其中 β 为 ω 扫描半高宽, b 为位错的 Burgers 矢量大小. 样品 MQW A 中可能存在比样品 MQW B 高的刃位错密度, 因为 MQW B 有比 MQW A 更高的衍射强度. 一定条件下位错密度, 特别是刃位错密度, 对 InGaN/GaN MQW 带边发光具有抑制作用^[7], 并影响 PL 的积分强度.

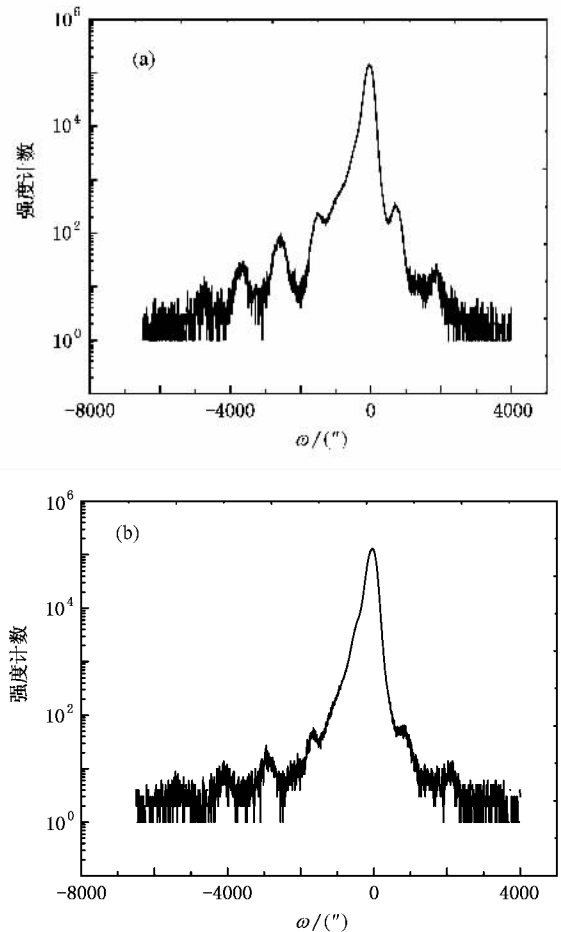


图 1 InGaN/GaN MQW 结构 DCXRD 的 ω - 2θ (002) 衍射曲线 (a) MQW A (b) MQW B

图 2(a) 和 (b) 分别是两个 MQW 样品的室温 PL 测试曲线. MQW B 的积分强度是 546, MQW A 的积

分强度是 399 ,MQW B 的积分强度比 MQW A 的积分强度高 36.84% ,这和上面的推测结果是一致的. 有如下两种可能的原因: 一是由于位错本身的原子结构或位错引起了晶体中的应变和电学晶格畸变吸附点缺陷(如杂质原子、空位和间隙原子等)形成一些深能级,从而捕捉部分载流子,导致深能级复合发光^[8]或减小了光生少数载流子的复合寿命^[9],进而抑制了带边发光. 二是应力产生极化电场减弱导致,使 MQW B 比 MQW A 有更大的电子空穴波函数重叠,提高辐射复合率,因而产生更强的发光强度. 从图 2 中还可以看出:MQW B 的峰值强度是 MQW A 的峰值强度的 2.3 倍多,MQW A 带边峰与黄光峰强度之比 I_{BL}/I_{YL} 是 5.33 ,MQW B 的 I_{BL}/I_{YL} 是 7.4 . MQW B 带边峰的半高宽(FWHM)比 MQW A 的带边峰 FWHM 窄 2 nm . MQW B 的峰值波长是 452.6 nm ,MQW A 峰值波长是 457.1 nm ,由此可知,MQW B 的峰值波长比 MQW A 的峰值波长有 5.5 nm(0.027 eV)的蓝移.

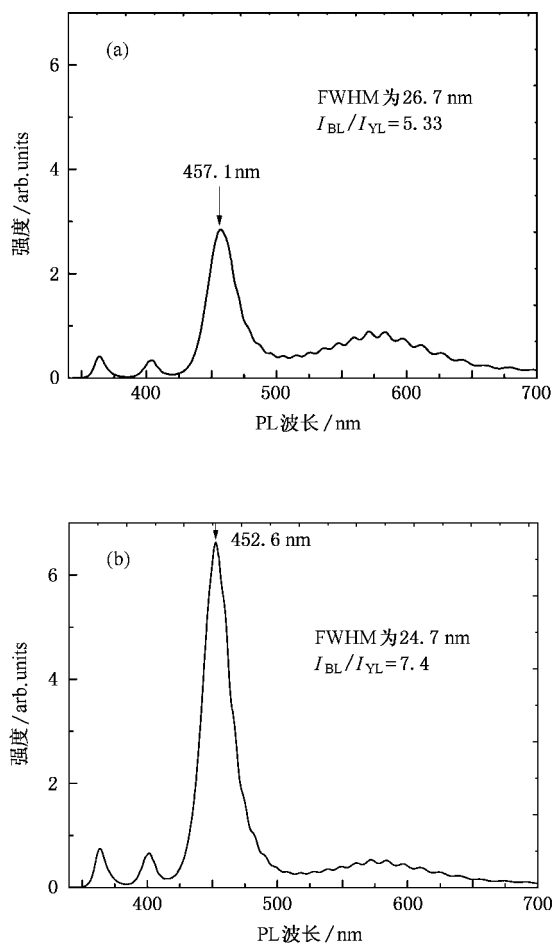


图 2 InGaN/GaN MQW 的室温 PL 谱 (a)MQW A ,(b)MQW B

3.2 MQW 的表面形貌

图 3(a)和(b)分别是 MQW A 和 MQW B 的表面形貌. 从图 3 可以清楚地看到表面形貌的不同, MQW A 的表面有很多明显的 V 形位错存在,而在 MQW B 表面几乎看不到. MQW B 表面比 MQW A 表面相对要平滑一些, MQW B 的均方根表面粗糙度 R_{rms} 为 1.41 nm ,MQW A 的 R_{rms} 为 1.56 nm .

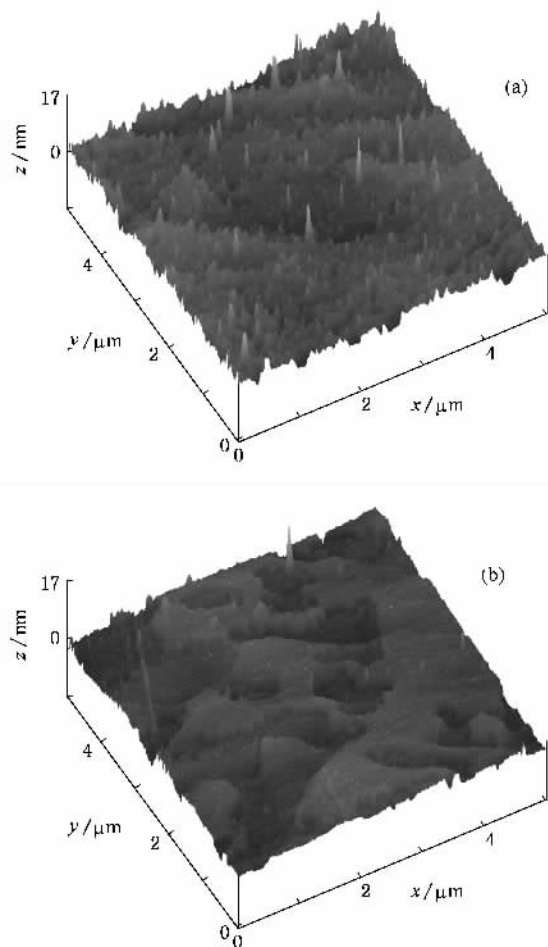


图 3 MQW 表面形貌 (a)MQW A ,(b)MQW B

3.3 LED 的 EL 测试结果

表 2 列出了样品 LED A 和样品 LED B 的 EL 的 5 个点测试结果,其中第三个点是直径为 50 mm 外延片的中心点,其他 4 个点分别位于平行或垂直定位边通过中心点的直线上距中心点 15 mm 处. 从表 2 可知,垒掺 In 的样品 LED B 的 EL 的发光波长较样品 LED A 也有蓝移,这与对应的 MQW 的 PL 测试结果基本一致. 从整体上看,样品 LED B 比样品 LED

A 有较高的发光强度和较均匀的发光波长. 这一结果说明 InGaN/GaN MQW 垒层适量掺 In 很好地改善了量子阱的发光特性.

表 2 样品 LED A 和样品 LED B 的 EL 测试结果

样品	测试点	发光波长/nm	相对强度
LED A	1	488	4.2
	2	465	13.4
	3	448	16.3
	4	469	13.0
	5	465	9.0
LED B	1	445	11.6
	2	445	13.6
	3	443	8.5
	4	443	15.6
	5	442	11.6

4. 结 论

利用 MOCVD 技术在蓝宝石衬底上生长了 InGaN/GaN MQW 结构. 对量子阱垒层掺 In 和非掺 In 样品进行了研究. 通过 DCXRD 的(002)衍射测试表明垒掺 In 样品界面质量相对较差, 根据(102)衍射推测可知垒掺 In 样品的刃型位错密度比垒非掺 In 样品的刃型位错密度低, 其 PL 峰值强度和积分强度都明显增加, 带边峰和黄光峰强度之比增大, 而且有较平滑的表面形貌. LED 样品的 EL 测试结果表明, 垒掺 In 的 LED 样品比垒非掺 In 的 LED 样品有较高的发光强度和相对均匀的发光波长. 我们认为, 这主要由于垒掺 In 后减少了刃型位错密度, 降低了阱和垒之间晶格失配的应力, 从而降低了极化电场, 提高了辐射复合效率所致.

- [1] Wang T, Saeki H, Bai J, Shirahama T, Lachab M, Aakai S, Eliseev P 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 1737
- [2] Wang T, Bai J, Sakai S 2001 *J. Cryst. Growth* **224** 5
- [3] Chichibu S, Cohen D A, Mack M P, Abare A C, Kozodoy P, Minsky M, Fleischer S, Keller S, Bowers J E, Mishra U K, Coddren L A, Clarke D R, DenBaars S P 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 496
- [4] Cho Y H, Song J J, Keller S, Minsky M S, Hu E, Mishra U K, DenBaars S P 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 1128
- [5] Grudowski P A, Eiting C J, Park J, Shelton B S, Dupuis R 1997

Appl. Phys. Lett. **71** 1537

- [6] Dunn C G, Kogh E F 1957 *Acta Meter.* **5** 548
- [7] Zhang J C, Wang J F, Wang Y T, Yang H 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2467 (in Chinese) [张纪才、王建峰、王玉田、杨辉 2004 物理学报 **53** 2467]
- [8] Ponce F A, Bour D P, Gotz W, Wright P J 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 57
- [9] Rosner S J, Car E C, Ludowise M J, Girolami G, Erikson H I 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 420

Enhanced luminescence of InGaN/GaN multiple quantum wells with indium doped GaN barriers ^{*}

Xing Yan-Hui[†] Han Jun Liu Jian-Ping Deng Jun Niu Nan-Hui Shen Guang-Di

(College of Electronic Information and Control Engineering , Beijing University of Technology , Beijing 100022 , China)

(Received 25 January 2007 ; revised manuscript received 5 June 2007)

Abstract

InGaN/GaN multiple quantum wells have been grown by metal-organic chemical vapor deposition. InGaN/GaN multiple quantum well with and without indium doped GaN barriers were studied. The results show the sample with In-doped GaN barrier had a poor interface, but the photoluminescence spectrum showed clearly increased peak intensity and integral intensity, enhanced I_{BL}/I_{YL} ratio and reduced surface roughness. Electroluminescence of light emitting diodes with In-doped GaN barrier had better relative intensity and wavelength uniformity. We presume that the introduction of indium is the dominant factor leading to the decrease of the lattice mismatch strain between well and barrier, decrease of piezoelectricity and improvement in radiative recombination efficiency.

Keywords : InGaN/GaN multiple quantum well, double crystal X-ray diffractometer, atomic force microscopy, photoluminescence

PACC : 7855, 6855

^{*} Project supported by the Natural Science Foundation of Beijing, China (Grant No. D0404003040221).

[†] E-mail : xingyanhui@bjut.edu.cn