

m 面 GaN 平面内结构和光学各向异性研究*

吴超 谢自力† 张荣 张曾 刘斌 李弋 傅德颐 修向前 韩平 施毅 郑有

(南京大学物理学系江苏省光电信息功能材料重点实验室,南京 210093)

(2008 年 4 月 23 日收到,2008 年 5 月 13 日收到修改稿)

采用金属有机物化学气相淀积方法在铝酸锂 LiAlO_2 衬底上外延生长 m 面 GaN 薄膜. X 射线衍射测量的结果表明所得薄膜具有较理想的 m 面晶体取向,并对其各向异性的应变进行了计算. 摇摆曲线的测量发现样品存在明显的面内结构各向异性. 采用偏振光致发光研究材料的面内光学各向异性,发现随着偏振角度的改变,发光峰的峰位和强度均有明显变化,并用对称性破缺导致价带子带劈裂的理论对结果进行了解释.

关键词: m 面 GaN, 结构各向异性, 偏振光致发光

PACC: 7280E, 7360F, 7865K, 8115H

1. 引 言

近年来,以 GaN 为代表的 III 族氮化物宽直接带隙半导体得到了研究者相当大的重视. 由于具有带隙宽、发光效率高、电子漂移饱和速度高、热导率高、硬度大、介电常数小、化学性质稳定以及抗辐射、耐高温等特点,III 族氮化物在高亮度蓝光发光二极管(LED)、蓝光激光器和紫外探测器等光电子器件以及抗辐射、高频、高温、高压等电子器件领域有着巨大的应用潜力和广阔的市场前景^[1-6]. 目前在 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 和 SiC 等衬底上生长的 c 面 GaN(0001)基 LED 器件已经实现了大规模商业生产^[7]. 但沿钐矿结构(0001)方向上存在自发极化和压电极化,受极化电场影响,c 面 GaN 基多量子阱的能带发生倾斜,电子和空穴分别被限制在异质结界面处的三角势阱中,降低 LED 器件的性能及效率:一方面,能带弯曲导致有效禁带宽度变小,电子空穴复合发光发生红移,即产生量子限制斯塔克效应;另一方面,由于电子和空穴的波函数空间发生分离,量子阱辐射复合的效率降低,极大地限制了器件的发光效率.

在 $\text{LiAlO}_2(100)$ 衬底上生长的 m 面 GaN 基材料,由于极化电场垂直于生长方向,LED 的多量子阱能

带不再受极化电场影响,有望进一步提高器件性能及发光效率. 同时,非极性面材料面内四方结构,相对极性面材料的六方结构发生对称性破缺,从而产生面内各向异性,也为新型发光器件的发展提供了可能,因此近来备受关注^[8-10].

本文利用金属有机物化学气相淀积系统(MOCVD)在 $\text{LiAlO}_2(100)$ 衬底上外延生长 m 面的 GaN(1100)薄膜,并用 X 射线衍射及偏振光致发光分别研究了其平面内结构各向异性及光学各向异性,并从理论上对光学各向异性的结果进行了解释.

2. 实 验

m 面 GaN 薄膜是在具有喷淋头设计的垂直腔体式 Thomas - Swan MOCVD 生长系统中制备的. $\text{LiAlO}_2(100)$ 作为衬底,使用三甲基镓(TMGa)作为金属源,氨气(NH_3)作为氮源,高纯氢气(H_2)作为载气,并用硅烷(SiH_4)进行 Si 掺杂. 生长步骤采取两步法生长,先在低温 850°C 生长较薄的 GaN 缓冲层,再将温度升高到 1020°C 进行高温 GaN 外延生长. 所得样品厚度约 $1\ \mu\text{m}$.

GaN 晶向分析和结构各向异性研究采用飞利浦公司 X'pert HRXRD, X 射线发射波长为 $1.5406\ \text{\AA}$,发

* 国家重点基础研究发展规划(973)项目(批准号:2006CB6049),国家高技术研究发展规划(批准号:2006AA03A103,2006AA03A118,2006AA03A142),国家自然科学基金(批准号:60721063,60676057,60731160628,60776001),国家基础科学人才培养基金(批准号:J0630316),高等学校博士学科点专项科研基金(批准号:20050284004)资助的课题.

† E-mail: xzl@nju.edu.cn

射电压为 40 kV,发射电流为 20 mA,进行了晶向分析扫描与变角度摇摆曲线扫描. GaN 光学各向异性的研究采用偏振光致发光,He-Cd 激光(325nm)作为激发源,光电倍增管进行信号收集.与普通的光致发光谱的测量装置相比,偏振光致发光测量时在单色仪前加了一个 Glan-Taylor 棱镜作为检偏器,旋转棱镜以改变所测光的偏振方向,实验装置如图 1 所示.

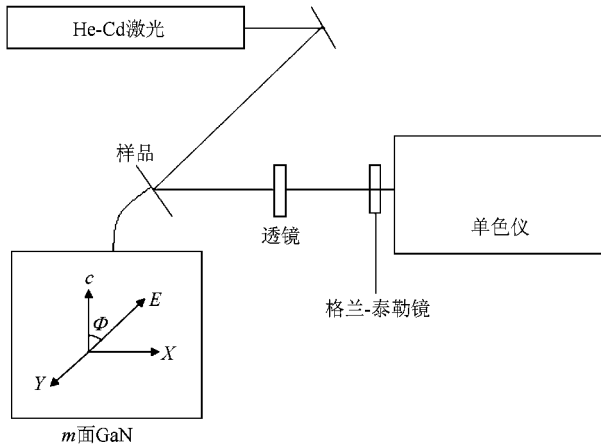


图 1 光致发光实验装置示意图

3. 实验结果与分析

图 2 为样品的 XRD 晶向分析扫描结果.衍射图中 $\theta = 16.136^\circ$ 和 $\theta = 17.341^\circ$ 处的两个衍射峰分别对应于 GaN $(1\bar{1}00)$ 和 $\text{LiAlO}_2(200)$ 晶面; $\theta = 17.25^\circ$ 附近出现的衍射峰对应于 GaN (0002) 晶面,但其强度较 m 面 GaN 小了近两个量级,因此可以认为我们得到的 m 面 GaN 晶向较为单一. c 相衍射峰的出现很有可能与低温缓冲层有关,仍有待进一步研究.

定义 x, y, z 坐标,分别代表 $(1\bar{1}20)$ $(1\bar{1}00)$ 和 (0001) 方向.根据布拉格散射公式可以计算出 m 面 GaN 的晶面距离为 5.544\AA ,对应于生长方向受到应变 $\epsilon_y = 0.376\%$.实验上无法直接测量得到 ϵ_x 和 ϵ_z ,但是如只考虑晶格失配对应变的影响可以对其进行粗略地估算.按照 GaN 与 LAO 在这两个方向的失配比 $\epsilon_x/\epsilon_z = 1.7\%/0.3\%$,并根据公式

$$\epsilon_y = \frac{C_{12}\epsilon_x + C_{13}\epsilon_z}{C_{11}}, \quad (1)$$

其中 $C_{11} = 390, C_{12} = 145, C_{13} = 106$,可得 $\epsilon_x = -0.896\%, \epsilon_z = -0.158\%$.所得样品在 c 面内受到的应力是各向异性的($\epsilon_x \neq \epsilon_y$).

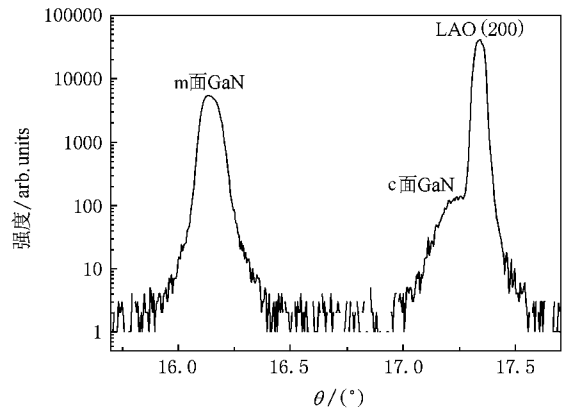


图 2 m 面 GaN 样品的 XRD 谱

图 3 是两个方向的 XRD 摇摆曲线扫描结果,可以观察到样品表现出明显的结构各向异性:衍射面垂直于样品 c 轴时,摇摆曲线强度较大,半峰宽(FWHM)极小;衍射面平行于样品 c 轴时,摇摆曲线的强度变小,而 FWHM 达到最大.摇摆曲线随面内角度的变化与已有文献中在 r 面宝石上生长的 a 面 GaN 的报道符合^[11,12].但目前对结构各向异性的起源问题仍无明确的结论,我们认为 m 面 GaN 面内四方结构中两个轴(a 与 c)晶格常数不同,导致两个方向的横向相干长度不同,从而造成面内结构的各向异性.

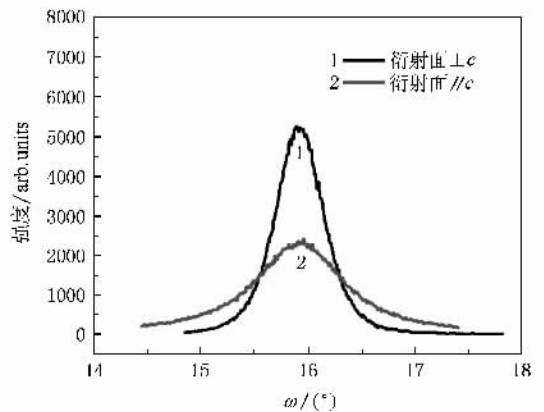


图 3 生长面内两个方向的 XRD 摇摆曲线

图 4(a)是在 m 面 GaN 样品偏振方向垂直和平行 c 轴的光致发光谱. E 为光的偏振方向,可以看出:从 $E//c$ 到 $E\perp c$,光致发光谱的带边发光峰从 3.422 eV 变为 3.409 eV ,红移了 13 meV ,同时强度大幅提高,表现出明显的光学各向异性;同时可以发现, $E//c$ 和 $E\perp c$ 时,峰值处于 2.4 eV 附近的黄带

没有变化.

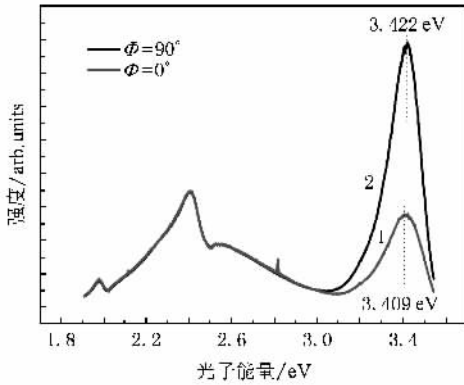


图4 m面 GaN 样品 $E//c$ 和 $E\perp c$ 两个方向的偏振光致发光谱

带边峰的变化主要与各向异性应力下价带结构相关. 根据 K·P 理论^[13] : 受 c 面内各向同性应力时, 轻、重空穴带由两个在平面内等价的类 p 型轨道组成, 在 Γ 点轻、重空穴带简并; 而受 c 面内各向异性应力作用时, 轻、重空穴带分裂形成类 $|y\rangle$ 和类 $|x\rangle$ 轨道, 对应的跃迁发生偏振选择, 同时两种跃迁的能量分别发生改变. 晶场分裂空穴带的相对位置由 c

轴方向的应力决定. 对于本文样品 $\epsilon_y = 0.376\%$, $\epsilon_x = -0.896\%$, $\epsilon_z = -0.158\%$ 轻、重空穴带发生偏振选择, 并且简并解除, 重空穴带上升, 轻空穴带下降到晶场分裂空穴带之下, 如图 5 所示.

图 5 中给出的从导带跃迁到价带的两种辐射复合分别对应图 4 中所示的两个方向的偏振谱, 其中, $E\perp c$ 是从导带 CB 跃迁到 HH, $E//c$ 是从 CB 跃迁到 CH. 显然, $E//c$ 的光子能量大于 $E\perp c$ 能量, 与实验结果相符. 由于 m 面 GaN 材料的空穴填充效应, 能量较高的晶场分裂空穴带的载流子浓度较低, 对应的跃迁概率也较低, 因此 $E//c$ 偏振对应的辐射复合强度较小, 也与实验结果相同. 所得 m 面 GaN 样品较大的发光偏振度, 有利于进一步研究设计偏振光电器件.

GaN 中的黄带发光一般被认为对应于浅施主与深受主之间的跃迁. 文献报道深受主很可能为生长中产生的镓空位^[14], 并且重掺杂可以抑制黄带, 本文中 m 面 GaN 样品掺杂浓度较大, 黄带强度低于带边峰强度, 与文献报道一致^[15]. 由于跃迁机理与带边峰不同, 尽管受到各向异性应力, 黄带跃迁并不表

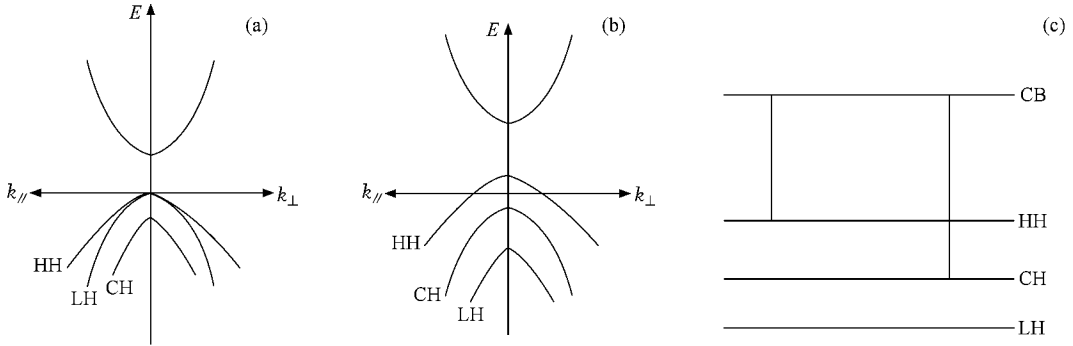


图5 (a)无应变或 c 面内应变各向同性的 GaN 能带结构 (b)应变各向异性的 GaN 能带结构 (c)HH 和 LH 能级劈裂后电子从导带跃迁的辐射复合

现出偏振选择性, 不随偏振角度改变而改变.

4. 总 结

采用金属有机物化学气相沉积方法在 LiAlO_2 衬底上外延生长得到较理想的 m 面晶体取向的 GaN

薄膜. 基于 X 衍射测量的结果, 计算了样品的各向异性应变, 通过摇摆曲线的测量验证了 m 面 GaN 的面内结构各向异性. 偏振光致发光研究表明材料的带边发光峰峰位和强度均有明显面内光学各向异性, 并结合各向异性应力下的 K·P 理论对其进行了解释.

- [1] Youn C. J , Jeong T S , Han M S *et al* 2003 *J. Crystal Growth* **250** 331
- [2] Nakamura S , Senoh M , Iwasa N , Nagahama S 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 1868
- [3] Nakamura S , Senoh M , Nagahama S , Iwasa M , Yamada T , Matsushita T , Kiyoku H , 1996 *Jpn. J. Appl. Phys.* **35** 74
- [4] Khan M A , Kuznia J N , Olson D T , VanHove J M , Blasingame M , Reitt L F 1992 *Appl. Phys. Lett.* **60** 2917
- [5] Khan M A , Kuznia J N , Olson D T , Blasingame M , Bhattarai A R 1995 *Appl. Phys. Lett.* **63** 2455
- [6] Osinsky A , Gangopadhyay S , Gaska R , Williams B , Khan M A , Kaksenka S , Temkin H 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 2334
- [7] Nakamura S , Senoh M , Nagahama S , Iwasa N , Yamada T , Matsushita T , Kiyoku H , Sugimoto Y , Kozaki T , Umeno H , Sano M , Chocho K 1997 *Jpn. J. Appl. Phys.* **36** L1568
- [8] Waltereit P , Brandt O , Trampert A , Grahn H T , Menniger J , Ramsteiner M , Reiche M , Ploog K H 2000 *Nature* **406** 865
- [9] Chitnis A , Chen C Q , Adivarahan V , Shatalov M , Kuokstis E , Mandavilli V , Yang J W , Asif Khan M 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3663
- [10] Chen C Q , Adivarahan V , Yang J W , Kuokstis E , Khan M A 2003 *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2* **42** L1039
- [11] Wang H M , Chen C Q , Zheng G , Zhang J P , Mikhail Gaevski , Su M , Yang J W , Asif Khan M 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 499
- [12] Paskova T , Darakchieva V , Paskov P P , Birch J , Valcheva E , Persson P O A , Arnaudov B , Tungasmita S , Monemar B , 2005 *J. Crystal Growth* **281** 55
- [13] Domen K , Horino K , Kuramata A , Tanahashi T 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 14
- [14] Van de Walle C G , Neugebauer J 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 3851
- [15] Nakamura S , Fasol G 1997 *The Blue Laser Diode* (Berlin Springer Press)

Structural and optical in-plane anisotropy of m-plane GaN^{3*}

Wu Chao , Xie Zi-Li[†] Zhang Rong Zhang Zeng Liu Bin Li Yi Fu De-Yi

Xiu Xiang-Qian Han Ping Shi Yi Zheng You-Dou

(Jiangsu Provincial Key Laboratory of Advanced Photonic and Electronic Materials , Department of Physics , Nanjing University , Nanjing 210093 , China)

(Received 23 April 2008 ; revised manuscript received 13 May 2008)

Abstract

The m-plane GaN film is grown on LiAlO₂ by metal organic chemical vapor deposition. The single crystal orientation of m-plane GaN is demonstrated , According to the X-ray diffraction results , and the anisotropy strain is calculated. X-ray rocking curve at different φ angle shows obvious in plane structural anisotropy. Polarized photoluminescence is employed for the investigation of optical anisotropy. Both the wavelength and the intensity for the emission peak near band edge vary with the rotation of polarization angle , and can be explained by the degeneration of the subbands in valence band under anisotropy strain.

Keywords : m-plane GaN , structural anisotropy , polarized photoluminescence

PACC : 7280E , 7360F , 7865K , 8115H

* Project supported by the Special Funds for Major State Basic Research Project 973 (Grant No. 2006CB6049) , Hi-tech Research Project (Grant Nos. 2006AA03A103 , 2006AA03A118 , 2006AA03A142) , National Nature Science Foundation of China (Grant Nos. 60721063 , 60676057 , 60731160628 , 60776001) , NFFTBSC (J0630316) the Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20050284004).

[†] E-mail : xzl@nju.edu.cn