

引入 n 型 InGa_xN/GaN 超晶格层提高量子阱特性研究^{*}

邢艳辉[†] 邓 军 韩 军 李建军 沈光地

(北京工业大学电子信息与控制工程学院 北京 100124)

(2008 年 6 月 16 日收到 2008 年 7 月 12 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了 InGa_xN/GaN 量子阱结构. 研究了引入 n 型 InGa_xN 薄层或 InGa_xN/GaN 超晶格层的量子阱特性. 结果表明通过引入 n 型 InGa_xN 薄层或 InGa_xN/GaN 超晶格层缓解了量子阱有源区中的应力, 改善了多量子阱表面形貌, 减少了 V 型缺陷密度, 而且提高了多量子阱的光致发光强度, 从而也改进了 LED 的发光效率.

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

PACC: 7855, 6855

1. 引 言

近年来 InGa_xN/GaN 多量子阱(MQW)作为蓝绿光及近紫外范围发光二极管有源区的研究越来越广泛而深入. 人们已经对有源区材料外延生长条件进行了大量的实验研究, 如生长温度、垒层的掺杂^[1,2], 阱和垒的厚度^[3,4]等等. 影响 InGa_xN/GaN 量子阱发光特性的因素很多, GaN 外延层和蓝宝石衬底之间存在大的晶格失配, 在量子阱下面 GaN 层和蓝宝石衬底之间形成高密度的穿透位错(螺旋、刃型和混合位错), 穿透位错能够沿着 c 轴生长方向到达量子阱有源区, 并在有源区即穿透位错末端形成 V 型缺陷, 破坏 InGa_xN/GaN 量子阱界面, 进而影响量子阱发光特性. Shiojiri 等人^[5]通过高角环形暗场扫描透射电子显微镜观察到穿透位错到达量子阱有源区形成 V 型缺陷, 而且研究表明在穿透位错到达的第一个量子阱处, V 型缺陷开始成核. 因此, 为了减少穿透位错到达量子阱有源区的数量, 进而降低有源区 V 型缺陷密度, 有人在蓝宝石衬底上通过横向外延 GaN 方法^[6]或者在此基础上引入 AlGa_xN/GaN 应力超晶格层^[7,8]. 本文首先分析了在有源区下面引入 n 型 InGa_xN 层的单量子阱表面形貌, 在此基础上, 研究

引入 n 型 InGa_xN/GaN 超晶格层的 MQW 特性.

2. 实 验

实验样品采用美国 Veeco 公司生产 D180 型的金属有机物化学气相淀积(MOCVD)设备. 外延材料淀积在 $\phi 50$ mm 蓝宝石 c 面(0001)衬底上, 三甲基镓(TMGa), 三甲基铟(TMIn), 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. 先低温(530—550℃)生长 30 nm 厚的 GaN 缓冲层, 然后升温到 1080℃左右生长本征 GaN. 进行如下实验方案: 实验一是引入 n 型 In_xGa_{1-x}N 层单量子阱的实验, 具体为: QW01 样品 In_xGa_{1-x}N/GaN 结构直接生长在 n-GaN 层上, QW02 样品在生长量子阱之前先生长一层厚度为 25 nm 的 n 型 In_xGa_{1-x}N 层. 实验二是引入厚度为 25 nm 的 5 个周期 n 型 In_xGa_{1-x}N(2 nm)/GaN(3 nm)超晶格层多量子阱的实验, 具体为: MQW01 样品的 5 个周期 In_xGa_{1-x}N(3 nm)/GaN(12 nm)多量子阱结构直接生长在 n 型层上, MQW02 样品是在生长 In_xGa_{1-x}N(3 nm)/GaN(12 nm)多量子阱之前, 在 n-GaN 层上先 n 型生长 5 个周期的 In_xGa_{1-x}N(2 nm)/GaN(3 nm)超晶格层. 四个样品 In_xGa_{1-x}N 量子阱区 In 的流量、生

^{*} 北京市教委(批准号: KM200810005002)和北京市属市管高等学校人才强教计划 PHX(IHLB)项目资助的课题.

[†] E-mail: xingyanhui@bjut.edu.cn

长温度和垒的生长温度相同,详细结构如图 1 所示.为进一步验证引入的 n 型 $In_xGa_{1-x}N/GaN$ 超晶格层对 LED 器件性能的影响,又生长一组 LED 结构样品,LED01 和 MQW01 结构对应,LED02 和 MQW02 结构对应.采用常规工艺方法制作 LED 器件,对管芯采用远方 PMS-50 光谱分析仪和 LED620 光强计进行光谱以及轴向光强测试.量子阱样品的表面形貌

采用 Veeco 公司生产的 Nanoscope III a 型原子力显微镜 (AFM) 观察,以轻敲模式,扫描阵列为 512×512 . X 射线双晶衍射 (DCXRD) 采用 BEDE 公司 QC 200 系统,对样品 (0002) 面做 $\omega-2\theta$ 联动扫描.光致发光 (PL) 测量激发光源采用 325 nm 波长 He-Cd 激光器,采用 1 mm 狭缝.

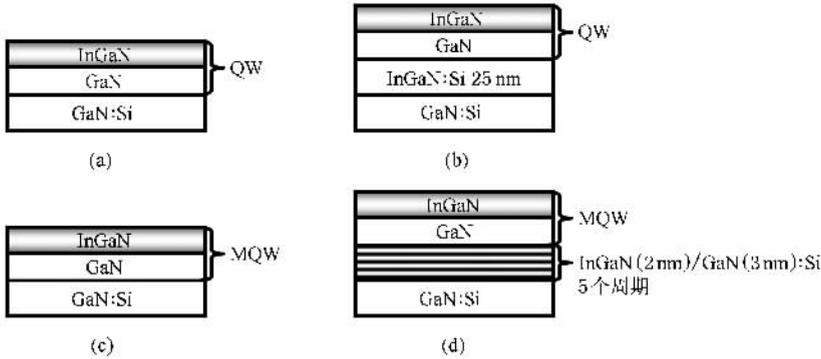


图 1 样品结构示意图 (a)QW01 (b)QW02 (c)MQW01 (d)MQW02

3. 实验结果与讨论

3.1. 表面形貌分析

图 2 是 QW01 样品 AFM 表面形貌.从图 2(a)中可以清楚地看到,QW01 样品的表面呈岛状形貌,这主要由于量子阱有源区和下面 GaN 层之间的应力导致 In 组分不均匀,因而呈岛状生长^[9].而且,每个岛状上都至少有一个暗点,其平均大小约为 0.03

μm^2 密度约为 $9.6 \times 10^8 cm^{-2}$,从图中最大的暗点很明显地看到其呈六角形状.这些暗点和具有螺旋位错、刃型位错特征的穿透位错对应,这和 Shiojiri 等人通过 TEM 观察到在穿透位错末端形成 V 型缺陷一致.图 2(b)是图 2(a)中任意一条线上的 QW01 样品的表面分析图,从图中看到大部分 V 型缺陷的深度在 3.5 nm 以下,而实验量子阱层厚度为 3 nm,而且图中较大的 V 型缺陷深度超过 6 nm,这足以说明 V 型缺陷从第一个量子阱就已经开始形成了,这基本符合了 Sharma 等人^[10]通过 TEM 观察到 V 型缺陷

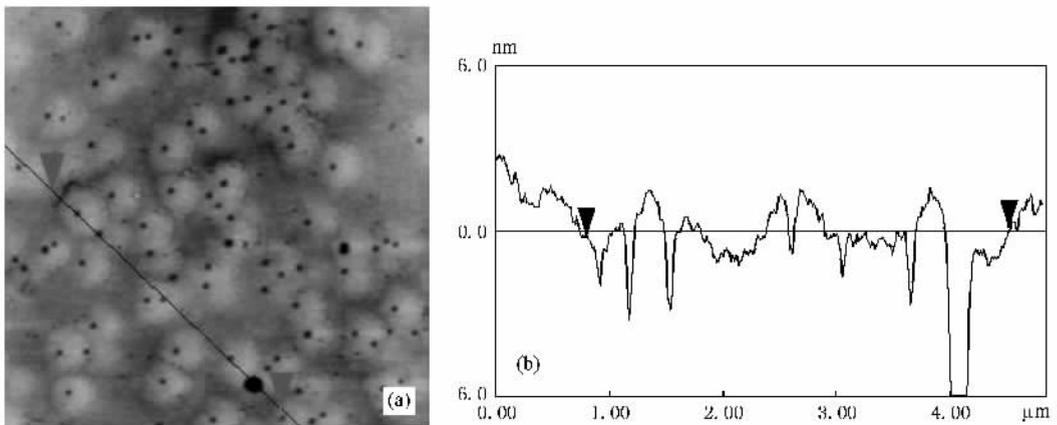


图 2 $5 \times 5 \mu m$ 的 QW01 样品 AFM 表面形貌 (a)表面形貌 (b)为(a)中线上分析图

形成始点. 图 3 是 QW02 样品表面形貌, 六角形 V 型缺陷也清楚可见, 但 QW02 样品表面岛状形貌区域趋于扩散状, 变得有些模糊, 这主要是由于引入 InGaN 层后, 有源区和下面 GaN 层之间的晶格失配应力降低导致的. 而且图 3 中六角形 V 型缺陷开口面积变大, 平均大小约为 $0.05 \mu\text{m}^2$, 密度约为 $5.2 \times 10^8 \text{cm}^{-2}$ 和 QW01 样品 V 型缺陷密度相比, 降低约一半. V 型缺陷密度降低的原因很可能是通过在量子阱层下面引入 25 nm 的 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 层, 减少了来自量子阱下面 GaN 层和蓝宝石衬底之间失配而产生的穿透位错到达量子阱区的数量, 而大部分 V 型缺陷开口面积变大可能与引入 InGaN 层中 In 的成分相关^[11].

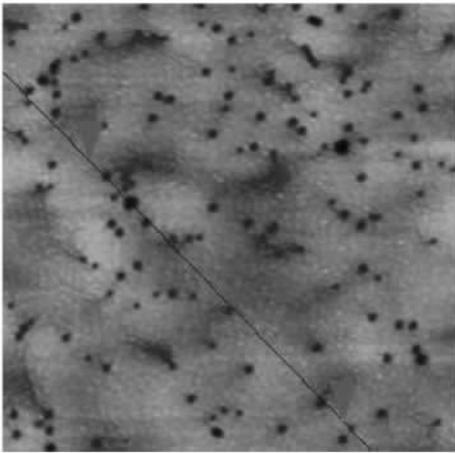


图 3 $5 \times 5 \mu\text{m}$ 的 QW02 样品 AFM 表面形貌

图 4 (a) 和 (b) 分别是 MQW01 和 MQW02 样品的 AFM 表面形貌. 在图 4 (a) 和 (b) 中均未观察到 V 型缺陷, 而实际上, 从第一个量子阱开始, V 型缺陷就已经形成, 从前面的实验中我们已经观察到. 但是从图 4 中看到样品表面分布大量的粗糙颗粒, MQW01 表面颗粒大而密集, MQW02 表面颗粒小而稀疏, 且较平滑些. 表面形貌的粗糙颗粒可能与 In 原子和 V 型缺陷有关, 因为 In 原子对 V 型缺陷形成起着重要的作用, 它可以通过在穿透位错中心周围应力场俘获和偏析, 制造 V 型缺陷核子的掩模, 能够阻止 Ga 原子迁移到 (0001) 单层形成平滑表面. Hiramatsu 等人^[12]通过变化反应室的压力和温度研究表明, 增加反应室的压力或降低温度, 提高 Ga 原子表面迁移率, 致使 (0001) 表面平滑. 而且, Cho 等^[13]研究表明 V 型缺陷不仅和穿透位错有关, 在 (0001) 面沿 c 轴方向 InGaN/GaN 多量子阱的应力弛豫形成堆垛层错, 堆垛错配间界和堆垛层错紧密相关, 最终形成 V 型缺陷. 因此, MQW02 样品表面较平滑主要由于引入 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ /GaN 超晶格层缓解了量子阱有源区中的应力, 减少了 V 型缺陷密度. 从图 4 中还看到片状凹陷区域, MQW02 表面片状凹陷区域分布有一定规则. 这些片状凹陷形貌可能由于 InGaN 中 InN 分离、富 InN 区形成导致的, 片状凹陷区域有可能阻挡电子和空穴进入非辐射复合通道, 因而起到在穿透位错或穿透位错周围的非辐射复合^[14,15]屏蔽作用, 从而也增加了电子和空穴在量子阱的横向积累, 并成为俘获电子和空穴的三维深势阱, 提高量子阱发光效率, 增强带边发射强度.

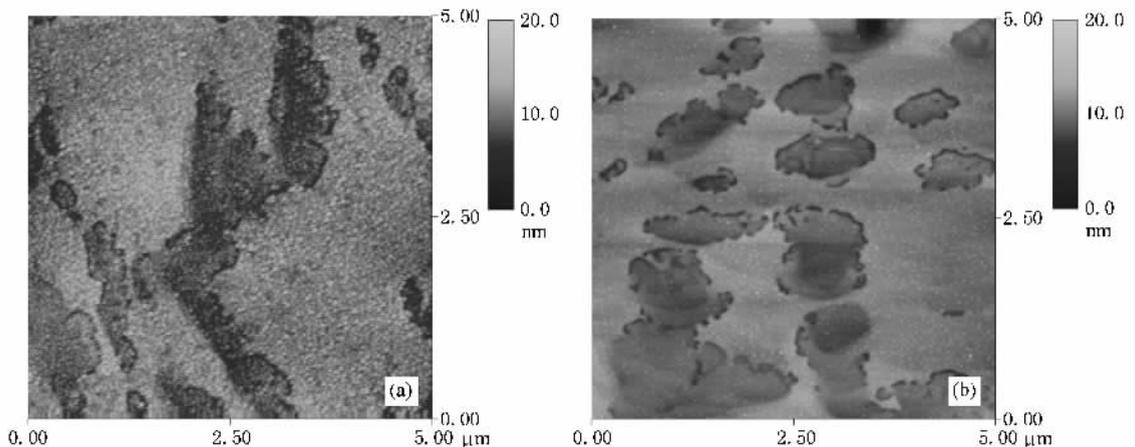


图 4 $5 \times 5 \mu\text{m}$ 样品的 AFM 表面形貌 (a)MQW01 (b)MQW02

3.2. 光学特性分析

图 5(a)和(b)分别是 MQW01 和 MQW02 样品 DCXRD 扫描曲线,图中衍射曲线强度最大的峰为 GaN 衍射峰,此处 GaN 衍射峰的峰值半高宽(FWHM)比本征 GaN 的 FWHM 明显地宽得多,这里除了位错、应变等因素展宽之外,实际上图中 GaN 衍射峰包含量子阱有源区超晶格的零级峰,

比较图 5(a)和(b),在 GaN 衍射峰的中部到底部看到两个样品衍射峰明显不同(在图 5(b)中用虚线标出),这主要由于 MQW02 样品引入的 n 型 In_xGa_{1-x}N/GaN 超晶格结构衍射和量子阱超晶格零级峰相互干涉的结果.两个样品的衍射曲线均能清楚地看到第四级卫星峰,卫星峰尖锐且等间距,这说明样品有完整的结晶质量和均匀的周期.

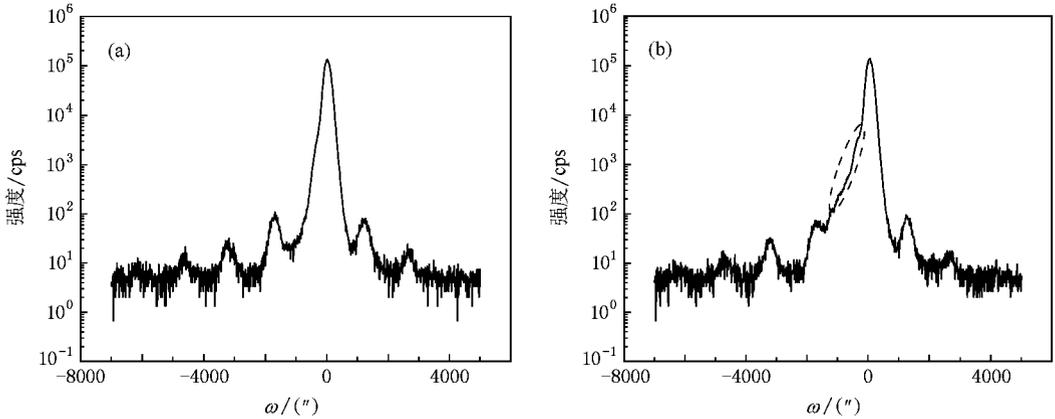


图 5 MQW 样品 DCXRD 衍射曲线 (a)MQW01 ;(b)MQW02

为了说明引入 In_xGa_{1-x}N/GaN 超晶格结构对 MQW 发光特性的影响,对两个样品分别进行 PL 测试,图 6(a)和(b)分别是样品 MQW01 和 MQW02 的光致发光谱.从图中看到样品 MQW01 和 MQW02 量子阱的发光波长分别为 459.1 nm 和 459.6 nm,发光波长 364 nm 为 GaN 的本征发光峰,570—580 nm 左右较宽的发光带为黄光带,在图 6(b)中发光波长

405.3 nm 是由引入 In_xGa_{1-x}N/GaN 超晶格层引起的.比较两个样品的量子阱 PL 发光强度,MQW01 峰值相对强度为 1.987,MQW02 的峰值强度为 2.845,样品 MQW02 的 PL 相对强度明显比样品 MQW01 的相对强度提高 43.8%,而且黄光峰也很弱.MQW 发光强度提高主要有两个原因:一是引入 In_xGa_{1-x}N/GaN 超晶格结构可以减少 GaN 和蓝宝石

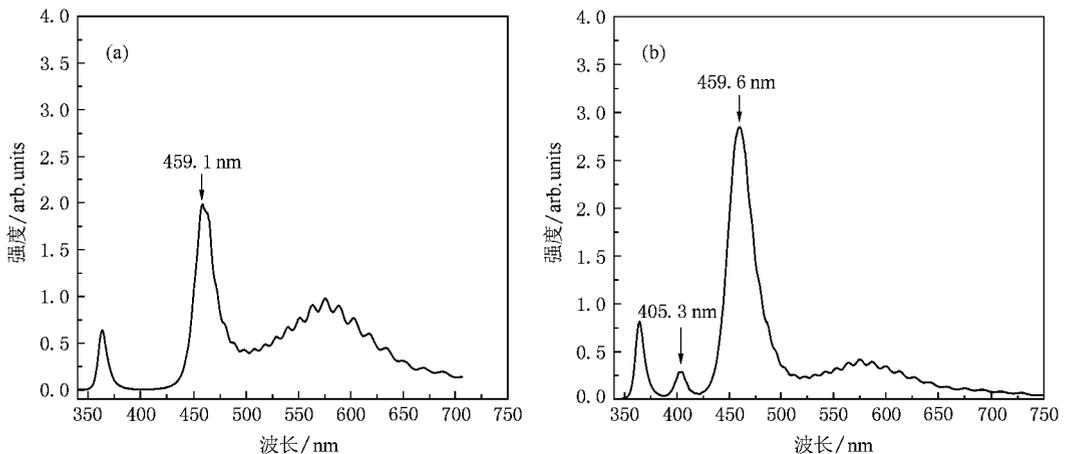


图 6 MQW 样品的 PL 谱 (a)MQW01 ;(b)MQW02

衬底之间失配而产生的穿透位错到达有源区的数量,从而减少了有源区的非辐射复合中心;二是由于引入 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 超晶格层的平均晶格常数和没有引入该结构的 n 型 GaN 晶格常数相比增加了,这减小了多量子阱有源区和 n 型层晶格常数的差异,使多量子阱有源区中由于晶格失配而产生的应力在 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 超晶格结构中能够得到释放。

3.3. LED 性能测试

图 7 是 LED 在 20 mA 电流时两个样品的光强分布曲线,LED01 的轴向光强是 9.78 cd,LED02 的轴向光强是 14.18 cd. LED01 和 LED02 样品经光谱测试,LED01 光功率是 3.32 mW,LED02 光功率是 5.79 mW. 由此看出,在 20 mA 注入电流条件下轴向光强和光功率分别提高 45%,74.4%. LED02 器件性能的提高和有源区晶体质量改善及其表面形貌有关,这也和前面相应的 MQW 的 PL 结果一致,再次证明了引入 n 型 $\text{InGaIn}/\text{GaIn}$ 超晶格层能够改善量子阱有源区的发光特性。

4. 结 论

利用 MOCVD 技术在蓝宝石衬底上生长了

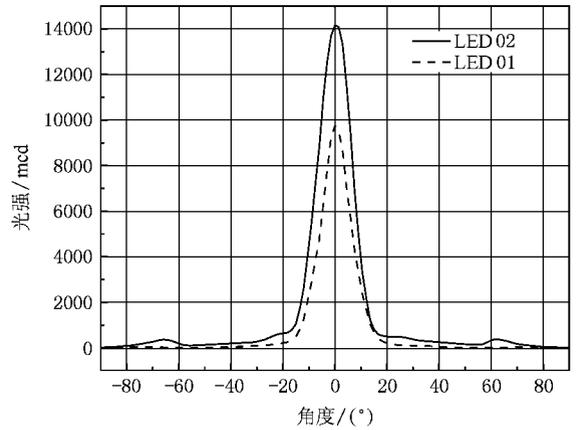


图 7 注入电流为 20 mA 时 LED 的光强分布曲线

$\text{InGaIn}/\text{GaIn}$ 量子阱结构. 通过引入 n 型 InGaIn 薄层或 $\text{InGaIn}/\text{GaIn}$ 超晶格层缓解了量子阱有源区中的应力,使 V 型缺陷密度降低约一半,改善了多量子阱表面形貌;由于减小了多量子阱有源区和 n 型 GaIn 晶格常数的差异,有源区中由晶格失配而产生的应力在 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaIn}$ 超晶格层中得到释放,降低了极化效应,多量子阱的 PL 强度提高了 43.8%,相应的 LED 器件 20 mA 电流时光功率和轴向光强分别提高了 74.4% 45%.

- [1] Cho Y H, Fedler F, Hauenstein R J, Park G H, Song J J J 1999 *Appl. Phys.* **85** 3006
- [2] Xing Y H, Han J, Liu J P, Deng J, Niu N H, Shen G D 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 7295 (in Chinese) [邢艳辉、韩 军、刘建平、邓 军、牛南辉、沈光地 2007 物理学报 **56** 7295]
- [3] Shee S K, Kwon Y, Lam J, Gainer G, Park G, Song J J 2000 *J. Crystal Growth* **221** 373
- [4] Statake A, Masmoto Y, Miyajima T, Asatauma T, Nakamura S, Ikeda M 1998 *Phys. Rev. B* **57** R2041
- [5] Shiojiri M, Chou C C, Hsu J T, Yang J R, Saijo H 2006 *J. Appl. Phys.* **99** 073505
- [6] Nam O H, Bremser M D, Zheleva T, Davis R F 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 2638
- [7] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S, Iwasa N, Yamada T, Matsusita T, Kiyoku S S H, Kozaki T, Umemoto H, Seno M, Chocho K 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 211
- [8] Kozodoy P, Hamsen M, Denbaars S P, Mishra U K, Kaauffman J 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 3681
- [9] Lin Y S, Ma K J, Hsu C, Feng S W, Cheng Y C, Liao C C, Yang C C, Chou C C, Lee C M, Chyi J 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2988
- [10] Nikhil S, Thomas P, Tricker D, Humphreys C 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 1274
- [11] Chen Y, Takeuchi T, Amano H, Akasaki I, Yamada N, Kaneko Y, Wang S Y 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 710
- [12] Hiramatsu K, Nishiyama K, Motogaito A, Miyake H, Iyechila Y, Maeda T 1999 *Phys. Status Solidi A* **176** 535
- [13] Cho H K, Lee J Y, Kim Ch S, Yang G M, Sharma N, Humphreys C 2001 *Journal of Crystal Growth* **231** 466
- [14] Chichibu S, Azuhata T, Sota T, Nakamura S 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 4188
- [15] Narukawa Y, Kawakami Y, Funato M, Fujita Sz, Fujita S, Nakamura S 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 981



Improving the quantum well properties with n-type InGaN/GaN superlattices layer^{*}

Xing Yan-Hui[†] Deng Jun Han Jun Li Jian-Jun Shen Guang-Di

(College of Electronic Information and Control Engineering , Beijing University of Technology , Beijing 100124 , China)

(Received 16 June 2008 ; revised manuscript received 12 July 2008)

Abstract

InGaN/GaN quantum wells have been grown by metal-organic chemical vapor deposition. InGaN/GaN quantum well with n-type InGaN/GaN thin layer or InGaN/GaN superlattice layer were studied. By introducing n-type InGaN/GaN thin layer or InGaN/GaN superlattice layer, the strain in quantum well active area was released, the surface morphology was improved and the density of V-type defect was reduced. It was also found that the multiple quantum well photoluminescence intensity and the radiation efficiency of light emitting diodes were both higher than that of the structure without InGaN/GaN superlattice layer.

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

PACC : 7855, 6855

^{*} Project supported by the Education Committee of Beijing(Grant No. KM200810005002), Funding Project for Academic Human Resources Development in Institutions of Higher Learning Under the Jurisdiction of Beijing Municipality(PHR(IHLB)).

[†] E-mail : xingyanhui@bjut.edu.cn