

In 源流量与Ⅲ族流量之比对 InGaN/GaN 多量子阱性质的影响 *

张纪才¹⁾ 王建峰^{1,2)} 王玉田¹⁾ 杨 辉¹⁾

¹⁾(中国科学院半导体研究所 集成光电子国家重点实验室 ,北京 100083)

²⁾(武汉大学物理系 ,武汉 430072)

(2003 年 9 月 25 日收到 2003 年 11 月 11 日收到修改稿)

利用 x 射线三轴晶衍射和光致发光谱研究了生长参数 In 源流量与Ⅲ族流量之比对 InGaN/GaN 多量子阱结构缺陷(如位错密度和界面粗糙度) 和光致发光的影响 . 通过对 (0002) 对称和 (1012) 非对称联动扫描的每一个卫星峰的 ω 扫描 , 分别测量出了多量子阱的螺位错和刃位错平均密度 , 而界面粗糙度则由 (0002) 对称衍射的卫星峰半高全宽随级数的变化得出 . 试验发现多量子阱中的位错密度特别是刃位错密度和界面粗糙度随 In 源流量与Ⅲ族源流量比值的增加而增加 , 导致室温下光致发光性质的降低 , 从而也证明了刃位错在 InGaN/GaN 多量子阱中充当非辐射复合中心 . 试验同时发现此生长参数对刃位错的影响远大于对螺位错的影响 .

关键词 : x 射线三轴晶衍射 , 界面粗糙度 , 位错 , InGaN/GaN 多量子阱

PACC : 0785 , 6170P , 6170J

1. 引言

GaN 基半导体材料在制备紫外探测器、发光二极管、激光二极管和高能高温器件等领域具有广泛的应用前景 , 因此近年来越来越引起人们的关注^[1-7] . 其中 InGaN 合金半导体可以通过改变 In 的组分获得从可见光到紫外光的发光范围 , 通常作为蓝绿发光二极管和激光二极管的有源层^[8-10] . 但是由于 InGaN 阵与 GaN 垒之间以及外延层与衬底之间存在较大的晶格失配 , 导致生长过程中不可避免的出现失配位错 . 研究表明 , 位错在 InGaN 和 GaN 外延层中通常充当非辐射复合中心^[11-13] , 但在 InGaN/GaN 多量子阱中的作用却尚未研究清楚 . 据我们所知 , 目前还没有有关Ⅲ族氮化物多量子阱中位错测量方法方面的报道 . 本工作通过对多量子阱 (0002) 和 (1012) 联动扫描的每一个卫星峰的 ω 扫描 , 分别测量出了多量子阱的螺位错和刃位错平均密度 . 此外 , 生长条件不同造成的界面粗糙度也是影响多量子阱发光性质的一个重要结构缺陷 . 本文研究了流量比值 TMIn/(TMIn + TMGa) 对 InGaN/GaN 多

量子阱位错密度和界面粗糙度 , 以及对光致发光的影响 .

2. 实验及理论

$In_x Ga_{1-x} N / GaN$ 多量子阱样品是在蓝宝石衬底上用金属有机物化学汽相淀积(MOCVD) 法生长的 . 生长时分别用氨气 (NH_3) 三甲基镓 (TMGa) 和三甲基铟 (TMIn) 作为 N , Ga 和 In 的反应源 , 用 H_2 作为载气 . 阵和垒的生长温度分别为 710 和 860°C . 在生长多量子阱之前 , 首先在蓝宝石衬底上生长一层 GaN 缓冲层 (530°C) , 再在 1040°C 先后生长一层约 1 μm 的本征 GaN 和 1.5 μm 的 Si 掺杂 GaN . 最后在多量子阱结构上面覆盖一层约 30 nm 的本征 GaN (1040°C) . 所有的样品都包括 10 个周期 (其中 InGaN 阵约 3 nm , GaN 垒厚在 14—19 nm 范围内) , NH_3 流量保持在 6.0 L/min , 反应室压强为 400 Pa . 样品 A 、样品 B 和样品 C 的 TMIn/(TMIn + TMGa) 分别为 0.80 , 0.76 和 0.68 , In 组分分别为 0.9 , 0.11 和 0.14 . 三轴晶 x 射线衍射是在 JPN Rigaku SLX-1A 上测量的 . 室温下的光致发光谱是用 325 nm 的 He-Cd 激光

* 国家自然科学基金(批准号 69825107) 国家自然科学基金及香港研究资助局联合基金(批准号 5001161953 N-HKU028/00) 资助的课题 .

器作激发光源进行测量的。

由运动学理论可知，在对称衍射的情况下，多量子阱的周期 Λ 与卫星峰间距 $\Delta\theta_M$ 的关系^[14]为

$$\Delta\theta_M = \frac{\lambda}{2\Lambda \cos 2\theta_B}, \quad (1)$$

式中 λ 是入射 x 射线波长， θ_B 是衬底的布拉格角。

与单层膜的衍射类似，卫星峰的全宽占据两个干涉条纹的距离。因此理想的多量子阱的卫星峰理论全宽度 W_f 应为：

$$W_f = 2\Delta\theta_M/M,$$

其中 M 为周期数。

多量子阱的界面粗糙度会导致所谓的“0”级卫星峰宽度保持不变，而其他卫星峰半高全宽会随级数的增加而加宽。如果考虑界面粗糙度造成的周期厚度偏差 σ 按高斯分布时，由动力学理论可知第 n 级卫星峰的半宽度^[15]为

$$W_n = W_0 + (\ln 2)^{1/2} n \Delta\theta_M \cdot \frac{\sigma}{\Lambda}, \quad (2)$$

式中 n 为卫星峰级数， σ/Λ 为界面粗糙度。

实际上 InGaN/GaN 多量子阱中存在大量位错，会导致其 x 射线衍射的 ω 扫描加宽，因此可以通过测量每一个卫星峰的 ω 扫描来估算多量子阱中的平均位错密度。同时卫星峰的 ω 扫描半高全宽只与量子阱中的位错密度有关，不会随卫星峰级数而变化。通常位错密度 ρ 与 ω 扫描半高全宽 β 的关系为^[16]

$$\rho = \beta^2 / (9b^2), \quad (3)$$

式中 b 为位错的布拉格矢量。

3. 实验结果及讨论

图 1 所示是(0002)对称和(1012)非对称三轴晶衍射曲线。图 1 中较强的峰来自作为多量子阱衬底的厚层 GaN，其他较弱的峰为多量子阱的卫星峰。由图中测出卫星峰间距，并根据(1)式计算出多量子阱周期值列于表 1 中。

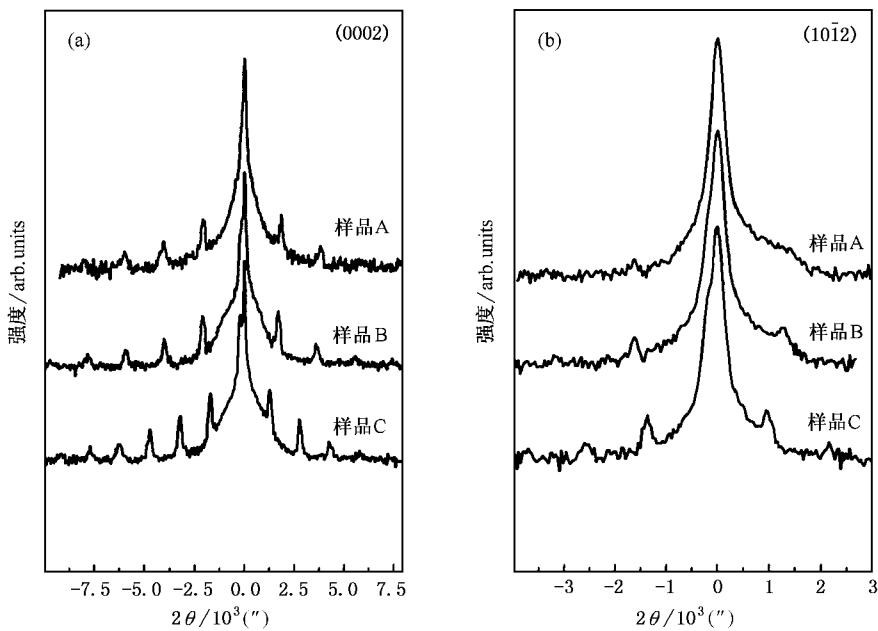


图 1 (0002) 对称和(1012) 非对称三轴晶 $\omega/2\theta$ 衍射曲线

表 1 InGaN/GaN 多量子阱样品的测试结果(包括界面粗糙度、周期值、位错密度)

样品	周期/nm	界面粗糙度/%	螺位错密度/ 10^8 cm^{-2}	刃位错密度/ 10^8 cm^{-2}
A	16.8	6.7	3.1	10.7
B	17.3	7.0	2.9	6.3
C	22.0	3.6	3.8	3.1

图 2 分别示出了各个样品(0002)衍射的卫星峰半高全宽随级数的变化及其线性拟合曲线。很明显，样品 C 的拟合曲线斜率最小，样品 A 和样品 B 的接近。根据(2)式，由拟合曲线斜率计算出的各样品界面粗糙度值列在表 1 中。

根据(3)式，由各个样品的(0002)和(1012)衍射

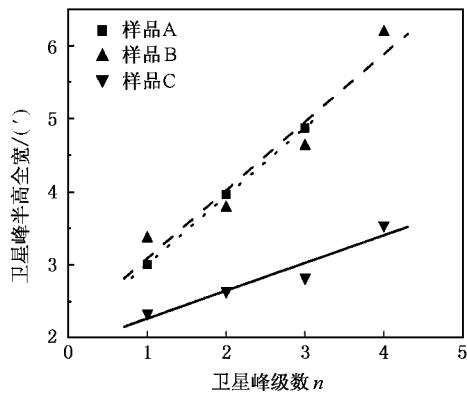


图 2 (0002) 衍射的卫星峰半高全宽随级数的变化及其线性拟合曲线

卫星峰的 ω 扫描平均半高全宽计算出的位错密度也列于表 1. 图 3 是 InGaN/GaN 多量子阱中总位错密度随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的变化关系. 很明显, 总的位错密度随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的增加而增大. 图 3 中的内插图是一个典型的卫星峰(0002) ω 扫描半高全宽随级数的变化趋势, 在小于 5% 的误差范围内可以认为半高全宽不随级数变化. 图 4 示出刃位错和螺位错密度随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的变化关系. 可以看出, 螺位错密度变化不大, 而刃位错密度却随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 增加而增大. 这说明 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 的变化对刃位错的影响远大于对螺位错的影响.

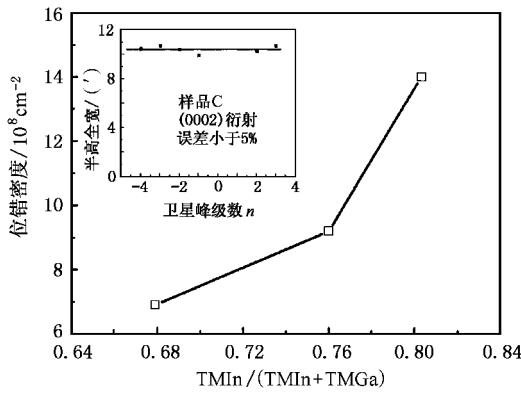


图 3 总位错密度随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的变化关系

图 5 是界面粗糙度随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的变化关系. 从图 5 可以看出, $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的增加导致了界面粗糙度的增大. 图 6 和图 7 分别示出光致发光谱积分强度和半高全宽随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的变化关系. $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的增加降低了光致发光效率, 加宽了

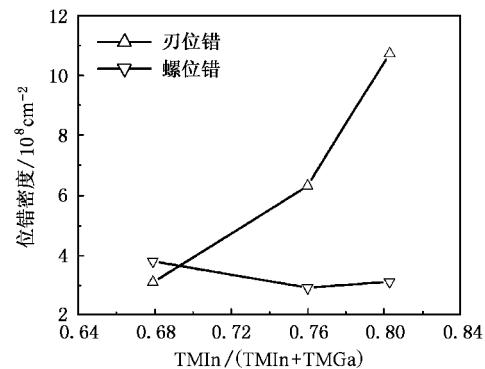


图 4 刃位错和螺位错密度随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的变化关系

发光峰, 从而导致发光性质降低.

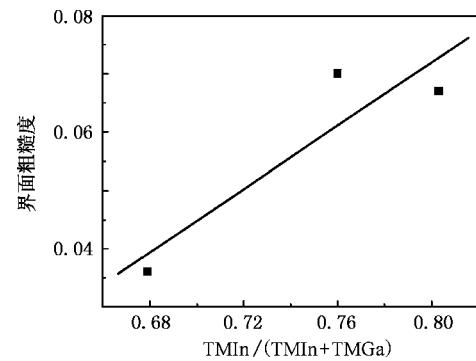


图 5 界面粗糙度随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的变化关系

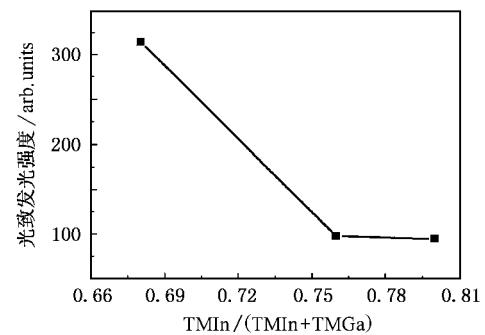


图 6 光致发光谱积分强度随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的变化关系

在本工作中, 决定界面粗糙度的主要因素是合金组分的波动. 在 TMIn 流量过量和其他生长参数相同的条件下, $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的增加会增加 In 组分的波动性, 相应地界面粗糙度也会增加. 这必然会导致阱宽的波动, 从而引起量子阱中子带间相对距离的波动, 这很可能是造成本实验中光致

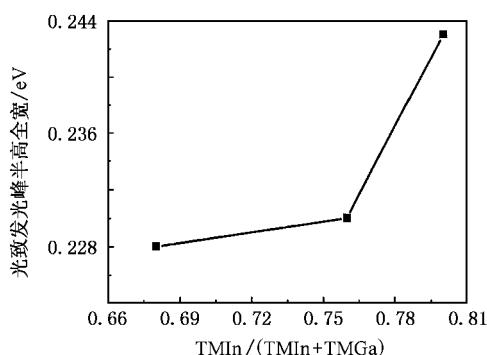


图 7 光致发光峰半高全宽随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的变化关系

发光峰半高全宽随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 值增大而加宽的原因之一。

由图 3 和图 6 可知, 比值 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 的增加导致总的位错密度的增大和多量子阱光致发光强度的降低。因此有理由认为位错在 InGaN/GaN 多量子阱中充当非辐射复合中心, 并且由图 4 可以看出其中刃型位错起主要作用。文献[17]的研究

研究表明, 在 GaN 中当位错密度超过 10^9 cm^{-2} 时, 光致发光强度随位错密度的变化很小。图 6 中样品 A 和样品 B 的刃位错密度相差较大, 而光致发光强度却差别不大, 这可能是在 InGaN/GaN 多量子阱中当刃位错密度达到 $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 后, 非辐射复合中心已经达到饱和的缘故。这个结果表明, 降低位错密度是提高 InGaN/GaN 多量子阱光致发光效率的重要途径。

4. 结 论

本文研究了生长参数 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 对 InGaN/GaN 多量子阱位错密度、界面粗糙度和光致发光的影响。试验发现多量子阱中的位错密度和界面粗糙度随 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 比值的增加而增加。其中比值 $\text{TMIn}/(\text{TMIn} + \text{TMGa})$ 的变化对刃位错的影响要远大于对螺位错的影响。这些结构缺陷的增加导致了室温下光致发光性质的降低, 同时也证明了刃位错在 InGaN/GaN 多量子阱中充当非辐射复合中心。

-
- [1] Lim B W, Chen Q C, Yang J Y et al 1999 *Appl. Phys. Lett.* **68** 3761
 - [2] Nakamura S, Senoh M, Lwasa N et al 1995 *Jpn. J. Appl. Phys.* (Part 2) **34** L1332
 - [3] Wu Y F, Keller B P, Keller S et al 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 1438
 - [4] Zhang J C, Dai L, Qin G G et al 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 629 (in Chinese) [张纪才、戴伦、秦国刚等 2002 物理学报 **51** 629]
 - [5] Jiang R L, Wang J Z, Chen P et al 2002 *Chin. Phys. Lett.* **19** 1553
 - [6] Zhou J, Zhang G Y 2002 *Chin. Phys. Lett.* **19** 707
 - [7] Zhou J J, Jiang R L, Sha J et al 2003 *Chin. Phys.* **12** 785
 - [8] Wright A F, Nelson J S 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 3051
 - [9] McCluskey M D, Van de Walle C G, Master C P et al 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 2725
 - [10] Pereira S, Correia M R, Monteiro T et al 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2137
 - [11] Rosner S J, Car E C, Ludowise M J et al 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 420
 - [12] Sugahara T, Sato H, Hao M et al 1998 *Jpn. J. Appl. Phys.* **37** L389
 - [13] Speck J S, Rosner S J 1999 *Physica B* **273—274** 24
 - [14] Bowen D K, Tanner B K 1998 *High Resolution x-ray Diffractometry and Topography* (Padstow: T.J. International Ltd.) p64
 - [15] Pan Z, Wang Y T, Zhiyang Y et al 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 223
 - [16] Hirsch P B 1956 *Mosaic Structure* (New York: Pergamon) Chap 6
 - [17] Karpov S Y, Makarov Y N 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 4721

Effect of the ratio of TMIn flow to group III flow on the properties of InGaN/GaN multiple quantum wells^{*}

Zhang Ji-Cai¹⁾ Wang Jian-Feng^{1,2)} Wang Yu-Tian¹⁾ Yang Hui¹⁾

¹⁾ State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, Institute of Semiconductor, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China

²⁾ Department of Physics, Wuhan University, Wuhan 430072, China

(Received 25 September 2003; revised manuscript received 11 November 2003)

Abstract

Triple-axis x-ray diffraction (TXRD) and photoluminescence (PL) spectra are used to assess the influence of the ratio of TMIn flow to group III flow on structural defects, such as dislocations and interface roughness, and optical properties of multiple quantum wells (MQWs). In this paper the mean densities of edge and screw dislocations in InGaN/GaN MQWs are obtained by ω scan of every satellite peak of (0002) symmetric and (1012) asymmetric diffractions. At the same time, the interface roughness is measured by the ratio of the full width at half maximum of satellite peaks to the peak orders. The experimental results showed that the density of dislocation, especially of edge dislocation, and interface roughness increase with the increase of the ratio, which leads to the decrease of PL properties. It also can be concluded that the edge dislocation acts as nonradiative recombination centers in InGaN/GaN MQWs. Also noticed is that the variation of the ratio has more influence on edge dislocation than on screw dislocation.

Keywords: triple-axis x-ray diffraction, interface roughness, dislocation density, InGaN/GaN multiple quantum wells

PACC: 0785, 6170P, 6170J

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 69825107), the National Natural Science Foundation of China and the Research Grants Council of Hong Kong Joint Program (Grant Nos. 5001161953 and N-HKU028/00).