

# 博士学位论文

# GaN 基绿光激光器的 MOCVD 生长与表征

 作者姓名:
 田爱琴

 指导教师:
 刘建平 研究员

 学位类别:
 工学博士

 学科专业:
 微电子学与固体电子学

研究所: \_\_\_\_\_中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所\_\_\_\_\_

二零一七 年 五 月

# MOCVD growth and characterization of GaN-based green laser diodes

By Aiqin Tian

A Dissertation Submitted to

The University of Chinese Academy of Sciences

In partial fulfillment of the requirement

For the degree of

**Doctor of ENGINEERING** 

In Microelectronics and Solid State Electronics

Suzhou Institute of Nano-Tech and Nano-Bionics, University of Chinese

Academy of Sciences May, 2017

# 关于学位论文使用权声明

任何收存和保管本论文各种版本的单位和个人,未经著作权人授权,不得将 本论文转借他人并复印、抄录、拍照、或以任何方式传播。否则,引起有碍著作 权人著作权益之问题,将可能承担法律责任。

## 关于学位论文使用授权的说明

本人完全了解中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所有关保存、使用学 位论文的规定,即:中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所有权保留学位论 文的副本,允许该论文被查阅;中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所可以 公布该论文的全部或部分内容,可以采用影印、缩印或其他复制手段保存该论文。

(涉密的学位论文在解密后应遵守此规定)

签名:田爱琴导师签名:文子子 日期:201、5.26

# 关于学位论文原创性声明

本人郑重声明: 所呈交的学位论文是本人在导师指导下, 独立进行研究工作 所取得的成果。尽我所知, 除文中已经注明引用的内容外, 本学位论文的研究成 果不包含任何他人享有著作权的内容。对本论文所涉及的研究工作做出贡献的其 他个人和集体, 均已在文中以明确方式标明。

研究生学习阶段的这几年,是我人生中最宝贵的经历。在这几年中,我不仅 收获了专业系统的理论知识体系,也学会了遇到问题不断钻研不断探索的精神。 在此,对在研究生学习生涯中帮助过我的人表示衷心的感谢:

感谢我的导师刘建平研究员。本研究及学位论文是在刘老师的悉心指导下完成的。刘老师是我的科研启蒙老师,从课题的选择到最终完成,刘老师不仅给予 我悉心的指导,也为我提供了优越的实验条件。他严谨的科研态度,勤奋的工作 作风,丰富的实践经验都让我受益良多。在此谨向刘老师致以诚挚的谢意和崇高 的敬意。

感谢杨辉研究员在论文研究工作中给予的无私的指导和教诲。杨老师丰富的 理论知识体系和对科研工作的热情深深感染了我。每次组会讨论中杨老师看待问 题的角度、点评和建议都使我受益匪浅。在此向杨老师表示真诚的感谢。

感谢池田昌夫研究员在低温 p 型 AlGaN 限制层测试分析工作中给予的悉心 指导。池田老师渊博的学识、扎实的理论功底、忘我的工作精神令人钦佩。池田 老师对科研认真严谨的态度是我学习的榜样。在此向池田老师表示真挚的感谢。

感谢张立群副研究员在 GaN 基绿光激光器器件制作方面给予的无私帮助。 张老师可靠的器件工艺为我的研究工作提供了保障,也为我们获得室温连续工作 的 GaN 基绿光激光器付出了很多努力。

感谢张书明研究员在研究生学习期间给予的指导与帮助。感谢李德尧研究员 在器件测试方面给予的无私指导,李老师在学习生活中也给了我很多帮助,在此 表示衷心的感谢。感谢孙钱研究员在组会讨论中给予的指导与建议,孙老师思维 活跃,与他的讨论给了我很大的启迪。

感谢实验室各位与我共同奋斗过的兄弟姐妹们:李增成、冯美鑫、周坤、温 鹏雁、蔡金、张峰、周伟、程洋、高雪、胡威威、范晓望、黄莹、黄思溢、江灵 荣、周韧林、胡俊杰、任霄钰、周宇、孙逸、李水明、戴淑君、高宏伟、严威、 程媛、陈小雪、钟耀宗、何俊蕾等,感谢各位在生活和学习中的帮助和陪伴。

感谢苏州纳睿光电有限公司的陈建帆、王旦、姚秀琴、李金龙等工作人员在 器件工艺与测试方面给予的无私帮助。感谢中科院苏州纳米所测试分析平台光电 实验室、扫描探针实验室、结构分析实验室以及电子显微镜实验室的各位老师、 工程师给予的测试分析方面的帮助。感谢中科院苏州纳米所纳米加工平台的各位 老师和工作人员给予的帮助。

感谢中科院苏州纳米所研究生部各位老师的关心和帮助。

感谢我的父亲,母亲,姐姐,姐夫在生活中给予我无私的关爱、鼓励与支持。

此外,还有很多关心和帮助过我的亲人、老师、朋友、同学,不能一一提及 并致谢,在此深表歉意,谨以此文向他们表示由衷的的感谢!

田爱琴

2017年05月苏州

### 中文摘要

本论文以实现 GaN 基绿光激光器的室温连续工作为目标,针对 GaN 基绿光激光器的研制难点和需解决的关键科学技术问题,在绿光激光器材料的外延生长、表征到器件性能测试分析等方面进行了深入的研究。本论文所取得的主要研究成果如下:

1. 通过提高生长速率的方法,实现了在较高的生长温度下生长绿光 InGaN 量子阱,并提高了绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区的发光均匀性和发光效率。

2. 研究了绿光 InGaN 量子阱中典型的二维岛状形貌的形成机理,认为表面 原子迁移能力低是绿光 InGaN 量子阱二维岛模式生长的根本原因,在此认识基 础上,采用增加衬底斜切角从而降低原子台阶宽度的方法,降低了表面原子并入 原子台阶边需要迁移的距离,成功实现了绿光 InGaN 量子阱在较低生长温度下 的台阶流生长,使绿光 InGaN 量子阱的内量子效率 (IQE)提高了一倍。

 深入研究了绿光 InGaN/GaN 量子阱中 In 偏析导致的界面缺陷,发现 In 团簇区域 GaN 盖层晶体质量差,形成界面缺陷,通过界面热处理可以消除了富 In 团簇及界面缺陷,大幅提高了有源区的发光效率。

4. 以降低激光器工作电压为目的,研究了低温生长 p型 AlGaN 的电导率限制机理。发现 p型 AlGaN 中的碳杂质浓度随生长温度降低而显著增加。通过电中性方程计算,发现 C 是低温生长 AlGaN:Mg 的主要补偿施主,揭示了低温生长 p型 AlGaN 的电导率限制机理。在此基础上,通过抑制 C 杂质降低了 p 型 AlGaN 的电阻率,从而降低了激光器的工作电压。

5. 在自支撑 GaN 衬底上生长了绿光激光器结构,在国内首次实现了 GaN 基绿光激光器的室温连续工作。激射波长为 508 nm,阈值电流密度 1.85 kA/cm<sup>2</sup>,阈值电压 4.3 V,输出功率可达 58 mW,寿命可达 1000 小时。

Ι

关键词: GaN 基绿光激光器, MOCVD, InGaN 量子阱, 界面调控

#### Abstract

In this dissertation, aiming to achieve room-temperature continue-wave GaN-based green laser diodes (LDs), we have investigated the key issues in epitaxial growth, characterization, device physics of GaN-based green LDs. The main achievements are presented as follows:

1. Green emission of InGaN quantum well (QW) grown at relatively high temperature was achieved by increasing the growth rate. The uniformity and efficiency of green InGaN/GaN multi-quantum-wells (MQWs) active region were improved by using relatively high growth temperature.

2. The cause for 2D island morphology of green InGaN QW was investigated. The low diffusion length of adatoms at low growth temperature was found to be responsible for the 2D island morphology of green InGaN QW. Step-flow growth of green InGaN QW was obtained by increasing the miscut angle of c-plane GaN substrates to reduce the atomic terrace width. Internal quantum efficiency (IQE) of green InGaN/GaN MQW was increased 100% by realizing step-flow growth.

3. Indium-segregation-related defects formed at green InGaN/GaN MQW interfaces were investigated in detail. The crystalline quality of GaN cap layer upon In cluster region was poor and interface defects were formed. We developed an interface thermal treatment approach to remove the In clusters and related interface defects. By engineering the interface of green InGaN/GaN MQWs, the efficiency of green LD structre was greatly improved.

4. The compensation effect of unintentionally doped carbon impurities in p-AlGaN was investigated in order to reduce the operation voltage of LDs. It was found that the resistivity of p-AlGaN increased with increasing concentration of the residual carbon impurity. By calculation according to neutral equation, carbon impurities were found to be the main compensating donor in p-AlGaN. Green LDs with low operation voltage were obtained by suppressing carbon impurit in p-AlGaN cladding layer.

5. Green LD structure was fabricated on free-standing GaN substrate, and we

have achieved the first room-temperature continue-wave green LD in China with low threshold curren density of  $1.85 \text{ kA/cm}^2$ . The output power of the green LD is as high as 58 mW, and the lifetime of the LD is more than 1000 h.

Keyword: GaN based green laser diodes, MOCVD, InGaN quantum well, interface engineering

第一章 绪论	1
1.1 前言	1
1.2 GaN 基绿光激光器的研究背景 1.2.1 GaN 基绿光激光器的应用 1.2.2 GaN 基绿光激光器的国内外研究	
1.3 GaN 基绿光激光器的研制难点以及需用	解决的关键科学技术问题8
<ul> <li>1.4 本论文的研究内容及工作安排</li> <li>1.4.1 本论文的研究内容</li> <li>1.4.2 本论文的工作安排</li> <li>第二章 材料生长系统以及常用的材料与器件表示</li> </ul>	
<ul><li>2.1 材料生长系统</li><li>2.1.1 MOCVD 系统简介</li><li>2.1.2 MOCVD 的基本原理</li></ul>	
<ul> <li>2.2 常用的材料与器件表征测试方法及原因</li> <li>2.2.1 高分辨 X 射线衍射(HRXRD)</li> <li>2.2.1.1 双晶摇摆曲线</li> <li>2.2.1.2 三晶 ω/2θ 联动扫描</li> <li>2.2.2 原子力显微镜(AFM)</li> <li>2.2.3 光致发光(PL)</li> <li>2.2.4 扫描电子显微镜和阴极荧光(SI)</li> <li>2.2.5 霍尔测试(HALL)</li> </ul>	型简介
2.2.6 二次离子质谱 (SIMS) 2.3 本章小结 第三章 绿光 InGaN 量子阱生长研究	
3.1 高温、高生长速率的绿光 InGaN 量子	跰
3.2 绿光 InGaN 量子阱的生长模式及其对 3.2.1 在具有台阶结构的邻晶面上外延 3.2.2 绿光 InGaN 量子阱的二维岛状 3.2.3 台阶流生长的绿光 InGaN 量子 3.2.4 不同生长模式下绿光 InGaN 量子	<ul> <li>绿光 InGaN 量子阱光学性质的影响</li></ul>
3.3 本章小结	
第四章 绿光 InGaN/GaN 量子阱的界面调控	
4.1 绿光 InGaN/GaN 量子阱的界面缺陷	
<ul> <li>4.2 绿光 InGaN/GaN 量子阱的界面调控</li> <li>4.2.1 绿光 InGaN/GaN 量子阱的界面;</li> <li>4.2.2 界面调控的绿光 InGaN/GaN 量</li> <li>4.2.3 富 In 团簇消除机理研究</li> </ul>	
4.2.4 界面调控对绿光激光器性能的景	》响54
4.3 半星小纪	

第五章 低温 p 型 AlGaN 限制层生长研究	61
5.1 生长条件对 p 型 AlGaN 中杂质并入的影响	62
5.2 碳杂质在低温生长 p 型 AlGaN 中的补偿作用	63
5.2.1 样品生长及 Hall 测试样品制备	63
5.2.2 C 杂质对 p 型 AlGaN 电阻率的影响	64
5.2.3 C 杂质在 p 型 AlGaN 中的作用-室温 Hall 测试	67
5.2.4 C 杂质在 p 型 AlGaN 中的作用-变温 Hall 测试	70
5.3 低工作电压的 GaN 基绿光激光器	72
5.4 本章小结	75
第六章 室温连续工作的 GaN 基绿光激光器	77
6.1 高内量子效率的 GaN 基绿光激光器结构	77
6.2 GaN 基绿光激光器的芯片工艺流程	77
6.3 室温连续工作的 GaN 基绿光激光器	79
6.4 小结	
第七章 结论与展望	
7.1 本论文的研究内容和研究成果	
7.2 不足之处与展望	
参考文献	
科研成果及学术活动	
作者简历	

#### 第一章 绪论

1.1 前言

Ⅲ-V族宽禁带直接带隙半导体氮化镓(GaN, Eg = 3.4 eV)及其与氮化铟 (InN, Eg = 0.7 eV)和氮化铝(AlN, Eg = 6.2 eV)形成的合金化合物带隙在 0.7 eV ~ 6.2 eV 之间连续可调,因而其发光光谱涵盖了从红外、整个可见光光谱到紫外 波段,因此在光电子器件领域有非常广阔的应用。GaN 基蓝光发光二极管(LED) 的效率如今已经可以做到很高,而且蓝光 LED 和荧光粉结合可以产生白光,因 此GaN 基蓝光LED 在照明方面的应用也越来越广泛。2014年, Shuji Nakamura、 Isamu Akasaki 与 Hiroshi Amano 因"发明高效蓝光 LED, 带来了节能明亮的白色 光源"获得了诺贝尔物理学奖。在 GaN 基 LED 发展的同时, GaN 基蓝光激光器 (LD) 也由于其效率高、体积小在激光显示方面有了很广阔的应用。作为新一 代显示技术,近年来激光显示受到极大关注,并得到迅速发展。相比于市场上倍 频的绿光激光器, GaN 基绿光激光器能够降低成本, 增加效率和稳定性, 而且 波长可调范围大。如果能够实现输出功率大,寿命长的 GaN 基绿光激光器, GaN 基绿光激光器将与蓝光激光器一起在激光微投影以及激光电视方面取得很大的 市场应用。但 GaN 基绿光激光器的发展相对缓慢,性能还不能满足需求。因此, GaN 基绿光激光器研究课题非常重要, 被列入科技部《"十三五"重点研发计 划指南》和《国家中长期科学和技术发展规划纲要(2006-2020)》。因此, GaN 基半导体绿光器具有非常重要的科学研究意义和广阔的市场应用前景。

#### 1.2 GaN 基绿光激光器的研究背景

#### 1.2.1 GaN 基绿光激光器的应用

(1) 激光显示

激光显示是继黑白显示、彩色显示、数字显示之后的第四代显示技术,也是下一代新型显示产业的主要发展方向,被称为"人类视觉史上的革命"。它以红、绿、蓝(RGB)三基色激光为光源,与传统的显示技术相比,具有色彩分辨率高、 光源寿命长、节能环保等优势。此外,既可以通过多个器件集成实现大功率输出, 从而应用于高亮度、大屏幕影院显示系统,又可以依靠单个激光器的小体积特性, 容易与当前的手机、平板电脑以及笔记本电脑等消费电子产品集成起来,实现便携式投影显示设备。图 1.1 所示为不同显示技术在 CIE 色图上的色域范围,可以看出相比于传统显示技术,激光显示有更宽的色域和更高的色饱和度。与自然光色域相比较,激光显示能再现人眼所见颜色的 90%,是传统显示设备的 3 倍。此外,激光器是很有竞争力的光源还有一个原因是因为它亮度高,方向性好,因此容易被收集,从而效率高。



图 1.1 不同显示技术在 CIE 色度图上色域范围[1]

绿光激光器作为光的三原色之一,是新一代激光显示技术的核心部件,在激 光显示中有非常广阔的应用前景。目前市场上的绿光激光器大都是倍频的固体激 光器,通过倍频晶体转换红外波长激光,获得绿色激光,如图 1.2 所示<sup>[2-4]</sup>。倍频 激光器的模块成本高、波长固定并且最大调制频率低,并且体积大,不易于集成, 很大程度上限制了其应用范围<sup>[1]</sup>。GaN 基绿光激光器具有体积小,单色性好等优 点。因此 GaN 绿光激光器在第四代显示技术方面可以有效的取代倍频激光器 <sup>[5][6]</sup>。据预测,仅在激光显示领域,对绿光激光器的需求将在未来的3到5年形 成 500 亿美元以上的市场规模。



图 1.2 传统倍频绿光激光器[2]

基于半导体激光器的微投影显示技术,是第四代显示技术的主流发展方向。 目前推出激光微投影显示产品的企业重要集中在日本、美国。图 1.3 所示为激光 微投影示意图。美国 QPC 公司推出专用于微投影的半导体激光器。他们在 1 个 产品内集成了三种激光器,发光波长分别为: 640 nm 的红色(R)、532 nm 的 绿色(G)以及 450 nm 的蓝色(B)激光器。光输出功率方面,红绿蓝激光器分 别为 600 mW、400 mW。它们结构简单、体积小,可以被集成到相机、 手机、平板电脑以及其他移动多媒体设备上,方便用户即时展示他们需要展示的 东西。



图 1.3 激光微投影示意图[7]

(2) 海底通信

海底通信是 GaN 基绿光激光器的另一个主要应用。如图 1.4 所示,在军事 应用领域中,需要与海底的潜艇进行通讯,但同时又要防止潜艇浮上海面被敌人 发现。理想的深海通讯设备既要能够穿透相当深的海水传递讯息,又要能够快速 的传递讯息。极低频率(<100 Hz)的电磁辐射可以穿透很深的海水并且极低频 通信系统已经建立并投入使用,但是它的数据传输率相当低,并且只能发送比较 短的讯息<sup>[7]</sup>。海水对波长 470 nm ~ 540 nm 波段吸收系数较低,因此采用蓝绿光 通信可以穿透很深的海水并且高速传递信息,解决低频通信系统存在的问题。但 是蓝绿光通信也存在一个问题,那就是日光中也含有很大成分的蓝绿光,也可以 穿透海水,被接收器接收,形成干扰信号。但是如果采用蓝绿光半导体激光器作 为媒介就能解决这个问题,因为激光器的发光光谱很窄,能够和太阳光中光谱很 宽的蓝绿光区分开来。因此 GaN 基绿光激光器在军事领域也有很广泛的应用前 景。



图 1.4 海底通信示意图[7]

此外,GaN 基绿光激光器在医学领域中也具有巨大的应用潜力。因此GaN 基绿光激光器有非常重要的科学研究意义和非常广阔的市场应用前景。

#### 1.2.2 GaN 基绿光激光器的国内外研究现状

由于 GaN 基绿光激光器广阔的市场应用前景,国内外很多研究小组在 GaN

衬底上进行了 GaN 基绿光激光器的研究工作。但是 GaN 基绿光激光器的发展一 直比较缓慢, 直到 2009 年获得了波长大于 500 nm 的 GaN 基绿光激光器后<sup>[8]</sup>, 才迅速发展起来。目前国际上对 GaN 基绿光激光器进行研究的主要机构有: 日 本的 Nichia<sup>[9-13]</sup>、Sony、Sumitomo<sup>[14-23]</sup>、Rohm<sup>[24, 25]</sup>等公司以及京都大学<sup>[26, 27]</sup>, 德国的 Osram 公司<sup>[8,28-40]</sup>,韩国 Samsung 公司<sup>[41]</sup>,美国的 UCSB 大学<sup>[42-49]</sup>、密歇 根大学<sup>[50-52]</sup>以及 Corning 公司<sup>[53-59]</sup>、Soraa 公司<sup>[60, 61]</sup>等。c 面 GaN 衬底是目前研 究的最为成熟的 GaN 衬底,因此 c 面 GaN 光电子器件及相关材料的研究最多, c 面 GaN 上外延生长的材料晶体质量也最高。Nichia 一直致力于 c 面 GaN 衬底 上的绿光激光器研究,并且已经实现了大功率、长寿命 GaN 基绿光激光器。2008 年 Nichia 首次报道了 488 nm 室温连续工作的 GaN 基蓝绿光激光器,该激光器阈 值电流密度为 3.3 kA/cm<sup>2</sup>,但是输出功率只有 5 mW<sup>[9]</sup>, 2009 年, Nichia 把激射 波长延伸至 515 nm, 该激光器的阈值电流密度为 4.4 kA/cm<sup>2</sup>, 阈值电压 5.2 V, 输出功率为 5 mW<sup>[10]</sup>,该绿光激光器的性能远差于当时的蓝光激光器的性能。 2010年,他们获得了 518 nm 的绿光激光器,在5 mW 的输出功率下,寿命可 达 5000 小时<sup>[11]</sup>。在 2013 年, Nichia 报道了在 1.5 A 电流工作下输出 1.01 W 的 大功率绿光激光器,激射波长在 525 nm,光电转换效率达到 14.1%,同时激光 器的寿命也增加至 15000 小时<sup>[12,13]</sup>。Osram 也一直致力于 c 面 GaN 衬底上的绿 光激光器研究。2009年初, Osram 报道了 500 nm 波长的电注入工作的 GaN 基激 光器,该激光器的阈值电流密度为 8.2 kA/cm<sup>2</sup>,斜率效率可达 650 mW/A,在脉 冲工作条件下输出光功率可达 70 mW<sup>[8]</sup>。同年,通过优化有源区生长条件,有源 区的富 In 缺陷密度降低了近 10 倍,激光器的脉冲激射波长延伸至 515 nm<sup>[28]</sup>。 2010年,通过激光器结构优化和外延晶体质量的提升,Osram 实现了 520~524 nm GaN 基绿光激光器的室温连续工作,524 nm 激光器的输出功率可达 50 mW, 峰值光电转换效率(WPE)为 2.3%<sup>[30]</sup>。2012 年,Osram 绿光激光器的最大输出 功率已经可达 100 mW,并且寿命超过 10000 小时<sup>[32]</sup>。到 2014 年,绿光激光器 功率输出功率已经可以做到 250 mW<sup>[36]</sup>。同年 Osram 还实现了 517 nm, 1.3 W 输 出功率的大功率 GaN 基绿光激光器<sup>[36]</sup>。

尽管 c 面 GaN 衬底上绿光激光器获得了快速发展,但是由于纤锌矿结构的 GaN 缺乏反演对称性,导致材料中存在很大的自发极化电场<sup>[62]</sup>。并且由于 InGaN

5

与 GaN 存在较大的晶格失配,导致材料中除了自发极化电场外还存在很大的压电极化电场<sup>[63]</sup>。并且随着 InGaN 量子阱中 In 组分增加,极化效应加剧。极化电场的存在将导致量子限制斯塔克斯效应(QCSE),使 InGaN 量子阱有源区能带倾斜,电子与空穴波函数空间分离,从而降低了辐射复合效率,导致随波长增加激光器的效率下降<sup>[64,65]</sup>。因此 UCSB、Rohm、Sumitomo、Corning 等研究单位进行了半极性和非极性面 GaN 基绿光激光器的研究。半极性和非极性面上的极化电场较小,QCSE 较弱,有利于提高绿光激光器的效率<sup>[66]</sup>。在非极性 m 面上,2008年,Rohm 公司报道了室温连续工作的激射波长为481 nm 的蓝绿光激光器,该激光器的阈值电流密度为 6.1 kA/cm<sup>2</sup>,最大输出功率为 20 mW,斜率效率为0.49 W/A,该斜率效率高于当时的 c 面生长的相近波长的 GaN 基激光器,证实了 m 面生长可获得高效率的激光器<sup>[24]</sup>。2009年,Rohm 公司报道了室温连续工作的激射波长为 499.8 nm 的绿光激光器,该激光器的阈值电流密度为 3.1 kA/cm<sup>2</sup>,最大输出功率为 15 mW<sup>[25]</sup>。但是由于 m 面 InGaN 量子阱 In 组分较高时容易形成堆叠层错,限制了非极性 m 面 GaN 基绿光激光器的发展。

日本Sumitomo公司一直致力于半极性(20-21)面GaN衬底上绿光激光器的研究。2009年,该公司实现了531 nmGaN基绿光激光器的室温脉冲激射,该激光器的阈值电流密度为15.4 kA/cm<sup>2</sup>,是当时报道的波长最长的GaN基绿光激光器。同时他们还实现520 nmGaN绿光激光器的激射,阈值电流密度为8.2 kA/cm<sup>2</sup>,阈值电压为17.7 V,最大输出功率为28 mW,斜率效率为0.04 W/A<sup>[23]</sup>。随后,通过采用晶格匹配的p型AlInGaN光限制层,该公司在2010年实现523.3 nm室温连续工作的GaN基绿光激光器,阈值电流密度为7.9 kA/cm<sup>2</sup>,阈值电压降低至9.4 V,斜率效率也增加至0.1 W/A<sup>[22]</sup>。并在2012年实现了在520~530 nm波段内输出功率高达100 mW的绿光激光器<sup>[17]</sup>,在50 mW输出时,工作寿命长达5000小时。2013年,UCSB团队使用GaN光限制层和InGaN波导层,在半极性面(20-21)上实现了波长518 nm的绿光激光器<sup>[44]</sup>。Corning还研究了(11-22)晶面的GaN绿光激光器。2011年Corning公司报道了在(11-22)晶面生长GaN绿光激光器,实现了520~530 nm的光泵浦激射<sup>[56]</sup>。虽然非极性和半极性面上GaN基绿光激光器取得了很大进展,但是由于缺乏大尺寸的同质外延GaN衬底,很难实现产业化。

6

国内对 GaN 基绿光激光器的研究起步较晚,从 2011 年起,中科院苏州纳米 所开始致力于 c 面 GaN 基绿光激光器的研究。2014 年,实现了国内第一支 GaN 基绿光激光器的室温电注入脉冲激射,激射波长为 503 nm,阈值电压为 7.6 V, 阈值电流密度为 25 kA/cm<sup>2[67]</sup>。

各研究团队目前在 GaN 基绿光激光器方面取得的研究成果如表 1.1 所示。 尽管目前市场上已经有了 GaN 基绿光激光器的产品,但是器件性能方面仍然有 很大的进步空间。

Organization	Plane	Mode	λ	Pout	Ith	J <sub>th</sub>	Vth	Lifetime	Year	Refs.
			(nm)	( <b>mW</b> )	(mA)	(kA/cm <sup>2</sup> )	( <b>V</b> )	( <b>h</b> )		
Nichia	(0001)	cw	488	5	/	3.3	/	/	2009	[9]
Nichia	(0001)	cw	515	5	/	4.4	5.2	>5 000	2009	[10]
Nichia	(0001)	cw	518	5	45	3.8	5.5	>5 000	2010	[11]
Nichia	(0001)	cw	525	1010	300	1.68	4.8	15 000	2013	[12]
Osram	(0001)	pulse	500	70	413	8.2	6	/	2009	[8]
Osram	(0001)	pulse	515.9	50	/	9.0	7.1	/	2009	[28]
Osram	(0001)	pulse	520	50	125	/	/	/	2010	[39]
Osram	(0001)	pulse	531.7	/	/	18	/	/	2010	[29]
Osram	(0001)	pulse	524	50	97	/	/	/	2010	[29]
Osram	(0001)	cw	529	40	/	/	/	/	2010	[40]
Osram	(0001)	cw	522	80	60	/	6.4	/	2010	[31]
Osram	(0001)	cw	519	>100	/	/	/	>10 000	2012	[32]
Osram	(0001)	cw	520	200	/	/	/	/	2013	[34]
Osram	(0001)	cw	520	250	80	/	/	/	2014	[36]
Osram	(0001)	cw	517	1300	150	1.04	/	/	2014	[36]
UM	(0001)	pulse	524	/	/	1.2	/	/	2011	[52]
UM	(0001)	pulse	550	/	/	0.94	/	/	2012	[50]
Sinano	(0001)	pulse	503	/	/	25	7.6	/	2014	[67]
Sumitomo	(20-21)	Pulse	520	/	/	8.2	/	/	2009	[23]
Sumitomo	(20-21)	pulse	531	28	/	15.4	17.	/	2009	[23]
Sumitomo	(20-21)	cw	520	/	95	7.9	9.4	/	2009	[22]
Sumitomo	(20-21)	cw	525.5	36.4	51	4.3	6.4	/	2010	[19]
Sumitomo	(20-21)	cw	525	50	73	4.5	/	>5 000	2012	[17]
Sumitomo	(20-21)	cw	530	100	/	5	/	>5 000	2014	[16]

表 1.1 国内外 GaN 基绿光激光器的主要研究团队及其成果

续表1.1 国内外GaN基绿光激光器的主要研究团队及其成果

Organization	Plane	Mode	λ	Pout	Ith	$\mathbf{J}_{\mathrm{th}}$	$\mathbf{V}_{th}$	Lifetime	Year	Refs.
			( <b>nm</b> )	( <b>mW</b> )	(mA)	(kA/cm <sup>2</sup> )	(V)	( <b>h</b> )		
UCSB	(20-21)	pulse	506.4	/	/	19	16	/	2009	[47]
UCSB	(20-21)	pulse	516	/	720	30	/	/	2010	[46]
UCSB	(20-21)	pulse	505	/	/	27.5	15.	/	2011	[43]
UCSB	(20-21)	pulse	523.4	/	/	12	15	/	2013	[49]
Sorra	Non-c	cw	521	>60	130	/	7.3	/	2010	[60]
Sorra	Non-c	cw	520	>65	145	/	6.7	/	2011	[61]
Corning	(11-22)	opt	530	/	/	/	/	/	2011	[56]
Rohm	(1-100)	cw	499.8	15	46	3.1	/	/	2009	[24]

(注: cw表示连续工作模式(continuous-wave operation mode), pluse表示脉冲工作模式(pulse operation mode), opt表示光泵浦模式,/表示文献中没有提及该项数据)

#### 1.3 GaN 基绿光激光器的研制难点以及需解决的关键科学技术问题



图 1.5 GaN 基绿光激光器的外延结构示意图

典型的 GaN 基绿光激光器结构如图 1.5 所示,主要由以下部分组成:有源 区,由一个或多个 InGaN/GaN 量子阱组成;有源区的上下由 GaN 或者 InGaN 波 导层覆盖;波导层上下又被低折射率的 Si 掺杂的 n 型 AlGaN 和 Mg 掺杂的 p 型 AlGaN 光限制层包裹。此外还有 n 型 GaN 层,p 型 AlGaN 电子阻挡层,以及重 掺杂的 p 型欧姆接触层。GaN 基绿光激光器的研制主要有以下难点:

首先难生长高晶体质量、高效率的 InGaN/GaN 量子阱有源区。相比于 GaN

基蓝光激光器, GaN 基绿光激光器的 InGaN 量子阱有源区需要有更高的 In 组 分(>30%)。随着 In 组分的增加, InGaN 与 GaN 之间的晶格失配变大。在 GaN 衬底上外延生长高 In 组分 InGaN 材料时,大的晶格失配会导致产生较大 的失配应力和高密度的缺陷,导致晶体质量较差,辐射复合效率低,影响器件 的性能及可靠性。此外,如 1.2 节所述,在 GaN 基激光器中存在很大的自发极 化和由晶格失配引起的压电极化,随 In 组分增加,压电极化电场增大。在生长 InGaN/GaN 量子阱有源区时,由于晶格失配的存在,InGaN 处于压应变的状态, 此时极化效应导致在有源区上、下界面处有高达 10<sup>13</sup> C/m<sup>2</sup>的极化电荷富集<sup>[68,69]</sup>, 在量子阱有源区中可以产生高达 MV/cm 量级的极化电场<sup>[68-70]</sup>。如此高的极化电 场将引起严重的 QCSE,导致电子-空穴波函数交叠减少,辐射复合效率降低。

其次, InN 的平衡蒸汽压非常高<sup>[71]</sup>,并且 In-N 键能弱,导致 InN 的分解温 度低。因此,高 In 组分的绿光 InGaN 量子阱必须在低温下生长以保证足够多的 In 并入外延层<sup>[72]</sup>(<700 ℃)。但通常在较低的生长温度下,表面原子的迁移速 率低,迁移长度短,并且低温下 NH<sub>3</sub>的裂解效率也降低,从而导材料质量较差<sup>[73]</sup>。 此外, InN 与 GaN 的互溶隙比较大,造成 InGaN 中容易产生 In 偏析现象,表现 为 InGaN 量子阱中 In 组分分布不均匀。有源区 In 组分分布不均匀造成了自发辐 射谱和增益谱的展宽<sup>[74]</sup>。图 1.6 所示为 GaN 基激光器的光学增益谱随波长的变 化,可以看出随波长增加峰值增益降低,这将导致激光器阈值电流密度的增加。 并且随着 In 组分的增加, In 偏析现象会更加严重,甚至在 InGaN/GaN 界面形成 In 金属团簇、trench 缺陷<sup>[40,74-76,131-133]</sup>等缺陷,缺陷的存在会降低绿光 InGaN 量 子阱的发光效率。因此,晶格失配以及 In 偏析成为影响高质量的、高 In 组分的 绿光 InGaN 量子阱有源区的关键问题。

9



图 1.6 GaN 基激光器的光学增益随波长的变化[74]

再次,随着 In 组分增加 InGaN 的热分解温度将降低,有源区的热稳定性变差<sup>[78]</sup>。p型 AlGaN 限制层的最优生长温度一般在 1000 ℃以上,但绿光 InGaN 量子阱有源区的生长温度不到 700 ℃,这导致在生长激光器结构的 p型 AlGaN 限制层时绿光 InGaN 量子阱有源区可能发生热退化<sup>[42,78-80]</sup>。我们组在之前的研究中发现,p型 AlGaN 的生长温度增加或者生长时间加长,都会造成 GaN 基绿光激光器结构表面发黑,在荧光显微镜中发现表面发黑的样品有很多不发光区域,InGaN/GaN 有源区发生了<sup>[79]</sup>。通过降低 p型 AlGaN 限制层的生长温度,可以抑制有源区的热退化,但低温生长的 p型 AlGaN 限制层电阻率太大,从而很难得到电注入的测试结果。因此生长高电导率的低温 p型 AlGaN 限制层是 GaN 基绿光激光器的又一难点。

最后,优化设计的绿光激光器的结构生长难度大。当 GaN 激光器波长往长 波端延伸时,波导层和限制层之间的折射率差会下降,结果将导致限制因子降低 <sup>[81,82]</sup>。为了实现足够的限制,需要增加 AlGaN 限制层厚度或提高 Al 组分,或采 用 InGaN 波导结构。由于 AlGaN 和 InGaN 之间的失配应力随厚度、Al 组分或 In 组分的增加而增大。当 AlGaN 外延层中积聚的应力过高时,会产生裂纹,降 低晶体质量。

以上因素导致 GaN 激光器往长波方向发展时,将面临发光效率下降、阈值 电流增大、阈值电压增加等一系列挑战。而绿光激光器的发展滞后,将严重制约 GaN 基激光器的市场应用。

#### 1.4 本论文的研究内容及工作安排

#### 1.4.1 本论文的研究内容

本论文以实现 GaN 基绿光激光器的室温连续工作为目标,以获得高质量高 发光效率的绿光 InGaN 量子阱有源区、降低绿光激光器工作电压为出发点,对 GaN 基绿光激光器材料与器件的 MOCVD 生长与表征进行研究。

#### 1.4.2 本论文的工作安排

本论文的内容安排如下:

第一章绪论部分,简要论述了 GaN 基绿光激光器的研究背景、意义、国内 外的相关研究进展以及存在的难点与需要解决的关键技术问题。

第二章简要介绍了论文中所使用的材料生长系统,同时概述了研究工作中所 使用的材料与器件的测试表征方法及原理。

第三章以获得高质量绿光 InGaN 量子阱为目标,研究了绿光 InGaN 量子阱的生长以及不同生长模式下绿光 InGaN 量子阱的结构及光学性质。

第四章以获得高质量的 InGaN/GaN 多量子阱有源区为目的,研究了绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区的界面缺陷,并研究消除界面缺陷的方法与机理。

第五章以降低 GaN 基绿光激光器工作电压为目的,研究了低温 p 型 AlGaN 限制层的电导率限制机理,并提出了降低低温 p 型 AlGaN 电阻率的方法。

第六章为自支撑 GaN 衬底上绿光激光器器件性能的研究。

第七章对本论文的工作进行概括和总结,并对将来的工作进行展望。

#### 第二章 材料生长系统以及常用的材料与器件表征测试方法

本章中,我们简单介绍论文开展过程中所使用的 MOCVD 生长系统,以及 研究中所采用的材料表征与器件测试方法。

2.1 材料生长系统

#### 2.1.1 MOCVD 系统简介

本论文研究中所采用的材料生长方法为金属有机物化学气相沉积。所使用的 材料生长设备为德国 Aixtron 公司的 6×2 inch. 近耦合喷淋设备。如图 2.1 所示。



图 2.1 本论文研究工作中使用的 Aixtron 6×2 in. CCS MOCVD 设备

金属有机物化学气相沉积(Metalorganic chemical vapor deposition, 简写为 MOCVD),也被成为金属有机物气相外延 (Metalorganic vapor phase epitaxy, 简 写为 MOVPE),是制备 GaN 基半导体化合物材料的重要方法之一。它是利用金 属有机化合物源 (MO 源)和非金属氢化物通过在高温下裂解合成等化学反应外 延化合物半导体的气相外延生长方法<sup>[83]</sup>。金属有机化合物源 (MO 源)和非金属

氢化物源均随载气注入反应室,在加热的衬底上发生沉积反应。通过控制气态源 的通断时间和流量来控制外延层的厚度、组分、界面和掺杂浓度。相比于其他外 延生长技术,MOCVD 具有以下优点<sup>[84]</sup>:

1. 生长速率快、易于掺杂且掺杂均匀性好, 生长工艺重复性好;

2. 产能高,成本相对较低;

3. 灵活性高,同一机台可用来生长不同的材料;

4. 可以迅速切换气源。因此采用 MOCVD 方法生长的异质结界面陡峭,适 合生长超晶格和量子阱等结构。

本论文的研究围绕 GaN 基绿光激光器的相关材料,因此我们实验中所使用的III族金属有机物源(MO源)为三甲基镓(TMGa)、三乙基镓(TEGa),三 甲基铟(TMIn)、三甲基铝(TMAI); V族源为氨气(NH<sub>3</sub>); n 型掺杂剂源 为 100ppm 的硅烷(SiH<sub>4</sub>), p 型掺杂源为二茂镁(Cp<sub>2</sub>Mg); 生长时所使用的 载气为氢气(H<sub>2</sub>)或者氮气(N<sub>2</sub>),有时候也使用两种气体的混合气。载气既用来 输运反应物也用来维持反应室中的压力。通常情况下晶体生长速率与三族源的流 量成正比。

#### 2.1.2 MOCVD 的基本原理

MOCVD 设备可分为五大部分:源及载气输运系统、反应室系统、加热系统、 尾气处理系统以及控制系统。我们的设备配置有 LayTec 公司生产的 Epicurve TT 原位检测系统,可在生长过程中测量外延片翘曲和基座表面真实温度,还可使用 950 nm 和 405 nm 的激光监测表面反射率以表征材料生长过程中的界面质量以及 生长速率。在生长过程中,Ⅲ族 MO 源被载气经过气体输运系统送入反应室中, 在高温下发生分解生成反应物原子或者分子,这些原子或分子再同氨气 (NH<sub>3</sub>) 或氨气分解生成的含 N 分解产物发生反应,反应的副产物和未完全反应的源材 料最终都经过尾气处理系统被吸收或转化为无毒的物质。在反应室中发生的化学 反应可以简单表示为<sup>[85]</sup>:

 $AR_n + BH_n \rightarrow AB + nRH$  2.1

其中R是有机基团, A、B是组成所需外延材料的元素。

图 2.2 简要画出了 MOCVD 外延时表面的化学和物理过程,主要包括如下几个过程:

1. III族源和V族源在反应室中发生分解;

2. 原子和分子在气相和固相的边界层中质量输运,扩散并被吸附到外延生 长表面;

3. 吸附的原子和分子在生长表面扩散迁移;

4. 吸附原子和分子在生长表面发生反应,成核或者并入固相中形成外延生长;

5. 生长表面吸附的原子和分子以一定的几率脱附重新进入气相中;

6. 反应副产物脱附进入气相中,并被带出反应室。



图 2.2 MOCVD 生长的主要表面过程<sup>[86]</sup>

#### 2.2 常用的材料与器件表征测试方法及原理简介

#### 2.2.1 高分辨 X 射线衍射(HRXRD)

高分辨 X 射线衍射(High Resolution X-ray Diffraction, 简写 HRXRD)是表 征外延材料结晶质量、厚度、应变以及合金组分等信息的重要手段,是我们研究 材料结构参数的最直接而有效的工具。Bragg 定律是晶体中 X 射线衍射的基本规 律,其描述为<sup>[87]</sup>:

 $2 \cdot d_{hkl} \cdot \sin \theta = n \cdot \lambda \qquad 2.2$ 

其中 $d_{hkl}$ 是晶面(hkl)的晶面间距,  $\theta$ 是 X 射线与晶面的夹角, 即入射角,

被称为 Bragg 角, n 为衍射极数, λ为 X 射线的波长。图 2.3 是 Bragg 定律的示意图。当 X 射线以入射角θ入射到相邻两晶面时,两束 X 射线之间具有光程差2· d<sub>hkl</sub>·sinθ,如果光程差恰好等于入射的 X 射线的波长的整数倍时,两束 X 射线 就会发生相干加强,出现衍射峰,这就是 Bragg 衍射。



图 2.3 Bragg 衍射定律示意图[88]

基于以上原理,常用的 XRD 分析方法有双晶摇摆曲线(Rocking curves)以 及三轴晶联动扫描(ω/2θ coupled scans)。根据摇摆曲线我们可以分析晶体的 缺陷密度、外延层厚度、曲率等信息,还可以测量晶体的晶格常数和合金组分等 <sup>[89]</sup>。利用三轴晶联动扫描可以更清楚地分开不同外延层的衍射峰,准确地测量 出复杂外延层结构尤其是多层外延结构每一层的合金组分、膜厚、超晶格周期、 晶格失配以及弛豫度等<sup>[90]</sup>。

#### 2.2.1.1 双晶摇摆曲线

X 射线双晶衍射 (DCXRD) 摇摆曲线测试的示意图如图 2.4 所示。X 射线 经过限束装置后,以近单色平行光束入射到样品表面并产生反射束,反射束到达 探测器被收集。在测试中,探测器固定在样品 (hkl) 面的 2θ 位置,并以 ω 扫 描方式记录散射强度,获得强度和 ω 的关系曲线,即为摇摆曲线。

根据摇摆曲线测试,我们可以得到晶体的缺陷、位错密度、曲率、外延层厚 度等信息。根据摇摆曲线的半高宽,我们可以判断样品的晶体质量,半高宽越小, 缺陷密度越低,晶体质量越好。对于多元合金,还可以根据测量的 Bragg 角和 Vegard 定理,计算出合金中的组分。



图 2.4 双晶摇摆曲线测试示意图[91]

2.2.1.2 三晶 ω/2θ 联动扫描

在本论文的研究工作中,在分析 GaN 基绿光激光器的外延结构过程中,为 了得到量子阱的 In 组分、周期和界面粗糙度等信息,我们主要采用三轴晶 ω/20 联动扫描方法来研究,其工作原理如图 2.5 所示。



图 2.5 ω/2θ 三晶联动扫描测试示意图[91]

在图 2.5 中,轴 1 为 X 射线入射束的限束器旋转轴,用于实现限束晶体的 Bragg 反射,并给出近单色平面波。轴 2 为样品晶体的旋转轴,可做 ω 和 ω/2θ 旋转。轴 3 为分析晶体的旋转轴,用于反射束的限束。三轴衍射的 ω 方向的信 号只和位错产生的晶面倾斜有关,它具有较宽的衍射峰,而ω/20方向的信号只与各层的晶面间距和层厚有关,可以清楚的显示每一层的衍射峰。在双晶衍射中, ω和ω/20两种扫描叠加在一起形成一个很宽的谱,不能清晰地分辨出不同外延 层的衍射峰。因而,对于异质外延膜测量而言,三轴晶衍射可以更好的分开不同 外延层的衍射峰,给出更加准确的信息。利用三轴晶衍射方法,我们可以测量外 延层的晶格失配、合金组分、弛豫度、膜厚以及超晶格的周期等。

本论文研究过程中采用的 HRXRD 测试设备是德国 Bruker 公司生产的高分辨 X 射线衍射仪。

#### 2.2.2 原子力显微镜(AFM)

原子力显微镜(AFM)是表征半导体材料表面形貌最常用的一种手段,它 能以纳米级分辨率获得样品表面形貌结构信息及表面粗糙度信息。它的基本原理 是利用尖锐针尖在样品表面运动,通过对针尖与样品间的原子间作用力测试实现 对样品表面形貌成像。如图 2.6 所示是原子力显微镜系统的原理简图。AFM 有 一个对微弱力很敏感的悬梁臂,其中悬臂的一端固定,另一端有微小针尖接近样 品。针尖与样品表面相互作用时,受到分子间作用力的影响,这个作用力将使悬 臂发生形变。针尖的背面被加工成光学反射镜,通过激光反射到光敏位置检测器 PSD 的位置可以检测悬臂的形变,这个形变信号反馈到控制系统,控制系统通过 调整样品与针尖的距离保持作用力恒定,在这个过程中也就记录下了样品表面信 息。

悬梁臂形变 $\Delta Z$ 与受力 $F_Z$ 满足胡克定律:

$$F_Z = k \cdot \Delta Z$$
 2.3

其中, k为悬臂的弹性系数。



图 2.6 (a) AFM 测试原理示意图(b) AFM 针尖受力形变示意图[90]

本论文工作中使用的 AFM 测试设备为 Veeco 公司的 Dimension 3100 型原子力显微镜。采用 Si 针尖,尖端曲率半径为 6 nm。

2.2.3 光致发光 (PL)

光致发光(Photoluminescence, 简写 PL)是材料在光激发下发光的一种现象, 是对半导体材料的物理发光性能进行检查的最常用手段之一<sup>[92]</sup>。当半导体材料 受到光子能量大于材料带隙的光照射时,半导体材料中价带的电子会被激发跃迁 至导带(或空穴从导带跃迁至价带),从而产生额外的自由运动的电子-空穴对。 导带的电子与价带的空穴发生辐射复合,其能量以光子的形式释放,形成光致发 光。

根据样品的 PL 发光峰位和光子能量关系式E = hv =  $E_g$ ,可近似得到材料禁带宽度 $E_a$ 与发光波长  $\lambda$  之间的关系:

$$E_g = \frac{\mathrm{hc}}{\lambda} \approx 1240/\lambda$$
 2.4

其中h为普朗克常数,c为光在空气中的传播速度, $E_g$ 的单位为电子伏特(eV), $\lambda$ 的单位为纳米(nm)。

在激发强度不变的情况下 PL 光谱强度反映了辐射复合与非辐射复合的竞争,因此可根据 PL 强度评估材料或器件质量的好坏。除此之外,从 PL 谱的半高宽

(FWHM)还能得到材料均匀性、量子阱界面粗糙度的信息。通过将材料在低温和室温下的光致发光强度之比,还可以估算材料的内量子阱效率。假设在低温

时,载流子动能低,被冻结在产生出的位置,发生辐射复合,因此认为低温下, 复合效率是 100%,则样品的内量子效率 IQE 可表述为:

$$IQE = \frac{I_{RT}}{I_{LT}} \qquad 2.5$$

对样品进行变温 PL 测试,通过研究 PL 强度随温度的变化,可以分析样品 中非辐射复合中心的激活。通过 PL 峰位、半宽随温度的变化,还可以研究热激 活的载流子随温度在局域态之间的转移和再分布。本论文研究工作中所使用的变 温 PL 测试设备为激光共聚焦微区 PL 测试设备,激光光源为 405 nm 的半导体激 光器,激发功率密度大约为 6.4 kW/cm<sup>2</sup>。

近年来发展起来的 PL-mapping 测试方法能将整个外延片的发光波长、强度、 半高宽等信息以二维图像的形式呈现出来,并且能输出被测量参数的均值、均方 差、标准差等统计结果。能帮助我们分析外延过程中的温度分布、翘曲大小等, 同时能防止在实验研究中由于样品不均匀导致的对实验结果的判断。本论文研究 工作中所使用的 PL-mapping 设备是北京中拓生产的 IM-1130 移动机柜手动型 PL 谱仪,配备激光光源的波长为 375 nm。

此外,激光共聚焦荧光显微镜也是一种基于 PL 的材料分析方法,它是在荧光显微镜成像基础上加装了激光扫描装置。在实验中我们使用紫外或者紫光激光激发被测样品,再利用计算机收集荧光图像,从而得到样品的微区 PL (u-PL)特征。本论文研究工作中所使用的激光共聚焦显荧光显微镜为日本 HORIBA Jobin Yvon 公司的 LabRAM HR800 微区 PL 光谱系统,激发波长为 405 nm。

2.2.4 扫描电子显微镜和阴极荧光 (SEM & CL)

扫描电子显微镜(SEM)是利用二次电子信号成像来观察样品表面形态的一种方法,通过收集二次电子就能够得到样品表面放大的形貌图像。图 2.7 是 SEM 的原理示意图。SEM 有以下优点: 1、高放大倍数(20-20 万倍),放大倍数连续可调; 2、大景深,大视野,立体感成像; 3、样品制备简单,大多数样品可直接观察。

20



图 2.7 扫描电子显微镜原理示意图[93]

阴极荧光(CL)是电子束照射产生的光。当电子束打到半导体上时,电子 能量会转移,导致半导体材料中一些价带电子跃迁到导带上,会产生电子空穴对、 晶格振动、X射线等。电子空穴对辐射复合会发射出一个光子,该光子能量与带 隙能量一致。通常,CL光谱分析仪配备在扫描电子显微镜上,以便获得表面形 貌与发光特性的直接对应。SEM的高分辨特性,使电子束的扫描范围可以从 nm 级变化到 nm 级。从而 CL 既可以用来分析微观结构引起的发光特性的差异,也 可以表征体材料的发光特性。CL 的另一个优点是入射电子能量可调。在传统的 SEM 装置上,入射电子束能量 1~30 KeV 可调。因此很适合用来分析多层结构 的样品。增加电子束能量可以增加电子束的作用长度,从而可以激发更深层材料 的电子空穴对。此外,CL 还可以收集特定波长的发光,即单光谱 CL,因此可以 用来分析外延层缺陷信息。例如,对于 GaN 材料,365 nm 的单光谱 CL 图像中 的不发光区域通常对应位错的存在,而 InGaN 量子阱材料在不同区域有不同波 长的 CL 发光,说明了 InGaN 量子阱中 In 组分分布的不均匀。

本论文研究工作中所使用的是德国 FEI 公司的热场扫描电子显微镜并配备 有 CL 光谱分析仪。

#### 2.2.5 霍尔测试 (HALL)

霍尔效应是运动的带电粒子在磁场中受洛伦兹力作用而引起偏转。通常采用 四探针法(范德堡法)进行霍尔测试。四探针法测试要求待测样品为正方形,这 是由于正方形具有很高的对称性,正方形材料的四个顶点从几何上是完全等效。 这种方法还要求薄膜样品的厚度均匀,电阻率均匀,表面是单连通的,即没有孔 洞。此外,四个接触点要尽可能小(远小于样品尺寸),并且这四个接触点必须 位于薄膜的边缘。图 2.8 所示为霍尔测试电阻率示意图,在测试电阻率时,首先 把电流加在电极 1 与电极 2 上(*I*<sub>12</sub>),测量电极 4 和电极 3 之间的电压(*V*<sub>43</sub>)。 然后再把电流加在电极 1 与电极 4 上(*I*<sub>14</sub>),测两电极 2 和电极 3 之间的电压 (*V*<sub>23</sub>)。最终电阻率的公式为:

$$\rho = \frac{\pi d}{2 \cdot \ln 2} \left[ \frac{V_{43}}{I_{12}} + \frac{V_{23}}{I_{14}} \right] \cdot F(Q)$$
 2.6

其中,d是被测试层的厚度,Q和F是对称性因子和相关性系数。



图 2.8 霍尔测试电阻率示意图

在测量霍尔系数时,在一对不相邻的电极通上电流I,并在垂直样品方向上加一磁场 B,在另一对不相邻的电极上测量电压的变化*V<sub>h</sub>*,可得霍尔系数及其载流子浓度分别为:

$$R_{\rm H} = \frac{V_h \cdot d}{I \cdot B} \qquad 2.7$$
$$q = \frac{1}{R_{\rm H} e} \qquad 2.8$$

其中 d 为样品厚度, $V_h$ 为测量的霍尔电压, e 为元电荷。通过样品的电阻率 和霍尔系数,我们可得样品的载流子的迁移率为  $u = \frac{R_H}{o}$ 。
本论文研究过程中所使用的 Hall 测试设备为英国 Accent HL5500PC 霍尔效 应测试系统。

### 2.2.6 二次离子质谱 (SIMS)

二次离子质谱仪(Secondary Ion Mass Spectroscopy,简称 SIMS),是利用 质谱法分析初级离子入射靶面后溅射产生的二次离子而获取材料表面信息的一 种方法。注入样品表面的高能离子将其动能传递给样品内部原子,通过层叠碰撞, 引起中性粒子和带正负电荷的二次离子发生溅射,我们可以通过分析溅射的二次 离子的质量信号得到样品表面和内部元素分布特征。如图 2.9 是 SIMS 分析样品 的原理示意图。本论文中 SIMS 测试结果来自于第三方检测单位上海埃文斯材料 科技有限公司。



图 2.9 二次离子质谱(SIMS)原理示意图<sup>[86]</sup>

# 2.3 本章小结

本章首先简要介绍了本论文研究工作中材料生所使用的 MOCVD 系统,然 后介绍了本论文在实现室温连续工作 GaN 基绿光激光器研究工作中所使用到的 常用材料表征手段,包括高分辨 X 射线衍射、原子力显微镜、光致发光、扫描 电子显微镜、阴极荧光测试、霍尔测试以及二次离子质谱测试等。

# 第三章 绿光 InGaN 量子阱生长研究

绿光 InGaN 量子阱是 GaN 基绿光激光器的核心结构,它的晶体质量和光学性质直接决定了器件的性能。因此获得晶体质量好、效率高的绿光 InGaN 量子阱是实现 GaN 基绿光激光器的关键。在本章中,我们研究了绿光 InGaN 量子阱的生长,通过采用提高生长速率的方法获得了在较高温度下生长的、发光均匀的绿光 InGaN 阱。之后我们研究了绿光 InGaN 量子阱典型的二维岛状形貌形成的机理,并通过采用大斜切角衬底获得了台阶流生长的绿光 InGaN 量子阱。同时,我们还研究了生长模式对绿光 InGaN 量子阱的结构和光学性质的影响。

#### 3.1 高温、高生长速率的绿光 InGaN 量子阱

In-N 的键能小,分解温度低,导致在高温下生长 InGaN 时 In 的并入效率低, 而绿光 InGaN 量子阱需要很高的 In 组分 (>30%),因此绿光 InGaN 量子阱通常 在比较低的温度下生长 (<700 ℃)<sup>[72]</sup>。但是在 MOCVD 生长中,如此低的温度 下生长的材料质量很差。研究表明增加生长速率可以增加 In 的并入效率。日本 东芝公司 (Toshiba)<sup>[95]</sup>曾经报道采用高的生长速率可以在较高的生长温度下获 得发光均匀的黄绿光量子阱。因此在本研究中,我们采用提高生长速率的方法来 在较高温度下获得绿光 InGaN 量子阱。

在实验过程中,我们利用 MOCVD 设备在蓝宝石衬底上生长了 GaN/蓝宝石 基板,然后在 GaN/蓝宝石基板上生长绿光 InGaN 量子阱。在研究中我们采用商 品化的 2 英寸平片蓝宝石作为衬底。其中,衬底厚度约为 440 μm,沿 c 面的斜 切角大小为 0.2°。GaN/蓝宝石基板采用传统的两步生长法工艺生长<sup>[96]</sup>,即先生 长一层低温 GaN 缓冲层,然后再在高温生长高质量的 GaN 外延层,具体生长步 骤如下:

 首先对衬底表面高温处理,去除衬底表面吸附的杂质。把生长温度升高 到 1040 ℃,在 H<sub>2</sub>气氛中高温处理 10 分钟。

2. 对衬底表面进行氮化。把生长温度降低到成核层生长温度(530 ℃),通入 NH<sub>3</sub>进行表面氮化。

3. 生长低温 GaN 成核层。在 530 ℃ 生长低温 GaN 成核层,成核层的厚度 大约为 20~30 nm。 4. 对成核层进行高温退火, 使其分解并重结晶。升温到 1040 ℃ 使低温 GaN 成核层分解并重结晶。

5. 成核层合并及高温 GaN 生长。在 1040 ℃ 的温度下生长 3 μm 厚的高质量 GaN 层。

我们采用HRXRD以及AFM和CL测试来表征GaN/蓝宝石基板的晶体质量。



图 3.1 GaN/蓝宝石基板(002)与(102)晶面的双晶摇摆曲线



图 3.2 GaN/蓝宝石基板的 (a) AFM, (b) 全光谱 CL

图 3.1 所示为采用 HRXRD 测量的(002)晶面和(102)晶面的双晶摇摆曲 线。从 XRD 测试结果可以看出(002)晶面和(102)半高全宽(FWHM)为别 为 245"和 280"。图 3.2(a) 是 GaN/蓝宝石基板的 AFM 测试结果,在样品表面随

机选取的 5 μm × 5 μm 的测试范围内, GaN/蓝宝石基板表面具有平整的台阶流 形貌,表面均方根粗糙度为 0.19 nm。从 AFM 图像中可以看出 GaN 表面既有单 原子台阶又有双原子台阶,这是 GaN 材料生长过程中一种常见形貌,主要由于 两种台阶的生长速率存在差异而导致的<sup>[97,98]</sup>。图 3.2(b) 所示为 GaN/蓝宝石基板 的全光谱 CL 测试结果。CL 图像中的黑点对应与 GaN/蓝宝石基板中的穿透位错 等非辐射复合中心。从图中可估计出穿透位错的密度约为 3.2×10<sup>8</sup> /cm<sup>2</sup>。以上数 据表明,我们生长的 GaN/蓝宝石基板具有良好的晶体质量。

在高质量 GaN/蓝宝石基板上,我们进行了绿光 InGaN 量子阱的外延生长研究。首先我们研究了生长速率对绿光 InGaN 量子阱中 In 并入效率的影响。我们在不同温度、不同生长速率下生长了绿光 InGaN/GaN 多量子阱结构,并对样品进行 PL mapping 测试,研究生长条件对绿光 InGaN 量子阱发光性质的影响。各样品的生长条件如表 3.1 所示。

生长条件	温度 (ºC)	TEGa (sccm)	TMIn (sccm)	GR (nm/s)
Sample 1	702	33	190	0.022
Sample 2	712	50	288	0.036
Sample 3	712	70	404	0.05
Sample 4	712	105	404	0.063
Sample 5	730	83	480	0.054
Sample 6	730	105	606	0.075

表 3.1 不同绿光 InGaN 量子阱样品的生长参数



图 3.3 不同温度、不同生长速率下生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱的 PL 波长

图 3.3 是不同温度下采用不同生长速率生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱样 品的 PL 发光波长变化。PL mapping 测试的激发波长为 375 nm,激光功率为 16 mW。由 PL mapping 测试结果可知,通过提高生长速率的方法,我们可以在高达 730 ℃ 的温度下获得绿光波段的发光。因此,提高生长速率可以增加 InGaN 量 子阱中 In 的并入效率,从而可以在较高的温度下获得绿光波长的发光。

图 3.4 是不同温度、不同生长速率下生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱样品的 PL mapping 积分强度与 PL 光谱半高全宽(FWHM)的测试结果。从图中椭圆形区域中的几个样品比较可以看出适当提高 InGaN 量子阱的生长速率在 712 ℃ 下生长的绿光量子阱具有较好的发光强度和较低的发光半高全宽。在 730 ℃下虽然也能获得绿光波段发光,但是 PL 发光强度明显变弱,可能是由于生长速率太快导致的晶体质量较差。



图 3.4 不同生长条件下绿光 InGaN/GaN 多量子阱的光学性质: (a) PL 强度, (b) PL 半宽



图 3.5 不同生长条件下绿光 InGaN/GaN 多量子阱的微区荧光显微镜图像

图 3.5 是不同温度、不同生长速率下生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱样品的微区荧光显微镜测试结果。荧光显微镜中的黑色区域为非辐射复合中心。从荧光显微镜照片中可以看出在 702 ℃ 下生长的绿光 InGaN 量子阱发光不均匀,有很多非辐射复合中心,说明在此温度下生长的绿光 InGaN 量子阱材料质量较差。 在 730 ℃ 下绿光 InGaN 量子阱的发光也不均匀,可能是由于生长速率太快导致晶体质量也较差。712 ℃ 下生长的绿光 InGaN 量子阱发光均匀性最好。因此,通过提高绿光 InGaN 量子阱的生长速率,我们在 712 ℃ 的较高温度下获得了发光均匀的绿光 InGaN 量子阱。

3.2 绿光 InGaN 量子阱的生长模式及其对绿光 InGaN 量子阱光学性质的影响

3.2.1 在具有台阶结构的邻晶面上外延生长的一般模式

衬底斜切角是衬底的一个重要特征。斜切角的大小对外延材料的表面形貌以 及器件性能有重要影响。如果使用的衬底沿某一晶面具有一定的斜切角,那么斜 切的表面就会形成台阶,而且台阶的宽度和密度都与斜切角有关。图 3.6 为衬底 斜切角与台阶宽度之间的关系示意图。



图 3.6 斜切角与台阶宽度之间的关系示意图[90]

假定衬底的斜切角为  $\alpha$ ,原子台阶的高度为 h,台面宽度为  $L_t$ 。经过简单的分析可知:

 $tan \alpha = h / L_t$  3.1 从而得到  $L_t = h / tan \alpha$  3.2

因此,材料生长时原子台面的宽度由斜切角的大小决定。对于斜切角较大的 衬底,原子台面宽度小。相反,对于斜切角较小的衬底,原子台面宽度大。在具 有台阶结构的邻晶面上进行外延生长时,主要受到生长温度与原子迁移能力影响, 在不同的生长温度下有不同的生长模式。



图 3.7 外延生长中原子扩散示意图[88]

在具有台阶结构的 GaN 上生长 InGaN 量子阱时,生长行为会受到台阶形貌的影响。图 3.7 所示为外延生长过程中原子扩散迁移示意图,原子吸附到台面上后会向各个方向进行表面扩散迁移。台阶边缘具有很多的扭折位置(Kink),原子并入 kink 释放的能量比并入其他位置多,因此是最容易并入晶体的位置。原子跨越下台阶边缘时会受到 Ehrlich-Schwoebel (E-S)势垒<sup>[100-103]</sup>的作用,因此落

在台面上的原子更倾向于在上台阶的边缘进行生长。因此,在具有台阶结构的邻 晶面上生长且台面宽度一定时,如果原子的扩散距离大于台面宽度,那么原子就 可以迁移到上台阶边缘,并且有一定的几率并入 kink 位置,形成台阶流生长。 当生长温度足够低时,原子的迁移能力低,迁移距离较短,并且原子的脱附几率 也较低,大量原子还未迁移到 kink 位置便已经在台阶表面成核,周围原子落到 表面上以后又倾向于继续在核周围富集,进而在台面上形成小岛,这种模式称为 岛状生长模式。随着温度升高,原子迁移能力增大,迁移距离增加,靠近台阶内 边缘原子能迁移到上台阶边缘的 kink 位置并入,形成台阶流生长,但是靠近外 边缘的原子仍然在台阶表面成核,于是形成了沿台阶分布的二维岛状生长模式。 当温度足够高时,原子迁移速率能力高,原子扩散距离长,大部分原子都可以迁 移到上台阶边缘并入 kink 位置进行台阶流生长,形成台阶流生长模式。在具有 台阶结构的邻晶面外延生长时不同生长温度下对应的生长模式如图 3.8 所示。



图 3.8 在具有台阶结构的邻晶面外延生长的三种基本模式

### 3.2.2 绿光 InGaN 量子阱的二维岛状形貌及其形成机理

我们在 GaN/蓝宝石基板上生长了 2.5 nm 厚的绿光 InGaN 量子阱单层结构, 研究绿光 InGaN 量子阱的生长模式。图 3.9 所示是我们在 GaN/蓝宝石基板上生

长的绿光 InGaN 量子阱单层的 AFM 形貌与 GaN/蓝宝石基板形貌的对比。由图 3.9(a) 可以看出, GaN/蓝宝石基板表面是很平整的台阶流形貌。这是由于 GaN 的生长温度在 1040 ℃左右, 在如此高的生长温度下原子迁移速率高, 迁移距离 长, 因而 GaN/蓝宝石基板是典型的台阶流生长。但是由图 3.9(b) 可以看出绿光 InGaN 量子阱的表面却是沿着下方的 GaN 台阶有序排列的岛状形貌, 这些岛的 高度大约 1~2 个单原子层, 直径大约 30~80 nm, 我们称这种形貌为二维岛状 形貌。这种形貌是我们在 GaN/蓝宝石基板上生长绿光 InGaN 量子阱的典型形貌。 国外众多研究小组所报道的高 In 组分 InGaN 的形貌也是如此<sup>[104-110]</sup>。在本小节 中, 我们对二维岛状形貌的形成机理进行了详细的研究。



图 3.9 (a) GaN/蓝宝石基板的 AFM 形貌, (b) 绿光 InGaN 量子阱的 AFM 形貌, (c)是图(b) 中划线区域的高度分布图



图 3.10 GaN/蓝宝石基板上生长的不同生长温度下的蓝光 InGaN 量子阱的 AFM 形貌,生长 速率均为 0.023 nm/s (a) 710 ℃, (b) 688 ℃, (c) 655 ℃

当衬底的斜切角的大小一定时,原子台面宽度一定,那么生长温度和生长速 率是能否获得台阶流生长的两个关键因素。我们首先在 GaN/蓝宝石基板上在不

同温度下(710 ℃, 688 ℃, 655 ℃)生长了三个蓝光 InGaN 量子阱样品, 三个样 品的生长速率均保持在 0.023 nm/s, 厚度均为 2.5 nm。在不同温度下生长的样品 TMIn 源的流量相应调整以控制三个样品的 In 组分均为 16% 左右。我们用 AFM 表征三个样品的表面形貌,研究温度对蓝光 InGaN 量子阱生长模式的影响。图 3.10 所示为蓝光 InGaN 量子阱样品的 AFM 测试结果。从 AFM 测试结果可以看 出,在 710 ℃ 下生长的蓝光 InGaN 表面是平整的台阶流形貌。但是当生长温度 降低到 688 ℃ 时,表面形貌变为沿底层 GaN 台阶分布的二维岛状形貌。随着温 度进一步降低到 655 ℃, 表面形貌变为三维岛状形貌。这些数据表明, 生长温度 对 InGaN 量子阱的表面形貌以及生长模式有非常重要的影响。我们认为随温度 降低二维岛状形貌的形成是由于低温下原子迁移能力低,迁移距离太短导致的。 我们所用的 GaN/蓝宝石基板的斜切角约为 0.2°, 其台面宽度约为 80 nm。在如此 宽的台面上,原子需要很长的迁移距离才能迁移到台阶边缘并入形成台阶流生长。 然而,在 688 ℃ 的较低生长温度下,原子迁移能力低,迁移距离较短。当原子 的迁移距离小于台面宽度时,台面上距离台阶边较远的原子将不能迁移到台阶边 并入,而是直接在台面上成核,并且形成二维岛状的形貌,如图 3.11 所示。当 温度进一步降低到655℃,原子的迁移能力极低,因而大部分原子无法迁移到台 阶边缘并入,形成三维岛状生长模式。



图 3.11 台面较宽且原子迁移率较低时二维岛状形貌形貌形成过程示意图



图 3.12 斜切角为 0.2°的 GaN/蓝宝石基板上生长的不同生长条件下的绿光 InGaN 量子阱的 AFM 形貌: (a) 710 ℃, 0.06 nm/s; (b) 688 ℃, 0.036 nm/s; (c) 663 ℃, 0.023 nm/s; (c) 655 ℃, 0.012 nm/s。

结合以上讨论,我们认为获得台阶流生长的 InGaN 量子阱的一种方法是在 生长 InGaN 量子阱的时候采用尽可能高的生长温度和尽可能低的生长速率,以 增加原子的迁移距离。于是我们在斜切角为 0.2°的 GaN/蓝宝石基板上改变绿光 InGaN 量子阱的生长条件,尝试获得台阶流生长的绿光 InGaN 量子阱。然而, 由于 In 的脱附速率大, InGaN 量子阱中的 In 组分对生长温度和生长速率非常敏 感<sup>[72,111-115]</sup>。为了获得绿光波段的发光,通常绿光 InGaN 量子阱都是在比较高的 生长速率以及比较低的温度下生长,因此优化生长温度和生长速率来获得台阶流 形貌绿光 InGaN 量子阱的空间不大。为了在上文中蓝光 InGaN 量子阱所采用的 0.023 nm/s 的生长速率下获得 520 nm 的发光波长,绿光 InGaN 量子阱的生长温 度需要降低到 663 ℃,如此低的生长温度下生长的绿光 InGaN 量子阱表面也是 二维岛状形貌,如图 3.12(c) 所示。当我们把生长温度升高到台阶流形貌的蓝光 InGaN 量子阱所采用的 710 ℃ 的生长温度时,绿光 InGaN 的生长速率不得不增 加到 0.06 nm/s 才能获得绿光波段的发光,在如此高的生长速率下,绿光 InGaN 量子阱的表面同样也是二维岛状形貌,如图 3.12(a)所示。把生长速率降低到 0.012 nm/s,绿光 InGaN 量子阱表面同样是二维岛状的形貌,如图 3.12(d)所示,因为在如此低的生长速率下,生长温度必须降低到 655 ℃ 才能获得绿光波段的发光。此外,我们还尝试了改变绿光 InGaN 量子阱的生长压力等条件,但是所有在斜切角为 0.2°的 GaN/蓝宝石基板上生长的绿光 InGaN 样品表面均为二维岛状形貌。基于以上讨论,我们认为,在斜切角为 0.2°的 GaN/蓝宝石基板上通过 生长参数的调节基本不可能获得台阶流生长的绿光 InGaN 量子阱。

### 3.2.3 台阶流生长的绿光 InGaN 量子阱

在 3.2.1 中我们讨论过,台面宽度随衬底斜切角的增大而减少,因此我们认为获得台阶流形貌的绿光 InGaN 量子阱的另一种方法是通过增加衬底的斜切角来降低台面宽度。如图 3.13 所示,当台面宽度降低到台面上的所有原子都可以迁移到台阶边缘 kink 位置并入的时候,就可以获得台阶流生长的绿光 InGaN 量子阱。在本实验中我们采用自支撑的 GaN 衬底,自支撑 GaN 衬底具有较低的穿透位错密度,另外还有导热性好、易于解理、利于制作垂直结构等优点,因此GaN 衬底是制作 GaN 基绿光激光器的关键材料。图 3.14 为我们实验中所采用的苏州纳维科技有限公司的商业化自支撑 GaN 衬底的全光谱 CL 图像,可以看出其位错密度大约为 1.7×10<sup>6</sup>/cm<sup>2</sup>,远低于 GaN/蓝宝石基板的位错密度。



图 3.13 通过增大衬底斜切角降低台面宽度后台阶流形貌形成过程示意图

35



图 3.14 自支撑 GaN 衬底的全光谱 CL

首先我们采用 HRXRD 对实验中所采用的 GaN 衬底的斜切角进行了测试, 之后我们在具有不同斜切角的自支撑 GaN 衬底上生长了 2.5 nm 厚的绿光 InGaN 量子阱单层结构,并用 AFM 研究其表面形貌。AFM 测试结果如图 3.15 所示。 从图 3.15(a) 可以看出,当我们在斜切角为 0.2°的 GaN 衬底上生长绿光 InGaN 量子阱时,其表面为二维岛状形貌,且台阶宽度较大,约为 83 nm,与在斜切角 为 0.2°的 GaN/蓝宝石基板上生长的绿光 InGaN 量子阱的表面形貌一致。当衬底 斜切角增大到 0.48°时,绿光 InGaN 量子阱的台面宽度减小到 36 nm,因此原子 有更大的几率迁移到台阶边缘 kink 位置并入,进而形成台阶流形貌,如图 3.15(b) 所示。当衬底斜切角进一步增大到 0.60°,原子台面宽度进一步减小到 30 nm, 绿光 InGaN 量子阱的表面为台阶流形貌,如图 3.15(c) 所示。因此,当采用的衬 底的斜切角大于 0.48°时,我们就可以获得台阶流生长的绿光 InGaN 量子阱。图 3.16 为 AFM 测量的在不同斜切角的衬底上生长的绿光 InGaN 量子阱的台面宽度 随斜切角的变化图。

36



图 3.15 在具有不同斜切角的衬底上生长的绿光 InGaN 量子阱的 AFM 形貌,台面宽度分别为(a) 83.3 nm, (b) 35.7 nm, (c) 30.3 nm。



图 3.16 在不同斜切角大小的 GaN 衬底上生长的绿光 InGaN 量子阱的台面宽度随斜切角的 变化关系

随后,我们在不同斜切角的 GaN 衬底上生长了不同 In 组分的 InGaN 量子阱, 研究其 AFM 形貌与衬底斜切角的关系,并总结了不同 In 组分的 InGaN 量子阱 的二维岛状形貌与台阶流形貌与衬底斜切角的关系,如图 3.17 所示。由图 3.17 可知,在 InGaN 量子阱中的 In 组分为 16% ~ 30% 的范围内,都可以通过采用大斜切角衬底来获得台阶流形貌的 InGaN 量子阱。但是,随着 InGaN 量子阱中 In 组分的增加,要获得台阶流形貌的 InGaN 量子阱所需要的衬底的斜切角增大。



图 3.17 不同 In 组分 InGaN 量子阱的形貌与衬底斜切角关系示意图

# 3.2.4 不同生长模式下绿光 InGaN 量子阱的结构和光学性质

我们认为二维岛状形貌的绿光 InGaN 量子阱会导致 InGaN/GaN 多量子阱界 面的粗糙,而台阶流形貌的绿光 InGaN 量子阱能够改善 InGaN 量子阱与 GaN 量 子垒的界面。因此,我们在斜切角为 0.2° 和 0.48° 的自支撑 GaN 衬底上生长了不 同生长模式的绿光 InGaN/GaN 多量子阱样品。图 3.18 所示为绿光 InGaN/GaN 多 量子阱样品的 HRXRD (002) 面三轴晶联动扫描结果。可以看出,台阶流形貌 的绿光 InGaN/GaN 多量子阱的卫星峰强度远高于二维岛状形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱。并且台阶流形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱的卫星峰的 半高全宽也比二维岛状形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱的要小,0 级卫星峰的 半高全宽分别为 351 秒和 381 秒。以上数据说明台阶流形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱比二维岛状形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱有更陡峭的界面。对 XRD 衍射峰进行拟合得到不同生长模式下量子阱周期一致,说明不同生长模式下 InGaN 量子阱的生长速率一致。

38



图 3.18 (002) 面不同生长模式的绿光 InGaN/GaN 多量子阱三轴晶联动扫描结果

我们采用变温 PL 的方法对台阶流模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱和二 维岛状模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱进行了光学性质的表征。变温 PL 测试所采用的激发光源为 405 nm 的半导体激光器,激光照射到样品表面的功率 密度大约为 6.4 kW/cm<sup>2</sup>。测试温度范围为 10 K 到室温。两个样品在不同温度下 的 PL 发光光谱如图 3.19 所示。台阶流模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱在 室温的发光峰位在 2.309 eV,二维岛状模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱在 室温的发光峰位在 2.313 eV,说明不同生长模式下 In 的并入效率一样。



图 3.19 不同生长模式下的多量子阱在不同温度下的 PL 光谱

我们采用高斯拟合获得了不同生长模式的绿光 InGaN/GaN 多量子阱的 PL 光谱的半高宽(FWHM)随温度的变化曲线,如图 3.20(a) 所示,两个样品的 PL 光谱半高宽均随温度的增加呈现出先减小后增大的变化趋势。PL 光谱半高宽随

温度的变化是由载流子在局域态之间的转移和分布导致[116-118]。由于 InGaN 量子 阱中的 In 组分不均匀以及厚度起伏等原因,导致在 InGaN 量子阱中有很多具有 不同能级深度的局域中心。在低温度下(10K),载流子动能低,非辐射复合速 率也低,因此光生载流子被冻结在产生处的局域中心并复合发光。由于局域中心 的能级不一样,导致 PL 光谱较宽。随着温度升高(10 K ~ 50 K),载流子的热 动能增加,在浅能谷中的部分载流子能够越过势垒逃逸到深能谷中。由于载流子 集中分布到深能谷中,PL光谱半宽下降。当温度继续增大时(> 50 K),载流 子的热动能继续增大,在深能谷中的载流子能够越过势垒逃逸到到高能级的浅能 谷中,部分被激发的载流子又可以重新弛豫回深能谷中复合发光,部分载流子在 浅能谷中发生复合发光,因此浅能谷中载流子的发光几率增加引起 PL 光谱半宽 增大。虽然不同模式下生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱的 PL 光谱半高宽随温度 的变化规律一致,但是台阶流模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱的 PL 光谱半 高宽在所有温度下都低于二维岛状模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱。台阶 流模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱和二维岛状模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱在室温下 PL 光谱的半高宽分别为 131 meV 和 166 meV。PL 光谱半宽 小说明台阶流模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱有更好的势能均匀性, 对增 加激光器的峰值增益有非常重要的意义。PL 光谱半高宽的减少可能是由于台阶 流模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱有更陡峭的阱垒界面,这与上文中 XRD 测试结果一致。此外,台阶流模式生长的绿光 InGaN 量子阱中 In 组分有可能更 加均匀,但是还需要进一步的研究来验证。



图 3.20 不同生长模式下的绿光 InGaN/GaN 多量子阱的变温 PL 测试结果 (a) 发光光谱的半 高宽随温度的变化关系, (b) 归一化的 PL 积分强度随温度的变化关系。

在 10 K 的极低温度下,非辐射复合中心全部被冻结,内量子阱效率被认为 是 100%,因此室温下的内量子效率可以通过室温下的 PL 积分强度除以 10 K 下 的 PL 积分强度来计算。不同生长模式下的绿光 InGaN/GaN 多量子阱变温 PL 测 试的归一化 PL 积分强度随温度倒数的关系如图 3.20(b)所示。随温度从 10 K 升 高到室温,PL 积分强度下降。二维岛状生长模式的绿光 InGaN/GaN 多量子阱在 很低的温度 PL 强度就开始出现迅速下降,且在高温区域 PL 强度随温度下降的 速度更快,在室温时的 PL 强度约为 10 K 时的 15%。而台阶流生长模式的绿光 InGaN/GaN 多量子阱在高温区 PL 强度随温度下降的速度慢,在室温时的 PL 强 度约为 10 K 时的 30%。说明台阶流生长模式的绿光 InGaN/GaN 多量子阱有更高 的内量子效率。

PL积分强度随温度的关系可通过双模式 Arrhenius 公式进行拟合[119,120]:

$$I(T) \propto \frac{1}{1 + \sum_{i} C_{i} \exp\left(-\frac{E_{i}}{k_{B}T}\right)} \qquad 3.3$$

式中 E<sub>i</sub> 是对应于不同种类的非辐射复合中心的激活能,跟局域中心的限制 能级有关。当局域中心的限制作用强时,载流子从局域中心逃逸至非辐射复合中 心的几率小,非辐射复合的速率低,激活能高。因此 E<sub>i</sub> 也可以认为是弱局域态 和强局域态的限制势垒。C<sub>i</sub> 是与对应非辐射复合过程进行的几率相关的一个常 数,k<sub>B</sub> 是玻尔兹曼常数。图 3.20(b) 中蓝色和黑色的实线是对实验数据按照公 式 3.3 进行的拟合,从拟合结果可以发现,二维岛状形貌的绿光 InGaN/GaN 多 量子阱需要有三个非辐射复合中心才能对实验数据进行很好的拟合,三个非辐射 复合中心的激活能分别为 54.7 meV, 6.5 meV 和 18.8 meV。但是台阶流形貌的绿 光 InGaN/GaN 多量子阱只需要两个非辐射复合中心就能很好的拟合实验数据, 两个非辐射复合中心的激活能分别为 49.4 meV 和 8.2 meV。这与台阶流生长模 式的绿光 InGaN/GaN 多量子阱比二维岛状生长模式的绿光 InGaN/GaN 多量子 有更高的内量子效率一致。我们认为,二维岛状形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子 阱中活化能为 54.7 meV 的非辐射复合中心与台阶流形貌的绿光 InGaN/GaN 多量 子阱中活化能为 49.4 meV 的非辐射复合中心是相同的非辐射复合中心,因为它 们有相近的激活能。文献中报道过位错相关的非辐射复合中心具有相近的激活能 <sup>[119, 121-123]</sup>。因此,我们认为二维岛状形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 54.7 meV 的非辐射复合中心与台阶流形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 49.4 meV 的非辐射复合中心均来自于位错。同时我们认为,二维岛状形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中第二个激活能为 6.5 meV 的非辐射复合中心与台阶流形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 8.2 meV 的非辐射复合中心有相同的起源。文献<sup>[119, 121, 124-126]</sup>中报道过量子阱与量子垒界面的缺陷导致的非辐射复合中心的激活能的大小为 6 meV<sup>[124]</sup>,9meV<sup>[126]</sup>,10 meV<sup>[119]</sup>,13 meV<sup>[125]</sup>和 8.7 meV<sup>[121]</sup>。因此我们认为,二维岛状形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 6.5 meV 的非辐射复合中心与台阶流形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 8.2 meV 的非辐射复合中心与台阶流形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 8.2 meV 的非辐射复合中心与台阶流形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 8.1 meV 的非辐射复合中心与台阶流形貌的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 18.8 meV 的非辐射复合中心。因此我们认为,二维岛状模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 18.8 meV 的非辐射复合中心。因此我们认为,二维岛状模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 18.8 meV 的非辐射复合中心。因此我们认为,二维岛状模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱中激活能为 18.8 meV 的非辐射复合中心。因此我们

综上所述,台阶流模式生长的绿光 InGaN/GaN 多量子阱可以消除一种激活 能为 18.8 meV 的非辐射复合中心,从而获得更高的内量子效率。

#### 3.3 本章小结

本章我们研究了绿光 InGaN 量子阱的生长,主要包括生长参数对绿光 InGaN 量子阱光学性质的影响、绿光 InGaN 量子阱不同生长模式的形成机理,以及不同生长模式下绿光 InGaN 量子阱的光学性质。取得了以下研究成果:

1. 通过提高生长速率的方法,提高了 InGaN 量子阱中 In 的并入效率,实现 了在较高的生长温度下生长绿光 InGaN 量子阱,并提高了绿光 InGaN/GaN 量子 阱有源区的发光均匀性和发光效率。

2. 研究了绿光 InGaN 量子阱中典型的二维岛状生长模式的形成机理,认为 表面原子迁移能力低是绿光 InGaN 量子阱二维岛模式生长的根本原因。当衬底 的斜切角小,原子台面宽度大时,距离原子台阶边较远的原子难以迁移到台阶边 缘并入形成台阶流生长模式,从而形貌上表现为沿台阶分布的二维岛状形貌。并 且在斜切角小的衬底上很难通过生长参数的调节获得台阶流生长的绿光 InGaN

42

量子阱。

3. 通过采用大斜切角衬底减小原子台面宽度实现了绿光 InGaN 量子阱的台 阶流生长,并研究了更长波长 InGaN 量子阱的形貌。研究表明,通过进一步增 大衬底斜切角,更长波长的 InGaN 量子阱也可以获得台阶流形貌。

4. 研究了不同生长模式下的绿光 InGaN 量子阱的结构和光学性质。研究发现,台阶流模式生长的绿光 InGaN/GaN 量子阱比二维岛状模式生长的绿光 InGaN/GaN 量子阱有更陡峭的界面。同时,台阶流模式生长的绿光 InGaN 量子 阱还可以消除激活能为 18.8 meV 的非辐射复合中心,从而使其内量子效率增加了一倍。

# 第四章 绿光 InGaN/GaN 量子阱的界面调控

在第三章中,我们研究了 InGaN 量子阱的生长参数和生长模式对其光学性 质的影响。在本章中,我们将研究 InGaN 量子阱层与 GaN 量子垒层的界面调控。 研究绿光 InGaN 量子阱中 In 偏析导致的富 In 团簇、trench 缺陷等界面缺陷,并 且通过界面调控消除了富 In 团簇、trench 缺陷等界面缺陷,从而把 GaN 基绿光 激光器的 IQE 从 39%提高到了 59%,并且把绿光激光器芯片的阈值电流密度从 8.5 kA/cm<sup>2</sup> 降低到了 1.85 kA/cm<sup>2</sup>。

### 4.1 绿光 InGaN/GaN 量子阱的界面缺陷

由于 In-N 键能较弱,高 In 组分的 InGaN 量子阱通常要在比较低的温度下生 长,以保证有足够多的 In 并入<sup>[72]</sup>。低温生长 InGaN/GaN 量子阱有什么样的缺陷? 它们是怎么形成的?我们对此进行了研究。图 4.1 是在 GaN/蓝宝石基板上采用 单温法(即采用相同温度生长 InGaN 量子阱与 GaN 量子全)生长的绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区的 10 nm 厚的 GaN 量子全层的 AFM 形貌。从 AFM 图 像可以看到,虽然 GaN 垒层的生长温度很低,但可以看到很好的原子台阶。此 外,AFM 图像中也显示了三种缺陷。一种是 V-pits,是穿透位错在表面的露头<sup>[127, 132,136,138-144]</sup>。第二种缺陷是"Indium-inclusion embedded in V-defects",是在 V-pits 中形成的富 In 团簇<sup>[134,138,142,145]</sup>。这两种缺陷的形成都与穿透位错有关,其底部 都与穿透位错相连已经被很多文献所报道。第三种缺陷是所谓的 trench 缺陷,是 一种闭合型缺陷,该缺陷内部 In 组分比周围高。目前对这种缺陷的研究还很少。 只有剑桥大学的 C. J. Humphreys 教授课题组研究了 trench 缺陷的微观结构<sup>[131-133]</sup>, 与前两种缺陷不同,其底部没有穿透位错,而是存在层错缺陷,他们认为高 In 组分 InGaN 中局部应力释放是 trench 缺陷形成的原因。



图 4.1 采用单温法生长的绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区的 10 nm 厚的 GaN 量子垒的 AFM 表面形貌

在第三章中我们介绍过,在斜切角为 0.2°的 GaN/蓝宝石基板上生长的绿光 InGaN 量子阱的表面是沿底层台阶分布的二维岛状形貌,并未发现有 trench 缺陷 的存在,这说明 trench 缺陷是在低温 GaN 量子垒的生长过程中产生的。为了研 究 trench 缺陷的形成过程,我们在 GaN/蓝宝石基板上生长了具有不同厚度低温 GaN 盖层的绿光 InGaN 单量子阱,并用 AFM 表征其表面形貌。由于样品是在斜 切角为 0.2°的 GaN/蓝宝石基板上生长,因此底层绿光 InGaN 量子阱的形貌为二 维岛状的形貌。图 4.2 是绿光 InGaN 量子阱上不同厚度低温 GaN 的表面 AFM 形 貌。从图 4.2(a) 可以看出,当低温 GaN 厚度为 1.0 nm 时,不能完全覆盖底层的 InGaN 量子阱的二维岛状形貌,因此表面形貌比较粗糙,台阶流不明显。我们同 时在 GaN/蓝宝石基板上直接生长了 1.0 nm 低温 GaN 样品作为对比,如图 4.2(d) 所示。可以看出,在 GaN/蓝宝石基板上直接生长的低温 GaN 表面较为平整,台 阶边缘平直,是很好的台阶流生长,并且除了 V-pits 以外,未发现其他缺陷。因 此我们认为,低温 GaN 的质量不仅受到本身生长条件的影响,同时也受到初始 生长表面的影响。绿光 InGaN 量子阱上生长的低温 GaN 的形貌差,是由于底层 的绿光 InGaN 量子阱引起。绿光 InGaN 量子阱的粗糙表面形貌和 In 偏析可能导 致低温 GaN 生长过程中原子迁移距离变短,降低了 GaN 盖层的质量<sup>[128,129]</sup>。随 低温 GaN 厚度增加到 1.8 nm,表面形貌变光滑,开始出现台阶流形貌,但是台 阶边粗糙,如图 4.2(b)所示。当低温 GaN 厚度增加到 4.0 nm 时,表面已经是清 晰的台阶流形貌,原子台阶边也比较光滑,但是同时表面也开始出现 trench 缺陷,如图 4.2(c)所示。我们认为,高 In 组分 InGaN 量子阱表面存在的富 In 团簇可能 是导致 trench 缺陷形成的原因。



图 4.2 AFM 形貌: (a) 绿光 InGaN 量子阱上 1.0 nm 低温 GaN, (b) 绿光 InGaN 量子阱上 1.8 nm 低温 GaN, (c) 绿光 InGaN 量子阱上 4.0 nm 低温 GaN, (d) GaN/蓝宝石基板上 1.0 nm 低温 GaN

# 4.2 绿光 InGaN/GaN 量子阱的界面调控

## 4.2.1 绿光 InGaN/GaN 量子阱的界面热处理

因为 In 偏析及其导致的富 In 团簇、trench 等缺陷很大程度上降低了绿光 InGaN 量子阱的效率,因此在生长 InGaN/GaN 量子阱有源区的时候引入界面处

理消除 InGaN/GaN 量子阱表面的富 In 团簇是非常有意义的研究工作。热处理和 H2 处理通常被用来去除富 In 团簇<sup>[134, 135, 137-143, 145, 147]</sup>。因此我们在绿光 InGaN/GaN 量子阱中引入了界面高温热处理,具体处理方法为:在生长完绿光 InGaN 量子阱后,以一定的速率把生长温度从量子阱温度升高到 850 ℃,并在 850 ℃ 下停留 30 s 对绿光 InGaN 量子阱进行进行热处理,之后在 850 ℃ 下生长 GaN 量子垒。但是由于 In-N 键能较弱, InGaN 分解温度低, 在高 In 组分绿光 InGaN 量子阱层生长完成后,温度由量子阱温度升至 850 ℃ 的过程中,会造成 InGaN 量子阱的分解,表现为发光波长变短<sup>[90]</sup>。因此我们在生长 InGaN/GaN 量子阱有 源区的时候,引入了低温 GaN 盖层,即在生长完 InGaN 量子阱后,关断 TMIn 源,继续通 TEGa 源一段时间,生长一层薄的低温 GaN 盖层,之后再升温进行 界面处理并生长 GaN 量子垒。低温 GaN 盖层可以保护 InGaN 量子阱在升温过程 中不分解。图 4.3 所示为采用界面调控的 InGaN/GaN 量子阱有源区的生长示意 图。图 4.4 所示为使用低温 GaN 盖层与不使用低温 GaN 盖层生长的绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区的 PL 光谱比较。可以看出,使用低温 GaN 盖层后, InGaN/GaN 量子阱有源区发光波长长 85 nm,说明采用低温 GaN 盖层可以有效 保护高 In 组分 InGaN 量子阱层在升温过程中不分解。



图 4.3 采用界面调控的 InGaN/GaN 量子阱有源区生长示意图



图 4.4 没有低温 GaN 盖层的 InGaN/GaN 量子阱有源区与有低温 GaN 盖层的 InGaN/GaN 量子阱有源区的室温 PL 谱对比<sup>[90]</sup>

为了避免升温过程中 InGaN 量子阱的 In 组分降低, 需要生长低温 GaN 盖层, 但低温 GaN 的厚度对表面形貌及缺陷的形成影响很大,因此我们生长了具有不 同低温 GaN 盖层厚度的绿光激光器样品,研究低温 GaN 盖层厚度对绿光激光器 电注入发光性质的影响。图 4.5 给出了具有不同低温 GaN 盖层厚度的绿光激光 器结构的电注入光谱半高宽随波长的变化。注入电流大小为 20 mA。从图中可以 看出,具有不同低温 GaN 盖层厚度的绿光激光器样品发光半高宽都具有随着波 长的增加而增大的规律,这是因为发光波长长的绿光激光器对应的 InGaN 量子 阱中 In 组分高, 而 InGaN 量子阱中的组分涨落随 In 组分的增加而增大<sup>[37,75]</sup>。同 时,在所有波长下,低温 GaN 盖层厚度为 1.2 nm 的绿光激光器样品光谱半高宽 都大于低温 GaN 盖层厚度为 1.8 nm 的绿光激光器样品,这是因为 1.2 nm 厚的低 温 GaN 盖层不足以保护 InGaN 量子阱,导致在升温过程中绿光 InGaN 量子阱发 生了不均匀分解,因而光谱半宽增大。此外,低温 GaN 盖层厚度为 1.2 nm 的绿 光激光器样品的光谱半高宽随波长的增加而增大的速率远大于低温 GaN 盖层厚 度为 1.8 nm 的绿光激光器样品,这是因为随着 InGaN 量子阱中 In 组分的增加, InGaN 量子阱的热稳定性变差,低温 GaN 盖层的作用也更加明显。当 1.2 nm 厚 的低温 GaN 盖层不足以保护 InGaN 量子阱时,高 In 组分 InGaN 量子阱的热分

解变得更加严重,因而半宽增加的更多。



图 4.5 不同低温 GaN 盖层厚度的绿光激光器结构电注入发光半高宽随波长的变化

上述结果表明,低温 GaN 盖层的厚度对绿光激光器的发光特性有非常重要的影响。对于绿光激光器而言,发光光谱窄,就能增加有源区的峰值增益,降低阈值电流密度。1.8 nm 厚的低温 GaN 盖层具有较好的晶体质量,并且能够很好的保护 InGaN 量子阱在升温过程中不分解。因此,在随后的研究中,我们采用 1.8 nm 厚的低温 GaN 盖层生长绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区。

### 4.2.2 界面调控的绿光 InGaN/GaN 量子阱形貌观察

在本节中,我们研究界面调控的绿光 InGaN/GaN 量子阱生长过程中的界面 高温热处理过程对绿光 InGaN/GaN 量子阱形貌的影响。图 4.6 所示为界面调控 的绿光 InGaN/GaN 量子阱生长过程中的表面形貌演变。由于样品是在斜切角为 0.2°的 GaN/蓝宝石基板上生长,因此绿光 InGaN 量子阱的表面形貌仍然是沿台 阶分布的二维岛状的形貌,如图 4.6(a) 所示。从图 4.6(b) 可以看出,在绿光 InGaN 量子阱上生长的 1.8 nm 厚的低温 GaN 盖层台阶边缘粗糙,且表面不平整。前面 我们已经讨论过该形貌是由于底层绿光 InGaN 的粗糙表面以及绿光 InGaN 表面 富 In 团簇等缺陷引起。图 4.6(c) 是具有 1.8 nm 低温 GaN 盖层的绿光 InGaN 量 子阱经过界面高温热处理以后的 AFM 形貌,可以看出,在经过界面高温热处理 后样品的表面形貌发生了很大的变化,产生了很多孔洞。孔洞的直径从几十到上 百纳米不等,孔洞深度 2~3 nm,说明孔洞是从下层 InGaN 量子阱延伸到表面的。 表面形貌的变化表明在界面高温热处理过程中,低温 GaN 盖层中的原子发生了 分解和再并入,形成了高温下更稳定的形貌,与此同时下层的 InGaN 量子阱有 部分分解,形成孔洞。我们认为在界面高温热处理过程中,InGaN 量子阱中的富 In 团簇被去除,因此在表面形成了孔洞。



图 4.6 双温法生长绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区时的表面形貌演变: (a) 绿光 InGaN 量子 阱的 AFM 形貌, (b) 具有 1.8 nm 低温 GaN 盖层的绿光 InGaN 量子阱的 AFM 形貌, (c) 具有 1.8 nm 低温 GaN 盖层的绿光 InGaN 量子阱经过界面高温热处理后的 AFM 形貌

## 4.2.3 富 In 团簇消除机理研究

我们进一步研究了当 InGaN 量子阱表面被低温 GaN 盖层覆盖时,为什么富 In 团簇等缺陷能够被消除。图 4.7(a) 和 (b) 是具有 1.8 nm 低温 GaN 盖层的绿光 InGaN 量子阱经过高温热处理之后的 AFM 形貌以及 SEM 图像。因为 AFM 测试 与 SEM 测试是不同的测试设备,因此测试结果所对应的不是样品上的同一个位 置。由 AFM 和 SEM 测试结果可以看出,样品的表面有很多孔洞。在之前的讨 论中,我们认为这些孔洞是在界面高温处理后,InGaN 量子阱表面的富 In 团簇 等缺陷被去除后留下的孔洞。为了证明该假设,我们在 SEM 测试的同一位置, 进行了 CL 测试。样品在 520 nm 和 365 nm 的单光谱 CL 图像如图 4.7(c)和 (d) 所 示。单光谱 CL 图像中的黑点说明在该波长下此处不发光或者是非辐射复合中心。 在 CL 测试中,我们采用 10 KV 的加速电压,电子束的穿透深度大约 1 μm,因 此可以测到 GaN/蓝宝石基板的 CL 信息。因此,图 4.7(d) 所示的 365 nm 的单光

谱的 CL 图像中,不发光的黑点所对应的区域是位错,这是 GaN 材料中一种常 见的非辐射复合中心。而且这些黑点的密度大约为 $3.7 \times 10^8$ /cm<sup>2</sup>,正好也接近 GaN/ 蓝宝石基板的位错密度。因为位错是从底层一直穿透到样品表面的,因此位错区 域在 520 nm 的单光谱 CL 图像中应该也对应不发光区域。通过对比我们发现, 位错区域所对应的位置在图 4.7(c) 中确实对应与不发光区域。但是同时我们发 现,在 520 nm 的单光谱 CL 图像中,不发光区域的密度大约为 5.2×10<sup>8</sup>/cm<sup>2</sup>,这 说明在 520 nm 的单光谱 CL 图像中,仍有部分不发光区域是与位错无关的,这 些区域是图 4.7(b)、(c) 和 (d) 中的红色圆圈所标记的区域。文献中曾报道过在 位错区域容易引起 In 偏析,并且在位错附近 In 偏析导致的富 In 团簇可以通过热 处理消除,是因为他们形成的 V-pits 是暴露在表面的<sup>[134, 138, 140-143, 145]</sup>。但是目前 还没有对存在于位错以外的区域的富 In 团簇的形成机理以及消除方法的研究。 我们的研究证明了富 In 团簇不仅存在于位错区域,也存在于位错以外的区域, 并且同样也可以采用高温热处理的方法来消除。我们认为位错以外的区域形成的 富 In 团簇被消除的机理如下: 在高 In 组分 InGaN 量子阱中形成的富 In 团簇是 金属相的 In 团簇,并且不会并入 III-V 氮化物晶格,当原子在其表面迁移的时 候会受到散射,从而此处晶体质量较差,而且很容易在高温热处理过程中发生分 解。因此,位错区域以及位错以外区域的 In 团簇都能够通过高温热处理的工艺 来消除。



图 4.7 高温热处理后的 GaN/蓝宝石基板上具有 1.8 nm 低温 GaN 盖层的绿光 InGaN 量子阱的 (a) AFM 形貌图像, (b) SEM 图像, (c) 520 nm 单光谱 CL 图像, (d) 365 nm 单光谱 CL 图像

为了进一步弄清楚位错以外区域富 In 团簇在高温热处理过程中被消除的机 理,我们还在自支撑 GaN 衬底上生长了有 1.8 nm 厚的低温 GaN 盖层的绿光

InGaN 量子阱样品。图 4.8(a) 和 (b) 是该样品经过界面高温热处理后的 AFM 形 貌以及 SEM 图像。由于此处所使用的自支撑 GaN 衬底的位错密度小于 5×10<sup>6</sup>/cm<sup>2</sup>, 因此在图示的 5 µm×5 µm 测试区域,应该基本无位错。但是,即使在该范围内 无位错存在,在 AFM 与 SEM 图像中还是看到了很大密度的孔洞。因此这些孔 洞的形成与位错无关。图 4.8 (c) 是样品在 520 nm 单光谱的 CL 图像,可以看出, SEM 中的孔洞对应于 520 nm 单光谱 CL 图像中的不发光区域。这些结果进一步 证明了在位错以外区域也会形成富 In 团簇,这些富 In 团簇可以通过界面高温热 处理技术消除。



图 4.8 高温热处理后的自支撑 GaN 衬底上具有 1.8 nm 低温 GaN 盖层的绿光 InGaN 量子阱 的 (a) AFM 形貌图像, (b) SEM 图像, (c) 520 nm 单光谱 CL 图像

虽然界面高温热处理可以消除高 In 组分绿光 InGaN 量子阱中富 In 团簇等缺陷,但是会在表面留下高密度的孔洞,这种孔洞形貌对后续材料的生长是不利的。因此在生长完绿光 InGaN 量子阱以及低温 GaN 盖层并进行界面高温热处理后,我们在 850 ℃ 继续生长了 15 nm 厚的高温 GaN 量子垒。图 4.9 给出了在 GaN/ 蓝宝石基板上生长的高温 GaN 量子垒层以及在自支撑 GaN 衬底上生长的高温 GaN 垒层的 AFM 形貌。从 AFM 图像可以看出,在 GaN/蓝宝石基板上生长的高 温 GaN 量子垒表面的原子的台阶边缘平直,表面平整,除了常见的位错露头形成的 pits 以外没有其他的缺陷存在。而在自支撑 GaN 衬底上生长的 GaN 高温量 子垒,是完美的台阶流形貌。因此我们认为,界面热处理技术在消除绿光 InGaN 量子阱表面的富 In 团簇等缺陷后留下的孔洞形貌能够通过随后的高温 GaN 量子 垒的生长得到恢复,不会影响后续的材料的生长,从而可以获得高质量的 InGaN/GaN 量子阱有源区。



图 4.9 高温 GaN 量子垒形貌: (a) 在 GaN/蓝宝石基板上生长 (b) 在自支撑 GaN 衬底上生长

### 4.2.4 界面调控对绿光激光器性能的影响

因为本组之前的研究中发现,绿光 InGaN 量子阱中的富 In 团簇等缺陷会诱 导周围 In 原子迁移,导致金属 In 团簇逐渐长大,从而引起绿光 InGaN 量子阱在 后续的 p 型 AlGaN 限制层生长过程中发生严重的热退化<sup>[79]</sup>。因此我们认为采用 界面高温热处理的方法消除 In 团簇等界面缺陷后能够抑制有源区的热退化,提 升绿光激光器的发光效率。我们生长了两种绿光激光器结构,研究界面高温热处 理对绿光激光器效率及性能的影响。我们生长了未采用界面高温热处理的绿光激 光器结构,样品 A,以及采用了界面高温热处理的绿光激光器结构,样品 B。我 们首先采用变温 PL 的方法对样品 A 和样品 B 进行了光学性质的表征。变温 PL 测试所采用的激发光源为 405 nm 的半导体激光器,激光照射到样品表面的功率 密度大约为 6.4 kW/cm<sup>2</sup>。测试温度范围为 10 K 到室温。图 4.10 为样品 A 和样品 B 的在不同温度下的 PL 光谱,其中黑色圆点为在不同温度下 PL 光谱的发光峰 位。由 PL 光谱可以看出,两个样品在不同温度下的 PL 光谱均为单峰。样品 A 在室温的发光峰位在 2.354 eV,样品 B 在室温的发光峰位在 2.367 eV。



图 4.10 样品 A 和样品 B 在不同温度下的 PL 光谱

我们采用高斯拟合获得了两个样品在不同温度下 PL 光谱的发光峰位,如图 4.11(a) 所示,两个样品的发光峰位均随温度的增加呈现出"S"形的变化。这种 S 型的变化在很多关于 InGaN/GaN 多量子阱的变温 PL 测试的研究中均报道过 <sup>[147-152]</sup>。"S"型变化说明 InGaN/GaN 量子阱中存在局域态,是由载流子在局域 态之间的转移和分布导致。由于 InGaN 量子阱中的 In 组分不均匀以及厚度起伏 等原因,导致在 InGaN 量子阱中有很多具有不同能级深度的局域中心。在低温 度下,载流子动能低,非辐射复合速率也低,因此光生载流子被冻结在产生处的 局域中心并复合发光。由于局域中心的能级不一样,导致 PL 光谱较宽。随着温 度升高,载流子的热动能增加,在能级高的浅能谷中的部分载流子能够越过势垒 逃逸到能级低的深能谷中。深能谷中载流子数目增加,导致 PL 光谱峰位红移, 并且由于载流子集中分布到深能谷中, PL 光谱半宽下降。当温度继续增大时, 载流子的热动能继续增大,在能级低的深能谷中的载流子能够越过势垒逃逸到到 能级高的浅能谷中,部分被激发的载流子又可以重新弛豫回能级低的深能谷中复 合发光,部分载流子在能级高的浅能谷中发生复合发光,因此能级高的浅能谷中 载流子的发光几率增加引起 PL 光谱半宽增大并且伴随着 PL 光谱峰位的蓝移。 当温度进一步增大时,浅能谷局域中心被填满,而由于带隙收缩效应(即禁带宽 度随温度升高而减小),导致 PL 发光峰位又发生红移。因此,由于 InGaN 中局 域态的存在,热激活的载流子在局域态之间的转移和再分布导致 PL 峰位先红移 然后蓝移,再红移,并伴随着 PL 半宽先减小后增大。图 4.11(b)所示为采用高斯 拟合得到的两个样品的 PL 光谱半高宽随温度的变化,从测试结果可知,样品 B

55

比样品 A 有更小的半宽,说明采用界面处理后的 InGaN/GaN 量子阱有源区有更好的势能均匀性。



图 4.11 (a)样品 A 和样品 B 发光峰位随温度的变化曲线,(b)样品 A 和样品 B 发光半宽随温度的变化曲线

假设局域态能级具有高斯型分布,那么 PL 峰位随温度的变化关系可以由以下公式进行拟合<sup>[153]</sup>:

$$E_g(T) = E_g(0) - \left(\frac{\alpha T^2}{\beta + T}\right) - \frac{\sigma^2}{k_B T}$$
 4.1

其中E<sub>g</sub>(0)为0 K 时电子-空穴能级间距, α和β为 Varshini 拟合参数, σ为局 域态能级分布的标准差, k<sub>B</sub>是玻尔兹曼常数。图 4.11(a) 中的红色实线是根据公 式 4.1 对实验数据进行的拟合结果。在拟合时,我们选用α = 0.53 meV/K 和β = 707 K进行拟合,该值与文献报道的值接近<sup>[154]</sup>。由拟合结果可知,样品 A 的局 域态分布的标准差为 23.5 meV,样品 B 的局域态分布的标准差为 19.6 meV。说 明采用界面处理的 InGaN/GaN 多量子阱有源区可以抑制有源区的局域化效应。 该局域态分布的标准差与 2013 年日亚公司报道的高性能绿光 InGaN 量子阱激光 器中的局域态分布的标准差结果接近<sup>[26]</sup>。

两个样品的归一化 PL 积分强度随温度倒数的关系如图 4.12 所示。可以看出, 样品 A 在更低的温度就开始出现 PL 强度的下降,并且在高温区域光强随温度下 降的速度快,在室温时的 PL 光强约为 10 K 时的 39%。而样品 B 在较高的温度 PL 积分强度才开始下降,并且在高温区 PL 强度随温度下降的幅度慢,在 300 K时的 PL 强度约为 10 K 时的 59%。说明样品 B 有更高的内量子效率。



图 4.12 样品 A 和样品 B 归一化积分强度随温度的变化关系

表 4.1 样品 A 和样品 B 变温 PL 光谱归一化积分强度随温度变化关系拟合结果

	C <sub>1</sub>	$E_{a1}(me V)$	<b>C</b> <sub>2</sub>	$E_{a2}(me V)$
Sample A	11	53	0.5	10
Sample B	5	49		

在第三章中我们介绍过 PL 积分强度随温度的关系可通过双模式 Arrhenius 公司进行拟合。图 4.12 中红色的实线是对实验数据按照公式 3.3 进行的拟合, 拟 合的结果如表格 4.1 所示。从拟合结果可以发现,样品 A 需要有两个非辐射复合 中心才能对实验数据进行很好的拟合,两个非辐射复合中心的活化能分别为 53 meV 和 10 meV。而样品 B 只需要一个非辐射复合中心就能很好的拟合实验数据, 该非辐射复合中心的激活能为 49 meV。因此,样品 A 比样品 B 多出了一个激活 能为 10 meV 的缺陷能级。这与样品 B 比样品 A 具有更高的内量子效率的结果一 致。根据第三章中的讨论,样品 A 中活化能为 53 meV 的非辐射复合中心与样品 B 中活化能为 49.4 meV 的非辐射复合中心均来自于位错。由表 4.1 可以看出, 在我们的样品中拟合出的与位错相关的缺陷密度常数分别为 11 和 5,该值远小 于文献中报道的蓝宝石衬底上的样品的值<sup>[149]</sup>。这是因为我们的样品是在 GaN 衬 底上生长, GaN 衬底的位错密度远小于蓝宝石衬底上 GaN 的位错密度, 因此位 错相关的非辐射复合中心的密度也远低与蓝宝石衬底上的样品。而样品 A 中多 出的活化能为 10 meV 的非辐射复合中心对应的缺陷为量子阱与量子垒界面的缺 陷。因此我们认为, 采用界面处理的量子阱, 可以消除 InGaN 量子阱与 GaN 量 子垒界面的富 In 团簇等缺陷。从而提高了其内量子效率。

随后,我们对两个激光器样品进行了芯片制作工艺,得到 GaN 基绿光激光器,然后对激光器进行芯片测试。芯片工艺流程将在第六章中详细介绍。芯片测试条件为室温脉冲条件,脉冲频率为 10 kHz,脉宽 400 ns,占空比为 0.4%。我们称由样品 A 制作成的激光器为激光器 A,由样品 B 制作成的激光器为样品 B。



图 4.13 (a)激光器 A 和激光器 B 的 P-I 曲线,(b) 激光器 A 和激光器 B 发光半宽随注入电流密度的变化曲线

图 4.13(a) 所示为室温脉冲条件下的功率-电流(P-I)曲线,从 P-I 曲线可以 看出,激光器 A 的阈值电流密度为 8.5 kA /cm<sup>2</sup>,激光器 B 的阈值电流密度为 1.85 kA/cm<sup>2</sup>。图 4.13(b) 所示为激光器的半宽随注入电流密度的变化。可以看出激光 器 B 比激光器 A 有更低的电注入半宽,这与 PL 测试的结果一致。随注入电流密 度增大,激光器 A 的半宽随电流密度增大而增大,导致阈值电流密度大。但是 随着注入电流密度的增加,激光器 B 的半宽迅速下降,并且在 1.85 kA/cm<sup>2</sup>激射。 综上所述,采用界面高温热处理 InGaN/GaN 多量子阱有源区的激光器外延结构 可以抑制有源区量子阱和量子垒界面的缺陷,从而获得更高的 IQE 和更好的器 件性能。
### 4.3 本章小结

本章首先研究了高 In 组分绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区 In 偏析导致的富 In 团簇等缺陷,之后引入了界面调控消除高 In 组分绿光 InGaN 量子阱表面富 In 团簇等缺陷,最后我们研究了界面调控对绿光激光器性能的影响。取得的研究成 果如下:

1. 在采用单温法生长绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区时, GaN 量子垒中出现的 trench 缺陷是由于高 In 组分 InGaN 量子阱中的 In 偏析导致的。

2. 通过 CL 研究发现高 In 组分绿光 InGaN 量子阱中的富 In 团簇不仅存在于位错区域,也存在于位错以外的区域,并且采用界面高温热处理的方法可以消除富 In 团簇。

3. 我们生长了采用界面高温热处理的 InGaN/GaN 量子阱有源区的绿光激光器结构。研究表明,采用界面高温热处理的 InGaN/GaN 量子阱有源区可以抑制量子阱与量子垒界面的缺陷,从而内量子效率可达 59%。并且采用界面高温热处理的绿光 InGaN/GaN 量子阱激光器具有较小的半宽以及更少的局域态。制成激光器芯片后,绿光激光器的阈值电流密度从 8.5 kA /cm<sup>2</sup>降低到 1.85 kA/cm<sup>2</sup>。

59

# 第五章 低温 p 型 AlGaN 限制层生长研究

在 GaN 基激光器结构中,为了实现足够的光限制,通常有很厚的 p 型 AlGaN 限制层。因此要实现高性能的 GaN 基激光器,制作高质量的 p 型 AlGaN 材料是 必要条件。然而,到目前为止,p 型 GaN 及其合金材料中的低的空穴浓度和高 的电阻率依然是阻碍 GaN 基光电子器件发展的重要因素<sup>[155]</sup>。由于 Mg 受主的激 活能高,与其他半导体相比,p 型 GaN 中的空穴浓度非常低。而 p 型 AlGaN 中 Mg 受主的激活能也会随着 Al 组分的增加而增大,因此高电导率的 p 型 AlGaN 的实现更加困难<sup>[160]</sup>。阻碍绿光激光器发展的一个很重要的原因是在生长 p 型 AlGaN 限制层的时候高 In 组分的绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区发生热退化 <sup>[42,78-80]</sup>。因此在生长绿光激光器的时候,p 型 AlGaN 限制层要在比较低的温度下 (< 950 ℃)生长以避免高 In 组分的绿光 InGaN 量子阱发生热退化。但是低温 生长的 p 型 GaN 和 AlGaN 的电导率更低,这可能与材料质量下降、杂质并入增 多有关。由于 Al-C 键能较强,MOCVD 生长的 AlGaN 通常比 GaN 有更多的 C 杂质<sup>[156-159]</sup>。但是到目前为止,却没有对 C 杂质对 p 型 AlGaN 电学性质影响的 研究。

本章我们详细研究了低温生长的 p 型 AlGaN 中的杂质并入及其对电学性质 的影响,并通过抑制 C 杂质并入大幅降低了低温 p 型 AlGaN 限制层的电阻率。 我们首先研究了 MOCVD 生长 p 型 AlGaN 的生长温度、生长压力、生长速率等 参数对 C 杂质并入的影响。研究表明,降低生长温度会增加 C 杂质的并入效率, 但是增加生长压力和降低生长速率,可以抑制 C 杂质的并入。之后我们用霍尔 测试的方法表征不同生长条件下、具有不同 C 杂质浓度的 p 型 AlGaN 样品的电 阻率,研究了 C 杂质浓度对电阻率的影响。研究发现,当通过改变生长条件使 C 杂质浓度从 2×10<sup>18</sup> /cm<sup>3</sup> 降低到 5×10<sup>16</sup> /cm<sup>3</sup> 时, p 型 AlGaN 的电阻率从 7.4 Ω·cm 降低到 2.2 Ω·cm。通过电中性方程的计算与拟合分析,我们发现 C 浓度非常接近 样品中的补偿施主浓度,因此我们认为 C 杂质是 p 型 AlGaN 中的主要的补偿施 主杂质。

61

### 5.1 生长条件对 p 型 AlGaN 中杂质并入的影响

为了研究生长条件对 p 型 AlGaN 中杂质并入的影响,我们生长了一个多层 AlGaN 结构。每一层 AlGaN 的 Al 组分为 15%左右,每层的厚度在 120 nm 左右, 并且每层改变一个生长参数(生长温度、生长压力或者生长速率)。在研究中我 们发现,AlGaN 材料中 Al 的并入效率会随生长速率和生长压力的降低而增加, 因此在多层 AlGaN 样品生长的过程中,Al/Ga 根据生长条件变化有相应的调整以 获得相同 Al 组分的 AlGaN 层。我们通过 SIMS 测试研究生长参数对 p 型 AlGaN 中 C 杂质并入的影响。图 5.1 是 p 型 AlGaN 生长条件(生长温度、生长压力和 生长速率)对 C 杂质并入的影响。



图 5.1 生长参数对 p 型 AlGaN 中 C 杂质并入的影响 (a) 生长温度(b) 生长压力(c) 生 长速率

从图 5.1(a) 可以看出,在 266 mbar 的生长压力下且生长速率一定时,当生 长温度从 964 ℃ 降低到 907 ℃ 时,p型 AlGaN 中的 C 杂质浓度从 6×10<sup>17</sup>/cm<sup>3</sup> 增加到 3×10<sup>18</sup>/cm<sup>3</sup>。在 400 mbar 下生长时,也是同样的变化规律,C 杂质浓度 随生长温度的降低而增大。从图 5.1(b) 可以看出,在一定的生长速率和生长温 度下,当生长压力从 133 mbar 增加到 400 mbar 时,p型 AlGaN 中的 C 杂质浓度 从 7.5×10<sup>18</sup>/cm<sup>3</sup>降低到 1.7×10<sup>18</sup>/cm<sup>3</sup>。同时,随生长速率降低,p型 AlGaN 中 C 杂质的浓度减小,如图 5.1(c)所示。因此,如果我们想通过降低 p型 AlGaN 中 C 杂质的浓度减小,如图 5.1(c)所示。因此,如果我们想通过降低 p型 AlGaN 层的 生长温度来抑制绿光激光器中的热退化效应,p型 AlGaN 中 C 杂质的并入会由 于温度的降低而增加。当我们把生长温度降低到 907 ℃ 时,C 杂质浓度高达 3×10<sup>18</sup>/cm<sup>3</sup>。然而,通过降低生长速率和增加生长压力的方法,p型 AlGaN 的 C 杂质浓度也可以降低到 1.4×10<sup>17</sup>/cm3。

当我们采用 MOCVD 的方法生长 p 型 AlGaN 时, C 杂质的主要来源是 MO 源。C 杂质所参与的主要是以下化学反应:

#### $Ga-CH_3 + N-H \rightarrow GaN + CH_4$

因此,当 NH<sub>3</sub>的分压较高的时候,能够促进该反应的进行,从而抑制 C 杂 质在外延层中的并入。当我们采用较低的生长速率生长的时候,意味着 p 型 AlGaN 在较大的 V/III下生长,而高压和高温生长都能够增加 NH<sub>3</sub> 的裂解效率, 促进该反应的进行。因此,提高反应室压力和降低生长速率能够抑制低温生长 p 型 AlGaN 中的 C 杂质的并入。

### 5.2 碳杂质在低温生长 p 型 AlGaN 中的补偿作用

### 5.2.1 样品生长及 Hall 测试样品制备

为了研究碳杂质在低温生长的 p 型 AlGaN 中的作用,我们用 MOCVD 在蓝 宝石衬底上生长了一系列样品,包括一个高温(964 °C)生长的样品 A 和三个低 温(907 °C)生长的样品 B,C 和 D,并采用 Hall 方法测量了样品的电阻率与空 穴浓度。样品结构依次有:30 nm 低温 GaN 缓冲层、1 µm 高温不掺杂 uGaN 层, 4 µm Si 掺杂 n 型 GaN 层,0.7 µm 的 p 型 AlGaN 厚层,10 nm 的 p 型 AlGaN 组 分渐变层,由 p 型 AlGaN 厚层组分渐变到 0,以及 20 nm 的重掺杂 p 型 GaN 欧 姆接触层。为了防止 p 型 AlGaN 厚层样品发生弛豫,在本实验中我们研究的 p 型 AlGaN 厚层的 Al 组分为 7%。样品生长结束后,我们采用快速热退火的方法 对 p 型 AlGaN 中的 Mg 进行激活,退火温度为 950 °C,退火气氛为氮气,退火 时间为 3 分钟。

要获得准确的 Hall 测试结果,要求样品具有良好的欧姆接触特性。由于 GaN 和 AlGaN 的功函数较高且空穴浓度低,因此很难获得良好的 p 型欧姆接触。因此在这里我们生长了组分渐变的 p 型 AlGaN 以及重掺杂的 p 型 GaN 层以获得良好的欧姆接触。欧姆接触电极金属选用了功函数较高的 Pd/Pt/Au。Hall 测试样品欧姆接触电极的制作工艺主要包括裂片、清洗、磁控溅射金属电极和合金化几个步骤:

1. 裂片。采用激光划片机把样品切成 1 cm×1 cm 的小片。

63

2. 清洗。采用有机清洗和无机清洗,去除样品表面的沾污和氧化层。

3. 磁控溅射 p 型欧姆接触金属。把方块样品贴在制作好的铝掩膜版上,采用磁控溅射的方法在方块样品的四个角上溅射 p 型欧姆接触金属(Pd/Pt/Au)。

4. 合金化。在快速退火炉中压缩空气氛围下,采用 550 ℃快速热退火 90 秒。

图 5.2 是采用该方法制备的霍尔测试样品的 I-V 测试结果, I-V 曲线显示出 良好的线性关系,说明采用该方法制作样品可获得很好的欧姆接触,这为后续得 到准确的电阻率与空穴浓度打下了良好的基础。Hall 测试的磁场强度为 5800 高 斯。



图 5.2 p 型 AlGaN 霍尔测试样品 I-V 测试结果

## 5.2.2 C 杂质对 p 型 AlGaN 电阻率的影响

在制作好了 Hall 测试样品之后,我们采用范德堡四探针法对样品进行了室 温 Hall 测试以获得样品的电阻率与空穴浓度。同时我们也对四个样品做了 SIMS 测试,来表征样品中的 Mg 掺杂浓度、激活后 H、O 以及 C 杂质的浓度。它们的 生长参数、Mg 掺杂浓度、C 杂质浓度及电学特性数据都如表 5.1 所示。由于在 该实验中,我们采用的 AlGaN 厚层的组分为 7%,因此在这些样品中测试得到的 C 杂质的浓度即使在相同条件下生长也比 5.1 中讨论的组分为 16%的 p 型 AlGaN 中的 C 杂质含量低。图 5.3 是四个样品中的 Mg 掺杂浓度以及 H、O、C 等杂质 浓度的 SIMS 测试结果。由 SIMS 测试结果可知,由于不同生长条件生长,四个 样品的 Mg 掺杂浓度稍有不同,但是都低于文献中报道的 Mg 自补偿的掺杂水平 (4×10<sup>19</sup>/cm<sup>3</sup>)<sup>[161-163]</sup>。四个样品中激活以后 H 杂质的浓度均为 2.5×10<sup>18</sup>/cm<sup>3</sup>, 这说明大部分的被 H 钝化的 Mg 已经被激活。O 杂质的浓度为 3 × 10<sup>16</sup> /cm<sup>3</sup>, Si 杂质的浓度为 2 × 10<sup>15</sup> /cm<sup>3</sup>,均已接近 SIMS 的探测极限,并且在四个样品中含量基本一致。需要指出的是,四个样品中 C 杂质浓度差别显著。



图 5.3 p 型 AlGaN 样品的 SIMS 测试结果(a) Mg 掺杂浓度(b) H 杂质浓度(c) C 杂质浓度(d) O 杂质浓度

由样品 A 和样品 B 的 SIMS 测试结果可以看出,虽然两个样品 Mg 的掺杂 浓度差别不大,但是当生长温度从 964 ℃降低到 907 ℃后,样品的电阻率从 2.06 Ω·cm 增加到 7.43 Ω·cm,同时样品中空穴的浓度从从 3.5×10<sup>17</sup> /cm<sup>3</sup> 降低到 7.5×10<sup>16</sup> /cm<sup>3</sup>。但是当反应室压力从 266 mbar 增加到 400 mbar,且生长速率从 0.3 nm/s 降低到 0.05 nm/s 后,样品 D 的空穴浓度却有 3.1×10<sup>17</sup> /cm<sup>3</sup>,接近样品 A 的空穴浓度,虽然样品 D 的 Mg 掺杂浓度只有 1.5×10<sup>19</sup> /cm<sup>3</sup>,远小于样品 A 的 Mg 掺杂浓度。这些结果表明,样品中的 Mg 掺杂浓度并不是样品电学性质的决 定性因素。我们观察到,当样品中的 C 杂质浓度超过 10<sup>17</sup> 数量级时,随样品中 C 杂质浓度的增加,样品的电阻率有很明显的增大,同时伴随空穴浓度的下降,如 图 5.4 所示。当 p 型 AlGaN 中的 C 杂质浓度从 2×10<sup>18</sup> /cm<sup>3</sup> 降低到 5×10<sup>16</sup> /cm<sup>3</sup> 时,

p型 AlGaN 的电阻率从 7.43 Ω·cm 降低到 2.24 Ω·cm。这些结果表明, p型 AlGaN 中 C 杂质的含量对它的电学性质起着决定性的作用。因此,与非故意掺杂的 C 杂质相关的缺陷可能是低温生长的 p型 AlGaN 限制层中补偿杂质的来源。

表 5.1	实验样品的生长参数、	Mg 掺杂浓度、	C 杂质浓度及电学特性

sample	GP	GR	GT	Carbon	Mg	ρ	Hole
	(torr)	(nm/s)	(°C)	( cm <sup>-3</sup> )	( cm <sup>-3</sup> )	( <b>Ωcm</b> )	concentration
							(/cm <sup>3</sup> )
Α	266	0.3	964	2×10 <sup>17</sup>	2.8×10 <sup>19</sup>	2.06	3.5×10 <sup>17</sup>
В	266	0.3	907	$2 \times 10^{18}$	2.5×10 <sup>19</sup>	7.43	7.5×10 <sup>16</sup>
С	400	0.3	907	9×10 <sup>17</sup>	1.8×10 <sup>19</sup>	4.13	$1.2 \times 10^{17}$
D	400	0.05	907	5×10 <sup>16</sup>	1.5×10 <sup>19</sup>	2.24	3.1×10 <sup>17</sup>



图 5.4 样品中 C 杂质浓度对 p 型 AlGaN 电阻率的影响

我们都知道 MOCVD 采用含 C 的有机源作为前驱体,所以 C 杂质在 MOCVD 生长的 AlGaN 和 GaN 中是一种常见的非故意掺杂杂质。由于 C 原子是 IV 族 原子,因此 C 杂质在 MOCVD 生长 AlGaN 和 GaN 中是一种两性杂质,可以有 不同的形式<sup>[164-168]</sup>,它既可以替位 N 原子(C<sub>N</sub>)也可以替位 Ga(Al)原子(C<sub>Ga(Al)</sub>),

也可以是间隙式(C<sub>i</sub>)或络合物。因此,它可以充当施主也可以充当受主。根据 J. L. Lyons<sup>[164]</sup>等人的理论计算报道,C杂质的存在形式由生长条件以及费米能级 的位置决定。当我们在富N的条件下生长p型AlGaN时,C杂质更倾向于替位 Ga原子或者Al原子,成为施主杂质。我们认为,本实验中所观察到的电阻率与 空穴浓度随C杂质浓度的变化表明了C杂质在我们的样品中是补偿施主杂质。 随后,我们采用电中性方程进行了理论计算,根据理论计算结果推算出了样品中 的补偿施主杂质浓度,并与样品中的C杂质浓度进行了比较,研究C杂质在p 型 AlGaN中的补偿作用。

## 5.2.3 C 杂质在 p 型 AlGaN 中的作用-室温 Hall 测试

为了研究 C 杂质导致 p 型 AlGaN 样品电阻率升高的原因,我们采用部分补偿杂质半导体中的电中性方程进行了理论计算。并对 5.2.2 中的室温 Hall 的测试结果进行了详细分析。

对于部分补偿的 p 型半导体,其自由空穴浓度可以由公式 5.1 表示<sup>[169]</sup>:

$$\frac{p (p+N_D)}{N_A-N_D-p} = \frac{N_V}{g} \cdot exp(-\frac{E_A}{kT})$$
 5.1

其中, $N_A$  和  $N_D$  是材料中的受主浓度和补偿施主浓度, $N_V$  是有效态密度,  $E_A$  是受主电离能, g 是受主简并因子,通常取值为 4, k 是玻尔兹曼常数, T 是 绝对温度。其中  $N_V$  可以由公式 5.2 计算<sup>[170]</sup>:

$$N_V = 2 * (2\pi m_h^* kT)^{3/2} / h^3$$
 5.2

其中 h 是普朗克常数。在此处我们采用线性插值的方法计算  $Al_{0.07}Ga_{0.93}N$  样品 的  $m_h^*$ 。对于  $Al_{0.07}Ga_{0.93}N$ ,

$$m_{hAlGaN}^* = 0.93 \times m_{hGaN}^* + 0.07 \times m_{hAlN}^* \qquad 5.3$$

其中 : 
$$m_h^* = (m_{hh}^{3/2} + m_{lh}^{3/2})^{2/3}$$
 5.4

$$m_{lh(hh)} = (m_{lh(hh)}^{\perp} * m_{lh(hh)}^{\perp} * m_{lh(hh)}^{\parallel})^{1/3}$$
 5.5

在计算中,我们对各参数取值如表格 5.2 所示:

表 5.2 p 型 AlGaN 空穴有效质量计算参数[170]

	$m_{lh}^{\perp}$	${{m m}_{hh}}^{ot}$	$m_{lh}$	m <sub>hh</sub> "
GaN	0.15	1.65	1.1	1.1
AIN	0.25	6.33	3.68	3.68

计算出 Al<sub>0.07</sub>Ga<sub>0.93</sub>N 样品的  $m_h^*$ 值后,我们再根据公式 5.2 计算得:  $N_V = 6.0 \times 10^{19}$ /cm<sup>3</sup>。图 5.5 为文献中报道的 p 型 AlGaN 中 Mg 的激活能  $E_A$  随 Al 组分的变化 关系,可以看出,随 AlGaN 中 Al 组分增加,Mg 受主的激活能增大<sup>[160]</sup>。考虑到 我们的 Mg 掺杂浓度以及 Al 组分,Mg 受主的激活能约为 194±5 meV。因此, 在计算中我们采用的激活能  $E_A$  的值为 194 meV。



图 5.5 文献中报道的 Mg 受主激活能与 AlGaN 中 Al 组分的关系[160]



图 5.6 不同施主补偿下,空穴浓度随受主浓度的变化(Nv/g=1.5×10<sup>19</sup>/cm<sup>3</sup>, E<sub>A</sub>=194 meV, 300K.)

图 5.6 所示为根据电中性方程进行理论计算的不同浓度的施主补偿下,空穴浓度随受主浓度的变化。其中,彩色的实线是基于电中性方程在不同的补偿施主杂质浓度下的理论计算结果。可以看出,在一定的受主浓度下,空穴浓度随补偿施主杂质浓度的增加而减小。在此处我们首先假设样品中的补偿施主杂质浓度与C杂质浓度相同,因此图 5.6 中的四条彩色实线所对应的分别是理论计算的不同C杂质浓度下的空穴浓度的结果。根据 5.2.2 中室温 Hall 测试的结果得到不同样品中的空穴浓度,然后再根据不同C杂质浓度下样品中的空穴浓度推算出其对应的有效受主浓度,如图 5.6 中虚线所示。我们认为,如果根据电中性方程理论计算推算出的有效受主浓度与样品中实际的有效受主浓度(即 Mg 掺杂浓度减去样品中激活后仍然被 H 钝化的 Mg 浓度,我们认为 H 在 p 型 AlGaN 中完全是以Mg-H 存在)一致,则说明我们前面提到的 C 杂质在 p 型 AlGaN 中是补偿施主杂质的假设是成立的,即 C 杂质在 p 型 AlGaN 中是主要的补偿施主杂质。

图 5.7 为我们采用电中性方程进行理论计算推算出的有效受主浓度与样品中 实际有效受主浓度(即 Mg 掺杂浓度减去激活后仍然被 H 钝化的 Mg 浓度)的比 较。图中蓝色圆点为我们根据电中性方程的理论计算推算出的具有不同 C 杂质 浓度的四个 p 型 AlGaN 样品中的有效受主浓度。由 5.2.2 中四个样品的 SIMS 结 果可知,激活后样品中的 H 杂质浓度为 2.5×10<sup>18</sup> /cm<sup>3</sup>,即在样品中仍然被 H 钝化的 Mg 的浓度为 2.5×10<sup>18</sup> /cm<sup>3</sup>。那么样品中的实际有效受主浓度即为样品中的 Mg 掺杂浓度减去随减去仍然被 H 钝化的 Mg 的浓度。图 5.7 中的黑色实线为不同 Mg 掺杂水平下激活后的样品中的实际有效受主浓度。可以看出当我们采用 194 meV 的激活能进行理论计算推算出的有效受主的浓度与样品中的 Mg 掺杂浓度减去被 H 钝化的 Mg 浓度是一致的,这说明我们之前 C 杂质在 p 型 AlGaN 中 是补偿施主杂质的假设是成立的。因此我们认为,随 C 杂质浓度的增加,电阻 率增大以及空穴浓度下降,是由于 C 杂质的施主补偿作用导致的,并且 C 杂质 在我们生长的 p 型 AlGaN 样品中是主要的补偿施主杂质。



图 5.7 由图 5.6 计算出的受主浓度与样品中有效受主浓度(即 Mg 掺杂浓度减去被 H 钝化的 Mg 浓度)的比较。

5.2.4 C 杂质在 p 型 AlGaN 中的作用-变温 Hall 测试

为了得到更精确的补偿施主浓度,我们还对样品进行了变温 Hall 研究。变温 Hall 测试采用范德堡四探针法测试,温度变化范围为 300 K~625 K。在测试过程中,磁场强度大小在 5000 高斯与 8000 高斯之间,外加偏压控制在 3 V 以内,以避免载流子泄露到 n 型 GaN 中。我们同样采用电中性方程来进行理论计算分

析。为了得到更加精确的结果,我们在理论计算过程中考虑了 *8* 和 *N<sub>v</sub>* 随温度的变化:

$$g = 2 \times \left[1 + exp\left(-\frac{\Delta_2}{kT}\right) + exp\left(-\frac{\Delta_1}{kT}\right)\right]$$
 5.6

$$N_V = 2.5 \times 10^{19} \times \left[m_{hh}^{\frac{3}{2}} + m_{lh}^{\frac{3}{2}} exp\left(-\frac{\Delta_2}{kT}\right) + m_{ch}^{\frac{3}{2}} exp\left(-\frac{\Delta_1}{kT}\right) \cdot \left(\frac{T}{300}\right)^{\frac{3}{2}}\right]$$
 5.7

其中,采用线性插值方法计算出的  $Al_{0.07}Ga_{0.93}N$  中的各项参数如下:  $\Delta_2 = 5.0$  meV,  $\Delta_1 = 63$  meV,  $m_{hh}$ ,  $m_{lh}$  和  $m_{ch}$  分别是 1.71, 0.31 和 0.64<sup>[170]</sup>。

图 5.8 为四个 p 型 AlGaN 样品在不同温度下的 hall 测试的空穴浓度随温度的变化关系。图中的圆点是样品中不同温度下的空穴浓度的测试结果,可以看出随温度增加,空穴浓度增加。图 5.8 中实线是我们采用电中性方程理论计算对实验数据进行拟合的结果。在本实验中,为了获得与 SIMS 测试结果较为一致的受主浓度,我们取值*E<sub>A</sub>* = 198 meV,该值与图 5.5 所示的实验结果较吻合。在图 5.8 中,我们通过采用电中性方程的理论计算对不同样品的变温 Hall 数据进行了 拟合,得到了不同样品中的施主/受主补偿比。根据施主/受主补偿比,我们可以 拟合出样品中的施主浓度和受主浓度,也可以在已知样品中受主浓度的情况下,得到样品中的施主杂质浓度。



图 5.8 p 型 AlGaN 变温 Hall 测试的空穴浓度随温度的变化关系

图 5.9 为样品中施主杂质浓度与 C 杂质浓度的比较。其中施主浓度由以下两种方法得到: (1) 假设样品中受主浓度为 Mg 掺杂浓度减去激活后仍然被 H 钝化的 Mg 浓度,然后通过图 5.8 中拟合得到的补偿比来计算不同样品中的施主杂质浓度(计算结果如图中红色实心圆点所示); (2) 直接通过电中性方程对变温 Hall 测试数据进行拟合得到施主浓度(计算结果如图中橙色实心三角所示)。 图 5.9 中的红色虚线为施主浓度与 C 杂质浓度相等的指示线。由图 5.9 可以看出,采用不同方法得到的样品中的施主浓度非常接近,并且都分布在红色虚线附近。这说明在我们的 p 型 AlGaN 样品中 C 杂质浓度与样品中的补偿施主杂质浓度非常接近,进一步证明了 C 杂质在 p 型 AlGaN 中是主要的补偿施主杂质。



图 5.9 通过变温 Hall 测试拟合得到的施主浓度与样品中 C 杂质浓度的比较

## 5.3 低工作电压的 GaN 基绿光激光器

在 5.1 中我们介绍了采用高压和低速生长可以抑制低温下 p 型 AlGaN 限制 层中的 C 杂质并入,从而提高 p 型 AlGaN 的电导率。因此我们考虑采用高压低 速的方法来生长 GaN 基绿光激光器的低温 p 型 AlGaN 限制层,达到在避免绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区热退化的同时降低激光器的工作电压的目的。但是考 虑到低速生长意味着更长的 p 型 AlGaN 限制层的生长时间,也会导致绿光量子 阱有源区的热退化更严重,因此在激光器结构中我们采用 400 mbar 的生长压力 以及 0.2 nm/s 的生长速率来生长激光器低温 p 型 AlGaN 限制层。在此处,我们 采用的 p 型 AlGaN 的生长温度为 900 ℃。图 5.10 为激光器 p 型 AlGaN 限制层区 域 C 杂质的 SIMS 测试结果。可以看出,即使在较低温度(900 ℃)下生长激光 器的 p 型 AlGaN 限制层,通过提高反应室压力和适当降低生长速率,限制层中 的 C 杂质浓度也可以控制在 1.2×10<sup>17</sup> /cm<sup>3</sup>。图 5.11 为 GaN 衬底上生长的激光器 样品的荧光显微镜照片。可以看出,该激光器结构发光均匀,有源区无热退化现 象发生。



图 5.10 绿光激光器结构中 p 型 AlGaN 限制层中的 C 杂质浓度的 SIMS 结果



图 5.11 自支撑 GaN 衬底上绿光激光器结构的荧光显微镜照片

之后我们采用本课题组开发的脊型波导激光器工艺,将该绿光激光器外延片制作成了脊型波导结构的激光器芯片。脊型波导激光器的工艺流程将在第六章中

详细介绍。我们在室温脉冲工作的条件下对激光器芯片进行测试,采用脉冲宽度为400 ns,频率10 kHz 以消除在测试过程中热效应的影响。该外延片制作的激光器可以在室温脉冲的条件下实现 508 nm 的激射。图 5.12 是该激光器的功率-电流(P-I)测试曲线,由 P-I 曲线可知,激光器激射的阈值电流密度是 8.5 kA/cm<sup>2</sup>, 斜率效率是 0.22 W/A。图 5.13 给出了该激光器在 508 nm 电注入激射的光谱以及远场光斑的照片。图 5.14 是激光器的电流-电压(I-V)曲线。由 I-V 曲线可以看出,采用高压、低速的方法抑制低温 p 型 AlGaN 限制层中 C 杂质的并入后,绿光器的阈值电压为 4.3 V。该阈值电压达到国际先进水平。



图 5.12 激光器的 P-I 曲线



图 5.13 508 nm 激光器的激射光谱以及远场光斑照片



图 5.14 激光器的 I-V 曲线

#### 5.4 本章小结

本章研究了生长参数对低温 p 型 AlGaN 限制层中 C 杂质浓度的影响以 C 杂 质的补偿作用,主要取得了以下研究成果:

在低温下生长 p型 AlGaN 限制层时, C杂质的并入会明显增加,通过降低生长速率或者提高生长压力可以抑制 C杂质的并入。并且随着 p型 AlGaN 中C杂质浓度的增加,其电阻率迅速增大。

2. 对具有不同 C 杂质浓度的 p 型 AlGaN 样品进行了室温以及变温霍尔研究, 并通过电中性方程计算以及对实验数据的拟合,证明了 C 杂质在 p 型 AlGaN 中 是主要的补偿施主杂质。

3. 采用提高生长压力和适当降低生长速率的方法生长 GaN 绿光激光器结构 的低温 p 型 AlGaN 限制层,成功抑了低温 p 型 AlGaN 限制层中的 C 杂质并入, 在不引起有源区热退化的同时实现了低工作电压的 GaN 基绿光激光器。该激光 器的阈值电压为 4.3 V,达到国际先进水平。

75

# 第六章 室温连续工作的 GaN 基绿光激光器

我们在自支撑 GaN 衬底上外延生长了绿光激光器结构。之后我们采用本课题组研发的脊型波导激光器工艺,将绿光激光器外延片制作成了脊型波导结构的激光器芯片,并对激光器芯片进行了测试表征,成功实现了室温连续工作的 GaN 基绿光激光器。



6.1 高内量子效率的 GaN 基绿光激光器结构

图 6.1 自支撑 GaN 衬底上绿光激光器结构的归一化 PL 积分强度随温度的变化关系

我们在自支撑 GaN 衬底上外延生长了绿光激光器结构,所采用的 GaN 衬底的斜切角为 0.48°。其中绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区采用界面高温热处理。低温 p 型 AlGaN 限制层采用高压低速的方法进行生长以抑制 C 杂质的并入。我们 对该激光器结构进行了变温 PL 测试,表征其 IQE。变温 PL 测试所采用的激发 光源为 405 nm 的半导体激光器,激光照射到样品表面的功率密度大约为 6.4 kA/cm<sup>2</sup>。测试温度范围为 10 K 到室温。图 6.1 为该激光器结构的归一化 PL 积分 强度随温度的变化关系。由变温 PL 测试结果可以看出,该激光器结构的 PL 积 分强度在较高温度下才开始下降,并且室温时的内量子效率高达 66%。这说明我 们生长的绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区具有非常高的晶体质量。

## 6.2 GaN 基绿光激光器的芯片工艺流程

我们对该激光器外延片进行了脊形波导激光器工艺,制作出了激光器芯片。

其中,脊型宽度为10μm,谐振腔腔长为800μm,由刻蚀形成。800μm 长的谐振腔和腔面采用解理的方法形成,前后腔面分别镀介质膜。脊型波导激光器芯片的制作工艺流程如图6.2所示:



图 6.2 脊型波导激光器芯片制作工艺流程示意图

清洗。采用有机溶液(丙酮、异丙醇)和无机溶液(过氧化氢、盐酸)
 对激光器外延片进行清洗,去除表面的沾污和氧化层。

2. p 型欧姆接触金属溅射与合金化。采用磁控溅射的方法,溅射 p 型欧姆接触电极 Pd/Pt/Au,并在快速退火炉中进行合金化,以形成良好的欧姆接触。

3. 光刻脊型。采用光刻胶做掩膜,曝光光刻激光器 10 µm 宽的脊型。

4. 刻蚀脊型。采用离子束刻蚀(IBE 刻蚀)的方法,刻蚀出激光器的脊型。

5. 沉积绝缘膜。在刻蚀后的激光器外延片上沉积 SiO2 绝缘膜。

6. 剥离。采用丙酮溶液浸泡,剥离脊型上方的光刻胶和 SiO2 绝缘膜。

7. 光刻 p 型加厚电极。采用光刻胶做掩膜,光刻激光器的加厚电极图形。

8. 溅射 p 型加厚电极。采用电子束蒸发的方法,蒸镀加厚电极金属 Au。

9. 剥离。采用丙酮溶液浸泡,剥离激光器外延片上方的光刻胶和加厚电极, 完成激光器的p面工艺。

10. 减薄、研磨。对激光器衬底进行减薄和研磨,减薄至110 µm 左右。

11. 溅射 n 电极。采用磁控溅射的方法在激光器的背面溅射 n 电极金属 Ti/Pt/Au。

12. 解理。将激光器解理成巴条。

13. 镀膜。采用光学镀膜机对激光器腔面镀介质膜。

14. 分割。将激光器巴条分割成单个激光器芯片。

#### 6.3 室温连续工作的 GaN 基绿光激光器

我们对制作好的脊型波导激光器芯片进行封装,并测试其室温连续电注入条件下的器件特性。我们采用 TO 封装形式。图 6.3 为 TO 封装激光器的内部结构示意图。TO 封装的激光器一般有三个管脚,用于电流连接。当 TO 内部封有探测器时,激光器芯片和探测器共地,为激光器芯片和探测器的负极,其余两个管脚分别连接激光器和探测器的正极。当 TO 内部无探测器时,三个管脚中有一个管脚悬空。激光器芯片通过 AnSn 焊料焊接在 AIN 过渡热沉上,又通过 AnSn 焊料焊接在 TO 管座上。激光器芯片的 p 电极通过金线与正极管脚连接, n 电极通过金线连接负极管脚。整个结构通过管帽加压密闭封装,内充惰性气体保护器件。 TO 管壳所用材料通常为可阀合金或不锈钢。TO 管座的材料一般采用可阀合金或铜。图 6.4 为封装后的 GaN 基绿光激光器。



图 6.3 TO 封装的激光器内部结构示意图



图 6.4 封装后的 GaN 基绿光激光器



图 6.5 封装后激光器光谱随注入电流密度的变化

我们对器件的光谱特性在室温连续电注入条件下进行了测试,如图 6.5 所示。 在 0.25 kA/cm<sup>2</sup> 的注入电流密度下,自发辐射光谱的半高宽为 123 meV,说明我 们的绿光 InGaN/GaN 量子阱有源区界面陡峭,并且 In 组分起伏较小。随着注入 电流密度的增加,光谱半高宽迅速下降,并且在 1.85 kA/cm<sup>2</sup> 激射。当输入电流 密度为 1.01 倍阈值时,器件的光谱半宽仅为 2.1 meV,激射波长为 508 nm。



图 6.6 封装后激光器在室温连续电注入条件下的 P-I-V 曲线

图 6.6 展示了室温连续电注入条件下, GaN 基绿光激光器的 P-I-V 特性曲线。可以看到, 封装后激光器激射的阈值电流密度为 1.85 kA/cm<sup>2</sup>, 阈值电压为 4.3 V, 在 6.0 kA/cm<sup>2</sup> 的工作电流密度下输出功率为 58 mW。这是我们所知国内第一支室温连续工作的 GaN 基绿光激光器。



图 6.7 封装后 GaN 基绿光激光器的寿命测试结果

我们还对封装后的激光器进行了寿命测试。老化条件为室温恒电流老化,电流密度为 4.0 kA/cm<sup>2</sup>。图 6.7 为绿光激光器的老化特性曲线。可以看出最好的激光器寿命可达 1000 小时。

6.4 小结

本章中,我们在自支撑 GaN 衬底上生长了绿光激光器结构,将绿光激光器 外延片制作成了脊型波导激光器,并对激光器芯片进行了测试表征。主要有以下 成果:

1. 在自支撑 GaN 衬底上生长了绿光激光器结构,该激光器结构的内量子效率高达 66%。

2. 实现了国内第一支室温连续工作的 GaN 基绿光激光器,阈值电流密度
 1.85 kA/cm<sup>2</sup>,输出光功率可达 58 mW,寿命可达 1000 小时。

# 第七章 结论与展望

### 7.1 本论文的研究内容和研究成果

本论文以实现 GaN 基绿光激光器的室温连续工作为目标,针对 GaN 基绿光激光器的研制难点和需解决的关键科学技术问题,在绿光激光器材料的外延生长、 表征到器件性能测试分析等方面进行了深入的研究。本论文所取得的主要研究成 果如下:

1. 通过提高生长速率的方法,提高了 InGaN 量子阱中 In 的并入效率,实现 了在较高的生长温度下生长绿光 InGaN 量子阱,并提高了绿光 InGaN/GaN 量子 阱有源区的发光均匀性和发光效率。

2. 研究了绿光 InGaN 量子阱中典型的二维岛状形貌的形成机理,认为表面 原子迁移能力低是绿光 InGaN 量子阱二维岛模式生长的根本原因,在此认识基 础上,采用增加衬底斜切角从而降低原子台阶宽度的方法,降低了表面原子并入 原子台阶边需要迁移的距离。成功实现了绿光 InGaN 量子阱在较低生长温度下 的台阶流生长。采用变温 PL 研究发现,台阶流模式生长的绿光 InGaN/GaN 量子 阱比二维岛状模式生长的绿光 InGaN/GaN 量子阱有更陡峭的界面。同时,台阶 流模式生长的绿光 InGaN 量子阱还可以消除激活能为 18.8 meV 的非辐射复合中 心,使绿光 InGaN 量子阱的内量子效率提高了一倍。

3. 深入研究了绿光 InGaN/GaN 量子阱中由于 In 偏析导致的界面缺陷,发现 In 团簇区域 GaN 盖层晶体质量差,形成界面缺陷,通过界面热处理可以消除富 In 团簇及界面缺陷。我们生长了采用界面处理的 InGaN/GaN 量子阱有源区的绿光激光器结构。研究表明,采用界面处理的 InGaN/GaN 量子阱有源区可以抑制量子阱与量子垒界面的缺陷,从而内量子效率可达 59%,并且具有较小的发光半宽以及更少的局域态。

4. 以降低激光器工作电压为目的,研究了低温生长 p型 AlGaN 的电导率限制机理。发现 p型 AlGaN 中的碳杂质浓度随生长温度降低而显著增加,通过电中性方程计算,发现 C 杂质是低温生长 AlGaN:Mg 主要的补偿施主,揭示了低温生长 p型 AlGaN 的电导率限制机理。在此基础上,通过提高生长压力和降低 生长速率抑制了低温生长 p型 AlGaN 中 C 杂质的并入,降低了 p型 AlGaN 的电

83

阻率,从而获得了低工作电压的 GaN 基绿光激光器,该激光器的阈值电压为 4.3 V,达到国际先进水平。

5. 在自支撑 GaN 衬底上生长了绿光激光器结构,在国内首次实现了 GaN 基绿光激光器的室温连续工作。激射波长为 508 nm,阈值电流密度 1.85 kA/cm<sup>2</sup>,输出功率可达 58 mW,寿命可达 1000 小时。

### 7.2 不足之处与展望

GaN 基绿光激光器具有非常重要的市场应用前景和科学研究意义。通过本 论文的研究工作,我们对 GaN 基绿光激光器中的关键材料与器件的外延生长和 性能测试有了更加深入的认识,并且实现了 GaN 基绿光激光器的室温连续工作, 但是工作中还存在激射波长短、斜率效率低等问题有待进一步研究,未来还需要 在以下方面进行研究:

1. 绿光 InGaN 量子阱的纳米尺度 In 组分波动研究。在以前的工作中,通过 对 InGaN 量子阱的生长过程和界面调控的研究,我们成功抑制了绿光 InGaN 量 子阱的展宽,但与蓝光 InGaN 量子阱比较,绿光 InGaN 量子阱的发光光谱宽很 多,导致绿光激光器峰值增益和微分增益仍有待进一步提高。这可能与绿光 InGaN 量子阱的纳米尺度 In 组分波动有关。以前因为测试手段的限制,我们只 在微米尺度研究了绿光 InGaN 量子阱的发光均匀性。未来我们将采用高空间分 辨率、时间分辨率的光学测量技术,研究纳米尺度的 In 组分空间分布,研究绿 光 InGaN 多量子阱生长参数和外延结构参数对其 In 组分空间波动的影响机制。

2. 抑制绿光 InGaN 量子阱内极化电场的研究。极性面 c 面绿光 InGaN 量子 阱中的压电极化电场大,能带倾斜,减小了电子和空穴波函数交叠,降低了辐射 复合几率和发光效率。未来我们将研究抑制绿光 InGaN 量子阱内极化电场的方 法。

84

# 参考文献

- D. Sizov, R. Bhat, C-E. Zah. Gallium Indium Nitride-Based Green Lasers. Journal of Lightwave Technology, 2012, 30(5): 679-699.
- [2] H. K. Nguyen, M. H. Hu, N. Nishiyama, N. J. Visovsky, et al. 107-mW low-noise green-light emission by frequency doubling of a reliable 1060-nm DFB semiconductor laser diode. IEEE Photonics Technology Letters, 2006, 18(5): 682-684.
- [3] H. K. Nguyen, M. H. Hu, Y. Li, K. Song, N. J. Visovsky, S. Coleman, C. Zah, 304 mW green light emission by frequency doubling of a high-power 1060-nm DBR semiconductor laser diode. Proc. of SPIE, 2008, 6890: 6890011–6890016.
- [4] V. Bhatia, S. J. Gregorski, D. Pikula, S. C. Chaparala, et al. Efficient and compact green laser for micro-projector applications. J. Soc. Inf. Display, 2009, 17: 271–277.
- [5] Market for embedded pico-projector modules to exceed \$1bn. Semiconductor Today, Accessed online 23 May 2011.
- [6] Green laser diode market \$500m by 2016 as pico-projector market drives growth. Semiconductor Today, Accessed online 23 May 2011.
- [7] W. P. Risk, T. R. Gosnell, A. V. Nurmikko. Compact Blue-Green Lasers. Cambridge University Press, 2003.
- [8] D. Queren, A. Avramescu, G. Brüderl, et al. 500 nm electrically driven InGaN based laser diodes. Applied Physics Letters, 2009, 94(8): 081119.
- [9] T. Miyoshi, T. Yanamoto, T. Kozaki, et al. Recent status of white LEDs and nitride LDs. Proc. of SPIE, 2008, 6894(14): 689414.
- [10] T. Miyoshi, S. Masui, T. Okada, et al. 510–515 nm InGaN-Based Green Laser Diodes on c-Plane GaN Substrate. Applied Physics Express, 2009, 2: 062201.
- [11] T. Miyoshi, S. Masui, T. Okada, et al. InGaN-based 518 and 488 nm laser diodes on c-plane GaN substrate. Physica status solidi (a), 2010, 207(6): 1389-1392.
- [12] S. Nagahama, S. Masui, T. Miyoshi, et al. Watt-Class AlInGaN Blue and Green Laser Diodes. The 2nd Laser Display Conference (LDC' 13). Yokohama, Japan. 2013.
- [13] S. Nagahama et al. Current status and future prospects of GaN-based LDs. International Workshop on Nitride Semiconductors. Sapporo, Japan, 2012.

- [14] M. Ueno, Y. Yoshizumi, Y. Enya, et al. InGaN-based true green laser diodes on novel semi-polar GaN substrates. Journal of Crystal Growth, 2011, 315(1): 258-262.
- [15] A. Kaneta, Y. Kim, M. Funato, et al. Nanoscopic Photoluminescence Properties of a Green-Emitting InGaN Single Quantum Well on a (20-21) GaN Substrate Probed by Scanning Near-Field Optical Microscopy. Applied Physics Express, 2012, 5: 102104.
- [16] K. Yanashima, H. Nakajima, K. Tasai, et al. Long-Lifetime True Green Laser Diodes with Output Power over 50 mW above 525 nm Grown on Semipolar (20-21) GaN Substrates. Applied Physics Express, 2012, 5: 082103.
- [17] S. Takagi, Y. Enya, T. Kyono, et al. High-Power (over 100 mW) Green Laser Diodes on Semipolar (20-21) GaN Substrates Operating at Wavelengths beyond 530 nm. Applied Physics Express, 2012, 5: 082102.
- [18] Y. Ckim, A. Kaneta, M. Funato, et al. Optical Gain Spectroscopy of a Semipolar{20-21}-Oriented Green InGaN Laser Diode. Applied Physics Express, 2011, 4: 052103.
- [19] M. Adachi, Y. Yoshizumi, Y. Enya, et al. Low Threshold Current Density InGaN Based 520–530 nm Green Laser Diodes on Semi-Polar {20-21} Free-Standing GaN Substrates. Applied Physics Express, 2010, 3: 121001.
- [20] M. Funato, A. Kaneta, Y. Kawakami, et al. Weak Carrier/Exciton Localization in InGaN Quantum Wells for Green Laser Diodes Fabricated on Semi-Polar {20-21} GaN Substrates. Applied Physics Express, 2010, 3: 021002.
- [21] T. Kyono, Y. Yoshizumi, Y. Enya, et al. Optical Polarization Characteristics of InGaN Quantum Wells for Green Laser Diodes on Semi-Polar {20-21} GaN Substrates. Applied Physics Express, 2010, 3: 011003.
- [22] Y. Yoshizumi, M. Adachi, Y. Enya, et al. Continuous-Wave Operation of 520 nm Green InGaN-Based Laser Diodes on Semi-Polar {20-21} GaN Substrates. Applied Physics Express, 2009, 2: 092101.
- [23] Y. Enya, Y. Yoshizumi, T. Kyono, et al. 531 nm Green Lasing of InGaN Based Laser Diodes on Semi-Polar {20-21} Free-Standing GaN Substrates. Applied Physics Express, 2009, 2: 082101.
- [24] K. Okamoto, J. Kashiwagi, T. Tanaka, et al. Nonpolar m-plane InGaN multiple quantum well laser diodes with a lasing wavelength of 499.8 nm. Applied Physics Letters, 2009, 94:

071105.

- [25] K. Okamoto, T. Tanaka, M. Kubota. High-Efficiency Continuous-Wave Operation of Blue-Green Laser Diodes Based on Nonpolar m-Plane Gallium Nitride. Applied Physics Express, 2008, 1: 072201.
- [26] M. Funato, Y. S. Kim, T. Hira, et al. Remarkably Suppressed Luminescence Inhomogeneity in a (0001) InGaN Green Laser Structure. Applied Physics Express, 2013, 6: 111002.
- [27] M. Funato, Y. S. Kim, Y. Ochi, et al. Optical Gain Spectra of a (0001) InGaN Green Laser Diode. Applied Physics Express, 2013, 6: 122704.
- [28] A. Avramescu, T. Lermer, J. Müller, et al. InGaN laser diodes with 50 mW output power emitting at 515 nm. Applied Physics Letters, 2009, 95: 071103.
- [29] A. Avramescu, T. Lermer, J. Müller, et al. True Green Laser Diodes at 524 nm with 50 mW Continuous Wave Output Power on c-Plane GaN. Applied Physics Express, 2010, 3: 061003.
- [30] S. Lutgen, A. Avramescu, T. Lermer, et al. Progress of blue and green InGaN laser diodes. Proc. of SPIE, 2010, 7616: 76160G1-76160G8.
- [31] S. Lutgen, D. Dini, I. Pietzonka, et al. Recent results of blue and green InGaN laser diodes for laser projection. Proc. of SPIE, 2011, 7953:79530G1-79530G12.
- [32] C. Vierheilig, C. Eichler, S. Tautz, et al. Beyond blue pico laser: development of high power blue and low power direct green. Proc. of SPIE, 2012, 8277:82770K1-82770K7.
- [33] T. Hager, G. Brüderl, T. Lermer, et al. Current dependence of electro-optical parameters in green and blue (AlIn)GaN laser diodes. Applied Physics Letters, 2012, 101: 171109.
- [34] T. Hager, U. Strauß, C. Eichler, et al. Power blue and green laser diodes and their applications. Proc. of SPIE, 2013, 8640:86400G1-86400G8.
- [35] T. Hager, M. Binder, G. Brüderl, et al. Carrier transport in green AllnGaN based structures on c-plane substrates. Applied Physics Letters, 2013, 102: 231102.
- [36] U. Staruß, T. Hager, G. Brüderl, et al. Recent advances in c-plane GaN visible lasers. Proc. of SPIE, 2014, 8986:89861L1-89861L10.
- [37] U. Staruß, A. Avramescu, T. Lermer, et al. Pros and cons of green InGaN laser on c-plane GaN. Physica status solidi (b), 2011, 248(3): 652-657.
- [38] U. Strauss, T. Lermer, J. Müller, et al. Study of defects and lifetime of green InGaN laser

diodes. Physica status solidi (a), 2012, 209(3): 481-486.

- [39] S. Lutgen, A. Avramescu, T. Lermer, et al. True green InGaN laser diodes. Physica status solidi (a), 2010, 207(6): 1318-1322.
- [40] J. Müller, U. Strauß, T. Lermer, et al. Investigation of long wavelength green InGaN lasers on c-plane GaN up to 529 nm continuous wave operation. Physica status solidi (a), 2011, 208(7): 1590-1592.
- [41] K. S. Kim, J. K. Son, S. N. Lee, et al. Characteristics of long wavelength InGaN quantum well laser diodes. Applied Physics Letters, 2008, 92: 101103.
- [42] Y. Zhao, F. Wu, C-Y. Huang, et al. Suppressing void defects in long wavelength semipolar (2021) InGaN quantum wells by growth rate optimization. Applied Physics Letters, 2013, 102:091905.
- [43] C-Y. Huang, M. T. Hardy, K. Fujito, et al. Demonstration of 505 nm laser diodes using wavelength-stable semipolar (20-21) InGaN/GaN quantum wells. Applied Physics Letters, 2011, 99: 241115.
- [44] M. T. Hardy, C. O. Holder, D. F. Feezell, et al. Indium-tin-oxide clad blue and true green semipolar InGaN/GaN laser diodes. Applied Physics Letters, 2013, 103: 081103.
- [45] Y. Zhao, S. H. Oh, F. Wu, et al. Green Semipolar (20-2-1) InGaN Light-Emitting Diodes with Small Wavelength Shift and Narrow Spectral Linewidth. Applied Physics Express, 2013, 6(6): 062102.
- [46] Y. D. Lin, S. Yamamoto, C-Y. Huang, et al. High Quality InGaN/AlGaN Multiple Quantum Wells for Semipolar InGaN Green Laser Diodes. Applied Physics Express, 2010, 3: 082001.
- [47] A.Tyagi, R. M. Farrell, K. M. Kelchner, et al. AlGaN-Cladding Free Green Semipolar GaN Based Laser Diode with a Lasing Wavelength of 506.4 nm. Applied Physics Express, 2010, 3: 011002.
- [48] Y-D. Lin, M. T. Hardy, P. S. Hsu, et al. Blue-Green InGaN/GaN Laser Diodes on Miscut m-Plane GaN Substrate. Applied Physics Express, 2009, 2: 082102.
- [49] M. T. Hardy, F. Wu, P. S. Shan, et al. True green semipolar InGaN-based laser diodes beyond critical thickness limits using limited area epitaxy. Journal of Applied Physics, 2013, 114: 183101.
- [50] A. Banerjee, T. Frost, S. Jahangir, et al. InGaN/GaN self-organized quantum dot lasers 88

grown by molecular beam epitaxy. Journal of Crystal Growth, 2013, 378(1): 566-70.

- [51] P. Bhatttacharya, A. Banerjee, T. Frost, et al. InGaN/GaN quantum dot blue and green lasers. Proc. of SPIE, 2013, 8640: 86400J1-86400J6.
- [52] M. Zhang, A. Banerjee, C-S. Lee, et al. A InGaN/GaN quantum dot green (λ=524 nm) laser. Applied Physics Letters, 2011, 98: 221104.
- [53] D. S. Sizov, R. Bhat, A. Zakharian, et al. Impact of Carrier Transport on Aquamarine–Green Laser Performance. Applied Physics Express, 2010, 3: 122101.
- [54] D. Sizov, R. Bhat, J. Napierala, et al. Optical gain and gain saturation of blue-green InGaN quantum Wells. Phys Status Solidi A, 2010, 207(6): 1309-1312.
- [55] D. S. Sizov, R. Bhat, A. Zakharian, et al. Carrier transport in InGaN MQWs of aquamarine and green LDs. Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of 2011, 17(5): 1390-1401.
- [56] D. Sizov, R. Bhat, A. Heberle, et al. True-green (11-22) plane optically pumped laser with cleaved m-plane facets. Applied Physics Letters, 2011, 99: 041117.
- [57] R. M. Farrell, D. A. Haeger, X. Chen, et al. Origin of pyramidal hillocks on GaN thin films grown on free-standing m-plane GaN substrates. Applied Physics Letters, 2010, 96: 231907.
- [58] D. Sizov, R. Bhat, A. Heberle, et al. Internal Optical Waveguide Loss and p-Type Absorption in Blue and Green InGaN Quantum Well Laser Diodes. Applied Physics Express, 2010, 3: 122104.
- [59] D. Sizov, R. Bhat, J. Napierala, et al. 500-nm Optical Gain Anisotropy of Semipolar (11-22)
  InGaN Quantum Wells. Applied Physics Express, 2009, 2: 071001.
- [60] J. W. Raring, M. C. Schmidt, C. Poblenz, et al. High-Efficiency Blue and True-Green-Emitting Laser Diodes Based on Non-c-Plane Oriented GaN Substrates. Applied Physics Express, 2010, 3: 112101.
- [61] J. W. Raring, M. C. Schmidt, C. Poblenz, et al. High-performance blue and green laser diodes based on nonpolar/semipolar bulk GaN substrates. Proc. of SPIE. 2011, 7939: 79390Y1-79390Y7.
- [62] V. Fiorentini, F. Bernardini, F. Della Sala, et al. Effects of macroscopic polarization in III-V nitride multiple quantum wells. Physical Review B, 1999, 60(12): 8849-8858.
- [63] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt, Spontaneous polarization and piezoelectric

constants of III-V nitrides, Physical Review B, 1997, 56(16): 10024-10027.

- [64] T. Tanikawa, T. Sano, M. Kushimoto, et al. Fabrication of InGaN/GaN Multiple Quantum Wells on (1-101) GaN. Japanese Journal of Appllie Physics, 2013, 52: 08JC05.
- [65] F. Akyol, D. N. Nath, S. Krishnamoorthy, et al. Suppression of electron overflow and efficiency droop in N-polar GaN green light emitting diodes. Applied Physics Letter, 2012, 100: 111118.
- [66] S. H. Park and D. Ahn. Depolarization effects in (112-2) oriented InGaN/GaN quantum well structures. Applied Physics Letters, 2007, 90: 013505.
- [67] J. P. Liu, Z. C. Li, L. Q. Zhang, et al. Realization of InGaN laser diodes above 500 nm by growth optimization of the InGaN/GaN active region. Applied Physics Express, 2014, 7: 111001.
- [68] M. Funato, M. Ueda, Y. Kawakami, et al. Blue, Green, and Amber InGaN/GaN Light-Emitting Diodes on Semipolar {11-22} GaN Bulk Substrates. Japanese Journal of Applied Physics, 2006, 45(26): 659-662.
- [69] F. D. Sala, A. D. Carlo, P. Lugli, et al. Free-carrier screening of polarization fields in wurtzite GaN/InGaN laser structures. Applied Physics Letters, 1999, 74: 2002.
- [70] M. Zhang, J. Moore, Z. Mi, et al. Polarization effects in self-organized InGaN/GaN quantum dots grown by RF-plasma-assisted molecular beam epitaxy. Journal of Crystal Growth, 2009, 311(7): 2069-2072.
- [71] H. Morkoc. Nitride Semiconductor Devices Fundamentals and Applications. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2013.
- [72] F. K. Yam, Z. Hassan. InGaN: An overview of the growth kinetics, physical properties and emission mechanisms. Superlattices and Microstructures, 2008, 43(1): 1-23.
- [73] R. A. Oliver, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, et al. Growth modes in heteroepitaxy of InGaN on GaN. Journal of Applied Physics, 2005, 97: 8.
- [74] K. Kijima, U. T. Schwarz, M. Funato, et al. Optical gain spectra for near UV to aquamarine (Al,In)GaN laser diodes. Opticis Express, 2007, 15(12): 7730-7736.
- [75] T. Lermer, A. Gomez-Iglesias, M. Sabathil, et al. Gain of blue and cyan InGaN laser diodes. Applied Physics Letters, 2011, 98: 021115.
- [76] K. Kojima, M. Funato, Y. Kawakami, et al. Inhomogeneously broadened optical gain 90

spectra of InGaN quantum well laser diodes. Physica status solidi (c), 2008, 5(6): 2126-2128.

- [77] H. Morkoc. Handbook of Nitride Semiconductors and Devices. Weinheim: WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2008.
- [78] D. Queren, M. Schillgalies, A. Avramescu, et al. Quality and thermal stability of thin InGaN films. Journal of Crystal Growth, 2009, 311(10): 2933-2936.
- [79] Z. C. Li, J. P. Liu, M. X. Feng, et al. Suppression of thermal degradation of InGaN/GaN quantum wells in green laser diode structures during the epitaxial growth. Applied Physics Letters, 2013, 103: 152109.
- [80] S. Nagahama, T. Yanamoto, M. Sano, and T. Mukai. Wavelength Dependence of InGaN Laser Diode Characteristics. Japanese Journal of Applied Physics, 2001, 40: 3075-3081.
- [81] C-Y. Huang, Y-D. Lin, A. Tyagi, et al. Optical waveguide simulations for the optimization of InGaN-based green laser diodes. Journal of Applied Physics, 2010, 107: 023101.
- [82] T. Lermer, M. Schillgalies, A. Breidenassel, et al. Waveguide design of green InGaN laser diodes. Physica status solidi (a), 2010, 207(6): 1328-1331.
- [83] Gerald B. Stringfellow, Organometallic Vapor-Phase Epitaxy: Theory and Practice, Second Edition, Academic Press, New York, 1999.
- [84] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, et al. Continuous-wave operation of InGaN/GaN/AlGaN-based laser diodes grown on GaN substrate. Applied Physics Letters, 1998, 72: 2014.
- [85] 陆大成,段树坤.金属有机化合物气相外延基础及应用.北京:科学出版社,2009.
- [86] 周坤,《GaN 基发光器件关键材料的 MOCVD 生长研究》,博士学位论文,中国科学院 半导体所,北京,2015.
- [87] Bragg W H, Bragg W L. The Reflection of X-rays by Crystals. Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 1913, 88 (605): 428-438.
- [88] Udo W. Pohl. Epitaxy of Semiconductors: Introduction to Physical Principles. Springer, 2013.
- [89] 张纪才,《III 族氮化物结构与光学性质的研究》,博士学位论文,中国科学院半导体所, 北京,2005.

- [90] 李增成,《GaN 基绿光激光器的 MOCVD 外延生长研究》,博士学位论文,中国科学院 半导体所,北京,2014.
- [91] 许振嘉,《半导体检测与分析》,科学出版社,北京, 2009.
- [92] 任凤霞,《半导体光致发光特性研究》,硕士学位论文,西安电子科技大学,西安,2011.
- [93] Yu Huang. Optical Characterization of III Nitride Semiconductors Using Cathodoluminescence Techniques. Arizona State University, 2011.
- [94] H. P. D. Schenk, P. de Mierry, M. Laugt, et al. Indium incorporation above 800 °C during metalorganic vapor phase epitaxy of InGaN. Applied Physics Letters, 1999, 75: 2587.
- [95] R. Hashimoto, J. Hwang, S. Saito, and Shinya Nunoue. High-efficiency green-yellow light-emitting diodes grown on sapphire (0001) substrates. Physics status solisi (c), 2013, 10(11): 1529-1532.
- [96] X. H. Wu, D. Kapolnek, E. J. Tarsa, et al. Nucleation layer evolution in metal-organic chemical vapor deposition grown GaN. Applied Physics Letters, 1996, 68: 1371.
- [97] M. A. Zaluska-kotur, F. Krzyzewski, S. Krukowski. Double step structure and meandering due to the many body interaction at GaN(0001) surface in N-rich conditions. Journal of Applied Physics, 2011, 109(2): 023515.
- [98] M. A. Zaluska-kotur, F. Krzyzewski, S. Krukowski. Surface patterns due to step flow anisotropy formed in crystal growth process. Journal of Non-Crystalline Solids, 2010, 356(37-40): 1935-1939.
- [99] M. H. Xie, S. M. Seutter, W. K. Zhu, et al. Anisotropic step-flow growth and island growth of GaN (0001) by molecular beam epitaxy. Physical Review Letters, 1999, 82: 2749-2752.
- [100] W. R. Graham, G. Ehrlich. Surface Self-Diffusion of Atoms and Atom Pairs. Physical Review Letters, 1973, 31(23): 1407-1408.
- [101] S. C. Wang, G. Ehrlich. Adatom motion to lattice steps: A direct view. Physical Review Letters, 1993, 70(1): 41-44.
- [102] S. J. Liu, E. G. Wang, C. H. Woo, et al. Three-dimensional Schwoebel–Ehrlich barrier. Journal of Computer-Aided Materials Design, 2000, 7(3): 195-201.
- [103] S. J. Liu, H. Huang, C. H. Woo. Schwoebel-Ehrlich barrier: from two to three dimensions. Applied Physics Letters, 2002, 80: 3295-3297.
- [104] A. Q. Tian, J. P. Liu, L. Q. Zhang, et al. Green laser diodes with low threshold current

density via interface engineering of InGaN/GaN quantum well active region. Optical Express 2017, 25: 415-421.

- [105] D. I. Florescu, S. M. Ting, V. N. Merai, et al. InGaN quantum well epilayers morphological evolution under a wide range of MOCVD growth parameter sets. Physics status solisi (c), 2006, 3: 1811-1814.
- [106] R. A. Oliver, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, and G. Andrew D. Briggs. Growth modes in heteroepitaxy of InGaN on GaN. Journal of Applied Physics, 2005, 97: 013707.
- [107] R. A. Oliver, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, and G. Andrew D. Briggs. The influence of ammonia on the growth mode in InGaN/GaN heteroepitaxy. Journal of Crystal Growth, 2004, 272: 393-399.
- [108] J. Falta, T. Schmidt, S. Gangopadhyay, et al. Cleaning and growth morphology of GaN an InGaN surfaces. Physics status solisi (b). 2011, 248: 1800–1809.
- [109] A. Kadir, C. Meissner, T. Schwaner, et al. Growth mechnism of InGaN quantum dots during metalorganic vapor phase epitaxy. Journal of Crystal Growth, 2011, 334: 40–45.
- [110] M. Pristovsek, A. Kadir, C. Meissner, et al. Growth mode transition and relaxation of thin InGaN layers on GaN (0001). Journal of Crystal Growth, 2013, 372: 65–72.
- [111] A. I. Duff, L. Lymperakis, J. Neugebauer. Understanding and controlling indium incorporation and surface segregation on InxGa1-xN surfaces: An ab initio approach. Physical Review B, 2014, 89: 085307.
- [112] G. B. Stringfellow. Microstructures produced during the epitaxial growth of InGaN alloys. Journal of Crystal Growth, 2010, 312: 735-749.
- [113] R. Hashimoto, J. Hwang, S. Saito, and S. Nunoue. High-efficiency green-yellow light-emitting diodes grown on sapphire (0001) substrates. Physics status solisi (c), 2013, 10: 1529-1532.
- [114] E. L. Piner, F. G. McIntosh, J. C. Roberts, et al. Growth and Properties of InGaN and AlInGaN Thin Films on (0001) Sapphire. MRS Internet J. Nitride Semicond. 1996, 1:43.
- [115] I. Ho, G. B. Stringfellow. Solid phase immiscibility in GaInN. Applied Physics Letters, 1996, 69:2701.
- [116] G. Franssen, E. Litwin-Staszewska, P.Piotrzkowski, et al. Optical and electrical properties of homoepitaxially grown multi quantum well InGaN/GaN light-emitting diodes. Journal of

Applied Physics, 2003, 94: 6122.

- [117] K. Kazlauskas, G. Tamulaitis, P. Pobedinskas, et al. Exciton hopping in InxGa1–xN multiple quantum wells. Physical Review B, 2005, 71:085306.
- [118] T. P. Liu, Z. G. Ma, C. H. Du, et al. Temperature-dependent photoluminescence in light-emitting diodes. Scientific Report, 2014, 4: 6131–6137.
- [119] A. Q. Tian, J. P. Liu, L. Q. Zhang, et al. Optical characterization of InGaN/GaN quantum well active region of green laser diodes. Applied Physics Express, 2017, 10: 012701.
- [120] A. Yasan, R. McClintock, K. Mayes, et al. Photoluminescence study of AlGaN-based 280 nm ultraviolet light-emitting diodes. Applied Physics Letters, 2003, 83: 4083.
- [121] X. H. Zheng, H. Chen, Z. B. Yan, et al. Influence of the deposition time of barrier layers on optical and structural properties of high-efficiency green-light-emitting InGaN/GaN multiple quantum wells. Journal of Applied Physics, 2004, 96: 15.
- [122] C. Netzel, H. Bremers, L. Hoffmann, et al. Emission and recombination characteristics of Ga1-xInxN/GaN quantum well structures with nonradiative recombination suppression by V-shaped pits. Physical Review B, 2007, 76: 155322.
- [123] K. L. Teo, J. S. Colton, P. Y. Yu, et al. An analysis of temperature dependent photoluminescence line shapes in InGaN. Applied Physics Letters, 1998, 73: 1697.
- [124] M. Hao, J. Zhang, X. H. Zhang, and S. Chua. Photoluminescence studies on InGaN/GaN multiple quantum wells with different degree of localization. Applied Physics Letters, 2002, 81: 5129.
- [125] Z. Deng, Y. Jiang, Z. G. Ma, et al. A novel wavelength-adjusting method in InGaN-based light-emitting diodes. Scientific Report, 2013, 3: 3389.
- [126] H. Murotani, Y.Yamada, T. Tabata, et al. Effects of exciton localization on internal quantum efficiency of InGaN nanowires. Journal of Applied Physics, 2013, 114: 153506.
- [127] Y. Chen, T. Takeuchi, H. Amano, et al. Pit formation in GaInN quantum wells. Applied Physics Letters, 1998, 72: 710.
- [128] T. Shitara, T. Nishinaga. Surface Diffusion Length of Gallium during MBE Growth on the Various Misoriented GaAs (001) Substrates. Japanese Journal of Applied Physics, 1989, 28: 1212-1216.
- [129] J. Massies, N. Grandjean. Surfactant effect on the surface diffusion length in epitaxial
growth. Physical Review B, 1993, 48(11): 8502-8505.

- [130] J. Bruckbauer, P. R. Edwards, T. Wang, et al. High resolution cathodolumiescence hyperapectral imaging of surface features in InGaN/GaN multiple quantum well structures. Applied Physics Letters, 2011, 98: 141908.
- [131] F. C. P. Massabuau, L. Trinh-Xuan, D. Lodie, et al. Correlations between the morphology and emission properities of trench defects in InGaN/GaN quantum wells. Journal of Applied Physics, 2013, 113: 073505.
- [132] F. C. P. Massabuau, M. J. Davies, F. Oehler, et al. The impact of trench defects in InGaN/GaN lighting emitting diodes and implications for the "green gap" problem. Applied Physics Letters, 2014, 105: 112110.
- [133] F. C. P. Massabuau, S. L. Sahonta, L. Trinh-Xuan, et al. Morphological, structural, and emission characterization of trench defects in InGaN/GaN quantum well structures. Applied Physics Letters, 2012, 101: 212107.
- [134] S. M. Ting, J. C. Ramer, D. I. Florescu, et al. Morphological evolution of InGaN/GaN quantum well heterostructures grown by metalorganic chemical vapor deposition. Journal of Applied Physics, 2003, 94: 1461.
- [135] Y. T. Moon, D. J. Kim, K. M. Song, et al. Effects of thermal and hydrogen treatment on indium segregation in InGaN/GaN multiple quantum wells. Journal of Applied Physics, 2001, 89, 6514.
- [136] N. K. van der Laak, R. A. Oliver, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, Role of gross well-width fluctuations in bright, green-emitting single InGaN/GaN quantum well structures. Applied Physics Letters, 2007, 90: 121911.
- [137] S. Suihkonen, O. Svensk, T. Lang, et al. The effect of InGaN/GaN MQW hydrogen treatment and threading dislocation optimization on GaN LED efficiency. Journal of Crystal Growth, 2007, 298: 740-743.
- [138] S. Suihkonen, T. Lang, O. Svensk, et al. Control of the morphology of InGaN/GaN quantum wells grown by metalorganic chemical vapor deposition. Journal of Crystal Growth, 2007, 300: 324-329.
- [139] E. Taylor, F. Fang, F. Oehler, et al. Composition and luminescence studies of InGaN epilayers grown at different hydrogen flow rates. Semiconductor Science and Technology,

2013, 28: 065011.

- [140] F. Scholz, J. Off, E. Fehrenbacher, et al. Investigations on Structural Properties of GaInN/GaN Multi Quantum Well Structures. Physics status solisi (a). 2000, 180: 315-320.
- [141] J. P. Liu, Y. T. Wang, H. Yang, et al. Investigations on V-defects in quaternary AlInGaN epilayers. Applied Physics Letters, 2004, 84: 5449.
- [142] M. Shiojiri, C. C. Chuo, J. T. Hsu, et al. Structure and formation mechanism of V defects in multiple InGaN/GaN quantum well layers. Journal of Applied Physics. 2006, 99: 073505.
- [143] D. I. Florescu, S. M. Ting, J. C. Ramer, et al. Investigation of V-Defects and embedded inclusions in InGaN/GaN multiple quantum wells grown by metalorganic chemical vapor deposition on (0001) sapphire. Applied Physics Letters, 2003, 83: 33.
- [144] M. S. Kumar, J. Y. Park, Y. S. Lee, et al. Effect of barrier growth temperature on morphological evolution of green InGaN/GaN multi-quantum well heterostructures. Journal of Physics D: Applied Physics, 2007, 40: 5050.
- [145] X. H. Wu, C. R. Elsass, A. Abare, et al. Structural origin of V-defects and correlation with localized excitonic centers in InGaN/GaN multiple quantum wells. Applied Physics Letters, 1998, 72: 692.
- [146] N. Duxbury, U. Bangert, P. Dawson, et al. Indium segregation in InGaN quantum-well structures. Applied Physics Letters, 2000, 76: 1600.
- [147] Y. H. Cho, G. H. Gainer, A. J. Fischer, et al. "S-shaped" temperature-dependent emission shift and carrier dynamics in InGaN/GaN multiple quantum wells. Applied Physics Letters, 1998, 73: 1370.
- [148] A. Mohanta, S. F. Wang, T. F. Young, et al. Observation of weak carrier localization in green emitting InGaN/GaN multi-quantum well structure. Journal of Applied Physics, 2015, 117: 144503.
- [149] K. Kazlauskas, G. Tamulaitis, P. Pobedinskas, et al. Exciton hopping in InxGa1-xN multiple quantum wells. Physical Review B, 2005, 71: 085306.
- [150] J. Bai, T. Wang, and S. Sakai. Influence of the quantum-well thickness on the radiative recombination of InGaN/GaN quantum well structures. Journal of Applied Physics, 2000, 88: 4729.
- [151] X. H. Zheng, H. Chen, Z. B. Yan, et al. Influence of the deposition time of barrier layers on 96

optical and structural properties of high-efficiency green-light-emitting InGaN/GaN multiple quantum wells. Journal of Applied Physics, 2004, 96: 1899.

- [152] M. Hao, J. Zhang, X. H. Zhang, and S. Chua. Photoluminescence studies on InGaN/GaN multiple quantum wells with different degree of localization. Applied Physics Letters, 2002, 81: 5129.
- [153] P. G. Eliseev. The red  $\sigma 2/kT$  spectral shift in partially disordered semiconductors. Journal of Applied Physics, 2003, 93: 5404.
- [154] H. Murotani, Y. Yamada, T. Tabata, et al. Effects of exciton localization on internal quantum efficiency of InGaN nanowires. Journal of Applied Physics, 2013, 114: 153506.
- [155] Y. L. Xian, S. J. Huang, Z. Y. Zheng, et al. Effects of growth pressure on the properties of p-GaN layers", Journal of Crystal Growth, 2011, 325: 32.
- [156] J. Yang, D. G. Zhao, D. S. Jiang, et al. Investigation on the compensation effect of residual carbon impurities in low temperature grown Mg doped GaN films. Journal of Applied Physics, 2014, 115: 163704.
- [157] D. D. Koleske, A. E. Wickenden, R. L. Henry, M. E. Twigg. Influence of MOVPE growth conditions on carbon and silicon concentrations in GaN. Journal of Crystal Growth, 2002, 242: 55-69.
- [158] G. Parish, S. Keller, S. P. Denbaars, and U. K. Mishra. SIMS investigations into the effect of growth conditions on residual impurity and silicon incorporation in GaN and AlxGa1-xN. Journal of Electronic Materials, 2000, 29: 15-20.
- [159] J. T. Chen, U. Forsberg, and E. Janzen. Impact of residual carbon on two-dimensional electron gas properties in AlxGa1-xN/GaN heterostructure. Applied Physics Letters, 2013, 102: 193506.
- [160] J. Li, T. N. Oder, M. L. Nakarmi, et al. Optical and electrical properties of Mg-doped p-type AlxGa1-xN. Applied Physics Letters, 2002, 80: 1210.
- [161] H. Obloh, K. H. Bachem, U. Kaufmann, et al. Self-compensation in Mg doped p-type GaN grown by MOCVD. Journal of Crystal Growth, 1998, 195: 270-273.
- [162] A. Castiglia, J. F. Carlin, N. Grandjean. Role of stable and metastable Mg-H complexes in p-type GaN for cw blue laser diodes. Applied Physics Letters, 2011, 98: 213505.
- [163] M. Suzuki, J. Nishio, M. Onomura, C. Hongo. Doping characteristics and electrical 97

properties of Mg-doped AlGaN grown by atmospheric-pressure MOCVD. Journal of Crystal Growth, 1998, 189-190: 511-515.

- [164] J. L. Lyons, A. Janotti, and C. G. Van de Walle, Carbon impurities and the yellow luminescence in GaN. Applied Physics Letters, 2010, 97: 152108.
- [165] A. F. Wright. Substitutional and interstitial carbon in wurtzite GaN. Journal of Applied Physics, 2002, 92: 2575-2585.
- [166] P. Boguslawski, J. Bernhlic. Doping properties of C, Si, and Ge impurities in GaN and AlN.Physical Review B, 1997, 56: 9496-9505.
- [167] C. H. Seager, A. F. Wright, J. Yu, and W. Gotz. Role of carbon in GaN. Journal of Applied Physics, 2002, 92: 6553.
- [168] D. O. Demchenko, I. C. Diallo, and M. A. Reshchikov. Yellow Luminescence of Gallium Nitride Generated by Carbon Defect Complexes. Physical Review Letters, 2013, 110: 087404.
- [169] P. Kozodoy, H. L. Xing, S. P. DenBaars, et al. Heavy doping effects in Mg-doped GaN. 87, Journal of Applied Physics, 2000, 87:1832-1835.
- [170] M. Suzuki, and T. Uenoyama. First-principles calculations of effective-mass parameters of AlN and GaN. Physical Review B, 1995, 52: 8132-8139.

## 科研成果及学术活动

- [1] Aiqin Tian, Jianping Liu, Liqun Zhang, Xiaowang Fan, Masao Ikeda, Shuming Zhang, Deyao Li, Pengyan Wen, Yang Cheng, and Hui Yang. "Green laser diodes with low threshold current density via interface engineering of InGaN/GaN quantum well active region". Optics Express 25, 415 (2017).
- [2] Aiqin Tian, Jianping Liu, Liqun Zhang, Masao Ikeda, Xiaowang Fan, Shuming Zhang, Deyao Li, Feng Zhang, Pengyan Wen, Yang Cheng, and Hui Yang. "Optical characterization of InGaN/GaN QW active region of green laser diodes". Appl. Phys. Express, 10, 012701 (2017).
- [3] Aiqin Tian, Jianping Liu, Masao Ikeda, Shuming Zhang, Zengcheng Li, Meixin Feng, Kun Zhou, Deyao Li, Liqun Zhang, Pengyan Wen, Feng Zhang, and Hui Yang. "Conductivity enhancedment in AlGaN: Mg by suppressing the incorporation of carbon impurity", Appl. Phys. Express, 8, 051001 (2015).
- [4] Aiqin Tian, Jianping Liu, Liqun Zhang, Masao Ikeda, Shuming Zhang, Deyao Li, Xiaowang Fan, Kun Zhou, Pengyan Wen, Feng Zhang, and Hui Yang. "Green laser diodes with low operation voltage obtained by suppressing carbon impurit in AlGaN: Mg cladding layer", Phys. Status Solidi C, 5, 245 (2016).
- [5] Aiqin Tian, Jianping Liu, Liqun Zhang, Lingrong Jiang, Masao Ikeda, Shuming Zhang, Deyao Li, Pengyan Wen, Yang Cheng, Xiaowang Fan, and Hui Yang. "100% increase of quantum efficiency of green InGaN quantum well by realizing step-flow growth". Submitted to Appl. Phys. Lett.
- [6] Yang Cheng, Jianping Liu, Aiqin Tian, Feng Zhang, Meixin Feng, Weiwei Hu, Shuming Zhang, Masao Ikeda, Deyao Li, Liqun Zhang, and Hui Yang. "Hole transport in c-plane InGaN-based green laser diodes". Appl. Phys. Lett. 109, 092104 (2016).
- [7] Lingrong Jiang, Jianping Liu, Aiqin Tian, Yang Cheng, Zengcheng Li, Liqun Zhang, Shuming Zhang, Deyao Li, Masao Ikeda, and Hui Yang. "GaN-based green laser diodes". Journal of Semiconductors, 37, 111001 (2016).
- [8] Jianping Liu, Zengcheng Li, Liqun Zhang, Feng Zhang, Aiqin Tian, Kun Zhou, Deyao Li,

Shuming Zhang, and Hui Yang. "Realization of InGaN laser diodes above 500 nm by growth optimization of the InGaN/GaN active region". Appl. Phys. Express 7, 111001 (2014).

- [9] Pengyan Wen, Deyao Li, Shuming Zhang, Jianping Liu, Liqun Zhang, Kun Zhou, Meixin Feng, Aiqin Tian, Feng Zhang, Chang Zeng and Hui Yang. "Identification of degradation mechanisms based on thermal characteristics of InGaN/GaN laser diodes", IEEE J. Sel Topics in Quantum Electronics, 21, 1500506, 2015.
- [10] Pengyan Wen, Deyao Li, Shuming Zhang, Jianping Liu, Liqun Zhang, Kun Zhou, Meixin Feng, Zengcheng Li, Aiqin Tian and Hui Yang. "High accuracy thermal resistance measurement in GaN/InGaN laser diodes", Soli. State Electronics, 106, 2015.
- [11] Pengyan Wen, Shuming Zhang, Deyao Li, Jianping Liu, Liqun Zhang, Kun Zhou, Meixin Feng, Aiqin Tian, Feng Zhang, Xiaodong Gao and Hui Yang. "Identification of degradation mechanisms of blue InGaN/GaN laser diodes", J. Phys. D: Applied Physics, 48, 415101, 2015.
- [12] Pengyan Wen, Shuming Zhang, Deyao Li, Jianping Liu, Liqun Zhang, Xujun Su, Kun Zhou, Aiqin Tian, Chang Zeng, Desheng Jiang, Zongshun Liu and Hui Yang. "Enhanced temperature characteristic of InGaN/GaN laser diodes with uniform multiple quantum wells", Semicond. Sci. Technol., 30, 125015, 2015.
- [13] Pengyan Wen, Shuming Zhang, Deyao Li, Jianping Liu, Liqun Zhang, Dong Shi, Kun Zhou, Aiqin Tian and Hui Yang. "Investigation of rapid degradation in GaN-based blue laser diodes", Superlattices and Microstructures, doi: 10.1016/j. spmi, 2016.
- [14] Kun Zhou, Masao Ikeda, Jianping Liu, Shuming Zhang, Zengcheng Li, Meixin Feng, Aiqin Tian, Pengyan Wen, Deyao Li, Liqun Zhang, Hui Yang. "Abnormal InGaN growth behavior in indium-desorption regime in metalorgnic chemical vapor deposition", J. Cryst. Growth, 409 (2015).
- [15] Weiwei Hu, Shuming Zhang, Masao Ikeda, Yigang Chen, Jianping Liu, Meixin Feng, Deyao Li, Feng Zhang, Kun Zhou, Aiqin Tian and Hui Yang."A low resistivity n++-InGaN/p++-GaN polarization-induced tunnel junction". J. Phys. D: Appl. Phys. 49 (2016) 115103.
- [16] 专利: 田爱琴 刘建平等 用于 p-AlGaN 霍尔测试的欧姆接触层及其制备方法。申请号: 201610864320.0
- [17] 专利: 田爱琴 刘建平等 InGaN/GaN 量子阱激光器及其制作方法。申请号: 201610945995.8

- [18] 专利: 田爱琴 刘建平等 提高绿光或更长波长 InGaN 量子阱发光效率的方法及结构。 申请号: 201611153017.6
- [19] Aiqin Tian. The 11th international conference on nitride semiconductors (Poster), Beijing, China, 2015.
- [20] 会议: 田爱琴 刘建平,第十四届全国固体薄膜学术会议 (oral),贵州贵阳, 2014.08。
- [21] 会议: 田爱琴 刘建平, 第一届全国宽禁带半导体学术会议(Poster), 江苏苏州, 2015.11。
- [22] 会议: 田爱琴 刘建平, 第十四届全国 MOCVD 学术会议 (oral), 吉林延吉, 2016.08。

# 作者简历

田爱琴

性别:	女	出生年	月:	1989	年2,	月
籍贯 <b>:</b>	山东省菏泽市	学历:	博	÷		
电话:	+86 150-5156-6221					
邮箱:	aqtian2012@sinano.ac.cn	L				
地址:	苏州市工业园区独墅湖南	高教区若	F水	路 398	号	



### 教育背景

2011.9~2016.11 微电子学与固体电子学 中科院苏州纳米技术与纳米仿生研究所 硕博连读 2007.9~2011.6 应用物理学 烟台大学 学士

### 项目经历

国家重点研发计划 (2016YFB0401803) 国家自然科学基金 (61574160, 61334005) 江苏省科技支撑项目 (BE2013007)

## 个人技能

**金属有机化学气相沉积 MOCVD:**拥有三年外延生长氮化镓材料和维护使用 Aixtron 六片机 的经验。

材料表征分析:精通高分辨X衍射仪(HRXRD)、原子力显微镜(AFM)、光致发光(PL)、 电致发光(EL)、霍尔(Hall)等各种材料表征分析手段。

**半导体工艺:** 光刻、金属沉积、快速退火等半导体常用工艺。熟悉半导体激光器和 LED 的 基本工艺流程。

英语: CET6 (547 分)。能用英文进行工作汇报, 撰写文章。

**计算机水平:** C语言二级。能熟练试用 office 办公软件、origin 数据处理软件、crosslight 模 拟软件。

#### 主要获奖经历

中科院苏州纳米所五四青年学术交流会"所长奖"(2017年) 中国科学院大学三好学生(2015年) 苏州独墅湖奖学金(2012年) 山东省优秀毕业生(2011年) 学习优秀一等奖(2009年) 国家励志奖学金(2008年)