

材料、结构及工艺

蓝光波段高反射率 AlN/ GaN 分布布拉格反射镜的制作

吴超敏¹, 尚景智¹, 张保平^{1,2}, 余金中^{1,3}, 王启明^{1,3}

(厦门大学 1. 物理系, 半导体光子学研究中心; 2. 萨本栋微机电研究中心, 福建 厦门 361005;

3. 中国科学院半导体研究所 集成光电子学国家联合重点实验室, 北京 100083)

摘要: 采用金属有机物化学气相沉积方法制备了蓝光波段高反射率 AlN/ GaN 分布布拉格(DBR)反射镜。利用金相显微镜、扫描电子显微镜、原子力显微镜以及分光光度计等测量手段对样品的物理特性进行了分析表征。结果显示样品的表面有少量圆形台面结构和裂纹出现,但在其他区域,样品具有较为平整的表面。该样品在 462.5 nm 附近获得最大反射率 99.4%,表面均方根粗糙度小至 2.5 nm。分析表明,所得 DBR 达到了制备 GaN 基垂直腔面发射激光器的要求。

关键词: 金属有机物化学气相沉积; 分布布拉格反射镜; 高反射率; 氮化物

中图分类号: TN248.4 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-5868(2009)04-0555-03

Growth of High-reflectivity AlN/ GaN Distributed Bragg Reflectors in Blue RegionWU Chao-min¹, SHANG Jin-zhi¹, ZHANG Bao-ping^{1,2}, YU Jin-zhong^{1,3}, WANG Qi-ming^{1,3}

(1. Department of Physics and Semiconductor Photonics Research Center;

2. Pen-Tung Sah MEMS Research Center, Xiamen University, Xiamen 361005, CHN; 3. State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Science, Beijing 100083, CHN)

Abstract: One high-reflectivity AlN/ GaN distributed Bragg reflector (DBR) in blue region was grown with the method of metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD). Properties of the sample were analyzed by using scanning electron microscope (SEM), atomic force microscopy (AFM) and spectrophotometer. Except for the circular mesa structure and a few cracks observed on the surface, the sample showed a rather smooth surface. A peak reflectivity of 99.4% was observed around 462.5 nm and the surface roughness was as small as 2.5 nm. The properties of the DBR meet the requirements of GaN-based vertical cavity surface emitting lasers (VCSEL).

Key words: MOCVD; DBR; high-reflectivity; nitride

0 引言

由于其在通信、光信息处理等领域的广阔应用前景, GaN 基垂直腔面发射激光器(VCSEL)的研究受到了广泛关注^[1-3]。实现此种器件的一个重要条件就是高反射率反射镜的使用,而分布布拉格反射镜(DBR)是在半导体 VCSEL 中经常使用的一种反射镜。高反射率 DBR 无疑也是获得 GaN 基 VCSEL 的关键因素。根据 Honda 等人的研究,当

DBR 的最大反射率从 90% 升至 99% 时, VCSEL 的阈值电流密度会下降一个数量级^[4]。另外, DBR 应有一较大的阻带宽度, 这样在生长 GaN 基 VCSEL 结构时可以允许量子阱发光波段有更大的调整范围, 更易于实现激光激射。至今, 外延生长的高反射率 DBR, 如 GaN/ AlGaIn DBR, 已经在 GaN 基 VCSEL 中扮演了重要角色。由于 AlN 和 GaN 具有相对较高的折射率差, 故与 GaN/ AlGaIn DBR 相比, AlN/ GaN DBR 只需要较少的周期数就可获得较高的反射率和较大的阻带带宽。2008 年初, Lu 等人用这种 DBR 实现了电注入下 VCSEL 的连续

收稿日期: 2008-09-23.

基金项目: 国家“863”计划资助项目(2006AA03Z409).

激射^[5]。然而,由于 AlN 和 GaN 的 a -轴晶格常数分别为 0.3112 nm 和 0.3189 nm ,热膨胀系数分别为 $4.2 \times 10^{-6}\text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ 和 $5.59 \times 10^{-6}\text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$,所以,它们之间存在较大的晶格失配 ($\sim 2.4\%$) 和热膨胀系数差 ($\sim 25\%$)。因此,当 DBR 的周期数增加时会产生许多的位错和裂纹,严重影响反射率和阻带宽度。由此可见,生长高反射率和质量 AlN/GaN DBR 仍是一个尚待深入研究的课题。

本文通过调整 GaN 缓冲层厚度,采用金属有机物化学气相沉积 (MOCVD) 技术生长了蓝光波段高反射率 AlN/GaN DBR。利用光学显微镜、扫描电子显微镜 (SEM)、原子力显微镜 (AFM) 以及分光光度计等测量手段对样品的物理特性进行了分析表征。结果表明,样品表面有少量圆形台面结构和裂纹出现,但其他区域表面较为平整。AFM 测量结果显示样品在 $5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$ 的区域内的均方根粗糙度为 2.5 nm 。样品横断面的 SEM 测量结果显示样品具有良好的周期性结构。光学测量表明 DBR 的反射峰值为 462.5 nm ,反射率高达 99.4% 。

1 实验

采用低压 Thomas Swan MOCVD 系统在蓝宝石 (0001) 面衬底上制备 AlN/GaN DBR 样品。以三甲基铝、三甲基镓和氨气作为源气体。衬底先在 H_2 气氛下经 $1100\text{ }^{\circ}\text{C}$ 高温热处理 10 min ,然后将温度降至 $572\text{ }^{\circ}\text{C}$,在低温下淀积一层 25 nm 厚的低温 GaN 成核层,再将温度升至 $1135\text{ }^{\circ}\text{C}$,生长 $1.3\text{ }\mu\text{m}$ 的 GaN 缓冲层。然后,将生长温度调为 $1030\text{ }^{\circ}\text{C}$,在 N_2 气氛下交替生长 AlN 和 GaN 层制备 DBR。本研究设计 DBR 中心波长为 460 nm ,相应的 AlN 和 GaN 层厚度分别设为 50.1 nm 和 47.3 nm ,共生长 40 个周期。我们在保证较好的 GaN 缓冲层晶体质量和表面状况的前提下,将 GaN 缓冲层的厚度降低到 $1.3\text{ }\mu\text{m}$ 。理论计算表明,蓝宝石 (0001) 表面生长 GaN 时,GaN 受到 14% 的压应力。受该应力的影响,预计所得 GaN 缓冲层表面的面内晶格常数 (a -轴) 会小于块状晶体的值。

生长的 DBR 样品,利用 Olympus BX51M 金相显微镜观察其表面形貌,使用 Seiko SPA400 原子力显微镜 (AFM) 测量样品表面微区的粗糙度;利用 XL30 环境扫描电子显微镜 (SEM) 观察其截面;采用 Cary 5000 分光光度计测量 DBR 样品的反射谱。

2 结果和分析

利用金相显微镜,可观察到样品表面有少量裂纹,密度约为 2 mm^{-1} 。此外,还有一些圆形台面结构出现。图 1 为样品表面的显微镜照片,放大倍数为 50 倍。裂纹可能是由 DBR 结构生长过程中累积的应力释放所致,该应力源自 AlN 和 GaN 间较大的晶格失配和热膨胀系数差异。该样品表面裂纹密度少于 Schenk 等人从 21 周期 $\text{Al}_{0.39}\text{Ga}_{0.61}\text{N}/\text{GaN}$ DBR 所观察到的 100 mm^{-1} 的结果^[6],其原因可能是我们减少了 GaN 缓冲层厚度 (Schenk 等人采用的缓冲层大于 $3\text{ }\mu\text{m}$)。因为存在蓝宝石衬底对 GaN 缓冲层的背景压应力,采用小的 GaN 缓冲层厚度可以获得 a -轴晶格常数小的 GaN 缓冲层,进而降低其与 DBR 结构中首先生长的 AlN 层的晶格失配,从而达到减少裂纹的目的。

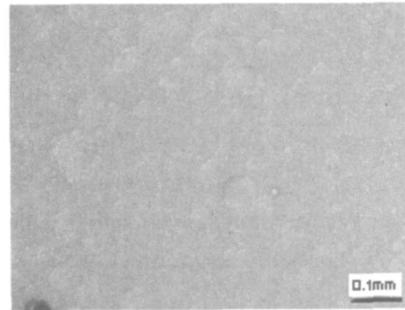


图 1 AlN/GaN 分布布拉格反射镜表面在光学显微镜下放大 50 倍的照片

为了研究圆形台面结构的成因,我们利用 AFM 扫描了样品的表面,采用轻敲模式,共观察到三种不同形貌的圆形台面结构:(a)类锥状圆台;(b)层状圆台;(c)完整圆台,如图 2。这些圆形台面结构可能起源于螺旋位错或混合线位错。由于螺旋位错周围结晶生长速度较快,首先形成以位错露头点为中心的锥形结构。随着生长厚度的进一步增加,部分位错露头点消失,圆台中心附近不再继续产生新的螺旋形生长台阶。由于样品表面水平生长速度高于垂直生长速度,随着厚度的增加,螺旋形生长台阶不断往外延展,逐步形成如图 2(a)-(c)所示的台面结构。

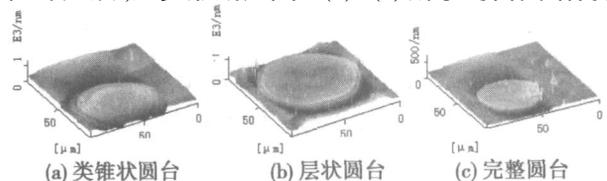


图 2 原子力显微镜下观察到的不同形状的圆形台面结构

图3是DBR结构的典型表面形貌照片,在 $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ 的面积内,样品的表面均方根粗糙度(RMS)为 2.5nm 。Yao等人曾将DBR中的GaN缓冲层厚度降至 $1\mu\text{m}$ 以获得无裂纹的表面^[7],但是其表面粗糙度($\sim 8\text{nm}$)比本文所得结果大很多,而粗糙的表面将不利于后续器件结构的生长。图4为DBR样品截面的SEM照片。图中亮条纹为GaN层,暗条纹为AlN层。从照片可以清楚地看到GaN缓冲层和DBR两部分结构。其中DBR结构两种材料的排列具有良好的周期性,每个周期厚度一致。表明本研究得到了周期性很好的DBR结构。

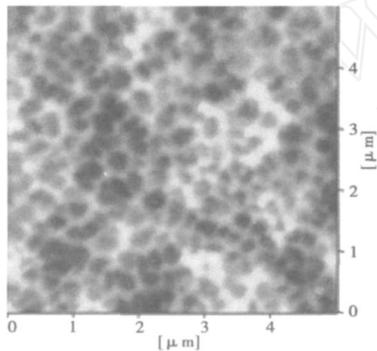


图3 原子力显微镜测量所得 AlN/GaN 分布布拉格反射镜表面形貌

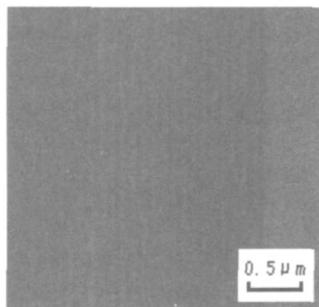


图4 AlN/GaN 分布布拉格反射镜横断面 SEM 照片

图5中实线为在近垂直情况下测得的反射谱,测量光斑直径为 0.4cm 。测得DBR的中心反射波长为 462.5nm ,最大反射率为 99.4% ,半高宽为 40nm ,高反带带宽(大于 97%)为 15nm 。与Feltin等人的40周期 $\text{Al}_{0.83}\text{In}_{0.17}\text{N}/\text{GaN}$ DBR相比^[8],在相同波段相同最大反射率的前提下,本样品具有更大的半高宽。此优点使得在生长GaN基VCSEL时,允许量子阱发光波段有更大的调整范围,进而更容易实现激射。较大的半高宽也表明了样品良好的结晶质量。Wang等人通过插入超晶格结构消除了AlN/GaN DBR的表面裂纹,获得了 $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ 面积内 3.5nm 的粗糙度,并且将其应用于GaN基

VCSEL结构中,实现了光泵与电注入条件下的激射^[5,9]。与之相比,本研究实现了相同的最大反射率,虽然表面有少量裂纹,但是在相同面积上的粗糙度更小,并且有相近的高反带带宽。而且,由于我们没有在DBR结构中插入超晶格,使得生长过程大幅度简化。另外,在Someya和Kao等人已经激射的VCSEL结构中,所应用的氮化物DBR的最大反射率均小于本文所得结果(分别为 98% 和 94%)^[11,10]。所以,从表面粗糙度和反射率方面考虑,本文所得的DBR可用于VCSEL器件的研制。

图5中点线为利用传输矩阵方法模拟的反射谱结果,计算中AlN和GaN厚度分别取为 50.1nm 和 47.3nm ,其折射率分别为 2.30 和 2.43 。中心波长的实验结果(462.5nm)与设计值(460nm)吻合较好。我们在进行模拟时,没有将材料对光的吸收因素考虑进去,因此模拟所得的高反带带宽要大于实验结果。同时,DBR中各层生长厚度的波动也会造成高反带带宽的下降,也是造成实验结果较小的原因。实验所得最大反射率和干涉条纹与理论模拟结果略有差异,可能来源于样品中的位错以及各层实际生长厚度与理想四分之一波长厚度的偏差。

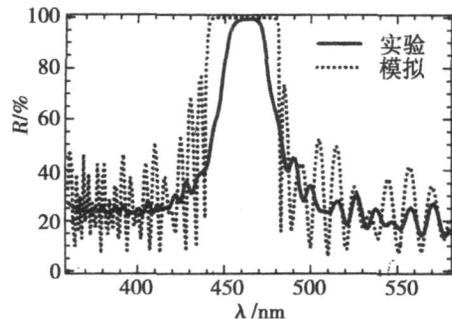


图5 AlN/ GaN 分布布拉格反射镜之反射谱的实验(实线)与模拟(点线)结果

3 结论

本文利用MOCVD系统制备了蓝光波段高反射率AlN/GaN DBR。其中心波长为 462.5nm ,最大反射率为 99.4% ,半高宽为 40nm ,高反带带宽(大于 97%)为 15nm 。样品表面虽有少量圆形台面结构和裂纹,但其他区域表面粗糙度低至 2.5nm 。横断面SEM照片显示样品具有良好的周期性结构。从表面粗糙度和反射率两方面考虑,本文所得的DBR可以应用于GaN基VCSEL的研制。

(下转第561页)

以看出:薄膜的粗糙度随着沉积温度和微波功率的增加而降低。制备的氮化硅薄膜最低的粗糙度为0.89 nm,薄膜具有较高的表面质量。

参考文献:

- [1] Yoo J, Dhungel S K, Yi J. Properties of plasma enhanced chemical vapor deposited silicon nitride for the application in multicrystalline silicon solar cells[J]. Thin Solid Films, 2007, 515:5000-5003.
- [2] Vogl B, Slade A M, Pritchard S C. The use of silicon nitride in buried contact solar cells[J]. Solar Energy Materials & Solar Cells, 2001, 66:17-25.
- [3] 杨辉, 丁新更, 孟祥森, 等. APCVD 制备氮化硅薄膜的微结构[J]. 功能材料, 2000, 31(6):635-636.
- [4] 王晓泉, 杨德仁, 席珍强. 多晶硅太阳能电池用 SiN 薄膜的研究进展[J]. 材料导报, 2002, 16(3):23-25.
- [5] 葛其明, 刘学建, 黄智勇, 等. LPCVD 氮化硅薄膜的化学组成[J]. 材料科学与工程学报, 2006, 24(2):192-195.
- [6] Beshkov G, Lei S. IR and Raman absorption spectroscopic studies of APCVD, LPCVD and PECVD thin SiN films[J]. Vacuum, 2003, 69:301-305.

- [7] Sah R E, Rinner F, Baumann H, et al. Silicon nitride films deposited using ECR-PECVD technique for coating InGaAlAs high power laser facets[J]. J. of Electrochemical Society, 2003, 150(7):F129-F133.
- [8] Xu Y, Gu B, Qin F W. Electron cyclotron resonance plasma enhanced metalorganic chemical vapor deposition system with monitoring in situ for epitaxial growth of group- nitrides[J]. J. of Vacuum Science & Technology A, 2004, 22(2):302-308.
- [9] Kessels W M M, van Assche F J H, et al. The growth kinetics of silicon nitride deposited from the SiH₄-N₂ reactant mixture in a remote plasma[J]. J. of Non-Crystalline Solids, 2004, 338/340:37-41.
- [10] Nagel H, Aberle A G. Optimised antireflection coatings for planar silicon solar cells using remote PECVD silicon nitride and porous silicon dioxide[J]. Prog. Photovolt: Res. Appl., 1999, 7:245-260.

作者简介:

张广英(1983 -),女,山东潍坊人,硕士研究生,主要从事太阳能电池基础性研究。

E-mail: zhangguangying2005@163.com

(上接第 557 页)

参考文献:

- [1] Someya T, Werner R, Forchel A, et al. Room-temperature lasing at blue wavelengths in gallium nitride microcavities [J]. Science, 1999, 285:1905-1906.
- [2] Tawara T, Gotoh H, Akasaka T, et al. Low-threshold lasing of InGaN vertical-cavity surface-emitting lasers with dielectric distributed Bragg reflectors[J]. Appl. Phys. Lett., 2003, 83(5):830-832.
- [3] Song Y K, Zhou H, Diagne M, et al. A quasicontinuous wave, optically pumped violet vertical cavity surface emitting laser[J]. Appl. Phys. Lett., 2000, 76(13):1662-1664.
- [4] Zhou H, Diagne M, Makarona E, et al. Near ultraviolet optically pumped vertical cavity laser [J]. Electron. Lett., 2000, 36(21):1777-1779.
- [5] Lu T C, Kao C C, Kuo H C, et al. CW lasing of current injection blue GaN-based vertical cavity surface emitting laser[J]. Appl. Phys. Lett., 2008, 92(14):1411021-1411023.
- [6] Schenk H P D, Mierry P de, Vennegues P, et al. In situ growth monitoring of distributed GaN AlGaIn Bragg

reflectors by metalorganic vapor phase epitaxy [J]. Appl. Phys. Lett., 2002, 80(2):174-176.

- [7] Yao H H, Lin C F, Kuo H C, et al. MOCVD growth of AlN/ GaN DBR structures under various ambient conditions[J]. J. Crystal Growth, 2004, 262:151-156.
- [8] Feltin E, Butte R, Carlin J F, et al. Lattice-matched distributed Bragg reflectors for nitride-based vertical cavity surface emitting lasers [J]. Electron. Lett., 2005, 41(2):94-95.
- [9] Wang S C, Lu T C, Kao C C, et al. Optically pumped GaN-based vertical cavity surface emitting lasers: technology and characteristics [J]. Jpn. J. Appl. Phys., 2007, 46(8B):5397-5407.
- [10] Kao C C, Peng Y C, Yao H H, et al. Fabrication and performance of blue GaN-based vertical-cavity surface emitting laser employing AlN/ GaN and Ta₂O₅/ SiO₂ distributed Bragg reflector [J]. Appl. Phys. Lett., 2005, 87(8):0811051-0811053.

作者简介:

吴超敏(1985 -),男,硕士生,主要从事氮化镓材料及器件研究。

E-mail: chaominwu@tom.com