

非故意掺杂 n 型 GaN 的负持续光电导现象

苏志国^{1,2,†} 许金通¹ 陈俊¹ 李向阳¹ 刘骥² 赵德刚³

(1 中国科学院上海技术物理研究所 传感技术国家重点实验室, 上海 200083)

(2 山东大学信息科学与工程学院, 济南 250100)

(3 中国科学院半导体研究所, 北京 100083)

摘要: 研究了 MOCVD 方法制备的非故意掺杂 n 型 GaN 薄膜的持续光电导现象. 实验发现样品的光电导与入射光强有密切的关系, 当入射光强由弱到强变化时, 样品会依次出现正常持续光电导(PPC)、负光电导(NPC)和负持续光电导(NPPC)现象. 据知, 这是首次在一个样品中仅仅通过改变入射光强就可以依次产生以上现象的实验报道. 通过系统的实验分析和理论研究认为, 该现象形成的主要原因是材料中深能级电子陷阱和空穴陷阱共同作用的结果.

关键词: GaN; 持续光电导; 负光电导; 负持续光电导

PACC: 7280E; 7240

中图分类号: TN304.2

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)06-0878-05

1 引言

GaN 及其 III 族氮化物是最有前景的半导体材料之一^[1~16]. 因具有高温稳定性和高饱和迁移率, 可用于制作从可见到紫外波段的发光、探测器件以及高温下使用的大功率电子器件^[1,2], 使其拥有广阔的市场前景并且得到了研究人员的广泛关注. GaN 材料通常采用异质外延生长, 衬底与薄膜间的晶格失配和热失配会导致高的缺陷密度. 持续光电导(PPC)就是缺陷亚稳态性质的一种重要表现, 它对 FET 器件以及紫外探测器的灵敏度、噪声特性以及响应速度都具有负面影响. 许多研究人员对 GaN 持续光电导现象进行了研究^[3~16], 其研究途径包括光致发光(PL)谱、光学吸收(OA)、光学淬灭(OQ)等, 然而所得到的结论并不一致. 一部分人认为该现象主要是由材料中的空穴陷阱引起的^[5,8,11,14,15]; 也有人认为是电子陷阱起主要作用^[16]; 还有人认为是二者共同作用的结果^[3,7,10,13].

通过实验, 作者发现非故意掺杂的 n 型 GaN 的持续光电导与入射光强有着密切的关系. 随着入射光强的增大, 光电导曲线会由正常光电导(PC)和持续光电导逐渐过渡到负光电导(NPC)和负持续光电导(NPPC), 并且光强越强, 该现象就越明显. 对于 NPC 和 NPPC 现象, Salis 等人^[10]与 Chung 等人^[3]也曾进行过研究和报道. 其中 Sails 等人通过理论计算、参数拟合, 在理论上得出了大的照射光强下

会有 NPC 和 NPPC 现象产生, 但是后来未见相关的实验报道. 据我们所知, 这是首次在一个样品中仅仅通过改变入射光强就可以依次产生以上现象的实验报道. 我们认为该现象产生的主要原因是由于光生载流子被深能级电子陷阱和空穴陷阱竞争俘获和复合的结果.

2 实验

样品为非故意掺杂 n 型 GaN 薄膜材料, 材料生长及样品沉积过程在文献[11]中已有详细报道. 我们采用了常规 GaN 光导器件工艺制备该器件, 用电子束热蒸发方式制备电极, 先后生长 Ti/Al/Ni/Au, 厚度分别为 30nm/90nm/50nm/20nm; 650℃ 快速热退火 1min; Ar 离子溅射生长 180nm 的 Au 加厚电极后, *I-V* 测试表明电极处形成良好的欧姆接触.

使用杜瓦瓶封装, 进行光电导测试. 500W 可调氙灯充当光源, 使用 Keithley SourceMeter 2400 型源表作为电压源和电流数据采集工具, 其准确度为 0.035%, Labview 程序自动采集数据, 最小取样间隔为 0.1s.

3 结果与讨论

室温 Hall 测量表明, 本文研究的 GaN 薄膜样品的电子浓度为 $2.69 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 电子迁移率为

† 通信作者. Email: suzhiguo@mail.sdu.edu.cn

2006-11-16 收到, 2007-01-16 定稿

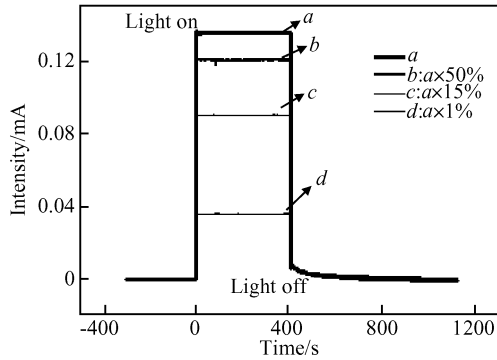


图 1 325nm 激光照射下不同入射光强的光电导响应曲线
Fig. 1 PPC of different excitation intensities at 325nm

$128\text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$. 实验的环境温度保持在 295K, 样品的暗电阻为 $2.67\text{k}\Omega$. 测量暗电流前, 装有样品的杜瓦瓶窗口用黑胶布密封并静置 48h 以上.

对样品的室温 PL 谱进行了测试, 测试采用波长为 325nm, 功率为 60mW 的 He-Cd 激光器. 该样品光致发光的峰值为 362nm, 带边峰的半高宽为 5.7nm, 在 530~580nm (能量在 2.15~2.34eV) 处有明显的黄绿光发射, 主峰位于 560nm 处, 其发射强度为带边峰发射的 107%. 据文献[3,5]报道, 非故意掺杂 GaN 的黄绿光发射(YL)和光电导衰减有着必然的联系, 并且认为两者有共同的起因. 而本实验采用的样品, 黄绿光发射相对较强, 表明该样品中深能级缺陷的浓度较高.

在对样品进行光电导测试时, 样品的温度保持在室温(295K), 器件两端加 2V 偏压. 为使不同的光照强度下测得的数据有相同的初始条件, 每次测试后, 通过 Xu 等人^[11]报道的方法, 利用高电压脉冲来加速器件光电导的衰减, 并于黑暗环境中静置 2h 以上.

实验中首先使用 325nm 的 He-Cd 激光器作为激发光源, 利用 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 外延片作为衰减片来改变入射光的光强, 通过对 $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 外延片的透射光谱的测试, 使用不同透过率的衰减片调谐照射到样品处的光强. 样品的紫外光电导响应结果如图 1 所示, 曲线 a, b, c 和 d 分别是照射光强为 $570\text{mW}/\text{cm}^2$ 和衰减 50%, 85% 和 99% 时的光电导响应. 当紫外光入射时, 器件的响应极快, 光电流很快就达到了最高值并保持稳定, 在上升段没有发现弛豫现象, 且上升幅度随紫外光入射强度的增加而增大, 但是不成正比; 当紫外光持续照射样品时, 光电导保持稳定状态; 当关掉紫外光时, 样品出现了较大幅度的持续光电导现象.

根据 Cai 等人^[13]的研究结果, 当激发光越强时, 样品中的空穴陷阱被填满的时间就会越短, 光响

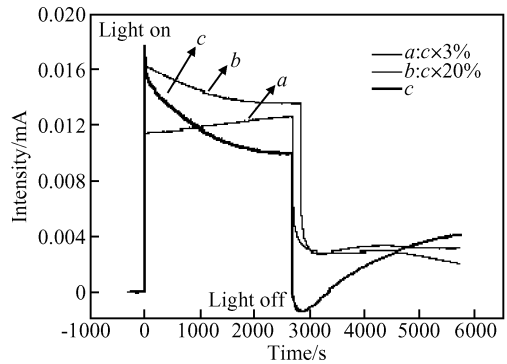


图 2 加衰减片后不同入射光强下的光电导响应曲线
Fig. 2 PPC of different excitation intensities using GaN film as attenuator

应电流也会越大. 由于我们实验中使用的入射光强都较大, 其中曲线 d 最小, 大约是 $6\text{mW}/\text{cm}^2$. 较强的人射光强使得空穴陷阱在很短时间内被填满, 而空穴陷阱被填满的过程也就是光响应电流达到最大值的过程, 所以光电流在短时间即达到极大值. 当去掉紫外激光照射时, 空穴陷阱中的空穴被缓慢释放, 这导致了持续光电导.

为了研究 GaN 基光导器件中常见的长波淬灭现象, 实验中还对入射光主要为长波时的情况进行了研究. 实验使用氙灯作为光源, 利用 GaN 基薄膜外延片作为衰减片, 改变光源和样品的距离调谐照射到样品上光强的大小, 使用紫外辐照计 UV-A 的 365nm 波长测试样品附近处光强, 使其相对光强分别为 100%, 20% 和 3%. GaN 衰减片的作用是滤掉低于材料吸收边的紫外光, 使得短波被吸收而长波透过. 该材料的透射光谱显示, 材料的吸收边在 365nm 附近, 波长低于 350nm 的紫外光的透过率低于 3%, 波长大于 380nm 的光的透过率超过 40%.

加衰减片时测得样品的光电导随光强变化的情况如图 2 所示, 图中的电流值为加光照后的总电流值减去初始暗电流值后的结果. 其光响应电流仍表现为随入射光强的增大而增大. 图 2 中, 曲线 a, b 和 c 依次为照射光强由弱变强时的光电导响应曲线. 其中, 曲线 a 的入射光强最小, 其光电导响应表现为常见的持续光电导; 但随着入射光强的增大, 光电导曲线发生了明显的变化(依次为 b 和 c, 且曲线 c 的最大光响应电流为 0.018mA). 在打开光源时, 样品的光响应电流在很短时间达到极大值, 随后会逐渐减小, 经过一个较长的恢复时间后才会到达稳态, 该现象被称为负光电导现象; 在关闭光源时, 电流又会在短时间内降到极小值, 然后再逐渐增大, 经过数千秒甚至更长时间后才能恢复到初始状态时的暗电流的值, 即负持续光电导现象. 根据曲线 b 和 c 可知, 照射光强越大, NPC 和 NPPC 现象就越明显.

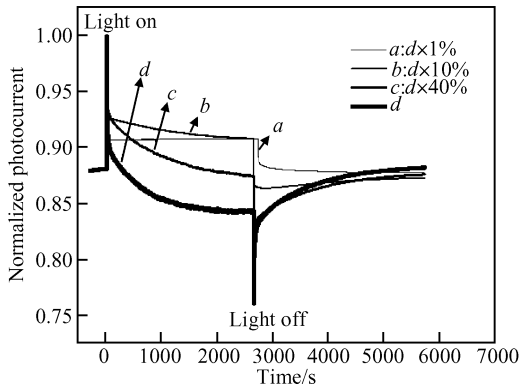


图 3 不加衰减片时不同强度氙灯光照下的光电导响应曲线
Fig.3 PPC of different excitation intensities of xenon lamp

为了深入理解以上的实验现象,作者还做了以下的实验:仍然采用氙灯作为光源,去掉图 2 中所采用的衰减片(即 GaN 基外延片),通过调节光源和样品的距离来改变照射到样品上的光强大小.这样,与图 2 相比,入射光中所包含的紫外光成分将大大增加.此时不同强度下样品的光电导响应曲线如图 3 所示.图 3 中曲线 *a*, *b*, *c* 和 *d* 分别代表入射光由弱变强时的光电导响应.其中曲线 *d* 的入射光强最强,且其最大光响应电流为 0.84mA,曲线 *a*, *b* 和 *c* 分别为曲线 *d* 入射光强的 1%, 10% 和 40%.从图 3 中可以看出,随光强的增大, NPC 和 NPPC 现象越来越明显,而曲线 *d* 甚至在一直保持光照射的情况下,其响应电流的值会低于暗电流的值,这在图 2 中未曾观察到.

对 n 型 GaN 光电导弛豫特性微观机制的解释目前主要有以下三种:(1) Qiu 等人^[14]认为主要是空穴陷阱的作用. n 型 GaN 中,导带和价带间存在很高密度的深能级缺陷态,有些缺陷态是空穴俘获中心.光激发产生的非平衡空穴会迅速被这些空穴俘获中心所俘获.被俘获空穴需要经过一段时间后,才会从陷阱中心重新被释放出来与导带电子复合.因此,光电导弛豫时间决定于空穴弛豫时间.在随后的研究中, Qiu 等人^[15]又指出,空穴陷阱中心主要是 Ga 空位, Ga 空位带三价负电,俘获一个空穴后仍带二价负电,对电子仍是排斥的,所以不会俘获电子.(2) 陈志忠等人^[16]认为主要是因为电子陷阱的作用,而不是空穴陷阱.因为如果空穴陷阱起作用的话,载流子复合就在导带电子和价带空穴间进行,载流子寿命将很长,但据报道 GaN 载流子本征寿命只有皮秒量级.(3) Cai^[13]和 Salis 等人^[10]又认为该现象应该归功于电子陷阱和空穴陷阱共同作用的结果,与电子陷阱相比,空穴陷阱有大的反应截面,所以填满空穴陷阱要比填满电子陷阱快很多;并且激

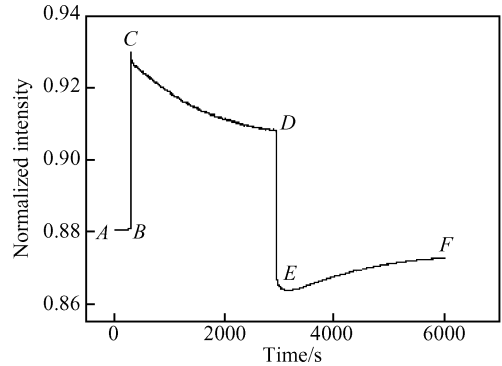


图 4 典型的 NPC 与 NPPC 现象
Fig.4 Typical phenomenon of NPC and NPPC

发的紫外光越强,空穴陷阱被填满的时间就会越短,光响应电流也会越大.光电导弛豫的程度和时间是由空穴陷阱和电子陷阱的浓度所决定的.

我们的实验结果表明:在紫外光照射时(325nm 激光)该器件的光电导响应表现为常见的持续光电导,而当有长波参与时,随着光强的增大,会出现显著的 NPC 和 NPPC 现象.我们认为该现象产生的主要原因是由于长波的参与,使得深能级缺陷的作用显著.一方面激发了价带电子到电子陷阱处,被电子陷阱所俘获对光电流造成影响^[8];另一方面使空穴陷阱释放俘获的空穴到价带^[7,13],与光生电子复合对光电流造成影响.当仅有紫外光照射时,光激发产生的光生空穴将材料中的空穴陷阱填满时,光电流达到极大^[10],此时空穴陷阱对空穴的释放主要依靠热激发,空穴的释放和俘获将达到动态平衡;而对于电子陷阱而言,由于电子是多数载流子,此时的电子浓度与原来相比并没有发生数量级的改变,且电子陷阱的俘获截面很小^[8,13],因此电子陷阱的作用非常弱,光电流在到达极大值后保持稳定.当光照停止时,空穴陷阱和电子陷阱开始释放俘获的空穴和电子,但此时与有长波作用时相比,被空穴占据的空穴陷阱浓度要远高于长波参与时的情况,因此在此过程空穴陷阱的贡献占主要作用,所以只有紫外光照射时没有产生 NPC 和 NPPC 现象.

为了对 NPC 和 NPPC 的过程有更具体的理解,以图 3 中的曲线 *b* 为例(见图 4).在图 4 中, AB 段没有光照; B 点时刻开始照射样品,由于空穴陷阱具有大的反应截面,且入射光较强,空穴陷阱将在较短时间俘获足够多的光生空穴,根据电中性原理,这将导致器件内的非平衡电子浓度突然增加,光电流突然增大,在 C 点时达到极大值.在 BC 段,长波光激发空穴陷阱中的空穴跃迁至价带^[7,13],而到达 C 点时刻以前,由于空穴陷阱还未完全被空穴填满,所以从空穴陷阱中释放出来的空穴又会很快被空穴陷

阱所俘获,因此长波光的淬灭作用^[7,8]在 BC 没有显示出来.而在 C 点时刻,空穴陷阱中俘获的空穴浓度达到极大值.在 CD 段,紫外光和长波光同时照射样品表面,长波光的激发使空穴陷阱释放出俘获的空穴至价带后,由于未填满的空穴陷阱的浓度较低,这部分空穴与导带电子复合的数量大大增加,这将导致光电导减小.由于电子陷阱的存在^[3,13],在紫外光和长波光同时照射阶段(CD 段),会有一部分价带电子被长波光激发至电子陷阱所在的深能级位置,并为电子陷阱所俘获^[8].在 D 点时刻,当去掉光照后,空穴陷阱中的空穴将被释放,并与导带电子复合,由于空穴陷阱的反应截面较大^[13],释放速度快,这将导致光电导的突然减少.但是电子陷阱中的电子会缓慢释放(由于它们具有较小的反应截面),而此时材料体内非平衡电子浓度已经很低,这将导致光电导又会缓慢增大,即出现 NPPC 现象^[3].

综上所述,PPC,NPC 以及 NPPC 现象的产生是由于空穴陷阱和电子陷阱具有不同的反应截面,以及长波光对空穴陷阱中的空穴和价带中的电子的激发作用而导致的.

对于图 3 中曲线 d 在保持光一直照射时,光电流值会低于暗电流值的情形,物理起因目前还不清楚.根据 Chung 等人^[3]的说法,可能是由于光生载流子诱生了在高缺陷浓度的界面层附近处于亚稳态的电子陷阱,增加了电子陷阱的浓度,使其俘获电子的能力增强导致的.

Salis 等人^[10]引入了一种关于外延生长的 GaN 薄膜光电导的动力学模型来研究 GaN 基光导器件的光电导现象.他们理论预测,当改变 $\Phi\sigma_c$ (入射光子流密度与光生载流子的光学截面之积)达到 10^4 量级时,会产生 NPC 和 NPPC 现象.其结果与本文实验上所得的实际结果是一致的.

4 结论

光生载流子的产生、复合和俘获与材料中的深能级缺陷有着密切关系,光电导是研究半导体材料中深能级缺陷和能带结构的有力手段之一.本文通过实验发现,非故意掺杂 n 型 GaN 的光电导与入射光的光强和入射波长有着密切的关系,并且当有紫外光和长波光同时参与光电导时,随着光强增大会依次出现负光电导和负持续光电导现象.我们认为产生该现象的主要原因,首先是材料中深能级缺陷的空穴陷阱和电子陷阱对光生载流子的俘获和复合引起的;其次还因为空穴陷阱相对于电子陷阱而言具有较大的俘获截面.

致谢 感谢中国科学院上海技术物理研究所红外物

理国家重点实验室的李志锋研究员在 PL 谱测试和 325nm 激光测试中给予的帮助;感谢同事邱惠国、朱龙源、张燕、张红妹、乔辉、曹光明、孔令才、龚玮等人在芯片流片和测试方面提供的帮助.

参考文献

- [1] Nakamura S, Mukai T, Senoh M. Candela-class high-brightness InGaN/AlGaIn double-heterostructure blue-light-emitting diodes. *Appl Phys Lett*, 1994, 64:1687
- [2] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S I, et al. InGaIn/GaN/AlGaIn-based laser diodes with modulation-doped strained-layer superlattices grown on an epitaxially laterally overgrown GaN substrate. *Appl Phys Lett*, 1998, 72:211
- [3] Chung S J, Cha O H, Kim Y S, et al. Yellow luminescence and persistent photoconductivity of undoped n-type GaN. *J Appl Phys*, 2001, 89(10):5454
- [4] Chen H M, Chen Y F, Lee M C, et al. Persistent photoconductivity in n-type GaN. *J Appl Phys*, 1997, 82(2):899
- [5] Wang Lianshan, Liu Xianglin, Yue Guozhen, et al. Persistent photoconductivity in n-GaN. *Chinese Journal of Semiconductors*, 1999, 20(5):371 (in Chinese) [汪连山, 刘祥林, 岳国珍, 等. N 型 GaN 的持续光电导. *半导体学报*, 1999, 20(5):371]
- [6] Lai Tianshu, Lin Weizhu, Mo Dang. Determination of yellow photoluminescence model in undoped GaN. *Acta Physica Sinica*, 2002, 51(05):1149 (in Chinese) [赖天树, 林位株, 莫党. 非掺杂 GaN 的黄光发射模型确定. *物理学报*, 2002, 51(05):1149]
- [7] Ursaki V V, Tiginyanu I M, Ricci P C, et al. Persistent photoconductivity and optical quenching of photocurrent in GaN layers under dual excitation. *J Appl Phys*, 2003, 94(6):3875
- [8] Li Na, Zhao Degang, Liu zongshun, et al. Optical quenching of persistent photoconductivity in GaN epilayer. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2005, 26(2):304 (in Chinese) [李娜, 赵德刚, 刘宗顺, 等. GaN 外延材料中持续光电导的光淬灭. *半导体学报*, 2005, 26(2):304]
- [9] Binet F, Duboz J Y, Rosencher E, et al. Mechanisms of recombination in GaN photodetectors. *Appl Phys Lett*, 1996, 69(9):1202
- [10] Salis M, Anedda A, Quarati F, et al. Photocurrent in epitaxial GaN. *J Appl Phys*, 2005, 97:033709
- [11] Xu Jintong, You Da, Tang Yingwen, et al. Electric-field effects on persistent photoconductivity in undoped n-type epitaxial GaN. *Appl Phys Lett*, 2006, 88(7):072106
- [12] Hirsch M T, Wolk J A, Walukiewicz W, et al. Persistent photoconductivity in n-type GaN. *Appl Phys Lett*, 1997, 71(8):1098
- [13] Cai S, Parish G, Dell J M, et al. Contribution of hole trap to persistent photoconductivity in n-type GaN. *J Appl Phys*, 2004, 96(2):1019
- [14] Qiu C H, Hoggatt C, Melton W, et al. Study of defect states in GaN films by photoconductivity measurement. *Appl Phys Lett*, 1995, 66(20):2712
- [15] Qiu C H, Pankove J I. Deep levels and persistent photoconductivity in GaN thin films. *Appl Phys Lett*, 1997, 70(15):1983
- [16] Chen Zhizhong, Shen Bo, Yang Kai, et al. Transient photo-

conductivity of GaN thin film on sapphire substrate. Chinese
Journal of Semiconductors, 1999, 20(1): 62 (in Chinese) [陈

志忠, 沈波, 杨凯, 等. α -Al₂O₃ 衬底上 GaN 膜瞬态光电导性
质研究. 半导体学报, 1999, 20(1): 62]

Negative Persistent Photoconductivity in Unintentionally Doped n-Type GaN

Su Zhiguo^{1,2,†}, Xu Jintong¹, Chen Jun¹, Li Xiangyang¹, Liu Ji², and Zhao Degang³

(1 *State Key Laboratories of Transducer Technology, Shanghai Institute of Technical Physics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China*)

(2 *School of Information Science and Engineering, Shandong University, Jinan 250100, China*)

(3 *Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

Abstract: The persistent photoconductivity effect in unintentionally doped n-GaN grown by metal organic chemical vapor deposition (MOCVD) is presented. The photoconductivity build-up and its decay behavior with different excitation intensities and different wavelength ranges are observed. The experiment shows persistent photocurrent (PPC), negative photocurrent (NPC), and negative persistent photocurrent (NPPC) trends as the excitation intensity is changed from low to high when the excitation light includes wavelengths larger than the absorption edge of GaN. It is believed that the phenomenon is ruled by competition between capture and release photo-generated electrons and holes by deep electron traps and deep hole traps, respectively.

Key words: GaN; persistent photoconductivity; PPC; NPPC

PACC: 7280E; 7240

Article ID: 0253-4177(2007)06-0878-05

† Corresponding author. Email: suzhiguo@mail.sdu.edu.cn

Received 16 November 2006, revised manuscript received 16 January 2007