

MOCVD 制备 AlGa_N 基多波段布拉格反射镜*

刘斌¹ 张荣^{1,†} 谢自力¹ 姬小利¹ 李亮¹ 周建军¹ 江若琏¹ 韩平¹
郑有焯¹ 郑建国² 龚海梅³

(1 南京大学物理系 江苏省光电信息功能材料重点实验室, 南京 210093)

(2 美国西北大学材料工程系, 美国)

(3 中国科学院上海技术物理研究所, 上海 200083)

摘要: 利用金属有机物化学气相沉积系统(MOCVD)制备了 AlGa_N 基多波段布拉格反射镜. 多个布拉格反射镜的工作波长覆盖从蓝绿光至紫外范围, 分别由多周期的双层结构 GaN/AlN, Al_{0.3}Ga_{0.7}N/AlN, Al_{0.5}Ga_{0.5}N/AlN 组成. 这些多周期光学结构都生长在 GaN 支撑层上. AFM 研究发现, 这些布拉格反射镜具有平整光滑的表面, 其粗糙度小于 1nm; X 射线衍射谱和截面透射电镜图片表明它们具有完整的周期重复性和清晰的界面. 利用可见-紫外光谱仪研究这些布拉格反射镜的反射谱, 发现反射率和半峰宽不仅与周期数有关也与两种材料的折射率系数差有关.

关键词: 金属有机物化学气相沉积; 布拉格反射镜; 反射率

PACC: 7280E; 8115H

中图分类号: TN304.2

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)S0-0492-04

1 引言

随着三族氮化物(AlN, GaN, InN)在蓝绿光和紫外光电子器件领域的广泛应用, 人们采用垂直共振腔结构来提高器件的量子效率^[1,2]. 高反射率的 GaN 基分布式布拉格反射镜(distributed Bragg reflectors, DBRs)是垂直共振腔的重要组成部分和提高量子效率的关键结构, 因此得到了广泛研究. AlGa_N 基分布式布拉格反射镜结构是由四分之一波长的 GaN/AlN, AlGa_N/AlN 以及 AlGa_N/GaN 等双层周期重叠组成^[3-5]. 制备高反射率的 AlGa_N 基反射镜具有较大的难度, 原因在于 AlN 与 GaN 之间的折射率系数差较小而晶格失配却很大(4.2%)^[6]. 低折射率系数差使 AlGa_N 基反射镜需要较多的周期才能达到较高的反射率, 而大晶格失配决定了这种多周期光学结构中存在大量的应力, 容易形成位错(dislocations)和裂纹(cracks)^[7].

本文研究了利用金属有机物化学气相沉积系统(MOCVD)制备的 AlGa_N 基多波段布拉格反射镜. 多个布拉格反射镜的工作波长覆盖从蓝绿光至紫外范围, 由多周期的双层 AlN/GaN, AlGa_N/AlN 组

成. AFM 研究发现这些布拉格反射镜具有平整光滑的表面; X 射线衍射和截面扫描电镜图表明它们具有完整的周期重复性和清晰的界面; 最后利用可见-紫外光谱仪测量了它们的中心反射波长、半峰宽和反射率.

2 实验

利用光学传输矩阵方法设计了不同反射中心波长和不同双层材料结构的布拉格反射镜^[8], 其结构如图 1 所示. 结构 1 是由 GaN/AlN 双层材料组成, 8 个周期, 厚度为 54nm/62nm, 它工作在蓝绿光波段; 结构 2 是由 Al_{0.3}Ga_{0.7}N/AlN 双层组成, 30 个周期, 厚度为 34nm/40nm, 它工作在紫外 UV-B 波段, 中心波长 330nm; 结构 3 是由 Al_{0.5}Ga_{0.5}N/AlN 双层组成, 15 个周期, 厚度为 30nm/33nm, 它工作在紫外 UV-C 波段, 中心波长 260nm. 采用商用低压 MOCVD 在 50mm 蓝宝石(0001)上生长这些反射镜结构. III 族有机 Ga 源和 Al 源分别采用三甲基镓(TMGa)和三甲基铝(TMAI), 用 H₂ 作为载气, V 族反应气采用氨气(NH₃). 首先, 在 1150℃ 下用 H₂ 清洗蓝宝石表面, 然后采用标准的两步法生长高质

* 国家重点基础研究发展规划(批准号:2006CB6049), 国家自然科学基金(批准号:6039072, 60476030, 60421003, 60676057), 教育部重大项目(批准号:10416), 高等学校博士学科点专项科研基金(批准号:20050284004), 江苏省自然科学基金(批准号: BK2005210, BK2006126), 江苏省高等学校研究生创新工程基金和南京大学研究生科研创新基金资助项目

† 通信作者. Email: rzhang@nju.edu.cn

2006-11-30 收到, 2006-12-08 定稿

量 GaN 支撑层. GaN 生长结束后, 将反应腔温度保持在 1100℃, 压力为 13.3kPa, 进行反射镜结构 (GaN/AlN, AlGa_{0.7}N/AlN) 的生长, 周期和各层生长厚度按照设计要求. 生长速率和 AlGa_{0.7}N 中 Al 组分由相同条件下的 GaN, AlN 和 AlGa_{0.7}N 单层薄膜分

析测量得到. 整个生长过程用原位光学干涉仪监控, 可以观察到由薄膜厚度变化引起的干涉条纹. 50mm 外延片透明均匀, 用光学显微镜测量这些反射镜的表面几乎没有观察到裂纹.



图 1 三种工作在不同波段的布拉格反射镜的结构示意图

Fig. 1 Schematic illustration of three types DBRs working at different wavelength regions

利用 DI 公司 Nanoscope IIIa 型原子力显微镜 (AFM) 测量了这些反射镜的表面形貌. Panalytical X'Pert MRD 型高分辨 X 射线衍射仪对这些周期结构进行了测量. 利用日立公司 HF-2000 型场发射高分辨透射电镜分析了样品的截面. 在室温下, 利用 Shimadzu UV2201 紫外可见分光计测量了这些布拉格反射镜的反射谱.

3 结果与讨论

图 2 是结构 2 Al_{0.3}Ga_{0.7}N/AlN 反射镜的表面形貌, AFM 采用接触模式 (contact mode) 测量, 范围为 5μm × 5μm. AFM 图像显示反射镜表面平整, 具有明显的二维生长台阶流, 粗糙度 (RMS) 仅为

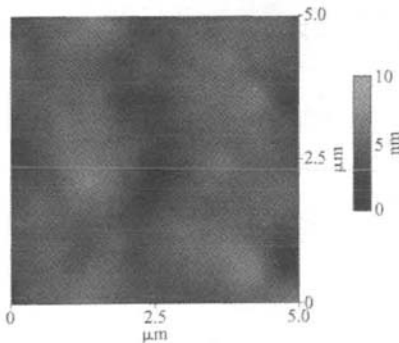


图 2 布拉格反射镜结构的表面形貌图 (结构 2)
Fig. 2 Surface morphology of S2 DBRs

0.682nm, 观察到的表面腐蚀坑密度为 $2.5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. 得到这样高质量的布拉格反射镜结构材料取决于两个关键因素: 其一, 必须采用适当的反应腔压力和 V/III 比, 抑制 AlGa_{0.7}N 基材料生长过程中 Al 原子的寄生反应^[9]; 其二, 生长在高质量 GaN 支撑层上的周期结构中各 AlN 层起着调节应力的作用. 由于 AlGa_{0.7}N (AlN) 的 a 轴晶格常数比 GaN 小, 所以生长在 GaN 上的 AlGa_{0.7}N (AlN) 层承受张应力, 这是产生裂纹的原因之一. 而我们的反射镜结构中弛豫的 AlN 层使随后生长的 AlGa_{0.7}N 层承受压应力, 因此调制了应力分布, 从而抑制了裂纹的生成. 同时, GaN 支撑层为反射镜结构提供了平整的基底, 因此可得到光滑无裂纹的样品表面.

图 3 显示了结构 2 的 Al_{0.3}Ga_{0.7}N/AlN 反射镜的 X 射线衍射谱. 首先, 可以观察到很强的 GaN (0002) 衍射峰, 这说明 GaN 支撑层的质量很高. 其

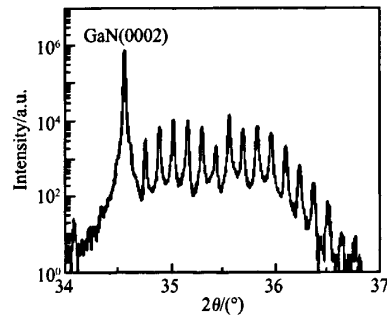


图 3 布拉格反射镜 (结构 2) 的高分辨 X 射线衍射谱
Fig. 3 High resolution XRD spectrum of S2 DBRs

次,高级数的卫星峰很窄,说明了反射镜结构具有很好的周期重复性和平整陡峭的界面.应用布拉格公式估计了周期厚度^[10]:

$$P = \frac{\lambda}{2(\sin\theta_m - \sin\theta_{m-1})}$$

其中 θ_m 和 θ_{m-1} 是两个相邻卫星峰的布拉格角; λ 是 X 射线的波长.计算得到的周期厚度与设计参数符合得较好.

图 4 是结构 1 GaN/AlN 反射镜的截面透射电镜图片,图中暗条纹是 GaN 层,亮条纹是 AlN 层.可以看出 GaN 和 AlN 的界面比较清晰,每个周期厚度一致.但是,研究也发现一些区域存在不平整的分界面,这是由于 AlN 和 GaN 的晶格失配大,AlN 生长过程中容易形成 V 型缺陷.

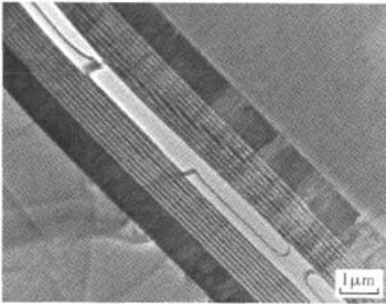


图 4 布拉格反射镜(结构 1)的截面透射电镜图像
Fig.4 Cross section TEM image of S1 DBRs

图 5 显示了三种反射镜结构的反射谱.结构 1 的 GaN/AlN 反射镜中心反射波长 536nm,反射率 80.5%,半峰宽 43nm;结构 2 的 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}/\text{AlN}$ 反射镜中心反射波长 313nm,反射率 93.5%,半峰宽 12.3nm;结构 3 的 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{N}/\text{AlN}$ 反射镜中心反射波长 256nm,反射率 80.7%,半峰宽 14nm.各个反射镜的实际中心波长与设计参数有一定的偏差,原因在于生长厚度的偏差和 AlGaIn 合金的折

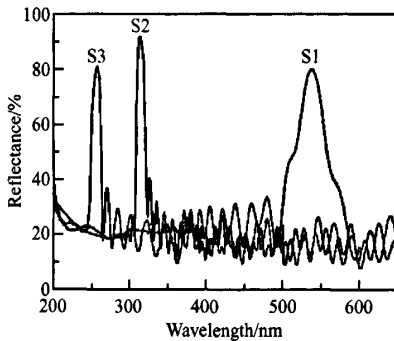


图 5 三种不同布拉格反射镜的反射谱
Fig.5 Reflectance spectra of three types DBRs

射系数偏差.研究发现,反射率不仅与周期数有关也与两种材料的折射率系数差有关.由于 GaN 和 AlN 的折射系数差相对最大,因此只需要较少的周期就可以达到较高的反射率;而 AlGaIn 和 AlN 的折射系数差相对较小,因此需要更多的周期来实现高反射率.半峰宽也与周期数和折射率系数差有关,GaN 和 AlN 组成的反射镜具有较宽的半峰宽,而 Al-GaN/AlN 反射镜半峰宽都较窄,这是折射系数差小引起的.研究还发现,增加周期会减小反射镜的半峰宽,这是因为随着对数的增加,各个子层由生长带来的厚度和组分的扰动因素增加.

4 结论

本文研究了利用 MOCVD 制备的 AlGaIn 基多波段布拉格反射镜,其分别工作于蓝绿光和紫外波段.研究发现,高质量的 GaN 支撑层和周期结构中各 AlN 层对生长得到表面平整无裂纹、周期结构清晰的反射镜结构起着关键作用.同时发现,这些反射镜的反射率和半峰宽不仅与周期数有关也与两种材料的折射率系数差有关.它们的反射率均大于 80%,可以应用于垂直共振腔增强型紫外探测器结构的研究.

参考文献

- [1] Someya T, Werner R, Forchel A, et al. Room temperature lasing at blue wavelengths in gallium nitride microcavities. *Science*,1999,285:1905
- [2] Li T, Carrano J C, Eiting C J, et al. Design of a resonant-cavity-enhanced p-i-n GaN/Al_xGa_{1-x}N photodetector. *Fiber and Integrated Optics*,2001,20:125
- [3] Ng H M, Doppalapudi D, Iliopoulos E, et al. Distributed Bragg reflectors based on AlN/GaN multilayers. *Appl Phys Lett*,1999,74:1036
- [4] Kipshidze G, Kuryatkov V, Choi K, et al. AlN/AlGaIn Bragg reflectors grown by gas source molecular beam epitaxy. *Phys Status Solidi A*,2001,188:881
- [5] Langer R, Barski A, Simon J, et al. High-reflectivity GaN/GaN Bragg mirrors at blue/green wavelengths grown by molecular beam epitaxy. *Appl Phys Lett*,1999,74:3610
- [6] Jain S C, Willander M, et al. III-nitrides: growth, characterization, and properties. *J Appl Phys*,2000,87:965
- [7] Khan M A, Shatalov M, Maruska H P, et al. III-nitride UV devices. *Jpn J Appl Phys*,2005,44:7191
- [8] Macleod H A. *Thin film optical filters*. 2nd ed. New York: McGraw-Hill,1986
- [9] Zhao D G, Zhu J J, Jiang D S, et al. Parasitic reaction and its effect on the growth rate of AlN by metalorganic chemical vapor deposition. *J Cryst Growth*,2006,289:72
- [10] Brandt O, Waltereit P, Ploog K H. Determination of strain state and composition of highly mismatched group-III nitride heterostructures by X-ray diffraction. *J Phys D: Appl Phys*, 2002,35:577

AlGaN-Based Multi-Type Distributed Bragg Reflectors Grown by MOCVD*

Liu Bin¹, Zhang Rong^{1,†}, Xie Zili¹, Ji Xiaoli¹, Li Liang¹, Zhou Jianjun¹, Jiang Ruolian¹, Han Ping¹, Zheng Youdou¹, Zheng Jianguo², and Gong Haimei³

(1 *Jiangsu Provincial Key Laboratory of Advanced Photonic and Electronic Materials, Department of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

(2 *Materials Science and Engineering, Northwestern University, USA*)

(3 *Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China*)

Abstract: AlGaN-based multi-type distributed Bragg reflectors (DBRs) grown by metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD) were investigated. These DBRs work at the wavelengths from blue/green to ultraviolet, which respectively compose of several periods of GaN/AlN, Al_{0.3}Ga_{0.7}N/AlN, Al_{0.5}Ga_{0.5}N/AlN bi-layers grown on thick GaN templates. These DBRs show smooth surfaces with roughness less than 1nm probed by atomic force microscopy. The good periodic structure and sharp interfaces are determined by high-resolution X-ray diffraction and cross-section TEM. The reflectance spectra of these DBRs are measured by ultraviolet-visible spectrometer, which show the reflectance and bandwidth relates to not only the number of stacks but also the difference of index of refraction.

Key words: MOCVD; DBRs; reflectance

PACC: 7280E; 8115H

Article ID: 0253-4177(2007)S0-0492-04

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (No. 2006CB6049), the National Natural Science Foundation of China (Nos. 6039072, 60476030, 60421003, 60676057), the Great Fund of the Ministry of Education of China (No. 10416), the Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (No. 20050284004), the Natural Science Foundation of Jiangsu Province (Nos. BK2005210, BK2006126), and the Innovative Research Foundation of Graduate School of Nanjing University and Jiangsu Province

† Corresponding author. Email: rzhang@nju.edu.cn

Received 30 November 2006, revised manuscript received 8 December 2006

©2007 Chinese Institute of Electronics