

文章编号: 1000-7032(2026)05-0782-09

AlGaIn 基纳米多孔 DBR 反射率提升及其机理研究

苏栋梁¹, 郭亚楠^{2,3*}, 王 充⁴, 李帅飞¹, 刘乃鑫^{2,3,4*},
王军喜^{2,3}, 李晋闽^{1,2,4}, 闫建昌^{2,3*}

(1. 中北大学 宽禁带半导体超越照明材料与技术全国重点实验室, 山西 太原 030051;

2. 中国科学院半导体研究所 宽禁带半导体研发中心, 北京 100083;

3. 中国科学院大学 材料科学与光电技术学院, 北京 100049;

4. 山西中科瀚安紫外光电科技有限公司, 山西省半导体深紫外技术创新中心, 山西 长治 046000)

摘要: 高反射率的 AlGaIn 基纳米多孔分布式布拉格反射器 (Distributed Bragg reflector, DBR) 是构筑紫外波段谐振腔发光二极管 (RCLED) 和垂直腔面发射激光器 (VCSEL) 高品质谐振腔的理想候选方案。本文采用金属有机化学气相沉积方法在 *c* 面蓝宝石衬底上制备了 20.5 周期 $n/n^+-Al_{0.6}Ga_{0.4}N$ 层堆叠结构, 系统讨论了 $n^+-Al_{0.6}Ga_{0.4}N$ 层的 Si 掺杂策略和电化学腐蚀偏压对纳米多孔 DBR 的形貌和反射谱的影响规律。相比于传统的固定掺杂方案, 采用 Si 浓度梯度式渐增的掺杂设计能缓解各层 $n^+-Al_{0.6}Ga_{0.4}N$ 的电化学腐蚀速率差异, 显著改善纳米孔道孔径与孔隙率的一致性, 从而提高纳米多孔 DBR 的反射率。当电化学腐蚀偏压优化为 33 V 时, $Al_{0.6}Ga_{0.4}N$ 基纳米多孔 DBR 在目标波长 310 nm 处的反射率达到 93.7%, 阻带宽度为 36 nm; 其上多量子阱的光致发光强度提升了 110%。这些结果将为实现紫外波段电注入的 RCLED 和 VCSEL 器件提供重要参考。

关键词: AlGaIn 基 DBR; 电化学腐蚀; 梯度掺杂; 孔隙率; 反射谱; 阻带宽度

中图分类号: O482.31

文献标识码: A

DOI: 10.37188/CJL.20260052

CSTR: 32170.14.CJL.20260052

Reflectivity Enhancement and Mechanism of AlGaIn-based Nanoporous Distributed Bragg Reflector

SU Dongliang¹, GUO Yanan^{2,3*}, WANG Chong⁴, LI Shuaifei¹, LIU Naixin^{2,3,4*},
WANG Junxi^{2,3}, LI Jinmin^{1,2,4}, YAN Jianchang^{2,3*}

(1. State Key Laboratory of Widegap Semiconductor Optoelectronic Materials and Technologies,
North University of China, Taiyuan 030051, China;

2. Research and Development Center for Wide Bandgap Semiconductors, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Science, Beijing 100083, China;

3. College of Materials Science and Opto-Electronic Technology, University of Chinese Academy of Science, Beijing 100049, China;

4. Shanxi Semiconductor Deep Ultraviolet Technology Innovation Center, Advanced Ultraviolet Optoelectronics Company Ltd,
Changzhi 046000, China)

* Corresponding Authors, E-mail: ynguo@semi.ac.cn; nxliu@semi.ac.cn; yanjc@semi.ac.cn

Abstract: High-reflectivity AlGaIn-based nanoporous distributed Bragg reflectors (DBRs) are ideal candidates for constructing high-quality resonant cavities in ultraviolet resonant-cavity light-emitting diodes (RCLEDs) and vertical-cavity surface-emitting lasers (VCSELs). The 20.5 pairs $n/n^+-Al_{0.6}Ga_{0.4}N$ epitaxial stack structure was prepared on *c*-plane sapphire substrate using metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD). The influence of the Si doping strategy in the $n^+-Al_{0.6}Ga_{0.4}N$ layers and the electrochemical etching voltages on the morphology and the reflection

收稿日期: 2026-02-13; 修订日期: 2026-02-20

基金项目: 国家重点研发计划(2022YFB3605104); 国家自然科学基金(62274163, 62135013, 62234001); 中国科学院青年创新促进会(2022000028, 2023123)

Supported by National Key R&D Program of China (2022YFB3605104); National Natural Science Foundation of China (62274163, 62135013, 62250071); Youth Innovation Promotion Association CAS(2022000028, 2023123)

spectra of the nanoporous DBRs were systematically discussed. Compared with the conventional fixed Si doping concentration, the graded Si doping with an increasing concentration profile can mitigate the electrochemical etching rate variation among n^+ -Al_{0.6}Ga_{0.4}N layers, significantly improve the uniformity of the pore diameter and porosity of the nanoporous channels, thus enhance the reflectivity of the nanoporous DBR. With an optimized electrochemical etching voltage of 33 V, the Al_{0.6}Ga_{0.4}N nanoporous DBR achieved a reflectivity of 93.7% at the target wavelength of 310 nm with a stopband width of 36 nm. The photoluminescence intensity was increased by 110% for the multiple quantum wells deposited on the nanoporous DBR. These results would provide important reference for developing electrically injected ultraviolet RCLED and VCSEL devices.

Keywords: AlGa_N-based distributed Bragg reflector; electrochemical etching; graded doping; porosity; reflectance spectrum; stopband width

1 引言

紫外波段谐振腔发光二极管(Resonant-cavity light-emitting diode, RCLED)和垂直腔面发射激光器(Vertical-cavity surface-emitting laser, VCSEL)具有光谱线宽窄和指向性更好的特点^[1],正推动着紫外光源技术的深刻变革和应用拓展,在数据通信、无创光疗领域有着重要的应用前景^[2-4]。高反射率的分布式布拉格反射器(Distributed Bragg reflector, DBR)是构筑紫外 RCLED 和 VCSEL 高品质谐振腔的关键构成部分^[5]。DBR 是一种由光学厚度为四分之一波长的两种不同折射率材料周期性交替堆叠而成的多层膜结构。其基本工作原理是利用各层界面处光波的相长干涉,实现对特定波长范围的高效反射。

DBR 按材料可划分为介质膜 DBR 和氮化物半导体 DBR^[6]。介质膜 DBR 方案的优势在于吸收损耗低、反射率高(>99%)、材料选择灵活。厦门大学张保平团队采用激光诱导剥离蓝宝石衬底获得 AlGa_N 外延层薄膜,并在薄膜两侧分别沉积 15.5 周期和 7.5 周期的 HfO₂/SiO₂ 介质膜 DBR,在国际上首次实现了深紫外波段的 VCSEL 光泵浦激射,激射波长与线宽分别为 275.91 nm 和 0.78 nm^[7]。查尔姆斯理工大学 Haglund 团队采用(光)电化学腐蚀 n-AlGa_N 牺牲层去除衬底,在外延薄膜两侧沉积由 HfO₂ 和 SiO₂ 交替堆叠的全介质膜 DBR,实现了发光波长 278.5 nm^[8-9]、310 nm^[10]、317.2 nm^[11] 的 VCSEL 光泵浦激射和 310 nm 的电注入 RCLED^[12];其中 RCLED 的线宽为 4.3 nm。北京大学沈波团队采用激光剥离 4 英寸 GaN 模板/蓝宝石衬底后,在薄膜上下两侧沉积 HfO₂/SiO₂ 全介质膜 DBR,实现了发光波长 285.6 nm 的 VCSEL 光泵浦激射^[13],其阈值仅 0.38 mW·cm⁻²,线宽为 0.11 nm。由此

可见,制备全介质膜 DBR 一般需要先剥离衬底来暴露有源区薄膜,这增加了器件工艺的复杂性。

氮化物半导体 DBR 通常采用金属有机化学气相沉积(Metal-organic chemical vapour deposition, MOCVD)或分子束外延装备生长的 AlN/AlGa_N、Ga_N/AlGa_N 等周期性结构,其优势在于原位外延、工艺兼容性好和集成度高。但每个周期中两层氮化物材料的折射率差异较小,一般需要更多的周期对数来实现高反射率,且需要克服晶格失配、热膨胀失配、界面互扩散与界面模糊化等问题^[14]。佐治亚理工学院 Dupuis 团队采用流量调制外延技术生长了 30.5 周期的 Al_{0.865}Ga_{0.135}N/AlN DBR,在中心波长 226 nm 处的峰值反射率达到 96.9%,阻带宽度为 6 nm^[15]。北卡罗来纳州立大学 Sitar 团队在经过应变工程处理的 Al_{0.85}Ga_{0.15}N 模板上生长了 25 周期的无裂纹 AlN/Al_{0.65}Ga_{0.35}N DBR,在中心波长 273 nm、阻带 9 nm 范围内的反射率达到 97.7%^[16]。

为增加两层氮化物材料的折射率差异,近年来兴起了纳米多孔 DBR(Nanoporous DBR, NP-DBR)技术^[17-18]。该技术是首先外延生长 n-(Al)Ga_N 层与 n⁺-(Al)Ga_N 层组成的轻掺杂/重掺杂叠层结构,然后利用二者的电化学腐蚀(Electrochemical etching, EC)强度差异,选择性地将重掺杂层腐蚀为纳米多孔结构,降低其等效折射率,而轻掺杂层几乎不受影响。轻掺杂、重掺杂层的 Al 组分可保持一致,因此可避免晶格常数与热膨胀系数的失配问题和界面扩散、模糊的问题。在蓝光和近紫外光波段,GaN 基 NP-DBR 已得到广泛研究,反射率超过 95%,并成功集成应用到 LED^[19]、RCLED^[20]和 VCSEL^[21]等多种光电器件中。在深紫外波段,耶鲁大学 Han 团队采用横向电化学腐蚀制备了 20 周期 n⁺/n-Al_{0.47}Ga_{0.53}N NP-DBR,在 276 nm 处的反射率达到 93%,阻带宽度为 22 nm^[22]。华中

科技大学陈长清团队采用纵向电化学腐蚀制备了 40 周期 $n/u\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ NP-DBR^[23], 在 280 nm 处的反射率为 90.1%, 阻带宽度为 12.3 nm。不过, 现阶段 AlGa_{0.4}N NP-DBR 仍存在重掺杂层的孔洞尺寸和孔隙率不均匀等问题, 导致反射率相对较低^[24-25]。这一情况在高 Al 组分 AlGa_{0.4}N 基 DBR 结构中更加严峻。

本文采用 Si 浓度梯度式渐变掺杂 (Graded doping, GD) 的 $n/n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 周期堆叠结构和优化的电化学腐蚀工艺条件, 成功将重掺杂 $n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层转化为纳米多孔形态, 并显著改善了各层孔径不一致和孔隙率不均匀的问题。Al_{0.6}Ga_{0.4}N NP-DBR 在 UVB 目标波段的峰值反射率和阻带宽度分别达到 93.7% 和 36 nm, 为进一步研制电注入的紫外 RCLED 和 VCSEL 提供了良好的结构基础。

2 实 验

2.1 AlGa_{0.4}N DBR 样品的外延

采用 MOCVD 在 *c* 面蓝宝石衬底上外延面向

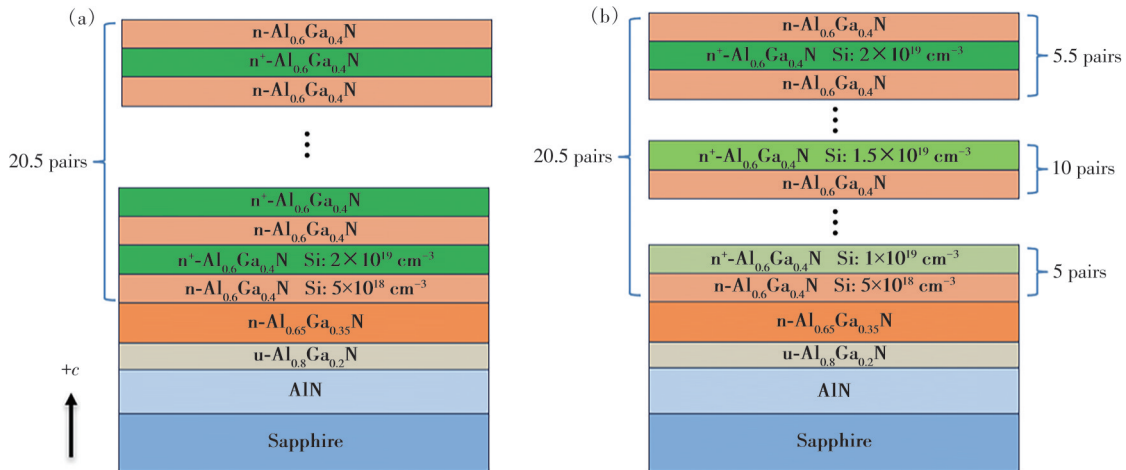


图 1 外延结构示意图: (a) Ref DBR; (b) GD DBR

Fig. 1 Schematic diagram of the epitaxial structure. (a) Ref DBR. (b) GD DBR

根据多孔材料的体积平均定律^[26-27], 纳米多孔 AlGa_{0.4}N 层 (即本实验中的 $n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层) 的等效折射率 n_{eff} 决定于:

$$n_{\text{eff}} = \sqrt{\varphi \times n_0^2 + (1 - \varphi) \times n_{\text{AlGa}_0.4\text{N}}^2}, \quad (1)$$

其中 n_0 是空气折射率; φ 是孔隙率, 即孔洞的体积占比; $n_{\text{AlGa}_0.4\text{N}}$ 是 AlGa_{0.4}N 层在指定波长处 (本文为 310 nm) 的折射率。可以看出, 孔隙率越高, $n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的等效折射率就越低。根据美国普渡大学 Lu 团队的报道^[28], Al_{0.6}Ga_{0.4}N 材料在 310 nm 处的折射率约为 2.4, 忽略 Si 掺杂浓度引起的折

射率变化, 本实验周期结构中 $n\text{-AlGa}_0.4\text{N}$ 层的物理厚度设置为 32.3 nm; $n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的等效折射率受孔隙率影响, 目标孔隙率 φ 为 50% 时, 该层的物理厚度设置为 42.3 nm。

UVB 波段的 AlGa_{0.4}N 基 DBR 样品, 以三甲基铝 (TMAI)、三甲基镓 (TMGa) 和氨气 (NH₃) 分别作为 Al、Ga 和 N 的前驱体, 以氢气 (H₂) 为载气, 以硅烷 (SiH₄) 为 *n* 型掺杂材料。如图 1 (a) 所示, 参考样品 (标记为 Ref DBR) 的外延结构包括: 3 μm 厚的 AlN 模板、150 nm 厚的非故意掺杂 Al_{0.8}Ga_{0.2}N 过渡层、1.6 μm 厚的 $n\text{-Al}_{0.65}\text{Ga}_{0.35}\text{N}$ 电流扩展层 (Si 掺杂浓度为 $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) 和 20.5 周期的 $n/n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 堆叠结构。每个周期中, $n\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层和 $n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的 Si 掺杂浓度分别固定为 $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 和 $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 。该掺杂浓度的设置参考了文献 [22]。对于实验样品 (标记为 GD DBR, 见图 1 (b)), 每个周期中的 $n\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的 Si 掺杂浓度固定为 $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 而前 5 个周期、中间 10 周期和最后 5.5 周期中的 $n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的 Si 掺杂浓度分别为 $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 、 $1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 和 $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, 即沿生长方向梯度式增加。两种样品仅重掺杂 $n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的 Si 掺杂浓度不同, 其余参数完全一致。

射率变化, 本实验周期结构中 $n\text{-AlGa}_0.4\text{N}$ 层的物理厚度设置为 32.3 nm; $n^+\text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的等效折射率受孔隙率影响, 目标孔隙率 φ 为 50% 时, 该层的物理厚度设置为 42.3 nm。

2.2 AlGa_{0.4}N NP-DBR 样品的电化学腐蚀

NP-DBR 样品的制备主要由保护层沉积、光刻、干法刻蚀、电化学腐蚀等步骤组成。如图 2 所示, 对外延片样品进行有机和无机清洗后, 在其表面沉积 1 μm 的 SiO₂ 作为保护层, 以避免纵向电化学腐蚀; 采用型号为 RZJ-304 的正性光刻胶和标准光刻工艺, 在 SiO₂ 保护层表面形成图形化的掩

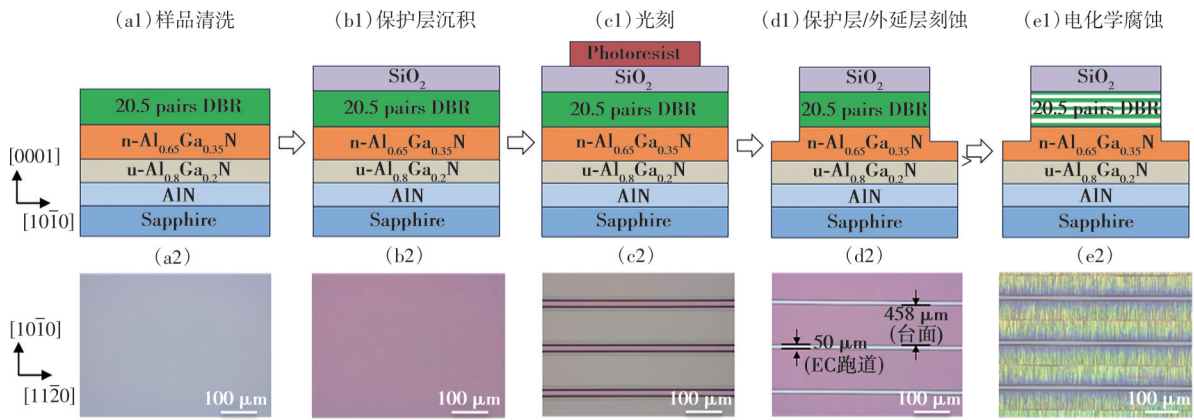


图 2 NP-DBR 制备流程示意图及对应的表面光学显微镜图

Fig.2 Schematic diagram of the preparation process and the corresponding surface optical microscope images of NP-DBR

膜;使用干法刻蚀,去除未被光刻胶覆盖区域的 SiO₂保护层,从而使掩膜图形转移到保护层上,刻蚀气体采用 CF₄;进一步采用 Cl₂ 和 BCl₃ 的混合气体(流量分别为 120 mL·min⁻¹和 36 mL·min⁻¹)刻蚀 AlGa_{0.65}N 外延层,然后使用型号为 ASTP 135 的光刻胶剥离液去除样品表面残留的光刻胶。刻蚀终止在 n-Al_{0.65}Ga_{0.35}N 电流扩展层内,Al_{0.6}Ga_{0.4}N DBR 的侧壁完全暴露出来,如图 2(d2)所示,形成了宽度为 50 μm 的条形电化学腐蚀窗口(即 EC 跑道),台面宽度为 458 μm。在外延片一端的 n-Al_{0.65}Ga_{0.35}N 电流扩展层表面涂焊金属钢作为阳极,以铂板作为阴极,放入浓度为 1 mol·L⁻¹的 HNO₃ 溶液中进行电化学腐蚀,腐蚀偏压设置为 30~42 V,腐蚀时间固定为 30 min。如图 2(e2)所示,经过电化学腐蚀后,样品表面的颜色发生明显变化,在后文将做进一步分析。腐蚀结束后,使用缓冲氧化物刻蚀液(Buffered oxide etch,BOE)去除样品表面的 SiO₂保护层,得到了 AlGa_{0.65}N 基 NP-DBR 样品。

2.3 AlGa_{0.65}N DBR 样品的表征

使用原子力显微镜(Dimension 3100, Atomic force microscope, AFM)表征样品的表面形貌,获得均方根粗糙度(Root mean square, RMS)。采用 X 射线衍射仪(Rigaku SmartLab3 KW)测量样品的(002)晶面 X 射线衍射全谱。通过金相光学显微镜(Leica 公司,DM2700M RL)观察电化学腐蚀前后 DBR 样品的表面形貌。采用冷场扫描电子显微镜(Regulus8230, Scanning Electron Microscope, SEM)对 NP-DBR 结构的横截面形貌进行表征,并结合 Image J 软件分析 NP-DBR 的孔隙率。利用紫外分光光度计(UH4150)测量 NP-DBR 的反射

谱。使用脉冲宽度 5 ns、重复频率为 20 Hz 的 193 nm ArF 准分子激光器(Coherent 公司,ExciStarXS 200)和高分辨率光谱仪(Princeton 公司,Spectra Pro HRS-500,分辨率≤0.05 nm),在样品正面测量 AlGa_{0.65}N 多量子阱(Multiple quantum wells, MQWs)的光致发光光谱(Photoluminescence, PL)。

3 结果与讨论

3.1 AlGa_{0.65}N DBR 外延样品的质量分析

图 3 显示了 Ref DBR 和 GD DBR 样品的 AFM 表面形貌,扫描范围为 50 μm×50 μm。这两种样品表面都呈现出典型的螺旋岛状生长模式,岛的尺寸、密度与高度相近,RMS 分别为 15.2 nm 和 14.7 nm。这表明,n⁺-Al_{0.6}Ga_{0.4}N 层的 Si 掺杂浓度不会影响样品的表面与界面形貌。

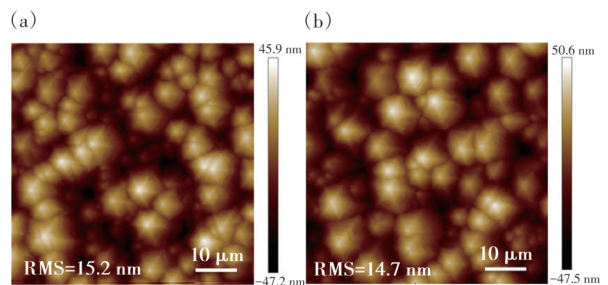
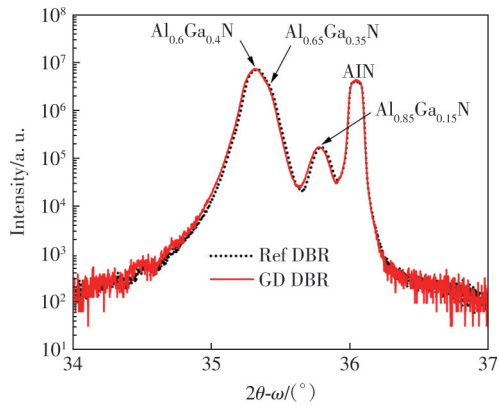


图 3 AFM 图像:(a)Ref DBR;(b)GD DBR

Fig.3 AFM images. (a)Ref DBR. (b)GD DBR

两种 DBR 样品的(002)晶面 2θ-ω 全谱如图 4 所示,从右到左的峰位依次对应于 AlN 模板、Al_{0.85}Ga_{0.15}N 过渡层、n-Al_{0.65}Ga_{0.35}N 电流扩展层和 n/n⁺-Al_{0.6}Ga_{0.4}N 堆叠结构。两条谱线基本重合,表明 Si 掺杂浓度的调制对各层的 Al 组分和应力状态影响可以忽略^[29]。

图4 两种DBR样品的(002)晶面 $2\theta-\omega$ 曲线Fig. 4 The (002)-plane $2\theta-\omega$ curves of two DBR samples

3.2 电化学腐蚀后的AlGaNP-DBR形貌分析

首先讨论腐蚀偏压对NP-DBR纳米多孔形态的影响规律。图5展示了Ref NP-DBR样品在30~42 V偏压下腐蚀30 min后的表面显微镜图像(放大倍数100倍)和横截面SEM图像(放大倍数50倍)。腐蚀后的样品表面出现彩色光学干涉条纹,其行进方向垂直于EC跑道,并在台面中心附近形成清晰可辨的交汇界面。随着腐蚀偏压的增加,Ref NP-DBR表面条纹颜色逐渐加深, n^+ - $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层内横向孔道的孔径增大、单位面积内孔洞占比增加。但当腐蚀偏压升高到38 V以上后,条纹纹路逐渐变得杂乱无序,部分纳米孔洞发生融合,片内一致性变差。此外,还能观察到沿

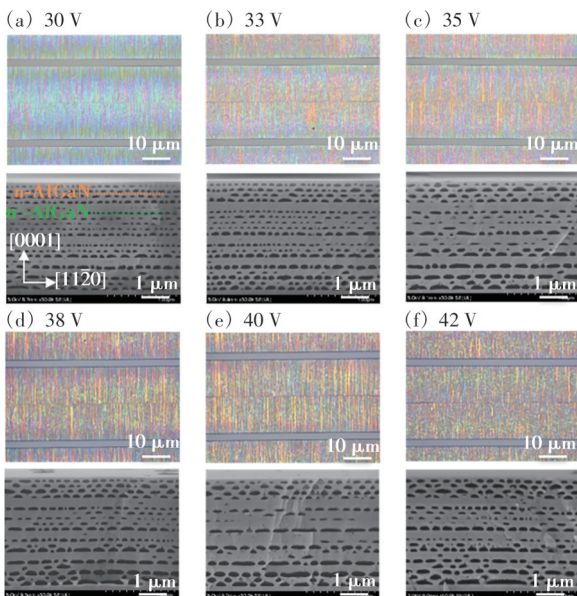


图5 在不同偏压下腐蚀后的Ref NP-DBR表面光学显微镜图像以及横截面SEM图像

Fig.5 Surface optical microscope images and cross-sectional SEM images of Ref NP-DBR with different EC voltages

生长方向上各层 n^+ - $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 的纳米多孔形态很不均匀,靠近电流扩展层的 n^+ - $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层中孔洞的平均孔径明显大于远离该层的各层;有部分 n^+ - $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层甚至未被腐蚀,而且这种现象并未随着偏压的增大得到改善。

图6展示了GD NP-DBR样品在30~42 V偏压下腐蚀30 min的表面显微镜图像和横截面SEM图像。腐蚀后的GD样品表面形态与Ref样品相似,但横向孔道更加清晰、有序。随着腐蚀偏压从30 V升高至35 V, n^+ - $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层内的横向孔道的孔径增加,孔隙率从40%增加至60%;所有的 n^+ - $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层均被腐蚀成多孔形态,且各处的孔径和孔隙率均匀性相较于Ref样品显著改善。但是,当腐蚀偏压升高到38 V以上后,纳米多孔结构逐渐发生横向融合,并深入到n-AlGaNP层中。这会严重破坏周期交替结构,对DBR的反射率造成负面影响。

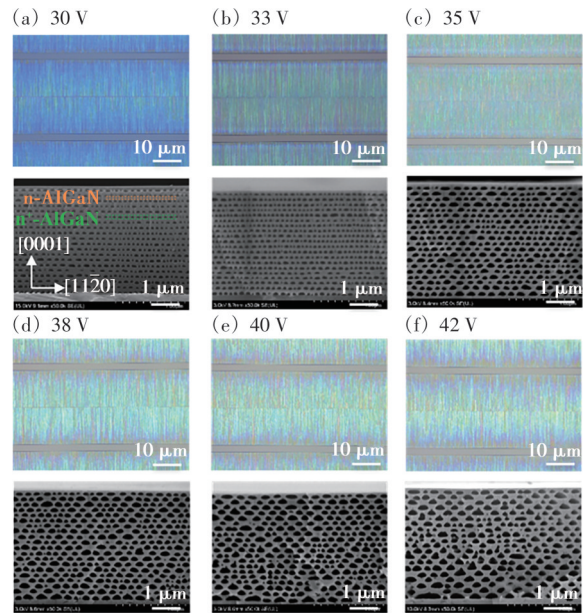


图6 在不同偏压下腐蚀后的GD NP-DBR表面光学显微镜图像以及横截面SEM图像

Fig.6 Surface optical microscope images and cross-sectional SEM images of GD NP-DBR with different EC voltages

根据电化学腐蚀动力学的耗尽型模型, n^+ - $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的Si掺杂浓度直接决定了空间电荷区(d_{SCR})的宽度^[30-31],进而影响纳米多孔形态。如公式(2)所示:

$$d_{\text{SCR}} = \sqrt{\frac{2\epsilon\epsilon_0 U}{qN_D}}, \quad (2)$$

其中 ϵ 和 ϵ_0 分别为 $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 的相对介电常数(8.3)

和真空介电常数($8.85 \times 10^{-14} \text{ F} \cdot \text{cm}^{-1}$), q 为电子电荷($1.6 \times 10^{-19} \text{ C}$), N_D 为施主掺杂浓度(此处为 $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$), U 为耗尽区的电势差,为了简化计算,这里仅考虑外加的腐蚀偏压^[31]。以33 V腐蚀偏压的实验数据为例,实测的平均孔壁厚度 d_w 为35 nm,计算得到的 d_{SCR} 为38.9 nm。 $d_w/d_{\text{SCR}} < 1$,相邻孔道的空间电荷区融合,电化学反应的载流子仅能从孔尖端供给,促使孔道接近平行生长^[32]。由于 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的物理宽度(42.3 nm)略大于 d_{SCR} 值,在 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层中仅产生了一排平行的横向纳米孔道。对于Ref DBR样品,其中的各层 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$, Si掺杂浓度完全相同,但由于存在纵向传输的串联电阻,底部 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 的 U 相对较高,电化学腐蚀反应更剧烈。当采用梯度式渐增Si掺杂 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 设计后,与顶部 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层相比,底部 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的Si掺杂浓度降低一半,空间电荷区中的电场强度和内建电势降低,补偿了从底部到顶部逐渐降低的电化学腐蚀反向偏压,从而使各层 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 电化学反应速率差异变小,实现了对孔径尺寸和孔隙率的均匀化调控。

3.3 AlGaIn NP-DBR的反射谱分析

纳米多孔层(低折射率层)、非多孔层(高折射率层)的厚度和孔隙率的波动均会影响NP-DBR

的反射谱中心波长、反射率与阻带宽度。其中,阻带宽度定义为反射率大于80%的反射光谱的波长范围^[22]。高、低折射率材料之间的折射率差值越大,反射谱的阻带宽度越宽。

随后,分析了电化学腐蚀前、后的多组Al-GaN DBR样品的反射谱。Ref NP-DBR的反射谱测量结果如图7(a)所示,未经腐蚀的Ref DBR样品(黑色直线)的反射率约为30%;随着腐蚀偏压从30 V增加至42 V,310 nm处的反射率从79.2%增加到89.7%,反射谱阻带宽度约为70 nm,但阻带中心的反射率相对较低。此外,在620 nm附近也出现了反射率~73.5%的次级反射带。为了分析Ref NP-DBR阻带中心的反射率下降和长波长端出现异常反射带的原因,根据33 V偏压腐蚀样品的实测截面SEM多孔形貌建立了二维非理想NP-DBR简化模型^[33],然后采用传输矩阵法计算其反射谱。如图7(b)所示,在考虑了沿生长方向各层 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 厚度与孔隙率不均匀、部分 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层未形成纳米多孔形貌的影响后,非理想NP-DBR的反射谱(红色虚线)与实测反射谱(蓝色实线)的趋势基本一致。这表明,Ref NP-DBR样品中不均匀的纳米多孔形貌是导致阻带中心下降和异常反射带的主要原因。

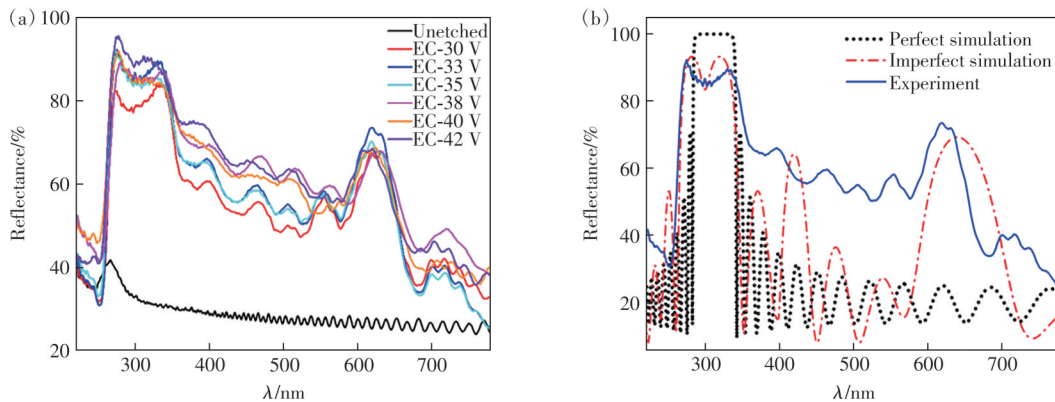


图7 (a)Ref NP-DBR样品的反射谱;(b)腐蚀偏压为33 V的Ref NP-DBR样品的理想、非理想仿真反射谱和实测反射谱
Fig.7 (a) Reflection spectra of Ref NP-DBR samples. (b) The simulated perfect, imperfect and experimental reflection spectra of Ref NP-DBR samples at EC 33 V

图8(a)~(b)展示了GD NP-DBR样品的反射谱测量结果。可以看到,长波长端的次级反射带完全消失,这是各层 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 孔径和孔隙率相对均匀的结果。随着腐蚀偏压从30 V增加至35 V,反射带蓝移,目标波长310 nm处的反射率从85.8%增加至93.7%,阻带宽度从17 nm展宽至36 nm。考虑到 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层的孔隙率和厚度随腐蚀偏压增加而逐渐增大(图8(c)),我们建

立了对应的NP-DBR简化模型^[33],计算的反射谱与实测结果趋势基本一致(图8(d))。当腐蚀偏压进一步增加后,由于 $n^+ \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层内的孔洞扩展到 $n \text{-Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 层内,DBR周期结构被破坏,反射谱变形,长波长端的反射率因纳米孔洞的散射效应明显升高。当腐蚀偏压为42 V时,实测反射阻带宽度为70 nm,在275 nm的反射率达到99.8%,在310 nm的反射率降至83.8%。

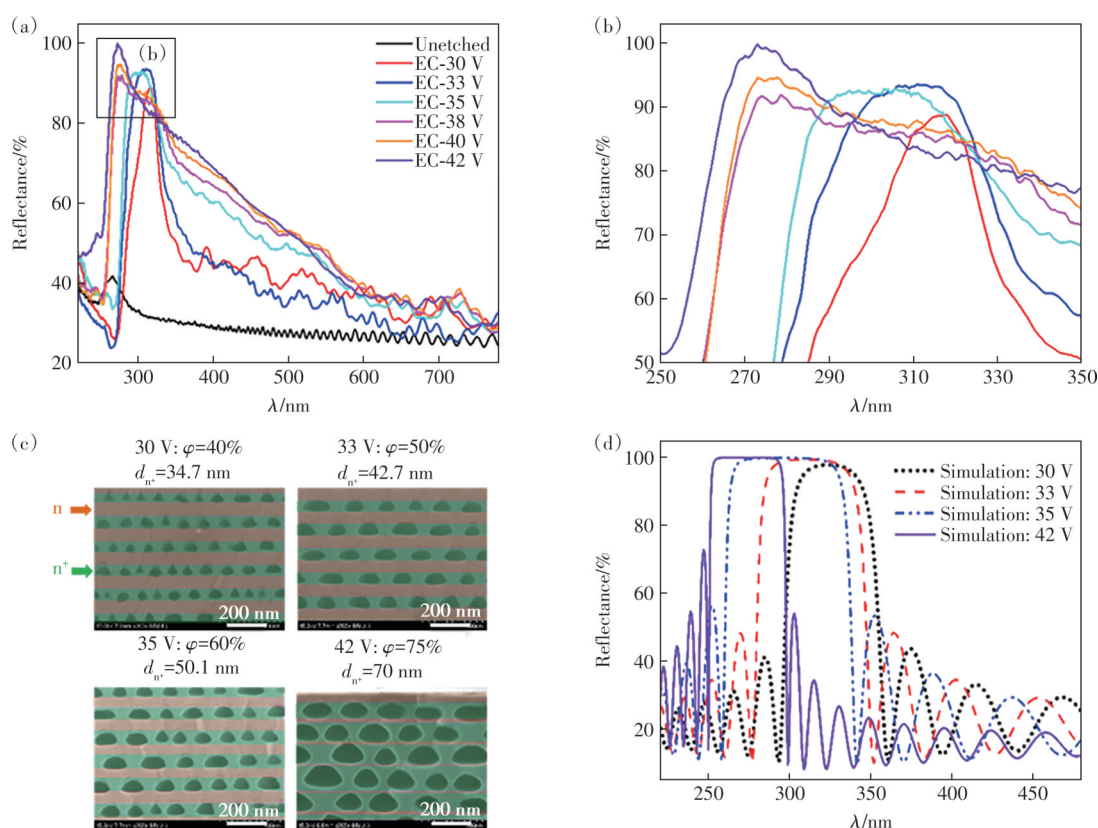


图 8 (a)GD NP-DBR 样品的反射谱;(b)GD NP-DBR 样品阻带附近的反射谱;(c)不同腐蚀偏压的 GD NP-DBR 样品横截面 SEM 图,放大倍数 200 倍;(d)计算的反射谱

Fig.8 (a) Reflection spectra of GD NP-DBR samples. (b) Reflection spectra near the stopband of GD NP-DBR samples. (c) Cross-sectional SEM images of GD NP-DBR samples at different EC voltages with a magnification of 200. (d) The simulated reflection spectra

为了验证 AlGaIn NP-DBR 对目标波段的高反射能力,我们在图 1(b) GD DBR 上继续外延了 3 周期 $\text{Al}_{0.38}\text{Ga}_{0.62}\text{N}/\text{Al}_{0.75}\text{Ga}_{0.25}\text{N}$ MQWs 结构,然后对 GD DBR 进行偏压为 33 V 的腐蚀,并对腐蚀前、后的样品进行了 PL 测试。如图 9 右插图所示,193 nm 激光垂直入射到样品表面,激发能量密度固定为 $3.33 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$;光纤在与 c 轴成 $\sim 45^\circ$ 方向收集 PL

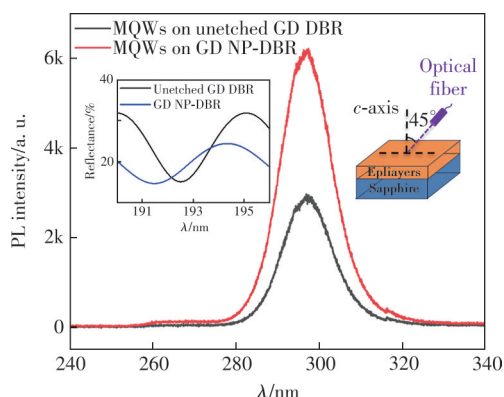


图 9 腐蚀前后的 AlGaIn MQWs 光致发光光谱

Fig. 9 PL spectra of AlGaIn MQWs before and after EC

信号。可以看到, MQWs 样品的峰值波长约为 298 nm, 位于 DBR 高反射阻带内。在 GD NP-DBR 上的 MQWs 样品的 PL 峰值强度是腐蚀前样品的 2.1 倍,这是因为有源区向下辐射的光被底部的 NP-DBR 有效反射到正面并从外延层顶部再次射出^[25,34]。左插图还模拟了未腐蚀的 DBR 样品和 NP-DBR 样品对 193 nm 入射激光的反射谱,可以看到腐蚀前后反射率变化不大,因此 MQWs 发光强度的增加主要归因于底部 AlGaIn NP-DBR 的高反射效应。

4 结 论

本研究系统讨论了重掺杂层 Si 掺杂策略和电化学腐蚀偏压对 AlGaIn 基 NP-DBR 的反射谱的影响规律。相较于传统固定掺杂浓度的 n/n^+ - $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ DBR,采用 Si 浓度梯度式渐变掺杂设计能显著改善 n^+ - $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 各层纳米孔道的孔径与孔隙率的一致性,从而提高 NP-DBR 的反射率。当电化学腐蚀偏压优化为 33 V 时, $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ 基

GD NP-DBR在目标波长310 nm处的反射率达到93.7%,阻带宽度为36 nm;其上的MQWs光致发光强度提升了110%。随着电化学腐蚀偏压进一步增加,GD NP-DBR的反射带蓝移,在275 nm处的峰值反射率高达99.8%。GD NP-DBR反射率的提高主要归因于底部n⁺-Al_{0.6}Ga_{0.4}N层相对较低的Si掺杂浓度降低了空间电荷区中的电场强度和内建电势,补偿了纵向串联电阻带来的顶部与底部

n⁺-Al_{0.6}Ga_{0.4}N层之间的反向偏压差异,使得纳米孔道的孔径和孔隙率相对均匀。这些结果将为推动紫外波段电注入RCLED和VCSEL器件的研制提供重要参考。

本文专家审稿意见及作者回复内容的下载地址:
<http://cjl.lightpublishing.cn/thesisDetails#10.37188/CJL.20260052>

参 考 文 献:

- [1] ZHAO L X, LIU C, WANG K Y. Progress of GaN-based optoelectronic devices integrated with optical resonances [J]. *Small*, 2022, 18(14): 2106757.
- [2] 郭春辉, 孙雪娇, 郭凯, 等. 紫外光通信用日盲型LED研究进展 [J]. *发光学报*, 2023, 44(10): 1849-1861.
 GUO C H, SUN X J, GUO K, *et al.* Recent progress of solar blind light emitting diodes for ultraviolet optical wireless communication use [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2023, 44(10): 1849-1861. (in Chinese)
- [3] GUO L, GUO Y N, WANG J X, *et al.* Ultraviolet communication technique and its application [J]. *J. Semicond.*, 2021, 42(8): 081801.
- [4] 吴郁, 蓝习瑜, 张梓睿, 等. AlGa_{0.6}N基深紫外LED光源灭活柯萨奇病毒研究 [J]. *发光学报*, 2024, 45(8): 1391-1397.
 WU Y, LAN X Y, ZHANG Z R, *et al.* AlGa_{0.6}N based deep ultraviolet LED for inactivating coxsackie virus [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2024, 45(8): 1391-1397. (in Chinese)
- [5] ELAFANDY R T, KANG J H, MI C Z Y, *et al.* Study and application of birefringent nanoporous GaN in the polarization control of blue vertical-cavity surface-emitting lasers [J]. *ACS Photonics*, 2021, 8(4): 1041-1047.
- [6] 王玉坤, 郑重明, 龙浩, 等. 氮化物垂直腔面发射激光器的发展与挑战(特邀) [J]. *光子学报*, 2022, 51(2): 0251203.
 WANG Y K, ZHENG Z M, LONG H, *et al.* Development and challenges of nitride vertical-cavity surface-emitting lasers (Invited) [J]. *Acta Photon. Sinica*, 2022, 51(2): 0251203. (in Chinese)
- [7] ZHENG Z M, MEI Y, LONG H, *et al.* AlGa_{0.6}N-based deep ultraviolet vertical-cavity surface-emitting laser [J]. *IEEE Electron Device Lett.*, 2021, 42(3): 375-378.
- [8] TORRES E, CIERS J, REBELO N, *et al.* Ultraviolet-C vertical-cavity surface-emitting lasers with precise cavity length control [J]. *Laser. Photonics Rev.*, 2025, 19(13): 2402203.
- [9] TORRES E, CIERS J, GRAUPETER S, *et al.* Optimal detuning in optically pumped 10λ ultraviolet vertical-cavity surface-emitting lasers for temperature stability and low threshold [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2025, 127(24): 241104.
- [10] HJORT F, ENSLIN J, COBET M, *et al.* A 310 nm optically pumped AlGa_{0.6}N vertical-cavity surface-emitting laser [J]. *ACS Photonics*, 2021, 8(1): 135-141.
- [11] CARDINALI G, HJORT F, PROKOP N, *et al.* Low-threshold AlGa_{0.6}N-based UVB VCSELs enabled by post-growth cavity detuning [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2022, 121(10): 103501.
- [12] TORRES E, CIERS J, BERGMANN M A, *et al.* Ultraviolet-B resonant-cavity light-emitting diodes with tunnel junctions and dielectric mirrors [J]. *ACS Photonics*, 2024, 11(8): 2923-2929.
- [13] JI C, WANG J M, XU F J, *et al.* Wafer scale III-nitride deep-ultraviolet vertical-cavity surface-emitting lasers featuring nanometer-class control of cavity length [J]. *Adv. Sci.*, 2026, 13(13): e20405.
- [14] LIU B, ZHANG R, ZHENG J G, *et al.* Composition pulling effect and strain relief mechanism in AlGa_{0.6}N/AlN distributed Bragg reflectors [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2011, 98(26): 261916.
- [15] DETCHPROHM T, LIU Y S, MEHTA K, *et al.* Sub 250nm deep-UV AlGa_{0.6}N/AlN distributed Bragg reflectors [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2017, 110(1): 011105.
- [16] FRANKE A, HOFFMANN M P, KIRSTE R, *et al.* High reflectivity III-nitride UV-C distributed Bragg reflectors for vertical cavity emitting lasers [J]. *J. Appl. Phys.*, 2016, 120(13): 135703.
- [17] ZHANG C, PARK S H, CHEN D T, *et al.* Mesoporous GaN for photonic engineering—highly reflective GaN mirrors as an example [J]. *ACS Photonics*, 2015, 2(7): 980-986.

- [18] ZHANG C, YUAN G, BRUCH A, *et al.* Toward quantitative electrochemical nanomachining of III-nitrides [J]. *J. Electrochem. Soc.*, 2018, 165(10): E513-E520.
- [19] LU X D, LI J, SU K, *et al.* Performance-enhanced 365 nm UV LEDs with electrochemically etched nanoporous AlGaIn distributed Bragg reflectors [J]. *Nanomaterials*, 2019, 9(6): 862.
- [20] LI J, YANG C, LIU L, *et al.* High responsivity and wavelength selectivity of GaN-based resonant cavity photodiodes [J]. *Adv. Opt. Mater.*, 2020, 8(7): 1901276.
- [21] ELAFANDY R T, KANG J H, LI B J, *et al.* Room-temperature operation of *c*-plane GaN vertical cavity surface emitting laser on conductive nanoporous distributed Bragg reflector [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2020, 117(1): 011101.
- [22] WU C J, KUO C Y, WANG C J, *et al.* Deep-UV porous AlGaIn distributed Bragg reflectors for deep ultraviolet light-emitting diodes and laser diodes [J]. *ACS Appl. Nano Mater.*, 2020, 3(1): 399-402.
- [23] TAN S Z, JIAN P C, SHAN M C, *et al.* Tunable structured AlGaIn-based nanoporous distributed Bragg reflectors for light-coupling enhancement in monolayer MoS₂ [J]. *Opt. Laser Technol.*, 2024, 172: 110508.
- [24] NAM K B, LI J, NAKARMI M L, *et al.* Achieving highly conductive AlGaIn alloys with high Al contents [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2002, 81(6): 1038-1040.
- [25] SHAN M C, GUO C Y, ZHAO Y M, *et al.* Nanoporous AlGaIn distributed Bragg reflectors for deep ultraviolet emission [J]. *ACS Appl. Nano Mater.*, 2022, 5(7): 10081-10089.
- [26] BRUNNER D, ANGERER H, BUSTARRET E, *et al.* Optical constants of epitaxial AlGaIn films and their temperature dependence [J]. *J. Appl. Phys.*, 1997, 82(10): 5090-5096.
- [27] BRAUN M M, PILON L. Effective optical properties of non-absorbing nanoporous thin films [J]. *Thin Solid Films*, 2006, 496(2): 505-514.
- [28] LIU Y, LI Q X, WAN L Y, *et al.* Composition and temperature dependent optical properties of Al_xGa_{1-x}N alloy by spectroscopic ellipsometry [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2017, 421: 389-396.
- [29] ZHU S X, YAN J C, ZENG J P, *et al.* The effect of δ -doping and modulation-doping on Si-doped high Al content n-Al_xGa_{1-x}N grown by MOCVD [J]. *J. Semicond.*, 2013, 34(5): 053004.
- [30] TSENG W J, VAN DORP D H, LIETEN R R, *et al.* Anodic etching of n-GaN epilayer into porous GaN and its photoelectrochemical properties [J]. *J. Phys. Chem. C*, 2014, 118(51): 29492-29498.
- [31] SCHWAB M J, CHEN D T, HAN J N, *et al.* Aligned mesopore arrays in GaN by anodic etching and photoelectrochemical surface etching [J]. *J. Phys. Chem. C*, 2013, 117(33): 16890-16895.
- [32] CHEN D T, XIAO H D, HAN J N. Nanopores in GaN by electrochemical anodization in hydrofluoric acid: Formation and mechanism [J]. *J. Appl. Phys.*, 2012, 112(6): 064303.
- [33] KATSIDIS C C, SIAPKA D I. General transfer-matrix method for optical multilayer systems with coherent, partially coherent, and incoherent interference [J]. *Appl. Opt.*, 2002, 41(19): 3978-3987.
- [34] LI Y F, WANG C Y, ZHANG Y, *et al.* Analysis of TM/TE mode enhancement and droop reduction by a nanoporous n-AlGaIn underlayer in a 290 nm UV-LED [J]. *Photonics Res.*, 2020, 8(6): 806-811.



苏栋梁 (1998-), 男, 山西运城人, 硕士研究生, 2022 年于山西工程技术学院获得学士学位, 主要从事氮化物材料生长和器件制备的研究。
E-mail: s202319008@st.ncu.edu.cn



刘乃鑫 (1981-), 男, 辽宁铁岭人, 博士, 副研究员, 2009 年于中国科学院半导体研究所获得博士学位, 主要从事宽禁带氮化物半导体材料的外延生长及发光器件的研究。
E-mail: nxliu@semi.ac.cn



郭亚楠 (1989-), 女, 河南济源人, 博士, 副研究员, 2017 年于中国科学院半导体研究所获得博士学位, 主要从事 AlGaIn 基深紫外发光材料和器件的研究。
E-mail: ynguo@semi.ac.cn



闫建昌 (1982-), 男, 山东菏泽人, 博士, 研究员, 2009 年于中国科学院半导体研究所获得博士学位, 主要从事氮化物宽禁带半导体材料和器件、高效/新型紫外发光器件的研究。
E-mail: yanjc@semi.ac.cn