

# MOCVD 生长 GaN 中带尾和激子 发光特性研究\*

宋 航

(中国科学院长春物理研究所, 长春 130021)

**摘要** 采用低压 MOCVD 生长技术制备 GaN, 对其界面附近的发光特性及其温度行为进行了研究. 实验表明界面附近 GaN 的发光呈一宽带发射. 并对叠加于宽带发射上的尖锐发光峰及其温度行为进行了讨论.

**关键词** 带尾, 发光, 激子

## 1 引 言

由于 III-V 族氮化物半导体材料 InN、GaN、AlN 以及相关的三元系合金材料体系可用于制备覆盖整个可见光谱区域, 特别是蓝光区域的发光二极管<sup>[1]</sup>和半导体激光器<sup>[2]</sup>而受到人们的高度重视. 目前 GaN 系列材料主要是采用 MOCVD 技术在蓝宝石衬底上获得. 由于蓝宝石衬底与氮化镓间的晶格失配和热膨胀系数差异很大(分别约为14%和80%), 在 GaN 外延层中产生大量的晶格缺陷( $> 10^8 \text{ cm}^{-2}$ ), 但 GaN 基发光二极管和激光器仍可高效工作<sup>[3]</sup>. 我们采用光致发光手段来研究位错密度很高的界面附近 GaN 材料的发光特性, 观察到低温下的带尾跃迁及深束缚激子发射, 并对其激发和温度行为进行了考察.

## 2 实 验

采用等离子体辅助低压 MOCVD 技术, 在蓝宝石( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )衬底上生长 GaN. 三甲基镓(TM Ga)和氨气( $\text{NH}_3$ )分别作为 Ga 源和氮源. 氢气作为载气. 反应室压力控制在10kPa. 生长过程是: 首先, 衬底在1200 K 下进行氮化处理, 然后在550 K 下低温生长50nm 的 GaN 作缓冲层, 最后衬底温度升至1050 K 进行 GaN 外延层生长. 恒定各源的流量及其它生长参数, 通过选择不同生长时间来获得不同厚度的样品. X 射线衍射结果表明所得 GaN 为六角相单晶薄膜. GaN 样品的光致发光测量是将样品置于氦循环制冷器中, 用10mW 的 He-Cd 激光器325nm 线激发. 选用透过率不同的中性滤光片调节激发强度.

## 3 结果与讨论

从材料生长角度来说, 由于蓝宝石衬底与 GaN 外延层间存在较大的晶格失配和热失配, 而生长温度又很高, 因而会在 GaN 外延层中产生大量位错. 通常随外延层厚度增加, 晶体质量可得到改善. 也就是说在界面附近缺陷密度较高. 为研究 GaN 中位错行为, 实验中选择不同厚度的样品以期获得不同位错密度的样品.

\* 中国科学院出国人员回国择优支持基金资助课题

比较典型 GaN 低温发光光谱及厚度约300nm 的样品 A 的低温(12K)光致发光光谱如图1所示. 不同于通常非故意掺杂 GaN 的发光, 样品 A 的发光呈现一半宽度约200meV 的宽带发射. 而且其高能边发射能量大于在该温度下通常 GaN 禁带宽度. 当然晶格失配产生的应力可影响禁带宽度, 但该样品室温光致发光峰值位置及半宽度与文献报道的无应力 GaN 结果相一致<sup>[4]</sup>, 因而应力不是引起大于禁带宽度发射的主要原因. 宽带发射的低能边依  $I \propto \exp(h/E_0)$ ,  $E_0 = 142\text{meV}$  规律变化. 由于光发射强度与光激发非平衡载流子分布函数和态密度(DOS)函数乘积成正比, 而 Urbach 带尾的态密度恰是按  $e$  指数从导带或价带延伸进入禁带. 因而这一宽带发射为典型的 Urbach 带尾跃迁. 改变光致发光的光激发功率, 发现光谱线形及峰值位置在所考察的功率变化范围内(0.6 ~ 30W/cm<sup>2</sup>) 没有变化. 若考虑激发功率增加虽然可改变非平衡载流子的准费米能级, 但如果非平衡载流子落入带尾的速率很高, 则发射光谱形状及峰值位置将不受准费米能级位置的影响<sup>[5]</sup>(见图2插图). 对发光强度  $I$  随激发功率  $J$  变化的实验关系用  $I \propto J^n$  函数进行拟合得到  $n = 0.666$  (见图2). 这一发射强度按激发功率的平方根增长关系也表明该发射是束缚态间的跃迁<sup>[4]</sup>.

由图1样品 A 的光致发光光谱可见在带尾发射上叠加有峰值位置在3.360eV 和3.

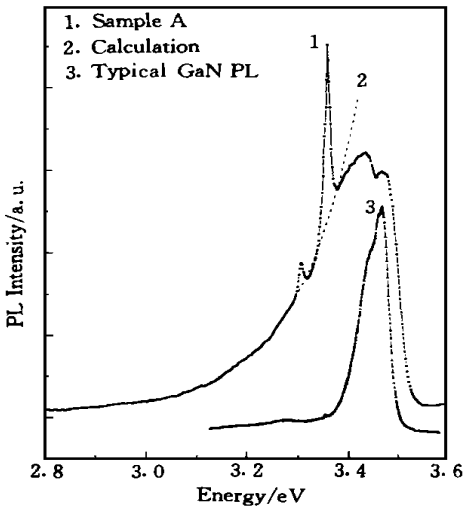


图1 低温(12K)典型非故意掺杂 GaN 和样品 A 的光致发光光谱. 虚线为按  $\exp\{E/E_0\}$ ,  $E_0 = 142\text{meV}$  对谱线低能边拟合的曲线

Fig. 1 Typical PL of undoped GaN and sample A at 12K. The dish line is the fit of data according to the function of  $\exp\{E/E_0\}$  and  $E_0 = 142\text{meV}$ .

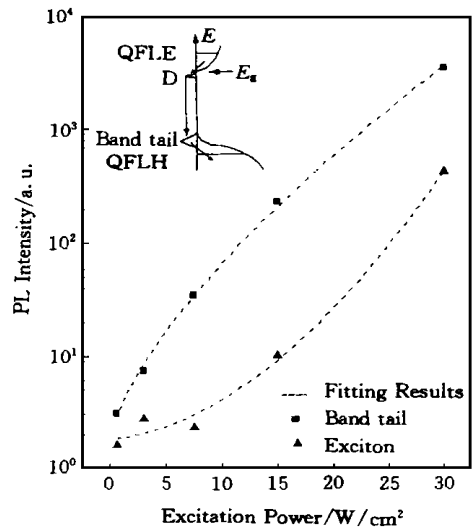


图2 低温下(12K)带尾发射和深束缚激子(峰值3.360eV)发射与激发功率的关系. 虚线为按  $I \propto J^n$  拟合曲线, 对带尾发射  $n = 0.666$ , 对深束缚激子发射  $n = 1.987$ . 插图给出带尾辐射跃迁模型

Fig. 2 Excitation power dependence of PL intensities at 12K. The dish lines are the fit of data to the function of  $I \propto J^n$  and  $n = 0.666$  for band tail emission,  $n = 1.987$  for deep bound exciton transition. The inset shows the model for radiation recombination from band tail.

307eV 的很尖锐的发光峰. 由于样品 A 中宽带发射光谱低能边谱线线型可用  $e$  指数很好描述, 因此可单独对该发射进行细致讨论. 首先 3.360eV 发光峰的谱线线型拟合显示该发射为洛仑兹型(如图3插图所示), 这表明发射与声子间为弱耦合. 同时, 从发射谱线相对强度分析, 声子伴线间的相对强度应符合泊松分布. 由于高能方向没有更强的零声子发射线. 因此该发射不应是近带发射的声子伴线而更可能是深束缚激子发光. 其次, 对 3.360eV 发光强度  $I$  随激发功率  $J$  按  $I \sim J^n$  函数进行拟合得到  $n = 1.987$ (如图2所示). 这种按平方规律的增长关系也表明该发射具有激子发射特性<sup>[6]</sup>. 考察 3.360eV 发射峰的温度行为, 随温度升高, 3.360eV 发射强度单调衰减, 而在其高能方向大约 13meV 出现另一条谱线, 谱线拟合显示其线型也是洛仑兹型. 这一峰值在 3.373eV 的高能发射的发光强度随温度升高在  $T < 40\text{K}$  温度范围迅速增长, 然后开始衰减至大约 120K 时消失. 图3给出 3.360eV 发射峰的温度猝灭和 3.373eV 发射峰随温度变化关系. 细致分析发现, 3.360eV 发射的温度变化可用下式描述:

$$I(T) = \frac{I_{01}}{1 + C_{01}\exp(-E_{01}/k_B T)} + \frac{I_{02}}{1 + C_{02}\exp(-E_{02}/k_B T)} \quad (1)$$

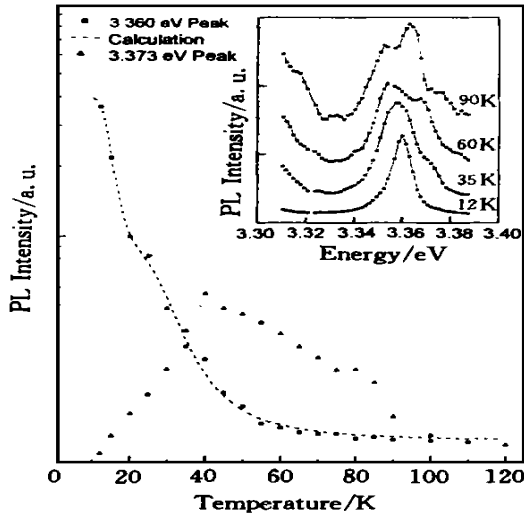


图3 3.360eV 深束缚激子及3.373eV 发光强度随温度变化关系. 虚线给出根据公式(1)拟合曲线. 插图给出不同温度下深束缚激子光致发光光谱

Fig. 3 Temperature dependence of PL intensities of deep bound exciton at 3.360eV and 3.373eV. The dish line is the fit of data to the function (1). The inset shows the PL of deep bound exciton under different temperature.

拟合实验值得到热激活能  $E_{01} = 11.2\text{meV}$ ,  $E_{02} = 17.9\text{meV}$ . 对这两个猝灭过程, 由于在较低温度范围随温度升高, 3.373eV 发射强度增加且峰值位置相差 13meV, 很接近热激活能  $E_{01}$ . 因而第一项描述 3.360eV 深束缚激子由于温度升高热激发转化为较高能量 3.373eV 的发射而使自身发光强度减弱. 第二项描述 3.360eV 深束缚激子的热猝灭过程. 由于激活能  $E_{02}$  远小于发光峰值能量与禁带宽度能量差, 并且考虑价带尾的存在, 可以认为深束缚激子的热猝灭过程是通过带尾的热离化. 高密度位错缺陷形成的定域能级调制能带形成带尾. 如果激子束缚于位错中心, 则具有小的激活能而通过价带尾的离化过程是可以理解的.

### 4 结 论

通过研究 GaN 材料界面附近的光致发光光谱, 观察到带尾有关的辐射跃迁. 同时研究了峰值位于 3.360eV 发射的发光特性和温度特性. 认为该发射源于束缚激子发光. 由温度变化规律得到其热猝灭包含两个过程. 较低温度下, 激子转化为较高能量发射

占主导, 较高温度下, 激子通过带尾热离化过程占主导.

致谢 作者在此对金亿鑫研究员, 黄世华研究员对本工作给予的有益帮助谨致衷心感谢.

### 参 考 文 献

- [ 1 ] Nakamura S, Senoh M, Iwasa N *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1995, **67**: 1868.
- [ 2 ] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., 1996, **35**: L74.
- [ 3 ] Lester S D, Ponce F A, Craford M G *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1995, **66**: 1249.
- [ 4 ] Grieshaber W, Schubert E F, Goepfert I D *et al.*, J. Appl. Phys., 1996, **80**: 4615.
- [ 5 ] Pankove J I. Optical Processes in Semiconductors, Dover, New York, 1971, Chap. 6.
- [ 6 ] Schmidt T S, Lischka K. Phys. Rev. B, 1992, **45**: 8989.

## PHOTOLUMINESCENCE PROPERTIES OF BAND TAIL AND EXCITON ON GaN GROWN BY MOCVD

Song Hang

(*Changchun Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130021*)

### Abstract

GaN crystalline have been grown by low pressure MOCVD. The optical properties and its relationship with the densities of dislocation have been studied. It has been investigated that the photoluminescence spectrum of GaN near interface showed as a broaden emission band and some narrow peaks. The broaden band emission may derive from the transition between shallow donor and dislocation related valance band tail. The excitation power and temperature dependence of photoluminescence intensities have been studied. The experimental results indicate that the narrow emission peaks origin from the deep-bound exciton and the dislocation may act as the bounding center.

**Key words** band tail, photoluminescence, exciton