

文章编号: 1000-7032(2009)01-0073-04

MOVPE 生长 GaN 薄膜的 光致黄带发光与激发光源的相关性

王明月, 苑进社*, 于国浩

(重庆师范大学 物理学与信息技术学院, 重庆 400047; 重庆市高校光学工程重点实验室, 重庆 400047)

摘要: 用四种不同光源作为激发光源,研究了蓝宝石衬底金属有机物汽相外延方法生长的氮化镓薄膜的光致发光特性。结果发现用连续光作为激发光源时,光致发光谱中除出现 365 nm 的带边发射峰外,同时观察到中心波长位于约 550 nm 的较宽黄带发光;而用脉冲光作为激发光源时其发光光谱主要是 365 nm 附近的带边发光峰,未观察到黄带发光。氮化镓薄膜的光致发光特性依赖于所用的激发光源性质。

关键词: GaN 薄膜; 光致发光光谱; 脉冲光源; 连续光源

中图分类号: O482.31

PACC: 3250F; 7855

文献标识码: A

1 引 言

近年来,Ⅲ-V族氮化物宽禁带直接带隙半导体材料已经成为当前半导体科学技术领域国际性的研究热点。其中,GaN 具有宽直接带隙(3.39 eV)、电子漂移饱和速度高、介电常数小、导电性能好、击穿电压高和高温化学稳定性好等特点,所以它非常适合制作抗辐射、高频、大功率、耐高温和高密度集成的微电子器件和短波长光电子器件^[1]。在 GaN 基光电子器件应用中,材料的光学性质特别是光致发光特性是影响光电子器件性能的重要因素。

有关 GaN 薄膜的光致发光(PL)特性研究已有报道,在众多文献报道中,不同的样品所测的光致发光谱不尽相同;对同一发光带,不同文献对它的来源解释也有所不同,也就是说至今人们对 GaN 的光致发光特性尤其是黄带发光起源还没有统一的认识^[2~5]。之前人们研究的大多是关于不同条件下生长 GaN 样品的光致发光特性,对于同一 GaN 样品,使用不同激发光源实验研究其光致发光光谱特性尚未见报道。因此,研究 GaN 薄膜光致发光光谱与激发光源的相关性对进一步认识黄带发光的机理,探索黄光辐射复合的起源具有重要的意义。

本文实验研究了 MOVPE 法生长的 GaN 外延层分别在连续和脉冲光源激发下的光致发光谱。根据实验结果和查阅分析相关文献,对在实验中所观察到的黄光发光带的与所用激光光源的相关性进行了分析讨论。

2 实 验

实验所用样品是以蓝宝石为衬底,三甲基镓、三甲基铝和氨气分别作为镓源、铝源和氮源。在蓝宝石衬底上先生长约 5~10 nm 的 AlN,然后再生长约 10~30 nm 的 GaN 缓冲层,最后生长 1 000 nm 的 GaN 外延层。室温连续光激发 PL 谱实验使用苏格兰爱丁堡仪器公司(Scotland Edinburgh Instruments)制造的 FS-920 荧光光谱仪,这种光谱仪基于单光子计数技术,是目前世界上较先进的稳态荧光光谱仪。连续激发光波长分别选为 325 nm(3.8 eV)、350 nm(3.5 eV)和 363 nm(3.41 eV)。同时选用 He-Cd 激光器 325 nm 连续光作激发光源进行对比试验。脉冲光激发 PL 光谱实验用的激发光源为 KimmonIK3351 型 He-Cd 连续激光器,功率为 15 mW,激光光子的能量为 3.8 eV(波长为 325 nm),激光频率为 375 Hz 的斩波器斩波,用单色仪、光电倍增管、锁相放大器等组成测试系统,计算机采样,记录并输出。作

收稿日期: 2008-10-25; 修订日期: 2008-12-24

基金项目: 博士启动基金资助项目(06XLB008)

作者简介: 王明月(1981-),女,吉林梅河口人,主要从事氮化物半导体材料与器件的研究。

*: 通讯联系人; E-mail: yuanjesse@yahoo.com.cn, Tel: (023)61700505

为对比试验使用 YAG 激光器:用 Quantel YG980 系列 YAG 脉冲激光器三倍频光(355 nm 约 3.5 eV)作激发光源。355 nm 光脉冲宽度 10 ns,重复频率 10 Hz,单脉冲能量约 20 mJ,光斑尺寸约 5 mm²。

3 结果与讨论

3.1 连续光激发 PL 谱

图 1 所示是样品在氙灯光源激发下的室温稳态 PL 谱。可见在 325 nm (3.82 eV)、350 nm (3.54 eV) 连续光激发下,PL 谱中出现 361 nm (3.43 eV) 的带边发光峰和约 369 nm (3.36 eV) 的邻近带边发光峰,见图中曲线 a, b。为了确认邻近带边的发光峰的起源,将激发光波长设定在 363 nm (3.41 eV) 低于带隙能量激发,结果发现带边 361 nm 发光峰消失,而邻近带边发光出现在 374 nm (3.32 eV),相对于原 369 nm (3.36 eV) 的邻近带边发光峰红移 40 meV,见图中曲线 c。在三种不同波长的光激发下,样品均可见很强的 500 ~ 700 nm 的黄带发光峰,其主峰位置在 569 nm (2.18 eV)。黄带发光强度随激发光波长变长即光子能量减小而增强,用波长 363 nm 光激发下黄带发光强度比用波长 325 nm 光激发增强约 1 倍以上,发光强度计数约为 $(1.25 \sim 3.0) \times 10^5$ 个,同时发现谱线半峰全宽 FWHM (0.48 eV) 并未发生明显变化,见图中虚线标识。

样品在 He-Cd 激光器连续光源激发下测得的室温稳态 PL 谱如图 2 所示。可见在波长为 325 nm 连续光激发下,不同光强度照射测得 PL 谱中均出现很强的 365 nm (3.4 eV) 带边发光峰,介于氙灯在 325 nm 和 350 nm 光激发下出现的

图 2 He-Cd 激光器连续光激发下 GaN 薄膜的 PL 谱
Fig. 2 PL spectra of GaN thin film excited by He-Cd continuous wave laser

361 nm 带边峰和 369 nm 邻近带边峰之间。在不同强度光照射下,PL 谱中也均出现较强的宽黄带发光峰,其范围也在 500 ~ 700,与氙灯激发下黄带发光峰宽度一致。但其主峰位置在 550 nm (2.25 eV),比氙灯激发下主峰位置蓝移 19 nm。将非对称黄带主发光峰进行高斯拟合,结果发现是由三个分峰构成,其峰位分别为 535 nm (2.32 eV)、576 nm (2.15 eV) 和 590 nm (2.10 eV) (如插图所示)。另外从图中还可以看出,不论是带边发光还是黄带发光,其相对强度都随激发光强度的增加而增强。

3.2 脉冲光激发 PL 谱

图 3 为样品在 He-Cd 脉冲光激发下 PL 谱,在波长为 325 nm 脉冲光激发下,PL 谱中出现半峰全宽约为 10 nm 的很强的 364 nm (3.4 eV) 带边发光峰和一个位于 487.3 nm (2.54 eV) 的很窄的弱发光峰,未观察到黄带发光。该带边发光峰位与前面用连续光激发下得到的发光峰位基本一致,拟合后发现由 363.3 nm (3.4 eV) 和 367.4 nm

图 1 氙灯连续光激发下 GaN 薄膜 PL 谱

Fig. 1 PL spectra of GaN thin film excited by Xe lamp continuous wave source

图 3 He-Cd 脉冲光激发下 GaN 薄膜的 PL 谱

Fig. 3 PL spectra of GaN thin film excited by He-Cd pulse wave laser

(3.38 eV) 的两个峰构成(如插图所示)。而 487.3 nm 处的弱蓝带发光峰, 我们认为可能是与杂质碳有关的辐射复合跃迁, 目前尚无较好的解释, 有待进一步实验研究。

图 4 为样品在 YAG 脉冲光激发下 PL 谱, YAG 激光器三倍频光波长为 355 nm (3.5 eV), 观察到 PL 谱中出现很强的 364 nm (3.4 eV) 带边发光峰和右侧一个位于 373 nm (3.3 eV) 的肩峰。这一实验结果与 He-Cd 脉冲光激发下 PL 谱带边峰拟合结果一致, 同时也未观察到黄带发光。

图 4 YAG 脉冲光激发下 GaN 薄膜的 PL 谱

Fig. 4 PL spectra of GaN thin film excited by YAG pulse wave laser

通过以上 4 种不同光源激发下 PL 的对比试验, 结果发现样品在连续光源激发下都出现较宽黄带发光峰, 在脉冲光源激发下都未出现黄带发光, 而带边发光的主峰位置基本一致。分析认为光致发光光谱主要与激发光光子能量和光功率密度有关。在本实验范围内, 由于连续光激发光功率密度相对较低, 而脉冲光激发光功率密度较高。在光功率密度较高的条件下, 光激发产生的非平

衡载流子具有较高的浓度。使得导带或浅施主能级与深受主能级间的辐射复合跃迁处于饱和状态, 也就是深受主能级空状态密度较低, 导致深能级辐射复合几率较小; 导带或浅施主能级与深受主能级间的辐射复合跃迁产生的黄带发光受到抑制, 而大量非平衡电子从导带或浅施主能级到价带的带间辐射复合跃迁几率较大。所以在图 3 和图 4 中只出现较强的带边辐射复合发光峰, 未观察到黄带发光。对非掺杂的 GaN 的黄光发光机理, 归纳起来, 主要有两种机制: 第一种机制是从导带或浅施主能级向深受主能级的跃迁^[5-7], 第二种机制是深施主能级向浅受主能级的跃迁^[8]。更多的理论和实验支持第一种形成机制, 但是关于浅施主和深受主是由什么缺陷或杂质产生的这一问题仍没有达成共识^[9,10]。本文的实验结果对进一步研究 GaN 中的黄带发光机制提供一种新的思路, 对深入探索黄带发光的物理起源有一定的参考价值。

4 结 论

用 4 种不同光源作为激发光源实验研究了金属有机物汽相外延(MOVPE)方法在蓝宝石衬底上生长的 GaN 的 PL 性质, 结果发现采用两种连续光作为激发光源时, 光致发光光谱中均出现较宽的黄带发光, 其中心波长位于 550 nm 附近。采用两种脉冲光作激发光源 PL 光谱中主要出现中心波长位于约 365 nm 的带边发光峰。结果表明 MOVPE 蓝宝石衬底上生长的 GaN 薄膜的 PL 中黄带发光特性与激发光源性质有关。

参 考 文 献:

- [1] Ponce R A, Bour D P. Nitride-based semiconductors for blue and green light-emitting devices [J]. *Nature*, 1997, **386** (6623):351-369.
- [2] Neugebauer J, Van De Walle, Chirs G. Gallium vacancies and the yellow luminescence in GaN [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**(4):503-505.
- [3] Kang J, Ogawa T. Yellow luminescence from precipitates in GaN epilayers [J]. *Appl. Phys. A*, 1999, **69**(6):631-635.
- [4] Herrera-Zaldivar M, Fernandez P, Piqueras J, et al. Origin of yellow luminescence from reduced pressure grown bulk GaN crystals [J]. *Appl. Phys. A*, 2000, **71**(1):55-58.
- [5] Neugebauer J, Chris G, Van de Walle. Atomic geometry and electronic structure of native defects in GaN [J]. *Phys. Rev. B*, 1994, **50**(11):8067-8069.
- [6] Shalish I, Kronnik L, Segal G, et al. Yellow luminescence and related deep levels in unintentionally doped GaN films [J]. *Phys. Rev. B*, 1999, **59**(15):9748-9751.

- [7] Perlin P, Suski T, Teisseyre H, *et al.* Towards the identification of the dominant donor in GaN [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **75**(2):296-299.
- [8] Glaser E R, Kennedy T A, Doverspike K, *et al.* Optically detected magnetic resonance of GaN films grown by organometallic chemical-vapor deposition [J]. *Phys. Rev. B*, 1995, **51**(19):13326-13336.
- [9] Shalish I, Shapira Yoram, Burstein L, *et al.* Surface states and surface oxide in GaN layers [J]. *J. Appl. Phys.*, 2001, **89**(1):390-395.
- [10] Zhang Xiaodong, Lin Dexu, Li Gongping, *et al.* Broadband yellow luminescence in the photoluminescence spectra of n-GaN implanted by the different ions [J]. *Acta Phys. Sin.* (物理学报), 2006, **55**(10):5487-5493 (in Chinese).

Correlation of the Yellow Photoluminescence and Excitation Sources of GaN Film Grown by MOVPE

WANG Ming-yue, YUAN Jin-she, YU Guo-hao

(Key Laboratory of Optical Engineering, Chongqing Normal University, Chongqing 400047, China)

Abstract: The III-V nitrides have been nowadays successfully used as active layer in high-brightness blue and green light emitting diodes (LEDs) and lasers diodes (LDs). It is more essential to know optical properties of the GaN based semiconductor materials such as optical band gap and radiation recombination transition prior to new devices fabrication. Photoluminescence (PL) spectrum is the most common tools to be employed for studying gap states in GaN. A frequent finding is that when GaN films are exposed to super-band gap illumination, a characteristic yellow luminescence band (YLB) is often observed. Many studies have attempted to uncover the origin of the yellow luminescence in GaN films. In this paper, we present an experimental investigation of the selected GaN samples grown by metal organic vapor phase epitaxy (MOVPE), using photoluminescence (PL) spectra excited with different excitation sources. The samples studied here are nominally undoped GaN of 1 000 nm thick grown on a 10 ~ 30 nm AlN epilayer by MOVPE. Prior to the GaN epilayer growth, a 5 ~ 10 nm thick AlN buffer layer was grown on *c*-plane Al₂O₃ substrate. The PL spectra of the sample are excited separately by using four different excitation light sources. The correlation of the photoluminescence spectra and excitation source of the GaN film grown by metal organic vapor phase epitaxy on sapphire substrates were investigated. By analysis of the PL spectra, it has been found that the yellow luminescence band appears when continuous wave Xe lamp and He-Cd laser sources are used. The central wavelength of wider YLB is located at near 550 nm and the main peak of the band edge emission is observed at 365 nm. The YLB tends to disappear when, He-Cd and YAG pulse wave sources are employed. This phenomenon was attributed to impurity band saturation when the samples were excited by the pulse wave light sources with the high power density. It was concluded that the yellow radiation evidently depends on the excited light source.

Key words: GaN film; photoluminescence spectra; pulse light source; continuous light source