

文章编号: 1000-7032(2024)06-0894-11

4H-SiC衬底上生长参数对AlGa_N基深紫外多量子阱受激辐射特性的影响

张睿洁^{1,2}, 郭亚楠^{1,2*}, 吴 涵^{1,2}, 刘志彬^{1,2}, 闫建昌^{1,2,3*},
李晋闽^{1,2,3}, 王军喜^{1,2*}

(1. 中国科学院半导体研究所 宽禁带半导体研发中心, 北京 100083;

2. 中国科学院大学 材料科学与光电技术学院, 北京 100049;

3. 山西中科璐安紫外光电科技有限公司, 山西 长治 046000)

摘要: SiC衬底是制备高性能AlGa_N基深紫外激光器的良好候选衬底。采用金属有机化学气相沉积方法在4H-SiC衬底上生长了深紫外AlGa_N/AlN多量子阱结构(MQWs), 系统研究了MQWs生长参数对深紫外激光结构自发辐射和受激辐射特性的影响规律。综合分析MQWs的表面形貌和发光性能后发现, 随着NH₃流量增加和生长温度升高, MQWs表面粗糙度降低, 内量子效率提升。经优化, MQWs的内量子效率达到74.1%, 室温下的激射阈值光功率密度和线宽分别为1.03 MW/cm²和1.82 nm, 发光波长为248.8 nm。这主要归因于高的NH₃流量和生长温度抑制了有源区中的碳杂质并入, 载流子辐射复合效率和材料增益增加; 同时生长速率降低, 改善了MQWs结构的表面形貌, 降低了界面散射损耗。采用干法刻蚀和湿法腐蚀的复合工艺制备了光滑陡直的谐振腔, 激光器的腔面损耗降低, 阈值光功率密度和线宽进一步降低至889 kW/cm²和1.39 nm。

关键词: AlGa_N; SiC; 光泵浦激光器; V/III比; 生长温度

中图分类号: O482.31

文献标识码: A

DOI: 10.37188/CJL.20240080

Effects of Growth Parameters on Stimulated Emission Characteristics of AlGa_N-based Deep Ultraviolet Multiple Quantum Wells on 4H-SiC Substrates

ZHANG Ruijie^{1,2}, GUO Yanan^{1,2*}, WU Han^{1,2}, LIU Zhibin^{1,2}, YAN Jianchang^{1,2,3*},
LI Jinmin^{1,2,3}, WANG Junxi^{1,2*}

(1. Research and Development Center for Wide Bandgap Semiconductors, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China;

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

3. Advanced Ultraviolet Optoelectronics Co., Ltd., Changzhi 046000, China)

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

Abstract: The SiC substrate is a good candidate for preparing high-performance AlGa_N-based deep ultraviolet (DUV) lasers. The DUV AlGa_N/AlN multiple quantum wells (MQWs) structures were grown on 4H-SiC substrates by metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD). The effects of MQWs growth parameters on the spontaneous and stimulated emission characteristics of the DUV laser structure were systematically studied. After the comprehensive analysis of the surface morphology and emission properties of MQWs, it was found that with the increase in NH₃ flow rate and growth temperature, the surface roughness of MQWs decreased and the internal quantum efficiency

收稿日期: 2024-03-26; 修订日期: 2024-04-10

基金项目: 国家重点研发计划(2022YFB3605104); 国家自然科学基金(62274163, 62022080, 62135013, 62234001, 62250071); 北京市科技新星计划(20230484466); 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, 62022080, 62135013, 62234001, 62250071); Beijing Nova Program(20230484466); Youth Innovation Promotion Association, CAS(2022000028, 2023123)

increased to 74.1%. At room temperature, the lasing wavelength, threshold optical power density and linewidth were 248.8 nm, 1.03 MW/cm² and 1.82 nm, respectively. The high NH₃ flow rate and growth temperature suppress the incorporation of carbon impurities in the active region, leading to an increase in carrier radiative recombination efficiency and material gain. Simultaneously, the reduced growth rate improves the surface morphology of the MQWs structure and reduces interfacial scattering losses. Furthermore, smooth and steep facets were prepared by combining dry etching and wet etching processes, which reduced the mirror loss of the laser. The threshold optical power density and linewidth were decreased to 889 kW/cm² and 1.39 nm, respectively.

Key words: aluminum gallium nitride; silicon carbide; optically pumped laser; V/III ratio; growth temperature

1 引言

基于宽禁带 AlGaIn 材料的深紫外发光二极管 (Deep ultraviolet light-emitting diode, DUV LED) 和激光二极管 (Laser diode, LD) 具有无毒环保、体积小、便于集成且波长精确可调等优点, 在杀菌消毒、高密度信息存储、医疗、生化检测和非视距通讯等领域具有广泛的应用需求^[1-5]。随着 AlGaIn 材料晶体质量的不断提升、外延层结构的设计优化以及光提取效率的突破, 目前 DUV LED 已基本能满足中、低功率应用场景需求, 其在 10 mA 电流下的峰值电光转换效率达到~15.3%^[6], 在 350 mA 大注入电流下的电光转换效率也接近 10%^[7]。在 DUV LD 研究方面, 国际上则只有日本旭化成、名古屋大学和名城大学团队实现了电注入激射^[8-9]。这是因为 DUV LD 对材料质量、载流子注入效率、光限制结构设计和谐振腔工艺等有着更高的要求。为实现电泵浦激光器的低阈值室温连续激射, 通常会先采用光泵浦技术路线来研究激光器有源区的增益损耗特性。

目前, 研究人员已在蓝宝石、SiC 和 AlN 等多种衬底上实现了 AlGaIn 深紫外多量子阱结构 (Multiple quantum wells, MQWs) 的光泵浦激射, 阈值光功率密度范围在 3 kW/cm² 至十几 MW/cm²^[10-17]。AlGaIn 基 MQWs 的关键生长参数和工艺均对激光器的激射特性有很大影响, 掌握它们的影响规律对提升 DUV LD 的内量子效率 (Internal quantum efficiency, IQE)、降低激射阈值至关重要。点缺陷作为常见的非辐射复合中心, 会对 IQE 和激射阈值产生不利影响, 因此需要对生长条件包括温度、压力、金属/氮化学势、掺杂等进行协同优化。Jeschke 等发现对 AlGaIn MQWs 进行弱 Si 掺杂 (浓度 < 1×10¹⁸ cm⁻³) 时, 阳离子空位及其复合物的密度有效降低, 内量子效率提高, 波长在 244 nm 附近的深紫外激光器的激射阈值相应降

低^[18]。Kirste 等报道了采用高 V/III 比的高过饱和生长条件能有效抑制有源区和波导中的非故意点缺陷, 激射阈值降低到 10 kW/cm² 以下, 激射波长为 267 nm^[16]。他们还进一步优化了增益区的设计, 增加势垒中的 Al 组分以抑制载流子泄漏到势垒层, 同时减小阱层的厚度来缓解量子限制斯塔克效应, 最终在 AlN 单晶衬底上实现了阈值低至 3 kW/cm² 的深紫外光泵浦激射^[17]。由于大尺寸且低成本的 AlN 单晶衬底较难获得, Al(Ga)N 材料通常生长在蓝宝石和 SiC 等异质衬底上。异质衬底和外延层之间存在晶格失配和热失配, 不可避免地导致 AlGaIn 材料中出现高密度穿透位错。研究表明, UV LD 的阈值电流密度和穿透位错密度之间存在明显的线性关系^[19]。当位错密度从 5.3×10⁹ cm⁻² 降低至 7.5×10⁸ cm⁻², 发光波长范围在 295~302 nm 的激光器的阈值光功率密度从 500 kW/cm² 降低至 35 kW/cm²^[20]。日本山口大学的研究组使用高质量的高温退火 AlN/蓝宝石作为光泵浦激光器的模板, 室温下的阈值光功率密度仅 69 kW/cm²; 温度降低至 10 K 时, 由于点缺陷被冻结, 阈值光功率密度进一步降低至 13 kW/cm²。室温和 10 K 下的激射波长分别位于 274 nm 和 277 nm^[21]。

SiC 衬底是制备高性能深紫外激光器的优选衬底之一。SiC 衬底和 Al(Ga)N 具有相似的晶体结构和小的晶格失配、热失配, 热导率高, 并且容易通过解理形成边发射激光器所需的高品质谐振腔。此外, SiC 衬底很容易通过干法刻蚀剥离, 为发展垂直腔面发射激光器、微腔激光器等多腔型的深紫外激光器提供了巨大的潜力。日本工科大学 Takano 研究组曾在 SiC 衬底上实现了第一个 AlGaIn 基深紫外光泵浦激光器, 室温下的发光波长和激射阈值分别为 241.5 nm 和 1 200 kW/cm²^[22-23]。此后, 陆续有三重大学、京都大学、加州大学圣芭

芭拉分校等开展了 SiC 衬底的 Al(Ga)N 材料外延和深紫外 LED 器件研究^[24-29]。我们课题组也报道了高温退火 AlN/SiC 模板的极性调控研究^[30]。但国际上针对 SiC 衬底上的 DUV LD MQWs 的生长和激射特性研究仍相对较少。本文采用金属有机化学气相沉积 (Metal-organic chemical vapour deposition, MOCVD) 技术在 4H-SiC 衬底上生长了 AlGaN/AlN MQWs 结构, 研究了 NH₃ 流量和生长温度对有源区点缺陷和生长形貌的影响规律, 优化后的激射阈值和线宽分别为 1.03 MW/cm² 和 1.82 nm。通过“两步法”复合刻蚀工艺制备的激光器谐振腔, 激射阈值和线宽进一步降低至 889 kW/cm² 和 1.39 nm。

2 实 验

首先将 SiC 衬底依次放入浓硫酸双氧水混合溶液、缓冲氧化物刻蚀液中, 分别浸泡 10 min 和 2 min, 以去除衬底表面的有机沾污和金属颗粒。然后将 SiC 衬底放入 MOCVD 腔室中, 在 H₂ 氛围中对衬底表面进行原位高温清洁。为了避免表面 SiN_x 的形成, 在该过程中不通入 NH₃。随后, 分别在 950 °C 和 1 100 °C 下生长了 20 nm 的中温 AlN 缓冲层和 800 nm 的高温 AlN 层, 对应的 V/Ⅲ 比分别

为 27 和 5。获得的 AlN 模板表面为原子台阶流形貌, (0002)/(10-12) 面 X 射线摇摆曲线的半高宽 (Full width at half maximum, FWHM) 分别为 226.8/672.6 arcsec, 计算得到的螺位错和刃位错密度分别为 $1.12 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 和 $5.14 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ^[31]。继续在 AlN 模板上生长了 50 个周期 Al_{0.7}Ga_{0.3}N/AlN MQWs, 其中 Al_{0.7}Ga_{0.3}N 量子阱 (Quantum well, QW) 和 AlN 量子垒 (Quantum barrier, QB) 的厚度分别约为 1.1 nm 和 1.8 nm。最后生长 20 nm AlN 盖层用于钝化表面和增强光场限制, 计算得到的光限制因子 ~26.5%。在 MQWs 生长过程中, NH₃ 流量和生长温度是主要的研究变量, 具体的生长参数如表 1 所示。对样品 1~3, 生长温度固定为 1 063 °C, NH₃ 流量分别设定为 8 000, 16 000, 24 000 mL/min。另一组对比实验中, 对样品 2 和 4、5, 固定 NH₃ 流量为 16 000 mL/min, 生长温度分别设置为 1 063 °C、1 084 °C 和 1 104 °C。相应地调整 MQWs 的 TMAI 源、TMGa 源流量和生长时间, 使五个样品的阱垒 Al 组分和厚度保持基本一致。为保证样品 2 和 4、5 的阱、垒的气相 V/Ⅲ 比基本不变, 调整过程中金属源的总量比设定为 112 μmol/min, 只调整 TMAI 源和 TMGa 源的相对比例。

表 1 不同 NH₃ 流量和温度下生长的 MQWs 的生长参数

Tab. 1 The growth parameters of MQWs grown with different NH₃ flow rates and temperatures

样品	NH ₃ 流量/(mL·min ⁻¹)	温度/°C	QB V/Ⅲ 比	QB 速率/(nm·s ⁻¹)	QW V/Ⅲ 比	QW 速率/(nm·s ⁻¹)
1	8 000	1 063	1 258	0.21	3 183	0.13
2	16 000	1 063	2 517	0.18	6 366	0.12
3	24 000	1 063	3 775	0.17	9 550	0.10
4	16 000	1 084	2 517	0.18	6 367	0.11
5	16 000	1 104	2 517	0.18	6 398	0.08

生长结束后, 采用激光划片辅助解理的方法将 MQWs 样品制备成激光器巴条。首先将晶片减薄至 150 μm; 然后用 355 nm 高能激光束在衬底背面沿着 [11-20] 方向划出解理导向沟槽, 按压裂片后得到腔长为 2 mm、腔面为 (1-100) 面的激光器巴条。使用 Veeco 公司型号为 Dimension 3100 的原子力显微镜 (Atomic force microscope, AFM) 表征所有样品的表面形貌。采用 Hitachi 公司型号为 S4800 的扫描电子显微镜 (Scanning Electron Microscope, SEM) 对谐振腔的腔面质量进行表征。采用脉冲宽度 5 ns、重复频率为 50 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, Spectropro HRS-500, 分辨率 ≤0.05 nm), 在样品正面测量了 MQWs 的远场光致发光谱 (Photoluminescence, PL)。采用 Spectra Physics 公司的 MaiTai HP 飞秒激光器和 GWU-Lasertechnik 公司 UHG-24 倍频器得到 215 nm 激光, 在室温下激发 MQWs, 得到 PL 光谱分析点缺陷发光。在光泵浦测试系统中, 准分子激光源的重复频率降低到 20 Hz, 以尽量减少热效应。受激发射测量是在边发射配置中进行的, 使用光纤收集激光器巴条端面发射的光。

3 结果与讨论

3.1 NH₃流量的影响

首先研究了MQWs生长过程中NH₃流量的影响。多量子阱的生长温度固定为1 063 °C, NH₃分别设置为8 000, 16 000, 24 000 mL/min, 阱层的气相V/Ⅲ比分别为1 258, 2 517, 3 775, 垒层的气相V/Ⅲ比分别为1 258, 2 517, 3 775。图1展示了不同NH₃流量下MQWs样品的5 μm×5 μm范围表面AFM图像和变温PL光谱。可以看到, MQWs表面均呈现六方螺旋生长形貌。一般来说, 螺旋生长是由带有螺位错分量的位错钉扎效应诱导形成^[32]。3个样品表面的六方螺旋岛密度接近, 均在

(2.6~3.1)×10⁸ cm⁻²范围内, 表明AlN/SiC模板的晶体质量基本相同。但随着NH₃流量增加, 表面粗糙度降低, 六方螺旋岛的平均高度差分别为9.29, 8.12, 7.46 nm。这可能是因为随着NH₃流量的增加, 寄生反应增强, 阱垒的生长速率变慢, 表面粗糙度得以改善, 从而有助于降低阱垒界面的散射损耗。变温PL测试显示, 当温度从300 K降低至10 K时, 3个MQWs的峰值发光波长均蓝移2.07~2.82 nm。假设10 K时非辐射复合中心被完全冻结, 根据300 K和10 K下的PL积分强度比, 计算得到3个MQWs样品的IQE分别为63.2%、68.7%和70.9%。这表明, MQWs的IQE与NH₃流量成正相关关系。

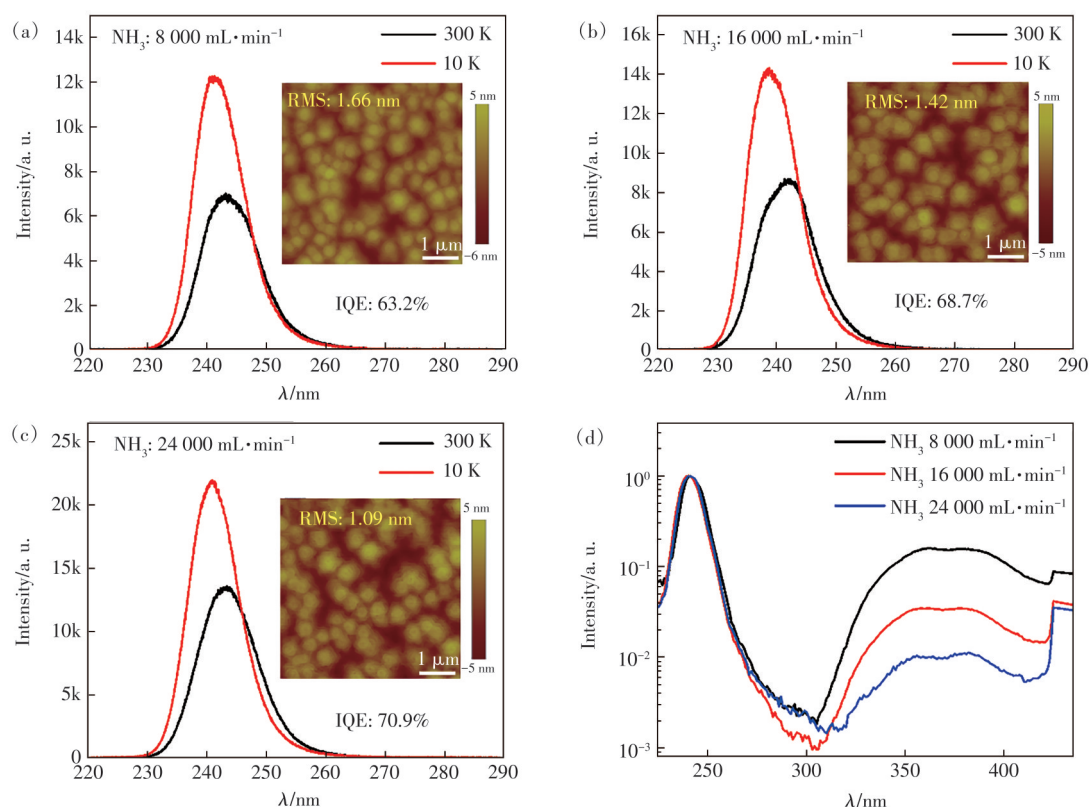


图1 (a)~(c)不同NH₃流量下生长的MQWs的AFM图像和变温PL光谱;(d)PL表面发射光谱对比,其激发源为215 nm倍频激光

Fig.1 (a)~(c)AFM images and temperature-dependent PL spectra of MQWs grown with different NH₃ flow rates. (d) Comparison of surface PL emission spectra. The excitation source in (d) is a 215 nm frequency-doubled laser

从图1(d)中可以看到, MQWs在375 nm附近有着明显的杂质发光带,这应当与Al_{0.7}Ga_{0.3}N量子阱中的C杂质相关^[33]。C杂质主要来源于金属源前驱体的分解^[34],并通过取代AlGa_N中的氮原子而并入晶格中。与氮原子类似,碳原子也是与带有Ga悬挂键的生长位点进行结合^[35]。为减

少C杂质,应促进金属源中的甲基(—CH₃)与H原子结合形成气态甲烷,随后通过气相传输被排出生长腔室。当增加NH₃通入流量时,生长表面附近的氮通量随着气相中的NH₃分压增加而增加,台阶边缘和弯折处的Ga悬挂键很快被N原子结合,而不与C原子结合;增加的NH₃也提供

了更多 H 原子,有助于形成甲烷,因此 C 杂质的并入率降低。Gaddy 等的第一性原理计算证明,相比于富 Al 环境,富氮环境下 C_N 点缺陷的形成能增加^[36]。Cruz 等认为,在快速生长的薄膜中,C 原子更容易被生长位点捕获,而且表面六方岛暴露出的半极性面(可能为(10-11)面)的增多也会增加 C 杂质并入的几率^[37-38]。从图 1 中观察到表面粗糙度随着 NH_3 流量的增加而降低,因此高流量 NH_3 下的低生长速率和表面光滑度的改善也抑制了 C 杂质的并入。 C_N 点缺陷浓度的降低有效减少了光生载流子向缺陷能级的非辐射弛豫,进而提高 IQE。

三种 MQWs 结构的室温光泵浦测试结果如图 2 所示。图 2(a)~(c)是激光器巴条的变功率 PL 光谱,图 2(d)~(f)汇总了 PL 积分强度、光谱半高宽、峰值波长随泵浦光功率密度的变化趋势。当 NH_3 流量为 8 000 mL/min 时,光谱半高宽随着泵

浦功率密度的增加而明显收窄,但半高宽最小值仍大于 4 nm,且图 2(d)中对应的光谱积分强度的斜率没有显著变化。当 NH_3 流量增加至 16 000 mL/min 和 24 000 mL/min 时,光谱积分强度在更低的泵浦功率密度下出现超线性增强。对应的阈值光功率密度分别为 1.78 MW/cm² 和 1.76 MW/cm²,激射后的最小光谱半高宽也降低至 2 nm 以下。在高泵浦功率密度下,3 个 MQWs 样品的峰值波长均红移。这一现象与温度依赖的禁带收缩效应有关,高泵浦功率密度导致工作温度升高,发光峰能量减小,因此波长红移。需要说明的是,3 个样品的发光波长略有差异,这主要来源于生长炉次间的非故意波动。总结来说,在大流量 NH_3 (即高 V/III 比)条件下生长的 MQWs 由于具有更平滑的形貌和更低浓度的 C_N 点缺陷,展现出了更高的增益和更低的内损耗,从而实现了更低阈值、更窄线宽的受激辐射。

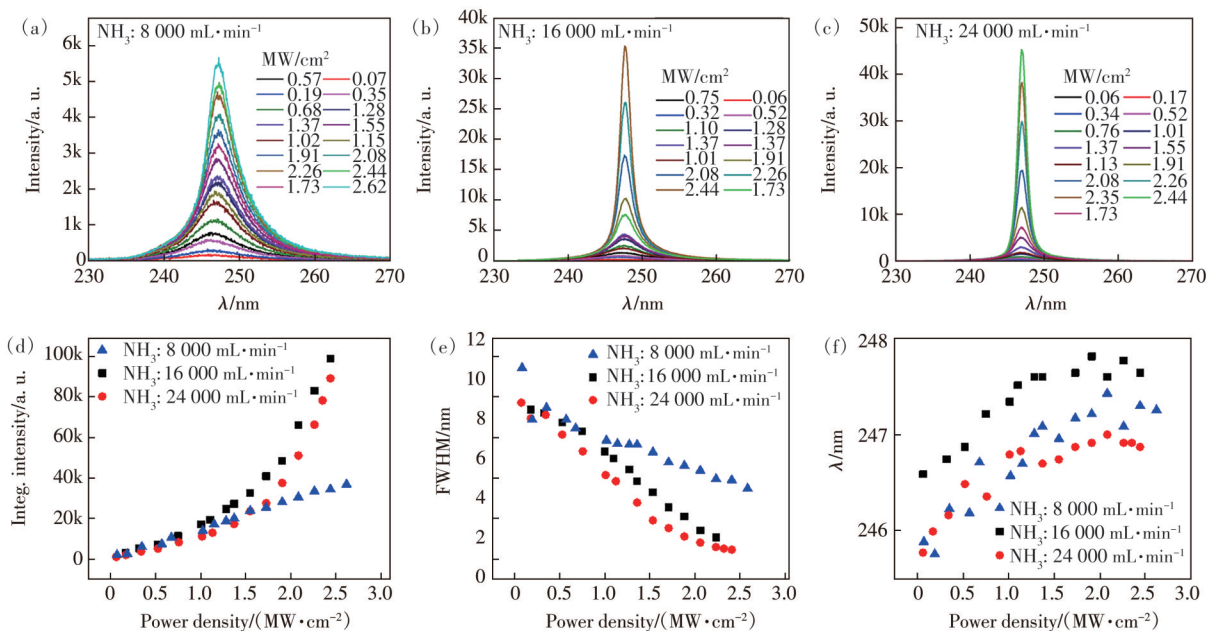


图 2 不同 NH_3 流量下生长的 MQWs 通过解理制备的激光器巴条的变功率 PL 光谱:(a) 8 000 mL/min, (b) 16 000 mL/min, (c) 24 000 mL/min; PL 积分强度(d)、光谱半高宽(e)和峰值波长(f)随泵浦光功率密度的变化

Fig.2 Power-dependent PL spectra of laser bars by cleaving: (a) 8 000 mL/min, (b) 16 000 mL/min, (c) 24 000 mL/min. Variations of PL integral intensity(d), spectral FWHM(e) and peak wavelength(f) with optical pumping power density

3.2 生长温度的影响

接下来,研究了 MQWs 生长温度的影响。固定 NH_3 流量为 16 000 mL/min, MQWs 的生长温度设置为 1 063, 1 084, 1 104 °C。图 3 展示了不同生长温度下 MQWs 样品的 5 μ m $\times$ 5 μ m 表面 AFM 图像和变温 PL 光谱,3 个样品表面螺旋岛的密度在 $(2.5\sim 2.9)\times 10^8$ cm⁻² 之间。随生长温度升高,

MQWs 的表面粗糙度从 1.42 nm 逐渐降至 1.03 nm,这主要是高温下的金属原子迁移能力增强所致。由 300 K 和 10 K 下的 PL 光谱计算得到的 IQE 分别为 68.7%、71.4% 和 74.1%,表明高温生长的 MQWs 具有更高的载流子辐射复合效率。从图 3(d)的 PL 光谱中观察到,随着温度升高,375 nm 附近的缺陷峰发光强度减弱,与前文类

似,这种缺陷发光被认为与AlGaIn量子阱中的 C_N 点缺陷相关。 NH_3 和 H_2 会在更高温度下更充分裂解出H原子,这些H原子随后与更多的甲基结合形成气态甲烷,降低了C杂质浓度^[39]。此外,随着温度升高,Ga原子的并入效率降低。为保证气相V/Ⅲ比和量子阱组分基本不变,高温下

AlGaIn QW层的TMGa源流量做适应性增加,TMAI源流量则相应减少。高Al组分AlGaIn的生长速率主要取决于TMAI源流量,因此 $Al_{0.7}Ga_{0.3}N$ QW层的高温生长速率降低,同时表面光滑程度改善,这也在一定程度上抑制了C杂质的并入。

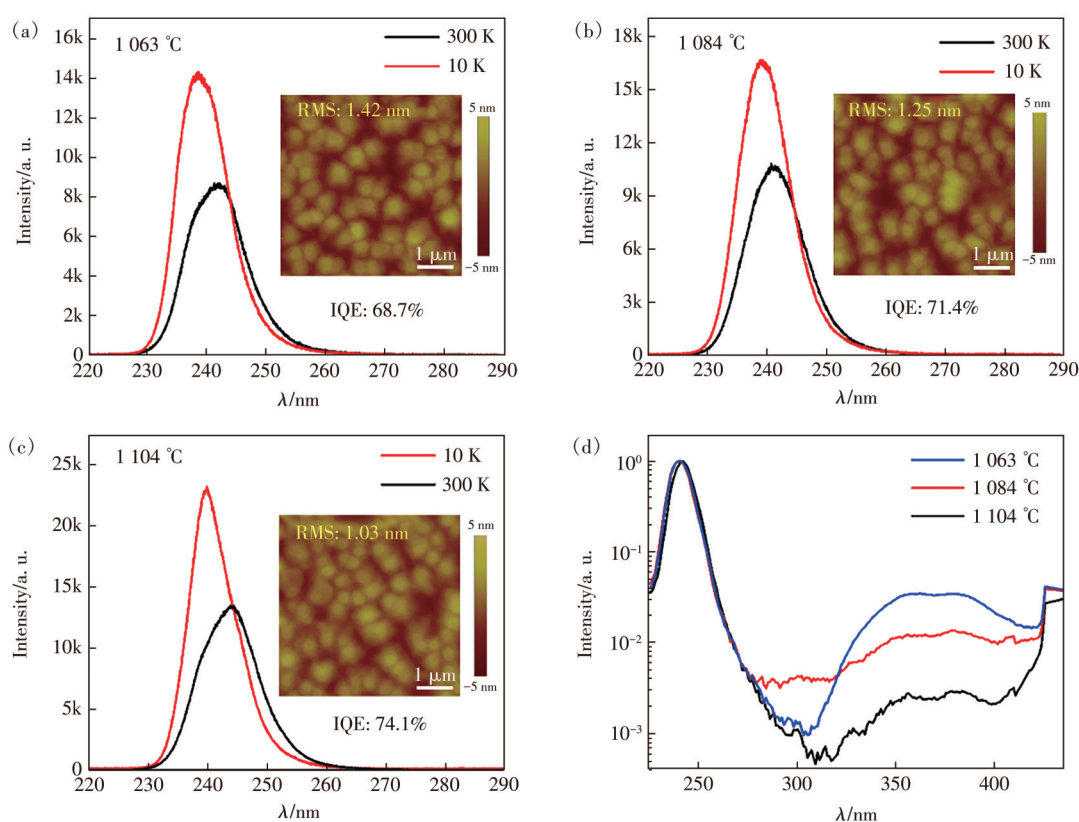


图3 (a)~(c)不同温度下生长的MQWs的AFM图像和变温PL光谱;(d)PL表面发射光谱对比,激发源为215 nm的倍频激光源

Fig.3 (a)~(c) AFM images and temperature-dependent PL spectra of MQWs grown with different temperatures. (d) Comparison of surface PL emission spectra. The excitation source in (d) is a 215 nm frequency-doubled laser

激光器巴条的光泵浦测试结果如图4所示。三种激光器巴条均出现了室温下的光泵浦激射,随着生长温度升高,阈值光功率密度分别为1.78, 1.63, 1.03 MW/cm²。相较于1063 °C生长样品,1104 °C生长的MQWs样品的激射阈值降低了42%。高温生长的样品具有更高的IQE和更低的表面粗糙度,因此阈值光功率密度显著降低,其光谱半高宽也具有更快的下降趋势,对应的激射波长和最小线宽分别为248.8 nm和1.82 nm。

我们还采用电感等离子体耦合(Inductively couple plasma, ICP)刻蚀和湿法腐蚀相结合的“两步法”复合刻蚀方法来制备激光器的腔面。对在 NH_3 流量为16 000 mL/min和1104 °C下生长的

MQWs样品,使用图形化的 SiO_2 作为“硬掩膜”,进行外延层的刻蚀。具体的ICP刻蚀条件为:ICP功率和RF功率分别为300 W和250 W, Cl_2 、 BCl_3 和Ar流量分别为23, 5, 22 mL/min,对应的刻蚀速率和刻蚀深度分别为4.9 nm/s和1 050 nm。刻蚀后的腔面侧视图和截面图如图5(a)、(b)所示,侧视SEM图像是通过将样品放置在倾斜45°的样品台上获取的。刻蚀后的腔面比较光滑,但腔面倾斜角较小,约为59°。随后采用质量分数为1%的四甲基氢氧化铵溶液溶液,水浴加热至70 °C后,将激光器腔面湿法腐蚀50 min。腐蚀后的腔面侧视图和截面图如图5(c)、(d)所示,有源区附近的腔面表面仍然比较光滑,角度近乎陡直;底层区域虽

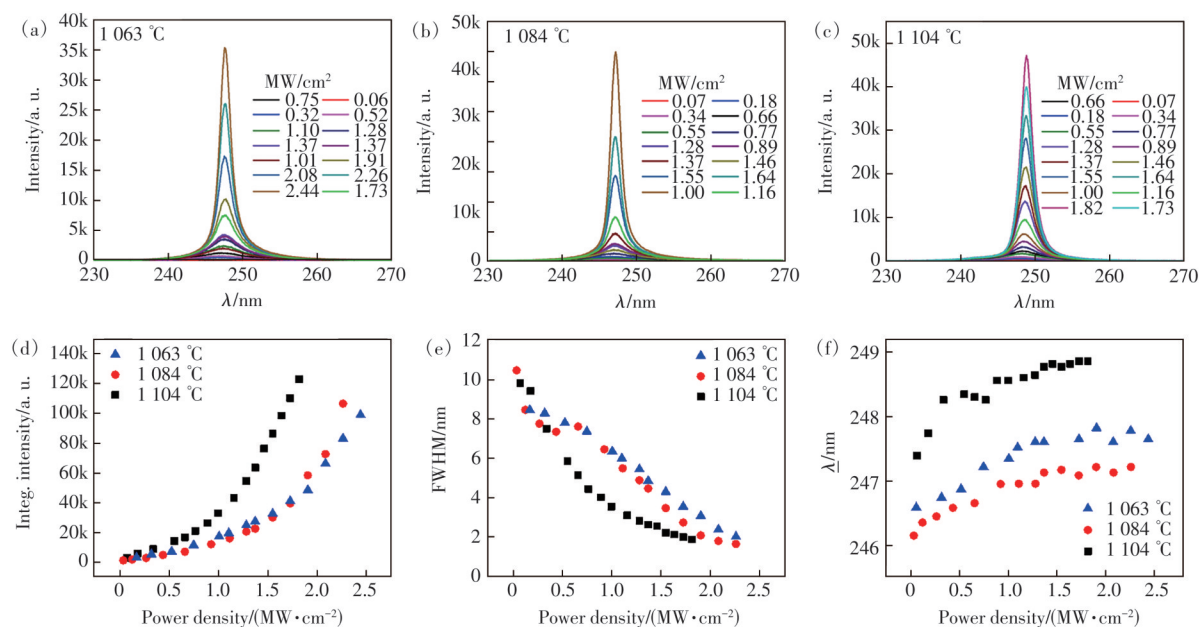


图4 不同温度生长的MQWs通过解理制备的激光器巴条的变功率PL光谱:(a)1063 °C, (c)1084 °C, (e)1104 °C; PL积分强度(d)、光谱半高宽(e)和峰值波长(f)随泵浦光功率密度的变化

Fig.4 Power-dependent PL spectra of laser bars by cleaving: (a)1063 °C, (b)1084 °C, (c)1104 °C. Variations of PL integral intensity(d), spectral FWHM(e) and peak wavelength(f) with optical pumping power density

出现了腐蚀速率较低的(1-103)高指数面,但这不会影响有源区位置谐振腔的反射率。此外,我们还给出了采用解理技术制备的腔面形貌。如图6所示,腔面上存在一些竖纹,这可能与SiC衬底的非故意斜切角、外延层中的晶粒扭曲以及所受到的应力等有关。因此,采用“两步法”复合刻蚀方法制备激光器的谐振腔能更有效地抑制腔面损耗。

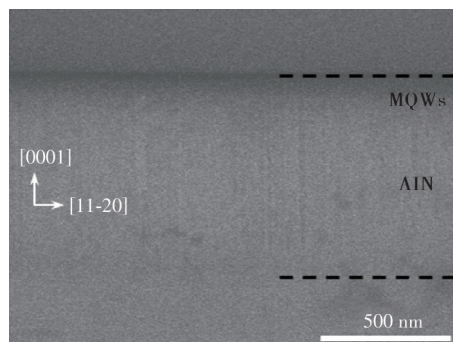


图6 解理后的腔面正视SEM图像

Fig.6 The front-view SEM image of the cleaved facet

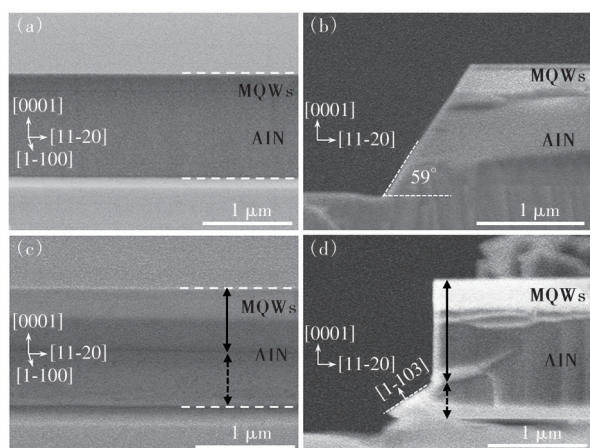


图5 ICP刻蚀后的腔面:(a)侧视SEM图像,(b)截面SEM图像;湿法腐蚀后的腔面:(c)侧视SEM图像,(d)截面SEM图像

Fig.5 Side-view (a) and cross-section (b) SEM images of the facet after ICP etching. Side-view (c) and cross-section (d) SEM images of the facet after wet etching

采用“两步法”复合刻蚀工艺制备的激光器巴条光泵浦测试结果如图7所示。图7(a)中展示了不同腔长的激光器巴条的光谱积分强度随泵浦光功率密度的变化,图7(b)总结了激射阈值和斜率效率随腔长的变化关系。这里,我们将图7(a)中阈值点之后线性部分的斜率视为斜率效率。随着腔长增加,激射阈值降低,斜率效率提高。阈值的降低归因于长腔长样品的腔面损耗降低。对于腔长为2000 μm的激光器巴条,激射阈值仅889 kW/cm²,相较前文的激光辅助解理技术降低了13.6%,激射后的斜率效率提高了1倍,光谱最小FWHM也进一步收窄到1.39 nm(图7(c))。这说明了“两步法”复合刻蚀工艺在腔面制备上的优越性,其制备的腔面角度趋近于垂直,表面光滑,腔

面损耗降低。后续还可以在光滑腔面上沉积布拉格反射镜来增加腔面的反射率、降低激射阈值。需要注意的是,增加谐振腔腔长和提高腔面光滑程度都会降低腔面损耗。理论上斜率效率随着腔面损耗的降低而降低,但在我们的实验结果中斜率效率存在反常规律。这可能是由于高阈值的激光器对应的阈值载流子浓度更高,高浓度载流子带来的低内量子效率和热效应导致斜率效率的变化规律与理想模型存在偏差。高工作温度也会导致禁带收

缩效应,因此随着泵浦光功率密度的增加,发光波长整体呈现红移的趋势(图7(c))。此外,针对两步法制备的腔长为2 000 μm 的激光器巴条,采用格兰偏振透镜测量了激射前后的TE和TM模光发射谱。如图7(d)所示,低于和高于阈值的发光谱都是TE偏振模式主导,对应的偏振度(定义为 $\rho=(I_{\text{TE}}-I_{\text{TM}})/(I_{\text{TE}}+I_{\text{TM}})$)分别为0.48和0.86。该结果与报道的蓝宝石和AlN单晶衬底上240~250 nm光泵浦激光器的TE偏振模式优先激射一致^[13,40-41]。

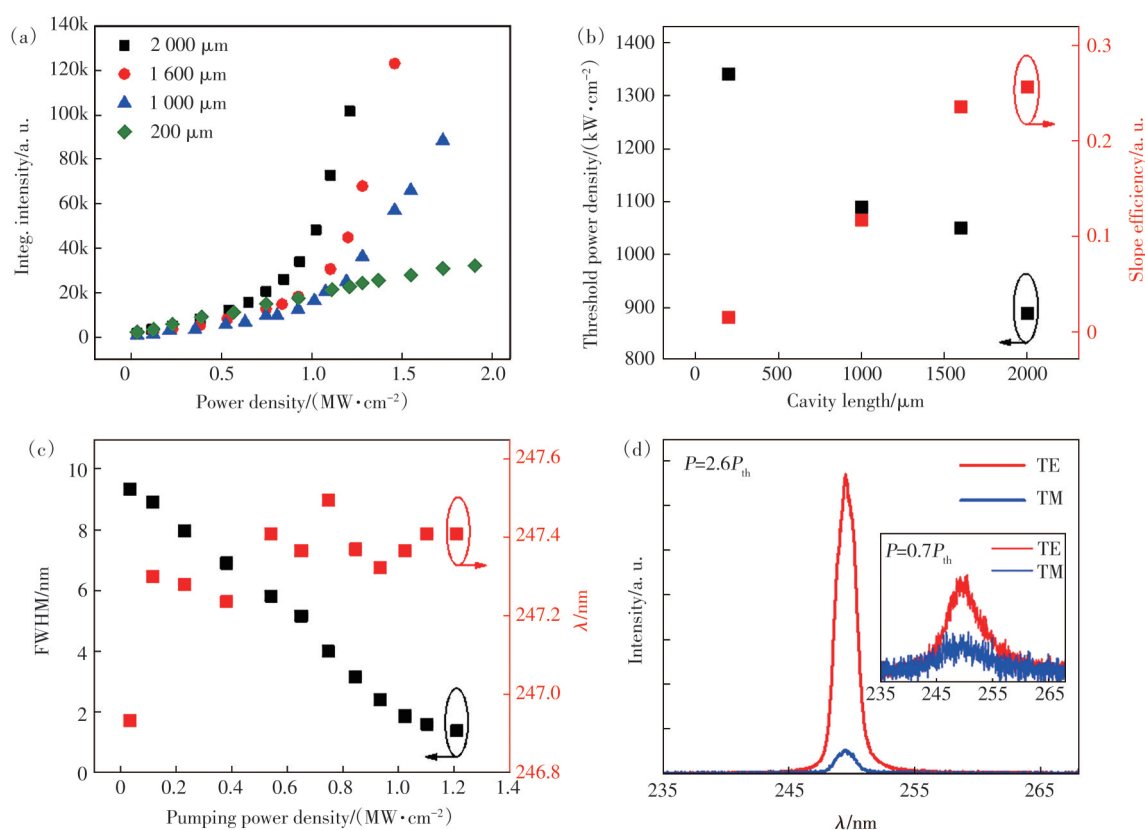


图7 采用两步法制备的不同腔长的激光器巴条:(a)PL积分强度随泵浦光功率密度的变化,(b)阈值光功率密度和斜率效率随腔长的变化;腔长为2 000 μm 的激光器巴条:(c)光谱半高宽和峰值波长随泵浦光功率密度的变化,(d)低于阈值($P=0.7P_{\text{th}}$,插图)和高于阈值($P=2.6P_{\text{th}}$)的TE和TM偏振模式光谱测试

Fig.7 Variations of PL integrated intensity with optical pumping power density (a) and threshold optical power density and slope efficiency with cavity length (b) for laser bars with different cavity lengths. Variations of spectral FWHM and peak wavelength with optical pumping power density (c) and TE- and TM-polarized PL spectra measured before stimulated emission ($P=0.7P_{\text{th}}$, inset) and after stimulated emission ($P=2.6P_{\text{th}}$) (d) for a laser bar with a cavity length of 2 000 μm . Laser bars were prepared by a two-step method

4 结 论

本研究采用MOCVD方法在4H-SiC衬底上制备了深紫外AlGaIn/AlN多量子阱结构,系统研讨了MQWs生长参数对深紫外激光结构自发辐射和受激辐射特性的影响。实验结果表明,随着 NH_3 流量

增加和生长温度升高,MQWs的表面粗糙度降低,IQE提高,最高IQE达到74.1%,相应的光泵浦激光器巴条的激射阈值降低。这种现象主要归因于高 NH_3 流量和高生长温度抑制了有源区中的 C_N 点缺陷,从而提高了载流子的辐射复合速率和材料增益;同时降低的生长速率改善了表面形貌,界面散

射损耗降低。在该优化条件下,通过解理制备的激光器在室温下的阈值光功率密度为 1.03 MW/cm^2 , 发光波长为 248.8 nm 。进一步采用“两步法”复合刻蚀工艺提升了腔面光滑度和陡直度,阈值光功率密度和线宽降低至 889 kW/cm^2 和 1.39 nm 。未来继续降低 AlN 模板层的位错密度以及在腔面沉积高反射率的布拉格反射镜,有望进一步提升

深紫外激光器性能。这些结果将为实现 SiC 衬底上的低阈值电泵浦 AlGaIn 基深紫外激光器提供重要参考。

本文专家审稿意见及作者回复内容的下载地址:
<http://cjil.lightpublishing.cn/thesisDetails#10.37188/CJL.20240080>.

参 考 文 献:

- [1] KNEISSL M, SEONG T Y, HAN J, *et al.* The emergence and prospects of deep-ultraviolet light-emitting diode technologies [J]. *Nat. Photonics*, 2019, 13(4): 233-244.
- [2] ZOLLNER C J, DENBAARS S P, SPECK J S, *et al.* Germicidal ultraviolet LEDs: a review of applications and semiconductor technologies [J]. *Semicond. Sci. Technol.*, 2021, 36(12): 123001.
- [3] 刘明哲, 李鹏翀, 邓高强, 等. 6H-SiC 衬底上 AlGaIn 基垂直结构紫外 LED 的制备 [J]. *发光学报*, 2017, 38(6): 753-759.
 LIU M Z, LI P C, DENG G Q, *et al.* Fabrication of vertical structure ultraviolet LED on 6H-SiC substrate [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2017, 38(6): 753-759. (in Chinese)
- [4] 严嘉彬, 孙志航, 房力, 等. 基于外延层转移的超薄垂直结构深紫外 LED [J]. *发光学报*, 2023, 44(2): 321-327.
 YAN J B, SUN Z H, FANG L, *et al.* An ultra-thin vertical deep ultraviolet LED realized by epilayer transfer [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2023, 44(2): 321-327. (in Chinese)
- [5] LU S P, BAI J X, LI H B, *et al.* 240 nm AlGaIn-based deep ultraviolet micro-LEDs: size effect *versus* edge effect [J]. *J. Semicond.*, 2024, 45(1): 012504.
- [6] MATSUKURA Y, INAZU T, PERNOT C, *et al.* Improving light output power of AlGaIn-based deep-ultraviolet light-emitting diodes by optimizing the optical thickness of p-layers [J]. *Appl. Phys. Express*, 2021, 14(8): 084004.
- [7] ZHANG J P, ZHOU L, GAO Y, *et al.* Performance and analysis of an ultraviolet C-band light emitting diode with an emission wavelength of 268 nm [J]. *Semicond. Sci. Technol.*, 2022, 37(7): 07LT01.
- [8] SATO K, YASUE S, YAMADA K, *et al.* Room-temperature operation of AlGaIn ultraviolet-B laser diode at 298 nm on lattice-relaxed $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}/\text{AlN}/\text{sapphire}$ [J]. *Appl. Phys. Express*, 2020, 13(3): 031004.
- [9] ZHANG Z Y, KUSHIMOTO M, SAKAI T, *et al.* A 271.8 nm deep-ultraviolet laser diode for room temperature operation [J]. *Appl. Phys. Express*, 2019, 12(12): 124003.
- [10] JESCHKE J, MARTENS M, KNAUER A, *et al.* UV-C lasing from AlGaIn multiple quantum wells on different types of AlN/sapphire templates [J]. *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 2015, 27(18): 1969-1972.
- [11] SHATALOV M, GAEVSKI M, ADIVARAHAN V, *et al.* Room-temperature stimulated emission from AlN at 214 nm [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2006, 45(12L): L1286-L1288.
- [12] MUROTANI H, FUJII A, OSHIMURA R, *et al.* Extremely high internal quantum efficiency of AlGaIn-based quantum wells on face-to-face annealed sputter-deposited AlN templates [J]. *Appl. Phys. Express*, 2021, 14(12): 122004.
- [13] SHAN M C, ZHANG Y, TRAN T B, *et al.* Deep UV laser at 249 nm based on GaN quantum wells [J]. *ACS Photonics*, 2019, 6(10): 2387-2391.
- [14] TIAN Y D, ZHANG Y, YAN J C, *et al.* Stimulated emission at 272 nm from an $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ -based multiple-quantum-well laser with two-step etched facets [J]. *RSC Adv.*, 2016, 6(55): 50245-50249.
- [15] WUNDERER T, CHUA C L, YANG Z H, *et al.* Pseudomorphically grown ultraviolet C photopumped lasers on bulk AlN substrates [J]. *Appl. Phys. Express*, 2011, 4(9): 092101.
- [16] KIRSTE R, GUO Q, DYCUS J H, *et al.* 6 kW/cm^2 UVC laser threshold in optically pumped lasers achieved by controlling point defect formation [J]. *Appl. Phys. Express*, 2018, 11(8): 082101.
- [17] GUO Q, KIRSTE R, MITA S, *et al.* Design of AlGaIn-based quantum structures for low threshold UVC lasers [J]. *J. Appl. Phys.*, 2019, 126(22): 223101.

- [18] JESCHKE J, MOGILATENKO A, NETZEL C, *et al.* Influence of silicon doping on internal quantum efficiency and threshold of optically pumped deep UV AlGa_N quantum well lasers [J]. *Semicond. Sci. Technol.*, 2019, 34(1): 015005.
- [19] NIKISHIN S, BERNUSSI A, KARPOV S. Towards efficient electrically-driven deep UVC lasing: challenges and opportunities [J]. *Nanomaterials*, 2022, 13(1): 185.
- [20] TANAKA S, KAWASE Y, TERAMURA S, *et al.* Effect of dislocation density on optical gain and internal loss of AlGa_N-based ultraviolet-B band lasers [J]. *Appl. Phys. Express*, 2020, 13(4): 045504.
- [21] MUROTANI H, TANABE R, HISANAGA K, *et al.* High internal quantum efficiency and optically pumped stimulated emission in AlGa_N-based UV-C multiple quantum wells [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2020, 117(16): 162106.
- [22] TAKANO T, NARITA Y, HORIUCHI A, *et al.* Room-temperature deep-ultraviolet lasing at 241.5 nm of AlGa_N multiple-quantum-well laser [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, 84(18): 3567-3569.
- [23] TAKANO T, OHTAKI Y, NARITA Y, *et al.* Improvement of crystal quality of AlGa_N multi quantum well structure by combination of flow-rate modulation epitaxy and AlN/GaN multi-buffer layer and resultant lasing at deep ultra-violet region [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2004, 43(10A): L1258-L1260.
- [24] HEIKMAN S, KELLER S, NEWMAN S, *et al.* Epitaxial lateral overgrowth of high Al composition AlGa_N alloys on deep grooved SiC substrates [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2005, 44(3L): L405-L407.
- [25] OKUMURA H, KIMOTO T, SUDA J. Formation mechanism of threading-dislocation array in AlN layers grown on 6H-SiC (0001) substrates with 3-bilayer-high surface steps [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2014, 105(7): 071603.
- [26] UESUGI K, HAYASHI Y, SHOJIKI K, *et al.* Fabrication of AlN templates on SiC substrates by sputtering-deposition and high-temperature annealing [J]. *J. Cryst. Growth*, 2019, 510: 13-17.
- [27] ZOLLNER C J, ALMOGBEL A, YAO Y F, *et al.* Reduced dislocation density and residual tension in AlN grown on SiC by metalorganic chemical vapor deposition [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2019, 115(16): 161101.
- [28] SAIFADDIN B K, ALMOGBEL A S, ZOLLNER C J, *et al.* AlGa_N deep-ultraviolet light-emitting diodes grown on SiC substrates [J]. *ACS Photonics*, 2020, 7(3): 554-561.
- [29] SAIFADDIN B K, ALMOGBEL A, ZOLLNER C J, *et al.* Fabrication technology for high light-extraction ultraviolet thin-film flip-chip (UV TFFC) LEDs grown on SiC [J]. *Semicond. Sci. Technol.*, 2019, 34(3): 035007.
- [30] ZHANG R J, GUO Y N, CAI T S, *et al.* Unexpected realization of N-polar AlN films on Si-face 4H-SiC substrates using RF sputtering and high-temperature annealing [J]. *Cryst. Growth Des.*, 2023, 23(7): 4771-4778.
- [31] NI R X, CHEN X, YAN J C, *et al.* Reducing stimulated emission threshold power density of AlGa_N/AlN multiple quantum wells by nano-trench-patterned AlN template [J]. *J. Alloy. Compd.*, 2019, 777: 344-349.
- [32] UESUGI K, SHOJIKI K, TEZEN Y, *et al.* Suppression of dislocation-induced spiral hillocks in MOVPE-grown AlGa_N on face-to-face annealed sputter-deposited AlN template [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2020, 116(6): 062101.
- [33] KIM J H, BAGHERI P, KIRSTE R, *et al.* Tracking of point defects in the full compositional range of AlGa_N *via* photoluminescence spectroscopy [J]. *Phys. Status Solidi A*, 2023, 220(8): 2200390.
- [34] KOLESKE D D, WICKENDEN A E, HENRY R L, *et al.* Influence of MOVPE growth conditions on carbon and silicon concentrations in GaN [J]. *J. Cryst. Growth*, 2002, 242(1-2): 55-69.
- [35] INATOMI Y, KANGAWA Y, PIMPINELLI A, *et al.* Kinetic-thermodynamic model for carbon incorporation during step-flow growth of GaN by metalorganic vapor phase epitaxy [J]. *Phys. Rev. Mater.*, 2019, 3(1): 013401.
- [36] GADDY B E, BRYAN Z, BRYAN I, *et al.* Vacancy compensation and related donor-acceptor pair recombination in bulk AlN [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2013, 103(16): 161901.
- [37] CRUZ S C, KELLER S, MATES T E, *et al.* Crystallographic orientation dependence of dopant and impurity incorporation in GaN films grown by metalorganic chemical vapor deposition [J]. *J. Cryst. Growth*, 2009, 311(15): 3817-3823.
- [38] TIAN Y D, YAN J C, ZHANG Y, *et al.* Formation and characteristics of AlGa_N-based three-dimensional hexagonal nanopillar semi-polar multiple quantum wells [J]. *Nanoscale*, 2016, 8(21): 11012-11018.
- [39] CHEN JR T, FORSBERG U, JANZÉN E. Impact of residual carbon on two-dimensional electron gas properties in Al_xGa_{1-x}N/GaN heterostructure [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2013, 102(19): 193506.
- [40] LI X H, DETCHPROHM T, KAO T T, *et al.* Low-threshold stimulated emission at 249 nm and 256 nm from Al-GaN-based multiple-quantum-well lasers grown on sapphire substrates [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2014, 105(14):

141106.

- [41] LIU Y S, LOCHNER Z, KAO T T, *et al.* Optically pumped AlGa_N quantum-well lasers at sub-250 nm grown by MOCVD on AlN substrates [J]. *Phys. Status Solidi C*, 2014, 11(2): 258-260.



张睿洁(1998-),女,山西运城人,博士研究生,2019年于西北大学获得学士学位,主要从事深紫外 AlGa_N 基发光材料与器件的研究。

E-mail: zhangruijie@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



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 AlGa_N 基氮化物半导体材料和器件的研究。

E-mail: ynguo@semi.ac.cn



王军喜(1975-),男,陕西西安人,博士,研究员,2003年于中国科学院半导体研究所获得博士学位,主要从事Ⅲ族氮化物发光材料与器件的研究。

E-mail: jxwang@semi.ac.cn