蓝光 LED 专题·论文

能带调控提高 GaN/InGaN 多量子阱蓝光 LED 效率研究

张连^{①*}, 魏学成^①, 路坤熠^②, 魏同波^①, 王军喜^①, 李晋闽^①^① 中国科学院半导体研究所照明研发中心, 北京 100083;^② 武汉大学电子信息学院, 武汉 430072

*联系人, E-mail: zhanglian07@semi.ac.cn

收稿日期: 2015-01-26; 接受日期: 2015-03-31; 网络出版日期: 2015-04-29

国家自然科学基金委自然科学基金项目(批准号: 61306008, 61474109)

摘要 InGaN/GaN 多量子阱中由于存在极化效应导致能带弯曲, 并由此导致电子和空穴在空间上被分离, 因此严重降低了 GaN 基 LED 的发光效率. 针对此问题, 我们设计了一种组分渐变的量子阱结构, 利用组分与能带的关系对量子阱进行能带调控, 使得量子阱中的能带弯曲减弱. 该方法有效增加了 LED 的光功率和外量子效率. 电致发光谱测试显示, 在注入电流为 35 A/cm^2 时, 具有能带调控量子阱的 LED 其外量子效率比传统结构的 LED 提高了 10.6%, 发光功率提高了 9.8%. 能带模拟显示, 能带调控后的量子阱中能带倾斜现象减弱, 且空穴浓度明显增加, 因此电子空穴波函数在空间中的重叠面积得到有效提高, 最终提高了辐射复合效率.

关键词 氮化物, 发光二极管, 极化效应, 能带

PACS: 78.66.Fd, 85.60.Bt, 33.15.Hp

doi: 10.1360/SSPMA2015-00045

1 引言

III-V 族氮化物半导体是实现紫外到蓝绿光半导体发光二极管(LED)的必需材料. 然而, 纤锌矿氮化物的晶胞缺乏空间反演对称性, 正负电荷中心不重合, 在(0001)晶轴方向存在较强的自发极化. 另外当材料受应力产生形变时, 正负电荷中心还将发生位移, 而产生压电极化效应. 因此, 在应变的 InGaN/GaN 多量子阱中同时存在着较强的自发极化和压电

极化两种极化效应^[1]. 极化效应将产生较强的内建电场, 使得 InGaN/GaN 多量子阱的能带结构发生倾斜, 导致量子阱中电子和空穴的波函数发生分离, 降低了电子空穴波函数的重叠积分^[2,3], 进而降低量子阱中电子空穴对的辐射复合几率. 目前有几种方法常被用来解决量子阱中电子空穴波函数分离的问题, 其中包括使用极化匹配的 AlInGaN 量子垒^[4,5]、三角形量子阱^[6]、非极性或非极量子阱^[7,8]以及堆垛量子阱^[9]等等. 然而, 这些方法都难以获得较好的晶体质

引用格式: 张连, 魏学成, 路坤熠, 等. 能带调控提高 GaN/InGaN 多量子阱蓝光 LED 效率研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2015, 45: 067305
Zhang L, Wei X C, Lu K Y, et al. Investigation of the GaN-based light-emitting diodes with engineered energy band in InGaN multiple quantum wells (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2015, 45: 067305, doi: 10.1360/SSPMA2015-00045

量, 尤其是难以获得量子阱和量子垒之间陡峭清晰的界面. 本实验中, 我们设计了一种 In 组分沿(0001)晶轴从低到高线性渐变的能带调控 InGa_{0.13-0.17}N 量子阱结构, 有望减弱极化效应导致的能带倾斜, 增加电子空穴波函数的重叠积分, 提高辐射复合几率. 与三角形量子阱结构相比较, 该结构中 In 组分的渐变范围非常小, 容易获得良好的晶体质量. 另外, 极化掺杂理论指出, 沿(0001)晶轴方向 InGa_{0.13-0.17}N 量子阱的 In 组分由低到高线性渐变时, 将由于极化电场的作用产生极化诱导空穴^[10,11], 增加量子阱中的空穴浓度, 进一步提高辐射复合几率. 本论文中, 电致发光谱(EL)测试显示能带调控后的 LED 具有更高的外量子效率(EQE), 同时专业软件 Apsys 的模拟结果也很好地对此现象进行了解释.

2 实验方法

在此实验中, 利用金属有机化学气相沉积法(MOCVD)在 *c* 面蓝宝石衬底上生长了两种 InGa_{0.13-0.17}N/GaN 多量子阱 LED. 首先在衬底上沉积一层低温成核层和非掺杂 GaN 缓冲层, 然后生长 3 μm 厚的 Si 掺杂的 n 型 GaN 外延层. 在 n-GaN 上又先后生长了多量子阱有源区、40 nm 厚的 Mg 掺杂的 p 型 Al_{0.15}Ga_{0.85}N 电子阻挡层以及 100 nm 的 Mg 掺杂的 p 型 GaN 层. 对于传统结构的 LED, 多量子阱有源区由 8 对 3 nm 厚的 In_{0.15}Ga_{0.85}N 量子阱和 9 nm 厚的 GaN 量子垒组成. 对于具有能带调控量子阱结构的 LED,

其靠近 n 型 GaN 一侧的 5 对量子阱与传统结构 LED 的量子阱是完全相同的, 而靠近 p 型 GaN 一侧的三个量子阱中 In 组分则沿(0001)方向从 0.13 线性增加到 0.17, 对应其生长温度从 735°C 线性降低到 725°C. 具有能带调控量子阱的 LED 其结构如图 1 所示. 该实验中所用 LED 芯片均用传统正装工艺制成, 尺寸为 1 mm×1 mm.

3 结果与讨论

为了避免测试过程中芯片的热效应, 所有 LED 样品均使用脉冲电源进行测试. 两种 LED 样品的 IV 测试曲线如图 2 所示. 图中显示, 能带调控量子阱 LED 的工作电压较高. 这与模拟结果一致(如图 2 中

p-GaN
p-AlGa _{0.15} N EBL
3 pairs of graded QWs with In from 0.13 to 0.17
5 pairs of conventional QWs with In 0.15
n-GaN

图 1 具有能带调控量子阱的 GaN/InGa_{0.13-0.17}N 多量子阱发光二极管结构示意图

Figure 1 Schematic diagram of the LED with engineered energy band.

图 2 (网络版彩图)具有能带调控量子阱的 LED 与传统结构的 LED 光电性能比较. (a) 两种 LED 样品的 IV 曲线. 插图: 模拟得到的 LED IV 曲线; (b) 光输出功率和外量子效率与注入电流的关系曲线; (c) EL 发光峰的峰值能量随注入电流的变化曲线
Figure 2 (Color online) Electrical and optical performances of the LED with engineered energy band and the conventional LED. (a) Current-voltage curves, inset: calculated current-voltage curves; (b) optical output power and EQE as a function of the injection current; (c) the position energy of the EL peak under various injection current.

插图所示). 我们认为造成电压增加的原因可能是能带调控量子阱 LED 其量子阱中能带倾斜现象减弱, 因而带隙能量增加, 故其工作电压升高. 后续给出的量子阱能带图(图 4(a))和光致发光谱(PL)中出现的波长蓝移现象(图 3)也从另一方面证实了该原因. 所有样品的光功率和外量子效率与注入电流的关系如图 2(b)所示. 显然, 能带调控量子阱 LED 相对传统结构 LED 具有更高的光功率和外量子效率. 在注入电流为 35 A/cm^2 时, 能带调控量子阱 LED 的外量子效率比传统结构的 LED 提高了 10.6%, 发光功率提高了 9.8%. 图 2(c)给出了所有样品的 EL 发光峰的峰值能量随注入电流的变化曲线. 当注入电流增加时, 两种 LED 样品的 EL 发光峰的峰值能量首先出现蓝移的趋势. 这是因为随着注入电流增加, 注入的载流子屏蔽了极化电场, 从而使能带倾斜现象减弱直至消失^[12]. 然而当注入电流继续增加时, LED 芯片的热效应越来越严重, 并由此导致带隙变窄, 故 EL 发光峰的峰值能量出现红移^[13]. 如图 2(c)所示, 当注入电流增加到 250 mA 时, 能带调控量子阱 LED 的 EL 发光峰的峰值能量增加了 7.76 meV, 而传统结构 LED 的 EL 发光峰的峰值能量则随着注入电流增加到 500 mA 而增加了 12.35 meV. 较少的蓝移量和相对应较低的注入电流(由蓝移转为红移的电流值)揭示与传统结构相比, 能带调控的量子阱中能带倾斜现象被减弱.

室温下我们对所有样品外加不同反向偏压条件下的光致发光谱进行了测试. 传统结构的 LED 和能带调控量子阱 LED 的 PL 发光峰的峰值能量与不同反向偏压的关系如图 3(a)和(b)所示. 图中所示插图为相对应样品的 PL 发光谱. 可以发现, 当反向偏压从 0 V 增加到 -15 V 时, 传统结构的 LED 其 PL 发光峰对应的光子能量单调增加了 112.27 meV. 而对于能带调控量子阱 LED, 当反向偏压增加到 -9 V 时, PL 峰蓝移了 68.01 meV, 当反向偏压继续增加时, PL 发光峰由蓝移变为红移. 外加反向电压的电场与极化电场方向是相反的, 因此当 LED 加反向电压时, 极化电场在一定程度上被抵消, 因而由极化电场导致的量子阱能带弯曲现象即被减弱, 相应的, 量子阱能带变宽, PL 发光峰蓝移; 当外加电场与极化电场相当时, 极化电场导致的量子阱能带弯曲现象被完全抵消, 量子阱底部为平带; 而当外加电场继续增加超过极化电场时, 量子阱能带则将向反方向倾斜, 导致量子阱带隙变窄, PL 发光峰由蓝移转为红移. 由此可知,

图 3 (网络版彩图)传统结构的 LED (a)和具有能带调控量子阱的 LED (b)的 PL 发光峰的光子能量与反向偏压的关系曲线. 插图为两种结构的 LED 样品在不同反向偏压下的 PL 发光谱

Figure 3 (Color online) Photoluminescence peak positions of the conventional LED (a) and the LED with engineered energy band (b) under various reverse voltage. Insert: the PL spectral of the two LEDs under various reverse voltage.

在外加电场下的 PL 发光峰波长最短时对应的能带为无极化电场时的平带状态^[14], 此时对应的外加反向电压值越低、波长蓝移量越小说明极化效应导致的量子阱能带倾斜现象越弱. 由此我们可以得出结论, 与传统结构的 LED 相比, 能带调控量子阱 LED 的量子阱中能带倾斜现象被削弱.

为了分析能带调控量子阱 LED 性能提升的具体因素, 我们使用专业仿真软件 APSYS 计算了传统结构 LED 和能带调控量子阱 LED 的能带结构和电子空穴波函数. 计算过程中载流子输运使用经典的漂移-扩散模型, Mg 杂质的电离率设定为 1%. 极化电荷密度由 Fiorentini^[15]给出的非线性公式计算得出, 考虑到实际材料中会存在弛豫, 因此取理论计算值的 70%作为计算中的极化电荷密度. 对于 InGa_{0.2}N/GaN 多量子阱, 带阶比 $\Delta E_c/\Delta E_v=0.5/0.5$ ^[16], 参与 SRH 复合的载流子寿命设定为 50 ns.

图 4 (网络版彩图)传统结构的 LED 和具有能带调控量子阱的 LED 的理论模拟结果. (a) 注入电流为 35 A/cm^2 时, 两种 LED 样品的量子阱能带图. 插图: 局部能带放大图; (b) 传统结构的 LED 和具有能带调控量子阱的 LED 量子阱中空穴浓度对比图

Figure 4 (Color online) (a) Calculated band diagrams of the LED with engineered energy band and the conventional LED at 35 A/cm^2 . Insert: enlarged valence band of the last three InGaN MQWs near the p-type layer; (b) the hole density of the MQWs for the conventional LED and the LED with engineered energy band.

图 4(a)为计算得到的两种 LED 结构在注入电流密度为 35 A/cm^2 时的量子阱能带图. 其中插图为靠近 p-GaN 一侧的三个量子阱放大后的能带图. 显然, 相对传统的量子阱结构, 能带调控量子阱中价带的倾斜现象得到明显改善. 当量子阱中 In 组分沿(0001)方向从 0.13 线性增加到 0.17 时, InGaN 的禁带宽度逐渐减小, 也即价带顶沿(0001)方向逐渐升高, 这与极化电场导致的能带倾斜方向相反. 该补偿作用将使得 InGaN 量子阱的价带保持平坦. 当然, 由此组分渐变也必然会在一定程度上导致量子阱的导电倾斜情况有所加剧. 但是在 GaN 基 LED 中, 通常由于 p 型 GaN 材料的空穴浓度较低, 加之空穴迁移率也较低, 因此注入到量子阱中的空穴浓度相对于电子浓度将小得多, 因此量子阱中辐射复合效率主要由空穴的浓度决定, 即空穴波函数对辐射复合效率的影响将更为敏感. 图 4(b)为在注入电流密度为 35 A/cm^2 时两种结构 LED 的量子阱中空穴浓度的理论计算值. 很显然, 能带调控的量子阱中空穴浓度要比传统结构的量子阱中高很多. 这主要是因为能在带调控的量子阱中, In 组分沿(0001)方向从低到高渐变还将使量子阱中产生三维净极化负电荷, 并由此诱导感生三维空穴, 从而显著增加了量子阱中的空穴浓度^[17].

在图 5(a)和图 5(b)分别给出了传统结构 LED 和能带调控量子阱 LED 样品中靠近 p-GaN 侧的最后一个量子阱中电子空穴波函数分布. 因为能带调控的量子阱中价带倾斜情况明显改善, 可以看到空穴波函数向着电子的方向移动, 空穴和电子波函数的重

图 5 (网络版彩图)计算得到的传统结构的 LED 和具有能带调控量子阱的 LED 的模拟结果. (a) 传统结构 LED 最靠近 p 型层的量子阱中的电子和空穴波函数; (b) 具有能带调控量子阱的 LED 最靠近 p 型层的量子阱中的电子和空穴波函数; (c) 在注入电流为 35 A/cm^2 时, 传统结构的量子阱中和能带调控后的量子阱中的辐射复合效率

Figure 5 (Color online) The simulation results of both the conventional LED and the LED with engineered energy band. (a) Electron and hole wave functions at the first energy level of the last InGaN QW of the conventional LED; (b) electron and hole wave functions at the first energy level of the last InGaN QW of the LED with engineered energy band; (c) calculated radiative recombination rate of the LED with engineered energy band and the conventional LEDs at 35 A/cm^2 .

叠明显增加. 传统结构的量子阱中电子空穴波函数的重叠面积占整个电子空穴波函数面积的 38.5%, 而当使用了渐变 In 组分对能带进行调控后, 电子空穴波函数的重叠比例提高到了 50.6%. 图 5(c)给出了两种结构的 LED 在注入电流密度为 35 A/cm^2 时量子阱中的辐射复合效率. 由于电子空穴波函数重叠积分的明显增加, 与传统结构的 LED 相比, 能带调控量子阱 LED 的辐射复合效率得到显著提高. 这也是能带调控量子阱 LED 具有更高的光输出功率和外量子效率的主要原因.

4 结论

本论文中, 我们利用 In 组分与禁带宽度的关系, 通过使 In 组分渐变实现对 InGa_N 量子阱的能带调控作用, 达到削弱量子阱能带倾斜现象的目的, 一定程

度上解决 GaN 基 LED 中载流子空间分离的问题. 我们对传统结构的 LED 和具有能带调控量子阱的 LED 进行了电学性能及光学性能的测试. 与传统结构的 LED 相比, 具有能带调控量子阱的 LED 的光输出功率和外量子效率得到明显提高. 这主要归功于: (1) 能带调控后的量子阱价带倾斜得到改善. EL 发光峰的峰值能量随注入电流增加呈现较小的蓝移和 PL 发光峰的光子能量随反向偏压增加呈现的较低的蓝移均证明了能带调控的量子阱中能带倾斜减弱; (2) 能带调控的量子阱中 In 组分的渐变诱导产生了极化感应空穴, 显著增加了量子阱中的空穴浓度, 相应的理论计算结果也证明了空穴浓度的提高. 以上两点都有利于增加电子空穴波函数在空间中的重叠面积, 使得具有能带调控量子阱的 LED 的辐射复合效率得到提高.

参考文献

- 1 Park S H, Ahn D, Koo B H, et al. Dip-shaped InGa_N/Ga_N quantum-well light-emitting diodes with high efficiency. *Appl Phys Lett*, 2009, 95: 063507
- 2 Waltereit P, Brandt O, Trampert A, et al. Nitride semiconductors free of electrostatic fields for efficient white light-emitting diodes. *Nature*, 2000, 406: 865–868
- 3 Wei T B, Zhang L, Ji X L, et al. Investigation of efficiency and droop behavior comparison for InGa_N Ga_N super wide-well light emitting diodes grown on different substrates. *IEEE Photon J*, 2014, 6: 8200610
- 4 Kim M H, Schubert M F, Dai Q, et al. Origin of efficiency droop in Ga_N-based light-emitting diodes. *Appl Phys Lett*, 2007, 91: 183507
- 5 Dadgar A, Groh L, Metzner S, et al. Green to blue polarization compensated c-axis oriented multi-quantum wells by AlGaInN barrier layers. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 062110
- 6 Yang Z, Li R, Wei Q, et al. Analysis of optical gain property in the InGa_N/Ga_N triangular shaped quantum well under the piezoelectric field. *Appl Phys Lett*, 2009, 94: 061120
- 7 Zhao Y, Tanaka S, Pan C C, et al. High-power blue-violet semipolar (2021) InGa_N/Ga_N light-emitting diodes with low efficiency droop at 200 A/cm^2 . *Appl Phys Express*, 2011, 4: 082104
- 8 Ling S C, Lu T C, Chang S P, et al. Low efficiency droop in blue-green m-plane InGa_N/Ga_N light emitting diodes. *Appl Phys Lett*, 2010, 96: 231101
- 9 Zhao H, Liu G, Li X H, et al. Growths of staggered InGa_N quantum wells light-emitting diodes emitting at 520–525 nm employing graded growth-temperature profile. *Appl Phys Lett*, 2009, 95: 061104
- 10 Carnevale S D, Kent T F, Phillips P J, et al. Polarization-Induced pn diodes in Wide-Band-Gap nanowires with ultraviolet electroluminescence. *Nano Lett*, 2012, 12: 915–920
- 11 Simon J, Wang A, Xing H, et al. Carrier transport and confinement in polarization-induced three-dimensional electron slabs: Importance of alloy scattering in AlGa_N. *Appl Phys Lett*, 2006, 88: 042109
- 12 Dong Y, Song J, Kim H, et al. Raman and emission characteristics of a-plane InGa_N/Ga_N blue-green light emitting diodes on r-sapphire substrates. *J Appl Phys*, 2011, 109: 043103
- 13 Varshni Y P. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. *Physica*, 1967, 34: 149–154
- 14 Feneberg M, Lipski F, Sauer R, et al. Piezoelectric fields in GaInN/GaN quantum wells on different crystal facets. *Appl Phys Lett*, 2006, 89: 242112
- 15 Fiorentini V, Bernardini F, Ambacher O. Evidence for nonlinear macroscopic polarization in III-V nitride alloy heterostructures. *Appl Phys Lett*, 2002, 80: 1204

- 16 Piprek J. Ultra-violet light-emitting diodes with quasi acceptor-free AlGaIn polarization doping. *Opt Quant Electron*, 2012, 44: 67–73
- 17 Simon J, Protasenko V, Lian C, et al. Polarization-induced hole doping in wide-band-gap uniaxial semiconductor heterostructures. *Science*, 2010, 327: 60–64

Investigation of the GaN-based light-emitting diodes with engineered energy band in InGaIn multiple quantum wells

ZHANG Lian^{1*}, WEI XueCheng¹, LU KunYi², WEI TongBo¹,
WANG JunXi¹ & LI JinMin¹

¹ *Semiconductor Lighting Research and Development Center, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China;*

² *Electronic Information School, Wuhan University, Wuhan 430072, China*

There is intense spontaneous polarization field in wurtzite nitride materials due to the lack of inversion symmetry. In addition, when the materials are strained, piezoelectric polarization field will be produced. Hence, large piezoelectric and spontaneous polarizations are appeared in strained InGaIn/GaN multiple quantum wells (MQWs), which is necessary materials for GaN-based blue light-emitting diodes (LEDs). The large polarization field will cause band bending in InGaIn/GaN multiple quantum wells (MQWs), which caused by polarization effect results in electron-hole separation and reduces the efficiency of GaN-based light-emitting diodes (LEDs). In this paper, according to the polarization-doped theory, we engineer the energy band of InGaIn MQWs by grading In composition to weaken band bending. Meanwhile, according to the polarization-doped theory, the polarization field in the graded InGaIn also can induce high density hole in the quantum well. The electrical and optical performances of the conventional LED and the LED with engineered energy band are compared experimentally. Compared with the conventional LED, the optical output power and the EQE of the LED with engineered energy band are enhanced. These are ascribed to less energy band bending by engineering the energy band of InGaIn MQWs, which is proved by less EL peak position energy blue shift with injection current increasing and less PL peak position energy blueshift with reverse voltage increasing for the LED with engineered energy band. The calculated results indicate that, the band bending of the LED with engineered energy band is weakened, and the hole concentration in the graded InGaIn quantum wells is enhanced. Then the overlap of the electron-hole wave function is enhanced, which results in improved radiative recombination rate.

GaN, LED, polarization-effect, band energy

PACS: 78.66.Fd, 85.60.Bt, 33.15.Hp

doi: 10.1360/SSPMA2015-00045