

GaN 基绿光 LED 材料蓝带发光对器件特性的影响*

邵嘉平 郭文平 胡 卉 郝智彪 孙长征 罗 毅

(清华大学电子工程系 集成光电子学国家重点实验室, 北京 100084)

摘要: 分析比较了在不同外延生长条件下 GaN 基高 In 组分绿光 LED 材料室温和低温 10K 下光致发光谱中蓝带发光峰, 研究了外延结构中 p 型层蓝带峰发光特性对材料晶体质量和器件电光转换效率的影响。结果表明: 通过优化 p 型层的外延生长条件, 可有效降低和消除其蓝带发光峰较之多量子阱主峰的相对强度, 有利于提高 LED 器件特别是高 In 组分绿光 LED 器件在同等注入电流条件下的发光功率。

关键词: GaN; LED 材料; 蓝带发光

PACC: 7865P; 7860F; 7840G

中图分类号: O472

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2004)11-1496-04

1 引言

p 型 GaN 欧姆接触层的高浓度 Mg 掺杂(10^{18} ~ 10^{19} cm^{-3})有利于获得高空穴载流子浓度, 可有效降低器件正向工作电压。但掺杂质所造成的晶格损伤和缺陷能级会降低器件的电光转换效率, 即外界注入的部分载流子未弛豫到有源区发光复合能级, 于是由上述缺陷态作为能量弛豫通道而产生非辐射复合。同时, 有源区外欧姆接触层中杂质本征能级和特定缺陷能级之间的发光复合(此即为蓝带峰的根本起因)也会降低 LED 材料的整体发光效率。

有关 p 型 GaN 体材料光致发光(photoluminescence, PL)谱中的蓝带发光峰(2.8 ~ 3.2eV)^[1~4], 目前一般认为是深施主缺陷能级和本征受主能级之间的缺陷-杂质复合发光峰^[5,6], 即由距离导带底约 130 ~ 430meV 的深施主缺陷能级和距离价带顶约 170 ~ 200meV 的本征替位受主(Mg_{Ga})能级^[7~10]组成。该种对 p 型 GaN 材料蓝带发光有贡献的深施主缺陷能级是指 d 型替位受主 Mg_{Ga} 和相邻晶格格点处的 n 型氮空位缺陷 V_N 经补

偿效应后形成的类施主杂质(Mg_{Ga}-V_N 复合体)所最终产生的 n 型深施主缺陷能级。其具体成因是: 由于金属有机化学气相外延(metal organic vapour phase epitaxy, MOVPE)方法生长 GaN 材料时存在着极大的氮气饱和平衡蒸气压, 外延过程中必然有一定比例的表面氮原子脱附, 从而形成晶体堆垛层中内含的氮原子格点空位缺陷, 其与 p 型掺杂剂 Mg 原子相邻时受结合势最小化驱动便会形成较深的类施主缺陷能级。

由于各研究小组外延生长条件的差异, 氮空位缺陷的体密度有所不同, 导致该深施主缺陷能级位置在不同文献报道中具有较大差别(分别为导带底以下 130 ~ 430meV 不等)。本研究小组的前期报道结果^[11]中, p 型 GaN 体材料在 10K 低温下的蓝带发光峰中心位置约为 2.92eV(425nm), 即深施主缺陷能级位于导带底以下约 350meV 处。我们认为, 该深施主缺陷能级的位置跟外延材料的晶体质量有关。

本论文通过对绿光 LED 结构材料 p 型 GaN 外延层生长条件的对比研究, 通过变温 PL 谱(10K ~ 325K)来分析其蓝带发光特性与器件电光转换效率之间的依存关系, 对进一步优化外延生长参数、提高

* 国家自然科学基金(批准号: 60244001), 国家高技术研究发展计划(批准号: 2001AA312190, 2001AA313130), 国家重点基础研究发展规划(批准号: TG2000036601)资助项目

邵嘉平 男, 1978 年出生, 博士研究生, 现从事 GaN 基光电子材料研究。Email: shaojiaping97@mails.tsinghua.edu.cn

罗毅 男, 1960 年出生, 教授, 现从事半导体材料与器件的研究。Email: luoy@mail.tsinghua.edu.cn

2003-10-11 收到, 2004-02-27 定稿

©2004 中国电子学会

器件内量子效率具有指导意义。

2 实验

本文所用的高 In 组分绿光 LED 材料由 MOVPE 进行制备, 生长采用本小组已报道的外延技术^[12]。在生长 n 型体材料和 p 型欧姆接触层时, 三甲基镓(TMGa) 和氨气(NH₃) 分别用作 Ga 源和 N 源, 同时, 硅烷(SiH₄) 和二茂镁(Cp₂Mg) 分别用作 n 型和 p 型掺杂剂; 在生长 InGaN/GaN 多量子阱有源层时, 三甲基铟(TMIn) 和三乙基镓(TEGa) 分别用作 In 源和 Ga 源, NH₃ 仍作为 N 源。

我们将对比实验的# 1、# 2、# 3 三个样品外延结构参数中, 仅改变其 p 型区的生长条件, 其他不变, 并保持 p 型区厚度约 180~190nm。生长结束后, 即进行室温和低温 10K 下 PL 谱的测量, 具体做法为: 利用 325nm He-Cd 激光器作为泵浦激发源, 所产生的荧光信号经光栅单色仪分光, 由光电倍增管接收后, 通过计算机采样收集数据, 并将样品利用一套氦气循环制冷系统制冷, 该装置可控制样品温度在 10~325K 范围内变化。

此外, 为验证蓝带发光峰的起源为 p 型 GaN 欧姆接触区内深施主缺陷和本征受主对之间的发光复合峰, 我们把采用与# 3 样品相同外延生长条件获得的# 4 外延片进行不同深度的 p 型区 ICP 干法刻蚀, 刻蚀深度约 80 和 180nm, 分别标记为# 4-a 和# 4-b 样品, 随后再与未经刻蚀的# 4 样品进行低温 PL 谱的对比测量分析。

最后, 我们将# 1~# 3 样品进行标准工艺的 LED 管芯制作^[13], 并分析其电致发光功率与 PL 谱中相应蓝带发光特性之间的依存关系。

3 结果与讨论

1~# 3 样品在室温 300K 和低温 10K 下的 PL 谱分别如图 1 和图 2 所示。

从图中可知, # 1 样品在室温下便已呈现出较强的蓝带发光峰(425~475nm), 表明该样品具有较高的晶体缺陷密度; 在低温 10K 下, 与深施主缺陷能级-本征受主能级对相关的蓝带峰强度超过了 MQW 有源区量子限制能级间跃迁的主峰强度。

我们在# 1 样品 p 型区外延生长条件的基础上, 调整 MOVPE 生长过程中石墨舟温度等参数,

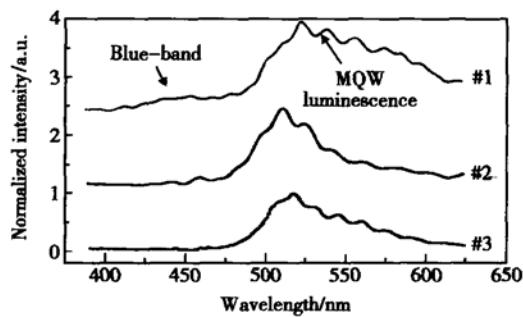


图 1 # 1~# 3 LED 样品室温(300K)光致发光谱
Fig. 1 # 1~# 3 LED samples PL spectra at room temperature (300K)

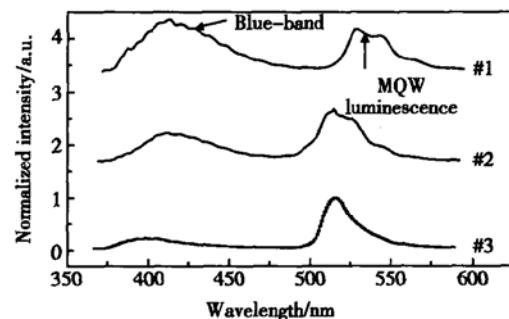


图 2 # 1~# 3 LED 样品低温 10K 下光致发光谱
Fig. 2 # 1~# 3 LED samples PL spectra at 10K

得到# 2 样品, 其室温热离化条件下的蓝带峰已基本消除, 而低温 10K 下的蓝带峰强度小于 MQW 主峰强度, 表明该样品的缺陷密度较小, 晶体质量有所提高。

最后, 我们基于# 2 样品的生长条件, 进一步优化 V/III 比, 改变总反应气流量, 得到# 3 样品, 其室温下的深施主缺陷-本征受主对蓝带发光峰彻底消失, 而低温 10K 下的蓝带峰强度远小于 MQW 主峰强度, 表明该样品的晶体质量已得到极大改善。

4 样品不同 p 型区刻蚀深度和未经刻蚀的低温 PL 谱如图 3 所示。随着 p 型区刻蚀深度由 80nm 增加到 180nm, 低温 10K 下 PL 谱中的蓝带发光峰强度较之未经刻蚀的样品(其 p 型区总厚度约为 180~190nm)成比例地下降, 进一步验证了文献报道中蓝带峰起源于 p 型区深施主缺陷能级-本征受主能级对发光复合的观点。

我们采用 Gaussian 拟合的方法确定了# 1~# 3 样品在低温 10K 下蓝带发光峰峰值位置, 分别为 418nm(2.97eV), 414nm(3.00eV), 408nm(3.04eV), 可知, 随着外延材料晶体质量的提高, 晶体堆

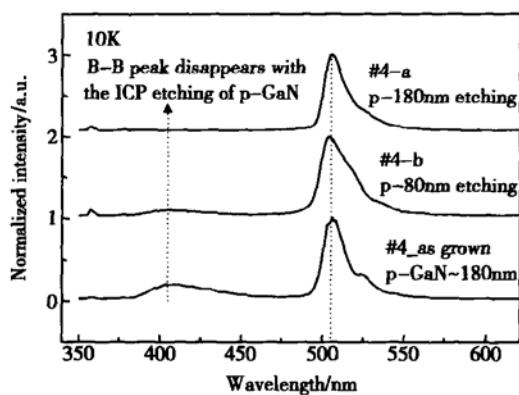


图 3 # 4 LED 样品蓝带峰强度与 p 型 GaN 层刻蚀深度关系

Fig. 3 # 4 LED sample blue-band emission intensity versus p-type layer ICP etching depth

垛层中内含的缺陷密度极大地减小, 相应的深施主缺陷能级变浅了约 70meV.

同时, 我们由双峰 Gaussian 拟合得到: 低温下深施主缺陷能级-本征受主能级对之间的蓝带发光复合峰积分强度与 MQW 发光主峰积分强度的相对比值大小由# 1 样品的 2.0 减小为# 2 样品的 0.9 和# 3 样品的 0.33, 降幅约 6 倍. 将# 1~# 3 样品制作成标准 LED 管芯器件, 在 20mA 注入电流条件下的电致发光功率分别为: 0.15, 0.5 和 2.2mW, 增幅约 15 倍. 由此可得样品蓝带发光峰相对强度与电致发光功率之间的依存关系如图 4 所示: 随着样品蓝带发光峰相对强度的减小, 材料电致发光功率呈超线性增加.

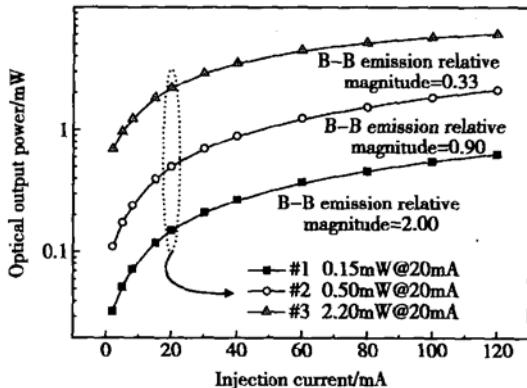


图 4 # 1~# 3 LED 样品蓝带发光峰相对强度与电流注入发光功率之间的依赖关系

Fig. 4 # 1~# 3 LED samples blue-band emission relative intensity versus optical output power (mW) at 20mA injection current

综上所述, 我们可将高 In 组分绿色 LED 样品低温 10K 下的 p 型区蓝带发光峰强度作为其晶体生长质量的重要标志, 有利于获得快速、准确的材料评测结果, 具有极为重要的实用价值. 同时, 通过优化外延生长条件、减小 p 型区深施主缺陷密度, 可有效降低和消除其蓝带发光峰, 从而提高 LED 材料的综合品质.

4 结论

通过对 GaN 绿光 LED 材料 p 型欧姆接触层外延生长条件的优化, 对比分析其蓝带峰和 MQW 主峰的发光特性, 获得了深施主缺陷能级-本征受主能级对之间蓝带发光峰相对强度和材料晶体质量以及器件电光转换效率之间的依存关系, 对进一步优化外延生长参数、提高器件性能具有指导意义.

参考文献

- [1] Viswanath A K, Shin E J, Lee J I, et al. Magnesium acceptor levels in GaN studied by photoluminescence. *J Appl Phys*, 1998, 83: 2272
- [2] Reschikov M A, Yi G C, Wessels B W. Behavior of 2.8-and 3.2eV photoluminescence bands in Mg-doped GaN at different temperatures and excitation densities. *Phys Rev B*, 1999, 59(20): 13176
- [3] Yao Dongmin, Xin Yong, Wang Li, et al. Rutherford backscattering and channeling, double crystal X-ray diffraction and photoluminescence of GaN. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2000, 21(5): 437 (in Chinese) [姚冬敏, 辛勇, 王立, 等. GaN 的 RBS/沟道、X 射线双晶衍射和光致发光谱. 半导体学报, 2000, 21(5): 437]
- [4] Liang Chunguang, Zhang Ji. GaN——dawn of 3rd-generation-semiconductors. *Chinese Journal of Semiconductors*, 1999, 20(2): 89 (in Chinese) [梁春广, 张冀. GaN——第三代半导体的曙光. 半导体学报, 1999, 20(2): 89]
- [5] Kaufmann U, Kunzer M, Maier M, et al. Nature of the 2.8eV photoluminescence band in Mg doped GaN. *Appl Phys Lett*, 1998, 72: 1326
- [6] Kaufmann U, Schlotter P, Obloh H, et al. Hole conductivity and compensation in epitaxial GaN:Mg layers. *Phys Rev B*, 2000, 62(16): 10867
- [7] Gotz W, Amano H, Akasaki I, et al. Hydrogen passivation of Mg acceptors in GaN grown by metalorganic chemical vapour deposition. *Appl Phys Lett*, 1995, 67(18): 2666
- [8] Gotz W, Johnson N M, Bour D P. Deep level defects in Mg-doped, p-type GaN grown by metalorganic chemical vapour

- deposition. *Appl Phys Lett*, 1996, 68(24): 3470
- [9] Oh E, Park H, Park Y. Excitation density dependence of photoluminescence in GaN : Mg. *Appl Phys Lett*, 1998, 72(1): 70
- [10] Vennegues P, Benaissa M, Dalmasso S, et al. Influence of high Mg doping on the microstructural and optoelectronic properties of GaN. *Mater Eng B*, 2002, 93(1~3): 224
- [11] Zhou Xiaoying, Guo Wenping, Hu Hui, et al. Photoluminescence of Mg-doped GaN epilayer at different concentrations. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2002, 23(11): 1168 (in Chinese) [周晓滢, 郭文平, 胡卉, 等. 不同 Mg 掺杂浓度的
- GaN 材料的光致发光. *半导体学报*, 2002, 23(11): 1168]
- [12] Guo Wenping, Luo Yi, Hu Hui, et al. A study on the epitaxy of GaN-based high brightness blue LED materials. The 8th Chinese LED Industrial Production and Academic Research Symposium, 2002: 40 (in Chinese) [郭文平, 罗毅, 胡卉, 等. GaN 基高亮度蓝光 LED 材料的生长研究. 第八届全国 LED 产业研讨与学术会议论文集, 2002: 40]
- [13] Luo Yi, Han Yanjun, Guo Wenping, et al. Fabrication of high-brightness blue InGaN/GaN MQW LEDs. *Proceedings of SPIE*, 2002, 4918: 197

Influence of Blue-Band Emission in GaN-Based Green Light Emitting Diode Materials on Device Performance*

Shao Jiaping, Guo Wenping, Hu Hui, Hao Zhibiao, Sun Changzheng and Luo Yi

(State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics, Department of Electronic Engineering,
Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: The influence of blue-band emission in GaN-based green light emitting diode(LED) materials on the electro-optical conversion efficiency of device is studied by photoluminescence(PL) spectra at room temperature and low temperature 10K. The blue-band emission characteristics of samples with different epitaxy conditions are carefully compared. The results show that the optical output power of device could be dramatically improved by the decrease or elimination of blue-band emission, which mainly originates from the crystal defects on the p-type layer of the LED-structure especially for the green LED materials with high indium contents on the MQW-active layer.

Key words: GaN; LED materials; blue-band emission

PACC: 7865P; 7860F; 7840G

Article ID: 0253-4177(2004)11-1496-04

* Project supported by National Natural Science Foundation of China (No. 60244001), and National High Technology Research and Development Program of China (Nos. 2001AA312190, 2001AA313130), and State Key Development Program for Basic Research of China (No. TG2000036601)

Shao Jiaping male, was born in 1978, PhD candidate. He is devoted to the research on GaN based materials.

Luo Yi male, was born in 1960, professor. He is devoted to the research on semiconductor materials and devices.

Received 11 October 2003, revised manuscript received 27 February 2004

© 2004 The Chinese Institute of Electronics