

InGaN 光致发光性质与温度的关系*

樊志军 刘祥林 万寿科 王占国

(中国科学院半导体研究所 半导体材料开放实验室, 北京 100083)

摘要: 分析了用金属有机物气相外延方法 (MOVPE) 在蓝宝石衬底上生长的铟镓氮 (InGaN) 的光致发光 (PL) 性质。发现在 4.7K 至 300K 范围内, 随着温度升高, InGaN 带边辐射向低能方向移动, 峰值变化基本符合 Varshni 经验公式; 同时 InGaN 发光强度虽有所衰减, 但比 GaN 衰减程度小, 分析了导致 GaN 和 InGaN 光致发光减弱的可能因素。

关键词: InGaN; 变温; 光致发光

PACC: 7840; 7865; 8110B

中图分类号: TN 304.2⁺ 6

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2001)05-0569-04

1 引言

近年来氮化镓(GaN)蓝、绿色超高亮度发光二极管的商品化生产和蓝紫光激光器的问世^[1]被认为是半导体光电子器件的重大突破, 标志着半导体发光器件已进入有重要应用前景的紫、蓝、绿光领域, 市场前景广阔。然而, 对 GaN 材料系, 器件的发展优先于理论, 人们目前的主要努力方向为怎样获得高质量的 GaN 基材料和器件。陆大成等^[2]对金属有机物气相外延(MOVPE)方法生长六方相 InGaN 的热力学做了深入的研究, 李顺峰等^[3]也报道了制备出高质量的立方相 InGaN。这些研究工作主要是针对怎样获得高质量的 InGaN 材料的, 而对材料本身的物理性质研究较少。尽管超高亮度的发光二极管和激光器都已问世, 但对其中有源区(发光层)材料 InGaN 的发光特性研究还很不充分。针对这一情况, 我们对 InGaN 的发光性质作了初步的研究。通过变温 PL 测量, 发现在 4.7—300K 温度范围, 随着温度升高, InGaN 的带边辐射峰值红移, 并且发光强度有所减弱, 但比 GaN 在同样条件下发光强度减弱程度小得多。本文将详细报道这一结果。

2 实验

实验所用的 GaN(样品 A)和 InGaN(样品 B 和 C)是用 MOVPE 方法生长得到的。GaN 样品的制备过程如下: 在蓝宝石衬底上先生长约 20nm 的 GaN 缓冲层, 生长温度为 550°C, 然后经过适当的退火过程, 再生长约 1μm 厚的 GaN 层, 生长温度 1030°C。InGaN 样品的制备过程为: 先生长 1μm 厚的 GaN 层, 生长程序与 GaN 样品完全一样, 然后生长约 0.2μm 厚的 InGaN 层, 生长温度为 800°C。样品制备所需的源为三甲基镓、三甲基铟和氨气。用霍尔方法测量, GaN 样品和 InGaN 样品都是 n 型, GaN 的室温电子浓度在 $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 以下, 而 InGaN 的室温电子浓度在 $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 以下。

PL 实验所需的激发源为 325nm, 30mW 的氮镉激光, 激光经斩波器斩波, 打在被测样品表面, 用单色仪分光, 用光电倍增管探测, 用锁相放大器(同时接收斩波器的参考信号和探测器信号)将信号放大, 最后用计算机采样, 记录并输出。

3 结果和讨论

图 1(a)、(b)、(c) 分别为样品 A、B、C 在几个典

* 国家自然科学基金资助项目(合同号: 69906002)。

樊志军 女, 1968 年出生, 从事半导体材料测试工作。

2000-05-01 收到, 2000-08-22 定稿

©2001 中国电子学会

型温度下的 PL 谱。由于在所测的温度范围内, 样品 A 的 PL 谱强度变化达 2 个数量级以上, 于是图 1(a) 的纵坐标采用常用对数坐标; 而样品 B、C 的 PL 谱强度变化较小, 图 1(b)、(c) 的纵坐标仍采用线性坐标, 这样读图更清楚。在室温(293K)下, 这三个 PL 谱的峰值波长分别为 362、499 和 511nm, 半高宽分别为 9.7、55.6 和 64.9nm。这些都是对应不同材料的带边辐射。用 X 射线双晶衍射并假设 InGaN 的晶格常数服从 Vegard 定律, 得到样品 B、C 的 In 含量分别为 17% 和 22%。因为(In)GaN 中的 In 组分

决定其禁带宽度, 随着 In 含量增加, 禁带宽度变小, PL 谱向长波移动, 所以样品 A、B、C 的 PL 峰值波长逐渐递增。另外, 随着(In)GaN 中 In 含量增加, In 组分涨落(波动)也随之加剧, PL 谱半高宽增大, 因此样品 A、B、C 的 PL 半高宽也逐渐递增。从图 1 还可以看出, 随着样品温度从 4.7K 升至室温时, 样品 A、B、C 的 PL 谱都服从同样的规律: (1) PL 波长峰值向长波移动; (2) 发光强度减弱。下面将详细讨论这两个问题。

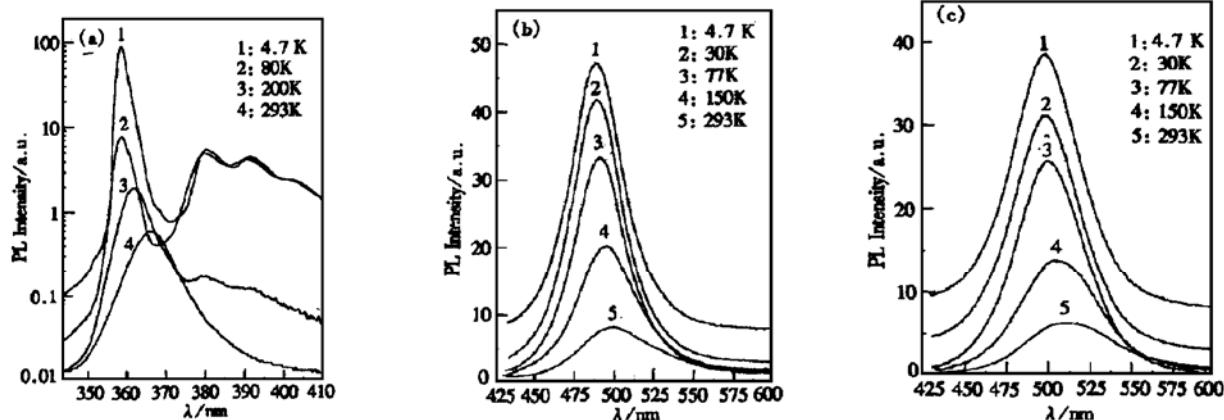


图 1 样品 A、B、C 在几个典型温度下的 PL 谱 (a)、(b)、(c) 分别为样品 A、B、C 的 PL 谱。

FIG. 1 PL Spectra of Samples Under Several Typical Temperatures (a), (b) and (c) are the PL spectra of sample A, B and C, respectively.

图 2 所示 PL 峰值波长(光子能量)随温度的变化关系。其中样品 A 的实验结果与以前相关报道结果^[4]相似。但是, 据我们所知, 目前还没有对 InGaN 的深入研究。我们用 Varshni 经验公式^[5]对样品 A、B、C 的光谱峰值能量与温度的关系进行拟合, 拟合公式为:

$$E_g(T) = E_g(0) - \alpha T^2 / (T + \beta) \quad (1)$$

其中 $E_g(0)$ 是 $T = 0\text{K}$ 时的禁带宽度; α , β 是 Varshni 温度系数。

我们采用最小二乘法进行拟合, 拟合结果如图 2 实线所示。由此可见, 在实验误差允许的范围内, 实验结果与拟合结果基本符合。由拟合得出的材料参数如表 1。

表 1 样品 A、B、C 的拟合数据

Table 1 Fitting Data of Sample A, B and C

样品	$E_g(0)/\text{eV}$	$\alpha/(10^{-4}\text{eV} \cdot \text{K}^{-1})$	β/K
A	3.486	7.5	620
B	2.534	4.5	600
C	2.478	4.4	600

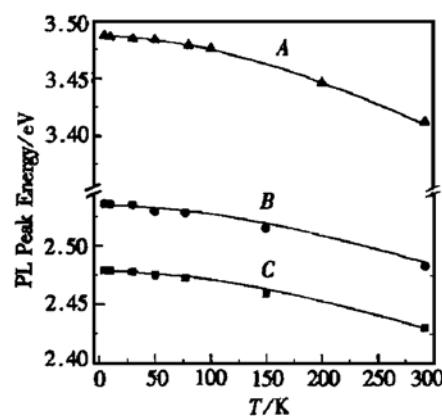


图 2 样品 A、B、C 的 PL 峰值能量随温度的变化关系 实线为拟合数据, 符号 “▲”、“●”、“▽” 分别为样品 A、B、C 实验测量数据。

FIG. 2 Dependence of PL Peak Energy on Temperature. The solid lines are fitting data; “▲”, “●”, “▽” are symbols for the experimental data of sample A, B, C, respectively.

图3显示出样品A、B、C的发光强度与温度的变化关系。其中发光强度为积分强度，即PL谱中PL信号对波长进行积分，并用探测器的探测灵敏度进行归一化。由图3可见，样品A的发光强度随温度变化敏感，当温度在4.7—50K范围内更是如此。在4.7K—室温的温度范围内，样品A的发光(相对)强度从110下降至1.43，下降了近80倍；而样品B和C的发光强度分别从16下降到4.6，和14.4

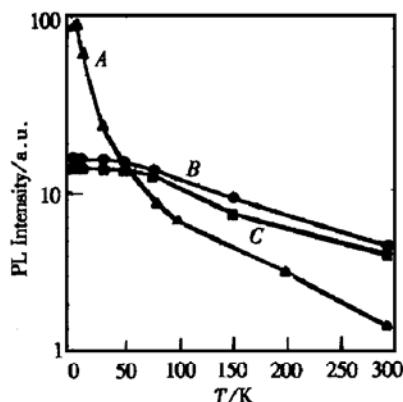


图3 样品A、B、C的PL发光强度与温度的变化关系 符号“▲”、“●”、“■”分别为样品A、B、C实验测量数据，实线只是读图方便。

FIG. 3 Dependencies of PL Intensity on Temperature
“▲”, “●”, “■”are symbols for the experimental data of sample A, B, C, respectively and the solid lines are drawn for the sake of convenience.

下降到4.0，两者都只下降了3—4倍。在 $T > 50\text{K}$ 时，样品B、C的发光效率比样品A高，在室温下样品B、C的发光效率为样品A的3—4倍。因为大部分发光器件工作在室温条件下，所以InGaN比GaN更适合作发光器件的有源区材料。

随温度增加，GaN的发光效率急剧下降，这是由于与温度相关的非辐射复合增加的缘故。非辐射复合主要包括多声子发射和俄歇复合两种情况。我们认为，俄歇复合不是非辐射复合的主体，原因如下：因为俄歇复合为三粒子过程(两个电子加一个空穴或两个空穴加一个电子)，复合几率正比于 np^2 或 n^2p (其中n、p分别为电子和空穴浓度)，所以俄歇复合只在大注入的情况下才显著。GaN激光器的注入强度至少比我们测量光致发光的注入强度大1—

2个数量级，如果我们目前的俄歇复合就很显著，那么GaN激光器中俄歇复合将会非常严重，以致无法激射。因此我们认为GaN中多声子发射是非辐射复合的主要部分。对InGaN材料，由于组分不均匀，在材料中总是存在富In区和贫In区^[6]，这样就形成类似量子点。过剩载流子很快弛豫到富In区，稳定在“量子点”中的局域量子能级上^[7]，减少了多声子发射的几率。因此，InGaN的PL发光不会象GaN一样随温度增加很快衰减。由图3还可以看出，在 $T < 50\text{K}$ 的情况下，样品B、C的发光效率比样品A小，说明InGaN的结晶质量还有待提高。我们的InGaN样品的In含量很高，PL谱波长约为500nm，属蓝绿光范围。获得既具有高In含量同时又有较高的发光效率的InGaN是目前世界性的难题。

4 结论

我们用PL方法，分析了InGaN的光学性质。发现InGaN带边辐射峰值基本符合Varshini经验公式，分析了导致InGaN光致发光减弱的可能因素，认为多声子发射是导致光致发光减弱的主要原因。

参考文献

- [1] S. Nakamura and G. Fasol, *The Blue Laser Diode*, Springer, 1997.
- [2] LU Da-cheng and DUAN Shu-kun, *Chinese Journal of Semiconductors*, 2000, **21**(2): 105—114(in English) [陆大成, 段树坤, 半导体学报, 2000, **21**(2): 105—114].
- [3] LI Shun-feng, YANG Hui, XU Da-peng, ZHAO De-gang, SUN Xiao-ling, WANG Yu-tian and ZHANG Shu-ming, *Chinese Journal of Semiconductors*, 2000, **21**(6): 548—553 (in Chinese) [李顺峰, 杨辉, 徐大鹏, 赵德刚, 孙小玲, 王玉田, 张书明, 半导体学报, 2000, **21**(6): 548—553].
- [4] W. Shan, T. J. Schmidt, X. H. Yang, S. J. Hwang, J. J. Song and B. Goldenberg, *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **66**: 985—987.
- [5] Y. P. Varshni, *Physica*, 1967, **34**: 149—154.
- [6] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota and S. Nakamura, *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **69**, 4188—4190.
- [7] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota and S. Nakamura, *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**, 2822—2824.

Dependence of InGaN Photoluminescence on Temperature^{*}

FAN Zhi-jun, LIU Xiang-lin, WAN Shou-ke and WANG Zhan-guo

(*Laboratory of Semiconductor Materials Science, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

Abstract: The properties of photoluminescence (PL) of InGaN grown by metalorganic vapor phase epitaxy have been studied. It is found that the near-band-gap radiation wavelength shifts to the lower energy when the temperature increasing from 4.7K to 300K. The red-shift accords with the Varshni's empirical equation on the whole. The temperature quenching has also been observed in the PL of InGaN, though it is much less than that of GaN. The possible reason that causes the quenching has been analyzed.

Key words: InGaN; temperature; photoluminescence

PACC: 7840; 7865; 8110B

Article ID: 0253-4177(2001)05-0569-04

* Project Supported by National Natural Science Foundation of China Under Grant No. 69906002.

FAN Zhi-jun female, was born in 1968. She is engaged in measurement of semiconductor materials.

Received 1 May 2000, revised manuscript received 22 August 2000

© 2001 The Chinese Institute of Electronics