

# InGaN/GaN 多量子阱 LED 电致发光 谱中双峰起源的研究\*

陈志忠<sup>1,†</sup> 徐 科<sup>1</sup> 秦志新<sup>1</sup> 于彤军<sup>1</sup> 童玉珍<sup>1</sup> 宋金德<sup>2</sup> 林 亮<sup>1</sup>  
刘 鹏<sup>1</sup> 齐胜利<sup>1</sup> 张国义<sup>1</sup>

(1 北京大学物理学院 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)  
(2 江苏伯乐达光电科技有限公司, 盐城 224002)

**摘要:** 研究了 MOCVD 生长的具有双发射峰结构的 InGaN/GaN 多量子阱发光二极管(LED)的结构和发光特性. 在透射电子显微镜(TEM)下可以发现量子阱的宽度不一致,电致发光谱(EL)发现了位于 2.45eV 的绿光发光峰和 2.81eV 处的蓝光发光峰.随着电流密度增加,双峰的峰位没有移动,直到注入电流密度达到  $2 \times 10^4$  mA/cm<sup>2</sup> 时,绿光发光峰发生蓝移,而蓝光发光峰没有变化.单色的阴极荧光光谱(CL)发现绿光发射对应的发光区包括絮状区域和发光点,而蓝光发射对应的发光区仅包含絮状区域.通过以上的结果,我们认为蓝光发射基本上源于 InGaN 量子阱发光,而绿光发射则起源于量子阱和量子点的发光.

**关键词:** 氮化镓; 发光二极管; 多量子阱; 透射电子显微镜; 电致发光谱; 阴极荧光谱

**PACC:** 7860F; 7860H; 8115H

**中图分类号:** TN304.2<sup>+</sup>3

**文献标识码:** A

**文章编号:** 0253-4177(2007)07-1121-04

## 1 引言

Ⅲ族氮化物半导体发光器件的发光的起源目前还存在着争议<sup>[1~6]</sup>.可以接受的观点是,由于 In 组分不均匀或富 In 量子点而被限制的激子发光起着至关重要的作用<sup>[2]</sup>.这些随机局域化的激子避免了在高密度的缺陷区域的复合. Hangleiter 等人<sup>[6]</sup>还发现了位错区域存在能量势垒,阻碍载流子在该处的复合.众所周知,InN 和 GaN 之间巨大的混溶隙使得 InGaN 合金在化学上很不稳定<sup>[7]</sup>.因为 GaN 在 InN 中的溶解度小于 5%,InGaN 单层较稳定的存在方式是富 In 的量子点掩埋在低 In 含量的 InGaN 介质中<sup>[8]</sup>.但是,在存在应力的情况下,这种完全分凝的情况并不多见,特别是在通常的 InGaN/GaN 量子阱中,纯的 InN 量子点几乎不可能发生<sup>[9,10]</sup>.另一方面压电极化和自发极化将在 InGaN/GaN 量子阱区域形成大的电场<sup>[11]</sup>.在目前的报道中,因为富 In 量子点的尺寸较小,其形状也不规则,所以要得到确切的量子点的 In 组分和形状很困难<sup>[12]</sup>.这些结构的复杂性,再加上势垒和表面处电荷输运<sup>[4]</sup>,使得 InGaN 量子阱中的辐射复合十分复杂.

目前关于相分离和压电效应影响的量子阱中的

辐射复合机制已经有一些文献报道<sup>[12~16]</sup>.虽然局域激子发光的观点已被普遍接受,但是确切的机制仍有许多争论,特别是在电注入的情况下,发光的机理还需进一步的研究.本文报道了 MOCVD 生长出双发射峰的样品.并用透射电子显微镜(TEM)、电致发光谱(EL)、阴极荧光光谱(CL)研究了双发射峰的发光机理.得到发光起源于量子阱和量子点的观点.

## 2 实验

InGaN/GaN 多量子阱发光二极管(LEDs)用 AXT 2000HT MOCVD 系统生长.5 个 InGaN/GaN 量子阱被包在 n 型和 p 型 GaN 之间.垒和阱的生长温度均为 780°C.预计阱的宽度会影响 InGaN 阱内的能级位置以及应力情况,从而改变发光波长.所以为了生长多波长的 LED,在阱的宽度上做了改动.LED 芯片的制备按照标准的工艺进行.通过 X 射线衍射(XRD)和卢瑟福背散射(RBS)结果可以推断量子阱中的应力没有完全弛豫.

剖面的 TEM 样品是通过研磨、抛光,最后用离子减薄得到电子可以透过的薄样品. TEM 观察是在 Tecnai F30 上进行的,工作电压为 300kV. EL 谱是通过一个探针台和一个 CCD 光纤光谱仪得到,不

\* 国家自然科学基金资助项目(批准号:60406007)

† 通信作者. Email: zzchen@pku.edu.cn

2006-12-16 收到,2007-03-07 定稿

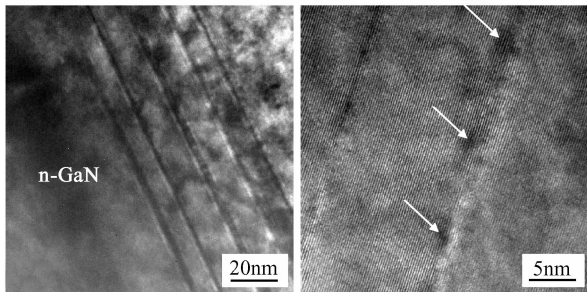


图 1 双峰结构的 InGaN/GaN 多量子阱 LED 的明场 TEM 照片(a)和高分辨照片(b)

Fig. 1 Bright field TEM (a) and HRTEM (b) images of InGaN/GaN MQW LED with double emission peaks

断改变注入电流,得到不同注入情况下的 EL 谱. CL 谱则在 Gantan 公司商用的 MonoCL3 上室温下测量得到,CL 谱仪安装在 JEOL JSM-6700F 上.

### 3 结果与讨论

图 1 是双峰结构的 InGaN/GaN 多量子阱 LED 的明场 TEM 照片和高分辨照片.从图 1(a)可以观察到在 p-GaN 和 n-GaN 之间有 5 个量子阱,量子阱的平均周期为 13.1nm.和一般的量子阱结构不同的是,图 1 的每个量子阱的阱宽和垒宽都不相同,其中离 n-GaN 层的第 1,3,4 个量子阱的宽度为 3~4nm,而 2,5 量子阱较窄,为 2nm 左右,势垒为中间两个较宽,而靠近 1,5 阱的垒则较薄.量子阱里黑色的点状物表示 InGaN 发生了部分相分离,这将引起周围应力的变化,从而表现在垒中也存在黑色的衬度.从图 1(b)高分辨像中观察到宽阱中的 InGaN 发生了相分离,形成了类量子点的结构,如白色箭头所指.

图 2 是不同注入电流密度下的 EL 谱,图中可以看到明显的双峰,峰位分别位于 2.45 和 2.81eV.在注入电流密度小于  $500\text{mA}/\text{cm}^2$  之前,仅看到绿光发光峰.当电流密度大于  $500\text{mA}/\text{cm}^2$  之后,蓝光峰出现并迅速增强.在电流密度为  $1422\text{mA}/\text{cm}^2$  时,蓝光峰的强度超过绿光峰.在高注入的条件下,蓝光峰在 EL 谱中占主导地位.在低电流密度条件下,只有绿光发光的原因是多量子阱中存在较宽的量子阱或存在量子点,这些结构的能隙宽度小,其导通电压较小便能发光,而能隙宽的部分其导通电压也高,所以在低电流密度条件下,只能看到绿光发光.当注入电流密度增加时,阻碍电流的势垒降低,窄阱开始发光,并且因为压电效应引起的量子限制斯塔克效应的减弱,窄阱的复合效率迅速提高,蓝光峰迅速增强;但是对宽量子阱而言,电子、空穴波函

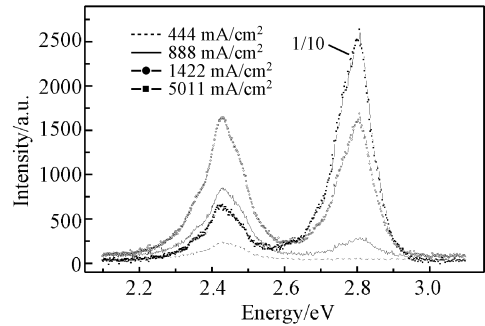


图 2 不同注入电流下 GaN/InGaN 多量子阱 LED 的 EL 谱 (双峰的峰位分别位于 2.45 和 2.81eV)

Fig. 2 EL spectra of InGaN/GaN MQW LED with different injection level Double peaks in EL spectra can be observed at 2.45, 2.81eV, respectively.

数在空间分离更远,其复合几率随电流密度增加的效果要慢很多,同时富 In 量子点的发光面积也小得多,所以蓝光强度增加比绿光快,最终蓝光起主导作用.

图 3 显示的是 EL 发光峰的峰位和强度随注入电流密度变化关系.图 3(a)中绿光峰的发光强度几乎是随着电流密度增加而线性增加,而蓝光峰则先迅速增加,接着趋向饱和.从小注入开始,随电流密度增加,两发光峰的强度差异先减小后增加,当电流

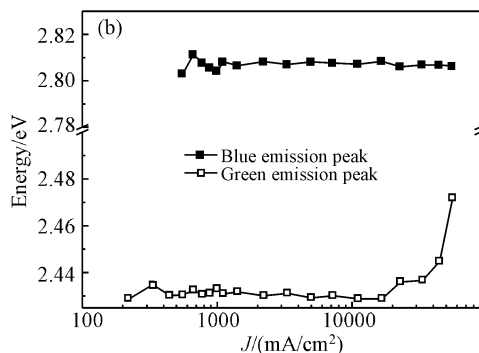
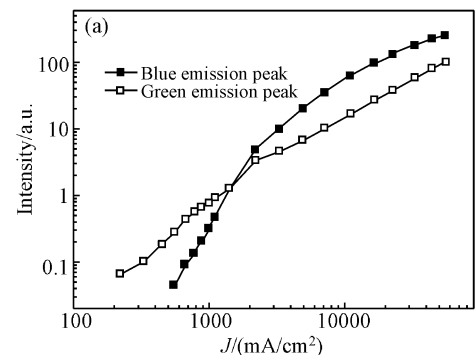


图 3 EL 发光峰峰位和强度随电流密度的关系

Fig. 3 Dependences of intensity (a) and photon energy (b) of EL emission peaks on the current density

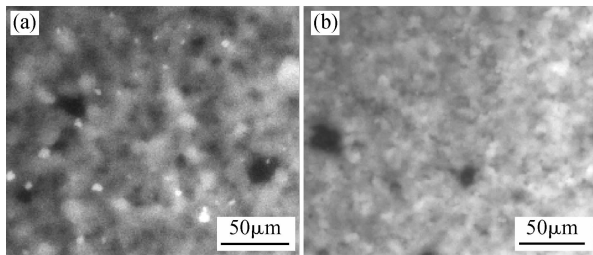


图4 摄于波长 526 nm(a)和 450nm(b)单色 CL 谱

Fig. 4 Monochromatic CL images taken at the wavelength of 526nm (a) and 450nm (b)

密度增至  $10^4 \text{ mA/cm}^2$  后再减小. 图 3(b) 中蓝光峰的峰位在整个注入范围内几乎不变, 绿光峰在小于  $2 \times 10^4 \text{ mA/cm}^2$  条件下不变, 大于该值时, 则发生蓝移, 同时还出现多个发光峰. 上述对图 2 的解释已经部分解释了两个发光峰强度的演变, 对最后的随着注入的增加, 强度差的减少可以解释为: 焦耳热对量子阱的限制作用的影响大于对量子点的影响, 因为量子点对激子的束缚能较大, 不易受焦耳热影响. 蓝光强度的饱和是因为焦耳热使得结温增加, 降低了量子阱的内量子效率. 众所周知, 从量子阱中发出的光将随着注入电流密度的增加而蓝移<sup>[5]</sup>, 这基于两个方面的原因: (1) 富 In 区域局域态的填充; (2) 压电场的载流子屏蔽效应. 但是在低注入条件下, 我们发现两个峰都没有蓝移. 这主要是因为存在某种红移的补偿机制, 或者压电场被转移电荷所调制<sup>[4]</sup>. 大的电流密度导致的结温升高是峰值红移的一个原因<sup>[15]</sup>. 因为量子点的激子束缚能大于量子阱, 所以量子点导致的绿光峰受结温的影响 ( $< 10 \text{ meV}$ ) 较小, 而量子阱导致的绿光峰则受结温的影响较大, 因此在大注入条件下, 受量子点决定的绿光峰发生蓝移, 而量子阱决定的绿光峰移动较少, 这样就导致绿光多峰的出现. 而蓝光峰红移和蓝移的效果基本等价, 所以其峰位基本不变.

InGaN/GaN 多量子阱 LED 的 CL 谱, 绿光峰和蓝光峰分别位于 526 和 450nm, 相比 EL 谱均有红移. 这是因为 CL 的注入密度较低, 载流子复合首先发生在势能最低点, 从而导致发光峰位的红移. 图 4 是单色的 CL 照片, 图 4(a) 的摄像波长为 526nm, 对应绿光发射, 我们不但发现有絮状的充满整个照片的发光, 还发现明亮的点状发光. 结合上面的讨论, 我们认为它们分别来自于宽阱和量子点. 而 450nm 的图像只发现有絮状的发光, 该发光仅来自 InGaN 量子阱发光. 我们认为絮状物是量子阱中 InGaN 发光所致, 因为 InGaN 在应力作用下不完全相分离, 导致存在 InGaN 局部组分高的区域, 另外, Chichibu 等人<sup>[17]</sup> 提出了 InGaN 阱中存在非辐射复合中心以及 In-N Z 型链的结构, 这同样也会形

成絮状的发光图像. 因为 CL 的空间分辨率大约在  $60 \sim 80 \text{ nm}$ <sup>[18]</sup>, 在 CL 谱中区分出图 1(b) 中几个 nm 的量子点的位置是不可能的. 量子点的大小和形状在 TEM 照片中也不很清楚, 进一步的 InGaN 多量子阱内结构和能带特征的研究目前还在进行之中.

## 4 结论

本文对双发射峰样品进行了 TEM CL, EL 谱的测量. 双发射峰样品的量子阱的宽度不一致, 在 CL 谱中我们发现了发光点和大面积絮状发光, 结合 EL 的结果我们认为绿光发射来源于多量子阱中的宽阱和量子点, 而蓝光发射来源于窄量子阱的发光.

## 参考文献

- [1] Chichibu S F, Abare A C, Minsky M S, et al. Effective band gap inhomogeneity and piezoelectric field in InGaN/GaN multiquantum well structures. *Appl Phys Lett*, 1998, 73: 2006
- [2] Nakamura S. The roles of structural imperfections in InGaN-based blue light-emitting diodes and laser diodes. *Science*, 1998, 281: 956
- [3] O'Donnell K P, Martin R W, Middleton P G. Origin of luminescence from InGaN diodes. *Phys Rev Lett*, 1999, 82: 237
- [4] Berkowics E, Gershoni D, Bahir G, et al. Optical spectroscopy of InGaN/GaN quantum wells. *Phys Status Solidi B*, 1999, 216: 291
- [5] Kuokstis E, Gaska R, Shur M S, et al. Two mechanisms of blueshift of edge emission in InGaN-based epilayers and multiple quantum wells. *Appl Phys Lett*, 2002, 80(6): 977
- [6] Hangleiter A, Hitzel F, Netzel C, et al. Suppression of nonradiative recombination by V-shaped pits in GaInN/GaN quantum wells produces a large increase in the light emission efficiency. *Phys Rev Lett*, 2005, 95: 127402
- [7] Ho I H, Stringfellow G B. Solid phase immiscibility in GaInN. *Appl Phys Lett*, 1996, 69: 2701
- [8] Lin Y S, Ma K J, Hsu C, et al. Dependence of composition fluctuation on indium content in InGaN/GaN multiple quantum wells. *Appl Phys Lett*, 2000, 77(19): 2988
- [9] Potina V, Hahna E, Rosenauer A, et al. Comparison of the In distribution in InGaN/GaN quantum well structures grown by molecular beam epitaxy and metalorganic vapor phase epitaxy. *J Cryst Growth*, 2004, 262: 145
- [10] Lai Y L, Liu C P, Chen Z Q. Tuning the emitting wavelength of InGaN/GaN superlattices from blue, green to yellow by controlling the size of InGaN quasi-quantum dot. *Thin Solid Film*, 2006, 498: 128
- [11] Monemar B, Pozina G. Group III-nitride based hetero and quantum structures. *Progress in Quantum Electronics*, 2000, 24: 239
- [12] Lai Y L, Liu C P, Chen Z Q. Study of the dominant luminescence mechanism in InGaN/GaN multiple quantum wells comprised of ultrasmall InGaN quasi-quantum dots. *Appl Phys Lett*, 2005, 86: 121915

- [13] Srinivasan S, Bertram F, Bell A, et al. Low Stokes shift in thick and homogeneous InGaN epilayers. *Appl Phys Lett*, 2002, 80:550
- [14] Tran C A, Karlicek R F Jr, Schurman M, et al. Phase separation in InGaN/GaN multiple quantum wells and its relation to brightness of blue and green LEDs. *J Cryst Growth*, 1998, 195:397
- [15] Park I K, Kwon M K, Baek S H, et al. Enhancement of phase separation in the InGaN layer for self-assembled In-rich quantum dots. *Appl Phys Lett*, 2005, 87:061906
- [16] Khatsevich S, Rich D H, Zhang X, et al. Temperature dependence of excitonic recombination in lateral epitaxially overgrown InGaN/GaN quantum wells studied with cathodoluminescence. *J Appl Phys*, 2004, 95(4):1832
- [17] Chichibu S F, Uedono A, Onuma T. Origin of defect-insensitive emission probability in In-containing (Al, In, Ga)N alloy semiconductors. *Nature Materials*, 2006, 5:810
- [18] Chichibu S, Wada K, Nakamura S. Spatially resolved cathodoluminescence spectra of InGaN quantum wells. *Appl Phys Lett*, 1997, 71(16):2346

## Origins of Double Emission Peaks in Electroluminescence Spectrum from InGaN/GaN MQW LED\*

Chen Zhizhong<sup>1,†</sup>, Xu Ke<sup>1</sup>, Qin Zhixin<sup>1</sup>, Yu Tongjun<sup>1</sup>, Tong Yuzhen<sup>1</sup>, Song Jinde<sup>2</sup>,  
Lin Liang<sup>1</sup>, Liu Peng<sup>1</sup>, Qi Shengli<sup>1</sup>, and Zhang Guoyi<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> State Key Laboratory for Artificial Microstructures and Mesoscopic Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

(<sup>2</sup> Jiangsu Bright Optoelectronic Technology Co. Ltd., Yancheng 224002, China)

**Abstract:** InGaN/GaN multiple quantum well (MQW) light emitting diode (LED) wafers with two emission peaks were grown by MOCVD. Transmission electron microscopy (TEM), electroluminescence (EL), and cathodoluminescence (CL) measurements were performed to study the recombination mechanism of the InGaN QWs. It was found that there are different widths of quantum wells in TEM images. Green and blue emissions were separately observed in the EL spectra, which are located at 2.45 and 2.81 eV, respectively. The wavelengths for both the blue and green emission do not shift until the injection level reaches  $2 \times 10^4$  mA/cm<sup>2</sup>. In monochromatic CL images, the green emission comes from randomly distributed dots and floccules that occupy almost the whole surface. The blue emission comes from the floccules only. It can be concluded that the blue emission is attributed to the irradiative recombination in the QWs, and the green emission is attributed to that in wider QWs and In-rich QDs.

**Key words:** gallium nitride; light emitting diode; multiple quantum wells; transmission electron microscopy; electroluminescence; cathodoluminescence

**PACC:** 7860F; 7860H; 8115H

**Article ID:** 0253-4177(2007)07-1121-04

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 60406007)

† Corresponding author. Email: zzchen@pku.edu.cn

Received 16 December 2006, revised manuscript received 7 March 2007