

# 低温近场光学显微术对 InGaN/GaN 多量子 阱电致发光温度特性的研究<sup>\*</sup>

徐耿钊<sup>1)</sup> 梁 琥<sup>2)</sup> 白永强<sup>1)</sup> 刘纪美<sup>2)</sup> 朱 星<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> 北京大学物理学院人工微结构与介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

<sup>2)</sup> 香港科技大学电子工程系光子学技术中心, 香港)

(2005 年 3 月 22 日收到, 2005 年 4 月 5 日收到修改稿)

使用实验室自制的低温近场光学显微镜研究了 InGaN/GaN 多量子阱发光二极管在室温和液氮温度下的近场光学像和近场光谱, 发现随着温度的降低, 不仅近场光学像的光强起伏大大减小, 量子阱发光峰先蓝移后红移, 而且在液氮温度下在光子能量更高的位置上出现了新的发光峰. 通过对实验结果的分析, 我们将这个新出现的峰归结为 p-GaN 层中导带底-受主能级间跃迁形成.

关键词: InGaN/GaN 多量子阱, 发光二极管, 近场光学, 低温

PACC: 7280E, 7865P, 0779, 0720M

## 1. 引 言

近年来, 由于在光电子器件方面广泛的商业应用前景, 对以 GaN 为基础的半导体发光材料的研究有了很大进步, 高亮度的蓝绿光 InGaN/GaN 多量子阱发光二极管等也已经实现商品化<sup>[1-3]</sup>. 与传统的 III-V 族半导体发光材料不同, GaN 基半导体材料在具有极高的位错密度的同时也有着很高的发光量子效率<sup>[4]</sup>. 室温和低温下的光致发光谱<sup>[5-7]</sup>, 电致发光谱<sup>[8]</sup>, 透射电子显微术<sup>[8]</sup>和阴极射线荧光<sup>[9,10]</sup>, x 射线衍射<sup>[10]</sup>, 以及室温和低温下的近场光学和光谱<sup>[11-14]</sup>等手段被用来研究其发光机理. 并且揭示出位错和 In 组分在量子阱中分布都是极不均匀的, 位错构成了载流子的非辐射复合中心, 因此其发光的空间分布极不均匀, 由许多尺度在亚微米量级上的发光颗粒组成. 正因为如此, 使用一个尖端孔径小于 100 nm 的光纤探针在样品表面逐点扫描的近场光学显微镜, 以其超过普通光学显微镜衍射极限的高空间分辨率和在百纳米尺度上采集局域光谱的能力, 特别适合这类发光现象的研究.

目前, InGaN/GaN 量子阱结构的发光机理仍然不是很清楚. 大量的光谱性质的实验研究, 尤其是

随温度变化的光学性质的研究, 基本上都是光致发光研究. 而电致发光光谱的温度特性的实验研究的报道<sup>[15]</sup>很少, 尤其是电致发光的近场光谱随温度的变化. 实际应用中的半导体发光二极管绝大多数都是依靠电源驱动的. 因此, 电致发光性质的研究具有一定的应用价值. 在低温下, 载流子的辐射复合与非辐射复合概率, 以及扩散距离、热运动的平均能量等等与室温下都有很大的差别. 对于低温下发光性质的研究有助于更细致地研究半导体的能级结构和载流子的动力学过程. 将近场光学的高空间分辨率与低温技术相结合, 将会为这些研究提供前所未有的信息. 出于这些原因, 我们自行建造了一套低温近场光学显微镜和光谱仪用于这方面的研究<sup>[16]</sup>. 本文就是使用该设备研究了 InGaN/GaN 多量子阱发光二极管电致发光随温度变化的特性, 进而分析载流子在多量子阱中的输运过程. 实验结果显示, InGaN/GaN 多量子阱发光二极管在室温下和低温下的近场光谱有很大的不同.

## 2. 实验和样品

本文研究中的样品是未封装的 InGaN/GaN 多量子阱发光二极管, 来自香港科技大学电子工程系光

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号: 10074002)和高等学校博士学科点专项科研基金资助的课题.

子学技术中心刘纪美研究组,使用金属有机物化学气相沉积方法生长而成.图 1 是其结构示意图.样品生长在蓝宝石衬底的(0001)晶向上,衬底上面是厚度为 50 nm 未掺杂的 GaN 缓冲层和 2.5  $\mu\text{m}$  厚的 Si 掺杂的 n-GaN. InGaN/GaN 多量子阱由厚 2 nm 的 InGaN 量子阱层和厚 10 nm 的 GaN 势垒层交替生长而成,共 5 个周期,再上面是厚度为 200 nm 的 Mg 掺杂的 p-GaN 和厚度为 5 nm/5 nm 的金/镍电极.随着  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  中 In 的组分比例  $x$  的增加,整个多量子阱的光谱在从紫光到黄光的范围内变化.单个发光二极管的尺寸是 300  $\mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$ .

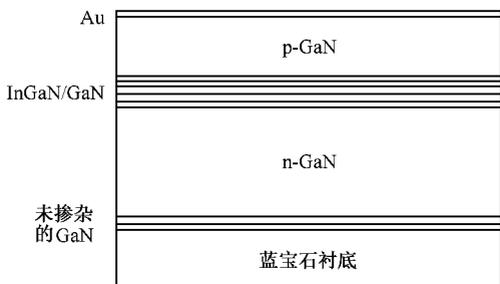


图 1 InGaN/GaN 多量子阱发光二极管结构示意图

将样品安装到自制的低温扫描近场光学显微镜<sup>[16,17]</sup>的扫描头上,可在室温(300 K)或者液氮温度(78 K)下进行近场光学实验,在低温时整个扫描头封装在一个不锈钢筒内浸入双层杜瓦内的液氮液面以下,样品由一个恒流电源驱动,发出的光信号被一个光纤探针接收,然后通过光纤直接传导到光电倍增管上成近场光学像;或者传导到由一个 SPEX340 型光栅单色仪和一个北京滨松生产的 CH151 光电倍增管光子计数模块组成的光谱仪,构成局域近场光谱<sup>[18]</sup>.在整个近场光学实验过程中,通过超声共

振式切向力反馈<sup>[16,17,19,20]</sup>将针尖样品间距离控制在约 10 nm,以恒定距离模式工作.

### 3. 结果和讨论

图 2 是分别在室温下和液氮温度下对 In 组分比例  $x = 0.20$  的蓝光二极管得到的扫描近场光学像(这里每一点上的光强均为可见光范围的积分光强),注入电流均为 0.8 mA.在室温下的扫描范围为 11  $\mu\text{m} \times 11 \mu\text{m}$ ;由于驱动扫描的压电陶瓷管的压电系数的下降,液氮温度下扫描范围是室温下的 1/3,即约 3.6  $\mu\text{m} \times 3.6 \mu\text{m}$ .室温下的电致发光分布明显是很不均匀的,发光颗粒尺度在百纳米的数量级上.而到了低温下,虽然这时扫描范围减小了,但是也可以看到在扫描范围内光强的起伏大为减小,而且整体平均的光强较之室温下明显增强,上升了大约一个数量级.

我们分别在室温和液氮温度下研究了这块  $x = 0.20$  的样品的近场光谱,在室温下,样品表面光强分布由多个发光颗粒组成,将针尖定位于一个发光颗粒处采集不同电流下的近场光谱;在低温下,由于表面光强没有明显的起伏,将针尖随机地定位于表面一个点上采集不同注入电流下的近场光谱.二者分别示于图 3 的(a)和(b).

从图 3 可以看到,同一块样品在室温下和液氮温度下的近场光谱都在光子能量 2.7 eV 附近有一个发光峰,但是在液氮温度下谱峰明显要比室温下窄.我们将这个峰标记为 A 峰.对 A 峰进行高斯拟合,得到注入电流为 4.0 mA 时,在室温(300 K)和液氮温度(78 K)下的峰值光子能量分别为 2.717 eV 和 2.710 eV,半高宽分别为 0.132 eV 和 0.082 eV.此

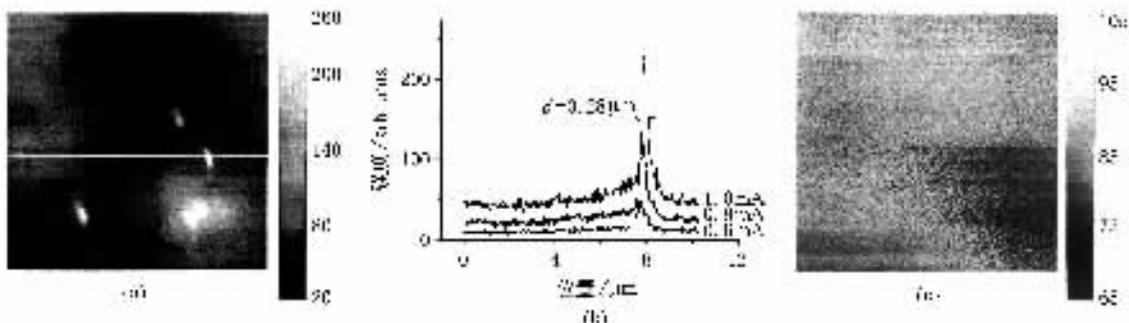
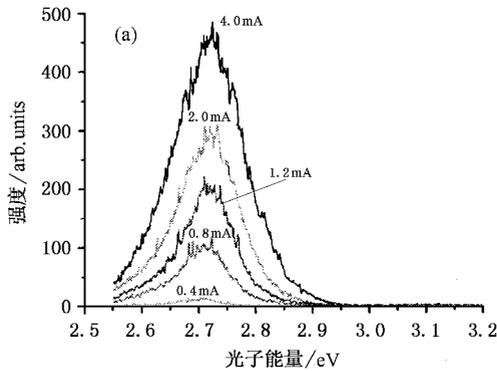


图 2 近场光学像 (a)室温(300 K)下,注入电流 0.8 mA 时的近场光学像,扫描范围为 11  $\mu\text{m} \times 11 \mu\text{m}$  发光分布极不均匀,有多个发光颗粒.(b)沿(a)中白线方向的剖面图,三条线分别代表在三个不同的注入电流下,发光颗粒的半高宽均为约 0.28  $\mu\text{m}$ .(c)为在液氮温度(78 K)下的近场光学像,注入电流是 0.8 mA,扫描范围约 3.6  $\mu\text{m} \times 3.6 \mu\text{m}$ ,在扫描范围内光强的起伏非常小

外,在液氮温度下,在上面所述的发光峰的高能方向出现了一个新的宽度非常大的发光峰,我们将之标记为 *B* 峰。*B* 峰在注入电流 4.0 mA 时的峰值光子能量为 2.94 eV,峰值光强比 *A* 峰还要大。我们还发



现,在液氮温度下,随着注入电流的降低,*B* 峰光强下降的速度明显比 *A* 峰快。降至 0.4 mA 时,*B* 峰的强度已经比 *A* 峰要弱得多了,前者只有后者的约 1/4。

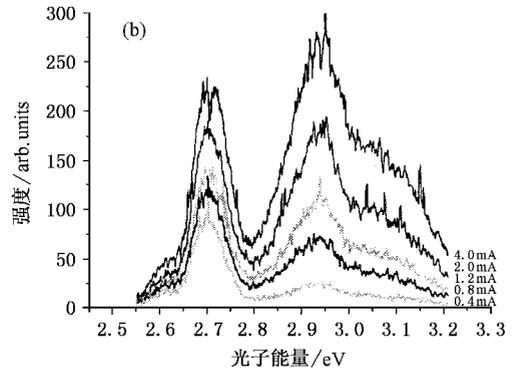


图 3  $x = 0.20$  的蓝光二极管的电致发光光谱 (a)室温(300 K)下 (b)液氮温度(78 K)下(液氮温度下 *A* 峰比在室温下明显变窄,并且在它的高能方向新出现一个强度很大,并且很宽的 *B* 峰)

在液氮温度下,将针尖从距离样品表面只有 10 nm 左右的近场范围逐渐远离样品表面,并采集光谱。在注入电流为 4.0 mA 时,近场以及距离样品表面 20  $\mu\text{m}$  和 100  $\mu\text{m}$  处采集到的光谱示于图 4。有趣的是随着针尖样品间距离的加大,低温下新出现的 *B* 峰的强度也比 *A* 峰下降快得多。在近场状态下,*B* 峰的强度略大于 *A* 峰,而到了针尖样品相距 100  $\mu\text{m}$  时 *B* 峰的强度下降为 *A* 峰的约 1/3。

高峰值位置发生明显的蓝移。至温度升高到大约 170 K 时,比起液氮温度下,*A* 峰的强度已经升高了约 12 倍,峰值位置蓝移了约 30 meV。之后 *A* 峰的强度迅速下降,峰值位置又发生了红移,几乎回到原来的位置。到室温下,*A* 峰的强度约下降到最高值的 1/10,而峰值光子能量几乎回到了液氮温度下的位置。而在整个上述升温过程中,*B* 峰的强度始终在下降(图 5)。

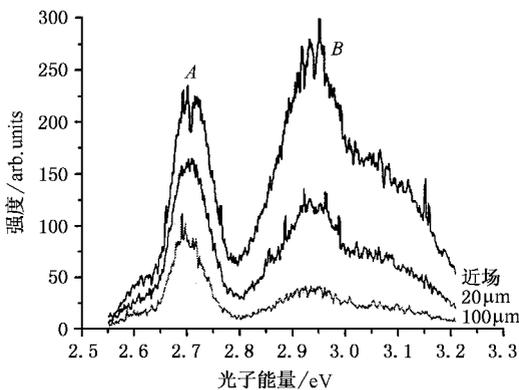


图 4 在液氮温度下,针尖分别在蓝光样品表面近场范围内,和距离样品表面约 20  $\mu\text{m}$  及 100  $\mu\text{m}$  处在注入电流为 4.0 mA 时采集到的电致发光光谱

针对同一块样品,在从液氮温度向室温温度回升过程中,将针尖保持在距离样品表面 20  $\mu\text{m}$  处采集随温度变化的光谱,注入电流始终在 4.0 mA。我们发现在升温过程中,光谱中 *A* 峰的强度先迅速升

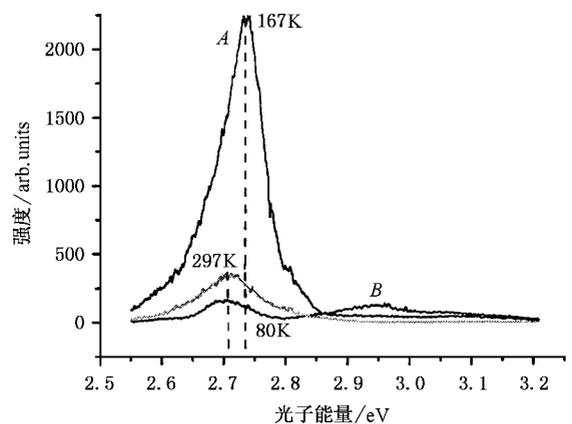


图 5 在温度从液氮温度回升过程中,注入电流为 4.0 mA,针尖置于  $x = 0.20$  的蓝光样品表面 20  $\mu\text{m}$  处采集的光谱。在温度升高到约 170 K 之前,*A* 峰的光强一直在上升,同时峰值光子能量的位置发生蓝移,而在这之后,*A* 峰的强度下降,峰值位置又红移到几乎原来的位置。在整个上述过程中,*B* 峰的强度始终在下降

上面这些现象中,光谱中光子能量位于 2.7 eV 附近的 *A* 峰被认为是在 InGaN 量子阱层中带间辐

射发光,其峰值的位置和强度随温度升高的行为也与文献中远场观察到的现象是一致的<sup>[15-21]</sup>,在 Hroi 等<sup>[15]</sup>的电致发光实验和 Ramaiah 等<sup>[21]</sup>的光致发光实验中都观察到了量子阱发光峰值位置随温度的 S 形变化,即随着温度从 10 K 升高到 300 K 呈红移-蓝移-红移.一般认为在温度很低时,载流子随机地分布于量子阱层中,热运动的平均能量不足以支持它们向量子阱中的辐射复合中心扩散.随着温度的升高,越来越多的载流子获得了足够的热运动能量向辐射复合中心扩散,而这些辐射复合中心是 In 富集的地方,对应的能隙也较窄,因而在 10—60 K 的温度区间内发生红移;在 80—160 K 的区间内,随着温度的升高,热运动能量会激发载流子占据更高的能级,产生蓝移;温度继续升高,至接近室温的区间内,带隙变窄导致这时又发生红移,同时非辐射复合的概率在这时迅速上升,使得光强降低<sup>[15-21]</sup>.在图 5 所示的实验中,在液氮温度至室温的区间内恰好观察到了后两个阶段的现象,蓝移和红移都是约 30 meV,与文献报道也是一致的.

而对于 InGaN/GaN 多量子阱结构在液氮温度下出现的强度很大的 B 峰,在光致发光实验中未见报道过,在远场的电致发光实验的报道中,同样对  $x$  约为 0.2 的蓝光二极管样品, Hori 等也观察到过这个峰,但它在液氮温度下仍然极其微弱,较之 A 峰差了两个数量级左右<sup>[15]</sup>.对于这个峰的形成,一直有不同的解释,虞丽生等认为这是由于量子阱层中低温下的缺陷能级发光所致<sup>[22]</sup>,而 Hori 等提出另一种模型认为在量子阱层中的辐射复合中心总数是确定的,当载流子,例如导带底的电子,通过 n-GaN 层注入到量子阱层中,被这些辐射复合中心俘获从而复合发光,当注入载流子多到一定程度时,这些辐射复合中心逐渐趋于饱和,就会有一部分载流子不能被俘获发光,而随着温度的降低,这些剩余的载流子发生非辐射复合跃迁的概率也大大降低,于是继续扩散到 p-GaN 中跃迁发光,形成低温下观察到的 B 峰,究竟是在哪一层的载流子跃迁产生了这个发光峰,一直缺乏有效的实验手段来验证,我们前面所述的低温近场光学实验则更倾向于支持后一种模型.

首先,在液氮温度下,图 3 所示的实验中随着注入电流的降低, B 峰下降得比 A 峰要快得多,这暗示从 n-GaN 中注入到量子阱层中的电子先进入阱中辐射复合中心复合发光,剩余的再越过量子阱层到 p-

GaN 层中跃迁发光.而当电流增大时,阱层中的辐射复合中心越来越接近饱和,于是剩余的进入 p-GaN 中的电子也就越来越多,从而导致 B 峰迅速增强.

其次,在图 4 中我们发现针尖离样品越远, B 峰相对于 A 峰越弱,这是因为真正处于针尖近场范围内的是 p-GaN 层.而 InGaN 量子阱层与针尖之间的距离则至少为 200 nm 厚的 p-GaN 层的厚度.因此,针尖所接收到的光信号中, p-GaN 层中发出的光对于针尖样品间距离的变化自然更加敏感.而且这也是与报道过的远场电致发光实验现象相一致的.而在光致发光实验中,载流子并不是通过上述方式注入的,而是直接由激发光在量子阱层中产生,一般上面也没有覆盖 p-GaN 层,因而在低温下也观察不到我们这里的 B 峰.

此外, Hori 等的模型并没有说明 B 峰是在 p-GaN 层中哪些能级之间跃迁产生的.我们知道, GaN 的禁带宽度是 3.42 eV,而我们实验中这个发光峰峰值是在 2.94 eV,前面提出模型的那篇文献中远场电致发光实验中所观察到的是在 3.0—3.2 eV 范围内,因此这不应该是 GaN 带间跃迁复合所发的光.我们注意到 p-GaN 中掺杂的 Mg 原子的受主能级在掺杂浓度为  $1 \times 10^{-19} \text{ cm}^{-3}$  时距离价带顶约为 209 meV<sup>[23]</sup>.而且,随着掺杂浓度的增加, Mg 受主能级会向禁带中更深处延伸.有人系统研究过  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  中掺杂 Mg 受主能级随着  $x$  以及受主掺杂浓度的变化,发现  $x = 0.045$  时,导带底电子到 Mg 受主能级间跃迁辐射出的光子能量从掺杂浓度为  $1 \times 10^{-19} \text{ cm}^{-3}$  时的 3.2 eV 减小到了掺杂浓度为  $4 \times 10^{-19} \text{ cm}^{-3}$  时的 3.0 eV<sup>[24]</sup>.因此, B 峰应该是剩余电子扩散进 p-GaN 层中从导带底跃迁到这些 Mg 受主能级所辐射出来的.

最后,我们将上述机理绘于图 6 中,在恒流电源驱动下,电子通过 n-GaN 层注入到量子阱层中,被阱中的辐射复合中心俘获发生带间跃迁辐射出光子,形成肉眼可见的蓝光,但这些辐射复合中心的总量是确定的,还有大量的电子,尤其是在大电流下,不能被这些辐射复合中心俘获,在室温下这些电子绝大部分被非辐射复合过程所耗散掉了,而随着温度的降低,非辐射复合发生的概率降低,这些剩余的没有跃迁复合的电子继续扩散进入 p-GaN 层中,在这里从导带底跃迁到 Mg 受主能级从而形成一个新的发光峰.

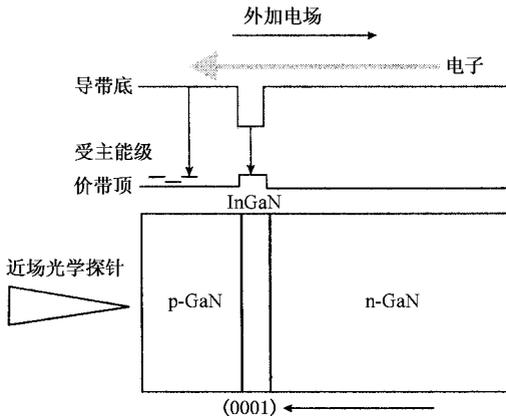


图 6 基于本文实验的跃迁模型

## 4. 结 论

综上所述,我们成功地建成了一套低温近场光学显微镜/光谱仪设备并实际应用到了 InGaN/GaN 多量子阱电致发光性质的研究当中去,在室温和液氮温度下的近场光学实验中,获得了许多传统光学探测手段所无法得到的信息,尤其是在百纳米到微米尺度上对空间位置非常敏感的信息,并且通过对实验结果的分析,进一步验证了在量子阱中辐射复合中心总数是有限的模型,并且将液氮温度下新出现的位置在 2.94 eV 的发光峰归结为 p-GaN 层中导带底电子到 Mg 受主能级间的跃迁所形成。

- [ 1 ] Nakamura S, Senoh N, Iwasa N *et al* 1995 *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2* **34** L797
- [ 2 ] Kong Y C, Zheng Y D, Chu R M *et al* 2003 *Acta. Phys. Sin.* **52** 1756 (in Chinese) 孔月蝉,郑有、储荣明等 2003 物理学报 **52** 1756 ]
- [ 3 ] Luo Y, Guo W P, Shao J P *et al* 2004 *Acta. Phys. Sin.* **53** 2720 (in Chinese) 罗毅、郭文平、邵嘉平等 2004 物理学报 **53** 2720 ]
- [ 4 ] Lester S S, Ponce F A, Grafard M G *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 1249
- [ 5 ] David J P R, Sale T E, Pabla A S *et al* 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 820
- [ 6 ] Kollmer H, Im J S, Heppel S *et al* 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 82
- [ 7 ] Narukawa Y, Saijou S, Kawakami Y *et al* 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 558
- [ 8 ] Chichibu S, Azuhata T, Sota T *et al* 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 4188
- [ 9 ] Rosner S J, Carr E C, Ludowise M J *et al* 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 420
- [ 10 ] Narukawa Y, Kawakami Y, Funato M *et al* 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 981
- [ 11 ] Kaneta A, Okamoto K, Kawakami Y *et al* 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 4353
- [ 12 ] Kaneta A, Mutw oh T, Kawakami Y *et al* 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 3462
- [ 13 ] Micheletto R, Yoshimatsu N, Kaneta A *et al* 2004 *Appl. Sur. Sci.* **229** 338
- [ 14 ] Kudrna J, Gucciardi P G, Vinatieri A *et al* 2002 *Phys. Stat. Sol. (a)* **190** 155
- [ 15 ] Hori A, Yasunaga D, Satake A *et al* 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 3152
- [ 16 ] Xu G Z, Zhang W H, Zhu X *et al* 2005 *J. Korean Phys. Soc.* **47** s1
- [ 17 ] Zhu X, Xu S F, Lu P *et al* 2001 *Chin. Phys.* **10** s195
- [ 18 ] Zhang W H, Xu G Z, Zhu X *et al* 2004 *Proceedings of SPIE* **5635** 136
- [ 19 ] Karrai K and Grober R D 1995 *Ultramicroscopy* **61** 197
- [ 20 ] Karrai K and Grober R D 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 1842
- [ 21 ] Ramaiah K S, Su Y K, Chang S J *et al* 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 401
- [ 22 ] Yang C L, Dong L, Wang J N *et al* 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 023703
- [ 23 ] Gotz W, Johnson N M, Chen C *et al* 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 3144
- [ 24 ] Lee S N, Sakong T, Lee W *et al* 2004 *J. Crystal Growth* **261** 249

# Study of temperature dependent electroluminescence of InGaN/GaN multiple quantum wells using low temperature scanning near-field optical microscopy<sup>\*</sup>

Xu Geng-Zhao<sup>1)</sup> Liang Hu<sup>2)</sup> Bai Yong-Qiang<sup>1)</sup> Lau Kei-May<sup>2)</sup> Zhu Xing<sup>1)†</sup>

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

<sup>2)</sup>( Photonics Technology Center , Department of Electrical and Electronic Engineering , Hong Kong University of Science and Technology ,Hong Kong ,China )

( Received 22 March 2005 ; revised manuscript received 5 April 2005 )

## Abstract

Though GaN based semiconductor materials and devices have achieved giant commercial success , there were few reports on their electroluminescent near - field optical studies at low temperature. In this paper we present our results of the electroluminescent near-field images and spectra at both room temperature and liquid nitrogen temperature by using a lab-made low temperature scanning near - field optical microscope. We found that with the decreasing of sample temperature , the fluctuation of electroluminescent intensity in the near-field images is reduced greatly and the peak photon energy of the spectra emitted from the quantum wells exhibits a blue-shift at first and then a red-shift. A new spectral peak emerges at higher photon energy at liquid nitrogen temperature. According to our analysis , this higher photon energy peak is attributed to the transition from the bottom of conduction band to the acceptor energy states in the p-GaN cap layer.

**Keywords :** InGaN/GaN multiple quantum wells , light emitting diodes , scanning near-field optical microscopy , cryogenics

**PACC :** 7280E , 7865P , 0779 , 0720M

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10074002 ) and the Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education.

<sup>†</sup>E-mail : zhuxing@pku.edu.cn