

GaN 基多量子阱发光二极管的极化效应和 载流子不均匀分布及其影响^{*}

顾晓玲 郭霞 吴迪 徐丽华 梁庭 郭晶 沈光地

(北京工业大学北京市光电子技术实验室, 北京 100022)

(2006 年 6 月 1 日收到, 2007 年 1 月 24 日收到修改稿)

制备了 GaN 基绿光发光二极管, 利用耦合法求解了在自发极化和压电极化效应影响下的 GaN/InGaN 量子阱的极化电场强度, 考虑载流子在量子阱间的不均匀分布, 模拟计算了系统的一维薛定谔方程、稳态速率方程和泊松方程, 得到了载流子在各个阱间的分布比值和辐射复合速率, 同时还得到了不同电流下电致发光(EL)谱的峰值波长、谱峰半高宽及 EL 谱强度的变化情况, 发现当测试电流由 10 mA 增加到 70 mA 时, 理论结果与实验结果能很好符合.

关键词: 极化, 载流子不均匀分布, 复合速率

PACC: 7865P, 7850G, 7730

1. 引 言

近年来, 随着材料生长和器件制备技术的不断发展, 特别是具有较宽带隙范围的 III-V 族化合物的出现, 发光二极管(LED)的研究和应用得到了飞速发展^[1-4]. 但由于载流子的双极性输入, 电子和空穴分别集中在靠近 n 型掺杂区和 p 型掺杂区的阱中, 致使载流子在量子阱间不均匀分布, 特别是对于低迁移率、高有效质量的重空穴, 这种不均匀性更加明显. 另外, 由于 GaN 基材料固有的极化效应^[5-8], 致使多量子阱能带倾斜, 产生量子限制斯塔克效应, 随驱动电流的升高, 多量子阱区的自由载流子增加, 电子和空穴的空间局域性在一定程度上屏蔽了内建电场, 减弱了量子限制斯塔克效应, 使 LED 的电致发光(EL)谱峰值波长不断蓝移^[9,10].

对于器件工作波长的移动, 罗毅等^[10]从实验角度对极化的影响进行了分析, 但目前综合这两方面的理论分析文献却很少. 基于此, 我们制备了 GaN 基绿光 LED, 分析了 GaN/InGaN 量子阱的自发极化和压电极化效应, 根据耦合法求解了极化电场强度. 通过对泊松方程、一维薛定谔方程和系统稳态速率方程的联立自洽求解, 得到了载流子在各个量子阱

间的分布比值和辐射复合速率, 研究了 EL 谱的峰值波长、谱峰半高宽及 EL 谱强度随注入电流的变化规律.

2. 器件结构

实验中所用样品是通过金属有机物化学气相淀积在(0001)蓝宝石衬底上生长而成. 器件结构如图 1 所示, 在蓝宝石衬底上生长 2000 nm 的 GaN 缓冲层, 其上淀积 4000 nm 厚的 n 型 GaN, 掺杂浓度为 $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 有源区包括 4 个量子阱, 势阱层 In 组分为 0.25, 势垒层为 GaN, 最后生长一层 10 nm 厚的本征 GaN 和 1500 nm 厚掺杂浓度为 $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 的 p 型 GaN. 外延生长完成后, 经光刻、反应耦合等离子体刻蚀、溅射金属电极, 制备成尺寸为 $300 \mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$ 的发光器件.

3. 理论基础

在室温下, In 组分为 x 的 InGaN 禁带宽度可以用以下差值公式求解:

$$\Delta E_g(x) = E_{g\text{InN}}x + E_{g\text{GaN}}(1-x) - bx(1-x), \quad (1)$$

这里 $E_{g\text{GaN}}$, $E_{g\text{InN}}$ 分别为 GaN 和 InN 的禁带宽度, 可

^{*} 国家重点基础研究发展规划(批准号:2006CB604902)、国家自然科学基金(批准号:60506012)和国家高技术研究发展计划(批准号:2006AA03A121)资助的课题.



图 1 器件结构示意图

表示为如下形式：

$$E_g = E_0 - \frac{\alpha T^2}{\beta + T} \quad (2)$$

对于 GaN 和 InN, E_0 分别为 3.42 和 0.8^[11,12] eV, 温度系数 α, β 分别为 7.7×10^{-4} eV/K 和 2.45×10^{-4} K, (1) 式中的 b 为弯曲因子, 根据 Wu 等^[13]的研究, 取为 1.43; 在量子阱内 InGaN 和 GaN 界面上, 导带和价带带阶比值为 60:40^[14].

III - V 族化合物材料有很强的自发极化和压电极化效应^[5,6], Christmas 等^[6]通过考虑应力和电场的相互作用, 提出了求解极化电场的耦合法, 耦合方程为

$$F_{\text{coup}}^{(n)} = \frac{A^{(n)} \sum_q f^{(q)} C^{(q)} / B^{(q)} - C^{(n)} \sum_q f^{(q)} A^{(q)} / B^{(q)}}{B^{(n)} \sum_q f^{(q)} C^{(q)} / B^{(q)}}, \quad (3)$$

$$A = 2\epsilon_0 (C_{13} e_{33} - C_{33} e_{31}) - C_{33} P^{\text{SP}}, \quad (4)$$

$$B = C_{33} \epsilon_{33} + e_{33}^2, \quad (5)$$

$$C = C_{33}, \quad (6)$$

式中 $F_{\text{coup}}^{(n)}$ 为有源区第 n 层的极化电场强度, 取外延生长方向为正方向; ϵ_0 为晶格失配度; C_{13}, C_{33} 为弹性常数; e_{31}, e_{33} 为压电常数; ϵ_{33} 为介电常数; P^{SP} 为自发极化强度, $f^{(q)}$ 为第 q 层厚度.

对于多电子体系, 系统的薛定谔方程为

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \varphi(x) + V(x)\varphi(x) = E\varphi(x), \quad (7)$$

式中 E 为能量, $\varphi(x)$ 为波函数, $V(x)$ 为势能, \hbar 为普朗克常数除以 2π , m 为载流子有效质量.

一维泊松方程为

$$\begin{aligned} & \frac{d^2 \varphi(x)}{dx^2} \\ &= -\frac{\rho(x)}{\epsilon_r(x) \epsilon_0} \\ &= -\frac{q \left[\sum \sigma(z_q) \delta(z - z_q) + N_d(x) - n(x) \right]}{\epsilon_r(x) \epsilon_0}, \quad (8) \end{aligned}$$

其中 $\varphi(x)$ 为静电势, $\epsilon_r(x)$ 为材料介电常数, ϵ_0 为真空介电常数, $\sigma(z_q)$ 为界面 q 处的极化面电荷密度, $N_d(x)$ 为离子化施主浓度, $n(x)$ 为电子密度分布. 对 $\sigma(z_q)$ 的求解及其对器件特性的影响, 文献 [15] 已进行了详细论述.

在量子阱内势能 $V(x)$ 的表达式为

$$V(x) = E_c(x) + V_{\text{ex}}(x) - q\varphi(x), \quad (9)$$

式中 $V_{\text{ex}}(x)$ 为电子间的交换关联能, 本文根据局域态密度对其近似求解.

对不同量子阱内的电子密度分布 $n(x)$, 我们采用速率方程进行求解. 当外加正向电压时, 电子电流和空穴电流分别从有源区的两端 n 型掺杂区和 p 型掺杂区输入. 载流子在各个阱间并不是均匀分布的, 空穴多集中在靠近 p 区的量子阱内, 而电子则相反, 集中在靠近 n 区的量子阱内. 由于空穴有效质量比电子有效质量大得多, 而迁移率比电子迁移率低, 因此空穴的局域化程度比电子显著. 在有源区内同一个位置, 电子数和空穴数并不一定相等, 因此需要分别求解电子和空穴的速率方程. 这里仅以单量子阱内电子速率方程为例, 对于空穴或多量子阱的情况, 此速率方程同样适用. 单量子阱载流子输运模型如图 2 所示, 图中 N 为量子阱电子输入端势垒区的电子数, N_1^{2D} 为阱内被限制住的二维电子数, N_1^{3D} 为阱内没有被限制住的电子数, N_1 为量子阱电子输出端势垒区的电子数. 速率方程为^[16]

$$\frac{dN}{dt} = \frac{I}{qV} - \frac{N}{\tau_d} + \frac{N_1^{3D}}{\tau_d} - \frac{N}{\tau_n}, \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_1^{3D}}{dt} &= \frac{N}{\tau_d} - 2 \frac{N_1^{3D}}{\tau_d} + \frac{N_1}{\tau_d} \\ &\quad - \frac{N_1^{3D}}{\tau_c} + \frac{N_1^{2D}}{\tau_e} - \frac{N_1^{3D}}{\tau_n}, \quad (11) \end{aligned}$$

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{N_1^{3D}}{\tau_d} - 2 \frac{N_1}{\tau_d} - \frac{N_1}{\tau_n}, \quad (12)$$

$$\frac{dN_1^{2D}}{dt} = \frac{N_1^{3D}}{\tau_c} - \frac{N_1^{2D}}{\tau_e} - \frac{N_1^{2D}}{\tau_1} - \frac{N_1^{2D}}{\tau_n} - S, \quad (13)$$

$$\frac{dS}{dt} = \frac{r}{\tau_n} - \frac{S}{\tau_p}, \quad (14)$$

式中 I 为输入电流, V 为器件外延层体积, S 为电子

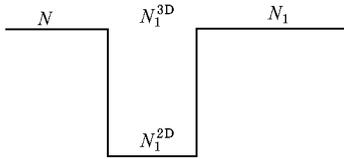


图2 单量子阱载流子运输模型

和空穴复合发出的光子, r 为自发辐射速率, $\tau_d, \tau_n, \tau_e, \tau_c, \tau_i$ 和 τ_p 分别为有效扩散时间、复合时间、俘获时间、逃逸时间、隧穿时间和光子寿命. 载流子在各个量子阱中的分布对以上时间的选取有很强的依赖性. 降低任何运输时间(扩散时间、隧穿时间和逃逸时间)都会使载流子在各个量子阱中的分布趋于均匀, 而减少俘获时间则会加剧分布的不均匀性. 模拟中各时间的取值^[16-20]如表 1 所列. 表 1 中扩散时间根据 $\tau_d = d^2/D_e$ 计算得到, 其中 d 为势垒宽度, D_e 为电子扩散系数, 计算中取 $D_e = 1 \text{ cm}^2/\text{s}$ ^[21]. 逃逸时间依据波函数对数导数法求解^[19]. 在计算中还要考虑导带中电子落到价带的弛豫时间影响, 根据 Ye 等^[22]的实验, 取为 0.2 ps, 慢于扩散时间和隧穿时间等运输时间, 致使载流子在阱间的不均匀分布. 由于 GaN 基量子阱的极化效应, 导带中电子波函数与价带中空穴波函数空间分离, 致使量子阱内电子弛豫时间变长, 但要定量考虑这一点, 还需要作更进一步的研究.

表 1 计算中一些时间参数的取值

参 量	取值
扩散时间 τ_d/ps	0.49
复合时间 τ_n/ns	1.00
俘获时间 τ_c/ps	0.40
逃逸时间 τ_e/ns	0.10
隧穿时间 τ_i/ps	0.93
光子寿命 τ_p/ps	1.28

对(7)~(14)式进行自洽求解, 可得到各个量子阱内的能级位置和载流子分布, 发现在空穴量子阱内只有重空穴能级, 而无轻空穴能级. 在计算中考虑到重、轻空穴的耦合会使重空穴有效质量减小^[23, 24]、能级下降、能级间距变大, 根据文献 25、26 的研究, 本文在进行计算时取基态重空穴能级下降 20%.

量子阱内单位体积的自发发射速率为

$$r_{21} = A_{21} f_c (1 - f_v) \rho_{\text{red}}, \quad (15)$$

式中 A_{21} 为自发发射复合系数, f_c, f_v 分别为电子在

导带和价带基态能级上的占有概率, ρ_{red} 为折合态密度, f_c, f_v 分别表示为

$$f_c = \left(\exp\left(\frac{E_2 - E_{\text{Fc}}}{k_B T}\right) + 1 \right)^{-1}, \quad (16)$$

$$f_v = \left(\exp\left(\frac{E_1 - E_{\text{Fv}}}{k_B T}\right) + 1 \right)^{-1}, \quad (17)$$

式中 E_2, E_1 为导带和价带基态能级, $E_{\text{Fc}}, E_{\text{Fv}}$ 为导带中电子和价带中空穴的准费米能级.

4. 结果及讨论

图 3 为脉冲电流驱动下测得的 EL 谱强度随注入电流的变化. 脉冲占空比为 0.1%, 因此可以忽略热效应的影响^[8]. 图 3 中沿箭头所指的方向, 电流以 10 mA 为间隔由 10 mA 增加到 70 mA. 由图 3 可见, 随脉冲电流的增大, LED 功率不断增加, 峰值波长持续蓝移.

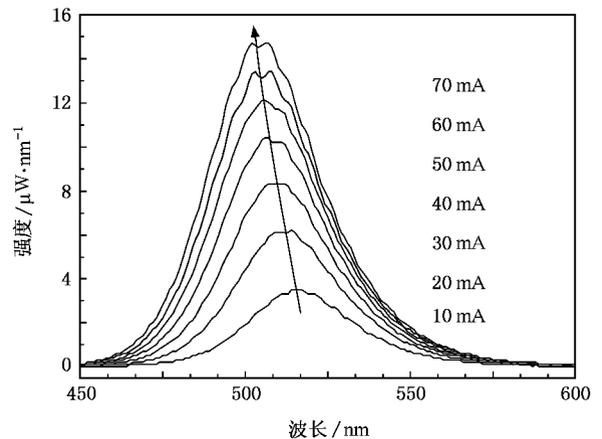


图3 EL 谱强度随注入电流的变化

考虑自发极化和压电极化后, 首先计算了量子阱内极化产生的电场强度, 势阱层电场强度为 3.6 MV/cm, 势垒层电场强度为 0.87 MV/cm. 在此电场作用下, 能带发生倾斜, 如图 4 所示. 由图 4 可知, 考虑极化前后的量子阱导带深度分别为 0.71 和 1.78 eV, 量子阱价带深度分别为 0.3 和 0.87 eV. 由于势阱变深导致量子限制作用加强, 载流子局域化比方势阱更加明显.

为了进一步明确载流子的分布情况, 计算了在不同电流下第一个量子阱(靠近 p 区)与第四个量子阱(靠近 n 区)内电子和空穴的比值, 结果如图 5 所示. 图 5 中空穴的比值是用第一个量子阱内的空穴数除以第四个量子阱内的空穴数; 电子的比值是用

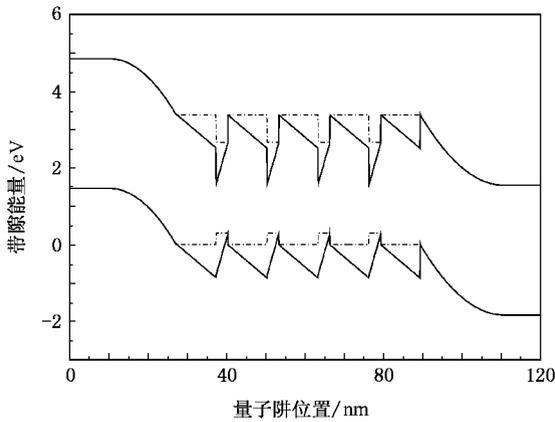


图 4 有源区的能带结构 点线为没有考虑极化的能带图,实线为考虑极化后的能带图

第四个量子阱内的电子数除以第一个量子阱内的电子数.从图 5 可见,在同一电流下,空穴的不均匀性比电子更为明显,这是因为空穴的有效质量大、迁移率慢,空穴在量子阱间的渡越受到更强的限制.从图 5 中还可以看到,随着电流的增大,电子和空穴在量子阱间的分布趋于均匀化.这是因为载流子的不均匀性分布在有源区内产生一个电场,该电场对极化电场的屏蔽作用使势阱的倾斜度减小,量子阱内能级向势阱顶部移动,势垒的限制作用减弱,使得载流子分布逐步趋于均匀化.电子数比值和空穴数比值不断减小,正是载流子产生的电场不断增强的结果.

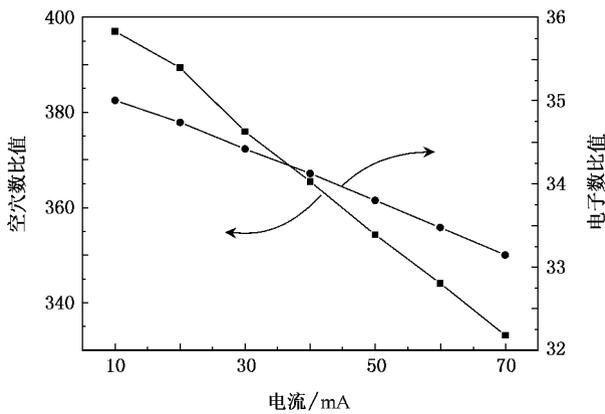


图 5 不同量子阱中电子数比值和空穴数比值随注入电流的变化

极化效应导致的量子限制斯塔克效应使 LED 发光峰红移,而电流注入后电子和空穴对极化电场的屏蔽作用将使发光峰蓝移,并且这种屏蔽作用会随电流的增大而增大.图 6 为峰值波长随注入电流

的变化曲线,图中的圆点代表测试数据,实线为模拟结果.从图 6 可见,随注入电流增大,峰值波长在理论上和实验上有一致的变化趋势.

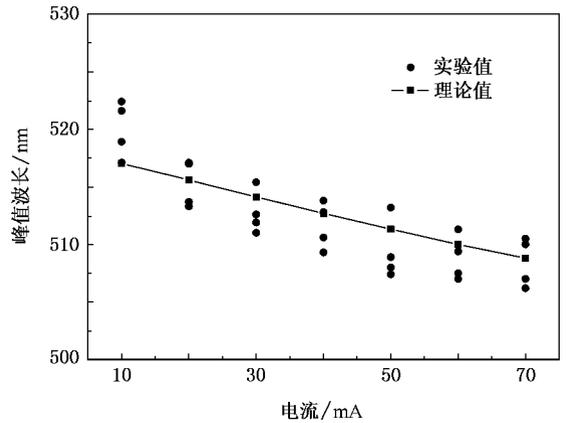


图 6 EL 谱峰值波长随注入电流的变化

由图 5 可知,随注入电流增大,不同量子阱内载流子的数目不同,电子和空穴的空间局域性对极化电场的屏蔽作用将会有差异,因此各阱内 EL 谱峰值位置也各不相同,LED 光谱将会展宽.图 7 为 EL 谱峰半高宽随注入电流的变化曲线,在模拟中设定 LED 各阱的 EL 谱峰半高宽为 36 nm,对 4 个阱的光谱叠加,通过数据拟合得到总的半高宽随注入电流的变化.从图 7 可见,实验测量和理论计算数据有一致的变化趋势,两者数值上的差距主要是由于模拟计算时选取的半高宽引起.

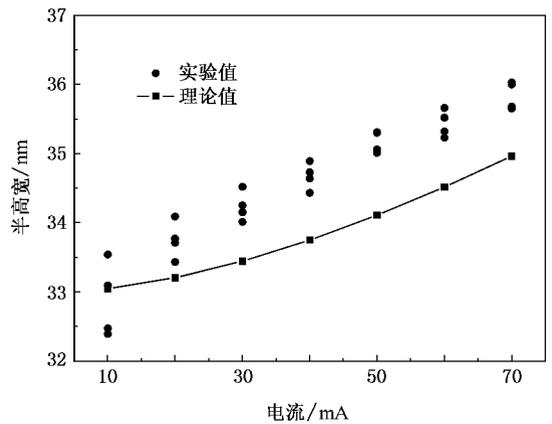


图 7 EL 谱峰半高宽随注入电流的变化

图 8 为实验测量和模拟计算得到的 EL 谱功率随注入电流的变化.从图 8 可见,随着电流的增加,光功率不断增大,但增长速度缓慢减小.这是因为随着载流子在量子阱内增加,导带中电子和

价带中空穴的准费米能级 E_{F_c} , E_{F_v} 分别向高能方向移动, 电子和空穴在能级上的占据概率分别

增加, 但这种变化并不是线性的, 而是遵从负指数规律.

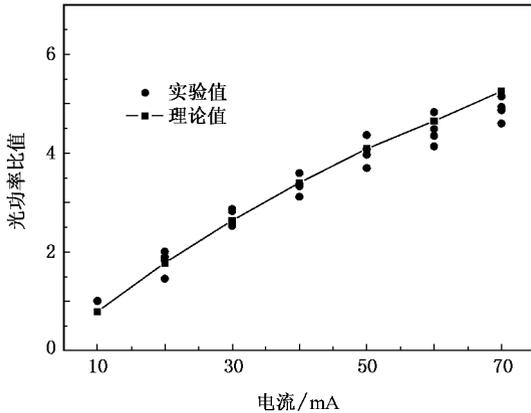


图 8 EL 谱功率随注入电流的变化

5. 结 论

本文制备了 GaN 基绿光 LED. 分析了 GaN/InGaN 量子阱的自发极化和压电极化效应, 根据耦合法求解了极化电场强度. 考虑载流子在量子阱间的不均匀分布, 模拟计算了系统的一维薛定谔方程、稳态速率方程和泊松方程, 得到了载流子在各个量子阱中的分布比值和辐射复合速率. 同时还得到了不同电流下 EL 谱的峰值波长、谱峰半高宽及 EL 谱强度的变化情况. 研究发现, 当测试电流由 10 mA 增加到 70 mA 时, 理论结果与实验结果能很好符合.

- [1] Sheu J K, Chang S J, Kuo C H, Su Y K, Wu L W, Lin Y C, Lai W C, Tsai J M, Chi G C, Wu R K 2003 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **15** 18
- [2] Chen C H, Chang S J, Su Y K, Sheu J K, Chen J F, Kuo C H, Lin Y C 2002 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **14** 2532
- [3] Ozden I, Makarona E, Nurmikko A, Takeuchi T, Krames M 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 2532
- [4] Li Y, Zheng R S, Feng Y C, Liu S H, Niu H B 2006 *Chin. Phys.* **15** 702
- [5] Ambacher O, Smart J, Shealy J R, Weimann N G, Chu K, Murphy M, Dimitrov R, Wittmer L, Stutzmann M, Rieger W, Hilsenbeck J 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 3222
- [6] Christmas M E U, Andreev A D, Faux D A 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 073522
- [7] Kong Y C, Zheng Y D, Chu R M, Gu S L 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1756 (in Chinese) [孔月婵、郑有、储荣明、顾书林 2003 物理学报 **52** 1756]
- [8] Kong Y C, Zheng Y D, Zhou C H, Deng Y Z, Gu S L, Shen B, Zhang R, Han P, Jiang R L, Shi Y 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2320 (in Chinese) [孔月婵、郑有、周春红、邓永桢、顾书林、沈波、张荣、韩平、江若璉、施毅 2004 物理学报 **53** 2320]
- [9] Chhaje S, Xi Y, Gessmann T, Xi J Q, Shah J M, Kim J K, Schubert E F 2005 *Proc. SPIE* **5739** 16
- [10] Luo Y, Guo W P, Shao J P, Hu H, Han Y J, Xue S, Wang L, Sun C Z, Hao Z B 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2720 (in Chinese) [罗毅、郭文平、邵嘉平、胡卉、韩彦军、薛松、汪莱、孙长征、郝智彪 2004 物理学报 **53** 2720]
- [11] Carrier P, Wei S H 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 033707
- [12] Goano M, Bellott E, Ghillino E, Ghione G, Brennan K F 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 6467
- [13] Wu J, Walukiewicz W, Yu K M, Ager J W, Haller E E, Lu H, Schaff W J 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 4741
- [14] Martin G, Botchkarev A, Rockett A, Morkoc H 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 2541
- [15] Li J M, Lü Y W, Li D B, Han X X, Zhu Q S, Liu X L, Wang Z G 2004 *J. Vac. Sci. Technol. B* **22** 2568
- [16] Vandermeer A D, Cassidy D T 2005 *IEEE J. Quantum. Electron.* **41** 917
- [17] Franssen G, Grzanka S, Czernecki R, Suski T, Marona L, Riemann T, Christen J, Teisseyre H, Valvin P, Lefebvre P, Perlin P, Leszczyński M, Grzegory I 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 103507
- [18] Zgur U O, Bergmann M J, Casey H C Jr, Everitt H O, Abare A C, Keller S, DenBaars S P 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 109
- [19] Kevin R, Lefebvre, Anwar A F M 1997 *IEEE J. Quantum. Electron.* **33** 187
- [20] Li C F, Wang Q 2001 *Physica* **296** 356
- [21] Li Z F, Lu W, Ye H J, Chen Z H, Yuan X Z, Dou H F, Shen S C, Li G, Chua S J 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 2691
- [22] Ye H, Wicks G W, Fauchet P M 1999 *Appl. Phys. Lett.* **77** 1185
- [23] Dosanjh S S, Bowser E F, Harris J J 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 2142
- [24] Herman M A, Bimberg D, Christen J 1991 *J. Appl. Phys.* **70** 2
- [25] Tsang L, Chuang S L 1992 *Appl. Phys. Lett.* **60** 2543
- [26] Tanaka K, Kotera N, Nakamura H 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 4071

The effect of polarization and non-uniform carrier distribution in the GaN-based light emitting diodes^{*}

Gu Xiao-Ling Guo Xia Wu Di Xu Li-Hua Liang Ting Guo Jing Shen Guang-Di
(*Beijing Photoelectronics Technology Laboratory, Beijing University of Technology, Beijing 100022, China*)

(Received 1 June 2006 ; revised manuscript received 24 January 2007)

Abstract

GaN-based green light emitting diodes was designed and fabricated. We calculated the internal electric field using the coupled method on the basis of analyzing the effect of the spontaneous polarization and the piezoelectric polarization. Taking into consideration of the effect of non-uniform carrier distribution in the active region, we obtained the fractions of the carriers and the rate of the recombination in different wells by calculating the steady state rate equation and Poisson equation. It was found that the calculation data are consistent with the experimental data for the changes of the peak wavelength, the light power and the halfwidth with the current in the range of 10—70 mA.

Keywords : polarization, non-uniform carrier distribution, recombination rate

PACC : 7865P, 7850G, 7730

^{*}Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2006CB604902), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60506012) and the National High Technology Development Program of China (Grant No. 2006AA03A121).