

纳米折叠 InGaN/GaN LED 材料生长及器件特性*

陈贵锋¹⁾ 谭小动¹⁾ 万尾甜¹⁾ 沈俊²⁾ 郝秋艳¹⁾ 唐成春¹⁾
朱建军^{3)†} 刘宗顺³⁾ 赵德刚³⁾ 张书明³⁾

1) (河北工业大学材料学院, 河北省新型功能材料实验室, 天津 300130)

2) (中国科学院理化技术研究所, 北京 100190)

3) (中国科学院半导体研究所, 集成光电子学国家重点实验室, 北京 100083)

(2010年9月25日收到; 2010年10月13日收到修改稿)

在以自组织 Ni 纳米岛为掩膜制作的 n-GaN 纳米柱上, 利用 MOCVD 方法外延生长了具有折叠 InGaN/GaN 多量子阱(MQW)的 LED 结构外延片, 进而制作了 LED 器件. 外延片上中下游的光致荧光测试, 结果表明外延片具有很好的均匀性. 用该外延片制作的 LED 的电致发光光谱, 随注入电流增加没有明显蓝移, 这表明纳米结构能更好地释放应力, 纳米柱上外延生长的多量子阱, 具有较低的压电极化电场. 正向工作电流 20 mA 时, LED 器件的工作电压为 4.6 V.

关键词: 纳米柱 LED, 光致发光, 电致发光

PACS: 61.72.uj, 68.55.-a, 78.67.-n

1. 引言

GaN 基 LED 由于其寿命长, 尺寸小, 高效, 节能等优点引起了人们的广泛关注, 特别是在半导体照明领域. 传统平板结构 LED 的 InGaN/GaN 量子阱中, 由于 InN 和 GaN 之间较大的晶格失配, 导致量子阱中会产生很强的压电场, 由此产生的量子限制 Stark 效应^[1], 会引起能带倾斜, 电子和空穴波函数的空间分离, 从而降低载流子辐射复合速率, 最终降低 LED 器件的内量子效率.

相比体材料, 一维纳米结构具有比表面积大的优点, 在光电器件领域得到了很好的应用. 研究表明, 纳米柱结构具有大的表面积, 可以释放应力^[2], 从而使得异质界面处大的晶格失配得到缓解, 从而提高辐射复合速率. 同时, 纳米材料大的表面积还可以大大提高发光器件中的出光效率.

基于以上优势, 国内外在制作纳米结构的 LED 器件方面已经做了很多的研究工作^[3-8]. 纳米柱 LED 的制作方法一般可分为两种: 一种是自下而上的方法, 即采用催化剂辅助或者选区沉积生长的方法获得纳米柱阵列, 进而制作 LED 器件^[9-12]; 另外

一种是采用自上而下的方法, 在生长后的外延层上利用各种刻蚀技术来制作纳米结构的材料^[3,5]. 本文结合这两种方式在自上而下刻蚀生成的纳米柱上外延制作了具有折叠有源区的 LED. 并采用扫描电镜(SEM)、光致发光谱(PL)方法分析表征了折叠 InGaN/GaN MQWs 外延结构的光学性质, 并对基于此种结构的 LED 器件进行了电致发光(EL)、*I-V* 特性测试分析.

2. 实验

实验中所用的 MOCVD 设备是“Thomas Swan CCS 3 × 2”系统, N 源、Ga 源和 In 源分别为 NH₃, TMG 和 TMI_n, 高纯 H₂ 为载气, 衬底为(0001)面蓝宝石.

首先, 在蓝宝石衬底上两步法生长约 2 μm 的 GaN 层. 然后, 以自组织的 Ni 纳米岛作掩膜, 用 ICP 刻蚀制作 n-GaN 纳米柱阵列模板. 基本制作过程如下: PECVD 法蒸一层 SiO₂ (300 nm); 之后电子束沉积一层 Ni (15 nm); 在 N₂ 气氛下, 850°C 退火 1 min, Ni 自组织形成纳米岛结构; 以形成的自组织 Ni 纳米岛做掩膜 ICP 刻蚀 SiO₂ (300 nm), 再接着刻蚀

* 天津市自然科学基金(批准号: 10JCYBJC03000)和中国科学院半导体研究所集成光电子国家重点实验室资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: admat@hebut.edu.cn

GaN(1 μm);然后 BOE 液浸泡,去除表面的 Ni 和 SiO₂ 纳米柱掩膜.从 SEM 结果可看出,最后得到高 1 μm,直径约 200—300 nm,柱间距约 230—300 nm,密度约为 6 × 10⁸ cm⁻² 的 GaN 纳米柱阵列模板.

随后,在纳米柱阵列模板上生长 10 个周期的 InGaN/GaN 多量子阱作为有源区.在有源区生长结束后,生长约 400 nm 掺 Mg 的 p-GaN.生长完的样品,在 N₂ 气氛下,750 °C 退火 20 min.最后制作 Ni/Au 透明电极及 Ti/Al/Ti/Au 压焊电极.采用扫描电镜、光致发光谱(PL)以及电致发光谱(EL)方法和 I-V 特性测试分析了 InGaN/GaN 多量子阱的结构和光电特性以及器件结构的电学特性.PL 测试使用

He₂-Cd(325 nm) 激光器作为激发光源,室温测量,扫描范围为 300—600 nm.

3. 结果与讨论

图 1(a)所示为 SEM 所观察下的 GaN 纳米柱模板的 SEM 图,图 1(b)为生长的具有折叠 MQW 有源区结构的纳米柱 LED 基本结构示意图.如图所示,在纳米柱的顶端和侧面都有 MQW 外延生长,最后通过 p-GaN 横向外延生长得到平整的表面.这种方法结合了纳米柱以及平板结构工艺简单的优势.

图 2 所示的是 GaN 纳米柱蓝光 LED 上中下游

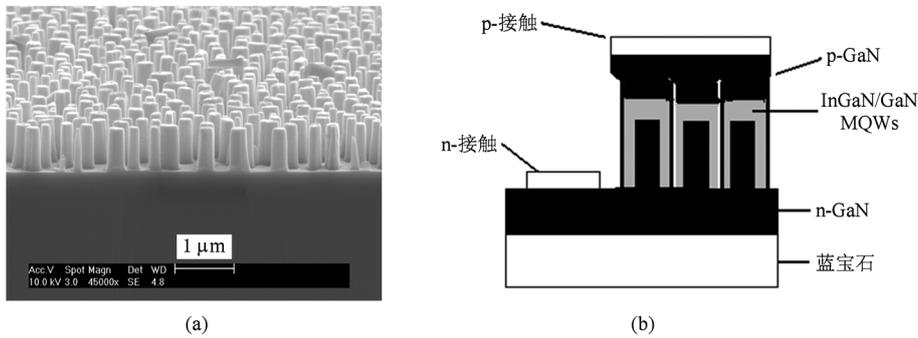


图 1 (a) GaN 纳米柱模板的 SEM 图;(b) 纳米柱 LED 结构示意图

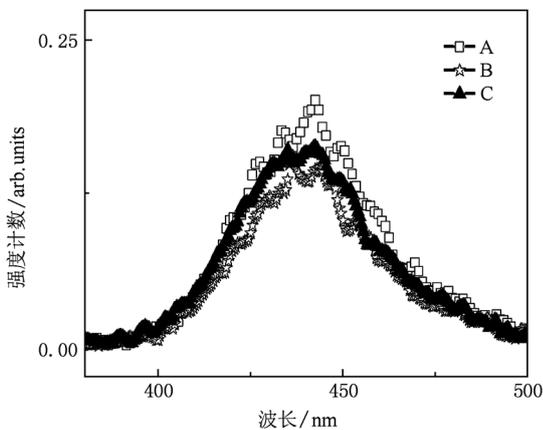


图 2 纳米柱 LED 材料不同部位的光致发光

三个不同位置的光致发光谱线.三个测试点的 InGaN/GaN 多量子阱的发光峰值都在 440 nm 左右,且光致发光谱线的半高宽均约为 40 nm,这表明外延片的波长均匀性很好.

图 3 所示为 GaN 纳米柱 LED 随电流而变化的电致发光光谱.从图中可以清楚地观察到双峰的出现.这主要是因为纳米柱顶面和侧面分别为极性和

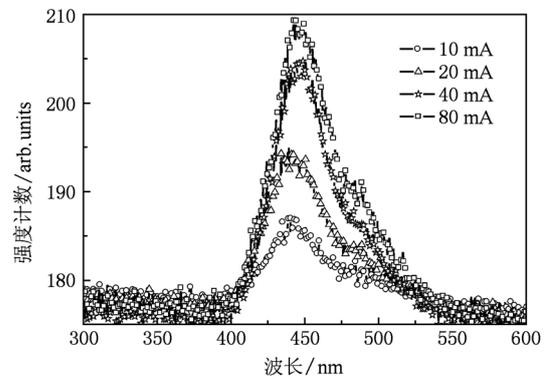


图 3 纳米柱蓝光发光二极管在不同注入电流下的发光光谱

半极性面,在 InGaN/GaN 多量子阱生长过程中,柱顶面和柱侧面的生长速度各不相同,同时 In 的掺入效率也互有差异.各向异性生长导致柱顶面和侧面外延生长的有源区厚度和 In 组分不一致,导致 EL 谱出现了多峰现象.从图 3 中 10 mA, 20 mA, 40 mA, 80 mA 不同的注入电流下的 EL 谱可以看到,随着注入电流的增加,波峰位置几乎没有发生像常规 LED 器件发光主峰随注入电流增大而蓝移

的明显现象. 这种现象可以归结于纳米柱结构降低了多量子阱内的压应变, 应力得到部分缓解或弛豫, 使量子限制 Stark 效应大大降低, 有效抑制了多量子阱内的压电极化电场, 削弱了 LED 器件发光主峰随注入电流增大而蓝移的现象.

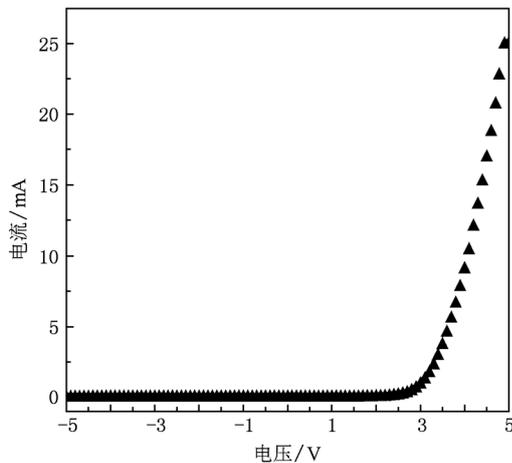


图4 纳米柱 LED 的 I - V 特性曲线

图4所示为外延生长的纳米柱 LED 的 I - V 特性曲线. 当工作电流为 20 mA 时, 正向工作电压为

4.6 V, 高于目前国际上商业化的 GaN 基 LED 的特性值. 在反向电压 5 V 时, 漏电流约为 10 μ A. LED 的典型 I - V 关系可表示为

$$I = I_0 \exp(qV/nkT),$$

其中 I_0 为反向饱和电流, q 为基本电荷, k 为玻尔兹曼常数, T 为绝对温度) 由曲线数据代入上式可得到理想因子 n 的值约为 10.5. 这表明折叠 InGaN/GaN 有源区 LED 的 I - V 曲线远偏离理想状态, 表现出很高的串联电阻行为, 这和比较厚的 p-GaN 以及量子阱的非均匀性有关.

4. 结 论

本文制作了具有纳米折叠有源区结构的 GaN 基蓝光 LED, 并对其电学和光学性能进行了初步研究. 光致发光测量显示外延片具备有优良的均匀性. 制成标准的 LED 管芯后, 正向工作电流 20 mA 时, 工作电压为 4.6 V. 反向电压 5 V 时, 漏电为 10 μ m. 计算得到的理想因子为 10.5. 相比于薄膜 LED, 其工作电压还较高, 漏电偏大, 需要进一步优化纳米柱 LED 的生长制作工艺.

- [1] Chang C Y, Wu Y R 2010 *IEEE Journal of Quantum Electronics* **46** 6 884
- [2] Neufeld C J, Schaake C, Grundmann M, Fichtenbaum N A, Keller S, Mishra U K 2007 *Phys. Stat. Sol. (c)* **45** 1605
- [3] Kishino K, Kikuchi A, Sekiguchi H, Ishizawa S 2007 *Gallium Nitride Materials and Device II* **6473** 64730T
- [4] Kim H M, Cho Y H, Lee H, Kim Suk II, Ryu S R, Kim D Y, Kang T W, Chung K S 2004 *Nano Letters* **46** 1059
- [5] Hsueh T H, Huang H W, Kao C C, Chang Y H, Yang M C, Kuo H C, Wang S C 2005 *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** 4B 2661
- [6] Charlton M D B, Lee T, Zoorob M E, Shields P A, Wang W N 2007 *Seventh International Conference on Solid State Lighting* San Diego, California August 27—29, 2007 6669 p14
- [7] Hu H Y, Lu L, Du W, Liu H W, Kan Q, Wang C X, Xu X S, Chen H D 2007 *Solid State Lighting and Solar Energy Technologies* **6841** 68410J-1-4
- [8] Keller S, Schaake C, Fichtenbaum N A, Neufeld C J, Wu Y, McGroddy K, David A, DenBaars S P, Weisbuch C, Speck J S, Mishra U K 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 054314
- [9] Zhen C C, Yeh C C, 2000 *Adv. Mater. (Weinheim, Ger.)* **12** 738
- [10] Yoshizawz M, Kikuchi A, Mori M, Fujita N, Kishino K 1997 *Jpn. J. Appl. Phys.* **236** 459
- [11] Kim H M, Kim D S, Kim D Y, Wkang T W, Cho Y H, Chung K S 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 2193
- [12] Deb P, Kim H, Rawat V, Oliver M, Kim S, Marshall M, Stach E, Sands T 2005 *Nano Letters* **5** 1847

Growth and device characteristics of nano-folding InGaN/GaN multiple quantum well LED^{*}

Chen Gui-Feng¹⁾ Tan Xiao-Dong¹⁾ Wan Wei-Tian¹⁾ Shen Jun²⁾ Hao Qiu-Yan¹⁾ Tang Cheng-Chun¹⁾
Zhu Jian-Jun^{3)†} Liu Zong-Shun³⁾ Zhao De-Gang³⁾ Zhang Shu-Ming³⁾

1) (*Key Lab. for New Type of Functional Materials in Hebei Province, Hebei University of Technology, Tianjing 300130, China*)

2) (*Technical Institute of Physics and Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

3) (*State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

(Received 25 September 2010; revised manuscript received 13 October 2010)

Abstract

GaN-based LED wafers with nano-folding InGaN/GaN multiple quantum wells (MQWs) are grown on n-GaN nanopillar array templates which are fabricated using self assembled Ni nanodots as etching mask. Photoluminescence (PL) spectra of the wafer show uniform light emission wavelength over the whole area of it. No blue shift of the main peak is observed in the electroluminescence (EL) spectra of the LED devices fabricated with the wafer as the injection current increases from 10 mA to 80 mA. This can be ascribed to the reduced quantum confinement Stark effect (QCSE) and the resulting less band gap tilted by strain relaxation in the nano-folded MQWs. The device shows an excellent rectifying behavior with a forward voltage of 4.6 V under 20 mA injection current.

Keywords: nano-LED, photoluminescence (PL), electroluminescence (EL)

PACS: 61.72.uj, 68.55.-a, 78.67.-n

^{*} Project supported by the Nature Science Foundation of Tianjin (Grant No. 10JCYBJC03000) and State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences.

[†] Corresponding author. E-mail: admat@hebut.edu.cn