

硅衬底 InGaN/GaN 基蓝光发光二极管 droop 效应的研究*

刘木林^{1)2)†} 闵秋应²⁾ 叶志清²⁾

1) (南昌大学材料科学与工程学院, 南昌 330031)

2) (江西师范大学物理与通信电子学院, 南昌 330022)

(2011 年 12 月 15 日收到; 2012 年 3 月 2 日收到修改稿)

InGaN/GaN 基阱垒结构 LED 当注入的电流密度较大时, LED 的量子效率随注入电流密度增大而下降, 即 droop 效应. 本文在 Si (111) 衬底上生长了 InGaN/GaN 基蓝光多量子阱结构的 LED, 通过将实验测量的光电性能曲线与利用 ABC 模型模拟的结果进行对比, 探讨了 droop 效应的成因. 结果显示: 温度下降会阻碍电流扩展和降低空穴浓度, 电子在阱中分布会越来越不平衡, 阱中局部区域中因填充了势能越来越高的电子而溢出阱外, 从而使 droop 效应随着温度的降低在更小的电流密度下出现且更为严重, 不同温度下实验值与俄歇复合模型模拟的结果在高注入时趋势相反. 此结果表明, 引起 droop 效应的主因不是俄歇非辐射复合而是电子溢出, 电子溢出的本质原因是载流子在阱中分布不均衡.

关键词: 氮化镓, 蓝光 LED, 量子效率, droop 效应

PACS: 85.60.Jb, 78.60.Fi, 73.61.Ph

1 引言

随着近年来三、五族基发光材料技术的不断成熟, LED 和激光二极管 (LD) 已广泛用于全色显示、指示灯、数据存储、医疗和交通灯等领域, 特别是由于 GaN 基 LED 的快速发展, LED 已开始在普通照明中迅速推广. LED 优点是使用寿命长, 发光效率高, 然而当铟镓氮 / 氮化镓 (InGaN/GaN) 基阱垒 LED 注入的电流密度较大时, 会出现 droop 效应^[1], 使得 LED 在普通照明中的成本大为增加. 目前对 droop 效应的成因众说纷纭, 主要有缺陷引起的非辐射复合^[2,3]、俄歇复合^[4,5]、极化场^[6,7]和载流子溢出^[6,8]等, 然而在这众多的观点中至今却没有一个被普遍接受^[9,10]. 本文通过测量和分析 Si 衬底蓝光 LED 的变温电光 (EL) 谱、分别假设俄歇复合和载流子溢出为大电流密度注入下影响 EQE

的关键因素对样品的 EQE 曲线进行数值模拟, 研究了 Si 衬底蓝光 LED 引起 droop 效应的原因.

2 ABC 模型

2.1 理论模型

平衡状态下载流子的复合可用简单的 ABC 模型描述为^[11]

$$\frac{\eta_{\text{inj}} J}{qd} = AN + BN^2 + CN^3, \quad (1)$$

这里, A 是肖克莱 - 里德 - 霍尔非辐射复合的系数, B 是辐射复合的系数, C 是俄歇非辐射复合 (俄歇复合) 的系数, N 是载流子浓度, J 是电流密度, d 是有源层的有效厚度, q 是电子的电量. 电流的注入效率 η_{inj} 可表示为 $\eta_{\text{inj}} = I_{\text{QW}} / (I_{\text{QW}} + I_{\text{leak}})$. 这里 I_{leak} 是与注入到量子阱中电流 I_{QW} 相关的漏电

* 国家自然科学基金 (批准号: 60967002) 资助的课题.

† E-mail: sanmu70153@yahoo.com.cn

流^[9,10], 即

$$I_{\text{leak}} = kI_{\text{QW}}^b, \quad (2)$$

式中 k, b 是漏电流的拟合系数. 由 (1) 式可将 LED 的外量子效率 (EQE) 表示为

$$\eta_{\text{EQE}} = \frac{\eta_{\text{inj}}BN^2}{AN + BN^2 + CN^3} \times \eta_{\text{EXE}}, \quad (3)$$

η_{EXE} 为 LED 的光提取效率.

2.2 实验

以有机源三甲基镓 (TMGa)、三甲基铟 (TMIn) 和三甲基铝 (TMAI) 分别作为 Ga, In 和 Al 源, 氨气 (NH_3) 作为 N 源, 硅烷 (SiH_4) 和二茂镁 (CP_2Mg) 分别作为 n 型和 p 型掺杂剂, 采用 Thomas Swan 公司制造的 CCS MOCVD 系统设备, 在 2 英寸的 Si 衬底上生长了 GaN 基多量子阱 (MQW) 结构的 LED, 其外延工艺和器件结构已有相关报道^[12–15]. 本样品先在 Si 衬底上沉积一层 $3.2\ \mu\text{m}$ 厚的 Si 掺杂 n 型 GaN, 然后分别依次生长有 5 个 InGaN 量子阱结构的有源层、AlGaIn 电子阻挡层 (EBL) 和 $120\ \text{nm}$ 厚 Mg 掺杂 p 型 GaN 层. 在 p 层欧姆接触制备好之后, 用压焊方式将外延层转移至新的双面抛光导电基板上, 然后采用化学腐蚀方法去除 Si 衬底, 制作好 n 电极后, 器件结构如图 1 所示. 为了提高出光效率, 制作 p 型接触层时, 在如图 1 所示的 n 电极的正下方制作了一绝缘层 (互补电极), 芯片的尺寸为 $160\ \mu\text{m} \times 160\ \mu\text{m}$. 使用 Keithley 2635 电源、光谱仪 Compact Array Spectrometer (CAS) 140 CT 对裸芯的光电性能进行测量, 测量中为尽可能避免热效应的影响采用了脉冲直流电源.

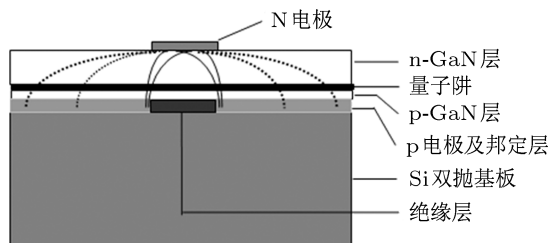


图 1 器件结构示意图

变化的趋势相同, 即开初 EQE 随着电流密度的增大而增大, 当 EQE 达到峰值后, 电流密度的进一步增大使 EQE 出现了 droop 效应. 本文按电流密度的大小分三个区域对 EQE 进行讨论. 在 I 区所示的小电流密度 ($0.005\text{--}0.1\ \text{A}/\text{cm}^2$) 下, EQE 随着温度的降低迅速增大. 这可用上述的 ABC 模型来解析, 复合系数 A, B, C 与温度有关, 可简单表示为: $A(T) \propto T^{3/2}$, $B(T) \propto T^{-3/2}$, $C(T) \propto \exp(1-300/T)^{[16]}$, 当温度下降时, 与缺陷有关的非辐射复合系数 A 减小、辐射复合系数 B 增大、俄歇复合或电子泄漏在低电流密度注入 (低注入) 下影响可忽略, 由 (3) 式就很好解析图 2 中电流密度较小时 EQE 随温度下降而升高现象. 在 II 区 ($0.1\text{--}20\ \text{A}/\text{cm}^2$), 随着温度的下降, EQE 随注入电流密度的变化由 $350\ \text{K}$ 时的单调增加逐步变化为 $100\ \text{K}$ 时的单调下降, 且 EQE 峰值位置的电流密度随温度的降低迅速减小. 在这个区域中温度降低引起系数 A, B 的变化对 EQE 所造成的影响相对变小, 而电子泄漏或俄歇复合对 EQE 的影响已不可再忽略且随着温度的下降逐渐增强. 在高电流密度注入 (高注入) 的 III 区 ($20\text{--}500\ \text{A}/\text{cm}^2$), 当电流密度增大时, EQE 随温度降低而增大的幅度越来越小, 且出现了温度下降 EQE 反而减小的情况. 以上结果表明, 低温下比常温下具有更严重的 droop 效应, 高注入下影响 EQE 关键因素还有待进行更为深入的研究.

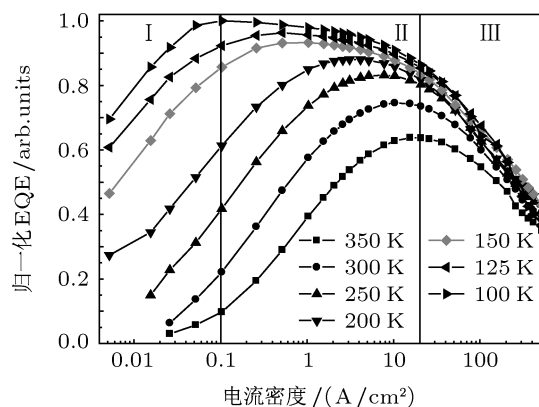


图 2 不同温度下归一化 EQE 随注入电流密度变化的曲线

3 结果与讨论

图 2 为不同温度下归一化 EQE 随注入电流密度变化的曲线, 图中各温度下曲线随电流密度

很多研究结果表明在研究发光效率时, 俄歇复合和载流子泄漏对于 droop 效应的影响难以区分, Özgür 等人分别用俄歇复合和载流子溢出模型对样品 IQE 曲线进行了模拟, 两种模拟结果与实验结果都符合得较好^[10], 但仔细对比文献 [10] 中

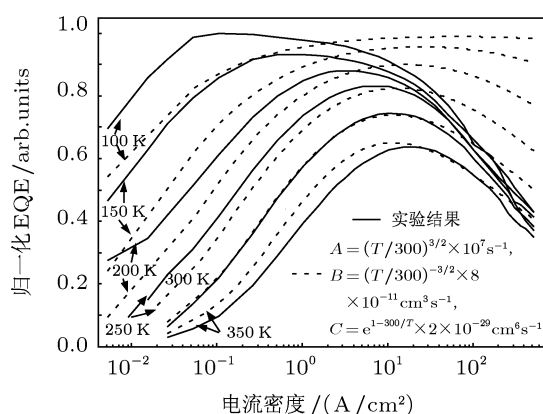


图3 不同温度下 EQE 随注入电流密度变化的实验值与模拟结果对比曲线

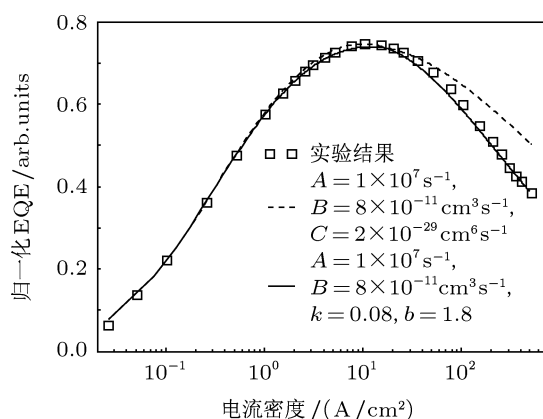


图4 300 K 时 EQE 随注入电流密度变化的实验与俄歇复合或电子泄漏模型模拟的对比曲线

的图4、图5可发现在高注入下实验测量值与假定 droop 效应是由俄歇复合而引起的模拟结果还是存在一定的差别. 为了找出 droop 效应的真正原因, 我们在图3中给出了不同温度下由(3)式给出的外量子效率关系, 在考虑 droop 效应是由俄歇复合引起 (不考虑载流子泄漏, 即 $\eta_{inj} = 1$) 时的模拟曲线, 并使其与实验测量曲线进行对比. 模拟时复合系数 A, B, C 的取值我们参考已报道结果 [4,10,17,18], 参照 300 K 时实验测量结果适当调节此温度下各复合系数的大小, 相应地各温度下 A, B, C 分别取为 $A = (T/300)^{3/2} \times 10^7/s$, $B = (T/300)^{-3/2} \times 8 \times 10^{-11} \text{ cm}^3/s$, $C = e^{1-300/T} \times 2 \times 10^{-29} \text{ cm}^6/s$. 图中显示 300 K 时的模拟曲线在电流密度小于 50 A/cm^2 时, 与实验数据符合得很好, 而当注入电流密度继续增大时, 尽管模拟曲线中 C 取值已高达 $2 \times 10^{-29} \text{ cm}^6/s$ (比作者认为 droop 效应是由俄歇复合引起的文献 [5] 中的 C 值大两个数量级), EQE 的模拟结果开始大于

实验数据, 且差距随注入电流密度的增大而变大. 图3还显示, 在相对较小注入电流密度范围内, 除了温度为 350 K 时的 EQE 模拟值比实验结果大, 其余温度小于 300 K 的模拟值都要小于实验值. 我们认为在低注入下出现如此结果是位错漏电引起的, 这种漏电的绝对数值很小, 只在低注入时对 EQE 有明显的影响且其大小随温度的降低而减少, 由于模拟中各温度下的系数 A, B, C 值是参考 300 K 时的实验结果后相应得到的, 其他温度下的系数中没有考虑到这种随温度下降而减少的漏电流的影响, 所以呈现出 350 K 时模拟结果大于实验值, 而其他小于 300 K 时的模拟结果均小于实验值, 但低注入时各个温度下的实验曲线与模拟结果随电流密度变化的趋势是相同的. 图3中, 在实验值出现峰值后附近, 随着注入电流密度的进一步增大, 实验值与模拟结果出现了交点, 然后模拟结果逐渐大于实验值, 且差距随温度的下降和注入电流密度增大而迅速扩大, 并逐渐形成了趋势相反的曲线. 另外, 从图3还可看出, 图中假定 droop 效应是由俄歇复合引起得到的模拟结果, 在不同温度下 EQE 峰值处的电流密度随着温度的下降是增大的, 正好与图中的实验结果相反. 以上这些实验值与模拟结果的巨大差别表明俄歇复合不会是 droop 效应的主因, 下面将探讨电子泄漏对 droop 效应的影响.

图4给出了温度为 300 K 时, 归一化 EQE 随注入电流密度变化的实验结果与假定俄歇复合 (不考虑电子泄漏)、假定电子泄漏 (不考虑俄歇复合) 为 droop 效应的影响因素模拟结果的对比曲线. 考虑电子泄漏模拟时复合系数 A, B 的取值与图3中考虑俄歇复合模拟时的相同, 而由(2)式决定的系数 k, b 本文参考文献 [9] 和 [10] 的结果, 由实验曲线拟合分别为 0.08 和 1.8. 如图4中的实线所示, 与考虑俄歇复合 (参数取值与图3中 300 K 相同) 模拟结果不同的是, 考虑电子泄漏的模拟结果曲线即使在高注入下与实验结果也符合得很好. 由此可见, 电子泄漏是高注入下影响 EQE 的主要因素, 是 droop 效应的成因. 下文中我们以不同温度下的 J - V , EQE 曲线来具体分析造成电子泄漏的原因以及由此而引起的 droop 效应.

图5给出了不同温度下的 J - V 曲线. 图中显示, 随着温度的降低, 注入同样大小的电流密度需要施加的正向电压增大, 且在高注入下电压的增大更为显著. 电压随温度降低而增大有很少的一部分是由于量子阱的禁带宽度随着温度的降低而增大

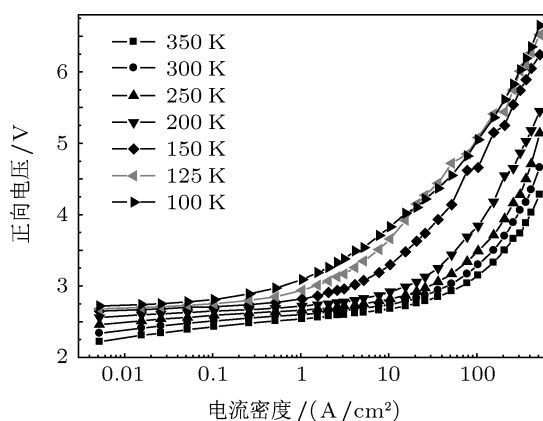


图5 不同温度下注入电流密度随正向电压变化的曲线

引起, 剩余大部分我们作如下分析: 随着温度的降低, 如图 1 中所示的 n-GaN, p-GaN 中的电阻及接触电阻都会增大, 这时可形象地把一个 LED 看成是由许许多多的微小 LED 并联起来, 这些电阻的增大就是增加了每个微 LED 的电阻; 同时, 由于温度降低使电流扩展变差, 电流就会更加趋向于从那些邻近 n 电极的微 LED 中流过 (即沿图 1 电极附近实线所示的路径通过), 这就相当于参与并联的电阻个数减少了, 这两个方面的影响都增加了总的电阻, 因此当温度下降时注入同样电流密度正向偏压会增大, 增加部分的电压主要被消耗在 LED 的串联电阻上, 这在高注入时尤为显著. 正是由于温度较低时, 变差的电流扩展使靠近电极附近流过的电流密度即使是在低注入下也很大, 从而使得这部分阱中即使在很小的电流密度注入下也具有高的载流子浓度, 加上温度降低 p 型中的 Mg 掺杂失去活性, 使流入阱中的空穴浓度降低, 因此这部分区域的阱会很快被电子填满而使电子越过 EBL 层溢出阱外, 溢出的电子还会与 p 层中的空穴复

合, 进一步降低流入阱中的空穴浓度, 加剧电子溢出, 因此出现了随着温度的下降 EQE 峰值处的电流密度迅速降低 (图 2 中 350 K 时峰值处电流密度为 100 K 时的 107 倍), EQE 随温度的变化趋势在高注入时与低注入时相反, 甚至还出现了温度 100 K 时的 EQE 反而低于温度 300 K 时的 EQE. 以上分析结果表明温度的下降只是加剧了载流子在阱中分布不均衡, 使载流子的溢出更为严重, droop 效应关键是由于载流子在阱中的分布不均衡而溢出引起.

4 结论

制作好 GaN 基多量子阱 (MQW) 结构的 LED 后测试了其光电性能, 讨论了不同温度下 EQE 随注入电流密度变化的趋势, 并使其分别与假定俄歇复合为高注入时影响 EQE 的因素和假定电子泄漏为高注入时影响 EQE 的因素的模拟 EQE 曲线进行了对比, 结果显示曲线在 300 K 时实验数据与考虑俄歇复合的模拟结果在高注入时差别巨大, 而能与考虑电子泄漏的模拟结果很好地符合, 通过分析得出: 温度的降低会阻碍电流扩展和降低空穴浓度, 使电子在阱中局部区域的浓度很高, 这些区域中的电子由于填充效应容易越过 EBL 而溢出阱外, 从而产生更为严重 droop 效应. 这些结果表明引起 droop 效应关键是由于载流子在阱中的分布不均衡而溢出. 因此, 在制备 LED 过程中提高外延层特别是阱层材料的均匀度、增加 p-GaN 层的空穴浓度和增强电流扩展都能使载流子在阱中的分布更均衡, 从而提高 LED 的量子效率特别是在高注入时的量子效率, 降低 LED 在普通照明应用中的成本.

- [1] Mukai T, Yamada M, Nakamura S 1999 *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** 3976
- [2] Schubert M F, Chhahed S, Kim J K, Schubert E F, Koleske D D, Crawford M H, Lee S R, Fischer A J, Thaler G, Banas M A 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 231114
- [3] Chernyakov A E, Sobolev M M, Ratnikov V V, Shmidt N M, Yakimov E B 2009 *Superlattices and Microstructures* **45** 301
- [4] Shen Y C, Mueller G O, Watanabe S, Gardner N F, Munkholm A, Krames M R 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 141101
- [5] Kioupakis E, Rinke P, Delaney K T, Van de Walle C G 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 161107
- [6] Kim M H, Schubert M F, Dai Q, Kim J K, Schubert E F, Piprek J, Park Y 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 183507
- [7] Xu J, Schubert M F, Noemaun A N, Zhu D, Kim J K, Schubert E F, Kim M H, Chung H J, Yoon S, Sone C, Park Y 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 011113
- [8] Vampola K J, Iza M, Keller S, DenBaars S P, Nakamura S 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 061116
- [9] Piprek J 2010 *Phys. Status Solidi A* **207** 2217
- [10] Özgür Ü, Liu H Y, Li X, Ni X F, Morkoç H 2010 *Proceedings of the IEEE* **98** 1180
- [11] Ryu H Y, Kim H S, Shim J I 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 081114
- [12] Mo C L, Fang W Q, Pu Y, Liu H C, Jiang F Y 2005 *J. Cryst. Growth* **285** 312

- [13] Xiong C B, Jiang F Y, Fang W Q, Wang L, Mo C L 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3176 (in Chinese) [熊传兵, 江凤益, 方文卿, 王立, 莫春兰 2008 物理学报 **57** 3176]
- [14] Xiong C B, Jiang F Y, Wang L, Fang W Q, Mo C L 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7861 (in Chinese) [熊传兵, 江凤益, 王立, 方文卿, 莫春兰 2008 物理学报 **57** 7861]
- [15] Mao Q H, Jiang F Y, Cheng H Y, Zheng C D, 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 8078 (in Chinese) [毛清华, 江凤益, 程海英, 郑畅达 2010 物理学报 **59** 8078]
- [16] Basu P K 1997 *Theory of Optical Processes in Semiconductors: Bulk and Microstructures* (Oxford: Oxford University Press) p192, 213, 231
- [17] Zhang M, Bhattacharya P, Singh J, Hinckley J 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 201108
- [18] Meneghini M, Trivellin N, Meneghesso G, Zanoni E, Zehnder U, Hahn B 2009 *Appl. Phys. Lett.* **106** 114508

Efficiency droop in blue InGaN/GaN light emitting diodes on Si substrate*

Liu Mu-Lin^{1)2)†} Min Qiu-Ying²⁾ Ye Zhi-Qing

1) (School of Material Science and Engineering, Nanchang University, Nanchang 330031, China)

2) (College of Physics and Communication Electronics, Jiangxi Normal University, Nanchang 330022, China)

(Received 15 December 2011; revised manuscript received 2 March 2012)

Abstract

InGaN/GaN based light emitting diodes (LEDs) suffer from decrease in efficiency at a high injection current level which is called efficiency droop. In this paper, blue InGaN/GaN multiple quantum well light emitting diodes on Si (111) substrates are prepared, and their electroluminescence spectra are tested. Comparing the experimental measurements with the simulating results based on simple ABC model, the cause for quantum efficiency droop is investigated. The results show that the light emitting diode has worse electron spreading and less hole concentration with temperature decreasing, and the electrons will overflow from the well after filled up in higher and higher state for their inhomogeneous distribution, thus efficiency droop will happen at a lower injection more severely for electron leakage under lower injection, and experimental measurements are in disagreement with simulation results of Auger recombination at high injection current levels under different temperatures. The results confirm that the main factor for efficiency droop is not Auger nonradiative recombination but electron leakage, and the essential cause for electron leakage is severe carrier localization.

Keywords: GaN, blue LED, quantum efficiency, efficiency droop

PACS: 85.60.Jb, 78.60.Fi, 73.61.Ph

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60967002).

† E-mail: sanmu70153@yahoo.com.cn