

GaN 基 LED 量子阱内量子点发光性质的模拟分析*

王度阳 孙慧卿† 解晓宇 张盼君

(华南师范大学, 光电子材料与技术研究所, 广东省微纳光子功能材料与器件重点实验室, 广州 510631)

(2012 年 5 月 15 日收到; 2012 年 6 月 13 日收到修改稿)

采用模拟计算的方法, 运用量子点模型对 GaN 基 LED 器件中不同尺寸量子点的电致发光光谱进行模拟分析, 并对器件结构中电子空穴浓度, 辐射复合强度进行了研究. 分析结果显示, 随着量子点尺寸的增大, 量子点发光波长存在红移, 当圆柱状量子点半径从 1.8 nm 增长到 13 nm 时, 波长红移 309.6 meV, 在量子阱中生长单一尺寸的量子点可以达到不同波长的单色发光器件, 而在不同量子阱中生长不同尺寸的量子点可以实现多波长发光, 以及单颗 LED 的白色显示, 并通过调节量子点的分布密度达到调节各发光波长强度的目的. 结果表明, 量子点分布密度调节之后多波长发光均匀性得到有效改善.

关键词: GaN, 量子点, 尺寸效应, 多波长 LED

PACS: 73.61. Ey, 78.60 .Fi, 78.67.Hc, 85.60.Jb

1 引言

GaN 基多量子阱结构在发光器件中成功应用^[1], 使得 GaN 基量子阱发光器件得到广泛的关注. 目前 GaN 基 LED 成为固态半导体照明市场的主导产品, 然而其发光机理一直没有得到确切的定论, 因为 GaN 基 LED 的晶格失配较大, 如 GaN 与蓝宝石衬底晶格失配 15%, 与硅衬底的晶格失配达 17%, GaN 与 InN 之间的晶格失配高达 11%, 当 InGaN 的 In 含量逐渐增大到 30% 左右时将发生相分离^[2]. Narukawa 等^[3]认为 InGaN 的相分离而产生量子点, 量子点发光是 GaN 基发光器件在存在晶格失配的情况下有高发光效率的主要原因, 而早在 Narukawa 之前就有人提出量子点的引入可以提高存在缺陷的基体的量子效率^[4]. XIA 等^[5]和李为军等^[6]分别对绿光和蓝光 LED 的发光模式进行模拟计算得出量子点激发发光可能在 InGaN/GaN 量子阱中起主导作用.

量子点的量子局域现象, 在三维方向对载流子的限制作用, 使其对载流子有较强的束缚能力,

可抑制载流子向非辐射中心的迁移, 增强带间跃迁. 量子点以其良好的发光性能得到广泛的重视. Asgari 等^[7]和 Winkelkemper 等^[8]分别对量子点的激子结合能和能带结构进行了理论的计算, 指出量子点化学组分以及物理结构对其光学性质有显著的影响. 王艳文等^[9]对 GaN 基量子点中激子态和光学性质的研究表明, 当量子点尺寸增加时, 量子尺寸效应对电子和空穴的影响减弱, 基态激子结合能和带间光跃迁能降低. 目前量子点的主要生长方式有两种: 一是自组装模式 (S-K)^[10], 另一种是选择性区域生长模式 (SAG)^[11]. S-K 模式生长的量子点密度较大, 然而量子点的形状存在较大的随机性. SAG 生长模式生长的量子点形状相对比较规则, 但密度较低. 王天琪等^[12]通过计算表明量子点的弛豫度可以成为控制量子点成岛状形状的重要依据.

目前的白光 LED 主要是以 GaN 材料的蓝光芯片激发黄光荧光粉产生黄光, 黄光和蓝光混合成白光, 然而荧光粉的无辐射复合激发和易老化的性质对白光 LED 的寿命起决定性作用. 因此荧光粉的这些劣化性质阻碍了其向普通照明领域的应

* 国家自然科学基金 (批准号:60877069) 和广东省战略性新兴产业专项资金 LED 产业项目 (批准号: 2011A081301004, 2012A080304006) 资助的课题.

† E-mail: sunhq@scnu.edu.cn

用和推广. 由此无荧光粉白光 LED 成为研究的重点, Yamada 等^[13]通过生长不同 In 含量的多量子阱结构, 达到多波长发光的目的, 由于载流子的空间分布不均, 特别是空穴分布, 在接近 N 区时浓度较低, 使得多波长量子阱的波长的发光强度差别较大. 本文采用 APSYS (Advanced Physical Models of Semiconductor Devices) 软件对不同尺寸的量子点的发光波长进行了模拟计算, 研究不同尺寸量子点对发光波长的影响, 选择特定发光波长的量子点植入不同的量子阱, 达到多波长发光的目的, 对量子点的分布密度进行调节实现对发光强度的控制.

2 量子点模型及物理结构

2.1 器件模拟的基本方程

APSYS 模拟软件是利用二维有限元分析方法, 以漂移-扩散模型和电流连续方程为基础, 结合边界条件自洽解泊松方程得到 LED 的电学和光学特性.

$$\nabla \cdot J_n - \sum_j R_n^{tj} - R_{sp} - R_{st} - R_{au} + G_{opt}(t) = \frac{\partial n}{\partial t} + N_D \frac{\partial f_D}{\partial t}, \quad (1)$$

$$\nabla \cdot J_p - \sum_j R_p^{tj} + R_{sp} + R_{st} + R_{au} - G_{opt}(t) = -\frac{\partial p}{\partial t} + N_A \frac{\partial f_A}{\partial t}, \quad (2)$$

$$-\nabla \cdot \left(\frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{dc}}{q} \nabla V \right) = -n + p + N_D(1 - f_D) - N_A f_A + \sum_j n_{tj}(\delta_j - f_{tj}). \quad (3)$$

(1) 和 (2) 式中 $J_n = n\mu_n \nabla E_{fn}$, $J_p = p\mu_p \nabla E_{fp}$ 分别为电子流与空穴流密度, 其中 μ_n , μ_p 为分别为电子和空穴的迁移率, E_{fn} 和 E_{fp} 分别为电子和空穴的准费米能级, R_p^{tj} , R_{sp} , R_{st} , R_{au} , $G_{opt}(t)$ 分别表示第 j 个 SRH 深能级陷阱复合速率, 自发辐射复合速率, 受激辐射复合速率, 俄歇复合速率和光产生率. f_D , f_A 分别为电子占据施主和空穴占据受主杂质的概率. (3) 式中 ∇V 为电场, ε_{dc} 为相对介电常数, n, p 为电子与空穴浓度, N_A , N_D 为浅层施主, 受主掺杂浓度, N_{tj} 为第 j 个 SRH 深能级陷阱的密度, f_{tj} 为电子占据第 j 个深能级陷阱的概率, δ 为 1 代表施主, 为 0 代表受主.

器件的非辐射复合过程采用间接复合 (shockley-read-hall, SRH 复合) 和俄歇复合. SRH 复合表示为

$$R_n^{tj} = c_{nj}nN_{tj}(1 - f_{tj}) - c_{nj}n_{1j}N_{tf}f_{tf}, \quad (4)$$

$$R_p^{tj} = -c_{pj}nN_{tj}f_{tj} - c_{pj}p_{1j}N_{tj}(1 - f_{tj}). \quad (5)$$

(4) 和 (5) 式中 c_{nj}, c_{pj} 为载流子俘获系数, n_{1j}, p_{1j} 分别为电子和空穴准费米能级与 J 陷阱中的能级 E_{tj} 合并时载流子浓度. 俄歇复合速率表示为

$$R_{au} = (C_n n + C_p p)(np - n_i^2), \quad (6)$$

式中 C_n, C_p 为材料的俄歇系数.

2.2 量子点模型方程及能级的计算

在 APSYS 软件中, 量子阱/量子点结构如图 1 所示, 量子点为圆柱状, 并被带隙较宽的量子阱材料包围. 对于这种复杂的量子阱/量子点体系, 其载流子密度方程为

$$n_d = n_{qw} + n_{qd}, \quad (7)$$

量子点的载流子密度为

$$n_{qd} = \sum_{i,s} 2N_{qd}(s)f_c(E_{i,s}), \quad (8)$$

i 是对所有存在的能级进行求和, s 不同量子点的尺寸. 其中 $N_{qd}(s)$ 和 $f_c(E_{i,s})$ 都考虑了自旋简并度的因素. $N_{qd}(s)$ 为尺寸 s 量子点的区域密度, $f_c(E_{i,s})$ 为费米能级.

$$f_c(E_{i,s}) = \frac{1}{1 + \exp[(E_{i,s} - E_{fn})/kT]}. \quad (9)$$

利用 APSYS 软件对 3D 量子点的结构的束缚能和波函数 ψ_{is} 进行求解, 通过对 3D 结构的量子阱/量子点模型的量子态的计算, 得到光谱增益

$$g_{qd}(E) = \sum_s \sum_{i,j} \frac{\pi q^2 \hbar M_b^2 N_{qd}}{E \varepsilon_0 c_0 m_0^2 n_r t_{cmplx}} |\langle \psi_{is} / \psi_{js} \rangle|^2 \times g_{cp} G_s(E - E_{ijs})(f_c - f_v), \quad (10)$$

其中 g_{cp} 为多量子点耦合系数, M_b 体材料的矩阵元, t_{cmplx} 是量子阱/量子点混合层的厚度, 整个式子是对所有存在的电子空穴态和所有尺寸的量子点进行求和, n_r 为粒子数反转系数, 由电子、空穴的准费米能级决定. G_s 是高斯展宽函数包括带间展宽和非均匀展宽.

$$G_s(E) = \frac{1}{\Delta \sqrt{2\pi}} \exp \left[-\frac{(E - E_{ijs})^2}{2\Delta^2} \right], \quad (11)$$

$$\Delta = \hbar / \tau.$$

对于量子阱/量子点混合层, 由于量子阱层内部植入了量子点如图 1 所示, 因此量子阱的部分量子态被量子点的量子态替代, 因此用下式描述量子阱对光增益的影响.

$$g_d = r_{qw}g_{qw} + g_{qd}, \quad (12)$$

g_{qw} 和 g_{qd} 分别为量子阱和量子点的光增益, r_{qw} 是介于 0 和 1 之间的数, 是量子点区域和量子阱区域之比. 其值取为经验值 0.8^[5]. 量子点的自发辐射的函数表示为

$$r_{qd}^{sp}(E) = \frac{q^2 n_r E M_b^2}{\pi \epsilon_0 m_0^2 \hbar^2 c_0^3} |\langle \psi_{is} / \psi_{js} \rangle|^2 g_{cp} G_s(E - E_{ijs}) \times N_{qd}(s) / t_{cmplx} f_c (1 - f_v). \quad (13)$$

量子阱自发辐射函数为

$$r_{qw}^{sp}(E) = \sum_{i=j} \left(\frac{2\pi}{\hbar} \right) |H_{ij}|^2 f'_j (1 - f'_i) D(E) \rho_{ij}, \quad (14)$$

$D(E)$ 为自由空间光膜密度, ρ_{ij} 为电子联合态密度, H_{ij} 为哈密顿量. ρ_{ij} 和光波矩阵元 $|H_{ij}|^2$ 分别为

$$\rho_{ij} = \rho_{ij}^0 h(\hbar\omega - E_{ij}^0), \quad (15)$$

$$|H_{ij}|^2 = \left(\frac{q}{m_0} \right)^2 \left(\frac{2\hbar\omega}{4\epsilon_1 \epsilon_0 \omega^2} \right) M_{ij}^2. \quad (16)$$

量子阱/量子点体系的自发辐射复合速率可表示为

$$r_d^{sp}(E) = r_{qw} r_{qw}^{sp}(E) + r_{qd}^{sp}(E). \quad (17)$$

在 LED 外加电压下, LED 的辐射复合速率可由下式确定:

$$R_{sp} = \int r_d^{sp}(E) dE. \quad (18)$$

在模拟计算中, 忽略量子点之间的耦合作用, 在有效质量近似和不考虑量子点内电子之间相互作用的情况下, 通过求解量子点体系的薛定谔方程, 得到量子点的能级结构, 具体计算见文献 [6].

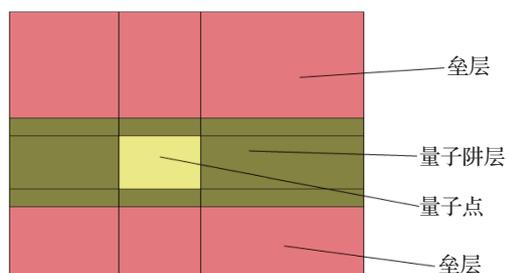


图 1 含有量子点的量子阱结构图

2.3 器件结构

本文对含有量子点的 InGaN 量子阱结构的发光二极管 (LED) 进行了模拟计算, 其中器件面积为 $300 \mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$, 从 n 层到 p 层依次为 $3 \mu\text{m}$ n-GaN (n 型掺杂浓度为 $5 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$); 活性层; $0.1 \mu\text{m}$ p-GaN (p 型掺杂浓度为 $5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$). 其中 GaN, InN, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 的具体材料参数设定请见文献 [5]. 活性层包括 3 量子阱层及其垒层, 阱层是厚度为 3 nm 的 $\text{In}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{N}$ 阱层, 垒层材料为 GaN. 量子点形状设为圆柱体形, 均匀分布在量子阱中, 由于量子阱尺寸的限制, 量子点厚度设为 2 nm, In 含量设为 45%, 其半径设为可变, 以研究不同粒径的量子点对发光波长的影响. 本文中, 器件的工作温度为 300 K, 工作电流均为 20 mA, 忽略极化效应的影响, 量子点、量子阱的 SRH 寿命分别设为 $5 \times 10^{-8} \text{s}$ 和 $5 \times 10^{-9} \text{s}$ ^[14]. 首先对不同尺寸的量子点进行计算, 研究其尺寸对发光波长的影响, 然后选择特定波长的量子点植入量子阱中实现多波长发光.

3 结果与讨论

本文首先计算 LED 无量子点状态时的辐射波长, 然后分别将不同尺寸的量子点植入活性层的量子阱中, 半径分别为 1.8 nm, 2.6 nm, 4 nm, 8 nm, 13 nm, 每个阱中的量子点分布密度为 $5.5 \times 10^{10} \text{cm}^{-2}$. 图 2 为量子阱中无量子点和含不同尺寸量子点的自发辐射光谱.

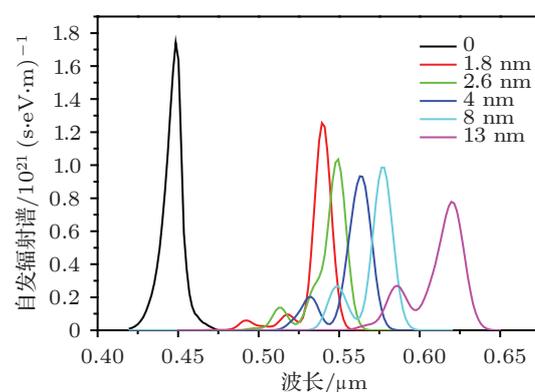


图 2 芯片无量子点 (0) 和不同量子点尺寸 (半径分别为 1.8 nm, 2.6 nm, 4 nm, 8 nm, 13 nm) 自发辐射光谱

从图 2 可以看出当无量子点植入的情况下芯片的发光波长为 450 nm, 而含不同尺寸量子点的芯片发光波长比无量子点芯片发光波长长, 因为量子

点内高 In 含量使得量子点的能带间隔变窄, 发光波长变长. 从图 2 看出, 量子点尺寸为 1.8 nm, 2.6 nm, 4 nm, 8 nm, 13 nm 时对应的波长分别为 539 nm, 549 nm, 562 nm, 578 nm, 623 nm, 从图 3 的量子点发光波长随量子点粒径变化曲线看出, 随着量子点尺寸的增加, 芯片发光波长进一步出现红移, 当量子点半径从 1.8 nm 增加到 13 nm 时发光波长减少了 309.6 meV. 因为量子点尺寸效应, 当量子点的粒径增大时, 使得量子点的电子能级和重空穴能级之间的能量差减小, 从而使发光波长产生红移. 从图 2 单个量子点发光图谱可知, 量子点发光除发光主峰还存在边峰, 由 Xia 等对量子点能带的计算可知, 边峰认为是为晶场分裂势和导带之间的辐射复合 [5].

由图 2 所示不同尺寸量子点发光波长不同, 因此尝试将其植入到同一 LED 芯片的不同量子阱中, 实现单一芯片多波长发光. 本文选择性将半径为 13 nm 的量子点植入靠近 p 层量子阱 A 中, 将半径为 1.8 nm 的量子点植入到中间的量子阱 B 中, 靠近 n 层的量子阱 C 中不植入量子点, 应用其量子阱发光. 两种量子点的分布密度均为 $5.5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

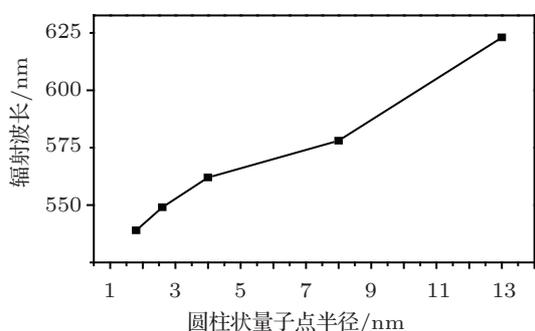


图 3 不同半径量子点发光波长

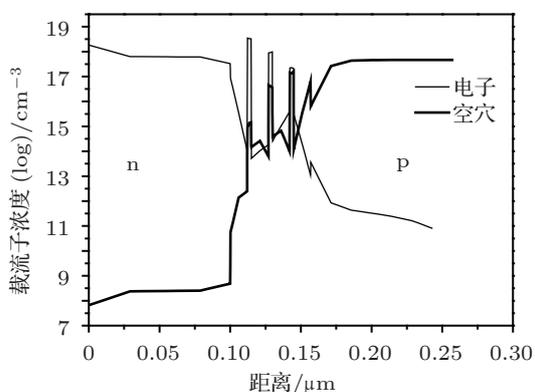


图 4 植入不同量子点时芯片内电子空穴分布

从图 4 看出在芯片内, 由于电子迁移率较大, 三个量子阱内的电子浓度相差不大, 而空穴有效质量较大, 其迁移率相对较小, 三个量子阱中空穴浓度相差较大, 量子阱 A 中的空穴浓度比量子阱 C 中的空穴浓度高出两个数量级. 由于芯片内电子空穴分布不均, 导致各个阱中量子点的辐射复合率存在较大的差别, 如图 5 所示.

从图 5 的各个阱中的辐射复合率可以看出, 量子阱 A 中由于空穴浓度分布较高, 使得量子点辐射复合率较高, 而量子阱 B 中空穴浓度相对较少, 其中量子点的辐射复合率为量子阱 A 中量子点辐射复合率的一半, 量子阱 C 中的空穴浓度比量子阱 A 中的空穴浓度小了两个数量级, 使其辐射复合率大幅度降低, 是量子阱 A 中辐射复合率的 1/5 左右.

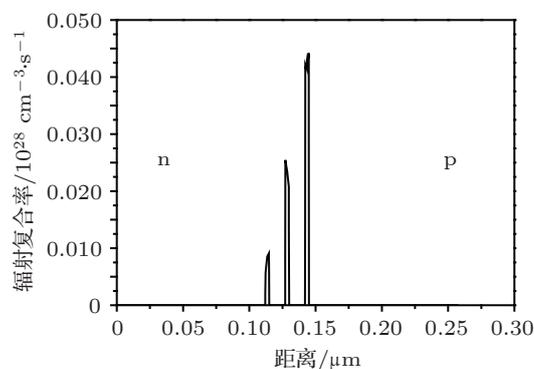


图 5 芯片辐射复合率分布图

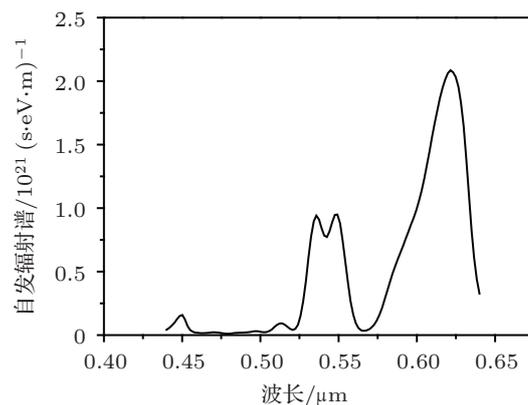


图 6 不同量子点植入时自发辐射谱

图 6 为芯片的自发辐射谱, 可以看出由于各个阱中的辐射复合率相差较大, 导致各个波长的发光强度有较大的差别, 半径为 13 nm 的量子点, 由于其辐射复合率较高, 其自发辐射强度较大, 量子阱 B 中的量子点发光次之, 其强度约为量子阱 A 中量子

点发光的一半, 而无量子点植入的量子阱 C, 由于其复合率低, 其自发辐射强度较低, 从图 6 看出其强度很微弱. 为了调整不同波长辐射的强度, 使三波长发光较均匀, 尝试改变量子点的分布密度, 达到调节辐射强度的目的.

调整降低量子阱 A 中的量子点的分布密度, 调整为 $5.5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$, 保持量子阱 B 中的量子点的分布密度不变.

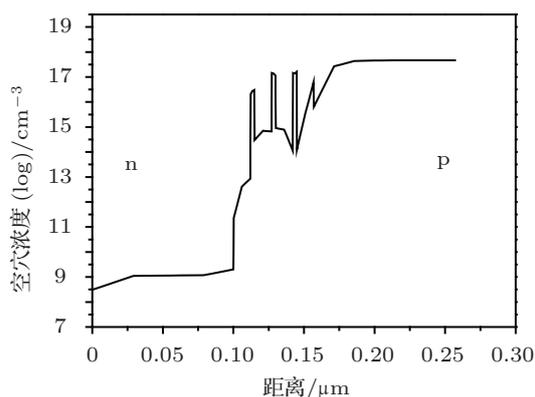


图 7 改变量子点分布密度后芯片的空穴分布

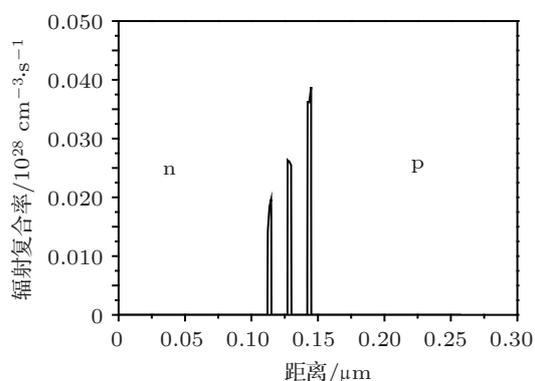


图 8 改变量子点分布密度后芯片复合率的分布

由于电子迁移率较大, 其浓度在各阱中分布变化不大, 只考虑空穴浓度分布对器件发光的影响. 图 7 为改变量子点分布密度后芯片的空穴浓度分布, 与图 4 中的空穴浓度曲线相比, 量子阱 A 中空穴分布差别不大, 量子阱 B 中空穴浓度略有提高, 量子阱 C 中的空穴浓度比图 4 高了一个多数量级, 这是由于量子阱 A 中的量子点分布密度降低, 使其

复合率降低如图 7, 使得更多空穴向量子阱 B 和量子阱 C 中迁移, 进而提高量子阱 C 内的复合率.

图 8 和图 5 比较可以看出, 量子阱 A 内量子点的复合率略有降低, 量子阱 B 中量子点的复合率略有提高, 但变化不大, 而量子阱 C 中由于空穴浓度的增加, 使其复合率有明显的增加, 比图 5 中增加了近一倍. 从图 9 看出, 改变量子点的分布密度后, 芯片的三波长的发光强度得到了有效的调节, 量子阱 C 中的自发辐射较图 6 提高了近 5 倍, 使三波长的辐射强度分布相对均匀. 达到了通过改变量子点的分布密度有效调节各波长发光强度的目的.

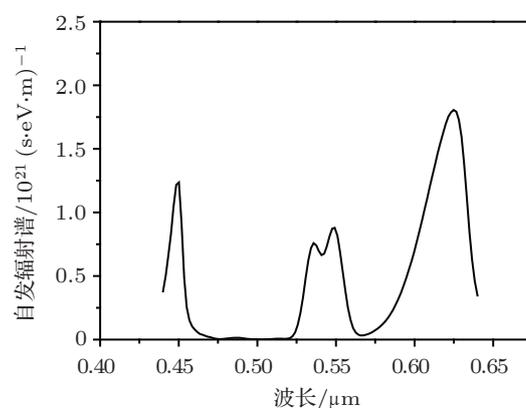


图 9 量子点分布密度改变后芯片的自发辐射谱

4 结论

通过模拟计算发现, 不同尺寸量子点由于量子点尺寸效应的影响, 发光波长存在变化. 可选择在量子阱中生长单一尺寸或者在不同阱中生长不同尺寸的量子点. 选择单一尺寸可以达到不同发光波长的目的, 并通过调节量子点的分布密度, 调节器件的发光强度. 选择在不同阱中生长不同尺寸的量子点可实现多波长发光, 甚至实现单颗 LED 芯片的白光显示, 并通过调节不同尺寸量子点的分布密度, 对不同波长发光强度的控制. 对利用量子点制作特定波长、多波长以及白光 LED 外延片生长提供指导. 在实验过程中, 可以通过选择区域生长 (SAG) 的生长模式, 对生长时间和温度进行控制, 达到控制量子点分布密度和尺寸的目的.

- [1] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S, Iwasa N, Yamada T, Matsushita T, Sugimoto Y, Kiyoku H 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 3034
- [2] El-Masry N A, Piner E L, Liu S X, Bedair S M 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 40
- [3] Narukawa Y, Kawakami Y, Funato M, Fujita S, Fujita S, Nakamura S 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 981
- [4] Weisbuch C, Nagle J 1990 *Science and Engineering of 1D and 0D Semiconductor Systems* (New York: Plenum Press) p319
- [5] Xia C S, Hu D W, Wang C, Li Z F, Chen X S, Lu W, Simon Z M, Li Z Q 2006 *Opt. Quantum Electron* **38** 1077
- [6] Li W J, Zhang B, Xu W L, Lu W 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 3421 (in Chinese) [李为军, 张波, 徐文兰, 陆卫 2009 物理学报 **58** 3421]
- [7] Asgari A, Asadzadeh S 2010 *J. Phys.: Conf. Ser.* **248** 012020
- [8] Winkelkemper M, Schliwa A, Bimberg D 2006 *Phys. Rev. B* **74** 155322
- [9] Wang Y W, Wu H R 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 106102 (in Chinese) [王艳文, 吴花蕊 2012 物理学报 **61** 106102]
- [10] Hirayama H, Tanaka S, Ramvall P, Aoyagi Y 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 1736
- [11] Wang J, Nozaki M, Lachab M, Ishikawa Y, Qhalid Fareed R S, Wang T, Hao M, Sakai S 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 950
- [12] Wang T Q, Yu C Y, Liu Y M, Lu P F 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5618 (in Chinese) [王天琪, 俞重远, 刘玉敏, 芦鹏飞 2009 物理学报 **58** 5618]
- [13] Yamada M, Narukawa Y, Mukai T 2002 *J. Appl. Phys.* **41** 246
- [14] Okamoto K, Saijo S, Kawakami Y, Fujita S G, Terazima M, Mukai T, Shinmiya G, Nakamura S 2001 *Proc. SPIE* **4278** 150

Theoretical study of luminance of GaN quantum dots planted in quantum well*

Wang Du-Yang Sun Hui-Qing[†] Xie Xiao-Yu Zhang Pan-Jun

(Laboratory of Nanophotonic Functional Materials and Devices, Institute of Opto-Electronic Materials and Technology, South China Normal University, Guangzhou 510631, China)

(Received 15 May 2012; revised manuscript received 13 June 2012)

Abstract

A theoretical simulation of electrical and optical characteristics of quantum dot (QD) light-emitting diodes depending on the QD sizes is conducted with APSYS software. The electron and hole concentration in the LED and the radioactive recombination rate are studied. Simulation results show that with the increase of the QD size, the emission wavelength has a red shift. With the radius of QD increasing from 1.8 nm to 13 nm, the red shift of emission wavelength has reaches 309.6 meV. The use of the QDs with different sizes planted in quantum well can achieve full-color display with a single LED. When different quantum wells are planted with different QDs, the LED turns into a multi-wavelength luminescence even white LED. We can improve the intensity of each wavelength by adjusting the surface density of QDs. The luminous uniforming of the multi-wavelength LED can be effective improved by adjusting the QD surface density.

Keywords: GaN, quantum dot, size effect, multi-wavelength LED

PACS: 73.61. Ey, 78.60 .Fi, 78.67.Hc, 85.60.Jb

* Project supported by the the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60877069), and the Strategic Emerging Industries, the Special Fund for LED Industry Projects of Guangdong Province, China (Grant Nos. 2011A081301004, 2012A080304006).

[†] E-mail: sunhq@scnu.edu.cn