材料、结构及工艺

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2021.03.015

线性分布的 In 组分对紫色 InGaN/GaN 单量子阱发光特性的影响

张 杰，刘 炜*，张淑媛

（西北工业大学 微电子学院，西安 710129）

摘 要： 采用数值模拟的方法研究了具有相同的平均 In 组分，但 In 组分的分布不同的 3 个紫色 InGaN/GaN 单量子阱样品的光谱特性。通过分析样品的电致发光谱、能带结构、波函数交叠以及载流子浓度分布等，发现沿生长方向阱内 In 组分线性增加的单量子阱样品的发光效率最高，而 In 组分线性减小的样品发光效率最低。这是因为 In 组分的线性增加能够减弱极化场对价带的影响，使阱内价带变得更加平缓。这不仅降低了空穴的注入势垒高度、增大了阱中的空穴浓度，还增强了阱内电子-空穴波函数的交叠积分，提高了辐射复合几率，从而使 In 组分线性增加的量子阱的发光效率显著提高。

关键词： InGaN/GaN 量子阱；In 组分的线性分布；极化效应；辐射复合

中图分类号： O482.31 **文章编号：** 1001－5868(2021)03－0380－05

Influence of Linear Distributed In Composition on The Luminescence Characteristics of Violet InGaN/GaN Single Quantum Well

ZHANG Jie, LIU Wei, ZHANG Shuyuan

(School of Microelectronics, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710129, CHN)

Abstract: The spectral characteristics of three violet InGaN/GaN single quantum well samples with the same average In composition but different In composition distributions are studied in this paper. By analyzing the electroluminescence spectra, energy band structures, wave function overlap and carrier concentration distribution, it is found that the single quantum well sample with linearly increased In composition along the growth direction has the highest luminescence efficiency, while the sample with linearly decreased In composition has the lowest luminescence efficiency. It is considered that the linear increase of the In composition can weaken the influence of the polarization field on the valence band, making the valence band in InGaN well smoother, which not only reduces the height of the hole injection barrier, but also increases the hole concentration in InGaN well. The overlap integral of the electron-hole wave function in the well is also enhanced, and the probability of radiative recombination is improved, so the luminescence efficiency of the InGaN quantum well with the linear increase of In composition is significantly increased.

Key words: InGaN/GaN quantum well; linear distribution of In composition; polarization effect; radiative recombination

收稿日期：2021－03－04.

基金项目：国家自然科学基金项目(62074129).

* **通信作者：**刘 炜

0　引言

以氮化镓(GaN)材料为代表的Ⅲ族氮化物半导体材料具有临界击穿电压高、介电常数小、抗辐射能力强、电子迁移率高和化学稳定性好等优良的物理和化学特性。由于具有直接带隙的能带结构，GaN 基材料拥有极高的发光效率，且通过掺入 Al 或 In 形成的 Al(In)GaN 合金材料可以实现禁带宽度在 0.7～6.2 eV 的宽光谱范围内连续可调，从而使Ⅲ族氮化物材料的发光波长可以从红外扩展到整个可见光及深紫外的宽光谱范围。当前，以 InGaN/GaN 量子阱(QW)为有源区的可见光发光二极管(LED)在固态照明和集成显示领域已经获得了成功的商业应用。此外，短波长发光的近紫外及紫光 LED 在油墨固化、生物医学、水及空气净化、防伪辨识、荧光物质检测等领域的应用也受到了越来越多的关注。然而，在短波长的紫色 InGaN/GaN QW 中，由于 In 组分较小，势阱较浅，导致量子阱对载流子的捕获和束缚能力较弱，载流子的注入效率较低。因此，增大紫色 InGaN QW 中载流子的辐射复合效率，对于提高紫色发光器件的性能显得尤为重要。众所周知，由 InGaN 材料内压电极化效应引起的极化电场是导致 InGaN/GaN QW 发光效率下降的主要原因[1-3]。极化电场的存在使 QW 内能带发生倾斜，有效禁带宽度降低。而在能带倾斜的 QW 中，电子与空穴会分别向量子阱的两侧移动，使得阱中电子与空穴的波函数交叠减小，最终导致 InGaN QW 的发光峰红移、光谱展宽、辐射复合速率降低、发光强度减弱等一系列结果，即产生了所谓“量子限制斯塔克效应(QCSE)”[4-7]。为了抑制阱内 QCSE 的影响，研究人员做了很多努力与尝试，比如在非极性 GaN 面上外延生长 InGaN-QW[8]，或采用多层结构的 InGaN/GaN/InGaN 势垒[9]，或采用梯形或非对称三角形量子阱等结构[10-11]，均在一定程度上减小了极化效应，并提高了 QW 的发光效率。

在本文中，我们将 QW 内的 In 组分设置成线性渐变的分布形式，以期改善极化场对 QW 发光特性的影响。研究发现，不同的 In 组分渐变方式会对 QW 的发光效率产生不同的影响。通过比较样品的发光谱、有源区内的载流子浓度分布以及样品能带图等，对线性渐变 In 组分的分布对 InGaN/GaN QW 发光效率的影响机制进行了深入分析并得出了相关结论。

1　样品结构及仿真参数

本文中所研究的发光样品主要由以下三部分组成：2 μm 厚的电子浓度为 2×10^{18} cm^{-3} 的 n 型 GaN 层、InGaN/GaN 单量子阱(SQW)有源区以及 0.3 μm 厚的空穴浓度为 1×10^{20} cm^{-3} 的 p 型 GaN 层。其中，SQW 由 2 nm 宽的 InGaN 量子阱层以及两侧 10 nm 厚的 GaN 势垒层构成。为研究 QW 的电致发光(EL)特性，采用了垂直电注入结构，即器件的正极与负极分别设置在 p 型 GaN 层的上方与 n 型 GaN 层的下方。当施加正向偏置电压时，电子和空穴便分别从 n 型 GaN 层和 p 型 GaN 层直接注入 SQW 区内。本文主要研究比较了 3 个不同 In 组分分布的样品，并分别命名为样品 A，B 和 C。对于样品 A，沿着生长方向阱内的 In 组分从 12%线性减小到 8%；对于样品 B，阱内的 In 组分恒定为 10%；对于样品 C，沿着生长方向阱内的 In 组分从 8%线性增加到 12%。简言之，沿生长方向，阱内 In 组分的变化趋势为，A：线性下降，B：恒定，C：线性上升，如图 1 所示。

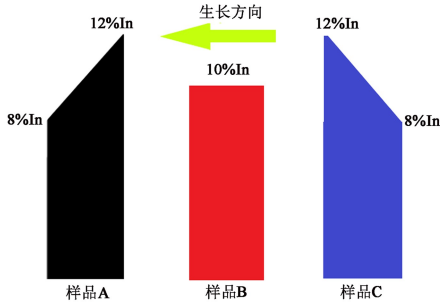


图 1　3 个样品的阱内 In 组分分布图

对于 In 组分线性渐变的样品 A 和 C，可计算阱中的平均 In 组分 c 为

$$c=(a+b)/2 \tag{1}$$

其中，a 与 b 是量子阱两侧 In 的组分。由计算可知，样品 A 和 C 的平均 In 组分均为 10%。可见，3 个样品的平均 In 组分相同，但其分布情况不同。在能带模型中，我们采用了三波段纤锌矿 k.p 模型，并且设置导带带阶 ΔE_c 与价带带阶 ΔE_v 之比为 $\Delta E_c:\Delta E_v=7:3$[12-14]。载流子的复合模型包括了一般辐射复合模型 OPTR，SRH 复合模型与俄歇复合模型 AUGER。其中，一般辐射复合的速率常数设置为 2×10^{-11} cm^3/s，SRH 复合过程的电子与空穴寿命都设置为 100 ns，俄歇复合系数设置为 5×10^{-31} cm^3/s。本实验采用的数值求解方法包含泊

松与薛定谔方程的耦合求解过程、电子与空穴的电流连续性方程和载流子漂移-扩散传输方程[15]。

2 结果与讨论

图 2 为 3 个样品在 10 mA 注入电流下的电致发光(EL)谱，样品 A，B，C 的峰值波长分别为 390.73，390.31 与 390.52 nm。可见，相对于样品 B，样品 A 和 C 的光谱峰值位置均发生了轻微的红移。此外，3 个样品中，沿生长方向 In 组分线性上升的样品 C 的 EL 谱强度最大。为了分析样品 EL 谱变化的原因，我们通过数值计算得到了 3 个 SQW 样品在 10 mA 注入电流下的能带结构，如图 3 所示，其中左侧为 p 型 GaN 区，右侧为 n 型 GaN 区。

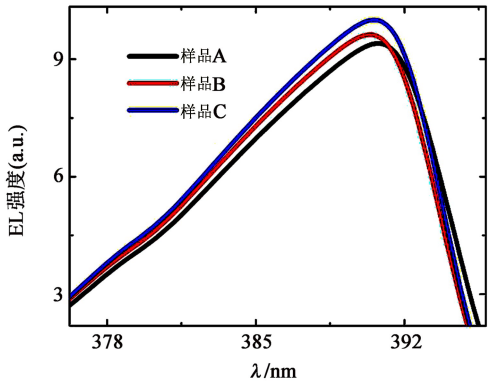


图 2 3 个样品在 10 mA 正向注入电流下的 EL 谱图

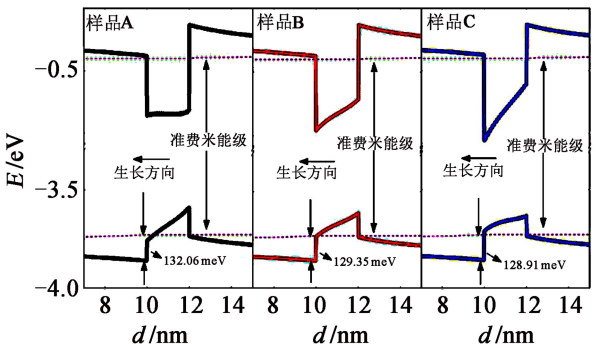


图 3 3 个样品在 10 mA 注入电流下的能带图

从图中可以看出，在极化效应以及 In 组分渐变结构的综合影响下，3 个样品表现出完全不同的能带结构。对于采用传统的恒定 In 组分结构的样品 B，由于极化场的影响，沿图中所示的生长方向 InGaN 阱内导带和价带均向下倾斜，且倾斜程度相同[16-19]。而对于样品 A，由于沿生长方向 In 组分线性减小，导致材料禁带宽度逐渐增加。这种沿生长方向禁带宽度的增加会影响 InGaN 阱内能带的倾斜程度，即使导带变得较为平坦，而价带的倾斜则更加严重。相反地，对于样品 C，In 组分的变化会导致沿生长方向禁带宽度逐渐变窄，从而使得样品 C 中导带更加倾斜，而价带略显平坦。

空穴从左侧 p 型 GaN 层注入时，需要克服由 GaN/InGaN 界面处的极化电场所引起的势垒，才能进入 InGaN QW 中[20]。一般该势垒的高度可定义为空穴准费米能级与 p 型 GaN 价带势垒最低点之间的差值。对于样品 A，B，C，其值分别为 132.06，129.35 与 128.91 meV。显然，样品 C 的空穴注入势垒是最小的。由于 InGaN 阱中能带的倾斜方向与邻近的 GaN 垒中能带倾斜方向相反且倾斜程度正相关，即若 InGaN 阱层内能带变平坦会使 GaN 垒层中的能带也变得平缓[21]。故而，当样品 C 的 InGaN 阱中价带的倾斜程度减弱时，其 GaN 势垒层中价带的倾斜也减弱，即整个有源区内价带整体趋于平坦，从而导致样品 C 中空穴势垒高度降低。由于样品 C 中空穴从 p 型 GaN 层进入 InGaN 阱中需要克服的能量势垒最小，因此在样品 C 中空穴浓度应该是最大的。事实上，通过提取载流子浓度值，我们发现样品 A，B，C 中，InGaN 阱内的平均空穴浓度分别为 1.932×10^{19}，1.942×10^{19} 和 1.949×10^{19} cm^{-3}。可见，的确是样品 C 的空穴浓度最大。类似地，作为比较，考虑到 QW 内导带的倾斜程度也发生了变化，因此，我们也提取了样品 A，B，C 阱内的平均电子浓度，分别为 1.956×10^{19}，1.954×10^{19} 和 1.949×10^{19} cm^{-3}。可见，从样品 A 到 C 电子浓度仅减小了约 0.7×10^{17} cm^{-3}，而空穴浓度却增加了约 1.7×10^{17} cm^{-3}。显然，空穴浓度的增加更加显著，说明价带的倾斜对空穴输运的影响程度较大。

除了影响载流子的输运，QW 能带的倾斜程度也会对阱内电子和空穴的分布产生影响[22]。为此，我们计算获得了 3 个样品阱内的电子和空穴的波函数分布，如图 4 所示。为了便于定量比较，从图 4 中提取了不同样品载流子波函数的峰值位置、交叠率等参数，列于表 1。其中，偏移量表示波函数峰值位置偏离 QW 中心位置(仿真设置于 11 nm 处)的程度，负值表示波函数峰值在阱中心的左侧，正值表示在阱中心右侧。

结合图 4 和表 1 中的结果可见，尽管 3 个样品能带的倾斜程度各不相同，但是与空穴波函数相比，3 个样品电子波函数的峰值位置和半高宽变化都较小。这说明渐变 In 组分引起的导带变化对有效质

量非常小的电子的影响很微弱。相反地，空穴波函数的峰值位置却发生了向阱中央区域的显著移动，特别是其半高宽的增加非常明显。由于在样品 C 的阱中价带是最平坦的，且空穴的有效质量较大，所以阱内价带的形状会对空穴的波函数分布产生较大的影响，使得空穴波函数整体更靠近阱中央，且波函数明显展宽。阱内电子波函数变化都不显著，故而，对于样品 C，QW 内电子-空穴波函数的交叠程度最大，相应的辐射复合几率也较大。与之相反，由于样品 A 的 QW 中价带的倾斜程度较严重，空穴波函数分布更偏离中心位置且波函数分布较窄，所以其阱中电子-空穴波函数的交叠程度最弱，辐射复合几率较低。由于 SQW 的发光强度主要取决于 InGaN 阱内载流子浓度的高低以及电子-空穴波函数交叠程度的强弱。故而，有着最高的空穴浓度以及最大的电子-空穴波函数交叠积分的样品 C 的 EL 谱强度最大，如图 2 所示。

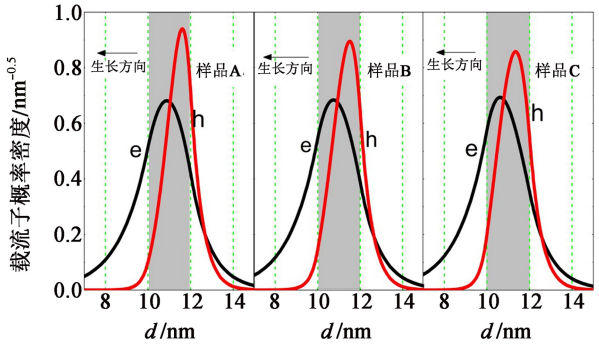


图 4　3 个样品在 10 mA 正向注入电流下的电子和空穴的波函数分布示意图

表 1　阱内载流子波函数的相关参数

样品	电子波函数/nm			空穴波函数/nm			电子-空穴波函数交叠率/%
	峰值位置	偏移量	半高宽	峰值位置	偏移量	半高宽	
A	10.88	−0.12	2.74	11.61	0.61	1.48	55.55
B	10.74	−0.26	2.73	11.51	0.51	1.63	56.78
C	10.62	−0.38	2.69	11.35	0.35	1.78	58.87

从图 2 还可以看出，样品 A 和 C 的 EL 谱相较于样品 B 都有一定程度的红移。主要原因是样品 A 和 C 中的渐变阱结构使阱中的最大 In 组分均为 12%（大于样品 B 的 10%），而载流子趋向于集中分布在阱中的高 In 组分区域，因此使得样品 A 和 C 的光谱产生了微小红移。细致地比较还会发现，相对于样品 B，样品 A 的 EL 红移程度比样品 C 的略大一些，这可能是两者的 QW 中空穴与电子的分布不同所导致。由于辐射复合速率正比于阱内电子和空穴浓度的乘积，所以载流子浓度积的峰值位置就对应于 EL 谱的峰值位置。为此，我们提取了样品 A 和 C 的电子-空穴浓度乘积值在 InGaN 阱中的分布，并比较于图 5 中。由于样品 A 的 QW 中空穴的分布更偏向 QW 右侧区域，所以从图中可见，其电子-空穴浓度积的最大值出现在 QW 最右侧，即阱内 In 组分最大处。而样品 C 中，由于空穴分布在更靠近阱中央的位置，导致其电子-空穴浓度积的最大值也靠近阱中央，而不在左侧 In 组分最大处。故而，样品 A 的 EL 谱红移相较于样品 C 更加显著。

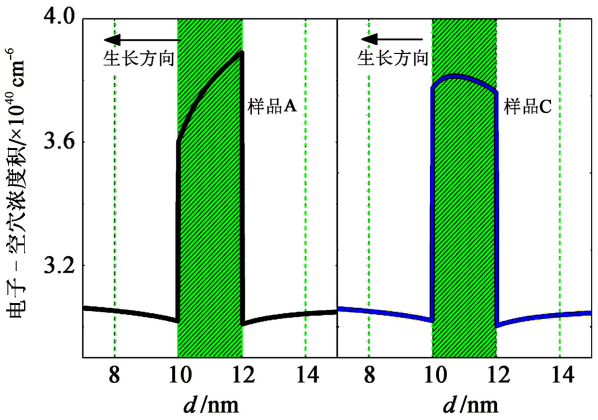


图 5　样品 A 与 C 的阱内电子-空穴浓度积分布示意图

3　结论

本文利用数值仿真方法研究了 3 个平均 In 组分相同，但 In 组分分布不同的 SQW 样品。结果表明，沿外延生长方向 In 组分线性增加的样品 C 发光效率最高。其主要原因在于样品 C 的能带结构减弱了极化场对阱内价带的影响，使其 QW 价带变得平缓，有效提高了空穴的注入效率及 QW 中空穴的浓度，并显著地展宽了空穴的波函数，提高了电子-空穴波函数交叠积分，最终使样品 C 的辐射复合速率增大，发光强度增加。

参考文献：

[1] Craven M D, Lim S H, Wu F, et al. Structural characterization of nonpolar (11(2)over-bar0) a-plane GaN thin films grown on (1(1)over-bar02) r-plane sapphire[J]. Appl. Phys. Lett., 2002, 81(3): 469-471.

[2] Craven M D, Chakraborty A, Imer B, et al. Structural and electrical characterization of a-plane GaN grown on a-plane SiC [C]// 5th Inter. Conf. on Nitride Semiconductors (ICNS-5), Nara, Japan, 2003: 2132-2135.

[3] Hellman E S, LilientalWeber Z, Buchanan D N E. Epitaxial growth and orientation of GaN on (100) gamma-LiAlO$_2$[J].

MRS Internet J. Nitride Semicond. Res., 1997, 2(27-31): U32-U42.

[4] Chichibu S, Azuhata T, Sota T, et al. Spontaneous emission of localized excitons in InGaN single and multiquantum well structures[J]. Appl. Phys. Lett., 1996, 69(27): 4188-4190.

[5] Narukawa Y, Kawakami Y, Fujita S, et al. Recombination dynamics of localized excitons in $In_{0.20}Ga_{0.80}N$-$In_{0.05}Ga_{0.95}$ multiple quantum wells[J]. Phys. Rev. B., 1997, 55(4): R1938-R1941.

[6] Hangleiter A. Optical properties and polarization fields in the nitrides [C]// International Conf. on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter, Osaka, Japan, 2000: 130-140.

[7] Kim M H, Schubert M F, Dai Q, et al. Origin of efficiency droop in GaN-based light-emitting diodes[J]. Appl. Phys. Lett., 2007, 91(18): 183507.

[8] Schmidt M C, Kim K C, Farrell R M, et al. Demonstration of nonpolar m-plane InGaN/GaN laser diodes[J]. Jpn. J. Appl. Phys., 2007, 46(8/11): L190-L191.

[9] Wei Lu, Wei Dahu, Yang Sheng, et al. Study on GaN-based light emitting diode with InGaN/GaN/InGaN multilayer barrier[J]. Opt. Quant. Electron, 2012, 44(35): 75-81.

[10] Karan H, Saha M, Biswas A, et al. Analysis of luminescence spectra of rectangular and trapezoidal InGaN/GaN multiple quantum wells under varying bias conditions [J]. Opt. Mater., 2018, 86: 247-255.

[11] Ryu H Y, Lee S H. Simulation of the effects of AlGaN electron blocking layers on the characteristics of InGaN blue light-emitting diodes[J]. J. Korean Phys. Soc., 2012, 61(9): 1395-1399.

[12] Yang Bin, Guo Zhiyou, Xie Nan, et al. A GaN-AlGaN-InGaN last quantum barrier in an InGaN/GaN multiple-quantum-well blue LED[J]. Chin. Phys. B, 2014, 23(4): 1-4.

[13] Park S H, Moon Y T, Han D S, et al. Comparison of light emission in InGaN/GaN light-emitting diodes with graded, triangular and parabolic quantum-well structures[J]. J. Korean Phys. Soc., 2012, 60(3): 505-508.

[14] Yu Huabin, Chen Dian, Ren Zhongjie, et al. Enhanced performance of an AlGaN-based deep-ultraviolet LED having graded quantum well structure[J]. IEEE Photon. J., 2019, 11(4): 30-36.

[15] Chung H Y, Woo K Y, Kim S J, et al. Improvement of blue InGaN/GaN light-emitting diodes with graded indium composition wells and barriers[J]. Opt. Commun., 2014, 311: 280-286.

[16] Piprek J. Nitride Semiconductor Devices: Principles and Simulation[M]. WileyVCH: Weinheim, 2007.

[17] Li H, Chang C J, Kuo S Y, et al. Improved performance of near UV GaN-based light emitting diodes with asymmetric triangular multiple quantum wells[J]. IEEE J. Quantum. Electron., 2018, 55(1): 1-4.

[18] Karan H, Biswas A, Saha M. Improved performance of InGaN/GaN MQW LEDs with trapezoidal wells and gradually thinned barrier layers towards anode[J]. Opt. Commun., 2017, 400: 89-95.

[19] Wang L, Li R, Yang Z W, et al. High spontaneous emission rate asymmetrically graded 480 nm InGaN/GaN quantum well light-emitting diodes[J]. Appl. Phys. Lett., 2009, 95(21): 1-4.

[20] Neamen Donald A. Semiconductor Physics and Devices Basic Principles[M]. Fourth Edition. Beijing: Publishing House of Electronics Industry, 2013: 445-464.

[21] Bernardini F, Fiorentini V. Spontaneous versus piezoelectric polarization in Ⅲ-Ⅴ nitride: conceptual aspects and practical consequences[J]. Physica Status Solidi (b), 1999, 216: 391.

[22] Mishra P, Tien Khee N G, Janjua Bilal, et al. Extending quantum efficiency roll-over threshold with compositionally graded InGaN/GaN LED[C]// Proc. of 27th IEEE Photonics Conf. (IPC), 2014: 22-23.

作者简介：

张　杰(1998－)，男，硕士研究生，主要从事InGaN/GaN量子阱LED发光特性的研究；

刘　炜(1982－)，男，博士，副教授，毕业于中国科学院半导体研究所，主要从事GaN基宽禁带半导体光电子材料与器件的研究。

(上接第374页)

[11] Gholami S, Khakbaz M. Measurement of *I-V* characteristics of a PtSi/p-Si Schottky barrier diode at low temperatures[J]. World Academy of Science, Engineering and Technology, 2011, 57: 1001-1004.

[12] Mathai A J, Sumesh C K, Modi B P. Schottky barriers on layered anisotropic semiconductor-WSe_2-with 1 000 Å indium metal thickness[J]. Mater. Sci. Appl., 2011, 2(8): 1000-1006.

[13] Klein A, Tomm Y, Schlaf R, et al. Photovoltaic properties of WSe_2 single-crystals studied by photoelectron spectroscopy [J]. Sol. Energy Mater Sol. Cells, 1998, 51: 181-191.

[14] Popov I, Seifert G, Tomanek D. Designing electrical contacts to MoS_2 monolayers: A computational study[J]. Phys. Rev. Lett., 2012, 108(15): 156802.

作者简介：

张　璐(1997－)，女，硕士研究生，主要研究方向为基于二维材料的微电子器件与集成电路；

殷华湘(1974－)，男，湖南长沙人，博士，研究员，主要研究方向为纳米CMOS高级器件、低维纳米材料与器件、信息显示功能器件和硅基辐射传感器以及集成电路先进工艺技术等。