

文章编号:1004-4213(2011)02-0190-4

双波长 InGaN/GaN 多量子阱发光二极管的光电特性

陈献文¹, 吴乾², 李述体¹, 郑树文¹, 何苗¹, 范广涵¹, 章勇¹

(1 华南师范大学 光电子材料与技术研究所, 广州 510631)

(2 广州鸿利光电股份有限公司, 广州 510800)

摘 要:为了实现高显色指数和流明效率的白光发光二极管,在(0001)蓝宝石衬底上利用金属有机化学气相沉积系统,生长了双波长发射的 InGaN/GaN 多量子阱发光二极管结构.通过对不同 In 组分含量的双波长发射发光二极管结构的光致发光和电致发光性能进行分析,结果表明 In 组分含量对双波长发射发光二极管的光致发光谱的稳定性及发光效率有重要影响.此外,用双蓝光发射的芯片来激发 YAG:Ce 荧光粉实现了高显色指数白光发射.

关键词:InGaN/GaN 多量子阱;双波长;发光二极管;金属有机化学气相沉积

中图分类号:O433.4

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20114002.0190

0 引言

近年来, GaN 基白光发光二极管 (Light-Emitting Diode, LED) 因其使用寿命长、高效节能、绿色环保等优点被誉为继白炽灯、荧光灯、气体放电之后的第四代照明光源,被广泛应用于液晶显示 (Liquid Crystal Display, LCD)、手机、数码相机等领域.随着以白光 LED 为主的半导体照明产业的飞速发展,白光 LED 在固态照明方面显示出了巨大的市场潜力和应用前景,引起了各国政府和研究机构及公司的高度重视,美国、日本及欧洲均注入大量人力和财力,设立专门的机构推动半导体照明技术的发展^[1-2].

目前实现氮化物白光 LED 广泛采用的方案有两种:1)以 InGaN 基蓝光或紫光 LED 为基础光源,通过荧光粉实现荧光下转换^[3-4];2)多芯片混色的白光 LED.由于后者发光全部来自发光二极管,因此,制作成本较高,另外由于三种颜色发光二极管之间老化特性的差异,常导致发光过程中变色.目前广泛采用 InGaN 基蓝光或紫光 LED 加荧光粉的方法,但是无机荧光粉面临着光致转换效率低及色散指数 (CRI) 低等缺点^[5-6].此外,无荧光粉的单芯片白光 LED 也已有报道^[7-10].主要是在同一个蓝宝石衬底上依次生长两种或三种 InGaN/GaN 多量子阱结构的 LED,调节 In 组分来实现从蓝光到红光的发射

从而合成白光,然而, InGaN/GaN 基 LED 的红光部分发光效率较低,导致相关白光 LED 发光效率远低于蓝光加荧光粉的白光 LED 的效率.最近, Mirhosseini 等人通过模拟结果证实了利用双蓝光波长 LED 涂覆 YAG:Ce 荧光粉能够在保持流明效率的同时得到高显色指数的白光 LED^[11].本文采用金属有机化学气相沉积 (Metal-Organic Chemical Vapor Deposition, MOCVD) 系统在 (0001) 蓝宝石衬底上生长了双波长的 InGaN/GaN 多量子阱 LED 结构,通过在有源区量子阱中掺入不同组分的 In 获得双波长发射,研究了双波长 LED 结构的光电特性,并用双蓝光发射的芯片来激发 YAG:Ce 荧光粉实现了高显色指数白光发射.

1 实验

利用 Thomas Swan 公司生产的 MOCVD 系统在 (0001) 蓝宝石衬底上外延生长了两种不同的 InGaN/GaN MQW 双波长 LED 结构,样品结构如图 1. 三甲基镓 (TMGa)、三甲基铟 (TMIn)、三甲基铝 (TMAI) 和氨气 (NH₃) 分别作 Ga、In、Al 和 N 源并由氢气 (H₂) 作载气. 样品 A 和样品 B 都是采用常规的两步法生长,在蓝宝石衬底上依次生长 GaN 缓冲层、GaN 未掺杂层和 n-GaN 层 (掺杂浓度 $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$),然后生长 InGaN/GaN 多量子阱有源层,最后生长一层 15 nm 厚的 p-AlGaIn 作为电子阻挡

基金项目:教育部留学回国人员科研启动基金、广东省教育部产学研结合项目 (No. 2009B090300338)、广东省自然科学基金 (No. 8521063101000007) 和华南师范大学学生课外科研重点课题项目 (No. 10GDCK07) 资助

第一作者:陈献文 (1985-), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为 III 族氮化物半导体光电材料和器件的设计与制备. Email: zhgchenxianwen@163.com

导师 (通讯作者):章勇 (1971-), 男, 副教授, 博士, 主要研究方向为 III 族氮化物半导体及有机功能材料和器件. Email: zycq@senu.edu.cn

收稿日期:2010-08-31; **修回日期:**2010-10-18

层及 200 nm 厚的 p-GaN 层. 样品 A 有源层依次由 5 个周期的 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 多量子阱和 1 个周期的 $\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 量子阱组成; 样品 B 有源层依次为 3 个周期的 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 多量子阱和 $\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})/\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})/\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 多量子阱. 样品 A 和 B 有源层中量子阱的个数都是 6. SiH_4 和 Cp_2Mg 分别作为 n 和 p 型掺杂剂. 生长过程结束后, 采用掩膜、光刻、腐蚀、电子束蒸发和 ICP 干法刻蚀技术等标准芯片制作工艺将两个样品制成 $350 \times 350\ \mu\text{m}^2$ 的 LED 芯片. 光致发光 (Photo Luminescence, PL) 光谱测量是在 iHR 550 (Horiba Jobin Yvon Inc.) 光谱仪上进行, 激发光源为 325 nm He-Cd 激光器. LED 器件的光电特性是在 PMS-50 (Everfine Co.) LED 综合测试仪上测量. 所有测量均在室温下进行.

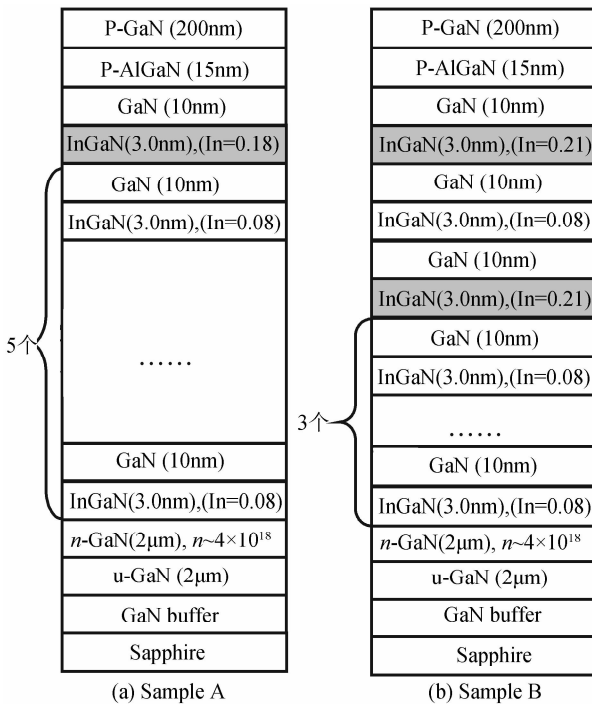


图 1 双波长发光二极管二种样品结构
Fig. 1 Schematic structures of the dual-wavelength LED for two samples

2 结果与讨论

图 2 是测量两个样品的 PL 谱归一化后得到的结果. 样品 A 和样品 B 都有两个相同的光致发光峰, 其中 365 nm 是 GaN 材料的本征发射峰, 430 nm 峰对应 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}(3.0\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 多量子阱的发射峰. 样品 A 中 470 nm 峰对应 $\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{N}(3.0\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 量子阱的发射, 而样品 B 中 512 nm 峰则对应 $\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}(3.0\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 量子阱的发射. 总体看来, 两个样品的 430 nm 发射峰相对强度较大, 这主要是因为这组量子阱的数量较多. 样品 B 中 512 nm 的发射强度与样品 A 中 470 nm 的发射强度相当, 这可能是由于生长高 In 组分量子阱需要较低的生长温度, 产生了 In 原子的聚集导致形成了大量的位错, 因而发光强度下降. 在 PL 光谱图中可以看到振荡现象, 这是由于衬底与外延层之间的折射率差较大而引起的法布里-珀罗干涉结果.

总体看来, 两个样品的 430 nm 发射峰相对强度较大, 这主要是因为这组量子阱的数量较多. 样品 B 中 512 nm 的发射强度与样品 A 中 470 nm 的发射强度相当, 这可能是由于生长高 In 组分量子阱需要较低的生长温度, 产生了 In 原子的聚集导致形成了大量的位错, 因而发光强度下降. 在 PL 光谱图中可以看到振荡现象, 这是由于衬底与外延层之间的折射率差较大而引起的法布里-珀罗干涉结果.

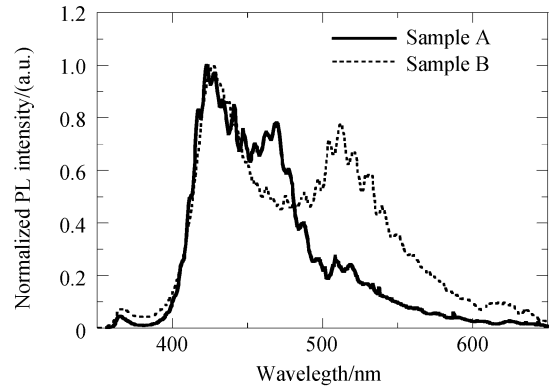


图 2 样品 A 和 B 的光致发光谱
Fig. 2 Photoluminescence spectra of sample A and sample B

图 3(a) 表示样品 A 的发光二极管在不同注入电流情况下的电致发光光谱. 在非常低电流注入时, 样

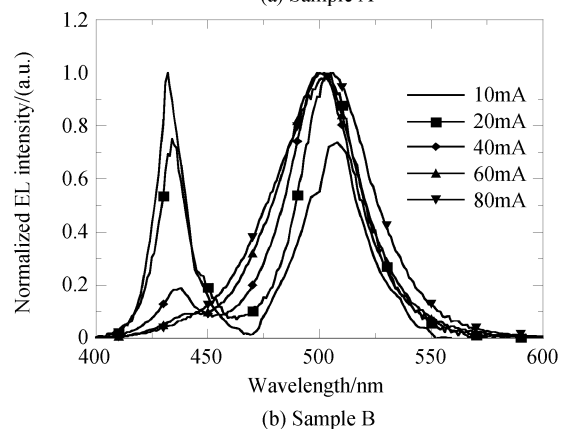
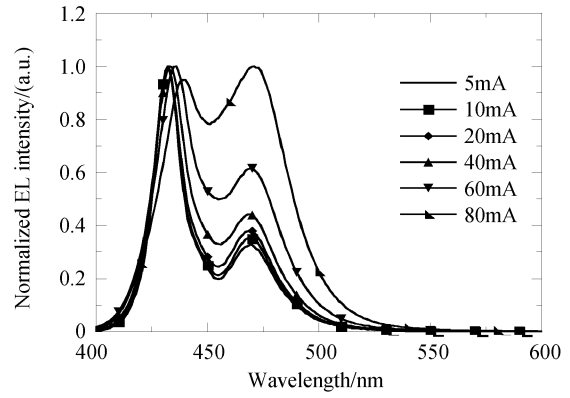


图 3 对应样品 A 和 B 的发光二极管在不同注入电流下的电致发光谱
Fig. 3 Electroluminescence spectra of the LEDs from Sample A and sample B at different dc injection currents

品 A 的电致发光主要位于 430 nm, 而 470 nm 的发射相对较弱, 当在注入电流小于 40 mA 时, 这两电致发光发射峰的相对强度基本上保持不变. 随着注入电流大于 40 mA 后, 470 nm 的发射峰逐渐增强, 当达到 80 mA 时, 430 nm 和 470 nm 两电致发光发射峰的相对强度基本相当. 样品 A 在增大注入电流情况下 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 多量子阱的发射峰稍有红移, $\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 发射峰相对强度逐渐增大. 样品 B 的发光二极管在不同电流作用下的电致发光谱如图 3 (b), 在电流小于 40 mA 时样品 B 有两个明显的电致发光峰, 其中, 430 nm 为 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 多量子阱的发射, 而 510 nm 则为 $\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 量子阱的发射. 随驱动电流的增加, 来自 $\text{In}_{0.08}\text{Ga}_{0.92}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 量子阱的发射逐渐变弱, 而 $\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 量子阱的发射逐渐变强. 当电流大于 60 mA 后, 样品 B 的发射主要来自 $\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 量子阱的发射, 同时, 该量子阱的发射峰随电流的增大表现出明显的蓝移. 这主要是由于当外加电流增大时, $\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}(3\text{ nm})/\text{GaN}(10\text{ nm})$ 量子阱中由载流子浓度增大引起的库伦屏蔽效应减小了极化效应引起的能带倾斜程度, 导致发光峰会蓝移. 随驱动电流的增大, 样品 A 和 B 的偏绿发射峰与 430 nm 发射峰的相对强度都变强, 样品 A 的相对发射强度从 0.36 增大到 1.1, 而样品 B 的相对发射强度从 0.74 增大到 20. 在低电流情况下, LED 活性层中电子和空穴能均衡复合, 在阱宽和垒宽都相同的情况下低 In 组分的量子阱数目多因而其发射强度就大, 另一方面, 由于高 In 组分的量子阱靠近 p-GaN 侧, GaN 材料的空穴的迁移率小于电子的迁移率, 所以随注入电流的增大, 电子和空穴大量地聚集在靠 p-GaN 侧, 来自高 In 组分子量子阱发射就显著增强. 随高 In 组分子量子阱数增大, 其电致发光峰随电流变化也变得很不稳定, 这对于照明应用来说是很不利的.

图 4 表示相应样品 A 和 B 发光二极管的输出光功率随注入电流的变化关系. 从图中可以看出, 两样品的光功率都随注入电流的增大先增大, 然后减小, 样品 A 的光功率远远大于样品 B 的光功率. 在 20 mA 下样品 A 和样品 B 的光功率分别是 9.27 和 0.234 mW, 样品 A 的饱和电流是 70 mA, 相应的光功率为 21.8 mW, 而样品 B 的饱和电流是 50 mA, 相应的光功率只有 1.27 mW. 主要是因为含高 In 组分子量子阱的样品 B 在生长过程中产生了 In 原子的聚集效应, 类似于文献[9]报道的结果, 这种 In

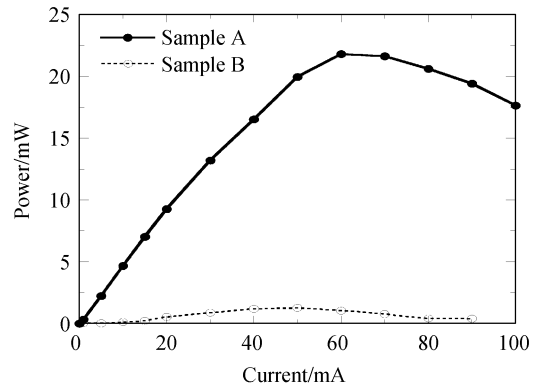


图 4 相应样品 A 和 B 的发光二极管输出光功率随注入电流的变化曲线

Fig. 4 Output power as a function of injection current for sample A and sample B LEDs

原子的聚集导致位错较多, 降低了器件的光输出功率.

图 5 是样品 A 制得的发光二极管用 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ (YAG:Ce) 荧光粉封装后在不同注入电流下的白光 LED 的发射光谱. 白光 LED 的发射光谱表现为三个光谱, 其中 430 nm 和 470 nm 的发光峰来自样品 A 芯片的电致发光, 550 nm 为 YAG:Ce 荧光粉吸收蓝光产生的光致发光. 比较图 5 和图 3(a) 发现, 随电流的增大, 在白光 LED 中来自 470 nm 发射峰的强度变弱了, 主要是由于 YAG:Ce 荧光粉的吸收最大值在 470 nm 左右, 所以 470 nm 发射峰被荧光粉吸收强度比 430 nm 发射峰大. 当正向注入电流为 20 mA 时, 白光 LED 的色坐标 CIE1931 是 (0.280, 0.258), 显色指数和流明效率分别达到 75 和 27.9 lm/W. 注入电流升至 80 mA 时, 其显色指数可以达到 88, 这个值非常接近文献[11]报道的理论计算结果. 这说明用双蓝光发射芯片来激发 YAG:Ce 荧光粉可以实现高显色指数的白光 LED, 与传统的单蓝光激发 YAG:Ce 荧光粉的白

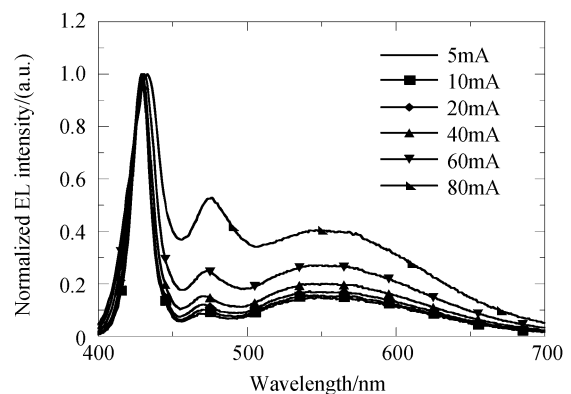


图 5 样品 A 与 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ (YAG:Ce) 荧光粉封装成白光二极管随电流变化的发射光谱

Fig. 5 Emission spectra of the white LED from sample A with $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$ (YAG:Ce) phosphor encapsulation at the different currents

光 LED 发光效率相比还有一些差距,这需要对双蓝光波长发射的外延生长技术进行优化,本课题组正在开展相关研究。

3 结论

利用 MOCVD 系统在蓝宝石衬底上制备出了两种不同 In 组分的 InGaN/GaN 多量子阱 LED 结构实现了双波长发射,并对这些双波长发射 LED 的光电性能进行了分析.用双蓝光发射芯片来激发 YAG : Ce 荧光粉实现了高显色指数的白光 LED.在注入电流为 20 mA 时,白光 LED 的显色指数为 75,当注入电流增至 80 mA 时,显色指数达到 88,说明这种双蓝光芯片激发 YAG : Ce 荧光粉的白光封装方案是一种有效实现高显色指数白光 LED 的途径。

参考文献

- [1] MILLS A. Compound semiconductors on silicon[J]. *III-Vs Review*, 2002, **15**(4): 30-35.
- [2] TAGUCHI T. Present status of white LED lighting technologies in Japan[J]. *Journal of Light & Visual Environment*, 2003, **27**(33): 131-139.
- [3] NAKAMURA S, FASOL G. The blue laser diode: GaN based light emitters and lasers[M]. Berlin: Springer, 1997.
- [4] LI Pan-lai, YANG Zhi-ping, WANG Zhi-jun, *et al.* Spectrum characteristics of $\text{Sr}_3\text{SiO}_5 : \text{Eu}^{2+}$ phosphor [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2008, **37**(10):2001-2004.
- [5] YAMADA M, NAITOU T, IZUMO K, *et al.* Red-enhanced white-light-emitting diode using a new red phosphor [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2003, **42**(1A-B): L20-L23.
- [6] SHEU J K, CHANG S J, KUO C H, *et al.* White-light emission from near UV InGaN-GaN LED chip precoated with blue/green/red phosphors[J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2003, **15**(1): 18-20.
- [7] OZDEN I, MAKARONA E, NURMIKKO A V, *et al.* A dual-wavelength indium gallium nitride quantum well light emitting diode[J]. *Applied Physics Letters*, 2001, **79**(16): 2532-2534.
- [8] CHEN C H, CHANG S J, SU Y K. InGaN/GaN multiple-quantum-well dual-wavelength near-white light emitting diodes [J]. *Physica Status Solidi (c)*, 2003, (7): 2257-2260.
- [9] WANG X H, JIA H Q, GUO L W, *et al.* White light-emitting diodes based on a single InGaN emission layer[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, **91**(16):1912-1914.
- [10] WANG X H, GUO L W, JIA H Q, *et al.* Control performance of a single-chip white light emitting diode by adjusting strain in InGaN underlying layer [J]. *Applied Physics Letters*, 2009, **94**(11):1913-1915.
- [11] MIRHOSSEINI R, SCHUBERT M F, CHHAJED S, *et al.* Improved color rendering and luminous efficacy in phosphor-converted white light-emitting diodes by use of dual-blue emitting active regions[J]. *Optics Express*, 2009, **17**(13): 10806- 10813.

Optoelectronic Properties of Dual-wavelength InGaN/GaN Multi-quantum Well Light-emitting Diodes

CHEN Xian-wen¹, WU Qian², LI Shu-ti¹, ZHENG Shu-wen¹, HE Miao¹,
FAN Guang-han¹, ZHANG Yong¹

(1 Institute of Optoelectronic Materials and Technology, South China Normal University, Guangzhou 510631, China)

(2 Guangzhou Hongli Opto-electronic Incorporated Company, Guangzhou 510800, China)

Abstract: In order to realize preferable white light-emitting diodes with high color rendering index and optimized luminous efficiency, white InGaN/GaN multi-quantum-well dual-wavelength light-emitting diodes (LEDs) were grown on (0001)-oriented sapphire substrates by metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD). Photoluminescence and electroluminescence properties of dual-wavelength LEDs with different In content were also studied. The experimental results indicated that In component plays a critical role on stability for electroluminescence spectrum and luminous efficiency of the dual-wavelength LED structures. In addition, YAG : Ce phosphor-converted white light emission with high color rendering index was achieved using dual-blue emitting active regions.

Key words: InGaN/GaN multi-quantum well; Dual-wavelength; Light-Emitting Diodes (LED); Metal-Organic Chemical Vapor Deposition(MOCVD)