

蓝光激光器结构中 InGaN/GaN 多量子阱界面效应的 精细光致发光光谱研究

王滔^{1,2}, 刘建勋², 葛啸天², 王荣新², 孙钱², 宁吉强^{2*}, 郑昌成^{3*}

1. 中国科学技术大学纳米技术与纳米仿生学院, 安徽 合肥 230026
2. 中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所, 江苏 苏州 215123
3. 昆山杜克大学自然与应用科学学部, 江苏 昆山 215316

摘要 金属有机化学气相沉积(MOCVD)方法制备 InGaN/GaN 多量子阱结构时,在 GaN 势垒层生长的 N₂ 载气中引入适量 H₂,能够有效改善阱/垒界面质量从而提升发光效率。本工作利用光致发光(PL)光谱技术,对蓝光激光器结构中的 InGaN/GaN 多量子阱的发光性能进行了精细的光谱学测量与表征,研究了通 H₂ 生长对量子阱界面的调控效应及其发光效率提升的物理机制。室温 PL 光谱结果显示, GaN 势垒层生长载气中引入 2.5% 的 H₂ 使 InGaN/GaN 多量子阱的发光效率提升了 75%、发光峰的峰位蓝移了 17 meV、半峰宽(FWHM)减小了 10 meV。通过功率依赖的 PL 光谱特征分析,我们对 InGaN/GaN 量子阱中的量子限制 Stark 效应(QCSE)和能带填充(Band Filling)效应进行了清晰的辨析,发现了发光峰峰位和峰宽的光谱特征主要受 QCSE 效应影响, H₂ 的引入能够大幅度降低 QCSE 效应,并且确定了 QCSE 效应被完全屏蔽情况下的发光峰能量为 2.75 eV。温度依赖的 PL 光谱数据揭示了通 H₂ 生长量子阱结构中显著减弱的载流子局域化行为,显示界面质量提高有效降低了限制势垒的能量波动,从而导致更窄的发光峰半峰宽。PL 光谱强度随温度的变化规律表明,通 H₂ 生长并不改变量子阱界面处的非辐射复合中心的物理本质,却能够显著减少非辐射复合中心的密度,有助于提升量子阱的发光效率。通过时间分辨 PL 光谱分析,发现通 H₂ 生长会导致量子阱结构中更短的载流子辐射复合寿命,但不影响非辐射复合寿命。载流子复合寿命的变化特征进一步确认了通 H₂ 生长对量子阱结构中 QCSE 效应和非辐射复合中心的影响规律。综合所有 PL 光谱分析结果,我们发现通 H₂ 生长能够提高 InGaN/GaN 多量子阱的界面质量、显著减弱应力效应(更弱的 QCSE 效应)、降低限制势垒的能量波动以及减少界面处非辐射复合中心的密度,从而显著提升量子阱的发光效率。该研究工作充分显示了 PL 光谱技术对半导体量子结构发光性能的精细表征能力,光谱分析结果能够为 InGaN/GaN 多量子阱生长提供有价值的参考。

关键词 InGaN/GaN 多量子阱; 光致发光光谱; 量子限制 Stark 效应; 载流子局域化; 载流子复合寿命
中图分类号: N34 **文献标识码**: A **DOI**: 10.3964/j.issn.1000-0593(2022)04-1179-07

引言

InGaN/GaN 多量子阱是蓝绿光发光二极管(LED)、半导体激光器(LD)等光源器件有源区的核心结构,其高效、稳定的发光性能是制造光源器件的关键。但是,因为 InGaN 和 GaN 材料晶格常数差异较大,使得量子阱结构的界面处容易

出现组分和晶体结构的波动^[1],显著改变量子阱发光特征的同时还引入大量的非辐射复合中心,严重影响了量子阱的发光性能。此外,沿(0001)面生长的 InGaN/GaN 多量子阱结构中,存在突出的应力效应,会在量子阱界面处产生很强的极化电场,导致显著的量子限制 Stark 效应(QCSE),使得阱内电子和空穴空间分离,降低电子-空穴的复合发光效率^[2]。利用金属有机化学气相沉积(MOCVD)方法生长

收稿日期: 2021-01-30, 修订日期: 2021-03-29

基金项目: 国家自然科学基金项目(11974378, 11874390), 中国科学院战略性先导科技专项(XDB43000000, XDB43020200), 中国科学院前沿科学重点研究计划(QYZDB-SSW-JSC014, ZDBS-LY-JSC040), 江苏高校“青蓝工程”项目资助

作者简介: 王滔, 1993年生, 中国科学技术大学纳米技术与纳米仿生学院硕士研究生 e-mail: twang2018@sinano.ac.cn

* 通讯作者 e-mail: jqning2015@sinano.ac.cn; changcheng.zheng@dukekunshan.edu.cn

InGaN/GaN多量子阱结构时,在 GaN 势垒层生长过程中采用 N_2/H_2 混合气^[3-4],能够有效改变量子阱界面的质量。譬如,Zhou 等^[3]研究了 GaN 势垒层生长载气中引入 H_2 的影响,发现 H_2/N_2 载气中 H_2 比例的增加,能够使表面 V 型坑(V-Pits)的密度和表面粗糙度显著降低;而当 H_2 比例超过 6.25% 时,由于应力弛豫和 H_2 过刻蚀效应会导致表面质量变差。Zhou 等^[4]发现 GaN 势垒层生长过程中 H_2 的引入有助于去除界面处的富 In 团簇,从而提升量子阱表面的热稳定性。尽管 InGaN/GaN 多量子阱的生长实验已经证实了生长载气中 H_2 的引入能够显著调制量子阱界面质量、改变量子阱的发光性能,但其对载流子复合行为的作用及其发光性能改善背后的物理机制,尚有待进一步的深入研究。本工作基于蓝光激光器结构中的 InGaN/GaN 多量子阱体系,利用光致发光(PL)光谱技术对其发光性能进行了细致的测量和分析,研究了通 H_2 生长量子阱结构中的 QCSE 效应、载流子局域化现象以及载流子的复合寿命特性,精细区分了量子阱界面因素对载流子辐射复合发光行为的作用特征与机理,发现了量子阱发光性能提升的根本原因。本工作的光谱学分析方法和研究发现,能对半导体量子结构(包括量子点和量子阱)的生长研究和光学性能研究提供有价值的参考。

1 实验部分

选取蓝光半导体激光器结构中的 InGaN/GaN 多量子阱作为研究对象,该激光器结构通过金属有机化学气相沉积(MOCVD)技术在硅衬底上生长获得,其核心结构为 3 周期的 $In_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$ 量子阱。硅衬底之上依次生长 $AlN/Al_{0.35}Ga_{0.65}N/Al_{0.17}Ga_{0.83}N$ 多层缓冲层、1.4 μm 厚的非掺 GaN 层、1.3 μm 厚的 n 型 GaN 层、14 周期的 $n-Al_{0.085}Ga_{0.915}N$ (75 nm)/n-GaN(10 nm)超晶格光场限制层、80 nm 厚的 n-GaN 波导层、4 nm 厚的非掺 GaN 盖层、3 周期的 $In_{0.15}Ga_{0.85}N/GaN$ 多量子阱结构、5 nm 厚的非掺 GaN 盖层。该结构是在硅(111)面上外延制备,导致 InGaN/GaN 多量子阱沿(0001)面生长。其中 InGaN/GaN 量子阱结构中 $In_{0.15}Ga_{0.85}N$ 阱层厚度为 3.3 nm, GaN 势垒层厚度为 12.6 nm。为了调节量子阱/垒的界面质量, GaN 势垒层生长的 N_2 载气中掺入了 2.5% 的 H_2 ,我们把这种通过 N_2/H_2 混合载气生长的样品标记为 H_2 -MQW,而把通过纯 N_2 载气生长获得的样品标记为 N_2 -MQW。

研究对 InGaN/GaN 多量子阱样品进行了稳态 PL 光谱和时间分辨 PL 光谱的实验测量。其中稳态 PL 光谱测量以 Kimmon 公司的 He-Cd 激光器(波长 325 nm)作为激发光源,利用配置 CCD 探测器的 Horiba JY 公司的 iHR550 光谱仪进行光信号的分析与测量。时间分辨 PL 光谱是通过基于单光子探测(time correlated single photon counting, TCSPC)技术的自建光谱系统测量,激发光源是脉宽为 60 ps 的 375 nm 脉冲激光器。样品置于光学低温恒温器(montana instruments)中进行变温 PL 光谱测量,最低温度可达 4 K,温度在 4~300 K 范围内连续可调。

2 结果与讨论

图 1 为 H_2 -MQW 样品和 N_2 -MQW 样品室温下的 PL 光谱结果。两者 PL 光谱中出现显著的干涉振荡型结构^[5]。为更准确辨析 PL 数据的峰位、峰宽、峰强等光谱特征,我们对 PL 谱线数据进行了如图 1 所示的拟合处理。拟合结果发现 H_2 -MQW 样品发光更强,其积分强度是 N_2 -MQW 样品的 1.8 倍,说明势垒层生长载气中 H_2 的引入能够显著提高 InGaN/GaN 多量子阱的发光效率。此外, H_2 -MQW 样品和 N_2 -MQW 样品发光峰的峰位和峰宽也存在较大差异。 H_2 -MQW 样品发光峰的峰位和半峰宽(FWHM)分别为 2.756 eV 和 105 meV, N_2 -MQW 样品 PL 光谱的峰位和半峰宽分别为 2.739 eV 和 115 meV。和 N_2 -MQW 样品相比, H_2 -MQW 样品发光峰的峰位蓝移了 17 meV、半峰宽减小了 10 meV。为探究 H_2 -MQW 样品发光效率提高、峰位蓝移、峰宽变窄的原因,我们对两样品进行了室温下的变功率 PL 光谱测试。

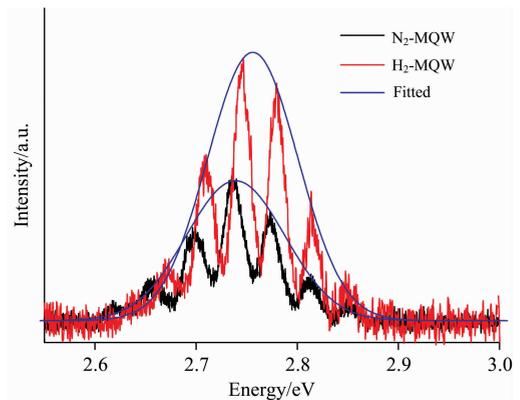


图 1 H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 样品在 375 nm (5 μW) 激光激发下的室温 PL 光谱,其中蓝色谱线是实验数据的平滑拟合,用以消除干涉振荡结构的影响

Fig. 1 PL spectra of sample H_2 -MQW and sample N_2 -MQW, recorded at room temperature with the 375 nm laser (5 μW), with fitted smooth lines to eliminate the oscillation pattern originating from thin-film interference

图 2(a) 和 (b) 分别为 N_2 -MQW 和 H_2 -MQW 两样品 325 nm 激光激发下的变功率 PL 光谱结果,能够清楚观察到两样品发光峰的峰位和强度都随激发光功率增大发生显著变化。为细致比较 PL 光谱特征随激发光功率变化的规律,我们将不同激发功率下的峰位能量和半峰宽数据绘于图 2(c) 和 (d)。如图 2(c) 所示, H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 两个样品 PL 光谱的峰值能量都是随着激发光功率增加而显著蓝移。InGaN/GaN 多量子阱结构中,存在两种作用机制会导致发光峰能量随激发功率增加而蓝移:量子限制 Stark 屏蔽效应^[2]和能带填充效应(band filling)^[6]。

沿(0001)面外延生长的 InGaN/GaN 多量子阱结构中,由于量子阱层和势垒层晶格失配会产生较大应力,该类应力

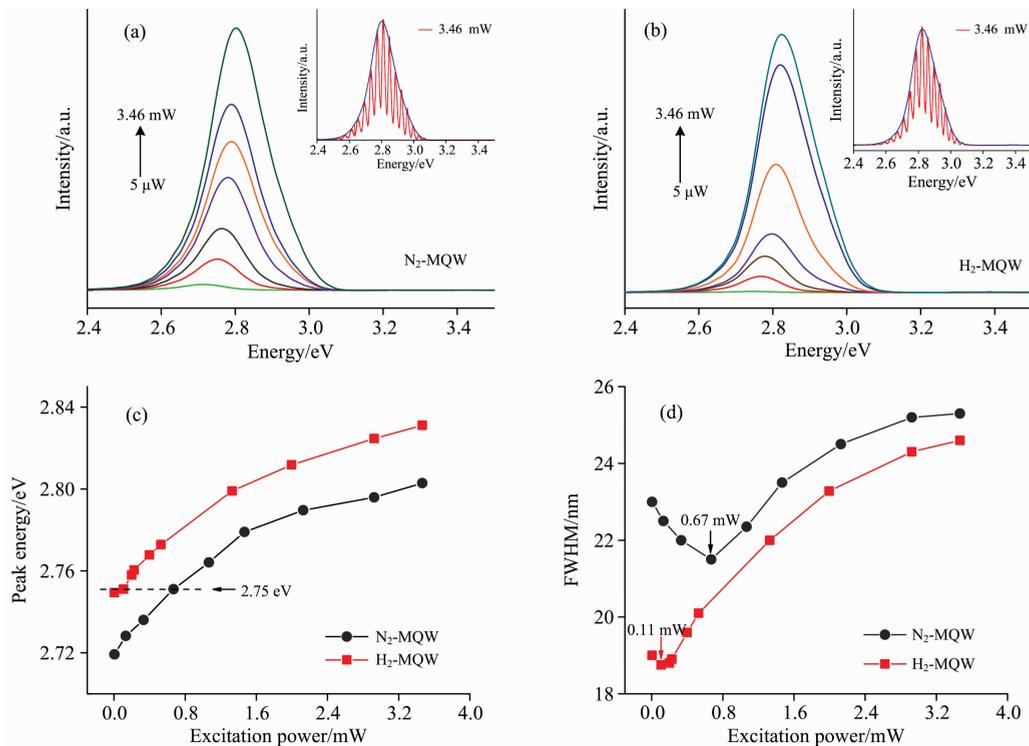


图 2 (a)和(b)分别为 N_2 -MQW 样品和 H_2 -MQW 样品室温下的功率依赖 PL 光谱结果,其中插图显示对 3.46 mW 功率 PL 光谱的拟合处理方法,用以消除干涉振荡结构,其他功率的光谱数据都是按照此方法处理获得;(c)为 H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 两样品 PL 光谱峰位能量对激发光功率的依赖关系;(d)为两样品 PL 光谱半峰宽对激发光功率的依赖关系

Fig. 2 (a) and (b) present the PL spectra of sample N_2 -MQW and sample H_2 -MQW, respectively, recorded at varied laser powers, and the insets depict how the PL spectra were smoothly fitted to eliminate oscillating interference pattern when taking the spectral data at 3.46 mW as examples; (c) exhibits the peak energy dependence of the PL spectra on the excitation power for the two samples, and (d) illustrates the spectral width dependence of their PL spectra on the excitation power

通过压电效应在量子阱界面生成极化电场^[7],作用于量子阱的能带结构就造成典型的量子限制 Stark 效应,导致量子阱能带倾斜,使得阱内电子与空穴分别朝势能极小值与势能极大值附近迁移,造成电子-空穴跃迁复合能量的降低,从而表现出峰位的红移。此外,能带倾斜还引发阱内电子和空穴的空间分离,导致电子和空穴波函数的空间交叠减小,使得辐射复合速率降低,表现为辐射复合寿命增加^[8]。当量子阱内掺杂载流子浓度增加或者光生载流子浓度增大时,会对极化电场产生屏蔽,使得 QCSE 效应减弱,从而导致发光峰峰位的蓝移以及辐射复合寿命的减小。所以,当 H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 两个样品中存在 QCSE 效应时,激发光功率的增加会增大阱内光生载流子浓度,通过屏蔽极化电场而减弱 QCSE 效应,从而可能导致如图 2(c)所示的峰位随激发光功率增加而蓝移的现象。此外,光生载流子的能带填充效应同样会导致发光峰位随激发光功率增加而发生蓝移。InGaN/GaN 多量子阱体系中,存在量子阱厚度波动、In 组分波动、应力以及界面极化电场分布不均匀等现象,会导致量子阱能带结构的大范围波动,使得贡献发光的电子态具有很宽的能量分布,在 PL 光谱中表现为较大的半峰宽值。在此情况下,能带填充效应会变得突出:低功率激发下,载流子在低能态复合发光,表现为较小的发光峰能量;随着激发光功率增大,低

能态被光生载流子填充,导致载流子到较高能态复合发光,使得发光峰能量增大(蓝移),同时伴随着发光峰半峰宽的增大。由此可见,仅仅通过图 2(c)中的数据规律,我们还不能区分 QCSE 屏蔽效应和能带填充效应。为区分这两种效应,我们进而比较发光峰半峰宽对激发光功率的依赖关系。如上文所提, QCSE 效应会导致发光峰峰宽的增大,当 QCSE 效应因光生载流子增加而被屏蔽时,发光峰宽则会减小;与之相反,光生载流子增加导致的能带填充效应却会使发光峰峰宽增加。如图 2(d)所示,随着激发光功率的增加, H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 两个样品的发光峰半峰宽都出现先变小再增大的变化规律,说明两个样品在小功率下都存在显著的 QCSE 效应,激发光功率增加逐渐屏蔽 QCSE 效应,使得发光峰半峰宽减小;而随着激发光功率的进一步增加,能带填充效应占主导地位,导致发光峰半峰宽逐渐增大。小功率激发下的能带填充效应可以忽略,所以小功率下的半峰宽变化是由 QCSE 效应引起,于是,图 2(d)中半峰宽最小值处恰好是 QCSE 效应被完全屏蔽的状态,我们可以据此估计 QCSE 效应的强弱。如图中所标识, N_2 -MQW 样品在激发光功率为 0.67 mW 时半峰宽达到最小值,而 H_2 -MQW 样品的半峰宽最小值出现在激发光功率为 0.11 mW 处,说明更小的功率可以屏蔽 H_2 -MQW 样品中的 QCSE 效应,即 H_2 -MQW 量

子阱中的 QCSE 效应更弱。由图 2(d) 我们已知 H_2 -MQW 样品和 N_2 -MQW 样品分别在 0.11 和 0.67 mW 功率激发下可以完全屏蔽 QCSE 效应, 而结合图 2(c) 的结果, 我们发现 H_2 -MQW 样品在 0.11 mW 功率下的发光峰能量和 N_2 -MQW 样品在 0.67 mW 功率下的发光峰能量都在 2.75 eV

附近, 该结果一方面证实了发光峰半峰宽最小值正好对应 QCSE 效应被完全屏蔽的状态, 另一方面也说明 H_2 -MQW 样品和 N_2 -MQW 样品的能带结构完全一致, 仅是 QCSE 效应导致两者发光峰能量的差别。

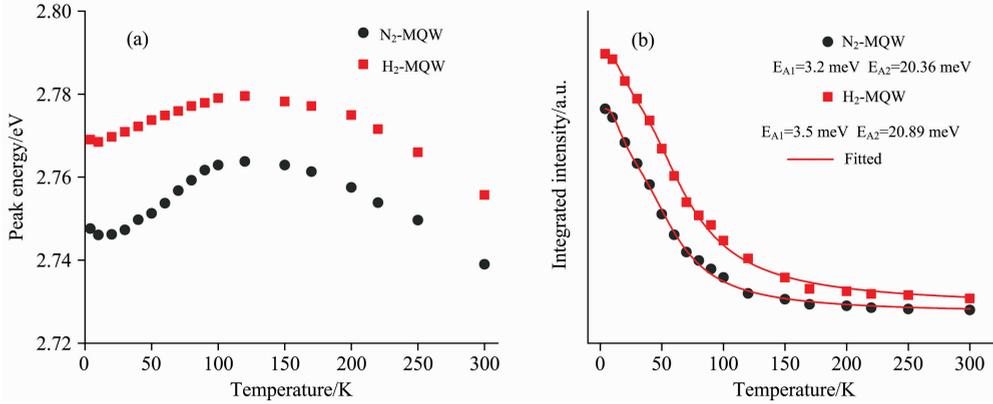


图 3 H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 样品变温 PL 光谱特征变化规律

(a) 发光峰位能量的温度依赖关系; (b) 发光峰积分强度的温度依赖关系, 其中实线为 Arrhenius 拟合结果

Fig. 3 Variation of the PL spectral characteristics of the H_2 -MQW and N_2 -MQW samples with respect to temperature

(a): Depicts the dependence of peak energy on temperature;

(b): Depicts the dependence of integrated peak intensity on temperature

(the solid lines are the fitting results obtained with the Arrhenius formula)

为进一步了解势垒层生长载气引入 H_2 对 InGaN/GaN 多量子阱发光性能的影响, 我们利用变温 PL 光谱和时间分辨 PL 光谱研究了 H_2 -MQW 样品和 N_2 -MQW 样品中的载流子局域化行为和非辐射复合中心的特性。两样品发光峰峰值能量和半峰宽对温度的依赖关系绘于图 3。如图 3(a) 所示。从 4 K 至 300 K, H_2 -MQW 样品的峰位能量一直高于 N_2 -MQW 样品, 该规律进一步支持了图 2 中变功率 PL 光谱的分析结论, 即 H_2 -MQW 样品和 N_2 -MQW 样品发光峰位能量的差别源自两者 QCSE 效应的不同, 因为 QCSE 效应在本质上是源自阱内应力导致的极化电场, 而温度变化并不显著改变阱内的应力状态, 所以 H_2 -MQW 样品在所有温度下都表现出更高的发光峰能量。此外, 两个样品的发光峰位都呈现 S 型变化规律, 这是载流子局域态发光行为的典型特征^[9-10]。前文提及, InGaN/GaN 多量子阱结构中不可避免的存在能带波动问题, 导致较宽的能态分布。温度足够低的情况下, 能量高和能量低的电子能态都能俘获载流子发光, 发光峰表现出较大能量值; 而随着温度升高, 微弱的热效应可以激活高能态的载流子使其往低能态弛豫, 导致发光峰能量降低; 当温度进一步升高, 热激发作用足以将低能态载流子激发到更高能态, 导致发光峰能量升高, 从而出现如图 3(a) 所示的峰位能量随温度的 S 型变化规律。S 线型的温度拐点, 反映了局域化电子态的物理本质, 而 S 线型的变化幅度则是局域化态密度的表现。 H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 两个样品 S 线型变化的温度拐点一致, 皆是 10 K 下发光峰能量最低、120 K 下发光峰能量最高, 说明是相同类型的局域化态导致两样品中的载流子局域化发光现象。不同的是, 两样品 S 线型变化幅度不同, 从 4 K 至 10 K, N_2 -MQW 和 H_2 -MQW 两个样品发

光峰位分别红移 1.52 和 0.55 meV; 从 10 K 至 120 K, N_2 -MQW 和 H_2 -MQW 两个样品的发光峰位分别蓝移 18.67 和 11.04 meV。无论峰位发生红移还是蓝移, N_2 -MQW 样品的变化幅度都大于 H_2 -MQW 样品, 说明 N_2 -MQW 样品中存在更高的局域化能态密度。故而, 图 3(a) 不仅显示 H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 两个样品具有相同类型的局域化电子态, 还揭示了 H_2 -MQW 样品中更小的局域化能态密度。此外, 当温度高于 120 K 之后, 两样品的发光峰位表现出完全一致的变化趋势, 即都随温度升高逐渐红移, 而且, 从 120 K 到 300 K 温度范围内, N_2 -MQW 样品红移了 24.77 meV, H_2 -MQW 红移了 23.82 meV, 两者红移量相近, 说明 120 K 之后载流子局域化现象消失, 发光峰能量的变化由能带结构随温度的变化规律所决定, 两个样品相同的变化趋势说明两者能带结构的一致性, 与变功率数据的分析结果相吻合。图 3(b) 给出两个样品发光峰积分强度随温度的变化关系, H_2 -MQW 样品的发光强度总是大于 N_2 -MQW 样品, 但两者变化趋势极其相似。为细致比较两者的变化趋势, 我们利用 Arrhenius 关系对其发光强度对温度的依赖关系进行了拟合^[11]

$$I(T) = I_0 \left[1 + C_1 \exp\left(-\frac{E_{A1}}{k_B T}\right) + C_2 \exp\left(-\frac{E_{A2}}{k_B T}\right) \right] \quad (1)$$

式(1)中, $I(T)$ 为发光强度, 为温度 T 的函数, k_B 为玻尔兹曼常数, E_{A1} 和 E_{A2} 是非辐射复合路径相关的热激活能, C_1 和 C_2 是由载流子复合寿命决定的系数, 在 Arrhenius 拟合中视作不随温度变化的常数。图 3(b) 中的实线是利用 Arrhenius 关系做出的拟合结果, 对应 N_2 -MQW 样品的 E_{A1} 和 E_{A2} 拟合值分别为 (3.2 ± 0.43) 和 (20.36 ± 1.22) meV, H_2 -MQW 样品的 E_{A1} 和 E_{A2} 拟合值分别为 (3.5 ± 0.65) 和 $(20.89$

±1.30) meV, 两样品 E_{A1} 和 E_{A2} 的数值都非常相近。 E_{A1} 和 E_{A2} 为辐射复合载流子被热激发到非辐射复合中心的特征激活能量, 由非辐射复合中心的物理本质所决定。 H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 两个样品的 E_{A1} 和 E_{A2} 值相近, 说明两个样品中存在相同类型的非辐射复合中心^[11]。拟合获得 N_2 -MQW 样品的 C_1 和 C_2 值分别为 1.21 和 39.05, H_2 -MQW 的 C_1 和 C_2 值分别为 0.81 和 22.87, N_2 -MQW 样品表现出更大的 C_1 和 C_2 值, 说明该样品中存在更高密度的非辐射复合中心^[11-12]。

图 4 给出两个样品在 4 和 300 K 温度下的时间分辨 PL 光谱数据, 实线为拟合结果, 无论在低温还是室温, H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 两个样品时间分辨 PL 光谱都表现出单指数衰减特征。 H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 样品在 4 K 下的发光寿命分别为 24 和 53 ns; 300 K 下的发光寿命分别为 3.7 和 3.3 ns。在研究 InGaN/GaN 多量子阱发光寿命时^[8], 通常忽略非辐射复合在低温下的贡献, 假定低温下发光寿命 τ_{PL} 完全由辐射复合寿命 τ_r 决定, 即 $\tau_{PL} = \tau_r$, 并且假定辐射复合寿

命不随温度变化^[13]; 随着温度升高, 非辐射复合的贡献逐渐增大, 室温下的发光寿命 τ_{PL} 由辐射复合寿命 τ_r 和非辐射复合寿命 τ_{nr} 共同决定, 即 $\frac{1}{\tau_{PL}} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}}$ ^[8, 13]。据此, 我们计算得到 H_2 -MQW 样品和 N_2 -MQW 样品的辐射复合寿命 τ_r 分别为 24 和 53 ns, 非辐射复合寿命 τ_{nr} 分别为 4.4 和 3.5 ns, 可见两者辐射复合寿命差异较大, 非辐射复合寿命非常相近。辐射复合寿命的差别, 进一步证明了两个样品中 QCSE 效应的不同。根据变功率和变温光谱实验数据分析, 已发现 N_2 -MQW 样品中存在比 H_2 -MQW 样品更显著的 QCSE 效应, 会导致电子和空穴波函数的交叠更小, 从而降低它们的辐射复合速率而增大其辐射复合寿命^[14], 所以 N_2 -MQW 样品的辐射复合寿命 (53 ns) 远大于 H_2 -MQW 样品的辐射复合寿命 (24 ns)。两个样品的非辐射复合寿命极其相近, 说明两个样品中存在相同类型的非辐射复合中心, 该结论与 PL 发光强度随温度依赖变化规律的分析结果一致。

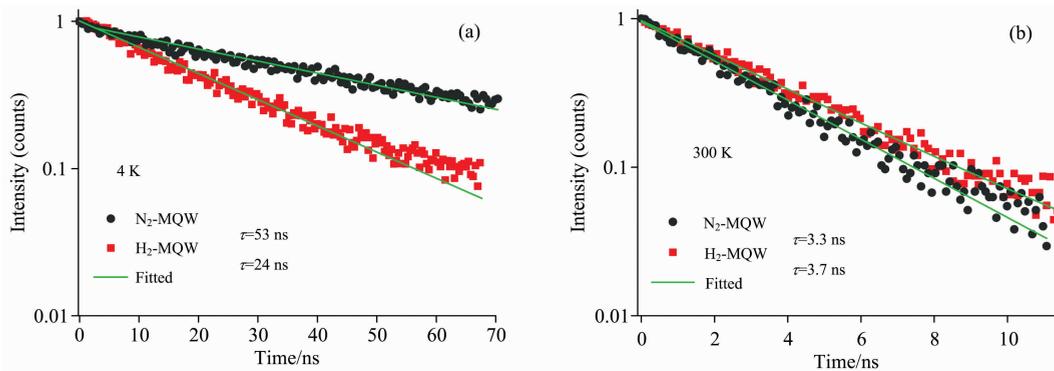


图 4 H_2 -MQW 和 N_2 -MQW 样品分别在 (a) 4 K 和 (b) 300 K 下测得的时间分辨 PL 光谱结果, 其测量波长为相应温度下 PL 发光峰的中心波长; 同一温度下的光谱数据做了归一化处理, 实线为发光寿命的拟合结果

Fig. 4 The time-resolved PL spectra of the H_2 -MQW and N_2 -MQW samples recorded at (a) 4 K and (b) 300 K, respectively, with the measured wavelength set to the peak wavelength of the PL spectra at the corresponding temperatures. The spectra of the same temperature have been normalized, and the solid lines are the fittings to the decaying lifetimes

3 结 论

利用 PL 光谱技术, 对 InGaN/GaN 多量子阱结构的能带结构、界面极化电场、载流子局域化、载流子辐射复合与非辐射复合等特性进行了细致的分析与表征, 获得了清晰、明确、一致的研究结论。功率依赖 PL 光谱结果清晰地分辨了 QCSE 屏蔽效应和能带填充效应, 并且揭示了 H_2 -MQW 样品和 N_2 -MQW 样品中多量子阱结构具有相同的能带结构, 仅仅是阱内 QCSE 效应的强弱差异造成了两个样品 PL 发光峰能量的差别; 变温 PL 光谱结果揭示了 N_2 -MQW 样品和 H_2 -MQW 样品中具有相同类型的局域化电子态, 但 N_2 -MQW 样品中存在更高的局域化能态密度; N_2 -MQW 和 H_2 -MQW 两个样品中存在相同类型的非辐射复合中心, 但 N_2 -

MQW 样品中非辐射复合中心的密度更高。时间分辨 PL 光谱进一步揭示了 N_2 -MQW 样品和 H_2 -MQW 样品中存在相同类型的非辐射复合中心和不同程度的 QCSE 效应, H_2 -MQW 样品中更弱的 QCSE 效应是其更短辐射复合寿命的根源, 也是其更高发光效率的根本原因。综上所述, 我们利用 PL 光谱分析发现, InGaN/GaN 多量子阱垒层生长载气中引入 H_2 , 能够在不改变量子阱物理结构的前提下有效降低阱内应力、提高界面质量, 应力降低显著减弱 QCSE 效应、提高了发光的效率; 界面质量的提高导致非辐射复合中心数量的减少, 进一步提高了量子阱的发光效率。故而, 阱内应力减小和界面质量提升是 InGaN/GaN 多量子阱发光效率提高的主要原因, 时间分辨 PL 光谱结果揭示了应力减小能够显著减弱 QCSE 效应, 是提升发光效率的主导原因。

References

- [1] Schulz S, Caro M A, Coughlan C, et al. *Physical Review B*, 2015, 91(3): 035439.
- [2] Lai C Y, Hsu T M, Chang W H, et al. *Physica Status Solidi B*, 2001, 228(1): 77.
- [3] Zhou X R, Lu T P, Zhu Y D, et al. *Nanoscale Research Letters*, 2017, 12(1): 354.
- [4] Zhou K, Ikeda M, Liu J P, et al. *International Conference on Optoelectronics and Microelectronics Technology and Application*, 2017, 10244: 102441X.
- [5] Ramírez-López M, Casallas-Moreno Y L, Pérez-Caro M, et al. *Physica Status Solidi C*, 2015, 12(4-5): 365.
- [6] Riemann T, Rudloff D, Christen J, et al. *Physica Status Solidi B*, 1999, 216(1): 301.
- [7] Christian G M, Schulz S, Hammersley S, et al. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2019, 58(SC): SCCB09.
- [8] Zeng F, Zhu L, Liu W, et al. *Journal of Alloys and Compounds*, 2016, 656: 881.
- [9] CAO Jie-hua, TIAN Ming, LIN Tao, et al(曹洁花, 田明, 林涛, 等). *Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析)*, 2020, 40(9): 2727.
- [10] Li Q, Xu S J, Xie M H, et al. *Europhysics Letters*, 2005, 71(6): 994.
- [11] Zhu Y D, Lu T P, Zhou X R, et al. *Applied Physics Express*, 2017, 10(6): 061004.
- [12] Zhu Y D, Lu T P, Zhou X R, et al. *Superlattices and Microstructures*, 2017, 107: 293.
- [13] Narukawa Y, Kawakami Y, Fujita S, et al. *Physical Review B*, 1999, 59(15): 10283.
- [14] Badcock T J, Ali M, Zhu T, et al. *Applied Physics Letters*, 2016, 109(15): 151110.

Fine Photoluminescence Spectroscopic Characterization of Interfacial Effects on Emission Properties of InGaN/GaN Multiple Quantum Wells in a Blue-Light Laser Diode Structure

WANG Tao^{1, 2}, LIU Jian-xun², GE Xiao-tian², WANG Rong-xin², SUN Qian², NING Ji-qiang^{2*}, ZHENG Chang-cheng^{3*}

1. School of Nano-Tech and Nano-Bionics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

2. Suzhou Institute of Nano-Tech and Nano-Bionics, Chinese Academy of Sciences, Suzhou 215123, China

3. Division of Natural and Applied Sciences, Duke Kunshan University, Kunshan 215316, China

Abstract In growing InGaN/GaN multiple quantum wells (MQWs) with the technique of metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD), the introduction of an appropriate amount of H₂ into the N₂ carrier gas for the growth of the GaN barrier layers can effectively improve the crystalline quality of the well/barrier interface and therefore enhance the luminescence efficiency of the quantum wells. In this work, we carried out detailed photoluminescence (PL) spectroscopic measurements on the luminescence properties of InGaN/GaN MQWs in the device structure for blue-light laser diodes, and the effects of H₂ in the carrier gas for GaN barrier growth on the MQWs, including the improved interface quality, the enhanced luminescence and the underlying mechanisms, have been investigated. The PL spectra of the InGaN/GaN MQWs acquired at room temperature reveal that the introduction of 2.5% H₂ in the N₂ carrier gas leads to increased emission efficiency by 75%, blue-shifted peak energy by 17 meV, and narrowed full width at half maximum (FWHM) by 10 meV. With the PL spectra measured at varied excitation powers, the quantum-confined Stark effect (QCSE) and band-filling effect on the emission performance of the MQWs have been distinguished, and the QCSE effect is found to dominantly determine the emission energy and width, which can be effectively reduced by the introduction of H₂. Upon the complete screening of the QCSE effect, the peak energy of the MQWs emission is located at 2.75 eV. The dependence of the PL spectra on temperature indicates that the introduced H₂ in the carrier gas can also reduce the carrier localization effect and narrow the energy fluctuation of the well potential, which leads to the narrowed PL spectral width in the samples grown with the mixture of H₂/N₂ carrier gas. The variation of the PL intensity with respect to temperature reveals that the physical nature of the nonradiative recombination centers at the interface is not influenced by the introduction of H₂, but the amount of these centers is greatly reduced, which accounts for the improved emission efficiency. The results of time-resolved PL measurements exhibit that the introduced H₂ in the carrier gas has no impact on the nonradiative recombination lifetime, but causes a shorter radiative recombination lifetime, which further confirms the influences of H₂ introduction on both QCSE screening and nonradiative recombination centers. The in-depth analyses of the PL results have

revealed that the introduction of H₂ in the N₂ carrier gas for GaN barrier growth can significantly improve the crystalline quality of InGaN/GaN MQWs and therefore enhance the light emission performance. This work has demonstrated PL spectroscopy as a powerful technique in characterizing the optical properties of semiconductor quantum structures, and the spectral findings could provide helpful insight into the growth of InGaN/GaN MQWs.

Keywords InGaN/GaN MQWs; Photoluminescence spectroscopy; Quantum-confined Stark effect; Carrier localization; Carrier recombination lifetime

(Received Jan. 30, 2021; accepted Mar. 29, 2021)

* Corresponding authors

关于《光谱学与光谱分析》调整审稿费收费标准的通知

尊敬的《光谱学与光谱分析》广大作者、读者: 本刊自 2018 年 7 月 1 日以后登记的稿件向投稿作者收取审稿费 200 元/篇, 在您投稿之前, 为免受经济损失, 请您必须考虑:

1. 没有创新的一般性稿件, 请您不要投稿。
2. 没有国家级基金资助的稿件, 请您不要投稿。
3. 不是光谱专业的稿件, 请您不要投稿。
4. 与其他文章重合率超过 10% 的稿件, 请您不要投稿。

所投稿件经初审通过后, 作者会收到缴纳审稿费的通知。请作者及时从我刊网站(<http://www.gpxygpx.com>)查询稿件是否处于交审稿费状态, 在收到通知后, 请及时缴纳审稿费; 如在 10 天之内没有收到您的审稿费, 被视为自动放弃, 本刊不再受理。交费后本刊开据增值税电子普通发票, 并传至作者提供的电子邮箱, 作者可自行打印。

联系电话: 010-62181070, 62182998

电子邮箱: chngpxygpx@vip.sina.com

感谢您多年来对《光谱学与光谱分析》的支持和厚爱!

《光谱学与光谱分析》期刊社

2018 年 6 月 30 日