國立交通大學

電機學院 電子與光電學程

碩士論文

藍光發光二極體不同量子井厚度的內部量子效率之研究

Study of Internal Quantum Efficiency and Characteristic for Blue LED by Different MQWs Thickness

1896

研究生:陳明權

指導教授:郭浩中 教授

鄭裕庭 教授

中華民國九十八年八月

藍光發光二極體不同量子井厚度的內部量子效率之研究 Study of Internal Quantum Efficiency and Characteristic for Blue LED by Different MQWs Thickness

研究生:陳明權 Student:Steven Chen

指導教授:郭浩中 Advisor: H.C. Kuo

鄭裕庭 Y.T. Cheng

國立交通大學 電機學院 電子與光電學程

碩士論文

A Thesis

Submitted to College of Electrical and Computer Engineering

National Chiao Tung University

in partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of

Master of Science

in

Electronics and Electro-Optical Engineering
August 2009

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十八年八月

藍光發光二極體不同量子井厚度的內部量子效率之研究

學生:陳明權 指導教授:郭浩中

鄭裕庭

國立交通大學 電機學院 電子與光電學程碩士班

摘 要

本論文實驗之藍光 LED,利用光致發光(Photoluminescence, PL)、電致發光 (Electroluminescence, EL)、以及 Advanced Physical Models of Semiconductor Devices (APSYS)模擬軟體等進行樣品的光學與電氣特性作分析。我們藉由改變輸入功率在於光致發光和電致發光的量測來探討低溫和室溫下影響 InGaN/GaN 之多重量子井發光二極體內部的量子效率 (Internal quantum efficiency, IQE)之物理特性。

在電致發光量測時,發現當在低溫高電流注入下,因低溫而造成電洞載子濃度以及遷移率下降,電洞在量子井中的分布不均勻,且因為電洞的遷移率下降,造成更多的電洞無法有效的注入到量子井中而累積在靠近p-GaN 的量子井中,另外也由於量子井中電洞的不足,造成更多的電子產生溢流現象,導致內部量子效率在高電流下會產生效率遽降的情況。

本論文實驗量測的 Sample 為三種不同量子井厚度的藍光 LED 分別為 1.5nm、2.0nm、2.5nm,分析其不同的發光特性,建立 LED 的等效模型,其可分為漏電流、輻射復合電流、非輻射復合電流、及高注入時產生的 overflow 電流。其中高注入的 overflow 電流亦引發了 Auger 效應,讓發光的效率隨電流增加而遽降。同樣的 Sample 量測光致發光(PL)的特性及 APSYS 模擬結果,也映證了 EL 的結果。

Study of Internal Quantum Efficiency and Characteristic for Blue LED by different MQWs thickness

student: Steven Chen Advisors: Dr. H.C. Kuo

Dr. Y.T. Cheng

Degree Program of Electrical and Computer Engineering National Chiao Tung University

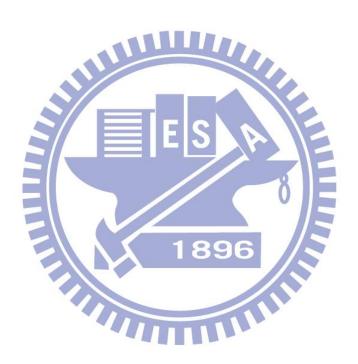
ABSTRACT

This experiment was use of photoluminescence (Photoluminescence, PL), electroluminescence (Electroluminescence, EL) and Advanced Physical Models of Semiconductor Devices (APSYS) simulation software such as samples for optical and electrical characteristics analysis. We change the input power for Photoluminescence and electroluminescence measurements to explore the impact on low temperature and room temperature for InGaN/GaN multiple quantum well LED internal quantum efficiency of the physical characteristics.

In the electroluminescence measurement, it was found that under high-current injected at low temperature. The hole concentration and mobility was trend down. The hole distribution was not uniform in the quantum well and because the hole mobility decreased, lead to more effective hole can not be injected into the quantum wells and the accumulated in close proximity to the p-GaN quantum wells. The quantum wells is also due to the lack of hole resulting in more electron overflow to p-GaN. Result the internal quantum efficiency droop on high current injection.

The experimental measurement of the Sample for the three different quantum well

thickness for the blue LED, respectively, 1.5nm, 2.0nm, 2.5nm, to analyze the different light-emitting properties, the establishment of the equivalent LED model, which can be divided into the leakage current, Radiation composite current, non-radioactive compound current, and high injection current caused by the overflow. The high-injection current was lead to Auger effects that the efficiency droop with the current increase. The Photoluminescence (PL) and APSYS simulation result also same as Electroluminescence.



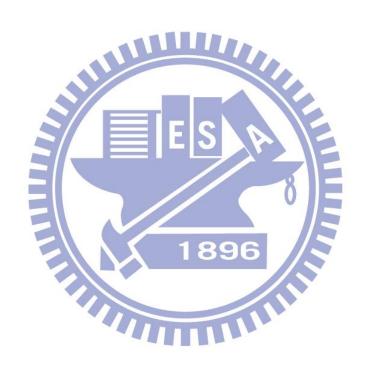
在交通大學的兩年研究所生涯中,首先要感謝郭浩中老師及鄭裕庭老師的指導,使我從毫無頭緒之中逐漸找到方向,也獲得了不少的知識,也特別感謝博士班邱清華學長提供研究方面的意見和幫助,以及柯智淳同學帶領操作實驗器材,還有實驗室裡的學弟妹小昕、瑋婷協助 EL、PL 實驗量測及執行 APSYS 模擬,才能順利完成此篇論文。感謝實驗室所有的學長學弟妹們,每當我做實驗沒空吃飯時,總是會有人會幫忙買便當,在實驗做到很辛苦時,還是有人關心。最後,我要感謝親愛的內人對我的包容與支持,使我無後顧之憂的專心作研究,在此和我的家人一起分享畢業的喜悅。



a 錄

中文提要	i
英文提要	ii
誌謝	iv
目錄	
圖目錄	vii
第一章 緒論	
1.1 氮化物基底之發光二極體的發展	1
1.2 研究動機	2
第二章 發光效率類別	
2.1 內部量子效率 Internal quantum efficiency	/ (IQE)4
2.2 光萃取效率 Light extraction efficiency	(LEE) 及外部量子效率
External Quantum Efficiency (EQE)	4
	8 IE
第三章 樣品及實驗器材介紹	
3.1 樣品的結構和製作流程簡介	6
3.1 /永田山(1)、田(中) - 秋(下)(八) 王(田) /	_
3.2 光致發光 Photoluminescence (PL)	7
3.3 電致發光 Electroluminescence(EL)	8
第四章 實驗部分及 LED 等效模型	
4.1 PL 量測結果	12
4.2 EL 量測結果	15
4.3 PL 與 EL 效率比較	17
4.4 APSYS 模擬結果	18
4.5 LED 等效模型	19

			锋(droop)的原因分	
5.2	光譜隨量子	井厚度降伯	氏或注入電流增;	加之藍移現象探
討				38
第六章 糸	結論			41
參考文獻				43



圖目錄

圖	3.1 様	&品結構圖	9
圖	3.2	藍光 LED 製造流程簡圖	9
圖	3.3	IQE 量測系統簡圖	10
圖	3.4.1	低溫 EL 量測系統照片	10
圖	3.4.2	低溫 EL 量測系統簡圖	11
圖	4.1 I	PL 量測之輸入功率對 IQE 之關係	23
圖	4.2.1	不同量子井厚度之 I-V 關係圖	24
圖	4.2.2	不同量子井厚度之 I-V(80K 與 300K)比較圖	25
圖	4.2.3	不同量子井厚度之 EL 變溫及不同注入電流下(0.1mA、1m/	Α、
		20mA)的光強度變化	.26
圖	4.2.4	量子井厚度 1.5nm 之發光效率圖	27
圖	4.2.5	量子井厚度 2.0nm 之發光效率圖	27
圖	4.2.6	量子井厚度 2.5nm 之發光效率圖	28
圖	4.2.7	不同量子井厚度之80K以及300K之發光效率比較圖	28
圖	4.2.8	不同量子井厚度之發光效率 3-D 圖	29
圖	4.2.9	effective localized states 及 defect states 示意圖	29
圖	4.2.10	D 高順向偏壓電場強度下之載子漏電示意圖	30
圖	4.2.1	1 低溫下(80K)不同量子井厚度之發光效率與偏壓電場強度之	と示
		意圖	30
圖	4.2.1	2 室溫下(300K)不同量子井厚度之發光效率與偏壓電場強度	复之
		示意圖	31
圖	4.3	EL 與 PL 之發光效率趨勢圖	31
圖	4.4.1	1.5nm 不同的量子井厚度之室溫能帶圖及輻射復合分	广佈

		圖	32
圖	4.4.2	1.5nm 不同的量子井厚度之低溫能帶圖及輻射復	合分佈
		圖	33
圖	4.4.3	量子井內載子濃度分佈圖	34
圖	4.4.4	發光效率降低之因素	34
圖	4.5.1	LED 之等效模型	35
圖	4.5.2	LED 等效模型之小電流公式模擬結果	35
圖	4.5.3	LED 等效模型之大電流公式模擬結果	36
圖	4.5.4	LED 等效模型模擬 I-V 曲線結果	36
圖	5.1.1	高注入電流下量子井內(a)室溫及(b)低溫之電子電	洞分佈
			39
圖		量子井內(a) 低注入電流及(b)高注入電流之載子流	動示意
		<u> </u>	39
圖	5.2.1	不同量子井之發光頻率圖及注入電流增加之藍移現象	40
圖	5.2.2	相同電流注入下不同量子井厚度之平均能帶間隙圖—量	:子井厚
	,	度越薄之光譜藍移現象	40

第一章、 緒論

1.1 氮化物基底之發光二極體的發展

近幾十年來,三族氮化物如氮化銦(InN)、氮化鎵(GaN)、和氮化鋁(A1N)合金成為一個寬能帶間隙材料,在光電半導體元件中扮演一個重要的角色[1-7],其能帶範圍從直接帶隙為 0.7eV 的 InN,到 3.4eV 的 GaN,甚至於 6.2eV 的 A1N,發出的光波長範圍從紅、綠、藍、到深紫外線。這種現象不同於其他三五族材料為基礎的砷化鎵(GaAs)、砷化鋁(A1As)、砷化銦(InAs)、磷化鎵(GaP)等相關的合金。

Pankove 等人[8]用三族氮化物材料與金屬結構在 1972 年製作第一個藍色發光二極體後,相關的研究正在不斷的進行。然而,進展一直受限,因為 n 型高濃度的天然缺陷(通常被認為是空缺和雜質等殘留造成的貢獻),使得導電率降低,加上磊晶技術尚未改善。直到 20 世紀 80 年代末,H. Amano 等人[9,10]。發現應用低溫成長緩衝層和發展低能量的電子束相互作用技術(Low-Energy Electron Beam Interaction, LEEBI),以獲得更好的 GaN 磊晶和導電率的 p 型 GaN,因而引起了一項新的研究熱潮。最後,第一個建立在 GaN 基底的藍光 LED 實現,這大大提高了元件的性能。但是 p 型 GaN 的受體載子濃度仍然太低,採用這些材料仍然是不可靠的。在此之後,由

中村等人在一個氮的環境中退火 (≧750°C)而得更好的 p型 GaN 高導電率材料,隨著這些技術的發展,全彩色半導體照明時代已經現實了。

1.2 研究動機

InGaN / GaN 多量子井(MQW)發光二極體具有不同的 InGaN 量子井厚度的製造和特性。研究發光效率與電流密度揭示了各種不同的效率遽降的行為。結果發現其可能是因增加量子井厚度的量子井結構。另一方面,相對內部量子效率(IQE)的測量表明,更薄的量子井結果造成更高的 IQE 由於更大的電子和電洞分佈函數的空間重疊。

InGaN/GaN基底的高亮度發光二極體(LED)[11~14],因為它們應用在標誌,背光和一般照明。許多努力已經改善了材料品質的光萃取效率和金屬半導體歐姆接觸。此外,InGaN/GaN發光二極體的發光效率已在過去幾年中改善。隨著LED技術越來越成熟,在於發光二極體發出的光通量於高電流密度下,一個眾所周知的基本問題必須加以克服,即效率"遽降(droop)",在此研究InGaN/GaN基底藍光LED的各種量子井厚度對發光效率的影響。

發光二極體其效率下降所造成的非輻射載子損失的機制,在低電流時較小,但在高注入電流時,輻射復合遽降其物理起源仍然有爭議,有幾個不同的機制,如載子在主動區的漏電流[15~17]、Auger效應[18]、接面高電流之熱效應[19]、和載子跳脫 localized state到其他不發光的較高能階[20,21]。不過,目前尚不清楚高電流導致效率 droop 的原因,在這研究中,我們討論 EL 在不同溫度下(80K~300K)變電流的內部量子效率,以及PL之不同激發功率在低溫(10K)與室溫(300K)下,我們能夠獲得 IQE 的值,再配合 APSYS 模擬,找影響效率的機制。

第二章、 發光效率及類別介紹

在本章中,我們定義,內部量子效率(IQE),光萃取效率(LEE), 和外部量子效率(EQE)。

2.1 內部量子效率 -- Internal quantum efficiency (IQE)

理想的 LED 之主動區一個電子注入時發出一個光子,其效率為 100%,但實際上一定會有損耗,因此,內部量子效率的定義為:

$$\eta_{\rm int} = \frac{$$
 主動區內每秒發光之光子數目 $}{$ 每秒注入 LED 之電子數目 $}= \frac{P_{\rm int} \; / \; h \;
u}{I \, / \; e}$

Pint 是主動區光子發光的光功率, I 是注入電流。

2.2 光萃取效率 Light extraction efficiency (LEE) 及外部量子效率 External Quantum Efficiency (EQE)

在一個理想的發光二極體,所有發光的光子全數排放到自由空間。然而,在一個真正的發光二極體,並非所有的光子會全數排放到自由空間。有些可能永遠不會發散到自由空間。這是由於幾個可能的損失的機制。例如,輕微可吸收光的封裝材料,及光子內反射被困在內部的現象,皆降低了發光的能力。

萃取效率可能是一個嚴重限制高性能發光二極體的重要因素。 一般要提高萃取效率超過 50 %而不訴諸高精密和昂貴的設備是相 當困難的。根據萃取效率的定義為:

$$\eta_{
m extraction} = rac{$$
每秒發光光子到自由空間之數目 $}{$ 主動區內每秒發光之光子數目 $} = rac{P/h
u}{P_{
m int}/h
u}$

其中P是光功率排放到自由空間。

考慮 GaN 到大氣的折射率 (2.5),而因光線有全反射臨界角,假設出光從側壁和背面被忽視,大約只有 4 %的內部光線可以從表面散發出來。而內部全反射之光線反射到基板,並多次反射,部份會被主動層再吸收,除非它越過側壁。但是,改變成粗糙的表面對光萃取效率有很大的進展。

最後,外部量子效率(EQE)的定義為:

$$\eta_{\mathrm{EQE}} = \eta_{\mathrm{int}} \times \eta_{\mathrm{extraction}}$$

$$\eta_{ ext{EQE}} = rac{$$
每秒發光光子到自由空間之數 $}{$ 每秒注入 $ext{LED}$ 之電子數 $} = rac{ ext{P}/ ext{h}
u}{ ext{I}/ ext{e}}$

從上述方程,我們可以知道,EQE 取決於 IQE 和萃取效率,因此,改善萃取效率和 IQE 對 LED 發光效率有重要影響。

第三章、 樣品及實驗器材介紹

3.1 樣品的結構和製作流程簡介

本研究樣品是在藍寶石基底的上方,用金屬有機化學氣相沉積 (MOCVD)成核層成長於 20nm 厚的 GaN 層,隨後再成長 4 微米 厚的 n 型 GaN 緩衝層。在緩衝層的上方成長十對 InGaN/GaN 多量 子井主動層 InGaN 有三種厚度,分別 1.5nm、2.0nm 及 2.5nm,其 改變不同的量子井厚度瑜不同的成長時間,而障壁層 GaN 厚度是固 定在 12nm。之上再成長薄的 (10 nm) 鎂摻雜的 p型 AlGalnN,之 後成長在多量子井上方的 D型的 AlGaN / GaN (10nm/2 nm) 作為 電子阻擋層 Electron-Blocking Layer(EBL)。最後,鎂摻雜的 p 型 GaN 熔覆層 (120nm) 在最上層,其摻雜大量鎂以形成歐姆接觸。 LED 芯片為(350 * 350 平方微米),上方利用標準 LED 製程製作 透明電極層。接線點電極層分別用鎳/金和鈦/鋁/金之金屬化摻雜用 電子束蒸鍍提供 D 型和 N 型接點之歐姆接觸。製造流程簡圖如圖 3.1,詳細 LED 樣品結構圖如圖 3.2。這項研究的目的在理解效率下 降與量子井的厚度之間的關係。

此量測的樣品為未封裝之 LED 裸晶,使量測的值接近內部量子 效率的值。

3.2 光致發光 Photoluminescence (PL)

光致發光光譜已被用來檢測材料的光學特性,因為它無界面 (n-GaN,p-GaN)損耗的特點。PL 發出的光線是由光學激發,激發之光源為雷射,其波長略大於 LED 發光頻率,當量子井吸收雷射的能量,這將刺激電子及電洞分離至導帶及價帶。然後,當載子在激發態返回到初始狀態時,載子復合會發光出光子,其能量相當於能源之間的差異和激發態的初始狀態,因此,我們可以從 PL 光譜觀察到發光的峰值及能帶間隙。

至於光致發光光譜的光學測量研究材料的特性,首先,當我們分析一個新的化合物半導體,我們可以利用光致發光測量知道新材料的能帶間隙。其次,光致發光強度的信號有助於計算材料中輻射複合的數量。因此,光致發光測量可用於了解材料的品質和復合的機制。而載子復合過程大致發生在兩方面,分別為輻射複合和非輻射復合。我們可以認同輻射復合較易在低溫下用光致發光測量,因為它不會受外加電流而加熱的影響。如果有一些缺陷存在於半導體能帶間隙中,他們還可能有助於輻射復合進程。因此,我們可以觀察多個發光的PL光譜峰值和強度與貢獻於輻射復合相關聯。

我們安裝的 PL 系統示意圖如圖 3.3,激發源是一個多模態和

非偏振光氦編雷射操作在 400 nm 及 60mW 之下、76MHz 的 pulse 打入樣品。經過 3 個反射鏡反射的雷射集中的鏡頭,焦距為 5cm, 0.1mm 直徑的發光信號收集鏡頭。光線經過光譜儀(Jobin-Yvon Triax-320)接收發光頻譜及強度。為了防止雷射與 PL 光譜耦合, 我們使用 long pass filter 在光入口處。所有樣本量測均放置在封閉循環低溫恆溫器上,其溫度控制在 10K 以及 300K。

3.3 電致發光 Electroluminescence(EL)

因 PL 量測方式與實際使用時為外加電流注入原理不同,故使用 EL 來量測 LED 元件較接近元件實際特性。EL 量測儀器包括電流源 Kiethley 238 ,以及用顯微鏡觀察樣品圖案和電極表面,於電流源輸入探針接觸調整觀測用,三個軸向的光纖檢測光信號,連接至(Jobin-Yvon Triax-320)接收發光頻譜及強度。 以及低溫的冷卻系統,使用液氮冷卻,溫度可控制在80K~300K範圍。圖 3.4.1 及 3.4.2 顯示低溫電致發光量測系統示意圖。

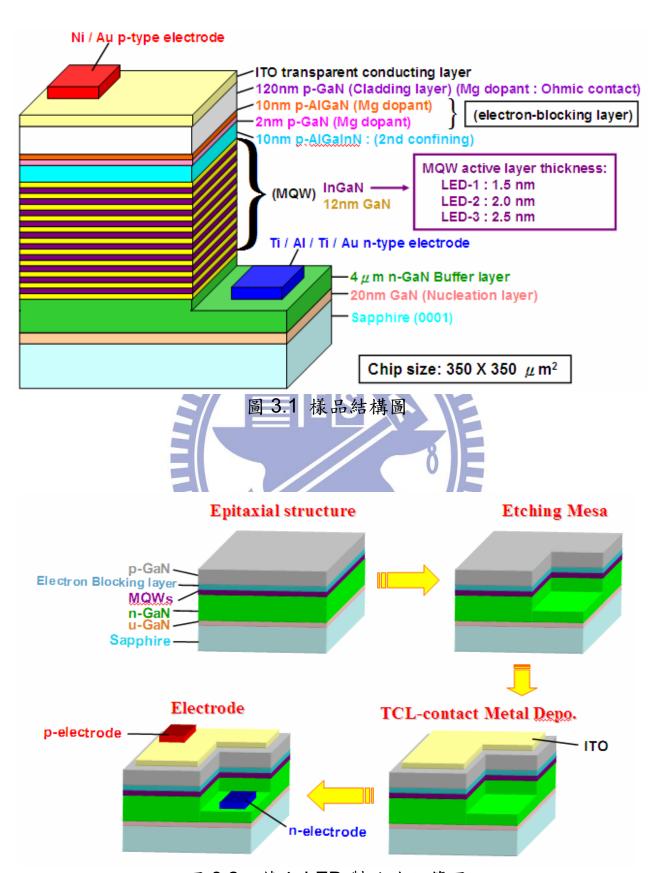


圖 3.2 藍光 LED 製造流程簡圖

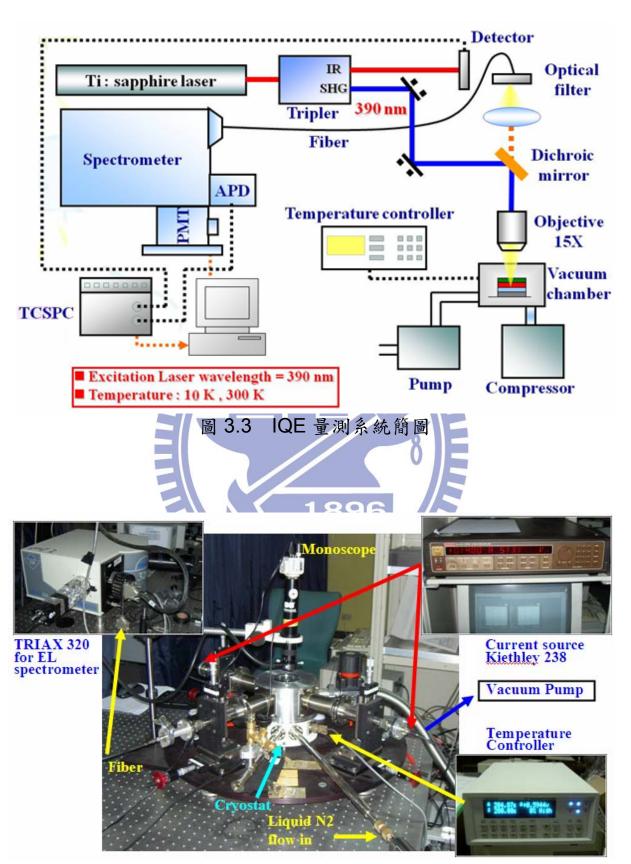


圖 3.4.1 低溫 EL 量測系統照片

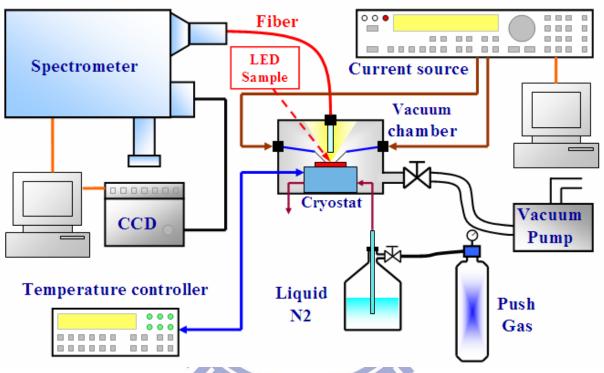


圖 3.4.2 低溫 EL 量測系統簡圖

第四章、 實驗部分及 LED 理論模型

4.1 PL 量測結果

PL之 IQE 的定義,由室溫及低溫下所量測得到的 PL 發光強度值[22],由下列等式計算得到內部量子效率,取最大的點定義其效率為 100%,因此可繪出相對效率強度圖。而內部量子效率等式為:

$$\eta_{\text{PL}} = C * \frac{I_{\text{PL}} / E_{\text{PL}}}{I_{\text{EX}} / E_{\text{EX}}}$$

其中 I_{PL} 為收集到的光子強度, I_{EX} 為激發的光子強度, E_{PL} 為收集到的光子能量, E_{EX} 為激發的光子能量, C 是常數主要是雷射注入載子的效率。

在IQE 效率圖中,一般最高點發生於低溫下,因低溫會凍結非輻射復合效應而使得發光效率增加,然而IQE 又隨注入載子濃度增加,使得電場強度升高因而引發效率下降,這部份會在第五章高電流之效率 droop 效應探討,因此假定最高峰值的 PL 效率於最低溫度為 100%是可以理解的,因我們無法精密的測量出發光強度的絕對值,只能依照得到的值,計算相對的效率比率。

為了避免激發雷射被 GaN 吸收,故使用 400nm 的波長來激發樣品,激發功率從 0.1 到 60mW,並計算注入載子濃度約為 2.0 × 10¹⁵

至 1.6 × 10¹⁸ cm⁻³ 利用方程如下:

$$carrier\ density = \frac{P}{(hv)^*\phi^*d_{active}^*f} * \exp(-\alpha_{GaN}d_{GaN}) * (1 - \exp(-\alpha_{InGaN}d_{active}))R * loss_{objective}$$

其中 p 是激發功率,hv 是入射光的能量, ϕ 是雷射光斑大小,f 是雷射光脈衝頻率, d_{active} 是主動層厚度, α_{GaN} 是 GaN 的光吸收率, α_{InGaN} 是 InGaN 的光吸收率,R 是樣品表面的反射率,並 $Loss_{objective}$ 是傳輸的損耗。

在圖 4.1 顯示,IQE 在 10K 時我們可以看到,小激發功率下 IQE 達到最大。隨著注入載子密度增加,IQE 有下降的趨勢。但在 300K 低注入載子密度下,IQE 曲線隨注入載子增加而明顯增加,而在更高載子注入時 IQE 才會降低,此結果表明 IQE 在 10K 比 300K 更容易飽和,詳細的物理機制有三種可能來解釋此現象:

(1) 非輻射復合中心:

在 GaN 基底的 LED 有大量的錯位密度存在於元件中,其 缺陷將造成非輻射復合。一般來說,非輻射中心會在低溫時抑 制。在此實驗,300K 時當注入載子增加,非輻射復合正在逐步 飽和,因此,輻射復合主導發光效率,因而提高 IQE,在 10K 曲線則沒有明顯的增加。

(2) 庫侖屏蔽效應(Coulomb screening effect):

一些研究小組報告說,內部電場中存在於氮化銦鎵/氮化鎵 量子井結構中,這一內部電場使得量子井的能帶傾斜,並導致 電子和電洞在量子井分佈空間的分離[23],從而減少波函數重疊 比率,亦被稱為量子局限史托克效應 (Quantum Confined Stark Effect; QCSE)。其發生原因為 LED 在磊晶時,其多量子 井 InGaN/GaN 異質結構中,因晶格常數的不匹配而產生應 力,此應力造成壓電場而使量子井接面產生極化電荷,使得能 帶傾斜因而發光能隙變小,當電流開始注入時,部分在量子井 接面的極化電荷便會被注入的電子遮蔽,使得能帶傾斜情況變 的較為輕微,於是發光的能隙變大,而當電流密度增加時,極 化電荷遮蔽的現象也越顯著,此限像亦與電流增加而光譜藍移 情況有關。

(3) 能帶填充效應(band filling effect):

半導體的價電帶、導電帶為一近似拋物線的形狀,低能階的能 態密度較低,高能階的能態密度較高,因此當電流注入時,電 子先填較低能階之能態,隨著電流密度的增加,繼續往高的能 階能態填,因而使得能帶平均間隙增加,輻射復合機率因此而 下降,這也是造成光譜藍移的現象。

4.2 EL 量測結果

在EL量測前,從I-V曲線可發現,二極體在相同的注入電流下,低溫的順向電壓比常溫高(如圖 4.2.1),這是因為 p-type 的鎂受體載子因低溫凍結效應造成電洞的濃度降低,連帶影響其遷移率下降 [24~27],以電氣特性來看可視為輸入串聯組抗 Rs 升高。因此量子井厚度愈厚或溫度愈低則 Rs 愈大。

在注入電流為 60mA 為例(如圖 4.2.2), 1.5nm 的量子井厚度之電場電壓在室溫(300K)下為 3.599V(如下表), 在 80K 下為 5.226V,相差 1.627V。但 2.5nm 的量子井厚度之電場電壓在室溫(300K)下為 3.792V,在 80K 下為 5.965V,相差 2.173V。由此可得知量子井厚度愈厚 Rs 亦愈大。

60mA	300K	80K	相差值
1.5nm	3.599V	5.226V	1.627V
2.0nm	3.643V	5.504V	1.861V
2.5nm	3.792V	5.965V	2.173V

在 defect 密度相同下,較薄的量子井注入載子時其非輻射復合

中心數量較少,所以較容易飽和,因而其最大發光強度發生在較高的溫度,此現象與效率遽降的時機有關(圖 4.2.3)。不同量子井之發光效率(參考圖 4.2.4~4.2.6)。在小電流注入下,較寬的量子井在室溫時的發光效率較差,但是在較低溫時,效率會大於較窄的量子井(圖 4.2.7),其原因在於低溫時量子井之非輻射復合中心(Non-radiative recombination center)凍結,而較寬的量子井之漏電流較小,載子也較容易侷限在其中,而增加輻射復合機率。室溫時較寬的量子井之非輻射復合中心較多,消耗更多的載子因而使發光效率降低(參考圖 4.2.8 之 3-D 立體效率圖)。

在低溫小電流下量子井內的載子較容易侷限在較低能階的 localized states(如圖 4.2.9),當溫度開始上升,在 localized states 的載子獲得較多的能量,增加了跳到不發光能階的 defect state 機率。

在室溫高電流下,其內部電場強度較大,使得能帶傾斜因而量子井內的載子較容易跳脫出來(如圖 4.2.10),即為溢電流(overflow current)因而降低輻射復合的效率,此為效率遽降(droop)現象 [28~30],從 I-V 曲線來看,降低溫度也會讓電場強度變大,所以當溫度降低,使效率開始下降的注入的需要電流也愈小(圖 4.2.4~

4.2.6) •

在圖 4.2.11 及 4.2.12 中我們看到一個現象,就是在低溫下小電流時,較厚的量子井有較高的發光效率,但隨著電流增加其衰退程度較大。在室溫下小電流時反而是較薄的量子井有較高的發光效率,隨著電流增加,其效率之 droop 現象卻愈早,其原因在下一章節探討。

4.3 PL 與 EL 效率比較

圖 4.3(a) 顯示 EL 發光效率和隨注入電流變化在室溫和低溫曲線圖,圖(b)為 PL 發光效率隨機發功率在低溫和室溫曲線圖。我們可以看到,低注入時光致發光效率高於電致發光效率,其結果表明,較多的漏電流發生的電致發光载子注入量子井前,可能會被 n 型 GaN 的非輻射復合中心侷限。但在使用光致發光之雷射為激發電子和電洞對發生在量子井內吸收。進一步增加注入載子密度, PL 和 EL 效率降低是由於載子從量子井溢流,我們發現,在高注入載子濃度下發光效率下降更迅速,這可以歸因於注入載子濃度增加而順向電壓場亦增加。結果表明,載子擺脫量子井並溢流至 P-GaN。雖然 EL 及 PL 有些許不同,但其效率趨勢是相似的,此實驗也有因低溫

之溫度不同也有些差別(EL 為 80K, PL 為 10K)。

因光致發光之原理與實際使用時不相同,因而用來探討材料的物理特性,而電致發光較接近實際操作,考慮到整個元件的電氣特性,因而利用 EL 結果來探討 LED 的等效模型。

4.4 APSYS 模擬結果

我們想知道載子濃度分佈在低、室溫下不同的注入電流,因此 我們利用 APSYS 模擬樣品結構。圖 4.4.1 及 4.4.2 顯示模擬量子井 的能帶圖及輻射復合分佈圖,可以看到室溫下 n-GaN 到 p-GaN 的 能帶圖較平緩,而低溫時較傾斜,較厚的量子井又比薄的傾斜,結 果都與 PL 及 EL 一致。而輻射復合區域分佈在室溫時較均勻,在低 溫時較集中在靠近 p-GaN 端,此現象顯示在低溫下,電洞的濃度較 低(圖 4.4.3), 遷移率亦較低, 而電子似乎受到影響較小(質量較小)。 因此電洞只要進到量子井內,很快就會與電子復合,因而很少的電 洞會流到靠近 n-GaN 端復合。多餘的電子注入到 p-GaN,因而又消 耗更多的雷洞,因此,結果驗證了電致發光效率在較低的溫度下降 更迅速。圖 4.4.4 顯示能帶圖在高注入電流下量子井在低和室溫的 示意圖,高注入電流下,使上導帶的 n-GaN 端的能階高於上導帶的 p-GaN。這使得電子利於流動到 p-GaN 端的能階。能帶傾斜造成更 多的載子從量子井溢出,使發光效率快速下降在較低的溫度下。

4.5 LED 等效模型

我們使用 Shuji Nakamura 和 Steven P. Denbaars 等[31]提出的等效電路模型為基礎。模型中定義四個組成部分,分別是:

- (1) 漏電流(leakage current)-I_{R1}
- (2) 輻射復合電流(Radiative Current)-I_{D1}
- (3) 非輻射復合電流(Non-radiative Current)-ID2
- (4) 溢電流(overflow current)—I_{R2}

建立等效電路模型如圖 4.5.1。電阻 R₁ 代表漏電流的路徑,如晶體 缺陷及樣品表面,此項與材料特性及製造技術有關。兩個二極體, 二極體 D₁ 負責發光之輻射復合電流。二極體 D₂ 負責不發光之非輻 射復合電流,這種復合發生通過非輻射複合中心 (NRCs),且並不 會產生光子發光的波長範圍內,R_S為 D₁ 及 D₂ 的串聯電阻。這兩種 類型的復合不僅限於量子井內或其附近的區域。另一個電阻 R₂結合 齊納二極體(D₂)代表載子溢電流路徑,而此路徑在較大注入電流下 到達一定的電場偏壓 D₂ 才會導通。這部分為高電流造成效率下降的 原因,即是電子不與電洞復合而直接跳到 p-GaN 端。

接下來我們對β定義如下:

$$\beta = \frac{I_{\rm D1}}{I_{\rm D1} + I_{\rm D2}} = \frac{r_{\rm R}}{r_{\rm R} + r_{\rm NR}} \tag{1}$$

其中「R是輻射復合率和「NR是非輻射復合率。

電致發光效率定義為輻射復合電流除以總注入到 LED 電流:

$$\eta = \frac{I_{\rm D1}}{I_{\rm T}} = \beta \frac{I_{\rm D}}{I_{\rm T}} \tag{2}$$

其中 $I_D = I_{D1} + I_{D2}$ 和 $I_T = I_D + I_{R1} + I_{R2}$ 。

利用歐姆定律和二極體方程式,可得到下列等式:

$$I_{R1} = \frac{V}{R_1}$$

$$I_{D} = I_{D0} \left[\exp\left(\frac{qV}{nkT}\right) - 1 \right]$$
(4)

$$V_1 = V - I_D R_S \tag{5}$$

$$V = V_Z + I_{R2}R_2 \tag{6}$$

V 是注入電壓, I_{DO} 是二極體的飽和電流, q 為電子電荷量, n 是理想因素, k 是波茲曼常數, T 是絕對溫度。

(4)

將方程(3)、(4)、(5)、(6)聯立消去 V,再將結果代入等式(2), 可列出下式:

$$\eta = \beta(T) \left[\frac{1}{I_D} \frac{nkT}{q} \ln \left(\frac{I_D}{I_{D0}} + 1 \right) \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) + R_S \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) - \frac{V_Z(T)}{I_D R_2} + 1 \right]^{-1}$$
(7)

當小電流注入情況下,Dz為開路,等式(7)重新整理成等式(8):

$$\eta = \beta(T) \left[\frac{1}{I_D} \frac{nkT}{qR_1} \ln \left(\frac{I_D}{I_{D0}} + 1 \right) + \frac{R_S}{R_1} + 1 \right]^{-1}$$
 (8)

假設 $\beta=1$,理想情況下, $R_1=\infty$, $R_S=0$,以及假設 $R_S=30\Omega$ 及 $R_1=5.5K$,在低溫(80K)及室溫(300K)的值代入等式(8)可得到圖 4.5.2 的曲線。當溫度上升、或是串聯電阻增加、或是漏電電阻降低,均會使發光效率下降。而實際上較厚的量子井其 R_1 及 R_S 均增加,根據等式得到 R_1 的效應較大,其發光效率較高,與實驗結果相符。 在大電流注入的情況下, D_Z 開始作用,忽略漏電流效應,等式(7) 重新整理成等式(9):

$$\eta = \beta(T) \left[\frac{1}{I_D} \frac{nkT}{qR_2} \ln \left(\frac{I_D}{I_{D0}} + 1 \right) + \frac{R_S}{R_2} - \frac{V_Z(T)}{I_D R_2} + 1 \right]^{-1}$$
 (9)

假設 β =1,理想情況下, R_2 = ∞ , R_s =0,以及假設 R_s = 30Ω 及 R_2 = 300Ω , V_z =1.2V 之低溫(80K)及室溫(300K)的值代入等式(9)可 得到圖 4.5.3 的曲線。當溫度下降、或是 R_s 串聯電阻及 R_2 減少、或是 V_z 增加,均會使發光效率衰退幅度加大。若固定 V_z 及溫度,實際上較厚的量子井其 R_2 及 R_s 均增加,則其發光效率衰退幅度較

少,亦與實驗結果相符。

由 I-V 曲線(圖 4.2.1)之 Turn on 電壓及電流的值可計算出:300K 時量子井厚度 1.5nm 之 R1 為 5.464K、2.0nm 之 R1 為 5.510K、 2.5nm 之 R1 為 5.527K, 而在 80K 時量子井厚度 1.5nm 之 R1 為 6.989K、2.0nm 之 R1 為 7.137K、2.5nm 之 R1 為 7.736K。再由圖 4.2.4~4.2.6 之各溫度之下,效率之最高值的電流對應 I-V 曲線所得 到的電壓值,為 Vz之開始導通電壓,300K 時量子井厚度 1.5nm 之 V₇為 2.9041V 於 5mA 下、2.0nm 之 V₇為 3.3086V 於 10mA 下、 2.5nm 之 Vz 為 3.792V 於 60mA 下,在 160K 時小電流之效率才有 先上升再下降的轉折點,因此在 160K 時量子井厚度 1.5nm 之 Vz 為 3.102V 於 0.5mA 下、2.0nm 之 Vz 為 3.4323V 於 2mA 下、2.5nm 之 Vz為 3.874V 於 10mA 下。由此可知 Vz 因量子井厚度較厚而較 大,但是在常温及低温下差别並不大,原因是在較低温度下,較小 的電流就可達到 Vz的電場強度,使得載子在量子井中開始發生穿透 現象,而造成效率產生 droop 的現象。

以量子井厚度 1.5nm 為例,圖 4.5.4 為利用 I-V 圖及發光效率 圖所約略計算出 R_S 約為 30Ω 左右,及 R_Z 約在 300Ω 左右,代入等 校電路中所繪出的 300 K 及 80 K 的 I-V 圖,証明此等校電路之假設是

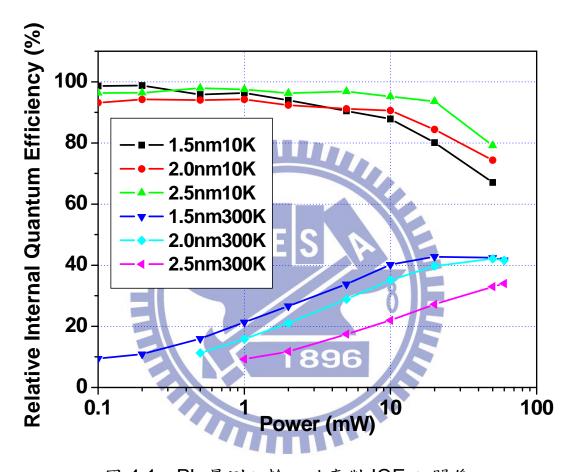


圖 4.1 PL 量測之輸入功率對 IQE 之關係

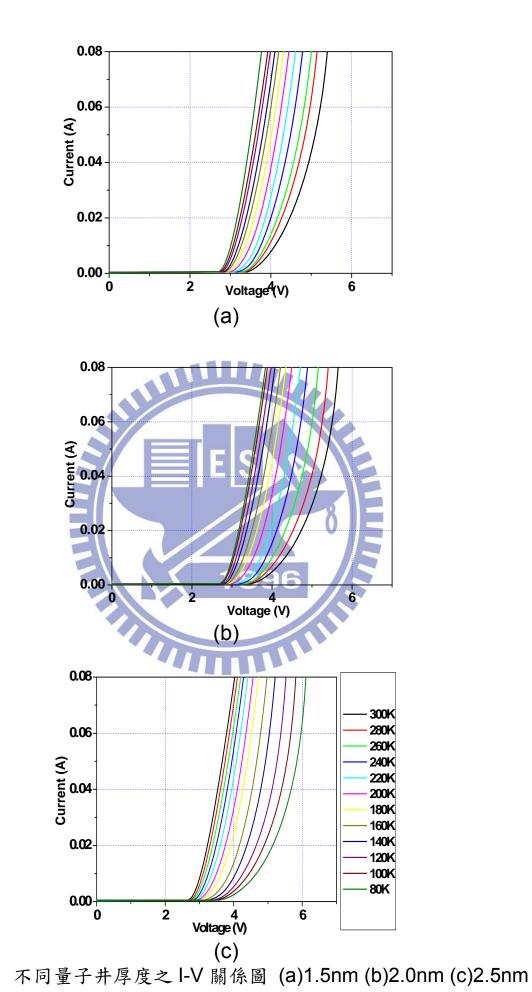


圖 4.2.1

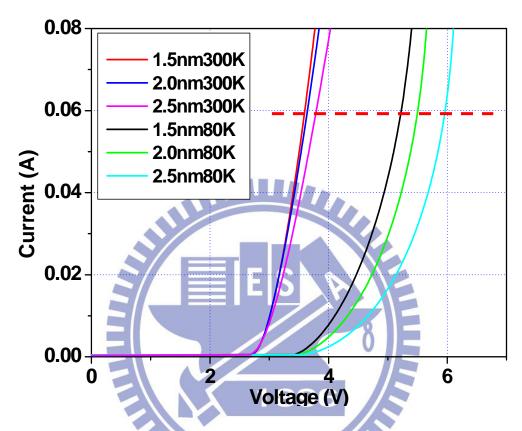


圖 4.2.2 不同量子井厚度之 I-V(80K 與 300K)比較圖

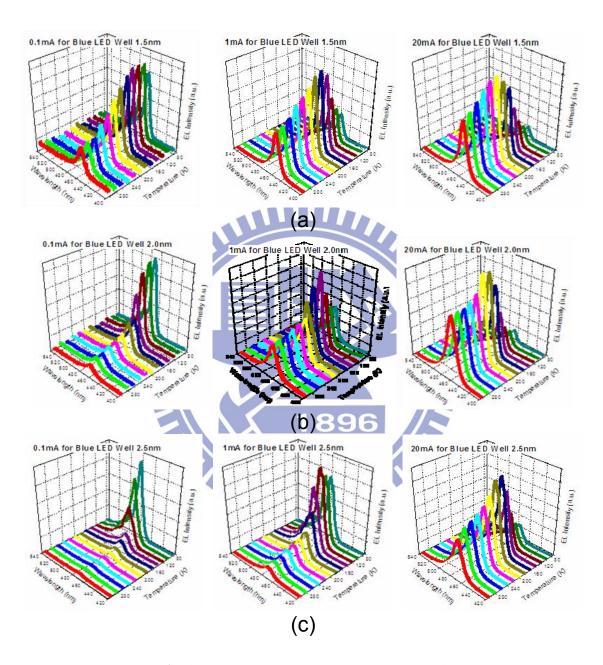


圖 4.2.3 不同量子井厚度之 EL 變溫及不同注入電流下(0.1mA、1mA、20mA)的光強度變化(a)1.5nm (b)2.0nm (c)2.5nm

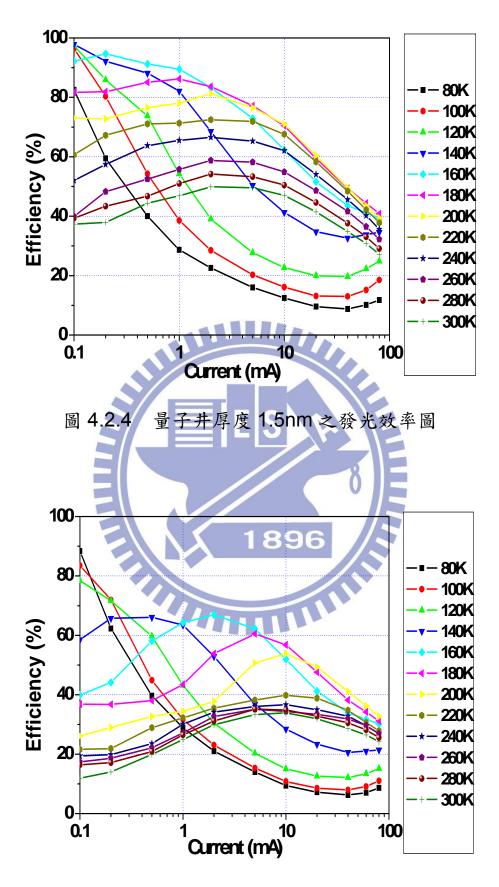


圖 4.2.5 量子井厚度 2.0nm 之發光效率圖

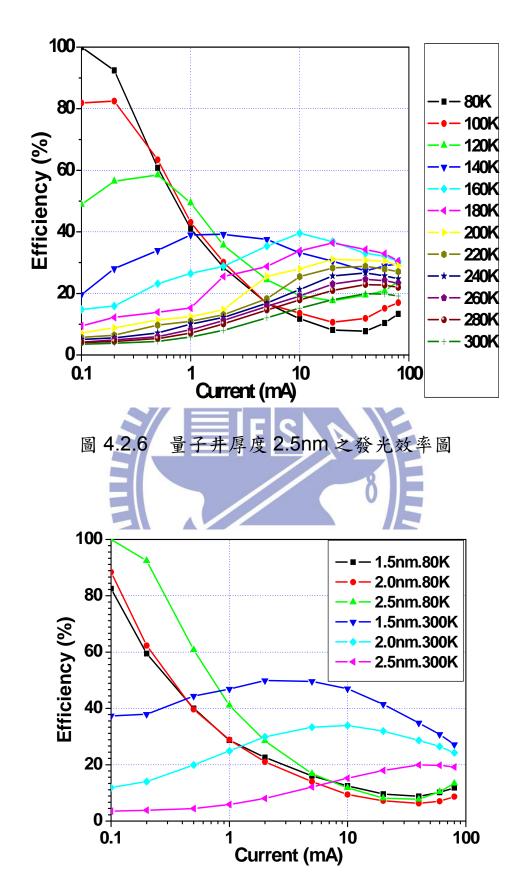


圖 4.2.7 不同量子井厚度之 80K 以及 300K 之發光效率比較圖

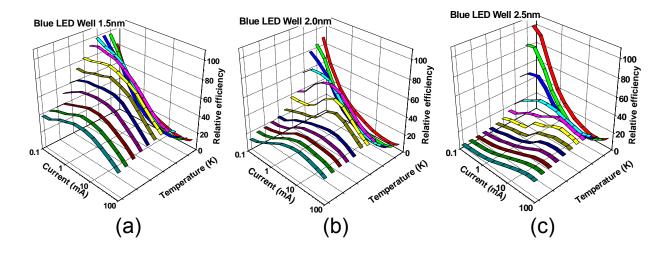


圖 4.2.8 不同量子井厚度之發光效率 3-D 圖 (a)1.5nm (b)2.0nm (c)2.5nm

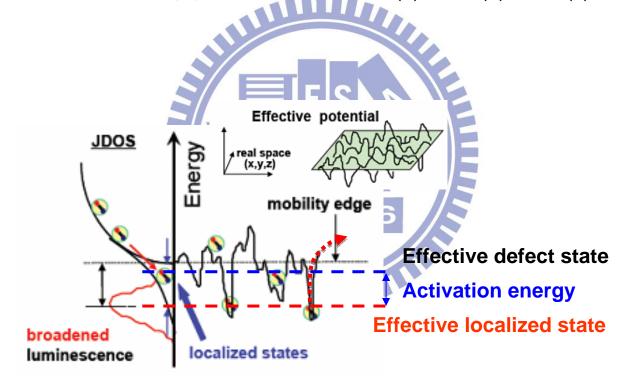


圖 4.2.9 effective localized states 及 defect states 示意圖

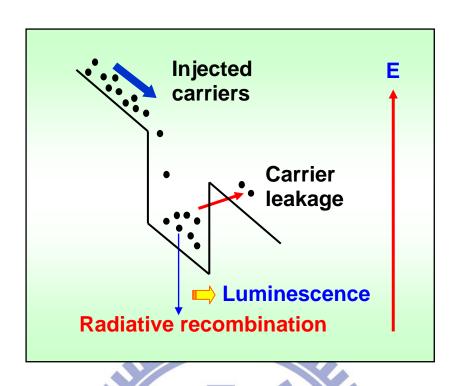


圖 4.2.10 高順向偏壓電場強度下之載子漏電示意圖

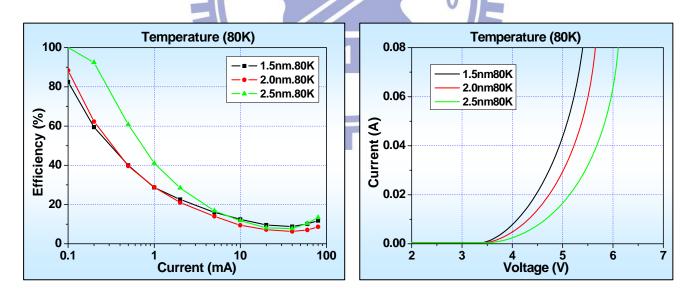
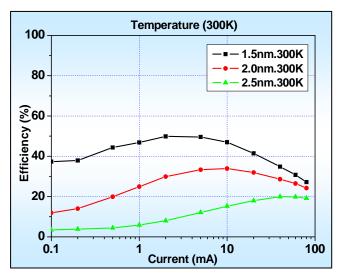


圖 4.2.11 低溫下(80K)不同量子井厚度之發光效率與偏壓電場強度之示意 圖



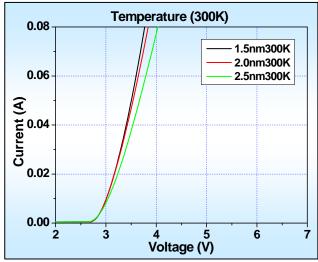


圖 4.2.12 室溫下(300K)不同量子井厚度之發光效率與偏壓電場強度之示

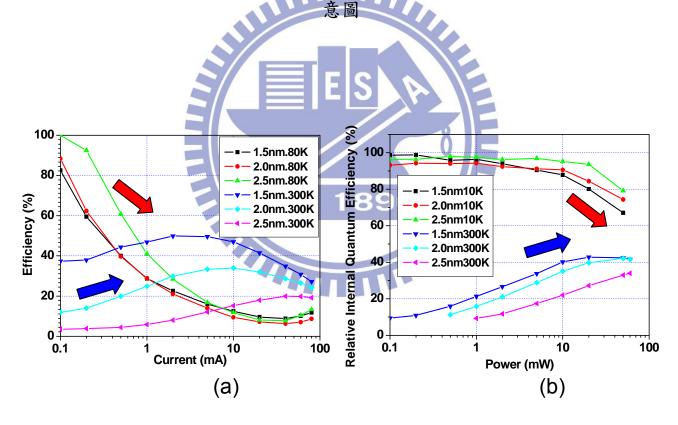


圖 4.3 EL 與 PL 之發光效率趨勢圖(a)EL (b)PL

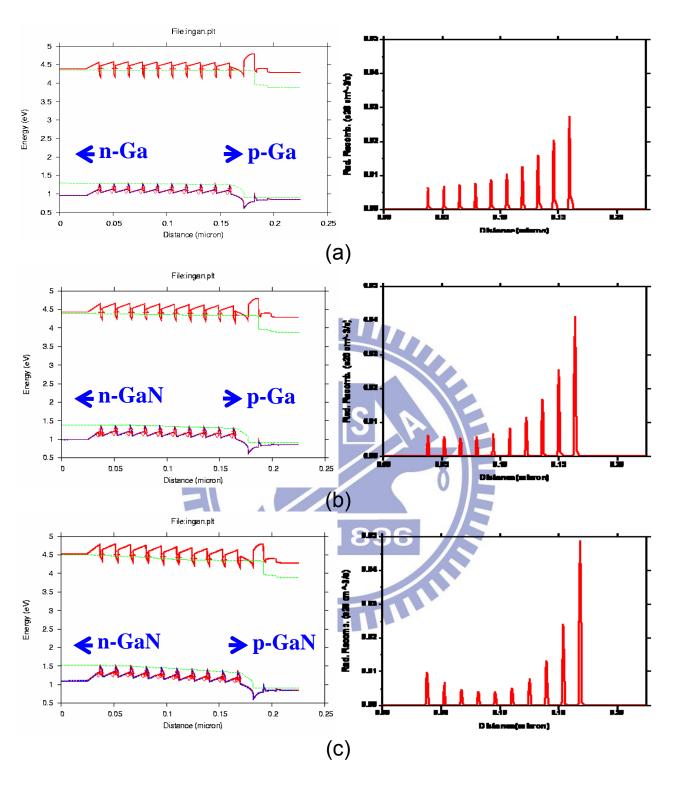


圖 4.4.1 1.5nm 不同的量子井厚度之室溫能帶圖及輻射復合分佈圖 (a)1.5nm (b)2.0nm (c)2.5nm

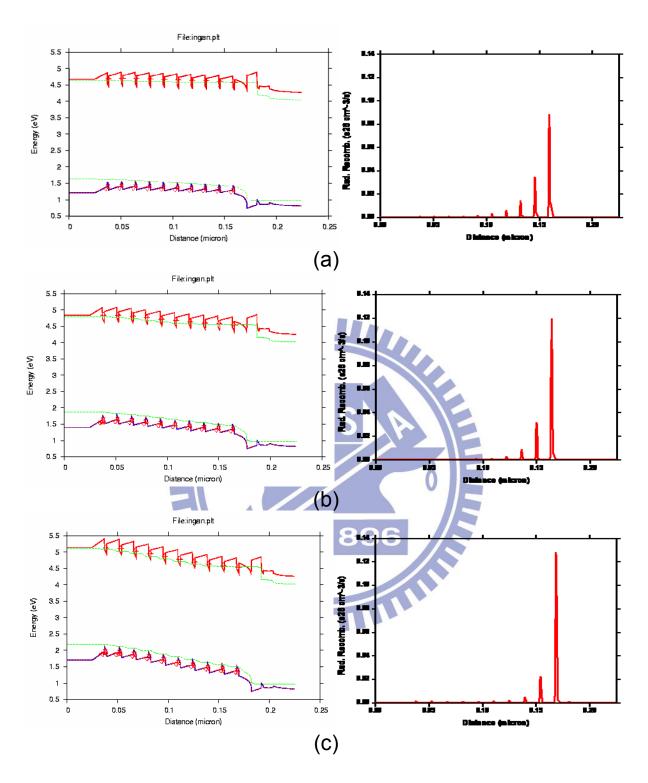


圖 4.4.2 1.5nm 不同的量子井厚度之低溫能帶圖及輻射復合分佈圖 (a)1.5nm (b)2.0nm (c)2.5nm

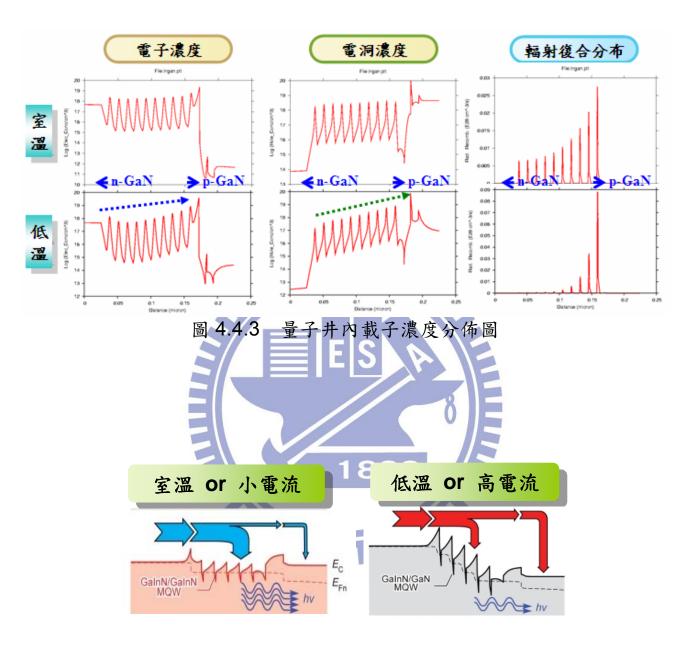


圖 4.4.4 發光效率降低之因素

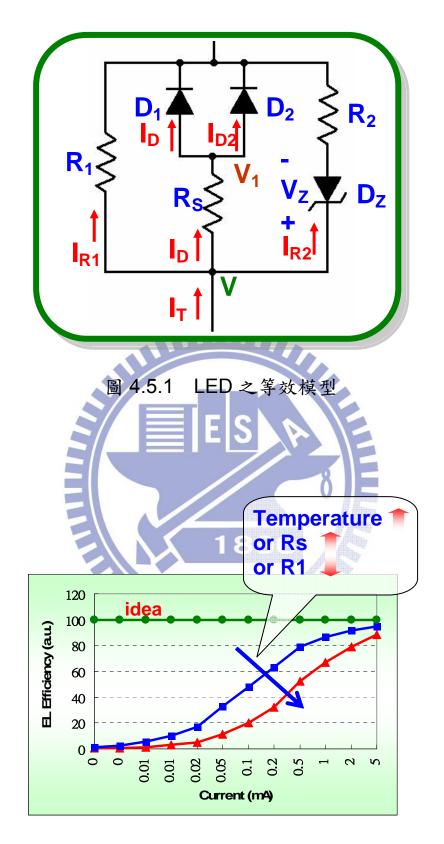


圖 4.5.2 LED 等效模型之小電流公式模擬結果(假設 β = 1)

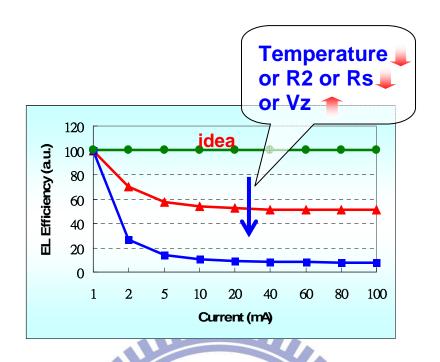


圖 4.5.3 LED 等效模型之大電流公式模擬結果(假設 β = 1)

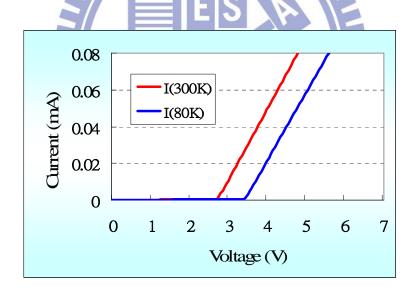


圖 4.5.4 LED 等效模型模擬 I-V 曲線結果

第五章、 電致發光之高電流效率遽降(droop)的原因分析及光譜藍移探討

5.1 效率遽降原因分析

一般認為在低溫下,非輻射復合效應減少應會提高電致發光效率,一些研究小組研究變溫的電致發光(EL)光譜強度,發現高注入電流在較低溫度下發光效率異常下降,尤其低於100K以下,發現發光效率是隨溫度變化造成載子侷限於量子井localized states之多寡而定。其低溫導致發光效率衰退可歸咎於鎂受體載子(170meV)在p-GaN[32,33],在較低溫度下凍結(低於100K),因此電洞沒有足夠的量從p-GaN層注入到量子井中,而電子在量子井中遇不到電洞可復合,而愈來愈多穿透到p-GaN(圖5.1.1及5.1.2),於是在p-GaN 消耗掉更多的電洞,使得發光效率遽降(droop)。這項研究的詳細的電致發光物理機制的增強效應在順向偏壓 I-V 曲線已得到證實。我們也用模擬程式(APSYS)映證了結果。

電致發光強度清楚地看到在溫度低於 80 K 後達到最大發光強度,正向電壓增加了約 1.6 到 2.2V 在氮化銦鎵/氮化鎵藍光發光二極體不同量子井厚度(1.5nm 至 2.5nm)。因此,我們得出這樣的結論:LED內部電場 Vi 發光效率中扮演著重要角色,特別是電致發光效率受到更大的影響,特別是降低溫度在高注入電流下。高注入電

流使得 Vi 增加令載子無法有效地侷限在量子井中,於是,降低溫度而順向電壓增加,使得載子不是轉移到非輻射復合中心,而是擺脫量子井區域,因而減少了發光效率。另外載子擺脫出量子井區域,也可能到更高的不發光能階中復合,這也導致發光強度降低。

另一個現象為 Auger 效應[34],其原理為在高注入電流下,量子井內載子濃度較高,其受到載子注入的能量而引發跳躍到更高的能階,產生非輻射復合而不發光,因而使得效率低下。

5.2 光譜隨量子井厚度降低或注入電流增加之藍移現象探討

在此實驗的結果中,我們也發現相同的製程,只有量子井厚度不同,其所表現的發光頻率卻不相同(如圖 5.2.1),其中量子井厚度愈薄,發光頻率愈向藍移。而相同量子井中,注入電流增加亦有藍移現象,其原因可由圖 5.2.2 簡單來了解。

在相同的注入電流下,不同量子井厚度所容納的載子數相同, 因量子井較薄而載子在低能階較易填滿,繼續往更高能階填補,因 此其平均能帶間隙會較大(如圖 5.2.2),因而產生藍移現象。而注入 電流加大,亦有相同的現象。

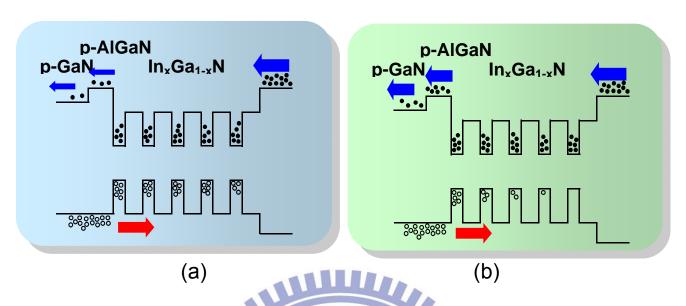


圖 5.1.1 高注入電流下量子井內(a)室溫及(b)低溫之電子電洞分佈圖

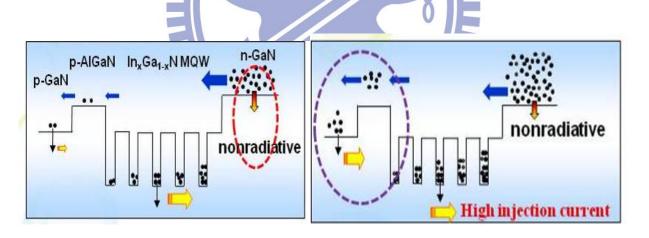


圖 5.1.2 量子井內(a) 低注入電流及(b)高注入電流之載子流動示意圖

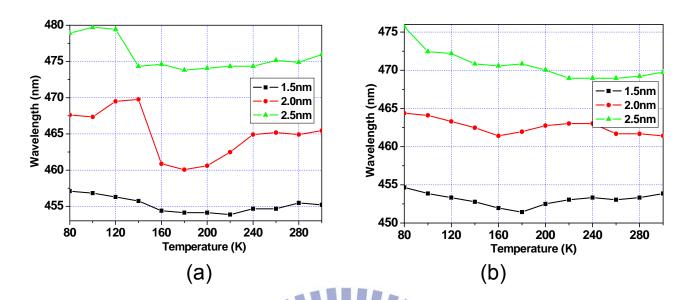


圖 5.2.1 不同量子井之發光頻率圖及注入電流增加之藍移現象(a)0.1mA

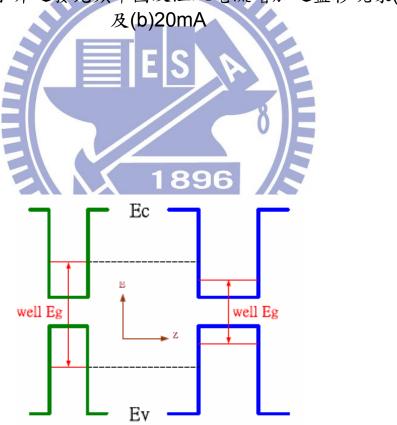


圖 5.2.2 相同電流注入下不同量子井厚度之平均能帶間隙圖—量子井厚度 越薄之光譜藍移現象

第六章、結論

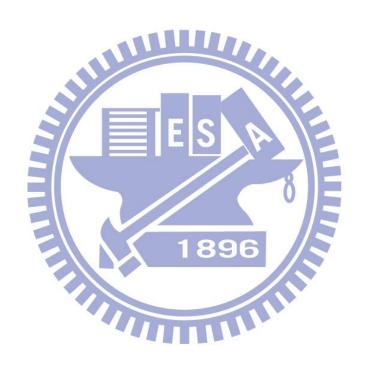
較薄的量子井結構於室溫下發光效率較高,但在高電流注入下發光效率卻不佳,而較厚的量子井厚度,的確可以改善高注入電流下的droop效應,但其中低電流注入部分之效率卻不盡理想,而減少量子井厚度並增加量子井數量似乎是個解決之道,實際上在磊晶的時候必須要考慮到過多的量子井,也意味著更多的缺陷,以及載子要越過這麼多重量子井的難度也會提高,造成載子在量子井中分佈不均勻的情形更嚴重,影響到電子電洞對復合的機率。

從我們的分析中,我們表現出的物理機制,影響光致發光效率和電致發光效率隨溫度變化在不同注入載子濃度。在低溫和室溫下,非輻射複合和載子溢流在量子效率變化中扮演重要的角色。為了降低非輻射復合中心,以改善量子效率於低注入載子密度,改善晶體品質和降低缺陷是必要的方向。但是,如果注入載子不斷增加,能帶填補效應和較高的順向電壓場將使載子更容易擺脫量子井到p-GaN,導致量子效率惡化。我們還用理論方法計算IQE,結果符合我們的實驗IQE及模擬APSYS結果。優化IQE和減少效率遽降,有許多問題需要照顧和改善。例如,降低缺陷密度及削弱量子井內部電場,並增加載子在量子井的侷限能力,

使載子很難擺脫出來。

而較厚的量子井結構於大電流注入下可得到較少的 droop 效應。

在低溫下發光效率 droop 可能是量子井內電洞不足,而使電子注入到 p-GaN,加上電場強度較大,使量子井內的載子跳脫出來而無法復合發光。



參考 文獻

- [1] S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, and S. Nagahama, Jpn. J. Appl. Phys., 34, L797 (1995)
- [2] T. G. Zhu, D. J. H. Lambert, B. S. Shelton, M. N. Wong, U. Chowdhury, H. K. Kwon, and R. D. Dupuis, Electron Lett., 36, 1971 (2000)
- [3] B. S. Shelton, D. J. H. Lambert, H. J. Jang, M. M. Wong, U. Chowdhury, Z. T. Gang, H. K. Kwon, Z. Liliental-Weber, M. Benarama, M. Feng, and R. D. Dupuis, IEEE Trans. Electron Devices, 48, 490 (2001)
- [4] A. P. Zhang, J. Han, F. Ren, K. E. Waldrio, C. R. Abernathy, B. Luo, G. Dang, J. W. Johnson,K. P. Lee, and S. J. Pearton, Electronchem. Solid-State Lett., 4, G39 (2001)
- [5] G. Y. Xu, A. Salvador, W. Kim, Z. Fan, C. Lu, H. Tang, H. Markoc, G. Smith, M. Estes, B. Goldberg, W. Yank, and S. Krishnankutty, Appl. Phys. Lett., 71, 2154 (1997)
- [6] G. T. Dang, A. P. Zhang, F. Ren, X. A. Cao, S. J. Pearton, H. Cho, J. Han, J. I. Chyi, C. M. Lee, C. C. Chuo, S. N. G. Chu, and R. G. Wilson, IEEE Trans. Electron Devices, 47, 692 (2000)
- [7] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, Appl. Phys. Lett., 67, 1687 (1994)
- [8] T. Matsuoka, H. Okamoto, M. Nakao, H. Harima, and E. Kurimoto, Appl. Phys. Lett., 81, 1246 (2002)
- [9] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Toyoda, Jpn. J. Appl. Phys., 28, L2112 (1989)
- [10] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Toyoda, Appl. Phys. Lett., 48, 353 (1986)
- [11] E. S. Jeon, V. Kozlov, Y.-K. Song, A. Vertikov, M. Kuball, A. V. Nurmikko, H. Liu, C. Chen,R. S. Kern, C. P. Kuo, and M. G. Craford, Appl. Phys. Lett., 69, 4194 (1996)
- [12] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, and S. Nakamura, Appl. Phys. Let., 69, 4188 (1996)
- [13] P. Perlin, V. Iota, B. A. Weinstein, P. Wisniewski, T. Suski, P. G. Eliseev, and M. Osinski, Appl. Phys. Lett., 70, 2993 (1997)
- [14] Y. Narukawa, Y. Kawakami, M. Funato, Sz. Fujita, S. Fujita, and S. Nakamura, Appl. Phys. Lett., 70, 981 (1997)
- [15] M. H. Kim, M. F. Schubert, Q. Dai, J. K. Kim, E. F. Schubert, J. Piprek, and Y. Park, Appl. Phys. Lett. 91, 183507 (2007)
- [16] I. V. Rozhansky and D. A. Zakheim, Phys. Status Solidi A 204, 227 (2007)

- [17] I. V. Rozhansky and D. A. Zakheim, Phys. Status Solidi C 3, 2160 (2006)
- [18] Y. C. Shen, G. O. Mueller, S. Watanabe, N. F. Gardner, A. Munkholm, and M. R. Krames, Appl. Phys. Lett. 91, 141101 (2007)
- [19] A. A. Efremov, N. I. Bochkareva, R. I. Gorbunov, D. A. Larinovich, Yu. T. Rebane, D. V. Tarkhin, and Yu. G. Shreter, Semiconductors 40, 605 (2006)
- [20] A. Y. Kim, W. Götz, D. A. Steigerwald, J. J. Wierer, N. F. Gardner, J. Sun, S. A. Stockman, P.
 S. Martin, M. R. Krames, R. S. Kern, and F. M. Steranka, Phys. Status Solidi A 188, 15 (2001)
- [21] S. F. Chichibu, T. Azuhata, M. Sugiyama, T. Kitamura, Y. Ishida, H. Okumurac, H. Nakanishi, T. Sota, and T. Mukai, J. Vac. Sci. Technol. B 19, 2177 (2001)
- [22] S. Watanabe, N. Yamada, Appl. Phys. Lett. 83, 4906 (2003)
- [23] I. Ho and G. B. Stringfellow, Appl. Phys. Lett. 69, 2701 (1996)
- [24] C. L. Yang, L. Ding, J. N. Wang, K. K. Fung, W. K. Ge, H. Liang, L. S. Yu, Y. D. Qi, D. L. Wang, Z. D. Lu, and K. M. Lau, J. Appl. Phys. 98, 023703 (2005)
- [25] A. Hori, D. Yasunaga, A. Satake, and K. Fujiwara, Appl. Phys. Lett. 79, 3723 (2001)
- [26] C. M. Lee, C. C. Chuo, J. F. Dai, X. F. Zheng, and J. I. Chyi, J. Appl. Phys. 89, 6554 (2001)
- [27] P. Bakmiwewa, A. Hori, A. Satake, K. Fujiwara, Physica E 21, 636 (2004)
- [28] S.Nakamura, M.Senoh, N.Iwasa, and S.Nagahama, Jpn.J.Appl. phys., vol.67,pp. L798-L799 (1995)
- [29] M. F. Schubert, S. Chhaied, J.K. Kim, and E. F. Schubert, J. W. Graff, appl. Phys. Lett., vol. 91, no. 23, pp. 231114-231116 (2007)
- [30] Y. L. Li, Y. R. Huang, and Y. H. Lai, appl. Phys. Lett., vol. 91, no. 18, pp. 181113-181115 (2007)
- [31] H. Masui, T. Ive, M. C. Schmidt, H. Sato, H. Asamizu, S. nakamura, and S. P. Denbaars, Jpn. J. Appl. Phys., 47, 2112 (2008)
- [32] S. Grzanka, G. Franssen, G. Targowski, K. Krowicki, T. Suski, R. Czemecki, P. Perlin, and M. Leszczyski, Appl. Phys. Lett. 90, 103507 (2007)
- [33] Y. Yamane and K. Fujiwara, Applied Physics Letters 91, 073501 (2007)
- [34] Y. C. Shen, G. O. Mueller, S. Watanabe, N. F. Gardner, A. Munkholm, and M. R. Krames, appl. Phys. Lett., vol. 91, no. 14, pp. 141101-141103 (2007)