

GaP: N LED 外延片微区光致发光和拉曼散射研究

高 瑛¹, 高汉江¹, 骆永石¹, 刘和初², 董跃进², 章厚琪²

(1. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130021; 2. 南昌 746 厂, 江西 南昌 330012)

摘要: 在国内首次通过微区光致发光结合拉曼散射的方法研究了 GaP: N 五层结构的绿色发光外延片, 用非破坏性的光学方法得到了载流子浓度的纵向分布, 确定了发光最强的部位在 P⁻ 区而且不同的样品有不同的光致发光强度随厚度的衰减曲线, 以此为表征, 从国内外样品的比较中查找出提高国产样品的改进方向。

关键词: 微区光致发光; 拉曼散射

中图分类号: O472.3

文献标识码: A

文章编号: 1000-7032(2000)03-0200-05

1 引 言

高性能的发光二极管取决于三种重要的因素: 完整的单晶材料, 有效的发光中心, 最佳的器件设计。对 GaP: N 黄绿色 LED 的外延片而言, 其杂质、缺陷的研究已有许多定论的工作, 等电子陷阱发光中心氮浓度的测定也已成熟, 进行器件设计必须了解的纵向载流子浓度分布通常都采用电化学腐蚀的 G-V 方法进行, 但我们在采取这种方法测量 GaP 外延片的载流子浓度时发现如下问题: ①腐蚀速度太慢 ②对样品有破坏性 ③pn 结交界处测不准确。为弥补这些缺点, 我们采用微区拉曼光谱的方法, 根据自由载流子等离子体和纵向晶格振动(LO 声子)在微电场中相互作用形成一种混合的等离子体-声子特性而获得的拉曼散射光谱, 通过对这些光谱中 LO/TO 声子强度比和线形拟合得到材料的载流子浓度, 其测试原理以 G. Irmer^[1]和 S. Nakashima^[2]对这种耦合的等离子体-LO 声子模式的理论分析为基础。通过我们实验证实这种方法是有效的, 其结果与材料生长的设计和其它方法测得的数据一致, 只是这种方法更具有独特的优点: 无须电极, 没有破坏性, 分辨率高, 可以测试很小的样品甚至直接分析 LED 芯片等。通过与微区光致发光的测试相互验证, 我们已经获得一些对生产实践有用的信息。

2 实 验

测量是在 ISA 集成拉曼光谱仪上进行的。使用 488nm 的 Ar⁺ 激光作激发源。

通过光路将入射光斑直径聚焦到 1μm 左右, 照射到外延片的横截面上, 样品固定在精密控制平台上, 沿着垂直于 pn 结方向移动, 观察不同厚度点上的拉曼光谱和光致发光, 由样品上激发出的光讯号分光后用低温冷却的 CCD 探测器接收。

GaP: N 外延片是用液相外延(LPE)生长的, 首先在(111)面的 n 型 GaP: S 衬底上生长过渡层, 再生长形成 pn 结的 n⁻ 和 p⁻ 层, 最后生长一层薄的高浓度 p⁺ 层, 以利于制作欧姆接触的电极层。

3 结 果

对五层结构 GaP: N 外延片或芯片(图 1)微区拉曼散射和光致发光在横截面方向的测试如下述方式进行。

x 为厚度方向, 0 为外延层表面, x 由表面向衬底方向增加。

样品典型厚度上各点的拉曼光谱如图 2 所示。强度归一化后 TO 声子带的半峰宽和频率基本上不随厚度变化, 而 LO 声子带的强度、半峰宽和频率峰值则随厚度而改变, 与载流子浓度密切相关: 载流子浓度低的点, 其 LO 声子带强度高、半峰宽小; 载流子浓度高的点, 其 LO 声子强度

收稿日期: 2000-03-30; 修订日期: 2000-05-31

基金项目: 国家重大“863”基金资助项目(863-715-Z34-01)

作者简介: 高 瑛(1939-), 女, 四川成都人, 研究员, 主要从事蓝绿色发光二极管材料物理和深能级研究。

低、半峰宽大。定量的公式可根据 M. V. Klein^[3] 用三种机理: 电荷密度涨落 (CDF)、畸变位能 (DF) 和光电效应 (EO) 对等离子体-LO 声子模式所引起的拉曼散射进行推导并编制程序计算。

我们选择进口的日本外延片和国产外延片进行比较, 国产外延片是在国产衬底上用液相外延方法生产的产品, 两者分别记为样品 1 (日本片) 和样品 2 (国产片)。图 3 示出了国内外样品 LO 和 TO 声子带相对强度比与厚度的依赖关系, 从横坐标看, 国内外产品各层的厚度分布基本相同。

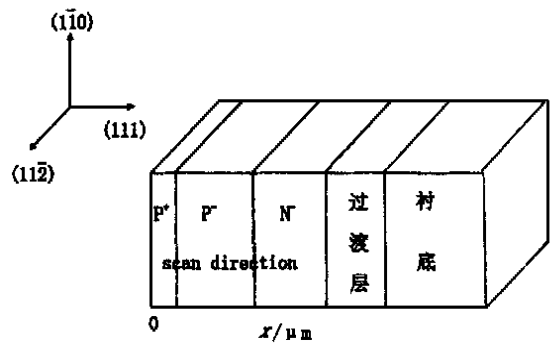


图 1 GaP: N LED 结构示意图
Fig. 1 The structure of GaP: N diode.

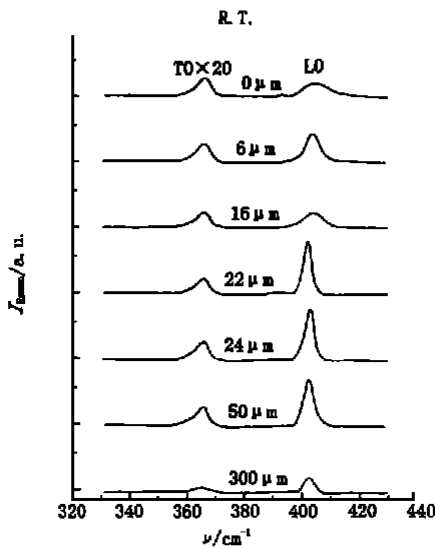


图 2 GaP: N LED 外延片横截面上不同点的拉曼光谱
Fig. 2 Raman spectra at different points of the GaP LED cross section. The distance is measured from the outer edge of the P⁺ region.

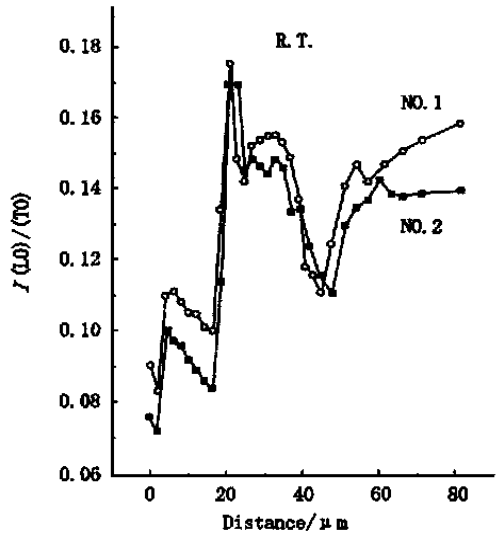


图 3 两种样品的 LO/TO 声子相对强度与厚度的依赖关系
Fig. 3 The peak intensity of the plasmon-LO/TO phonon coupled mode as a function of the position.

国产 GaP: N 外延片拉曼光谱 LO 声子半峰宽 (FWHM) 和厚度的依赖关系如图 4 所示, 国产 GaP: N 外延片拉曼光谱 LO 声子峰值位移随厚度的变化如图 5 所示。

通过对国产与日本外延片拉曼光谱中 LO 声子线型拟合及相应公式的计算机程序处理。我们得到了它们的载流子浓度的分布 (图 6), 其中:

- 1) 表面重掺杂的 p⁺ 层中的载流子浓度与电化学腐蚀 G-V 法测得数据相同, 略大于 $1 \times 10^{18}/cm^3$ 。
- 2) 衬底的载流子浓度为 $1 \sim 2 \times 10^{17}/cm^3$, 与 Hall 方法测得的结果基本一致。

- 3) 日本外延片靠近 pn 结的 n⁻ 处的载流子浓度为 $3 \times 10^{16}/cm^3$, 国产外延片的浓度则高出一倍, 约为 $6 \times 10^{16}/cm^3$ 。

- 4) 国产外延片靠近 pn 结的 p⁻ 处载流子浓度明显地高于日本外延片的浓度。

3.2 微区光致发光

将激光直径聚焦到 1 μm 左右激发国产外延片横截面上不同厚度的点, 由这些点获得的光致发光光谱如图 7 所示。其中

- 1) 对层厚度约为 20 μm 的 p 层, 发光最强的区在距表面 15 μm 处, 其绿峰谱大于衬底绿峰强度 150 倍, 约为表面强度的 3 倍。

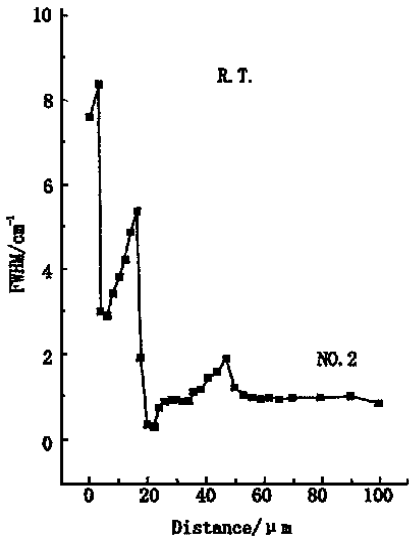


图 4 LO 声子半峰宽和距离的函数关系

Fig. 4 The band width (FWHM) of the LO phonon as a function of the position.

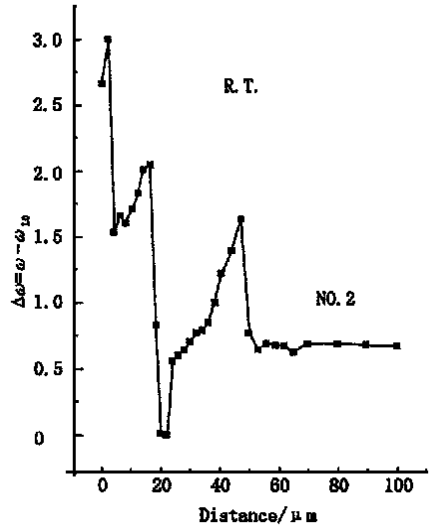


图 5 LO 声子频率位移与距离的函数关系

Fig. 5 The frequency shift of the LO phonon as a function of the position.

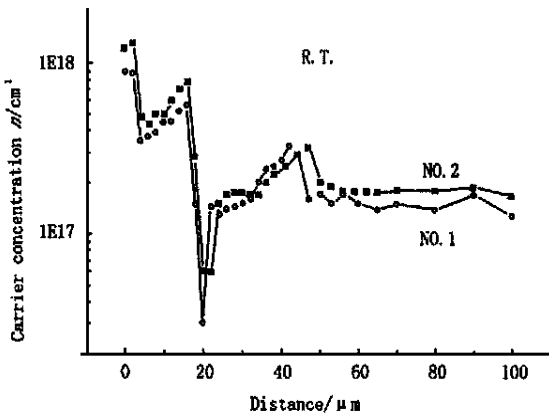


图 6 用微区拉曼光谱测量确定的两种样品的载流子浓度分布

Fig. 6 The carrier concentration profile in two samples determined from the Raman microprobe measurement.

的光致发光谱进行积分求得相对光强并作出光强与厚度关系的曲线,然后将国产外延片和日本绿光外延片进行对比,它们的相对强度—厚度结果如图 8 所示。

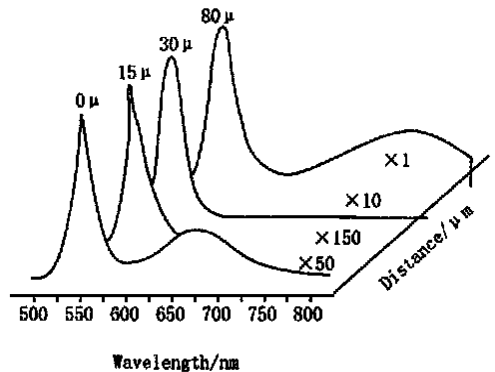


图 7 国产 GaP: N LED 外延片横截面上典型厚度点上的光致发光

Fig. 7 The photoluminescence at several points of the GaP: N LED cross section.

2) 临近表面处(0μm) p 区发光比 n 区(30μm) 发光强,其绿光峰比衬底(80μm) 的绿峰强度高出不止 50 倍。

3) 表面(0μm) 和衬底(80μm) 都存在着深能级产生的红光宽谱带,它们各不相同但又有相互叠加部分的影响。

总之,从总的趋势看 p 区发光最强, n 区次之,衬底发光十分微弱,这与扫描电镜观察到的阴极射线发光结果一致,但阴极射线发光只是对某一区域宏观的考察,通过微区光致发光就能对区域中某一点给出准确的记录,我们将不同厚度下

4 讨 论

4.1 载流子浓度对光致发光强度的影响

从图 8 的比较中看出,在距离表面 30~ 50μm 的范围内,国产外延片和进口外延片的光强—厚度曲线基本平行,国产样品的光强还略高于进口样品,对照图 6 的载流子浓度分布,在 30~ 50μm 的范围内,国产样品比进口样品的载流子浓度略低。

而在距离表面 20~30 μm 的 n^- 区, 国产样品的光强随着距离减小(逐渐接近 pn 结交界处)继续呈下降趋势, 而进口样品则开始上升, 从图 6 的载流子浓度分布的比较看出, 进口样品的载流子浓度在 pn 结附近已明显地低于国产样品的载流子浓度, 而 n^- 区的低浓度可以提高 pn 结发光的注入效率, 因此进口样品就比国产样品的光强度高。

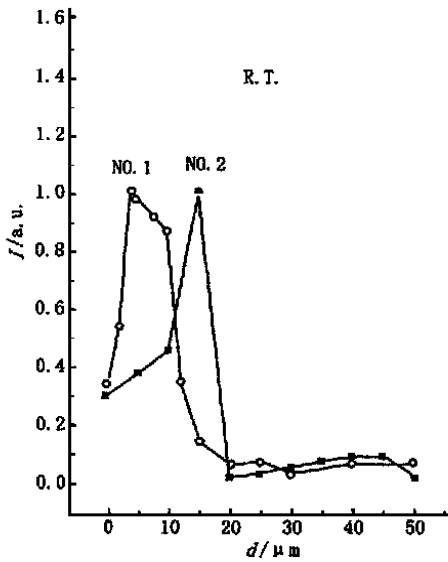


图 8 国产和进口的绿光外延片光致发光-厚度关系的比较
Fig. 8 The comparison of PL intensity-distance curves between two samples.

4.2 缺陷形成的深能级对发光的影响

从图 8 的比较中看出, 在距离表面 0~20 μm

的范围内, (即绿光外延片的 p 层区) 国产片和进口片一个明显的差异就是国产片的光致发光强度在 15 μm 处达到极大值后急剧地下降, 而进口外延片却可将高发光强度维持在几个微米范围内, 这必然会使进口外延片的光致发光总光强比国产外延片高。参看图 7 国产外延片的微区光致发光图, 我们认为上述的差异是与距离表面 15 μm 即已出现的 600~700nm 间的红峰有关, 它们在近表面(0 μm) 时更明显地增强, 而产生这种红光的原因归结为与磷空位相关缺陷引起的深能级。我们用通常的光致发光抽测一些样品时, 也在国产外延片中发现这种红峰, 通过微区分析更准确地知道它们的位置和影响, 从而更清楚地认识到控制上述深能级的重要性。

5 结 论

本文用微区的拉曼散射方法比较了国内外 GaP 绿光外延片的相对光强和载流子浓度分布, 实验证实这种方法是先进而实用的, 所得载流子浓度和用电学方法测得的结果相符。

通过微区光致发光对不同层厚的深能级引起的发光研究看出, 国内外 GaP 绿光外延片的结构和厚度基本相似, 但在 n 和 p 层的晶格完整性上国内产品仍须继续改进。

致谢 在测试和计算机程序编制过程中得到谭平恒博士、杨富华、黄世华研究员的大力支持, 在此表示感谢。

参 考 文 献:

- [1] Irmer G, Toporov V V, Bairamov B H, Monecke. Determination of the Carrier [J]. *J. Phys. Stat. Sol. (b)*, 1983, **119**: 595-599.
- [2] Nakashima S, Yugami H, Fujii A, Hangyo M, Yamanaka H. Raman scattering determination of carrier distribution in GaP diodes [J]. *J. Appl. Phys.*, 1988, **64**(6) : 3067-3071.
- [3] Klein M V. *Light Scattering in Solids* [M]. Berlin: Springer, 1975. 147.

Study on GaP: N LED Epitaxial Layer by Microscopical Photoluminescence and Raman Spectroscopy

GAO Ying¹, GAO Han-jiang¹, LUO Yong-shi¹, LIU He-chu²,
DONG Yao-jin², ZHANG Hou-qi²

(1. Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Changchun 130021, China;

2. Jiangnan Factory of Material, Nanchang 330012, China)

Abstract: Multi-layer GaP wafers with different luminescence efficiency were investigated using microscopical optical methods. According to an interaction between the free carrier plasma and on the longitudinal optical lattice vibrations via their microscopical electric fields in GaP, an mixed plasmon-phonon character is appeared. The carrier distribution has been determined from the fitting of the theoretical line shape to the observed spectra of the plasmon-LO-phonon coupled modes in the cross section of GaP diodes. The optical determination of electrical parameters has some advantages, it is not necessary to contact sample and the spatial resolution amounts to about 1 μm . The obtained results are in good agreement with those of electrical measurements.

We have performed a synchronistic measurement in the cross section of GaP wafer by microscopical photoluminescence. The experiment demonstrates that there are different deep levels and red emissions in GaP substrate and p layer. The deep level in p local area has an obvious influence on PL intensity-distance curve and on the luminescence efficiency. Therefore, it is important to improve red emission and to control deep level from growth condition.

The result showed that the carrier distribution obtained from microscopical Raman spectra is related to the curve of PL intensity-distance using microscopical photoluminescence. They agree reasonably with the distribution of doped impurities and existent defects in GaP substrate and epitaxial layers. It comes to the conclusion that the scanning Raman and photoluminescence technique is a powerful tool for the characterizations of GaP epitaxial layers as well as the diagnostics of LED devices.

Key words: microscopical photoluminescence; Raman scattering