

准备层温度对黄光LED光电特性和老化性能的影响

孙文文, 方芳, 王小兰, 郑畅达, 潘拴

引用本文:

孙文文, 方芳, 王小兰, 等. 准备层温度对黄光LED光电特性和老化性能的影响[J]. 发光学报, 2020, 41(4): 461–467. SUN Wen-wen, FANG Fang, WANG Xiao-lan, et al. Effect of Preparation Layer Temperature on Photoelectric Properties and Aging Properties of Yellow Light-emitting Diode[J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2020, 41(4): 461–467.

在线阅读 View online: https://doi.org/10.3788/fgxb20204104.0461

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

功率高压LED模组在不同应力下的老化实验

Aging Experiments of High Voltage Power White LEDs Under Different Stresses 发光学报. 2016, 37(7): 804-808 https://doi.org/10.3788/fgxb20163707.0804

GaN基蓝绿光LED电应力老化分析

Analysis on The Ageing Mechanism of GaN-based Blue and Green LED by Electrical Stresses 发光学报. 2013, 34(11): 1521-1526 https://doi.org/10.3788/fgxb20133411.1521

量子阱生长气压对InGaN/GaN黄光LED光电性能的影响

Effect of Growth Pressure of Quantum Wells on Photoelectric Properties of InGaN/GaN Yellow LED 发光学报. 2018, 39(7): 961–967 https://doi.org/10.3788/fgxb20183907.0961

电子阻挡层Al组分对Si衬底GaN基黄光LED内量子效率的影响

Dependence of Internal Quantum Efficiency of GaN-based Yellow LED with Si Substrate on Electron Blocking Layer with Variable Al Composition

发光学报. 2019, 40(9): 1102-1107 https://doi.org/10.3788/fgxb20194009.1102

硅衬底生长的InGaN/GaN多层量子阱中δ型硅掺杂n-GaN层对载流子复合过程的调节作用

Recombination Process in InGaN/GaN MQW LED on Silicon with δ-Si Doped n-GaN Layer 发光学报. 2018, 39(12): 1722-1729 https://doi.org/10.3788/fgxb20183912.1722 文章编号:1000-7032(2020)04-0461-07

准备层温度对黄光 LED 光电特性和老化性能的影响

孙文文,方 芳*,王小兰,郑畅达,潘 拴 (南昌大学国家硅基 LED 工程技术研究中心,江西南昌 330047)

摘要:研究了 InGaN/GaN 超晶格准备层的生长温度对 Si 衬底 GaN 基黄光 LED 光电特性和老化性能的影响。研究发现准备层生长温度较高的样品外量子效率高于准备层生长温度较低的样品。500 mA 电流下老化 1 000 h 后,准备层生长温度较高的样品的光衰相对更大。老化前后 100 K 的电致发光光谱显示高温生长的样品老化后的空穴注入途径发生变化;老化后光衰大的样品非辐射复合中心增加的程度更大。荧光显微镜观察到两个样品老化前均出现大量暗斑,高温样品的颜色更深更黑,低温样品颜色则相对较浅且呈红色。老化后高温样品的暗斑数量有所增加,而低温样品数量变化不大,这可能也是导致超晶格温度高的样品光衰更大的原因之一。

关 键 词: 硅衬底; 黄光 LED; 可靠性
 中图分类号: TN312.8
 文献标识码: A
 DOI: 10.3788/fgxb20204104.0461

Effect of Preparation Layer Temperature on Photoelectric Properties and Aging Properties of Yellow Light-emitting Diode

SUN Wen-wen, FANG Fang^{*}, WANG Xiao-lan, ZHENG Chang-da, PAN Shuan (National Institute of LED on Silicon Substrate, Nanchang University, Nanchang 330047, China) * Corresponding Author, E-mail: 41770109@qq.com

Abstract: In this paper, we studied the effect of growth temperature on InGaN/GaN superlattice preparation layer of GaN based yellow LED on Si substrate including photoelectric and aging properties. It was found that the external quantum efficiency of the sample with higher growth temperature of the preparation layer was higher than that of the samples with the lower growth temperature. After 1 000 h of aging at 500 mA, the light decay of the samples with higher growth temperature of the preparation layer is relatively larger. The electroluminescent spectra of 100 K before and after aging showed that the hole injection pathway of high-temperature-grown sample changed after aging, and the non-radiative composite center of high-temperature sample increased more after aging. Fluorescence microscope showed that a large number of dark spots appeared before aging, the color of high-temperature sample was darker, and the color of low temperature sample was lighter and red. The number of dark spots of high-temperature sample increased after aging, but the quantity of low temperature sample did change small, which may also be one of the reasons for the higher light decay of samples with high superlattice temperature.

Key words: Si substrate; yellow light-emitting diode; reliability

收稿日期: 2019-12-03;修订日期: 2020-01-18

基金项目:无荧光粉健康光源开发平台建设(20192ZDD02004);国家自然科学基金(61704069)资助项目

Supported by Construction of Healthy Light Source Development Platform without Fluorescent Powder(20192ZDD02004); National Natural Science Foundation of China(61704069)

1引言

近年来,由于 GaN 基发光二极管具有较高的 发光效率和独特的节能优势, InGaN 基 LEDs 在固 体照明、显示技术等方面有了广泛的应用,已开始 大范围代替传统照明成为新一代照明光源,使我 们进入真正的固态照明时代^[1]。然而,目前 LED 的发展仍不够完美。现有的白光 LED 是通过蓝 光 LED 激发黄色荧光粉获得的,其显色指数、色 温和光效之间难以协调发展,因此,有必要发展一 种新的高品质 LED 照明技术,即采用多色高效率 LED(如红、黄、绿、青、蓝光)合成全光谱白光^[2]。 蓝光和绿光 LED 的外部量子效率(EQE)分别达 到80%^[3]和55%^[4]以上,而黄光则相对很低,这 一现象被称为"黄绿鸿沟",大大限制了全光谱白 光的应用。一般情况下,GaN 基黄光发光二极管 的低效率主要是因为黄光 LED 很难获得高质量 的高 In 组分量子阱和量子斯塔克效应(OCSE 效 应)严重。在 InGaN/GaN 多量子阱(MQWs)中由 压电场引起的 QCSE 导致电子和空穴的空间分 离,从而导致器件发光效率下降^[5]:同时获得高 In 组分量子阱需要较低的生长温度,且容易导致 相分离,使得量子阱的晶体质量恶化^[6]。这些因 素不但会制约黄光 LED 的光电性能,而且对黄光 LED 的可靠性有一定影响。为了获得高光效的 黄光 LED,通常会在 n-GaN 层与量子阱有源区之 间插入 InGaN/GaN 超晶格准备层,以此来释放量 子阱所受应力,提升量子阱有源区的晶体质量,减 少量子阱中的缺陷及位错密度,从而获得较高的 发光效率[78]。此外,超晶格准备层具有释放量 子阱应力、弱化 In 相偏析的作用, 而量子阱中 In 偏析现象减轻,将加强阱中"局域态效应",从而 极大地提高 MQWs 的辐射复合率,进而提升了发 光效率[9]。研究超晶格准备层的生长条件对 LED 的光电性能影响的文献较多,随着超晶格厚 度的增加, InGaN/GaN 量子阱中的应力减小,从 而 LED 发光光谱峰值的蓝移量减少^[10]。通过改 变准备层结构、生长速率、铟镓比等方法,发现高 钢镓比、低速生长且采用 InGaN/GaN 多层结构形 式是获得高质量高 In 组分准备层的优化方 法^[11]。但是超晶格准备层的生长温度等对黄光 LED 的光电性能和可靠性的影响研究甚少。

本文主要研究样品的准备层生长温度对黄光

LED 器件性能以及器件可靠性的影响。对比了老化前后两个样品的外量子效率、内量子效率、FL、XRD 等数据,并对其中的内在机理进行了研究和分析。

2 实 验

设计了两组不同超晶格生长温度的黄光 LED 样品,采用本单位自制的金属有机化学气相沉积 (MOCVD)设备进行外延生长,在图形化处理后的 Si(111)衬底上沉积生长 LED 外延结构。衬底直径 为5.08 cm(2 in),厚度约1 030 μ m,图形化单元面积 为1.2 mm×1.2 mm。整个外延薄膜的结构如下:首 先在衬底上生长 120 nm 的 AIN 缓冲层,之后生长 3.3 μ m 的 n 型 GaN,然后生长 32 个周期三段式的 InGaN(5 nm)/GaN(2 nm)超晶格准备层(SL),紧接 着依次生长 9 个周期的黄光 InGaN/GaN 多量子阱 (MQWs)、p-AIGaN 电子阻挡层(EBL)和 p-GaN 接触 层。将样品 A 的三段准备层温度分别设为 900, 875,850 ℃,样品 B 为 920,895,870 ℃。详细的外延 结构如图 1 所示。





LED 外延片经芯片制造工艺流程被制备成 尺寸为1 mm×1 mm 的垂直结构的薄膜 LED 芯 片。具体的芯片制备过程详见参考文献[12]。 从两个样品中各挑选10 颗主波长为560 nm(在 35 A/cm² 下测试)的芯片,封装成仿流明结构 LED 灯珠。每颗灯珠均焊接在老化板上,并置于 40 ℃的老化台中,通500 mA 的直流电流进行加 速老化试验,并分别在老化前老化24,168,500, 1 000 h 后进行相应的测试表征。

3 结果与讨论

3.1 InGaN/GaN 准备层温度对 GaN 基黄光 LED 光电性能的影响

图 2 为样品 A 和 B 外延片 GaN(002) 面的

XRD ω-2θ 扫描曲线。可以看出样品 B 的零级衍 射峰更靠近 GaN 主峰,说明其准备层中的 In 组分 更少^[13]。随着超晶格生长温度的升高,超晶格中 的平均 In 组分减少。表 1 给出了(002)面 MQW 中 -1 和 -2 卫星峰的半峰宽,可以看出,随着超 晶格生长温度的升高,MQW 各级卫星峰的 ω 扫 描半峰宽减小,说明其外延层晶体质量更高^[14]。 用荧光显微镜(FL)观察了 A 和 B 两个样品外延 片的 MQW 发光图像。图 3 为室温下两个样品的 FL 形貌图。可以看出两个样品的 FL 形貌图中都 存在暗斑,其中样品 A 的暗斑更浅,并散布红点, 而样品 B 的暗点颜色更深,微观均匀性比样品 A 更好。样品 A 的散布红点可能是高 In 组分的 In-GaN 偏析,而样品 B 的黑点则可能是单质 In 或者 是 GaN。





Fig. 2 Scanning curve of ω -2 θ of GaN(002) symmetry plane of A and B samples

表1 A 和 B 样品(002) 面 MQW 卫星峰的半峰宽

Tab. 1 Half width of MQW satellite peaks on the (002) side of samples A and B

	(002)面中 MQW	(002)面中 MQW	
	负一级卫星峰的	负二级卫星峰的	
	半峰宽	半峰宽	
样品 A	355	338	
样品 B	350	312	

图 4 为样品 A 和 B 在不同温度下 EQE 以 100 K 时最高点的 EQE 值进行归一化处理后的 EQE 随电流密度的变化曲线,其中横坐标是对数 刻度。如图中淡蓝色指示线所示,在温度 300 K、 电流密度为 5.5 A/cm² 时,样品 B 的 EQE 比样品 A 高。随着温度的升高,两个样品的 EQE 均逐渐 下降。该现象可解释为:随着温度的降低,MQW



图 3 A(a)和 B(b)两样品外延片常温下 MQW FL 表面 形貌





- 图4 A(a)和B(b)两样品在不同温度下 EQE 随电流密 度的变化曲线
- Fig. 4 EQE curves vs. current density of samples A(a) and B(b) at different temperature

有源区中缺陷相关的非辐射复合中心被冻结^[15],导致 Shockley-Read-Hall (SRH)非辐射复合减少,

从而使得 IQE 增加。图 5 是两个样品在电流密度 为 0.18 A/cm² 时其 EQE 随温度的变化曲线,当 温度为 300 K、电流密度为 0.18 A/cm² 时,样品 A 和 B 的 EQE 下降分别为 90.3% 和 81.6%。



图 5 A 和 B 样品其 EQE 随温度的变化曲线 Fig. 5 Curves of EQE of A and B samples with temperature

因此,样品 B 较样品 A 的 EQE 下降更小,表 明样品 B 的量子阱区缺陷更少,晶体质量更高。 该结果与 XRD 结果一致,从而表现为其内量子效 率高于样品 A。

3.2 超晶格生长温度对 GaN 基黄光 LED 老化 性能的影响

图 6 给出了两个样品不同老化时间下的 EQE 归一化后随电流密度的变化曲线。老化 1 000 h 后,样品 A 的 EQE J_{max} (EQE 最大时的电 流密度)从 3 A/cm² 右移到 5.5 A/cm²,样品 B 的 EQE 的 J_{max} 从 2 A/cm² 右移到 5.5 A/cm²。两个 样品的 EQE 随着老化时间增加而减小。已有研 究表明,老化后的 EQE 下降主要与非辐射复合常 数 A 以及注入效率的下降有关^[16]。

图7为A和B样品在不同测试电流下的归一 化光功率随老化时间的变化曲线。可以看出样品B 的光衰比样品A更大,且在小电流的下降更为明显。 老化1000h后,在300K下,当测试电流密度为 0.18 A/cm²时,样品A的LOP下降了38%,而样品B 下降了48%;当测试电流密度为35 A/cm²时,样品 A的LOP下降5%,而样品B下降了6.7%。也就是 说,样品B老化后光衰比样品A要大。

为了能更直观地观察两个样品老化前后 EQE的变化,图8给出了A和B样品老化前后 EQE随电流密度的变化曲线。在老化前,和样品 A相比,样品B拥有较高的EQE,在小电流下更 为明显。例如,当注入电流密度为0.18 A/cm² 时,样品A、B的EQE分别为11%和15%。该现



图 6 A(a)和 B(b)样品不同老化时间下归一化的 EQE 随电流密度的变化曲线

Fig. 6 Curves of normalized EQE with current density for A (a) and B(b) samples under different aging time



图 7 A(a)和 B(b)样品在不同测试电流下的归一化光 功率随老化时间的变化曲线



象可解释为:随着超晶格生长温度的升高,晶体质 量提高,缺陷减少,使 LED 发光效率提高。老化 1 000 h 后,两样品的 EQE 均下降但最终二者相



图 8 A 和 B 样品老化前(a)、后(b) EQE 随电流密度的 变化曲线。

Fig. 8 Curve of EQE with current density before(a) and after(b) aging of A and B samples 差不大,从而也证明了样品 B 的光衰更大,在小 电流下更明显。

根据 ABC 模型可知 EQE 的表达式为:

$$\eta_{\text{EQE}} = \eta_{\text{extr}} \cdot \eta_{\text{inj}} \cdot \frac{BN^2}{AN + BN^2 + CN^3}, \quad (1)$$

其中 N 为载流子浓度, η_{extr} 为提取效率, η_{inj} 为注 入效率。A、B 和 C 分别为 SRH 复合常数、辐射复 合常数和俄歇复合常数^[17]。图 9 为 100 K 下样 品 A 老化前(a)、后(b)和样品 B 老化前(a)、后 (b)不同电流密度下的 EL 光谱。样品 B 在老化 1 000 h 后,EL 光谱中的 P₃ 峰比老化前更为明显,说 明在老化后有更多比例的空穴注入到超晶格中并发 生辐射复合,即有更少比例的空穴注入到量子阱中, 导致 η_{inj} 下降,进一步导致 EQE 下降^[18]。如图 10 所 示, I₁ 为空穴直接从平台量子阱注入 c 面 MQWs, I₂ 为空穴通过侧壁量子阱注入到超晶格中发生辐射复 合。其中 P₃ 峰对应于 I₂ 的注入途径。样品 A 老化 前后的 EL 光谱并没有明显变化。

另外,根据 ABC 模型进行模拟可计算出两个 样品老化前后的系数 $A \ B$ 和 C_{\circ} 表 2 为样品 A 和 B 老化前后的 SRH 复合常数 A 的值,其中 ΔA 表示样品老化后 A 的值减去老化前的值。

两个样品老化前后的 *B*、*C*系数不变,样品 A 老化前后的 *B*、*C*系数分别为5.5E-13 和 2.5E-31;



图 9 100 K 下样品 A 老化前(a)、后(b)和样品 B 老化前(c)、后(d)不同电流密度下的 EL 光谱。 Fig. 9 EL spectra of samples A((a), (b)) and B((c), (d)) at different current densities before and after aging at 100 K

样品 B 为 5.5E-13 和 2.8E-31。二者并没有明显 差异。而样品 B 老化 1 000 h 后非辐射复合系数







表 2 两样品老化前后 SRH 复合系数 A

Tab. 2 SRH composite coefficient *A* of two samples before and after aging

	老化前 A	老化后 A	ΔΑ
样品 A	3.05E+6	4.95E+6	1.9E+6
样品 B	2.3E+6	4.5E+6	2.2E+6



图 11 荧光显微镜下样品 A 老化前(a)、后(c)和样品 B
 老化前(b)、后(d)的芯片形貌。

Fig. 11 Chip morphology of sample A((a), (c)) and sample B((b), (d)) before and after aging under fluorescence microscope

A 的增幅比样品 A 大,说明样品 B 在老化过程中 产生了更多的与 SRH 非辐射复合相关的缺陷,使 发光效率下降。

用荧光显微镜对两个样品老化前后的芯片进行观察,如图 11 所示。对比发现,样品 A 老化前后的"黑点"数量和大小没有明显差异,而样品 B 老化后的"黑点"明显增多且变大,在形成大尺度 In 团簇的过程中,在合并区域内会产生额外的能量台阶,并且包含更多的非辐射复合中心,例如位错等。因此,载流子将会有更大的几率被非辐射中心捕获,导致发光效率下降^[19]。

4 结 论

本文研究了 InGaN/GaN 超晶格温度对 GaN 基黄光 LED 器件性能和老化特性的影响。结果 表明,超晶格生长温度更高,器件发光效率增加。 其原因归结为:准备层温度升高,晶体质量提升, MQW 有源区的缺陷减少,器件的发光效率得到 提升。FL形貌的差别主要是因为准备层生长温 度不同导致的超晶格内 In 组分不同,进而对其后 生长的量子阱区引入的应力大小不同,从而导致 In 偏析状态不一致。经过 40 ℃、500 mA 电流、 1 000 h老化后,两个样品的 EQE 均出现下降,且 超晶格温度更高的样品的光衰更大。通过比较老 化前后两个样品100 K 下的 EL 光谱,发现超晶格 温度更高的样品老化后的空穴注入途径发生变 化,使注入效率下降,是造成样品光衰大的原因之 一:通过用 ABC 模型对两个样品老化前后 EQE 随电流密度的变化曲线进行拟合计算,发现超晶 格温度更高样品的 A 系数的增幅比超晶格温度 低的样品大,说明随着老化时间的增加,超晶格温 度高的样品中非辐射复合增加的程度更大,也是 该样品光衰更大的原因之一。此外,通过荧光显 微镜对比两个样品管芯老化前后的形貌,也证实 了超晶格温度更高的样品的光衰比温度低的样品 大,在老化过程中非辐射复合中心增加得更多,与 A 系数的变化得到了相同的结论。

参考文 献:

- [1] LIU X H,LIU J L, MAO Q H. Effects of p-AlGaN EBL thickness on the performance of InGaN green LEDs with large Vpits [J]. Semicond. Sci. Technol., 2016,31(2):025012.
- [2] 刘军林,莫春兰,张建立,等. 五基色 LED 照明光源技术进展 [J]. 照明工程学报, 2017,28(1):14.

LIU J L,MO C L,ZHANG J L,*et al.*. Progress of five primary colours LED lighting source technology [J]. *China Illuminat. Eng. J.*, 2017,28(1):1-4. (in Chinese)

- [3] NARUKAWA Y, ICHIKAWA M, SANGA D, et al. White light emitting diodes with super-high luminous efficacy [J]. J. Phys. D: Appl. Phys., 2010, 43(35):354002-1-6.
- [4] LV Q J, LIU J L, MO C L, et al. Realization of highly efficient InGaN green LEDs with sandwich-like multiple quantum well structure: role of enhanced interwell carrier transport [J]. ACS Photon., 2018,6(1):130-138.
- [5] VAITKEVIČIUS A, MICKEVIČIUS J, DOBROVOLSKAS D, et al. . Influence of quantum-confined Stark effect on optical properties within trench defects in InGaN quantum wells with different indium content [J]. J. Appl. Phys., 2014,115 (21):213512.
- [6] ZHANG J L, XIONG C B, LIU J L, et al. . High brightness InGaN-based yellow light-emitting diodes with strain modulation layers grown on Si substrate [J]. Appl. Phys. A, 2014,114(4):1049-1053.
- [7] SIZOV V S, TSATSULNIKOV A F, SAKHAROV A V, et al. The use of short-period InGaN/GaN superlattices in blue-region light-emitting diodes [J]. Semiconductors, 2010,44(7):924-930.
- [8] TSAI P C, SU Y K, CHEN W R, et al. Enhanced luminescence efficiency of InGaN/GaN multiple quantum wells by a strain relief layer and proper Si doping [J]. Jpn. J. Appl. Phys., 2010,49(4):04DG07.
- [9] MU Q, XU M S, WANG X S, et al. Influence of the InGaN/GaN quasi-superlattice underlying layer on photoluminescence in InGaN/GaN multiple quantum wells [J]. Phys. E, 2016,76:1-5.
- [10] 齐维靖. 准备层及量子阱区生长条件对 Si 衬底 GaN 基 LED 性能影响的研究 [D]. 南昌:南昌大学, 2018.
 QI W J. Study on The Effects of The Growth Conditions of Preparation Layer and Quantum Well on The Properties of GaN-based LED Grown on Si Substrates [D]. Nanchang: Nanchang University, 2018. (in Chinese)
- [11] 吴庆丰. 含 V 形坑的 Si 衬底 GaN 基单量子 阱绿光 LED 有源区研究 [D]. 南昌:南昌大学, 2019.
 WU Q F. Study on The Active Region of V Pit-containing GaN-based Single Quantum Well Green LED Grown on Si Substrates [D]. Nanchang; Nanchang University, 2019. (in Chinese)
- [12] WANG G X, TAO X X, LIU J L, et al. Temperature-dependent electroluminescence from InGaN/GaN green light-emitting diodes on silicon with different quantum-well structures [J]. Semicond. Sci. Technol., 2015, 30(1):015018.
- [13] CHO H K, LEE J Y, KIM C S, et al. Influence of strain relaxation on structural and optical characteristics of InGaN/GaN multiple quantum wells with high indium composition [J]. J. Appl. Phys., 2002,91(3):1166-1170.
- [14] LE L C, ZHAO D G, JIANG D S, et al. Effect of V-defects on the performance deterioration of InGaN/GaN multiple-quantum-well light-emitting diodes with varying barrier layer thickness [J]. J. Appl. Phys., 2013,114(14):143706-1-5.
- [15] HAN D P,ZHENG D G,OH C H, et al. Nonradiative recombination mechanisms in InGaN/GaN-based light-emitting diodes investigated by temperature-dependent measurements [J]. Appl. Phys. Lett., 2014,104(15):151108.
- [16] MENEGHINI M, TAZZOLI A, MURA G, et al. A review on the physical mechanisms that limit the reliability of GaNbased LEDs [J]. IEEE Trans. Electron Devices, 2010,57(1):108-118.
- [17] RYU H Y, KIM H S, SHIM J I. Rate equation analysis of efficiency droop in InGaN light-emitting diodes [J]. Appl. Phys. Lett., 2009,95(8):081114-1-3.
- [18] 陶喜霞. 高光效硅衬底 GaN 基黄光发光二极管发光性能研究 [D]. 南昌:南昌大学, 2018.
 TAO X X. Study on Luminescence Properties of High-efficiency GaN-based Yellow Light Emitting Diodes Grown on Si Substrate [D]. Nanchang: Nanchang University, 2018. (in Chinese)
- [19] CHO Y H, LEE S K, KWACK H S, et al. Carrier loss and luminescence degradation in green-light-emitting InGaN quantum wells with micron-scale indium clusters [J]. Appl. Phys. Lett., 2003,83(13):2578-2580.



孙文文(1994 –),女,山东菏泽人, 硕士研究生,2017 年于泰山学院获 得学士学位,主要从事半导体发光 电子材料和器件的研究。 E-mail: 469336333@qq.com



方芳(1982 -),女,辽宁海城人,博士, 副教授,硕士研究生导师,2009 年于 中国科学院长春光学精密机械与物理 研究所获得博士学位,主要从事硅衬 底 LED 材料与器件的研究。 E-mail: 41770109@ qq. com