

立方相 InGaN 的稳态和瞬态光学特性研究*

徐仲英 刘宝利 李顺峰 杨辉

(中国科学院半导体研究所, 北京, 100083)

葛惟昆

(香港科技大学物理系)

TN304.26
TN244

摘要:用光荧光和时间分辨光谱技术研究了 MEB 生长立方 $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$ ($x=0, 150, 26$) 外延材料的稳态和瞬态发光特性. 实验表明 InGaN 发光主要来自局域激子发光, 局域化是由合金无序造成的, 相应局域化能量为 60meV 左右, 荧光衰减呈现双指数特性, 快过程(50ps, 12K)是自由激子的快速驰豫引起的, 而慢过程(200~270ps, 12K)则对应局域激子发光, 其荧光寿命随温度缓变反映了激子发光的强局域性质.

关键词: InGaN, 激子局域化, 时间分辨光谱.

立方相, 稳态光学特性
瞬态光学特性
激光材料 半导体

STEADY AND TRANSIENT OPTICAL PROPERTIES OF CUBIC InGaN EPILAYERS*

XU Zhong-Ying LIU Bao-Li LI Shun-Feng YANG Hui

(Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

GE Wei-Kun

(Department of Physics, Hong Kong University of Science & Technology, Hong Kong, China)

Abstract Photoluminescence (PL) and time-resolved PL were employed to study the steady and transient optical properties of cubic $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ epilayers grown by MBE. The results suggest that the PL transitions in InGaN epilayers are mainly from localized exciton states. The localization energies are estimated to be 60 meV, independent of In composition. The PL decay is characterized by a bi-exponential dependence. The fast process (50 ps at 12K) is related to the fast relaxation of excitons, while a slower contribution (200–270 ps at 12K) is attributed to the decay process of localized excitons.

Key words InGaN, exciton localization, time-resolved photoluminescence.

引言

GaN 及其化合物的研究是目前国际上光电子材料、半导体物理领域中最引人关注, 竞争最激烈的研究课题之一^[1-3]. 自从日本 Nichia 公司首次成功地推出 GaN 系蓝色激光器以来, GaN 基化合物已成为蓝绿光发光、激发器件的首选材料, 短短几年内已取得了惊人的进步, 蓝光 GaN 激光器已实现室温连续激射, 工作寿命超过 10000h, 而 InGaN 合金常用于 GaN 系发光

材料的有源区, 一方面是因为借此可改变发光波长, 另一方面人们发现 InGaN 具有很高的发光效率, 并可能与富 In 区产生的团簇作用(量子点效应)有关^[4], 这在物理上具有很大的意义, 发光机理的研究仍然是国际上热门课题之一.

1 实验

本文用稳态和瞬态光荧光研究 InGaN 外延片的发光特性, 所用 InGaN 样品系立方相结构, 衬底材料

* 国家攀登计划和国家自然科学基金(编号: 19974045)资助项目
稿件收到日期 1999-10-08, 修改稿收到日期 1999-11-15

* The project supported by the National Natural Science Foundation and the State Key Project for Basic Research of China
Received 1999-10-08, revised 1999-11-15

为GaAs,用MOCVD方法生长,这是一种在实际器件应用上很有发展前途的新型材料^[5],具体生长工艺已有报道.光学测量采用常规的光荧光实验技术,激发光源是蓝宝石激光器的倍频脉冲输出,波长为370nm,由于是脉冲激发,相对激发强度较高,但基本荧光特性与He-Cd(325nm)激发时相近.瞬态光谱测量时,激发光源为飞秒蓝宝石激光器的倍频输出(100fs),用条纹相机接收,整个系统的时间分辨率由条纹相机决定,大约为10ps,样品温度由变温恒温制冷器控制.

2 结果与讨论

图1是两个InGaN外延样品的12K时的370nm脉冲光激发下的光荧光光谱,主峰能量位置分别位于3.068eV(322#样品)和2.834eV(414#样品),光谱半高宽分别为72meV和156meV.能量位置的不同显然是由不同的In组份造成的,对晶格完全弛豫的InGaN三元合金,其带隙可表示为

$$E_g = xE_g(\text{InN}) + (1-x)E_g(\text{GaN}) - bx(1-x), \quad (1)$$

其中能带弯曲系数 $b=1.0\text{eV}$.根据式(1),2个样品的In组份(x 值)分别为0.15和0.26,比X光双晶衍射测得的要大,这与实际样品中存在一定的应力分布有关.322#样品72meV线宽比文献报道的类似结构较窄,但低能端(2.8eV附近)呈现明显的发光峰,变温光谱表明,此峰在150~170K有极大值(图中未示出),但来源还不清楚.414#样品的半高宽远大于322

#样品,这主要是由于合金无序造成的.在三元合金半导体中,合金无序随 x 值增大而增大,相应的散射增大,线宽增大,这点在GaAlAs系统中已有明确定论.当然,在InGaN系统中,由于InN和GaN晶格常数不同,由此造成的晶格失配和本征缺陷也会对荧光线宽产生影响.根据发光能量位置我们指认414#样品高能端发光与GaN有关,而322#样品中相应的发光很可能被InGaN发光所掩盖.

图2是发光强度随激发强度的变化,可以看出,2个样品表现不同:422#样品的发光强度随激发强度呈线性增长,而322#样品先是超线性增长,然后再呈现线性关系.而这两个样品在He-Cd激光器激发下(此时为低激发)发光强度与激发强度均呈线性关系.发光强度与激发强度的线性和超线性关系表明,实验所观察到的发光具有本征特性,而不是由杂质或缺陷产生的非本征发光.在高质量GaN外延材料中,曾有人报道过自由激子发光随激发强度超线性增强的现象^[1],并认为是由激子-激子相互作用造成的.而在InGaN三元合金中,由于存在较多的晶格缺陷和应力,样品中常有较多的非辐射复合中心,In组份越大,非辐射复合中心越多,其结果使得由激子-激子相互作用造成的超线性增强变弱,这个解释与实验结果吻合.414#样品由于存在较多的非辐射复合中心,即使在较高的激发强度下,非辐射复合中心也未能饱和,很难看到超线性增强,而322#样品中由于非辐射复合中心相对较少,容易饱和,因此荧光强度呈超线性增长.当

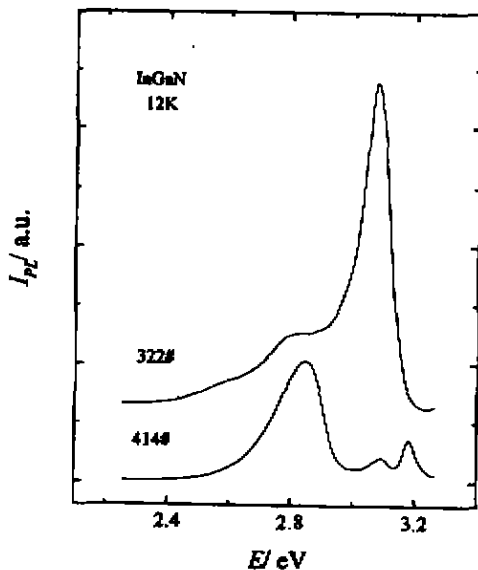


图1 322#和414#InGaN外延样品12K光荧光光谱
Fig. 1 Photoluminescence (PL) spectra of two InGaN samples at 12K

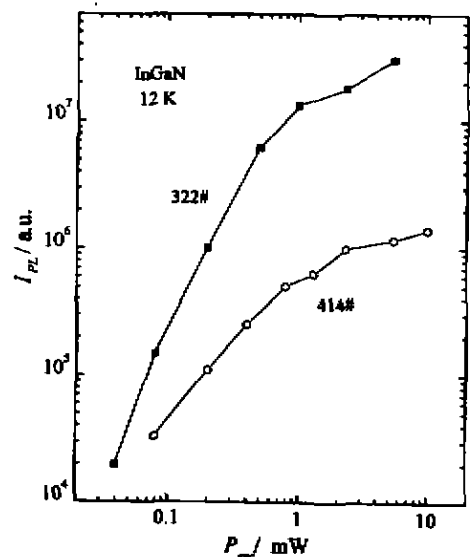


图2 370nm脉冲光激发下发光强度随激发强度的变化
Fig. 2 PL intensity versus the excitation power under 370nm pulse laser excitation

激发强度很高时,两个样品均出现荧光强度的饱和,这很可能与局域激子从局域态中逃逸有关。

图 3 表示两个样品积分荧光强度随温度的变化,可以看出,随温度升高,荧光强度减弱,根据荧光强度的温度变化关系, $I(T) \propto \exp(-E_1/K_B T)$, 可以求得热激活能 E_1 , 两个样品的热激活能十分接近,分别为 58.5meV 和 60meV, 远大于 GaN, InGaN 自由激子的束缚能(25meV 左右)。我们认为这个能量不可能是杂质束缚激子的束缚能,根据 Haynes 经验法则,杂质电离能是激子束缚能的 10 倍左右,这样,如果认为 60meV 是激子(束缚在杂质上的激子)的束缚能,则对应的杂质电离能应为 600meV,这与实际观察的 200~300meV^[1]不符。所以我们认为上述 60meV 左右的热激活能是由激子的局域化造成的,即激子的局域化能量。在三元混晶中,合金无序可造成激子局域化,一般来说,由合金无序造成的局域势是 δ 函数,势阱的深度应看成是相同的,因此不同组份样品局域化能量应大致相同,这与我们实验观察到的结果一致,也与有关的文献报道一致。

为了进一步了解 InGaN 发光的激子局域化特性,我们进行了时间分辨光谱研究,图 4 是 414# 样品在不同温度下的荧光衰减曲线,可以看出,荧光衰减在两个时间常数 τ_1 和 τ_2 , 其发光强度的时间关系应写为

$$I(t) = a_1 \exp(-t/\tau_1) + a_2 \exp(-t/\tau_2), \quad (2)$$

由此我们可以拟合出不同温度下的荧光衰减时间常数,如图 4 插图所示,12K 时, τ_1 为 50ps, τ_2 为 200ps, 从图可以看出,两者随温度变化有所不同;在 12~

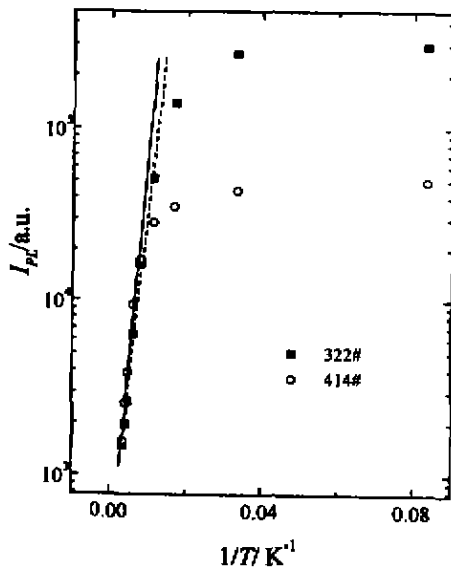


图 3 积分荧光强度随温度的变化

Fig. 3 Integrated PL intensity versus temperature

250K 温度范围内, τ_1 呈单边下降,从 50ps 减小到 25ps; 而 τ_2 则相对变化较小,从 200ps 减小到 170ps. 荧光寿命随温度缓变或不变的特性常常被看成是典型的局域激子发光特性, Narukawa 等人提出^[2], 在 In-GaN 合金中,富 In 区中存在 In 团簇,其作用类似于量子点,由于无论是量子点还是其他局域中心都对激子有紧束缚作用,并导致激子发光寿命的特定的温度关系,因此我们认为,单从以上实验事实还不能说明 In-GaN 中激子发光与量子点特性有关,但是其发光的局域化特性是肯定的,而实验观察到的发光快过程则是自由激子的快速弛豫(例如被浅杂质能级快速俘获)造成的,从图 4 还可以看出,随温度增加,局域激子发光相对减弱,这是由于非辐射复合中心随温度增加而激活造成的,因此,式(2)中 a_1/a_2 随温度的增加而单调减小。

322# 样品的荧光衰减同样包含两个过程,实验结果如图 5 所示,其中快过程特性与 414# 样品类似,而慢过程荧光衰减时间则随温度先增加后减小,这种现象在量子阱中是常见的,发光寿命随温度增加而增加是二维激子的典型特征,因此我们有理由认为,在 322# 样品中激子的局域化效应没有 414# 样品那样强,这反过来也进一步说明 InGaN 中激子的局域化是由

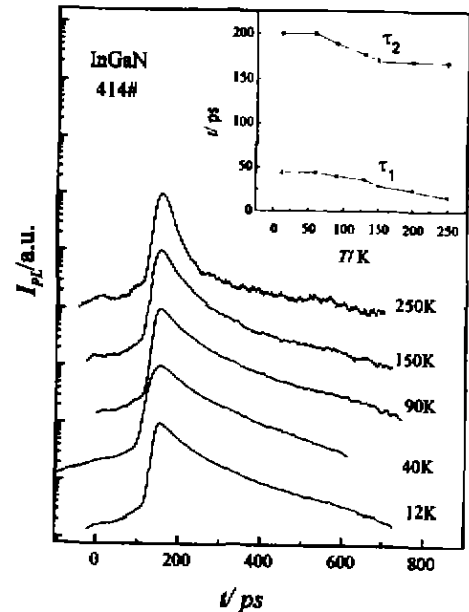


图 4 414# 样品不同温度下荧光峰值位置附近的荧光衰减曲线,插图是由式(2)得到的时间常数和温度的关系

Fig. 4 Temporal responses of the PL measured at the spectral peak positions at different temperatures for sample 414#, the temperature dependence of decay time is shown in the insert of the figure

In 组份的引入造成的. 当然, 正如前面指出的, 由于 322# 样品发光谱中 2.8eV 附近有一个较强的发光峰, 此峰将会影响测得的荧光寿命, 有关的实验工作有待进一步深入.

3 结论

本文研究了 MOCVD 生长立方相 InGaN 发光特性, 发光主要是局域激子发光, 局域化是由于合金无序

造成的, 相应局域能量为 60meV 左右, 与合金组份关系不大. 荧光衰退呈现双指数特性, 快过程是自由激子的快速弛豫引起的, 而慢过程则对应局域激子发光. 荧光寿命随温度缓变反映了局域激子发光的特性.

REFERENCES

- [1] Nakamura S, Senoh M, Iwasa N, *et al.* High-brightness InGaN blue, green and yellow light-emitting-diodes with quantum well structures, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1995, **34**(2): L797
- [2] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S, *et al.* InGaN-based multi-quantum-well structure laser diodes, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1996, **35**(2): L74
- [3] Nakamura S, Senoh M, Nagahama S, *et al.* Subband emissions of InGaN multiquantum-well laser diodes under room-temperature continuous wave operation, *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **69**: 1532
- [4] Narukawa Y, Kawakami Y, Funato M, *et al.* Role of Self-formed InGaN quantum dots for exciton localization in the purple laser diode emitting at 420nm, *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**: 981
- [5] Klann R, Brandt O, Yang H, *et al.* Picosecond dynamics of excitons in cubic GaN, *Phys. Rev.*, 1995, **B52**: R11615.
- [6] Orton J W, Foxon C T. Group III nitride semiconductors for short wavelength light-emitting devices, *Rep. Prog. Phys.*, 1998, **61**: 52
- [7] Smith M, Chen G D, Lin J Y, *et al.* Free exciton transitions in GaN grown by metalorganic chemical vapor deposition, *J. Appl. Phys.*, 1996, **79**: 7001
- [8] Orton J W, Foxon C T. Group III nitride semiconductors for short wavelength light-emitting devices, *Rep. Prog. Phys.*, 1998, **61**: 1-75, and herein references

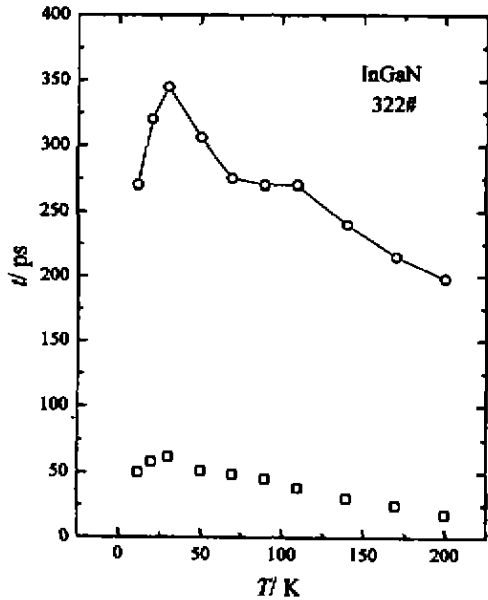


图 5 322# 样品不同温度下的荧光衰退时间常数
Fig. 5 The temperature dependence of decay time for sample 322#