

Падение эффективности GaN-светодиодов при высоких плотностях тока: туннельные токи утечки и неполная латеральная локализация носителей в квантовых ямах InGaN/GaN

© Н.И. Бочкарева, Ю.Т. Ребане, Ю.Г. Шретер[†]

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 17 декабря 2013 г. Принята к печати 23 декабря 2013 г.)

Исследуется явление падения эффективности излучения квантовых ям InGaN/GaN в светодиодных $p-n$ -структурах при увеличении тока (droop effect). Рассматривается влияние на эффективность излучения двух основных процессов: туннельной инжекции в квантовую яму и неполной латеральной локализации носителей в композиционных флуктуациях ширины запрещенной зоны в InGaN. Резкий максимум эффективности при малых токах и резкое падение эффективности с ростом тока обусловлены туннельными утечками тока вдоль протяженных дефектов, возникающими вследствие локального увеличения прыжковой проводимости через обедненную n -область и соответственно локального понижения инжекционного p -барьера. Менее резкий пик эффективности и слабое, близкое к линейному, падение эффективности с ростом тока вызывает неполная латеральная локализация носителей в квантовой яме, связанная с замедлением скорости энергетической релаксации носителей и безызлучательной рекомбинацией подвижных носителей.

1. Введение

Высокая квантовая эффективность GaN-светодиодов, несмотря на высокую плотность дефектов, обусловлена локализацией инжектированных носителей в композиционных флуктуациях ширины запрещенной зоны в плоскости квантовых ям InGaN/GaN [1,2]. Латеральный конфайнмент изолирует инжектированные носители от дефектов, подавляя безызлучательную рекомбинацию. Однако с ростом плотности тока наблюдается уменьшение эффективности излучения квантовых ям InGaN/GaN, что является одной из главных причин, препятствующих расширению области применения твердотельного освещения.

Интенсивные исследования эффекта падения эффективности с ростом накачки (efficiency droop) не привели пока к единой точке зрения на природу и пути устранения этого эффекта. Для его объяснения выдвинут ряд моделей, включая оже-рекомбинацию [3,4], поляризацию [5], перелет носителей над квантовой ямой [6], слабую дырочную инжекцию [7], туннельную утечку по структурным дефектам [8,9], латеральную делокализацию носителей [2,10–13]. Делокализация носителей кажется наиболее естественной причиной уменьшения эффективности, что и предполагалось уже в ранней работе [2]. В более поздних работах [10–13], как и в [2], предполагается, что заполнение состояний в хвостах зон в квантовой яме квазиравновесно и делокализация носителей происходит при приближении квазиуровней Ферми к краям зон с ростом уровня инжекции и насыщении состояний (band filling) в обогащенных индием локальных участках квантовой ямы. Однако насыщения интенсивности излучения на длинноволновом крыле спектра с ростом тока не наблюдается, и в рамках такой модели невозможно объяснить сублинейный рост

интенсивности излучения с накачкой, наблюдающийся в широком диапазоне токов [14].

Предположение о связи падения эффективности с уменьшением степени локализации носителей получило дальнейшее развитие в работах [14,15]. В работе [14] падение эффективности связывается с неполной локализацией инжектированных в квантовую яму носителей при высоких уровнях инжекции в результате уменьшения скорости энергетической релаксации носителей посредством прыжков вниз по энергии между центрами локализации и безызлучательной рекомбинации подвижных носителей на дефектах. В то же время туннельные утечки носителей по структурным дефектам могут приводить к дополнительным и значительным потерям эффективности [16].

В данной работе изучается относительный вклад в падение эффективности двух механизмов: туннельных утечек носителей по протяженным дефектам и неполной латеральной локализации носителей при высокой плотности тока.

Механизм инжекции изучается с помощью измерений и анализа формы вольт-амперных характеристик и характера динамического токового отклика диода на малое переменное напряжение частотой $f = 1$ МГц. Для изучения механизма неполной латеральной локализации анализируется эволюция формы спектра с ростом тока, отражающая изменение степени локализации носителей в хвостах зон квантовой ямы.

2. Эксперимент

В работе представлены результаты, полученные на коммерческих белых светодиодах с множественными квантовыми ямами со световой отдачей 120 лм/Вт, номинальными токами до 350 мА и пиковой энергией излучения активной области $h\nu_p = 2.85$ эВ. Уменьшение

[†] E-mail: y.shreter@mail.ioffe.ru

квантовой эффективности с увеличением плотности тока в диапазоне $j = 1-40 \text{ A/cm}^2$ составляет 30%.

Измерения статических вольт-амперных характеристик проведены с помощью Keithley 238, измерения реактивной и активной компонент полной дифференциальной проводимости на частоте 1 МГц с помощью CV анализатора Keithley 590 с параллельной схемой замещения, измерения спектров излучения проведены с помощью спектрометра Avantes. Измерения интенсивности излучения и внешней квантовой эффективности проводились с помощью интегрирующей сферы и калиброванного Si-фотодиода.

3. Результаты эксперимента

Зависимости квантовой эффективности η , пиковой энергии и напряжения на $p-n$ -переходе $U_j = U - JR_s$ от плотности тока представлены на рис. 1, *a*. Последовательное сопротивление светодиода, величина которого оценивалась из линейной области $J-U$ -характеристик, составляет $R_s = 0.9 \text{ Ом}$. Кривые $\log j(U_j)$ имеют S -образную двухступенчатую форму и могут быть аппроксимированы экспоненциальной функцией $j \propto \exp(qU_j/n_{1-v}kT)$, где $n_{1-v}(U_j)$ — фактор идеальности, kT — тепловая энергия, q — элементарный заряд. Как видно из рис. 1, *a*, эффективность увеличивается с j в области малых токов I, где фактор идеальности $n_{1-v} < 2$ и $qU_j < hv_p$. Эффективность начинает уменьшаться в области средних токов II, где $qU_j > hv_p$ и n_{1-v} возрастает до $n_{1-v} > 2$, и уменьшается более резко в области больших токов III, где n_{1-v} снова уменьшается до $n_{1-v} < 2$.

При напряжениях вблизи границы между областями I и II резко изменяется характер динамического токового отклика $p-n$ -структуры на малое переменное напряжение. Результаты измерений зависимостей реактивной (емкостной) ωC и активной G_{ac} компонент дифференциальной проводимости на частоте 1 МГц от прямого напряжения приведены на рис. 2. Для сравнения там же представлены данные измерений статической дифференциальной проводимости $G_{dc} = dJ/dU$. Как видно из рис. 2, с ростом прямого смещения проводимости G_{dc} , G_{ac} и ωC увеличиваются, причем $\omega C > G_{ac} > G_{dc}$. Но при напряжении $U_{th} = 2.6 \text{ В}$, когда G_{ac} становится равной G_{dc} (и $G_{ac} > \omega C$), наблюдается резкий спад емкости. При $U > 2.7 \text{ В}$ наблюдается отрицательная емкость, резко возрастающая с напряжением, при этом $G_{dc} > G_{ac}$. Таким образом, емкостной характер токового отклика сменяется индуктивным на границе области I с областью II.

Как видно из рис. 1, *a*, обнаруживается также корреляция между падением эффективности и пиковой энергией излучения: при увеличении эффективности с ростом плотности тока в области I наблюдается красный сдвиг пиковой энергии, а при уменьшении η при плотности тока $j > 1 \text{ A/cm}^2$ (в областях II и III) наблюдается голубой сдвиг пиковой энергии.

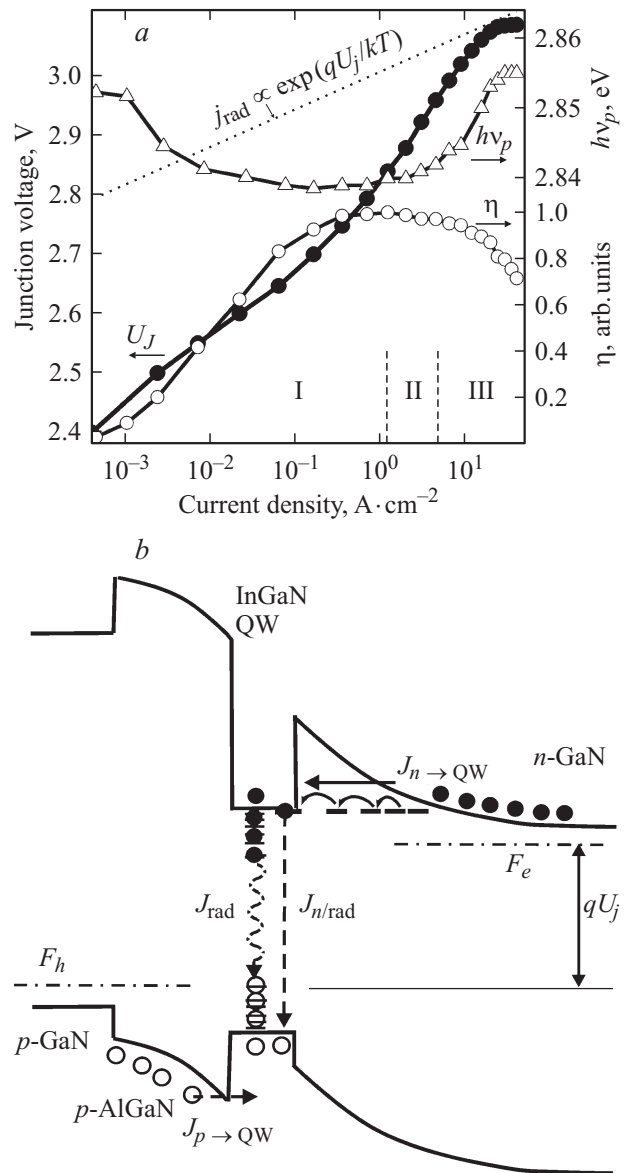


Рис. 1. *a* — квантовая эффективность, спектральное положение пика линии излучения и напряжение на $p-n$ -переходе как функции плотности тока. Штриховая линия получена экстраполяцией компоненты плотности тока, обусловленной излучательной рекомбинацией в квантовой яме, в область меньших напряжений на $p-n$ -переходе. *b* — энергетическая зонная диаграмма $p-n$ -структуры с квантовой ямой AlGaIn/InGaIn/GaN.

При $j > 15 \text{ A/cm}^2$ эффективность продолжает уменьшаться с j , а пиковая энергия не меняется и голубой сдвиг пиковой энергии составляет 17 мэВ. Однако, как видно из спектров излучения, нормализованных на максимум интенсивности и приведенных на рис. 3, наблюдается отсечка и уширение коротковолнового края спектра до 40 мэВ, а также уменьшение его наклона, в то время как длинноволновая часть пика практически остается неизменной при $j > 0.4 \text{ A/cm}^2$. В противоположность этому при $j < 0.4 \text{ A/cm}^2$ увеличение η с ростом плотности тока сопровождается уширением длинноволнового

крыла спектра, тогда как коротковолновое крыло практически не меняется (см. вставку к рис. 3).

Рис. 4 иллюстрирует эволюцию спектральной эффективности излучения при увеличении плотности тока. Спектральная эффективность η_{hv} получена нормированием каждого спектра $I(h\nu)$ на соответствующую плотность тока: $\eta_{hv} = I/h\nu$. Как можно видеть, при $j > 4 \text{ A/cm}^2$ уменьшение спектральной эффективности с ростом j для энергии фотонов $h\nu \leq h\nu_p$ сопровождается

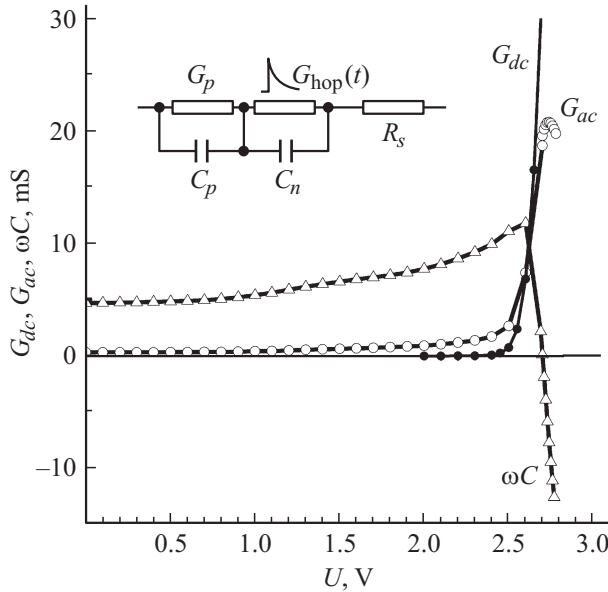


Рис. 2. Зависимости емкостной ωC и активной G_{ac} компонент дифференциальной проводимости на частоте 1 МГц и статической дифференциальной проводимости G_{dc} от прямого напряжения. На вставке — упрощенная эквивалентная схема p - n -структуры.

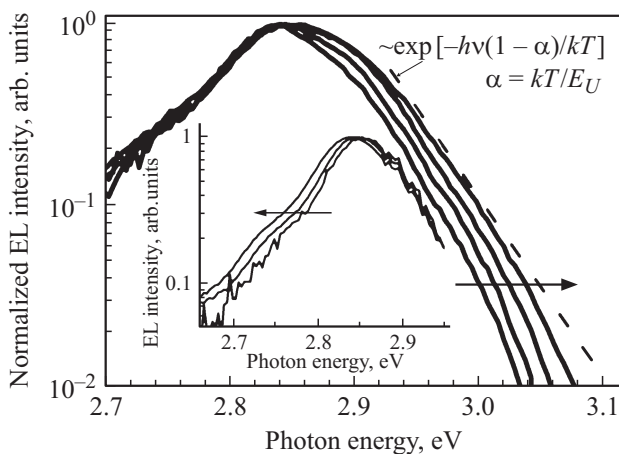


Рис. 3. Спектры излучения активной области, нормализованные на их максимум, при плотности тока 0.4, 4, 20 и 40 A/cm^2 и (на вставке) 0.0005, 0.003, 0.2 A/cm^2 . Штриховой линией показан спад излучения с энергией фотона для случая максвелловского распределения носителей в хвостах плотности состояний с параметром Урбаха $E_U = 70 \text{ мэВ}$. Стрелки показывают направление уширения спектра с ростом плотности тока.

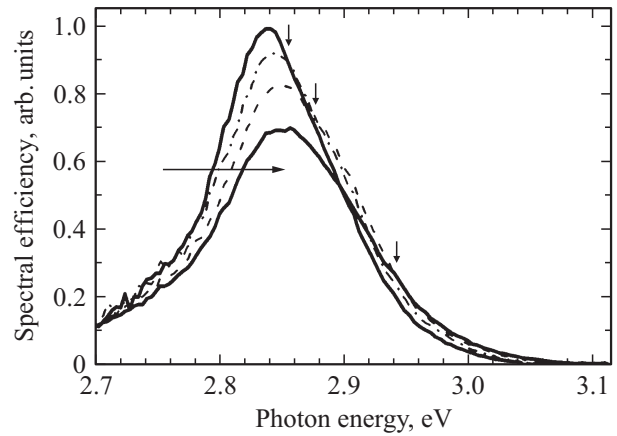


Рис. 4. Спектры излучения активной области $I(h\nu)$ при плотности тока 0.4, 4, 20 и 40 A/cm^2 , нормализованные на плотность тока. Точки пересечения $h\nu^*$ кривых $I(h\nu)$ при увеличении плотности тока отмечены стрелками. Горизонтальная стрелка показывает направление спектрального сдвига кривых с ростом плотности тока.

увеличением спектральной эффективности для энергии $h\nu > 2.9 \text{ эВ}$.

4. Обсуждение результатов

Широкие спектры излучения квантовых ям InGaN/GaN отражают распределение локализованных носителей в экспоненциальных хвостах плотности состояний, обусловленных флуктуациями индия в плоскости квантовых ям [17–19]. Распределение локализованных носителей определяется двумя процессами: процессом инжекции носителей в квантовые ямы InGaN/GaN и перераспределением инжектированных носителей между состояниями хвоста в квантовой яме. Для простоты мы предположим, что носители инжектируются в одиночную квантовую яму, так как в типичных InGaN-светодиодах только ближайшая к p -области квантовая яма излучает свет [20].

4.1. Туннельная инжекция в квантовые ямы InGaN/GaN и туннельно-рекомбинационные утечки тока

В случае надбарьерной инжекции носителей в квантовую яму при номинальной плотности тока, интенсивность излучения I_{EL} и компонента плотности тока j_{rad} , связанная с излучательной рекомбинацией, описывались бы экспоненциальной функцией $I_{EL} \propto j_{rad} \propto \exp(qU_j/kT)$ с пороговым напряжением излучения света $U_{th} > 2.8 \text{ В}$ (штриховая линия на рис. 1, а). Однако $I_{EL} \propto \exp(qU_j/kT)$ вблизи $U_j = 2.5 \text{ В}$, ясно указывая, что эффективный инжекционный барьер снижен за счет подбарьерного туннелирования носителей.

Электронная компонента туннельного тока должна преобладать над дырочной вследствие малой эффективной массы электронов. В то же время неполная ионизация глубоких акцепторов в p -GaN может обеспечивать высокую прыжковую проводимость в p -GaN, а полная ионизация глубоких акцепторов в обедненной области должна приводить к малой ширине p -барьера и возрастанию вероятности туннелирования дырок.

Туннельная прозрачность n - и p -барьеров по изоэнергетическим линиям увеличивается с энергией вследствие уменьшения ширины барьера и более высокой плотности состояний дефектов в запрещенной зоне вблизи краев зон в GaN. Максимальное понижение инжекционного барьера определяется длинноволновым краем спектра излучения $h\nu_{\text{low}} = 2.7 \text{ эВ}$ (рис. 3, 4), равным эквивалентному „встроенному напряжению“ пониженного барьера $U_{bi, \text{low}} = h\nu_{\text{low}}$.

В области I при $j < 0.15 \text{ А/см}^2$ и $U_j < 2.7 \text{ В}$ разность квазиуровней Ферми составляет $\Delta F = F_e - F_h = qU_j < h\nu_{\text{low}}$. Быстрый рост тока с напряжением в области I предполагает, что туннельное сопротивление барьера не ограничивает ток через структуру, и рост тока определяется экспоненциальным ростом плотности носителей, изоэнергетических с состояниями хвостов в квантовой яме [9]. Соответственно падения напряжения U_p и U_n на p - и n -барьерах становятся равными: $U_p = U_n = U_j/2$, а плотности инжектированных электронов и дырок растут с напряжением как $n, p \propto \exp(qU_j/2kT)$. Таким образом, в области I полный ток $J = J_{\text{rad}} + J_{n/\text{rad}}$ идентичен надбарьерному току в p - n -структуре с более низким потенциальным барьером (рис. 1, b). Компоненты тока, обусловленные излучательной и безызлучательной рекомбинацией, растут с напряжением как $J_{\text{rad}} \propto \exp(qU_j/kT)$ и $J_{n/\text{rad}} \propto \exp(qU_j/2kT)$ соответственно. Более быстрый рост тока J_{rad} с напряжением обуславливает быстрый рост квантовой эффективности с ростом тока, наблюдающийся в области I.

Если туннельно-рекомбинационная утечка электронов через состояния дефектов при $U < U_{\text{th}}$ [21,22,9] ограничивается плотностью свободных дырок в p -области вблизи квантовой ямы, то она также резко возрастает при $U > U_{\text{th}}$ и рост эффективности с током замедляется.

В области II поток электронов растет с напряжением быстрее, чем увеличивается туннельная прозрачность барьеров, и оба тока, J_{rad} и $J_{n/\text{rad}}$, ограничиваются туннельным сопротивлением инжекционного барьера.

В области III в квантовую яму протекает термополевой ток через „пички“, обусловленные разрывами зон [9]. В областях II и III $\Delta F > h\nu_p$ и при увеличении U_j квазиуровни Ферми „сканируют“ все более мелкие состояния хвостов в квантовой яме. Это предполагает, что голубой сдвиг пиковой энергии и уменьшение эффективности $\eta = (1 + J_{n/\text{rad}}/J_{\text{rad}})^{-1}$, наблюдаемое в этих областях, связаны с инжекцией в слабо локализованные состояния.

Отметим, что в случае доминирования оже-рекомбинации $J_{n/\text{rad}} \propto \exp(3qU_j/2kT)$ и $n_{1-v}(U_j) = 2/3$, что должно было бы приводить к увеличению крутизны ВАХ

($n_{1-v} < 1$) при падении эффективности с ростом тока. Наблюдаемое уменьшение крутизны ВАХ в области II указывает на отсутствие влияния оже-рекомбинации на эффективность.

4.2. Индуктивный токовый отклик p - n -структуры

Подтверждением предложенной модели прыжковой туннельной инжекции являются наблюдающиеся особенности динамического токового отклика p - n -структуры на малое высокочастотное напряжение (рис. 2).

Прыжковый транспорт по состояниям дефектов в обедненной области p - n -структур с квантовыми ямами InGaN/GaN обуславливает большие переходные токи при приложении ступеньки прямого напряжения, наблюдающиеся в течение 50 нс–4 мкс после фронта импульса и на несколько порядков превышающие стационарный ток при $U < U_{\text{th}}$ [23]. Предполагается, что переходной ток возникает в результате аккумуляции электронов на состояниях дефектов в глубине обедненной области.

В однородных полупроводниках кинетика релаксации тока при прыжковом переносе электронов связана с экспоненциальной зависимостью вероятности прыжка от расстояния между случайно расположенными локализованными состояниями в запрещенной зоне, что обуславливает частотную зависимость прыжковой проводимости ($\sigma_{\text{hop}} \propto \omega^s$, $s < 1$) [24,25].

В обедненной области p - n -структуры с экспоненциальными хвостами зон в p - и n -барьерах среднее расстояние между состояниями на изоэнергетической линии при приближении к активной области увеличивается. Это должно приводить к уменьшению прыжковой проводимости по хвостам зон при приближении к активной области и медленным релаксациям тока. С увеличением прямого напряжения высота и ширина барьера уменьшаются. При этом изоэнергетические линии пересекают уровни, лежащие ближе к краям зон и имеющие более высокую плотность. В результате прыжковая проводимость через обедненную область увеличивается с увеличением прямого смещения. Наличие широкого спектра времен релаксации τ_{SCR} , существенно превышающих время максвелловской релаксации, обуславливает реактивную и активную компоненты токового отклика p - n -структуры при приложении малого переменного напряжения \tilde{U} .

Эквивалентную схему p - n -структуры на высокой частоте можно упрощенно представить в виде последовательно-параллельной цепи, состоящей из емкости n -барьера C_n с шунтирующей проводимостью $G_{\text{hop}}(\omega, U_n)$, определяемой прыжковым механизмом переноса электронов через обедненную область, емкости p -барьера C_p с проводимостью G_p , определяемой термоэмиссионным механизмом переноса дырок через p -барьер, и последовательного сопротивления R_s (см. вставку к рис. 2).

При малых прямых смещениях $U < U_{th}$, стационарный ток ограничивается малой плотностью дырок вблизи квантовой ямы. На p -барьере падает основная часть приложенного напряжения и $U_p > U_n$. При приложении ступеньки напряжения, за время максвелловской релаксации напряжение в структуре распределяется обратно пропорционально барьерным емкостям. Кинетика установления стационарного распределения напряжений определяется прыжковой проводимостью $G_{hop}(\omega, U_n)$. При приложении малого переменного напряжения \tilde{U} быстрая, по сравнению с полупериодом высокочастотного напряжения ($\tau_{SCR} < 1/(2f)$), компонента электронного тока вносит основной вклад в емкостную компоненту токового отклика, а его медленная компонента ($\tau_{SCR} = 1/(2f)$) обуславливает активную проводимость, превышающую статическую. В результате при $U < U_{th}$ токовый отклик p - n -структуры на частоте $f = 1$ МГц имеет преимущественно емкостной характер и $\omega C > G_{ac} > G_{dc}$ (рис. 2). В то же время зависимости $\omega C(U)$, $G_{ac}(U)$ и $G_{dc}(U)$ подобны, так как связаны с ростом проводимости $G_{hop}(\omega)$ при увеличении прямого смещения (рис. 2).

При $U > U_{th}$, в области I ($U = 2.5$ – 2.7 В), на крутом участке кривой $\log j(U_j)$, падения напряжения на p - и n -барьерах становятся равными. Так как G_p значительно превышает ωC_p , токовый отклик на переменное напряжение становится активным и равным токовому отклику на постоянное напряжение при $U = 2.65$ В и проводимости $G_{ac} = G_{dc} = 18$ мСм.

При напряжениях $U > 2.7$ В, вблизи области II, сквозной ток ограничивается туннельным сопротивлением n -барьера и в стационарном состоянии $U_n > U_p$. При приложении ступеньки напряжения быстрая компонента туннельного электронного тока следует за увеличением напряжения U_n . В то же время увеличение U_n приводит к снижению n -барьера, сдвигу квазиуровня Ферми вверх на ΔF_e и увеличению прыжковой проводимости сквозь барьер в результате увеличения заселенности состояний в хвосте зоны в n -GaN при сдвиге F_e . Медленная компонента электронного тока обусловлена инерционным увеличением прыжковой проводимости при накоплении заряда электронов в обедненной области. При приложении малого переменного напряжения \tilde{U} быстрая, по сравнению с полупериодом напряжения \tilde{U} ($\tau_{SCR} < 1/(2f)$), компонента электронного тока вносит основной вклад в активную компоненту токового отклика. Модуляция высоты n -барьера переменным напряжением приводит к модуляции прыжковой проводимости сквозь n -барьер в результате изменения заселенности состояний туннелирующими электронами. Переменный ток отстает от напряжения из-за медленного, по сравнению с полупериодом напряжения, роста прыжковой проводимости через обедненную область n -барьера. Инерционное увеличение сквозного тока приводит к индуктивному токовому отклику структуры (отрицательной емкости) на частоте 1 МГц (рис. 2).

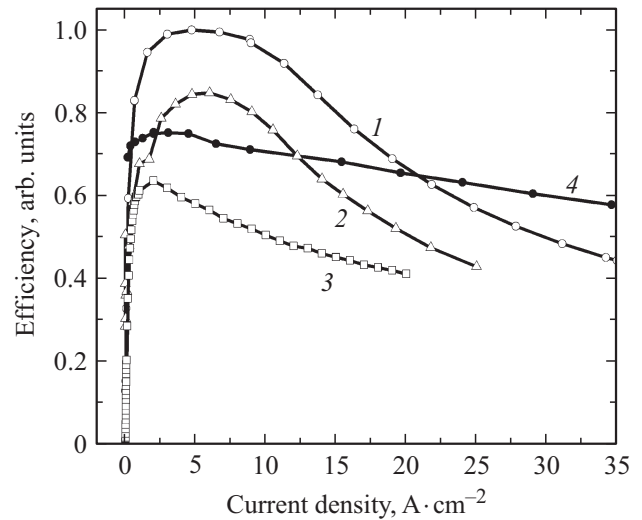


Рис. 5. Характеристики эффективность–плотность тока, иллюстрирующие влияние туннельной инжекции и туннельных утечек (1–3) и степени локализации инжектированных носителей (4) на эффективность светодиодов со световой отдачей в лм/Вт: 1 — 100, 2, 4 — 120, 3 — 75 при плотности тока A/cm^2 : 1, 4 — 40, 2 — 25, 3 — 20.

При этом реактивная проводимость может быть аппроксимирована в виде $\omega C = -\text{Im}(d\tilde{U}_n/d\tilde{U})(G_{dc} - G_{ac})$, где $\text{Im}(d\tilde{U}_n/d\tilde{U})$ — реактивная часть производной.

Проведенный выше анализ характера токового отклика структуры на постоянное и переменное напряжение позволяет сделать вывод о механизме влияния прыжковой проводимости через обедненную область на эффективность инжекции носителей. Высокая туннельная прозрачность инжекционных барьеров позволяет осуществить туннельную инжекцию непосредственно в глубокие состояния хвостов зон, что обеспечивает не только высокую эффективность инжекции, но и максимальную локализацию носителей и соответственно максимальную квантовую эффективность излучения при токе $J = J_{max}$.

При увеличении напряжения: 1) туннельное сопротивление барьера начинает ограничивать ток, 2) носители инжектируются в более мелкие состояния хвоста в квантовой яме, и степень локализации носителей понижается. Оба эти процесса могут приводить к падению эффективности с ростом тока.

Первый из них вносит наиболее существенный вклад в потери эффективности в светодиодных структурах с высокой туннельной прозрачностью инжекционных барьеров. В случае высокой прыжковой проводимости через n -барьер вдоль протяженных дефектов локальное понижение p -барьера вблизи дефектов при прямом смещении p - n -перехода может быть существенно выше, чем в бездефектных участках. В этом случае дефекты формируют потенциальный рельеф в плоскости квантовой ямы, что приводит к росту локальных токов утечки через дефекты. Так как прыжковая проводимость через

обедненную n -область увеличивается с напряжением, ток утечки растет с напряжением быстрее инжекционного тока, что объясняет резкое падение эффективности в светодиодах с высокой туннельной прозрачностью барьеров [16]. Так как в таких светодиодах повышены и туннельные утечки при малых напряжениях $U \leq U_{th}$, в них при увеличении тока наблюдается резкий пик эффективности вблизи $U_j = h\nu_{low}/q$, и эффективность быстро уменьшается и при $J > J_{max}$, и при $J < J_{max}$, а при рабочих токах напряжение на p - n -переходе может едва достигать $U_j = h\nu_p/q$. Типичная для таких светодиодов кривая эффективность — плотность тока приведена на рис. 5 (кривая 1). В случае больших туннельных утечек при больших (или малых) напряжениях пик кривой $\eta(j)$ смещается в область больших (или малых) токов (рис. 5, кривые 2 и 3).

В исследуемых светодиодах пик кривой $\eta(j)$ не является резким (рис. 5, кривая 4), эффективность слабо падает и при $J > J_{max}$, и при $J < J_{max}$, максимальная эффективность наблюдается вблизи $U_j = h\nu_p/q$, а при рабочих токах напряжение на p - n -переходе близко к $U_j = E_{g,InGaN}/q$. Это позволяет предположить, что на падение эффективности существенно влияет уменьшение степени локализации носителей.

4.3. Энергетическая релаксация носителей, инжектированных в квантовую яму InGaN/GaN

4.3.1. Уменьшение средней энергии локализации носителей при высоких уровнях инжекции. Механизмы энергетической релаксации и локализации носителей при низком и высоком уровне инжекции в квантовую яму, а также механизм формирования спектра излучения иллюстрирует рис. 6, где схематично представлен процесс релаксации электронов в хвосте зоны проводимости (рис. 6, *a, c*).

При низком уровне инжекции (рис. 6, *a*) электроны, инжектированные первоначально в зону проводимости квантовой ямы, затем захватываются на состояния хвоста, однородно заселяя их в течение времени $\sim 10^{-12}$ с. Основная часть инжектированных электронов концентрируется в мелких состояниях хвоста с плотностью состояний $g(E) = g_0 \exp(E - E_{me}/E_U)$, где $E = h\nu$, $E_U > kT$ — параметр Урбаха, g_0 — плотность состояний на пороге подвижности E_{me} [27–29]. Электроны, захваченные в мелкие состояния хвоста, быстро теряют энергию в результате туннельных перескоков (прыжков вниз по энергии) в состояния хвоста с меньшей энергией [30–33]. Так как скорость прыжковой термализации экспоненциально зависит от плотности незаселенных глубоких состояний хвоста, процесс термализации замедляется по мере того, как электроны термализуются глубже в состояния хвоста [30]. В результате электроны аккумулируются вблизи транспортного уровня $E_t < E_{me}$, для которого времена прыжков вниз τ_{hop} и вверх τ_{th} по энергии равны [30]. Основная часть электронов

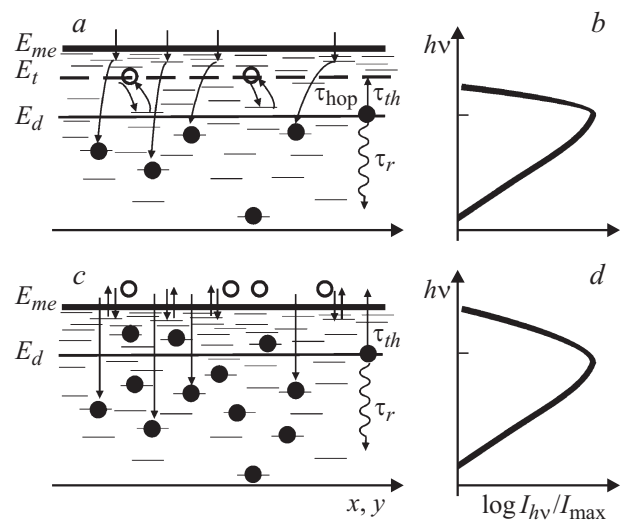


Рис. 6. Иллюстрация механизма прыжковой термализации инжектированных электронов между состояниями хвоста в зоне проводимости квантовой ямы с последующей излучательной рекомбинацией (*a*) и нормализованные спектры излучения (*b*) при низком уровне инжекции. Иллюстрация процесса заполнения состояний хвоста прямым захватом электронов из зоны проводимости и термического возбуждения захваченных электронов из мелких состояний хвоста на порог подвижности (*c*) и нормализованные спектры излучения (*d*) при высоком уровне инжекции. Подвижные электроны показаны открытыми кружками, локализованные электроны, рекомбинирующие излучательно, заполненными кружками. Переходы электронов показаны стрелками.

рекомбинирует излучательно вблизи демаркационного уровня $E_d = E_t - kT \ln[\tau_r \nu_s]$, для которого время теплового возбуждения на транспортный уровень E_t равно времени излучательной рекомбинации τ_r (здесь ν_s — частота перескоков на $E = E_t$) [27–29]. Быстрая прыжковая энергетическая релаксация приводит к сильной латеральной локализации носителей в локальных минимумах потенциальной энергии и высокоэнергетичной отсечке спектра излучения (рис. 6, *b* и 3).

При высоком уровне инжекции (рис. 6, *c*) скорость прыжковой термализации в более глубокие состояния хвоста уменьшается в результате частичного заполнения глубоких состояний хвоста посредством прямых захватов свободных электронов. Альтернативный процесс термализации посредством теплового возбуждения захваченных электронов из мелких состояний хвоста на порог подвижности с последующим перезахватом на более глубокие состояния хвоста начинает доминировать [27–29]. Распределение электронов в состояниях хвостов выше демаркационного уровня $E_d = E_{me} - kT \ln(\tau_r \nu_0)$ [27–29], на котором время теплового возбуждения на порог подвижности E_{me} равно τ_r , приближается к квазиравновесному, как в случае заполнения изолированных локализованных состояний (здесь ν_0 — частота перескоков на порог подвижности). Замедление прыжковой энергетической релакса-

ции носителей с ростом уровня инжекции приводит к их неполной латеральной локализации, уменьшению средней энергии локализации и сдвигу высокоэнергетичной отсечки спектра излучения к высоким энергиям (рис. 6, *d* и 3).

В рамках предложенной модели неполной локализации носителей красный сдвиг пиковой энергии и уширение низкоэнергетического крыла спектра излучения с ростом плотности тока, наблюдаемое в области I при $\Delta F < h\nu_{\text{low}}$ (см вставку к рис. 3), связаны с быстрым ростом вклада прямой туннельной инжекции в занятость глубоких состояний хвостов, в добавление к вкладу носителей, инжектированных первоначально в более мелкие состояния и термализованных посредством прыжков вниз по энергии.

Голубой сдвиг пиковой энергии с ростом плотности тока, наблюдающийся в областях II и III, объясняется постепенным приближением транспортного и демаркационного уровней к порогу подвижности. Так как при высоком уровне инжекции состояния хвоста заселяются в основном прямым захватом носителей из свободных зон в квантовой яме, спектральное положение пика излучения пиннингуются на демаркационном уровне $E_d = E_{me} - kT \ln(\tau_r \nu_0)$, пока глубокие состояния хвоста не начнут насыщаться [34].

4.3.2. Увеличение отношения плотности подвижных носителей к локализованным с ростом накачки и падение эффективности. При высоком уровне инжекции (рис. 6, *c-d*), $\tau_{\text{th}} \ll \tau_{\text{hop}}$, отношение плотности захваченных на уровень $E > E_d$ носителей $n_t(E)$ к концентрации свободных носителей n , полученное из баланса скорости захвата и скорости теплового возбуждения носителей, определяется произведением $g(E)$ и бoльцмановской функции: $n_t(E)/n = \exp[(E_{me} - E)/E_{\text{th}}]$ с характеристической энергией $E_{\text{th}} = kT/(1 - kT/E_U)$ [28]. Отсюда интенсивность излучения $I(h\nu)$ при $h\nu \gg h\nu_p$: $I(h\nu) \propto \exp(-h\nu/E_{\text{th}})$. Принимая $E_U = 70$ мэВ, полученное из наклона низкоэнергетического крыла спектров излучения $\log I(h\nu)$, получаем $E_{\text{th}} = 41$ мэВ. Активационная энергия, оцененная из наклона высокоэнергетического крыла спектра излучения $\log I(h\nu)$, измеренного при $j = 40$ А/см², для интервала энергий 2.92–3.02 эВ составила $E_{\text{app}} = 43$ мэВ, что указывает на то, что при высокой плотности тока функция занятости состояний хвостов в активной области приближается к бoльцмановской. Однако с уменьшением плотности тока наклон высокоэнергетического крыла спектра уменьшается с увеличением энергии фотона быстрее, чем можно было бы ожидать в случае бoльцмановского распределения носителей, и отклонение от квазиравновесного распределения становится более значительным. Это предполагает, что носители покидают мелкие состояния быстрее, чем могут быть термически возбуждены на порог подвижности.

Рассмотрим, как туннелирование между состояниями хвоста влияет на наклон высокоэнергетического крыла спектра излучения.

При низком уровне инжекции кинетическое уравнение для плотности носителей $n_t(E)$, локализованных в состояниях хвоста с энергией E , может быть записано в виде

$$\frac{n_t(E)}{\tau(E)} = \gamma n g(E) + \int_E^{E_{me}} e(E' \rightarrow E) n_t(E') dE'. \quad (1)$$

Здесь $\tau(E)$ — время жизни локализованных носителей, которое определяется временами излучательной рекомбинации τ_r , туннельных переходов в более глубокие состояния $\tau_{\text{hop}}(E)$ и термического возбуждения $\tau_{\text{th}}(E \rightarrow E')$ в более мелкие состояния с энергией $E' > E$ и на порог подвижности $\tau_{\text{th}}(E \rightarrow E_{me})$:

$$\tau^{-1}(E) = \tau_r^{-1} + \tau_{\text{hop}}^{-1}(E) + \tau_{\text{th}}^{-1}(E \rightarrow E') + \tau_{\text{th}}^{-1}(E - E_{me}).$$

Первый член справа в (1) представляет скорость прямого захвата свободных носителей в предположении, что $\gamma n \tau(E) \ll 1$. Второй член представляет скорость туннельных переходов из более мелких состояний с энергией $E' > E$ в состояния с энергией E с вероятностью переходов $w(E' \rightarrow E) = \tau_{\text{hop}}^{-1}(E') g(E)/(g(E') E_U)$. Характерное время прыжковой термализации τ_{hop} увеличивается с уменьшением энергии E из-за быстрого уменьшения плотности нижележащих по энергии состояний:

$$\tau_{\text{hop}}(E) = \tau_r [1 + \exp((E - E_t)/E_{\text{hop}})]^{-1}, \quad (2)$$

где E_{hop} — характеристическая энергия [31–33]. Предполагая, что для носителей, захваченных в мелкие состояния, определяющий скорость переходов процесс — термализация посредством прыжков вниз по энергии [30,31] и $\tau_{\text{hop}}(E) \ll \tau_{\text{th}}(E \rightarrow E') \ll \tau_{\text{th}}(E \rightarrow E_{me})$, получаем решение (1) в виде

$$\begin{aligned} n_t(E) &= \gamma n g(E) \tau_{\text{hop}}(E) \exp[(E_{me} - E)/E_U] \\ &= \gamma n g_0 \tau_{\text{hop}}(E). \end{aligned} \quad (3)$$

Таким образом, плотность локализованных носителей $n_t(E)$ не зависит от $g(E)$, так как увеличение плотности состояний $g(E)$ с увеличением энергии E полностью компенсируется уменьшением скорости перескоков носителей из более мелких состояний. Интенсивность излучения с энергией $h\nu > h\nu_p$ соответственно выразится как

$$I(h\nu) \propto n \nu_0 \exp[(E_t - h\nu)/E_{\text{hop}}]. \quad (4)$$

Для отношения концентраций захваченных на уровень $E > E_d$ и свободных носителей при низком уровне инжекции (рис. 6, *a, b*) и $\tau_{\text{th}} \gg \tau_{\text{hop}}$ [30] получаем: $n_t(E)/n = \nu_0 \tau_{\text{hop}}(E) = \nu_0 \tau_r \exp[(E_t - h\nu)/E_{\text{hop}}]$, где $\gamma g_0 = \nu_0$.

Величина энергии E_{hop} , оцененная из спектра излучения $\log I(h\nu)$ при $j = 4$ А/см² по наклону спектра на высокоэнергетическом краю, составила $E_{\text{hop}} = 21$ мэВ.

Таким образом, по мере того как процесс прыжковой термализации становится медленнее с увеличением уровня инжекции, наклон высокоэнергетичного крыла спектра излучения уменьшается и баланс между локализованными и свободными носителями сдвигается в сторону более высокой концентрации свободных носителей. Следовательно, эффективность захвата носителей в локальные энергетические минимумы в квантовой яме уменьшается с ростом уровня инжекции, в то время как поток дырок в потенциальные минимумы, создаваемые дефектами, увеличивается, приводя к уменьшению эффективности излучения $\delta\eta/\eta_p = (J_{n/\text{rad}}/J_{\text{rad}})$. Неполная латеральная локализация носителей сопровождается увеличением туннельно-рекомбинационных токов утечки через дефекты структуры [9], приводя к безызлучательным потерям и постепенному шунтированию удерживающего n -барьера туннельной утечкой.

В рамках модели неполной локализации носителей можно получить соотношение между уширением спектра излучения δE_d и уменьшением эффективности $\delta\eta/\eta_p$ с ростом накачки. Так как концентрация захваченных носителей на уровне хвоста состояний вблизи демаркационного уровня $E_d, n_t(E)$ изменяется с энергией примерно линейно, с увеличением плотности тока от j_p до j , уменьшение отношения концентраций локализованных и свободных носителей при увеличении тока на единичный ток $\delta(n_t(E_p)/n)$ пропорционально уширению высокоэнергетичного крыла спектра (рис. 6, а).

Величина падения эффективности $\delta\eta/\eta_p = \delta(J_{n/\text{rad}}/J_{\text{rad}}) = \delta(n_t/n)$ может быть оценена как относительное уширение спектра излучения на половине максимума (т. е. при $E = E_d$), как

$$\delta\eta(j)/\eta_p = \delta E_d/[E_d(j) - E_p]. \quad (5)$$

Ширина спектра на половине максимума увеличивается на $\delta E_d = 18$ мэВ, достигая $E_d(j) - E_p = 70$ мэВ, при увеличении плотности тока от 4 до 40 А/см² (рис. 3). Это дает $\delta\eta(j)/\eta_p = 0.26$, что хорошо согласуется с величиной падения эффективности 25.5%, наблюдаемой экспериментально для этого диапазона плотностей.

Предложенный подход хорошо согласуется с поведением кривых $\eta_{hv}(hv)$ при увеличении плотности тока (рис. 4). По мере того как плотность тока растет, точка пересечения кривых hv^* (отмеченная стрелками) при $hv > hv_p$, сдвигается к более высоким энергиям. Спектральная эффективность при $hv < hv^*$ уменьшается с ростом j в результате уменьшения скорости энергетической релаксации в глубоко локализованные состояния. Но при низких и средних плотностях тока уменьшение η_{hv} при $hv < hv^*$ сопровождается увеличением η_{hv} при $hv > hv^*$. В результате эффективность η почти не меняется (рис. 1, а), так как релаксирующие перескоками между состояниями хвоста носители аккумулируются в основном в глубоких состояниях хвоста. При высокой плотности тока спектральный диапазон уменьшения η_{hv}

расширяется, так как релаксирующие носители аккумулируются в мелких состояниях хвоста и отношение концентраций свободных и локализованных носителей возрастает, приводя к падению эффективности η .

Неполная локализация носителей может быть также причиной уменьшения эффективности излучения в толстых слоях InGaN [3,35] и в неполярных светодиодах [36], так как резкая высокоэнергетичная отсечка и уменьшение высокоэнергетичного наклона спектров излучения с увеличением накачки отчетливо видны в опубликованных спектрах излучения.

В области больших токов и напряжений III эффективность излучения фотонов на коротковолновом краю спектра слабо растет с увеличением тока (рис. 4). Отсюда заполнение мелких состояний хвоста, плотность подвижных носителей и их поток к дефектам пропорциональны току. Соответственно уменьшение числа носителей в глубоколокализованных состояниях хвоста также пропорционально току и эффективность излучения падает практически линейно с ростом тока.

Можно сделать вывод, что механизм неполной локализации носителей в хвостах зон квантовой ямы оказывает доминирующее влияние на эффективность в светодиодах с малым уровнем туннельной инжекции, в которых максимум эффективности наблюдается при напряжении вблизи $U_j = hv_p/q$ и в области рабочих токов напряжение на p - n -переходе приближается к $U_j \approx E_{g,\text{InGaN}}/q$. Для этих светодиодов характерна также резкая отсечка коротковолнового крыла спектра. Неполная локализация носителей проявляется в близком к линейному падению эффективности с ростом тока.

Отметим, что неполная локализация носителей, в отличие от оже-рекомбинации, не приводит к фундаментальному ограничению квантовой эффективности излучательной рекомбинации, так как приводит к снижению эффективности только в присутствии электрически активных дефектов. Таким образом, оба рассмотренных выше механизма уменьшения эффективности при высоких накачках — туннельные утечки носителей и неполная локализация носителей — обусловлены в конечном счете дефектами, и падение эффективности может быть устранено совершенствованием качества материала.

5. Заключение

Показано, что падение эффективности с увеличением плотности тока в светодиодных p - n -структурах с квантовыми ямами InGaN/GaN сопровождается рядом особенностей в их характеристиках: уменьшением дифференциальной крутизны статической вольт-амперной характеристики, индуктивным характером динамического токового отклика (отрицательной емкостью), голубым сдвигом максимума и уменьшением наклона высокоэнергетичного крыла спектра излучения квантовых ям InGaN/GaN.

Эффект падения эффективности излучения с ростом плотности тока объясняется действием двух основных механизмов, связанных с особенностями механизмов инжекции и латеральной локализации носителей в композиционных флуктуациях ширины запрещенной зоны в квантовых ямах InGaN/GaN.

Резкое падение эффективности с ростом тока вызвано ростом локальных туннельно-рекомбинационных утечек по протяженным дефектам вследствие относительно высокой прыжковой проводимости электронов сквозь n -барьер по дефектам, понижающей высоту инжекционного p -барьера вблизи дефектов. В светодиодах с низким напряжением p - n -перехода при рабочих токах, близким к $U_j \approx hv_p/q$, утечки по протяженным дефектам могут быть причиной низкой эффективности.

Слабое, близкое к линейному, падение эффективности с ростом тока связывается с замедлением скорости энергетической релаксации носителей из мелких локализованных состояний хвостов в квантовой яме в более глубокие. Подавление локализации носителей в латеральных энергетических минимумах приводит к увеличению отношения плотности подвижных носителей к локализованным и увеличению безызлучательной рекомбинации подвижных носителей на дефектах. Механизм неполной латеральной локализации носителей ограничивает эффективность в светодиодах с относительно высоким напряжением p - n -перехода при рабочих токах, при котором разность квазиуровней Ферми достигает краев зон в квантовой яме.

Список литературы

- [1] S.F. Chichibu, A. Uedono, T. Onuma, B.A. Haskell, A. Chakraborty, T. Koyama, P.T. Fini, S. Keller, S.P. DenBaars, J.S. Speck, U.K. Mishra, S. Nakamura, S. Yamaguchi, S. Kamiyama, H. Amano, I. Akasaki, J. Han, T. Sota. *Nature Mater.*, **5**, 810 (2006).
- [2] T. Mukai, M. Yamada, S. Nakamura. *Jpn. J. Appl. Phys.*, part 1, **38**, 3976 (1999).
- [3] Y.C. Shen, G.O. Mueller, S. Watanabe, N.F. Gardner, A. Munkholm, M.R. Krames. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 141 101 (2007).
- [4] J. Iveland, L. Martinelly, J. Peretti, J.S. Speck, C. Weisbuch. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 177 406 (2013).
- [5] M.H. Kim, M.F. Schubert, Q. Dai, J.K. Kim, E.F. Schubert, J. Piprek, Y. Park. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 183 507 (2007).
- [6] A. Hori, D. Yasunaga, A. Satake, K. Fujiwara. *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 3723 (2001).
- [7] I.A. Pope, P.M. Snowton, P. Blood, J.D. Thomson, M.J. Kappers, C.J. Humphreys. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 2755 (2003).
- [8] B. Monemar, B.E. Sernelius. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 181 103 (2007).
- [9] N.I. Bochkareva, V.V. Voronenkov, R.I. Gorbunov, A.S. Zubrilov, Y.S. Lelikov, P.E. Latyshev, Y.T. Rebane, A.I. Tsyuk, Y.G. Shreter. *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 133 502 (2010).
- [10] Н.И. Бочкарева, Д.В. Тархин, Ю.Т. Ребане, Р.И. Горбунов, Ю.С. Леликов, И.А. Мартынов, Ю.Г. Шретер. *ФТП*, **41**, 88 (2007).
- [11] J. Hader, J.V. Moloney, S.W. Koch. *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 221 106 (2010).
- [12] T.J. Badcock, S. Hammersley, D. Watson-Parris, P. Dawson, M.J. Godfrey, M.J. Kappers, C. McAleese, R.A. Oliver, C.J. Humphreys. *Jap. J. Appl. Phys.*, **52**, 08JK10 (2013).
- [13] J. Mickevičius, G. Tamulaitis, M. Shur, M. Shatalov, J. Yang, R. Gacka. *Appl. Phys. Lett.*, **103**, 011 906 (2013).
- [14] Н.И. Бочкарева, В.В. Вороненков, Р.И. Горбунов, А.С. Зубрилов, Ф.Е. Латышев, Ю.С. Леликов, Ю.Т. Ребане, А.И. Цюк, Ю.Г. Шретер. *ФТП*, **46**, 1054 (2012).
- [15] N.I. Bochkareva, Y.T. Rebane, Y.G. Shreter. *Appl. Phys. Lett.*, **103**, 191 101 (2013).
- [16] Н.И. Бочкарева, В.В. Вороненков, Р.И. Горбунов, А.С. Зубрилов, Ю.С. Леликов, Ф.Е. Латышев, Ю.Т. Ребане, А.И. Цюк, Ю.Г. Шретер. *ФТП*, **44**, 822 (2010).
- [17] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, S. Nakamura. *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 4188 (1996).
- [18] P. Perlin, V. Iota, B.A. Weinstein, P. Wisniewski, T. Suski, P.G. Eliseev, M. Osinski. *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 2993 (1997).
- [19] Y. Narukava, Y. Kavakami, S. Fujita, S. Nakamura. *Phys. Rev. B*, **59**, 10 283 (1999).
- [20] A. David, M.J. Grundmann, J.F. Kaeding, N.F. Gardner, T.G. Mihopoulos, M.R. Krames. *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 053 502 (2008).
- [21] H.C. Casey, jr, J. Muth, S. Krishnankutty, J.M. Zavada. *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 2867 (1996).
- [22] P. Perlin, M. Osinski, P.G. Eliseev, V.A. Smagley, J. Mu, M. Banas, P. Sartori. *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 1680 (1996).
- [23] Н.И. Бочкарева, Е.А. Zhirnov, А.А. Ефремов, Ю.Т. Ребане, Р.И. Горбунов, Ю.Г. Шретер. *ФТП*, **39**, 627 (2005).
- [24] N.F. Mott, E.A. Davis. *Electronic processes in Non-Crystalline Materials*, 2nd ed. (Clarendon Press, Oxford, 1979).
- [25] R.J. Molnar, T. Lei, T.D. Moustakas. *Appl. Phys. Lett.*, **62**, 72 (1993).
- [26] Н.И. Бочкарева, В.В. Вороненков, Р.И. Горбунов, Ф.Е. Латышев, Ю.С. Леликов, Ю.Т. Ребане, А.И. Цюк, Ю.Г. Шретер. *ФТП*, **47**, 115 (2013).
- [27] A. Rose. *Concept in Photoconductivity and Allied Problems* (Krieger, N. Y., 1978).
- [28] T. Tiedje, A. Rose. *Sol. St. Commun*, **37**, 49 (1980).
- [29] J. Orenstein, M. Kastner. *Phys. Rev. Lett.*, **46**, 1421 (1981).
- [30] D. Monroe. *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 146 (1985).
- [31] C. Gourdon, P. Lavallard. *Phys. Status Solidi B*, **153**, 641 (1989).
- [32] Y. Narukava, Y. Kawakami, S. Fujita, S. Fujita, S. Nakamura. *Phys. Rev. B*, **55**, R1938 (1997).
- [33] S.F. Chichibu, H. Marchand, M.S. Minsky, S. Keller, P.T. Fini, J.P. Ibbetson, S.B. Fleischer, J.S. Speck, J.E. Bowers, E. Hu, U.K. Mishra, S.P. DenBaars, T. Deguchi, T. Sota, S. Nakamura. *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 1460 (1999).
- [34] P.G. Eliseev, P. Perlin, J. Lee, M. Osinski. *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 569 (1997).
- [35] Y.H. Cho, T.J. Schmidt, S. Bidnyk, G.H. Gainer, J.J. Song, S. Keller, U.K. Mishra, S.P. DenBaars. *Phys. Rev. B*, **61**, 7571 (2000).
- [36] A. Chakraborty, B.A. Haskell, S. Keller, J.S. Speck, S.P. DenBaars, S. Nakamura, U.K. Mishra. *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 5143 (2004).

Редактор Т.А. Полянская

Efficiency droop in GaN light-emitting diodes at high current densities: tunneling leakage currents and incomplete lateral carrier localization in InGaN/GaN quantum wells

N.I. Bochkareva, Y.T. Rebane, Y.G. Shreter

Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

Abstract A phenomenon of emission efficiency droop of InGaN/GaN quantum wells (QWs) in the $p-n$ -structures of light-emitting diodes is studied. Two basic processes: tunnel injection in the QW and incomplete lateral carrier localisation in compositional fluctuations of the energy gap in QW, and their effect on the efficiency are discussed. A sharp peak in efficiency at low currents followed by a rapid efficiency droop with increasing current are due to electron tunneling leakages along the extended defects caused by a local increase in the electron hopping conductivity via depletion n -region and local lowering of injection p -barrier accordingly. The less sharp efficiency peak and a lower, close to linear efficiency droop are caused by incomplete lateral carrier localization in the QW due to slowing-down of carrier energy relaxation rate and nonradiative recombination of mobile carriers.