

Влияние температуры на механизм инжекции носителей в светодиодах на основе множественных квантовых ям InGaN/GaN

© И.А. Прудаев[†], И.Ю. Голыгин, С.Б. Ширапов, И.С. Романов, С.С. Хлудков, О.П. Толбанов

Томский государственный университет,
634050 Томск, Россия

(Получена 4 февраля 2013 г. Принята к печати 13 февраля 2013 г.)

Представлены экспериментальные вольт-амперные характеристики и зависимости внешнего квантового выхода от плотности тока светодиодов на основе множественных квантовых ям InGaN/GaN для широкого интервала температур $T = 10\text{--}400$ К. Показано, что в области низких температур, при $T < 100$ К, инжекция дырок в квантовые ямы происходит из локализованных состояний акцепторов. Инжекция электронов в p -GaN при низких температурах происходит за счет квазибаллистического транспорта в области множественных квантовых ям. Рост температуры приводит к увеличению тока, обусловленного термически активированной инжекцией дырок и электронов из разрешенных зон GaN.

1. Введение

Ранее исследование механизмов инжекции носителей заряда в светодиодах на основе множественных квантовых ям (МКЯ) InGaN/GaN проводилось с целью объяснения ряда эффектов, характерных для приборов на основе нитридных полупроводниковых соединений. Так, при объяснении причин увеличения коэффициента неидеальности вольт-амперной характеристики (n) до значений $n > 2$, авторами работ [1,2] рассматривались процессы термически активированной и туннельной инжекции электронов. Для объяснения резкого спада внешнего квантового выхода (η) при увеличении плотности тока (j) авторами работ [3,4] рассматривались высокий уровень инжекции электронов из области МКЯ в p -GaN и квазибаллистическая инжекция из n -GaN в p -GaN. Целью настоящей работы являлось экспериментальное исследование вольт-амперных характеристик (ВАХ) и механизмов инжекции носителей для широкого интервала температур. Анализ полученных результатов позволил выявить новый механизм инжекции носителей из локализованных состояний и выделить участок квазибаллистической инжекции на ВАХ в области низких температур.

2. Методика эксперимента

Для исследования были выбраны две партии высокоэффективных светодиодов „синего“ диапазона различных производителей: 1 — ES-CABL45C фирмы Epistar; 2 — SL-V-B40AK фирмы Semileds. Согласно паспортным данным, коэффициент полезного действия светодиодов при комнатной температуре был не менее $\sim 25\%$ при $j \approx 30$ А/см². Светодиоды из партии 1 изготовлены по планарной технологии, из партии 2 — с использованием технологии „lift-off“. Площадь диодов $S \approx 1.2$ и 1.1 мм².

Структуры обоих типов выращены на сапфировых подложках методом эпитаксии из металлоорганических соединений в направлении [0001], активная область содержит множественные квантовые ямы InGaN/GaN и барьерный слой p -AlGaIn. По данным измерений фототока при резонансном возбуждении и вольт-фарядных характеристик светодиодов установлено, что активная область структур содержит не менее 4 квантовых ям; толщина барьеров n -GaIn в области МКЯ равна $\sim (8\text{--}12)$ нм, концентрация донорной примеси Si в n -GaIn равна $\sim (2\text{--}5) \cdot 10^{18}$ см⁻³; концентрация акцептора Mg в p -GaIn не менее $\sim (2\text{--}5) \cdot 10^{19}$ см⁻³.

В ходе эксперимента измеряли прямые ВАХ светодиодов и зависимость внешнего квантового выхода от плотности тока. Измерения проводились в интервале температур $T = 10\text{--}400$ К с использованием оптического криостата фирмы Janis и регулятора температуры Lake Shore (Model 331 Temperature Controller). При плотности тока $j \leq 1\text{--}3$ А/см² измерения проводили в статическом режиме с использованием прибора Keithley 2636A. При $j = 3\text{--}300$ А/см² измерения проводили в импульсном режиме с использованием осциллографа LeCroy104Xs; длительность импульсов составляла 20 мкс, частота — 50 Гц. Измерения оптической мощности и спектров электролюминесценции проводили при помощи кремниевого фотоприемника ФДУК-13, а также цифрового спектрометра Ocean Optics USB2000. Из каждой партии выбиралось по 5 светодиодов, для которых измерялись характеристики при комнатной температуре. Измерения в широком интервале температур проводились для 2 диодов из каждой партии.

3. Результаты эксперимента

На рис. 1 и 2 представлены прямые ВАХ светодиодов. Для всех температур можно выделить три основных участка. На первом участке зависимость тока j от напря-

[†] E-mail: jaiia@pochta.ru

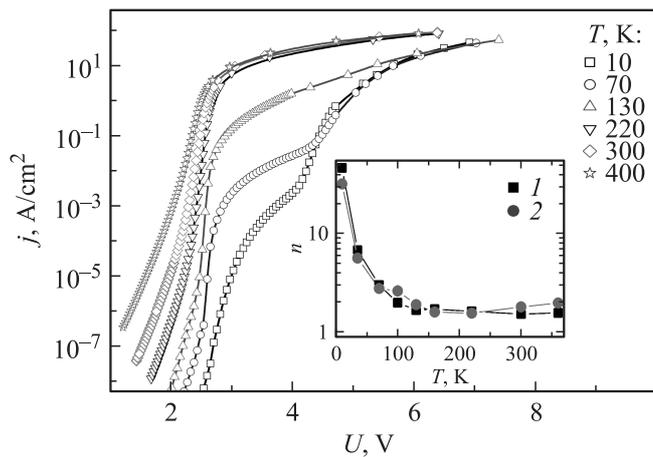


Рис. 1. Семейство прямых ВАХ светодиода из партии 1 для температур $T = 10\text{--}400$ К. На вставке — зависимость минимального значения коэффициента неидеальности от температуры для диодов из партий 1 (1) и 2 (2).

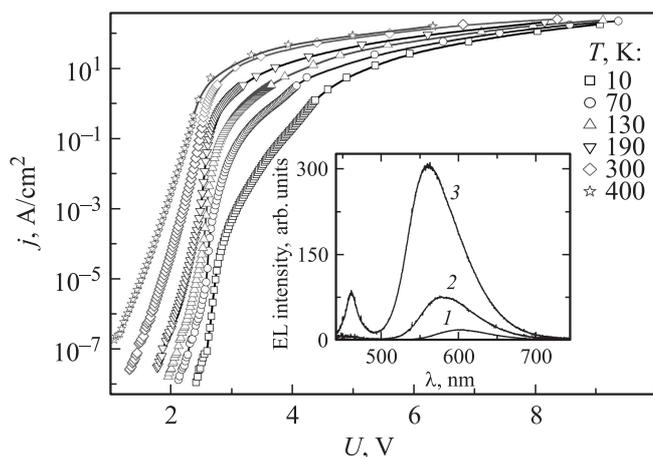


Рис. 2. Семейство прямых ВАХ светодиода из партии 2 для температур $T = 10\text{--}400$ К. На вставке — спектры электролюминесценции (EL) светодиода при $T = 300$ К и напряжениях $U, \text{В}$: 1 — 2.0, 2 — 2.1, 3 — 2.2.

жения U близка к экспоненциальной: $j \propto \exp(AU)$. Например, для светодиодов из первой партии данный участок при $T = 220$ К соответствует напряжениям $U \leq 2$ В (рис. 1). В интервале $T = 10\text{--}400$ К коэффициент A изменяется в пределах $13.3\text{--}9.3 \text{ В}^{-1}$ для светодиодов из партии 1 и $12.3\text{--}10.1 \text{ В}^{-1}$ для светодиодов из партии 2. Для диодов из партии 2 ток на данном участке выше в $\sim (3\text{--}5)$ раз. Дополнительные исследования показали, что диоды из партии 2 имеют широкую длинноволновую полосу электролюминесценции при напряжениях $U = 1.8\text{--}2.3$ В (см. вставку на рис. 2). Перечисленные факты в совокупности с представленными в литературе данными [2,5] указывают на то, что первый участок связан с протеканием туннельных токов в области МКЯ.

На втором участке наблюдается более резкий экспоненциальный рост тока:

$$j = j_0 \exp\left(\frac{eU}{nkT}\right) \quad (1)$$

где e — элементарный заряд, k — константа Больцмана, $j_0 = j_0(T)$, $n = n(U)$. При высоких температурах второй участок становится неразличим из-за высоких туннельных токов первого участка. В интервале $T = 160\text{--}360$ К минимальное значение коэффициента неидеальности составляет $n(U) \approx 1.5\text{--}2$ и он слабо изменяется с температурой (см. вставку к рис. 1). При понижении температуры от 130 до 10 К коэффициент n возрастает, что качественно согласуется с результатами работы [2]. Для температур, близких к комнатной, данный участок чаще всего связывают с термически активированной инжекцией носителей из разрешенных зон в активную область МКЯ и рекомбинацией [6,7].

После второго участка следует переход к линейному участку, обусловленному пассивным сопротивлением светодиодов и измерительной цепи. В условиях нашего эксперимента сопротивление измерительной цепи не превышало нескольких сотен мОм. Сопротивление R участка при $T = 300$ К, измеренное в импульсном режиме при $U > 5\text{--}6$ В, составляет ~ 3 и ~ 1.5 Ом для светодиодов партий 1 и 2 соответственно. Аналогично результатам работы [8] рост температуры приводит к слабому росту измеренного сопротивления во всем интервале температур (изменение составляет не более 30%).

Вольт-амперная характеристика на третьем (переходном) участке качественно изменяется при изменении температуры. Для диодов из партии 1 при $T > 200$ К ВАХ хорошо описывается формулой

$$j = j_0 \exp[e(U - jRS)/nkT]. \quad (2)$$

Для диодов с меньшим сопротивлением R (из партии 2) ВАХ лучше описывается при добавлении нелинейного члена:

$$j = j_0 \exp[e(U - jRS - rj^{1/m})/nkT], \quad (3)$$

где $r = r(T)$ и уменьшается с ростом температуры, $m = 2\text{--}3$. Данные результаты качественно сопоставимы с результатами работ, в которых для объяснения вида ВАХ привлекаются механизмы двойной инжекции в компенсированную область между p - и n -областями [6], туннельной инжекции в структурах с одной квантовой ямой [9] и высокого уровня инжекции электронов из МКЯ в p -GaN [10].

При $T < 100$ К ВАХ на переходном участке усложняется. В области больших напряжений ($U > 3.8\text{--}4$ В) появляется точка перегиба, после которой ток с ростом напряжения увеличивается быстрее. Для диодов из партии 1 данный участок выражен ярче, а также наблюдается температурная инверсия тока. Точка перегиба соответствует началу участка резкого падения внешнего квантового выхода с увеличением плотности тока.

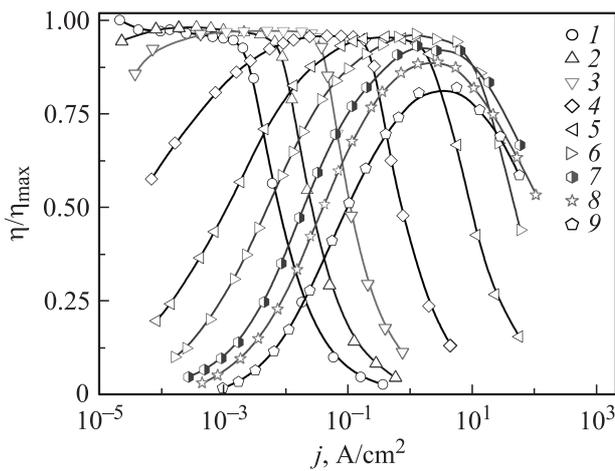


Рис. 3. Нормированная на максимальное значение (η_{\max}) зависимость внешнего квантового выхода (η) от плотности тока светодиода из партии 1 при температурах T , К: 1 — 10, 2 — 35, 3 — 70, 4 — 100, 5 — 130, 6 — 160, 7 — 220, 8 — 300, 9 — 360.

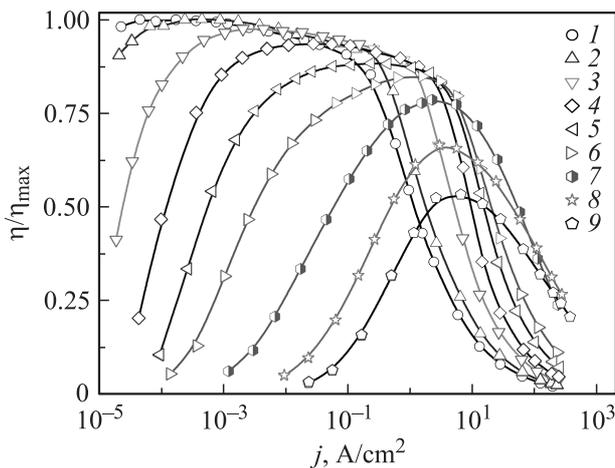


Рис. 4. Нормированная на максимальное значение (η_{\max}) зависимость внешнего квантового выхода (η) от плотности тока светодиода из партии 2 при различных температурах T , К: 1 — 10, 2 — 35, 3 — 70, 4 — 100, 5 — 130, 6 — 160, 7 — 220, 8 — 300, 9 — 360.

Нормированные зависимости внешнего квантового выхода, η/η_{\max} , от j представлены на рис. 3 и 4. Полученные экспериментальные данные $\eta = \eta(j, T)$ согласуются с результатами других работ, например [10]. В области $T < 35$ К η слабо уменьшается с ростом j до порогового значения j_{th} , после которого начинается резкий спад η ; в области больших j зависимость $\eta(j)$ хорошо описывается формулой $\eta \propto j^{-t}$. Значение параметра t практически не изменяется при дальнейшем росте T и составляет $\sim (0.6-0.7)$ для обеих партий диодов ($T < 220$ К). Рост температуры приводит к резкому уменьшению квантового выхода в области малых j , сдвигу j_{th} в область больших значений и слабому уменьшению $\eta(j_{\text{th}})$.

4. Обсуждение результатов

В общем полученные результаты согласуются с представленными ранее другими авторами [5–10]. На ВАХ также наблюдаются участки, связанные с туннельными и рекомбинационными токами, температурно-зависимый участок перехода от рекомбинационного тока к омическому. Сложный характер второго и третьего участков ВАХ в области $T < 100$ К, по-видимому, обнаружен нами впервые для светодиодов на основе МКЯ. Для анализа механизма протекания тока в данной области температур рассмотрим результаты по зависимости η от j .

На втором участке ВАХ квантовый выход сохраняет высокое значение при низких температурах до некоторого порогового тока j_{th} (например, на рис. 3 для $T = 35$ К $j_{\text{th}} \sim 10^{-2}$ А/см²). Из этого следует, что ток в данной области T и j обусловлен в основном процессами излучательной рекомбинации. Несложно показать, что в случае инжекции носителей в область МКЯ из разрешенных зон ВАХ можно описать выражениями (1), (2) или (3) с $n = 1$. Однако это противоречит экспериментальным данным. Мы считаем, что для объяснения экспериментального результата следует учитывать доминирующее влияние инжекции дырок из локализованных акцепторных состояний Mg. Для подтверждения данного предположения покажем далее, что концентрация дырок в валентной зоне p -GaN недостаточна для поддержания экспериментально наблюдаемых значений рекомбинационного тока.

Будем считать, что ток при низких температурах ограничен скоростью поступления дырок в область МКЯ. Это условие оправданно, так как концентрация электронов в n -GaN, много больше концентрации дырок в p -GaN при любых температурах. На это указывают экспериментальные данные [11], согласно которым удельное сопротивление n -GaN, легированного Si, уменьшается не более чем на 1 порядок при уменьшении температуры до 10 К. При этом сопротивление p -GaN уменьшается более чем на 3 порядка [12]. С другой стороны, длина свободного пробега электронов сопоставима с толщиной области МКЯ [4,13]. Тогда максимальное значение плотности тока излучательной рекомбинации (j_r^{\max}) должно определяться концентрацией свободных равновесных дырок в p -GaN, и из условия непрерывности тока следует:

$$j_r^{\max} = epv, \tag{4}$$

где p — концентрация свободных дырок, v — скорость дырок. Если принять $v \sim 10^7$ см/с, то $j_r^{\max} \approx 2 \cdot 10^{-12} p$. При $T < 100$ К для экспериментальных значений $j_r^{\max} \approx 0.1-1$ А/см² концентрация дырок должна равняться $p = (5-50) \cdot 10^{10}$ см⁻³. Данное значение может быть существенно выше концентрации свободных носителей в p -GaN при $T < 100$ К. На это, в частности, указывают экспериментальные данные работы [12], из

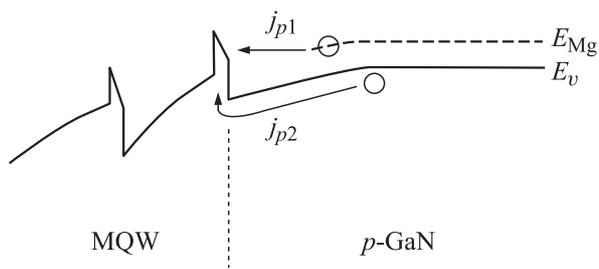


Рис. 5. Схематическое изображение механизма инжекции в квантовую яму за счет туннелирования из локализованных состояний акцептора (ток j_{p1}) и термической активации из валентной зоны (ток j_{p2}). E_{Mg} , E_v — энергетические уровни акцептора Mg и потолка валентной зоны соответственно, MQW — множественные квантовые ямы.

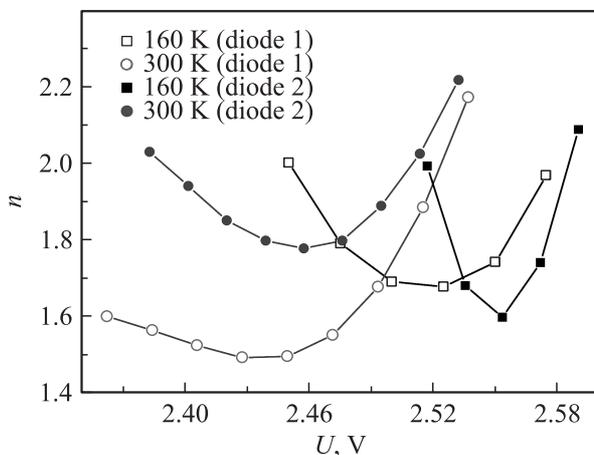


Рис. 6. Зависимость коэффициента неидеальности n от напряжения на втором участке ВАХ светодиодов из двух партий (1 и 2) для различных температур.

которых следует, что при $T < 160\text{--}200\text{ K}$ в $p\text{-GaN}$, легированном Mg, наблюдается переход к проводимости по примесной зоне. Согласно данным этой же работы, концентрация свободных носителей при $T < 100\text{ K}$ не превышает $\sim 10^{10}\text{ см}^{-3}$. Из представленных результатов следует, что при низких температурах инжекция дырок в основном реализуется не из разрешенной зоны, а из примесных состояний Mg за счет туннелирования (рис. 5).

Следует отметить, что для диодов из партии 2 рекомбинационный ток на рассматриваемом участке существенно выше (до 1–2 порядков). Данные диоды отличаются также более высокими туннельными токами и наличием длинноволновой линии туннельно-рекомбинационной электролюминесценции. По-видимому, высокая концентрация дефектов облегчает процессы туннельной инжекции из локализованных состояний в область МКЯ. Вследствие этого при температурах $T > 100\text{ K}$ наряду с термически активированной инжекцией в формирование ВАХ может давать вклад инжекция из локализованных

состояний Mg, если концентрация дефектов в структуре высока. Оценка предельной температуры, при которой инжекцией из локализованных состояний можно пренебречь, выходит за рамки настоящей работы. Здесь можно лишь отметить, что данный механизм инжекции привлекался ранее другими авторами для объяснения аномального поведения прямых ВАХ светодиодов на основе InGaN/GaN при комнатной температуре [14].

Точка перегиба ВАХ при $j = j_{th}$ и $T < 100\text{ K}$ соответствует переходу к новому механизму инжекции. Согласно данным работ [3,4,10], резкое падение квантового выхода, которое в нашем случае соответствует новому участку ВАХ, связано с утечкой электронов в $p\text{-GaN}$. При низких температурах наиболее вероятен механизм квазибаллистической инжекции электронов из $n\text{-GaN}$ в $p\text{-GaN}$, так как концентрация равновесных свободных электронов в области МКЯ много меньше концентрации электронов в $n\text{-GaN}$. При повышении температуры вклад в утечку электронов от равновесных носителей области МКЯ должен расти. Однако сохранение вида степенной зависимости $\eta \propto j^{-t}$ при увеличении T позволяет утверждать, что квазибаллистический режим инжекции электронов является преобладающим по крайней мере до $T = 220\text{ K}$.

Дальнейший рост температуры ($T > 100\text{ K}$) усложняет интерпретацию ВАХ во второй и третьей областях. При средних температурах следует учитывать два вида инжекции дырок из $p\text{-GaN}$ (рис. 5) и по крайней мере два механизма рекомбинации — безызлучательную с участием дефектов и излучательную (зона–зона). В области высоких температур на втором участке ВАХ существенный вклад могут давать туннельные токи первого участка. Диффузионный ток электронов из области МКЯ в $p\text{-GaN}$, который принято характеризовать зависимостью вида (1) с $n = 1$, не должен давать существенного вклада в формирование второго участка ВАХ. На это указывает высокое значение $\eta(j_{th})$ во всем интервале температур.

Следует отметить, что коэффициент n не принимает постоянного значения при изменении напряжения (рис. 6). Температурная зависимость параметра j_0 из (1) не подчиняется экспоненциальному закону в области $T = 160\text{--}360\text{ K}$. При этом эффективные значения энергии активации, полученные при аппроксимации $j_0(T^{-1})$ экспонентой, равны ~ 1.6 и $\sim 2.2\text{ эВ}$ для диодов из партий 1 и 2 соответственно. Данные значения не совпадают с шириной запрещенной зоны InGaN $E_g \approx 2.6\text{--}2.8\text{ эВ}$, что нехарактерно для излучательной рекомбинации, когда $n = 1$. С другой стороны, полученные энергии активации не равны $E_g/2$, что нехарактерно для механизма безызлучательной рекомбинации, когда $n = 2$. Таким образом, ВАХ во второй области следует описывать как минимум с учетом двух механизмов рекомбинации, что должно приводить к появлению зависимости n от U . При этом n может принимать значения от 1 до 2, что согласуется с нашими экспериментальными данными для интервала $T = 160\text{--}360\text{ K}$.

5. Заключение

Анализ прямых ВАХ светодиодов „синего“ диапазона на основе МКЯ InGaN/GaN показал, что при температурах $T < 100$ К и напряжениях $U < 3.8-4$ В ток обусловлен инжекцией дырок из локализованных состояний Mg за счет туннелирования и рекомбинацией в квантовых ямах. При напряжениях $U > 3.8-4$ В происходит переход к квазибаллистическому режиму инжекции электронов из n -GaN в p -GaN.

Рост температуры ($T > 100$ К) приводит к увеличению вклада термически активированной инжекции дырок и электронов из областей p -GaN и МКЯ соответственно. В структурах с большей концентрацией дефектов переход к термически активированному режиму инжекции происходит при более высоких температурах. Оценка температур, при которых можно пренебречь инжекцией из локализованных состояний Mg, выходит за рамки данной работы. Экспериментальные зависимости квантового выхода от плотности тока позволяют утверждать, что квазибаллистический режим инжекции электронов является преобладающим по крайней мере до температуры $T \approx 220$ К.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 12-02-31365.

Список литературы

- [1] Di Zhu, J. Xu, A.N. Noemaun, J.K. Kim, E.F. Schubert, M.H. Crawford, D.D. Koleske. Appl. Phys. Lett., **94**, 081 113 (2009).
- [2] D. Yan, H. Lu, D. Chen, R. Zhang, Y. Zheng. Appl. Phys. Lett., **96**, 083 504 (2010).
- [3] G.-B. Lin, D. Meyaard, J. Cho, E.F. Schubert, H. Shim, C. Sone. Appl. Phys. Lett., **100**, 161 106 (2012).
- [4] X. Ni, X. Li, J. Lee, S. Liu, V. Avrutin, A. Matulionis, Ü. Özgür, H. Morkoç. Superlat. Microstr., **48**, 133 (2010).
- [5] В.Е. Кудряшов, С.С. Мамакин, А.Н. Туркин, А.Э. Юнович, А.Н. Ковалев, Ф.И. Маняхин. ФТП, **35**, 861 (2001).
- [6] С.С. Мамакин, А.Э. Юнович, А.Б. Ваттана, Ф.И. Маняхин. ФТП, **37**, 1131 (2003).
- [7] L.X. Zhao, E.J. Thrush, C.J. Humphreys, W.A. Phillips. J. Appl. Phys., **103**, 024 501 (2008).
- [8] И.А. Прудаев, И.В. Ивонин, О.П. Толбанов. Изв. вузов. Физика, **54** (12), 66 (2011).
- [9] 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. Шпретер. ФТП, **44**, 822 (2010).
- [10] D.S. Meyaard, G.-B. Lin, Q. Shan, J. Cho, E.F. Schubert, H. Shim, M.-H. Kim, C. Sone. Appl. Phys. Lett., **99**, 251 115 (2011).
- [11] J.J. Harris, K.J. Lee, I. Harrison, L.B. Flannery, D. Korakakis, T.S. Cheng, C.T. Foxon, Z. Bougrioua, I. Moerman, W. Van der Stricht, E.J. Thrush, B. Hamilton, K. Ferhah. Phys. Status Solidi A, **176**, 363 (1999).
- [12] H. Nakayama, P. Hacke, M.R.H. Khan, T. Detchprochm, K. Hiramatsu, N. Sawaki. Jpn. J. Appl. Phys., **35**, 282 (1996).
- [13] D.S. Sizov, R. Bhat, A. Zakharian, K. Song, D.E. Allen, S. Coleman, Chung-en Zah. IEEE J. Select. Topics Quant. Electron., **17** (5), 1390 (2011).
- [14] M.S. Kumar, S.J. Chung, H.W. Shim, C.-H. Hong, E.-K. Suh, H.J. Lee. Semicond. Sci. Technol., **19**, 725 (2004).

Редактор Л.В. Шаронова

The temperature influence on the carrier injection mechanism in InGaN/GaN multiple quantum well light-emitting diodes

I.A. Prudaev, I.Yu. Golygin, S.B. Shirapov, I.S. Romanov, S.S. Khludkov, O.P. Tolbanov

Tomsk State University,
634050 Tomsk, Russia

Abstract Experimental current–voltage characteristics and external quantum efficiency dependences on current density in the wide temperature range, $T = 10-400$ K, for InGaN/GaN multiple quantum well light-emitting diodes are presented. It is shown that at the low temperatures, $T < 100$ K, hole injection in the quantum wells occurs from the localized states of acceptors. The electron injection in p -GaN occurs due to quasi-ballistic transport in multiple quantum well region. Temperature increase leads to increase of the current which is caused by thermally activated injection of holes and electrons from allowed bands of GaN.