

Эластичный светодиод на основе InGaN/GaN-нитевидных микрокристаллов с растяжимыми электродами на основе текстурированных одностенных углеродных нанотрубок и полидиметилсилоксана

© Д.Е. Колесина¹, Ф.М. Кочетков^{1,2}, А.А. Воробьев¹, К.Н. Новикова¹, А.С. Голтаев¹, И.С. Мухин^{1,2}

¹ Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет им. Ж.И. Алфёрова
Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

² Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
195251 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: diana666167@gmail.com

Поступила в Редакцию 26 марта 2025 г.

В окончательной редакции 23 июня 2025 г.

Принята к публикации 23 июня 2025 г.

Представлено создание эластичного светодиода на основе инкапсулированного массива нитевидных микрокристаллов структуры „ядро-оболочка“ InGaN/GaN в коммерческий полидиметилсилоксан „Sylgard 184“. Для улучшения электрических, механических свойств и удобства измерений методом проекционной оптической литографии были созданы верхний — адресный и нижний — общий пиксельные электроды. Были измерены электрофизические и оптические характеристики устройства, которые показывают, что светодиод, излучающий в синем спектральном диапазоне, обладает стабильной работой при растяжении на 10 %.

Ключевые слова: эластичная электроника, синие светодиоды, A^{III}B^V нитевидные микрокристаллы, ПДМС, углеродные нанотрубки, проекционная оптическая литография.

DOI: 10.61011/FTP.2025.03.61091.7749

1. Введение

Эластичные оптоэлектронные устройства представляют интерес для науки и техники ввиду их широкого применения в носимой электронике [1,2], биомедицинской электронике [3–5] и в индустрии одежды [6,7]. Однако доминирующей технологией на рынке на сегодняшний день является технология органических светодиодов. Органические материалы просты и недороги в производстве, однако они не устойчивы к механическим деформациям, подвержены рекристаллизации и деградации электропроводящих слоев. Кроме того, органические светодиоды, излучающие в синем спектральном диапазоне, имеют низкую внешнюю квантовую эффективность (~ 20 %, [8]) и довольно небольшой срок службы (5000 ч в сравнении с неорганическими светодиодами [9]), поэтому данная технология не подходит для устройств, где необходима долгая работа при высокой яркости. Существующая технология производства дисплеев „micro-LED“, основанная на нитридных полупроводниковых соединениях, превосходит по яркости и сроку службы, однако технология требует тщательной постростовой обработки, что влияет на стоимость конечного устройства. В то же время нитевидные микрокристаллы A^{III}B^V демонстрируют высокую квантовую эффективность, а высокое аспектное соотношение длины к диаметру обеспечивает превосходные механические характеристики [10–12]. Нитевидные микрокристаллы (НМК) могут быть инкапсулированы в различные силиконовые материалы для придания эластичности свето-

излучающему устройству. Поскольку такие устройства способны к растяжению, им необходимы растяжимые электроды. В качестве растяжимых электродов себя зарекомендовали одностенные углеродные нанотрубки (ОУНТ), полученные методом аэрозольного химического осаждения из газовой фазы [13–15] прозрачностью 80 % (при длине волны 550 нм). В работе [16] было показано, что ОУНТ, нанесенные на пленки из полидиметилсилоксана (ПДМС), сохраняют свои эксплуатационные характеристики при растяжении и обладают стабильным электрическим контактом к НМК. Кроме того, для сохранения электропроводности и оптической прозрачности при растяжении наносят рисунок методом оптической литографии [16].

Настоящая работа посвящена созданию и исследованию синего растяжимого светодиода на основе растяжимого электрода ОУНТ/ПДМС, изготовленного методом проекционной оптической литографии, у полученного светодиода измерены электрофизические, оптические и радиометрические характеристики. Светодиод демонстрирует стабильную работу при растяжении на 10 % вдоль двух осей.

2. Экспериментальная часть

2.1. Рост самоорганизованных НМК InGaN/GaN

Самоорганизованные НМК InGaN/GaN структуры „ядро-оболочка“ были выращены методом осаждения

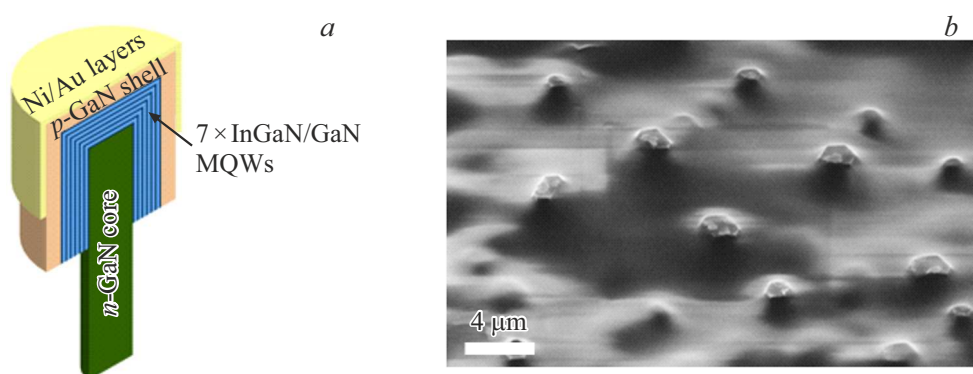


Рис. 1. *a* — схема единичного НМК с квантовыми ямами InGaN/GaN; *b* — инкапсулированный массив НМК в ПДМС.

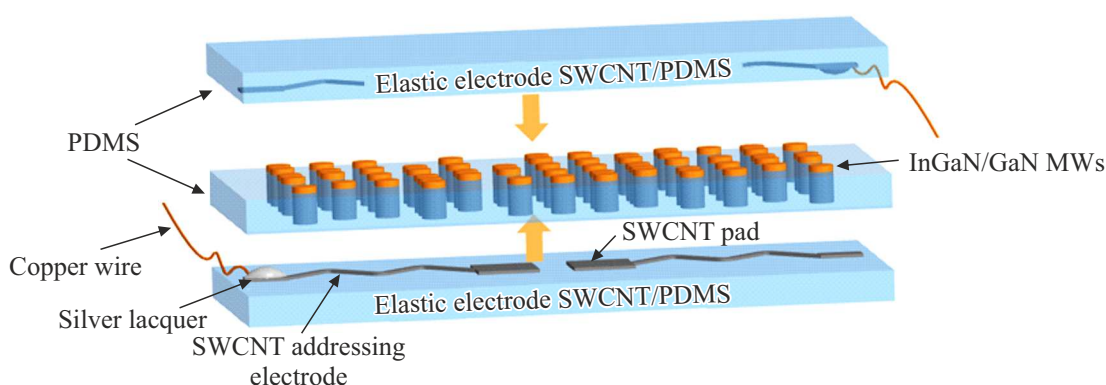


Рис. 2. Принципиальная схема эластичного светодиода на основе InGaN/GaN НМК и эластичного электрода ОУНТ/ПДМС.

металлоорганических реагентов из газовой фазы на сапфировой подложке [17]. Рост состоит из нескольких этапов. На первом этапе были выращены нитевидные нанокристаллы GaN высотой ~ 10 мкм при низком соотношении потоков N к Ga и In (~ 50) и при высоком расходе потока силана ~ 200 нмоль/мин, температуре $\sim 1050^\circ\text{C}$ и давлении 800 мбар. Вокруг ножки ядра образовывался пассивирующий слой SiN_x . Далее рост продолжали без потока силана, был выращен нелегированный GaN (высота ~ 15 мкм, время роста ~ 300 с). Семь квантовых ям InGaN (схема выращенного НМК изображена на рис. 1, *a*) были выращены путем понижения температуры роста с 1050 до 750°C . В нижней части НМК рост был подавлен из-за наличия пассивирующего слоя. Квантовые ямы были разделены слоями GaN, дальнейший рост осуществлялся при температуре 885°C при давлении 400 мбар. Завершался рост образованием оболочки *p*-GaN толщиной ~ 70 нм при температуре 720°C с последующим отжигом в течение 20 мин легирующей примеси.

2.2. Изготовление светоизлучающей мембраны НМК/ПДМС

Для установления омического контакта между осажденными слоями ОУНТ и *p*-GaN-оболочкой на верхние

части InGaN/GaN НМК методом вакуумно-термического испарения были нанесены слои металла Ni/Au толщиной 5 нм. После металлизации массив InGaN/GaN подвергали отжигу в атмосфере при температуре 500°C в течение 15 мин. Затем массив был инкапсулирован в коммерческий силиконовый полимер ПДМС „Sylgard 184“ методом гравитационной накрутки (рис. 1, *b*) [18–20]. После инкапсуляции образец выдерживали в сушильном шкафу при 80°C в течение 1 ч. Чтобы снять смачивающий слой с верхних частей НМК, образец подвергся травлению в плазме O_2 . Поток O_2 составлял 250 мл/с, время травления — 60 с, а мощность газового разряда — 500 Вт. Затем синяя светодиодная мембрана InGaN/GaN НМК/PDMS была механически отделена от жесткой сапфировой подложки микротомным лезвием.

2.3. Изготовление эластичного электрода ОУНТ/ПДМС

Эластичный электрод ОУНТ/ПДМС был изготовлен с помощью проекционной литографии с использованием жертвенного слоя [16]. Электрод состоит из адресного электрода в форме меандра и 8 квадратов размерами 1×1 мм² (рис. 2). Используемые в исследовании ОУНТ были синтезированы методом аэрозольного химического

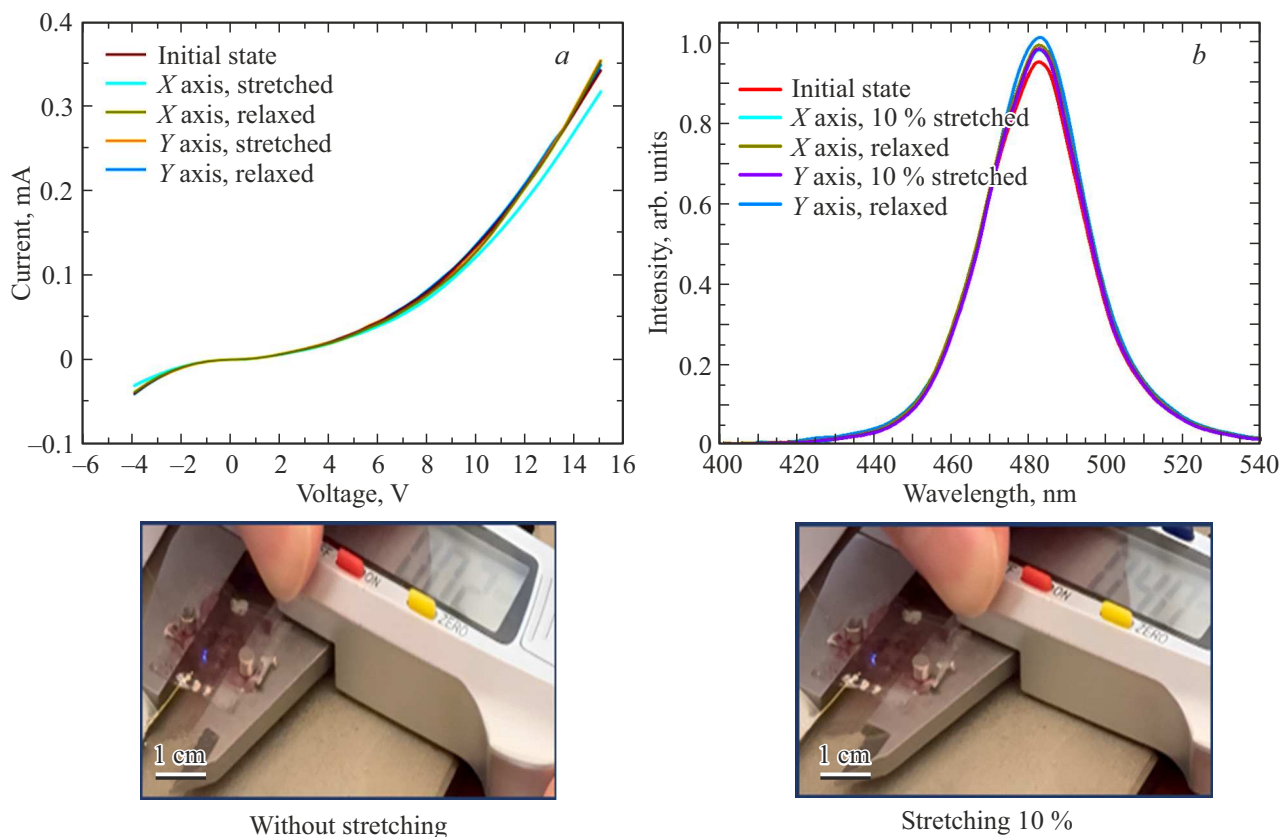


Рис. 3. *a* — вольт-амперные характеристики эластичного светодиода при растяжении по осям *X* и *Y* на 10 % и после него; *b* — спектры электролюминесценции эластичного светодиода при растяжении по осям *X* и *Y* на 10 % и после него. На вставках показана работа устройства при растяжении.

осаждения из газовой фазы [14]. Пленка ОУНТ была осаждена на нитроцеллюлозном фильтре на выходе из реактора. Прозрачность ОУНТ, используемых в этом исследовании, составляет 80 % при длине волны 550 нм и имеет сопротивление слоя 20 Ом/кв. [15].

Эластичные электроды ОУНТ/ПДМС были механически перенесены на верхнюю и нижнюю стороны светоизлучающей мембраны InGaN/GaN НМК/ПДМС. Для удобства сборки и выравнивания электродов на поверхности мембраны электроды были размещены на стеклянной подложке, точность совмещения составляет ± 100 мкм. После сборки подложка удалялась. Для удобства измерений на выходные площадки электродов были нанесены капли серебряного лака, в которые размещались медные проводки. Схема изготовления устройства показана на рис. 2.

3. Результаты и обсуждение

3.1. Измерение электрофизических и оптических характеристик светодиода

Чтобы доказать электрическую стабильность эластичных электродов со светоизлучающей мембраной, были измерены вольт-амперные характеристики светодиода

до и после растяжения по двум осям (рис. 3, *a*). Для этого эластичный светодиод крепился на штангенциркуле с помощью неодимовых магнитов (точность штангенциркуля составляет ~ 0.05 мм). Измеренные вольт-амперные характеристики представлены на рис. 3, *a*. Напряжение открытия светодиода составляет 5 В. Ток светодиода составляет ~ 0.35 мА при 15 В. Во время первого растяжения по оси *X* ток незначительно снизился до ~ 0.33 мА ($< 5\%$). Однако стоит отметить, что последующее расслабление по оси *Y* не привело к дальнейшему ухудшению электрических характеристик. Для исследуемого светодиода плотность тока при приложенном напряжении 15 В составила ~ 3 А/см². Напряжение открытия не изменялось в процессе растяжения, что указывает на стабильный контакт между эластичными электродами и мембраной на основе InGaN/GaN НМК. Падение тока во время первого растяжения может быть связано с механической стабилизацией электрического контакта между ОУНТ и InGaN/GaN НМК при первичном растяжении. Кроме того, к локальной механической нестабильности контактов при растяжении могли привести капли серебряного лака.

Затем были измерены спектры электролюминесценции при растяжении по двум осям на 10 % и после него. Спектры электролюминесценции были измерены

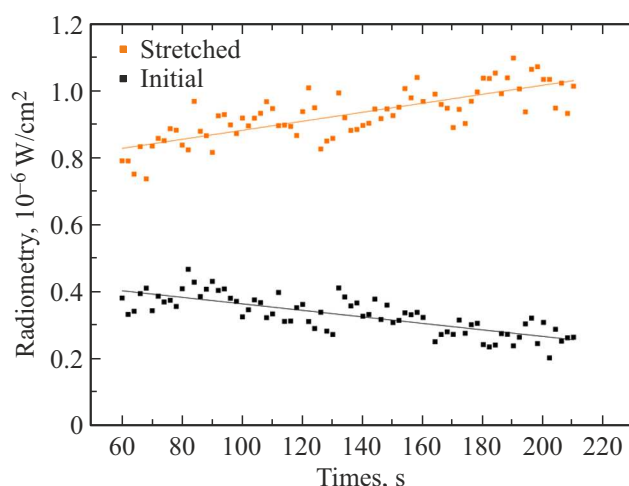


Рис. 4. Радиометрические характеристики эластичного светодиода InGaN/GaN НМК/ОУНТ/ПДМС.

при напряжении 15 В (рис. 3, *b*). Из спектров можно наблюдать стабильную электролюминесценцию при длине волны 482 нм, что соответствует синему спектральному диапазону. Стоит отметить, что первичные циклы растяжения/расслабления вдоль осей *X* и *Y* не вызвали существенных изменений интенсивности электролюминесценции. Небольшой рост интенсивности электролюминесценции может быть объяснен улучшением электрического контакта между ОУНТ и мембраной InGaN/GaN НМК. Также растяжение не оказало влияния на положение пиков и форму спектра, что свидетельствует о стабильной работе эластичного светодиода.

Кроме того, у устройства были измерены радиометрические характеристики (рис. 4) до растяжения на 10% по одной из осей и после. Радиометрические измерения также подтверждают наличие стабильного контакта между ОУНТ и InGaN/GaN НМК мембраной, поскольку она не меняется значительно с течением времени. Рост мощности при первичном растяжении устройства также свидетельствует об улучшении электрического контакта между ОУНТ и InGaN/GaN НМК.

4. Заключение

В ходе исследования был изготовлен эластичный светодиод на основе растяжимых электродов ПДМС/ОУНТ, полученных методом проекционной оптической литографии и светоизлучающей мембраны на основе InGaN/GaN НМК и ПДМС. В ходе измерений была продемонстрирована электрическая стабильность светодиода при растяжении на 10% вдоль двух осей и при дальнейшем расслаблении. Эта стабильность указывает на устойчивость электродов к циклическим нагрузкам, что имеет большое значение при создании различной гибкой электроники.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки в рамках гранта FSRM-2023–0007.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] J. Heikenfeld, A. Jajack, J. Rogers, P. Gutruf, L. Tian, T. Pan, R. Li, M. Khine, J. Kim, J. Wang, J. Kim. *Lab Chip*, **18**, 217 (2018).
- [2] M. Kong, M. Yang, R. Li, Y.-Z. Long, J. Zhang, X. Huang, X. Cui, Y. Zhang, Z. Said, C. Li. *Int. J. Adv. Manufact. Technol.*, **131**, 3205 (2024).
- [3] Z. Zhou, K. Chen, X. Li, S. Zhang, Y. Wu, Y. Zhou, K. Meng, C. Sun, Q. He, W. Fan, E. Fan, Z. Lin, X. Tan, W. Deng, J. Yang, J. Chen. *Nature Electronics*, **3**, 571 (2020).
- [4] A. Yu, M. Zhu, C. Chen, Y. Li, H. Cui, S. Liu, Q. Zhao. *Adv. Healthcare Mater.*, **13** (2), 2302460 (2024).
- [5] Y. Du, J.H. Kim, H. Kong, A.A. Li, M.L. Jin, D.H. Kim, Y. Wang. *Adv. Healthcare Mater.*, **13** (16), 2303461 (2024).
- [6] S.A. Behera, S. Panda, S. Hajra, K.R. Kaja, A.K. Pandey, A. Barranco, S.M. Jeong, V. Vivekananthan, H.J. Kim, P.G.R. Achary. *Adv. Sustainable Systems*, **8** (12), 2400344 (2024).
- [7] T. Blecha, M. Hirman, J. Navratil. *Power Electronic Dev. Components*, **7**, 100056 (2024).
- [8] A. Salehi, X. Fu, D. Shin, F. So. *Adv. Funct. Mater.*, **29** (15), 1808803 (2019).
- [9] A. Sugimoto, H. Ochi, S. Fujimura, A. Yoshida, T. Miyadera, M. Tsuchida. *IEEE J. Select. Top. Quant. Electron.*, **10**, 107 (2004).
- [10] X. Dai, A. Messanvi, H. Zhang, C. Durand, J. Eymery, C. Bougerol, F.H. Julien, M. Tchernycheva. *Nano Lett.*, **15**, 6958 (2015).
- [11] N. Guan, X. Dai, A. Messanvi, H. Zhang, J. Yan, E. Gautier, C. Bougerol, F.H. Julien, C. Durand, J. Eymery, M. Tchernycheva. *ACS Photonics*, **3**, 597 (2016).
- [12] L. Güniat, P. Caroff, A. Fontcuberta i Morral. *Chem. Rev.*, **119**, 8958 (2019).
- [13] Q. Zhang, N. Wei, P. Laiho, E.I. Kauppinen. *Top. Curr. Chem. Collections*, **375**, 90 (2017).
- [14] A.G. Nasibulin, P.V. Pikhitsa, H. Jiang, D.P. Brown, A.V. Krashenninnikov, A.S. Anisimov, P. Queipo, A. Moisala, D. Gonzalez, G. Lientschnig, A. Hassanien, S.D. Shandakov, G. Lolli, D.E. Resasco, M. Choi, D. Tománek, E.I. Kauppinen. *Nature Nanotechnol.*, **2**, 156 (2007).
- [15] E.P. Gilshteyn, S.A. Romanov, D.S. Kopylova, G.V. Savostyanov, A.S. Anisimov, O.E. Glukhova, A.G. Nasibulin. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **11**, 27327 (2019).
- [16] S. Mukhangali, V. Neplokh, F. Kochetkov, A. Vorobyev, D. Mitin, M. Mukhin, D.K. Krasnikov, J. Tian, R. Islamova, A.G. Nasibulin, I. Mukhin. *Appl. Phys. Lett.*, **121** (24), 243504 (2022).
- [17] R. Koester, J.S. Hwang, C. Durand, D. Le Dang, J. Eymery. *Nanotechnology*, **21** (1), 015602 (2010).

- [18] F.M. Kochetkov, V. Neplokh, V.V. Fedorov, A.D. Bolshakov, V.A. Sharov, I.E. Eliseev, M. Tchernycheva, G.E. Cirlin, A.G. Nasibulin, R.M. Islamova, I.S. Mukhin. *Nanotechnology*, **31**, 46LT01 (2020).
- [19] V. Neplokh, F.M. Kochetkov, K.V. Deriabin, V.V. Fedorov, A.D. Bolshakov, I.E. Eliseev, V.Yu. Mikhailovskii, D.A. Ilatovskii, D.V. Krasnikov, M. Tchernycheva, G.E. Cirlin, A.G. Nasibulin, I.S. Mukhin, R.M. Islamova. *J. Mater. Chem. C*, **8**, 3764 (2020).
- [20] F.M. Kochetkov, V. Neplokh, V.A. Mastalieva, S. Mukhangali, A.A. Vorob'ev, A.V. Uvarov, F.E. Komissarenko, D.M. Mitin, A. Kapoor, J. Eymery, N. Amador-Mendez, C. Durand, D. Krasnikov, A.G. Nasibulin, M. Tchernycheva I.S. Mukhin. *Nanomater.*, **11**, 1503 (2021).

Редактор Г.А. Оганесян

Elastic light-emitting diode based on InGaN/GaN microwires and SWCNT/PDMS matrix electrode

D.E. Kolesina¹, F.M. Kochetkov^{1,2}, A.A. Vorobyev¹, K.N. Novikova¹, A.S. Goltaev¹, I.S. Mukhin^{1,2}

¹ St.Petersburg National Research Academic University of the Russian Academy of Sciences,
194021 St.Petersburg, Russia

² Peter the Great St.Petersburg Polytechnic University,
195251 St.Petersburg, Russia

Abstract Presents the fabrication process of elastic light-emitting diode based on InGaN/GaN microwires with „core-shell“ structure encapsulated into commercial polydimethylsiloxane Sylgard 184. In order to improve electrical and mechanical properties the matrix pixel electrodes — the addressing top and the general bottom — was established. Electro-optical performances was measured along to axis, and fabricated light-emitting diode demonstrates a blue light emission observed by human eyes and an able to stable work.