

# Исследование влияния дизайна активной области монолитных многоцветных светодиодных гетероструктур на спектры и эффективность их излучения

© А.Ф. Цацунников<sup>\*+¶</sup>, В.В. Лундин<sup>\*+</sup>, А.В. Сахаров<sup>\*+</sup>, Е.Е. Заварин<sup>\*</sup>, С.О. Усов<sup>\*+</sup>,  
А.Е. Николаев<sup>\*+</sup>, М.А. Сеницын<sup>\*</sup>, Н.А. Черкашин<sup>\*</sup>, С.Ю. Карпов<sup>■</sup>

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

+ Научно-технологический центр микроэлектроники и субмикронных гетероструктур Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

• CEMES-CNRS–Université de Toulouse,  
Toulouse, France

■ ООО Софт-Импакт,  
194156 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 28 апреля 2015 г. Принята к печати 6 мая 2015 г.)

Исследованы конструктивные особенности светодиодных гетероструктур, выращенных методом МОС-гидридной эпитаксии, с монолитной InGaN/GaN активной областью, содержащей несколько квантовых ям InGaN, излучающих при различных длинах волн. Продемонстрирована возможность увеличения количества полос излучения до трех за счет увеличения числа осажденных InGaN квантовых ям с различным содержанием индия. Падение эффективности с увеличением числа КЯ в области высоких токов составляет приблизительно 30%. Изучены зависимости оптических свойств гетероструктур в зависимости от числа осажденных квантовых ям и типов барьеров между ними (слой GaN или короткопериодная InGaN/GaN сверхрешетка). Показано, что отношение интенсивностей линий излучения изменяется в широких пределах с изменением тока через структуру и сильно зависит от типа и толщины барьеров между квантовыми ямами.

## 1. Введение

Прогресс в развитии светодиодов на основе нитрида галлия в последние два десятилетия позволил создать высокоэффективные твердотельные источники белого света, имеющие длительный срок службы [1]. С одной стороны, традиционным подходом к созданию белых светодиодов является преобразование излучения синего светодиода в белый свет с помощью люминофора. С другой стороны, поскольку светодиоды на основе нитрида галлия позволяют получать излучение во всем видимом диапазоне длин волн, это позволяет создавать источники белого света на основе концепции RGB смешения цветов. Перспективными светодиодами, основанными на данной концепции, являются монолитные белые светодиоды, содержащиеся в активной области несколько квантовых ям (КЯ) InGaN, излучающих в спектральном диапазоне от синего до красного. Основной причиной, затрудняющей создание таких светодиодов, является низкая эффективность излучения квантовых ям InGaN при длинах волн больше 530 нм [2]. Получение указанных длин волн связано с необходимостью синтезировать КЯ с высоким содержанием индия, а встроенные пьезоэлектрические поля и значительное несоответствие параметров решетки между GaN и InN, приводящее к генерации дефектов в таких КЯ, уменьшают квантовый выход излучения. Другой важной проблемой является обеспечение эффективной инжекции носителей заряда в различные КЯ, которая затруднена низкой подвижностью дырок, приводящей к тому, что излучение в

многоямной активной области генерируется лишь в одной-двух КЯ, расположенных ближе к  $p$ -области гетероструктуры.

Данная статья продолжает исследования, представленные в работе [3], в которой нами было продемонстрировано, что использование короткопериодных сверхрешеток (КПСР) InGaN/GaN, имеющих толщины слоев  $\sim 1$  нм, в качестве барьера, разделяющего КЯ, излучающие в синей и зеленой областях спектра, позволяет значительно улучшить инжекцию носителей заряда и реализовать одновременно эффективное излучение из всех КЯ в активной области монолитного многоцветного светодиода. В данной работе проведены детальные исследования оптических свойств светодиодных гетероструктур монолитных светодиодов в зависимости от типа и параметров барьера, разделяющего КЯ (рассмотрены случаи барьеров на основе GaN и InGaN/GaN КПСР различной толщины), и от числа КЯ в активной области, имеющих различные длины волн излучения.

## 2. Эксперимент

Эпитаксиальные структуры выращивались методом МОС-гидридной эпитаксии на сапфировых подложках ориентации (0001). Аммиак, триметилгаллий (ТМГ), триэтилгаллий (ТЭГ), триметилиндий (ТМИ), триметилалюминий, моносилан и биспентациклодиенил магния использовались в качестве соединений — источников. Азот, водород и их смеси использовались в качестве несущих газов. Рост гетероструктур осуществлялся на установке Aixtron 2000HT. Активные области

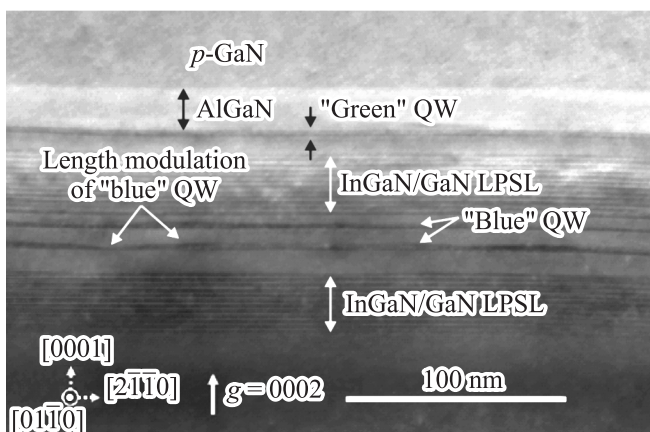
¶ E-mail: andrew@beam.ioffe.ru

выращенных структур содержали две КЯ InGaN толщиной  $\sim 3$  нм, излучающие в синем диапазоне длин волн от 440 до 485 нм („синие“ КЯ), разделенные барьером GaN толщиной  $\sim 10$  нм, и КЯ InGaN толщиной  $\sim 3$  нм, излучающую в зеленом спектральном диапазоне от 540 до 570 нм („зеленая“ КЯ). КЯ, излучающие в синем и зеленом диапазонах, были разделены или барьером GaN, толщина которого изменялась в различных структурах от 8 до 24 нм, или КПСР InGaN/GaN с толщинами слоев InGaN и GaN  $\sim 1$  нм, содержащей в различных структурах 6 или 12 периодов. Подробное описание особенностей роста и свойств „синих“ КЯ приведено в работе [4], „зеленых“ КЯ — в работе [5], а методика формирования и свойства короткопериодных сверхрешеток InGaN/GaN подробно описаны в статье [6]. Для изучения структурных свойств InGaN КЯ была использована просвечивающая электронная микроскопия высокого разрешения (ПЭМ ВР). Оптические свойства светодиодных структур были исследованы методом электролюминесценции, измеренной на эпитаксиальных пластинах с использованием индиевых контактов.

### 3. Результаты

#### 3.1. Структурные свойства активных областей многоцветных светодиодов

На рис. 1 приведены изображения ПЭМ ВР активной области монолитного белого светодиода, содержащего в активной области две „синие“ КЯ InGaN, осажденные на 12-периодную InGaN/GaN КПСР с толщинами слоев  $\sim 1$  нм (общая толщина КПСР  $\sim 24$  нм), и одну „зеленую“ КЯ InGaN, отделенную от „синей“ КЯ аналогичной 12-периодной КПСР. Как видно из приведенного изображения, верхние интерфейсы „синих“ КЯ являются не планарными, что приводит к вариациям в толщинах КЯ. Данный эффект достигался применением специальной методики роста КЯ, заключающейся в использовании



**Рис. 1.** Изображения ПЭМ ВР активной области монолитного белого светодиода, содержащего в активной области две КЯ InGaN.

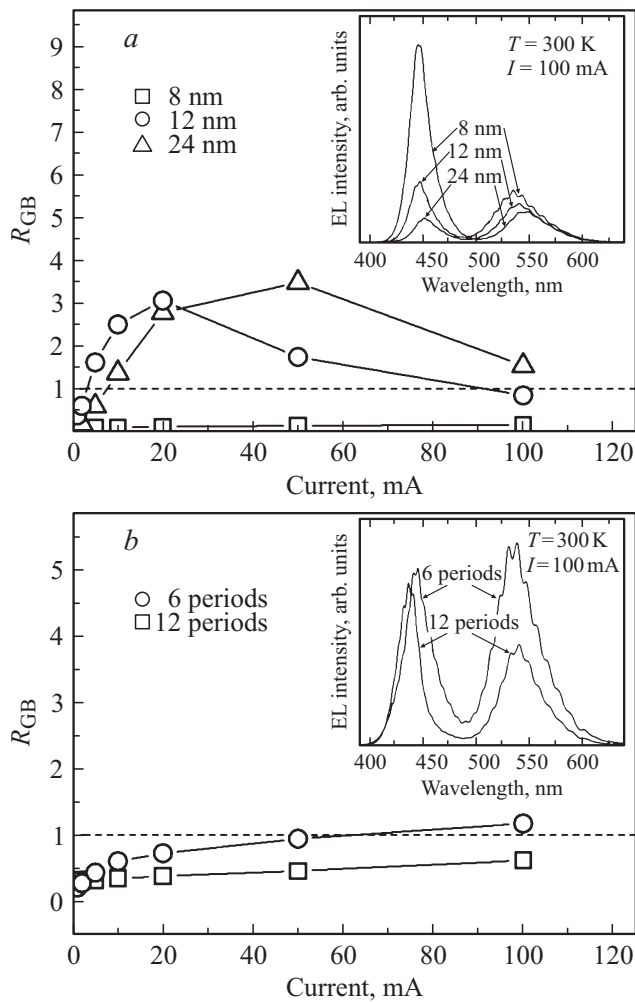
прерываний роста в азот-водородной атмосфере, что позволяло влиять на морфологию КЯ InGaN. Эта методика, детально описанная в работе [7], позволяла значительно сократить средний состав по индию в активной области и улучшить структурное качество материала, сохранив неизменной длину волны излучения. Обработка полученного изображения ПЭМ ВР с помощью метода анализа геометрических фаз (GPA) [18], позволяющего получить двумерное распределение деформации в напряженных слоях относительно недеформированной матрицы GaN, дала возможность количественно оценить толщины и составы слоев гетероструктуры. Толщина „синих“ КЯ изменялась от 0 до 3 нм, состав по индию составлял  $18 \pm 5\%$ . Из анализа изображения ПЭМ ВР, можно заключить, что в „синих“ КЯ формируются двумерные островки, имеющие латеральные размеры от 50 до 100 нм. Толщина „зеленой“ КЯ составляет 3 нм, состав по индию в ней составляет  $30 \pm 4\%$ . Общие толщины КПСР составляют 27–28 нм, средняя концентрация индия в каждом слое КПСР составляет  $\sim 10$ –11%.

#### 3.2. Оптические свойства многоцветных светодиодных гетероструктур

Для экспериментального исследования влияния барьера между „синими“ и „зеленой“ КЯ на оптические свойства была выращена серия светодиодных гетероструктур, в которых в качестве барьера использовался либо слой GaN толщиной от 8 до 24 нм, либо InGaN/GaN КПСР, состоящей из 6 или 12 периодов. На рис. 2, *a, b* приведены зависимости отношения амплитуд „зеленой“ и „синей“ полос излучения в спектрах электролюминесценции ( $R_{GB}$ ) от тока и спектры излучения выращенных образцов. Для образцов с GaN барьером в области больших токов наблюдается уменьшение отношения  $R_{GB}$  с уменьшением толщины барьера от 24 до 12 и 8 нм (рис. 2, *a*). Кроме того, в области малых токов наблюдается рост значения  $R_{GB}$ , который затем сменяется его падением при последующем увеличении тока. Данный эффект, как будет показано далее, приводит к сложной зависимости цветовых параметров излучения от тока.

Полученные экспериментальные результаты были качественно сопоставлены с результатами численного моделирования транспорта носителей заряда и излучения монолитной активной области, проведенного с использованием значений толщин слоев и составов, полученных ПЭМ ВР. Моделирование осуществлялось с помощью коммерческого пакета SiLENSe [9]. Было проанализировано влияние различных типов легирования (умеренное *p*- и *n*-легирование и слабое фоновое легирование *n*-типа) и толщин барьерного слоя GaN на отношение амплитуд зеленого и синего пиков в спектре электролюминесценции.

Моделирование показало высокую чувствительность отношения  $R_{GB}$  к типу, уровню легирования и толщине барьерного GaN слоя (см. рис. 3). При толщинах барьера менее  $\sim 10$  нм отношение  $R_{GB}$  слабо зависит от легирования и определяется преимущественно заполнением



**Рис. 2.** Отношения амплитуд „зеленой“ и „синей“ полос в спектрах электролюминесценции от тока и (на вставках) спектры излучения светодиодных структур, содержащих две „синие“ и одну „зеленую“ КЯ InGaN, разделенные либо барьером GaN различной толщины (a), либо КПСР InGaN/GaN с различным числом периодов (b).

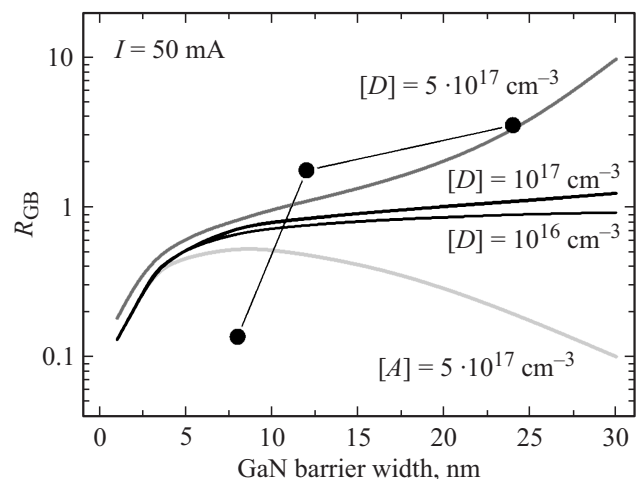
неравновесными носителями заряда „синей“ и „зеленой“ КЯ при общем для них положении квазиуровней Ферми. Транспорт носителей заряда между КЯ играет здесь второстепенную роль. При толщинах GaN барьера более ~ 10 нм транспорт носителей заряда между КЯ становится преобладающим фактором, влияющим на отношение  $R_{GB}$ ; положение же квазиуровней Ферми при этом в отдельных ямах становится независимым друг от друга. В этом случае тип, уровень легирования барьера и подвижность электронов и дырок в нем оказывают существенное влияние на общий спектр излучения монокристаллических светодиодных структур и соответственно на отношение  $R_{GB}$ .

К сожалению, прямое сопоставление результатов моделирования и полученных экспериментальных данных является не совсем корректным из-за того, что свойства барьерных слоев GaN изучены недостаточно полно.

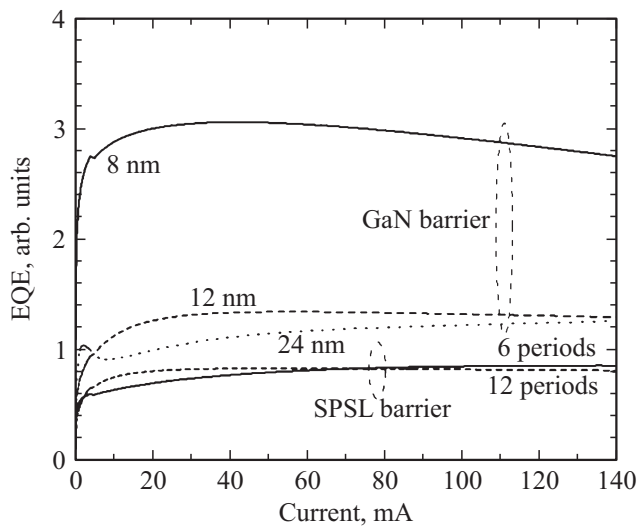
Действительно, эти слои выращиваются при температурах, отличных от используемых для получения толстых контактных слоев, измерения параметров которых позволяют оценить тип и уровень их легирования, так же как и подвижность основных носителей заряда. Более того, подъем температуры в процессе выращивания барьерных слоев, необходимый для получения материала высокого качества, вносит существенные различия в условия роста толстых и тонких барьеров. Тем не менее качественно поведение измеренного отношения  $R_{GB}$  с увеличением толщины GaN барьера соответствует предсказанному для умеренного легирования *n*-типа (рис. 3).

В случае барьера на основе КПСР в области больших токов наблюдается уменьшение интенсивности „зеленой“ линии по отношению к интенсивности „синей“ линии (рис. 2, b) при увеличении числа периодов сверхрешетки с 6 периодов (общая толщина 12 нм) до 12 периодов (общая толщина 24 нм). Таким образом, замена барьера GaN барьером на основе InGaN/GaN КПСР приводит к изменению характера инжекции носителей заряда, что требует дальнейших детальных исследований.

Светодиодные структуры с GaN барьером показывают более высокое значение внешней квантовой эффективности (EQE) по сравнению со структурами с барьерами на основе КПСР (рис. 4), что, по-видимому, связано с меньшим общим содержанием индия в структурах с GaN барьером и соответственно с меньшим числом дефектов, либо с особенностями инжекции носителей заряда в КЯ. Максимальную эффективность излучения из исследованных структур имеет структура с барьером GaN толщиной 8 нм, что связано с тем, что в этой структуре эффективность „синей“ полосы является определяющей. Светодиодные структуры с барьером GaN толщиной 12 и 24 нм, в которых интенсивность „зеленой“ линии



**Рис. 3.** Отношения амплитуд „зеленой“ и „синей“ полос в спектрах электролюминесценции в зависимости от толщины GaN барьерного слоя при различных типах и уровнях его легирования. Кривые — результаты моделирования, символы — данные эксперимента для структур с GaN барьерным слоем. Концентрации доноров  $[D]$  и акцепторов  $[A]$  указаны у соответствующих кривых.



**Рис. 4.** Зависимости внешней квантовой эффективности от тока для светодиодных структур, содержащих две „синие“ и одну „зеленую“ КЯ InGaN, разделенные либо КПСР InGaN/GaN с различным числом периодов, либо барьером GaN различной толщины.

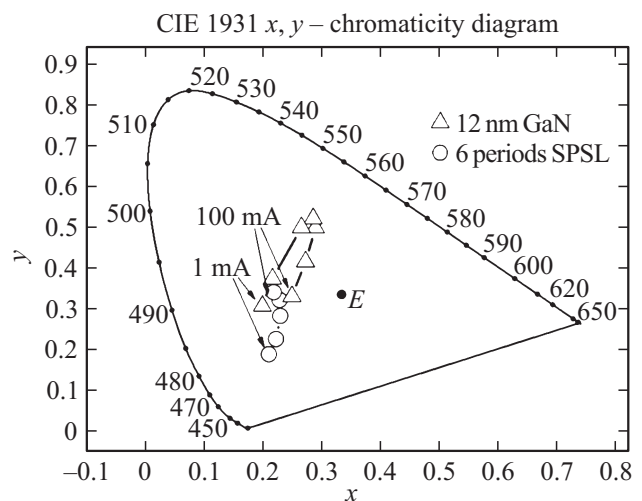
сравнима с интенсивностью „синей“ линии, имеют более низкую эффективность излучения, которая незначительно, на 20–25%, превышает эффективность излучения структур с барьерами на основе КПСР. Для структуры с 24 нм GaN барьером в зависимости квантовой эффективности от тока в области малых токов (5–10 мА) наблюдается N-образная особенность, которая сопровождается увеличением интенсивности „зеленой“ линии, что, возможно, свидетельствует о существовании области нестабильности в инжекции носителей заряда в случае широкого GaN барьера. Внешние квантовые эффективности излучения светодиодных структур с 6- и 12-периодными КПСР в качестве барьеров практически одинаковы. Это свидетельствует о том, что увеличение числа периодов КПСР не приводит к ухудшению структурного качества активной области.

### 3.3. Цветовые характеристики излучения многоцветных светодиодных гетероструктур

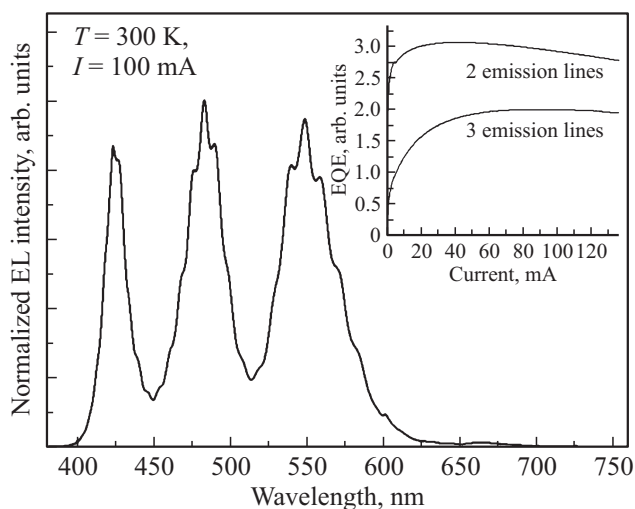
Зависимость значения  $R_{GB}$  от тока приводит к токовой зависимости цветовых характеристик излучения, причем для структур с барьерами на основе GaN и КПСР характер этих зависимостей сильно различается (рис. 5). Для структуры с барьером на основе 6-периодной КПСР, имеющей общую толщину 12 нм, наблюдается монотонное смещение цветовых координат с увеличением тока в область зеленого цвета, что связано с увеличением значения  $R_{GB}$ . Для структуры с барьером GaN такой же толщины наблюдается сложное поведение цветовых координат с током, обусловленное отмеченной выше немонотонной зависимостью  $R_{GB}$  от тока. С увеличением тока сначала наблюдается смещение цветовых

координат в сторону зеленого спектрального диапазона (обусловленное увеличением  $R_{GB}$ , рис. 2, а), а затем обратно в сторону синего излучения (обусловленное уменьшением  $R_{GB}$ , рис. 2, а). С одной стороны, с точки зрения практического применения токовая зависимость цветовых координат, является отрицательным эффектом, поскольку требуется точное поддержание тока, протекающего через светодиод, с другой — открывается возможность управления цветовыми параметрами излучения монолитных светодиодов. Способы и пределы изменения цветовых параметров таких приборов требуют специального исследования.

Проведенное моделирование цветовых параметров излучения показало, что дихромный монолитный источник белого света (на основе излучения двух источников с длинами волн 430–440 и 550–560 нм и экспериментально определенными ширинами линий) не позволяет получить высокий индекс цветопередачи (его максимальное значение при оптимизированных длинах волн излучения „синей“ и „зеленой“ КЯ не превышает 27). Для получения качественного белого света с высоким индексом цветопередачи требуется комбинация излучения трех длин волн: 450–460, 525–535 и 610–620 нм. Данная комбинация позволяет получить индекс цветопередачи более 90 в диапазоне цветовых температур 2400–3000 К [10]. Еще большего индекса цветопередачи в широком диапазоне цветовых температур 2400–5000 К потенциально можно достичь, используя четыре полосы излучения с длинами волн 442, 485–495, 560 и 620–630 нм. Поскольку смещение излучения КЯ InGaN в красную область спектра приводит к значительному падению эффективности излучения [11,12], мы провели предварительные исследования, позволяющие оценить изменение внешней эффективности излучения при размещении в активной области КЯ, излучающих при трех различных длинах волн в диапазоне 430–550 нм (рис. 6). Активная



**Рис. 5.** Цветовые диаграммы МКО 1931 г. излучения светодиодных структур, содержащих две „синие“ и одну „зеленую“ КЯ InGaN, разделенные либо КПСР InGaN/GaN, либо барьером GaN, при различных токах через структуру.



**Рис. 6.** Спектры электролюминесценции и зависимости квантовой эффективности от тока (на вставке) через светодиодные структуры, содержащие три КЯ InGaN.

область содержала две КЯ, излучающие при 430 нм, одну КЯ с длиной волны излучения  $\sim 485$  нм и одну КЯ с длиной волны излучения  $\sim 550$  нм, разделенные барьером GaN толщиной 8 нм. При этом наиболее интересным вопросом для нас являлся — насколько ухудшится эффективность излучения при увеличении числа КЯ, что может быть обусловлено как увеличением общего содержания индия в активной области, так и необходимостью обеспечения эффективной инжекции во все КЯ.

Из приведенных спектров электролюминесценции видно, что интенсивности всех линий излучения в структуре с тремя полосами излучения практически совпадают, что свидетельствует об эффективной инжекции носителей заряда во все КЯ. Из сравнения зависимостей EQE от тока для структур с двумя и тремя полосами излучения видно, что осаждение дополнительной КЯ не приводит к катастрофическому падению эффективности. Полученные результаты свидетельствуют о том, что требуются дополнительные исследования, направленные на оптимизацию, как конструкции активной области, так и технологических режимов ее эпитаксиального роста, позволяющие улучшить эффективность излучения.

#### 4. Заключение

В данной работе выращены и исследованы двух- и трехцветные светодиодные гетероструктуры с монокристаллическими активными областями. Показано, что соотношение „зеленой“ и „синей“ полос в спектрах излучения светодиодных гетероструктур с монокристаллической активной областью на основе КЯ InGaN сильно зависит от толщины барьера между КЯ с различной длиной волны излучения. В случае GaN барьера малой толщины (8 нм) „синяя“ полоса является

доминирующей. Увеличение толщины барьера GaN или его замена на КПСР InGaN/GaN приводит к увеличению относительного вклада „зеленой“ линии в спектр излучения. Данный вывод подтверждается результатами моделирования, продемонстрировавшими также сильную зависимость относительного вклада „синей“ и „зеленой“ спектральных полос от типа, уровня легирования и подвижности носителей заряда в GaN барьере.

Отношение „синей“ и „зеленой“ линий излучения сильно зависит от тока, протекающего через структуру, что приводит к сложной зависимости цветковых параметров излучения. В светодиодных структурах, имеющих три линии излучения в диапазоне 430–550 нм, полученных за счет увеличения числа КЯ в активной области, не наблюдается значительного ухудшения эффективности излучения по сравнению с двухцветными структурами.

Среди вопросов, все еще остающихся открытыми и требующих дополнительного изучения, остаются: а) идентификация факторов, определяющих эффективность излучения монокристаллических гетероструктур, б) оценка роли поглощения света, излученного коротковолновой КЯ в длинноволновой КЯ и вторичного его переизлучения, а также в) дальнейшее выявление конструктивных элементов и параметров гетероструктуры, вариация которых позволяет эффективно управлять спектральным составом излучения. Решение этих вопросов позволит повысить эффективность и улучшить цветковые параметры излучения монокристаллических светодиодов на основе InGaN/GaN.

Работа выполнена при поддержке гранта NEWLED (соглашение № 318388), РФФИ (грант 14-02-00521) и программы фундаментальных исследований президиума РАН.

#### Список литературы

- [1] E.F. Schubert. Light-emitting diodes. (Cambridge University Press, N. Y., 2003).
- [2] A. Zukauskas, M. Shur, R. Gaska. Introduction to Solid-State Lighting (J. Wiley & Sons, N. Y., 2002).
- [3] А.Ф. Цацульников, В.В. Лундин, А.В. Сахаров, Е.Е. Заварин, С.О. Усов, А.Е. Николаев, Н.В. Крыжановская, М.А. Синецын, В.С. Сизов, А.Л. Закгейм, М.Н. Мизеров. ФТП, **44**, 837 (2010).
- [4] А.Ф. Цацульников, В.В. Лундин, А.В. Сахаров, Е.Е. Заварин, С.О. Усов, А.Е. Николаев, Н.А. Черкашин, Б.Я. Бер, Д.Ю. Казанцев, М.Н. Мизеров, Hee Seok Park, M. Hych, F. Hue. ФТП, **44**, 96 (2010).
- [5] W.V. Lundin, A.E. Nikolaev, A.V. Sakharov, E.E. Zavarin, G.A. Valkovskiy, M.A. Yagovkina, S.O. Usov, N.V. Kryzhanovskaya, V.S. Sizov, P.N. Brunkov, A.L. Zakgeim, A.E. Cherniakov, N.A. Cherkashin, M.J. Hych, E.V. Yakovlev, D.S. Bazarevskiy, M.M. Rozhavskaya, A.F. Tsatsulnikov. JCG, **315**, 267 (2011).
- [6] Н.В. Крыжановская, В.В. Лундин, А.Е. Николаев, А.Ф. Цацульников, А.В. Сахаров, М.М. Павлов, Н.А. Черкашин, Г.А. Вальковский, М.А. Яговкина, С.О. Усов. ФТП, **44**, 857 (2010).

- [7] А.Ф. Цацульников, В.В. Лундин, Е.Е. Заварин, А.Е. Николаев, А.В. Сахаров, В.С. Сизов, С.О. Усов, Ю.Г. Мусихин, D. Gerthsen. ФТП, **45**, 274 (2011).
- [8] M.J. Hytch, E. Snoeck, R. Kilaas. Ultramicroscopy, **74**, 131 (1998).
- [9] Simulator for Light Emitters based on Nitride Semiconductors (SiLENSe)-software tool for light emitting diode bandgap engineering. <http://www.softimpact.ru/silense.php>
- [10] K.A. Bulashevich, A.V. Kulik, S.Yu. Karpov. Phys. Status Solidi A, **1** (2014). DOI: 10.1002/pssa.201431576.
- [11] Shinji Saito, Rei Hashimoto, Jongil Hwang, Shinya Nunoue. Appl. Phys. Express, **6**, 111 004 (2013).
- [12] Jong-Il Hwang, Rei Hashimoto, Shinji Saito, Shinya Nunoue. Appl. Phys. Express, **7**, 071 003 (2014).

Редактор Т.А. Полянская

### Investigations of effect of the active region design on emission spectra and efficiency of heterostructures for monolith multi-color leds

A.F. Tsatsulnikov<sup>\*+</sup>, W.V. Lundin<sup>\*+</sup>, A.V. Sakharov<sup>\*+</sup>,  
E.E. Zavarin<sup>\*</sup>, S.O. Usov<sup>\*+</sup>, A.E. Nikolaev<sup>\*+</sup>,  
M.A. Sinityn<sup>\*</sup>, N.A. Cherkashin<sup>•</sup>, S.Y. Karpov<sup>■</sup>

\* Ioffe Institute,

194021 St. Petersburg, Russia

+ Submicron Heterostructures

for Microelectronics, Research & Engineering Center,

Russian Academy of Sciences,

194021 St. Petersburg, Russia

• CEMES-CNRS–Université de Toulouse,

Toulouse, France

■ STR Group–Soft-Impact, Ltd.,

P.O. Box 83, 27 Engels ave.

194156 St. Petersburg, Russia

**Abstract** The design features of LED heterostructures with monolithic InGaN/GaN active region, which contain a few InGaN QWs emitting at different emission wavelengths, grown by MOCVD method were investigated. The possibility of increase of a number of emission lines up to three by increase of number of QWs having different indium content was demonstrated. Decrease in the emission efficiency with such increase in the number of QWs is approximately 30%. The dependencies of the optical properties of the heterostructures on a number of QWs and types of the barriers between QWs (GaN layer or InGaN/GaN short period superlattice) were analyzed. It was shown that the ratio of intensities of emission lines varies in a wide range with current flowing through the structure, are strongly dependent on type and width of barrier between QWs.