ΡΑ**ДΙΑЦΙЙΗΑ ΦΙ**3ИΚΑ RADIATION PHYSICS

УДК 621.383.2-026.611

https://doi.org/10.15407/jnpae2023.01.027

Т. І. Мосюк^{1,*}, Р. М. Вернидуб¹, П. Г. Литовченко², Ю. Б. Мирошніченко¹, Д. П. Стратілат², В. П. Тартачник², В. В. Шлапацька³

¹ Національний педагогічний університет імені М. П. Драгоманова, Київ, Україна ² Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ, Україна ³ Інститут фізичної хімії імені Л. В. Писаржевського НАН України, Київ, Україна

*Відповідальний автор: t.i.mosiuk@npu.edu.ua

ВПЛИВ ОПРОМІНЕННЯ ЕЛЕКТРОНАМИ З Е = 2 МеВ НА ЕЛЕКТРОФІЗИЧНІ ТА ОПТИЧНІ ХАРАКТЕРИСТИКИ ЗЕЛЕНИХ InGaN/GaN СВІТЛОДІОДІВ¹

Досліджувались світлодіоди (СД) із квантовими ямами, виготовлені на основі твердого розчину In_{0.21}Ga_{0.79} N. Проведено вимірювання вольт-амперних характеристик (ВАХ) та електролюмінесценції (ЕЛ) у межах 77 ÷ 300 К. На ВАХ в інтервалі 77 ÷ 150 К виявлено ділянки від'ємного диференціального опору, а також тонку структуру спектрів випромінювання. Наведено результати впливу опромінення електронами (E_e = 2 MeB) на інтенсивність ЕЛ та квантовий вихід досліджуваних зразків; виявлено особливості температурних залежностей інтенсивності свічення опромінених СД.

Ключові слова: InGaN, світлодіод, від'ємний диференційний опір, вольт-амперні характеристики, електролюмінесцентні характеристики.

1. Вступ

Чутливість людського ока максимальна до зеленого кольору свічення, що розширює можливості застосування зелених світлодіодів (СД) в області візуальної обробки та передачі інформації.

Розвиток технології вирощування «білих» СД неможливий без детального дослідження особливостей спектральних характеристик одного із компонентів монолітних RGB СД – джерела зеленого свічення. Водночас на шляху одержання ефективних зелених СД виникла проблема «зеленої долини» - технологічних труднощів вирощування, зумовлених головним чином двома обставинами. Перша - неможливість одержання малодефектних шарів InGaN внаслідок значної неузгодженості періодів ґраток активної області та підкладинки. Друга – принципова: для зсуву максимуму випромінювання у довгохвильову область необхідно збільшувати відсоток In у розчині до 30 %, але при цьому підвищується поляризаційне поле у квантових комірках, а відтак і вплив ефекту Штарка, який зменшує перекриття хвильових функцій електрона з діркою і, відповідно, знижує імовірність їхньої рекомбінації [1, 2].

Квантові ями (КЯ) зазвичай вирощуються вздовж полярної осі (0001), де п'єзополе сягає ~ 0,3 ÷ 1,5 МВ/см; на цій площині погано вбудовується Іп, породжуючи цим самим додаткове число дефектів, в основному – дислокацій, щільність яких може сягати $\rho_{\rm d} = 10^{10}$ см⁻².

Відомо, що високий рівень іонізації, властивий процесу опромінення швидкими частинками, може зменшувати степінь напруженості на межах розділу двох середовищ; контролюючи вид і концентрацію дефектів, уведених радіацією, можна впливати на параметри і характеристики матеріалів та накопичувати інформацію про властивості порушень структури, специфічних для вибраних об'єктів.

Головною метою виконаної роботи стало вивчення спектральних особливостей, властивих досліджуваним СД із КЯ, вияснення та пошук можливих причин, що зумовлюють відхилення профілю спектральних ліній від типового, притаманного, наприклад, діодам, виготовлених на основі гомопереходів (СД GaP, GaAsP) [3, 4]. Автори вважали також за необхідне з'ясувати характер впливу порушень структури радіаційного походження на основну характеристику використаних СД – інтенсивність випромінювальної рекомбінації, приймаючи до уваги її важливість для розрахунку параметрів радіаційної стійкості приладу.

2. Експериментальні вимірювання

Температурні залежності оптичних та електрофізичних характеристик знімались у градієнтному полі азотного дюара. У процесі вимірювань зразок розташовувався на відстані d < 1 мм від входу волоконно-оптичного кабеля, через який

© Т. І. Мосюк, Р. М. Вернидуб, П. Г. Литовченко, Ю. Б. Мирошніченко, Д. П. Стратілат, В. П. Тартачник, В. В. Шлапацька, 2023

¹ Доповідь на XXIX Щорічній науковій конференції Інституту ядерних досліджень НАН України, Київ, 26 - 30 вересня 2022 р.

оптичний сигнал подавався на вхід високочутливого швидкісного спектрометра Green-Wave (350 - 1150 нм). Перехідним вузлом між СД і кабелем зв'язку був спеціально виготовлений герметичний модуль, який унеможливлював проникнення зовнішніх перешкод та забезпечував фіксоване положення діода.

ВАХ знімалися виготовленим на замовлення приладом, який давав змогу вимірювати струми від 10^{-10} до 0,5 A у режимах генератора струму та генератора напруги у межах 77 – 300 К.

Опромінення зразків відбувалося в імпульсному режимі, при якому їхня температура не перевищувала кімнатну завдяки потужному повітряному охолодженню.

3. Результати та обговорення

На рис. 1 подана узагальнена енергетична діаграма гетероструктури InGaN/AlGaN/GaN [5].



Рис. 1. Узагальнена енергетична діаграма p-n гетероструктур типу InGaN/AlGaN/GaN при прямому зміщенні U [5].

На рис. 2 та 3 наведено спектри досліджуваних зразків, зняті при 77 ÷ 300 К та різних струмах. В області температур, близьких до кімнатної, профіль високоенергетичної частини спектральної кривої мало відрізняється від класичних розподілів Гаусса - Лоренца. При низьких температурах (77 К) на відстані 92 МеВ від головного макситакож виділяється додаткова смуга. MVMV $\lambda_{\text{max}} = 527$ нм, імовірно пов'язана зі структурою КЯ (рис. 2). У міру збільшення рівня інжекції її інтенсивність монотонно зростає, що може бути зумовлено заповненням одного з рівнів розмірного квантування КЯ. З рис. З також видно, що у міру зростання I крім основної лінії випромінювання КЯ з $\lambda_{\text{мах}} = 505$ нм виразно виділяється сусідня з $\lambda_{max} = 501$ нм, i, коли величина струму сягає I = 20 мА, її інтенсивність починає перевищувати основну. Відстань між максимумами обох кривих становить $\Delta hv = 19,5$ MeB, що відповідає подвійному значенню енергії поздовжнього оптичного фонона у GaN, та дає змогу трактувати лінію $\lambda_{\text{max}} = 501$ нм, як фононне повторення основної. Незначне перевищення інтенсивності останньої над основною лінією – очевидно результат нагрівання зразка струмом I = 20 мА.

Головна особливість низькотемпературних спектрів – «голубий» зсув спектральної кривої [6], викликаний зростанням струму через СД ($\Delta\lambda = 7,2$ нм; Δ hv = 3 – 45 MeB, див. рис. 2). Таке зміщення – "band filling effect", не виявлене у гомопереходах, виразно проявляється у СД InGaN/GaN [6 - 11] і є очевидним наслідком квантування енергетичних станів нанорозмірної системи.

Дійсно, якщо концентрація електронів настільки висока, що нижні рівні повністю зайняті, електрони верхніх рівнів рекомбінують із дірками валентної зони. Тоді збільшення енергії рекомбінації реалізується у вигляді «голубого зсуву» [11].

Інтенсивність свічення діода зі зростанням струму монотонно підвищується і при великих струмах спостерігається тенденція до насичення (див. рис. 3)

Нанорозмірність впливає на величину квантового виходу – після досягнення струмом певного для кожного зразка значення, η зменшується (рис. 4), що може бути зумовлено «переливанням», чи «перетіканням» носіїв через бар'єр квантової комірки – очевидний ефект зеленої долини, особливо помітний для структур із вузькими КЯ.



Рис. 2. Спектри випромінювання зеленого СД InGaN/GaN, $\lambda_{\text{мах}} = 505$ нм при T = 77 К. На вкладці показано залежність абсолютної величини зсуву максимуму випромінювання СД від величини струму через зразок. Величина $\Delta\lambda$ визначалась, як різниця положень максимумів спектральних кривих при I = 20 мА та наступного – I = 18,16 … 1 мА. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)



Рис. 3. Спектри випромінювання зеленого СД InGaN/GaN, λ_{мах} = 505 нм при T = 290 К. На вкладці показано залежність інтенсивності свічення СД від величини струму через зразок. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)



Рис. 4. Залежність величини квантового виходу СД InGaN/GaN від струму: I – вихідний, 2 – опромінений, $\Phi = 4,92 \cdot 10^{14}$ см⁻². (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

Єдиної думки стосовно механізму падіння ефективності СД InGaN/GaN досі не існує. Крім надбар'єрного перетікання можливе також перетікання носіїв під КЯ, або тунелювання із наступною безвипромінювальною рекомбінацією з дірками на гетеромежі InGaN/GaN, безвипромінювальна рекомбінація Оже в умовах великої щільності носіїв; перешкоди введенню дірок, та, як наслідок, витікання електронів [12, 13]. Переповнення носіями КЯ може проявлятися і на ВАХ, знятих при T = 150 К, коли на характеристиці виникає область від'ємного диференціального опору, забезпечена існуванням позитивного оберненого зв'язку між зростанням числа носіїв, уведених в область насичених КЯ, та величиною вхідного струму (рис. 5).



Рис. 5. ВАХ СД InGaN/GaN, λ_{мах} = 505 нм, зняті у режимі генератора струму при різних температурах. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

Про переповнення носіями КЯ свідчить також залежність інтенсивності свічення від струму, яка вже при невеликих рівнях інжекції переходить у насичення (рис. 6).

Зменшенню ефективності СД в області великих струмів можуть сприяти також квазібалістичні електрони активної області, нездатні термалізуватися і, відповідно, неспроможні взяти участь у процесі рекомбінації з термалізованими дірками [12 - 15]. Додатково знижує ефективність СД також ефект Штарка, властивий нітридним сполукам [16].

Електронне опромінення супроводжується зменшенням квантового виходу досліджуваних зразків у результаті введення глибоких безвипромінювальних рівнів переважно в області КЯ і призводить до зростання диференційного опору ВАХ; падінням концентрації носіїв на верхніх рівнях КЯ та спричиняє збільшення висоти бар'єрного потенціалу GaN.



Рис. 6. Залежність інтенсивності ЕЛ зеленого СД InGaN/GaN, $\lambda_{\text{мах}} = 505$ нм від струму через діод.



Рис. 7. Температурна залежність максимального значення інтенсивності свічення: I – вихідного; 2 – опроміненого ($\Phi = 4,92 \cdot 10^{14}$ см⁻²) СД InGaN/GaN, $\lambda_{\text{max}} = 505$ нм. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

Опромінення також значно посилює дію «ефекту зеленої долини», що проявляється у вигляді різкої зміни температурної залежності інтенсивності випромінювання СД. На рис. 7 наведено відповідні криві для вихідного та опроміненого зразків. Видно, що у вихідному діоді до Т ≤ 130 К триває зростання інтенсивності випромінювання, зумовлене температурним збільшенням концентрації носіїв; у опроміненому - фаза гасіння свічення дефектами поширюється на всю вимірювану область. Таким чином, радіаційні дефекти виконують роль, подібну до кластерів атомів Іп при формуванні «ефекту зеленої долини».

4. Висновки

Виявлено, що крім основної лінії випромінювання ($\lambda_{\text{мах}} = 505$ нм) у СД In_{0.21}Ga_{0.79} N при 77 K присутня додаткова смуга з $\lambda_{\text{мах}} = 525$ нм, можливе походження якої пов'язується з квантуванням енергетичних рівнів КЯ. В області температур, близьких до кімнатної, дублетна структура максимуму рекомбінаційного свічення – наслідок

- 1. Z. Liu et al. Micro-light-emitting diodes with quantum dots in display technology. Light Sci. Appl. 9 (2020) 83.
- 2. D. Iida et al. 633-nm InGaN-based red LEDs grown on thick underlying GaN layers with reduced in-plane residual stress. Appl. Phys. Lett. 116 (2020) 162101.
- 3. R.M. Vernydub et al. Degradation-Reduction Features of Electrophysical Characteristics of Irradiated Gallium Phosphide Light-Emitting Diodes. Acta Physica Polonica A 140 (2021) 141.
- 4. Р.М. Вернидуб та ін. Спектральні характеристики вихідних та опромінених світлодіодів GaAsP. Ядерна фізика та енергетика 22 (2021) 143.
- А.Э. Юнович. Свет из гетеропереходов. Природа 6 (2001) 38.
- D. Iida et al. Demonstration of low forward voltage InGaN-based red LEDs. Applied Physics Express 13(3) (2020) 031001.
- Н.И. Бочкарева, Ю.Г. Шретер Влияние глубоких центров на конфайнмент носителей в квантовых ямах InGaN/GaN и эффективность светодиодов. Физика и техника полупроводников 52(7) (2018) 796.
- А.Ф. Цацульников и др. Мост через «зеленую долину». По пути к RGB источникам белого света. В кн.: Нитриды галлия, индия и алюминия – структуры и приборы. Тез. докл. 7-й Всерос. конф., 1 - 3 февраля 2010 г., Москва (Санкт-Петербург, Физико-технический институт имени А. Ф. Иоффе РАН, 2010) с. 41.

формування фононного повторення основної лінії випромінювання.

У межах I = 1 ÷ 20 мА при 77 К у досліджуваних зразках виникає «голубий зсув» основної лінії на $\Delta\lambda$ = 7,2 нм, зумовлений квантуванням енергетичних станів нанорозмірної системи; різке падіння квантового виходу після I = 5 мА – результат переповнення КЯ та зростання ролі квазібалістичного перенесення нетермалізованих носіїв над ними.

Опромінення електронами з E = 2 MeB призводить до зменшення інтенсивності свічення СД та падіння їхньої ефективності внаслідок уведення глибоких безвипромінювальних рівнів переважно у КЯ; зростання диференціального опору та підвищення бар'єрного потенціалу відбуваються в результаті зменшення концентрації носіїв у КЯ.

На завершення вважаємо доцільним додати, що одержані результати можуть бути використані на практиці при прогнозуванні поведінки СД InGaN/GaN в умовах впливу полів проникної радіації. У першу чергу це стосується зміни величини квантового виходу.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

- 9. Y. Jiang et al. Realization of high-luminousefficiency InGaN light-emitting diodes in the "green gap" range. Sci. Rep. 5 (2015) 10883.
- Zh. Lio et. al Micro-light-emitting diodes with quantum dots in display technology. Light Sci. Appl. 9 (2020) 83.
- A.S. Hedzir et al. Influence of electron irradiation on the electroluminescence spectra of white InGaN light emitting diodes. Ukr. J. Phys Opt. 19(3) (2018) 159.
- H. Zhao et al. Approaches for high internal quantum efficiency green InGaN light-emitting diodes with large overlap quantum wells. Optics Express 19(S4) (2011) A991.
- А.А. Ефремов и др. Влияние джоулева разогрева на квантовую эффективность и выбор теплового режима мощных голубых InGaN/GaN светодиодов. Физика и техника полупроводников 40(5) (2006) 621.
- И.А. Прудаев и др. Влияние баллистической утечки на температурную зависимость квантового выхода светодиодов на основе множественных квантовых ям InGaN/GaN. Физика и техника полупроводников 51(2) (2017) 240.
- В.Е. Борисенко и др. Наноэлектроника: теория и практика. Учебник. 3-е изд. (Москва: Лаборатория знаний, 2013) 366 с.
- И.А. Прудаев и др. Влияние температуры на механизм инжекции носителей в светодиодах на основе множественных квантовых ям InGaN/GaN. Физика и техника полупроводников 47(10) (2013) 1391.

T. I. Mosiuk^{1,*}, R. M. Vernydub¹, P. G. Lytovchenko², Yu. B. Myroshnichenko¹, D. P. Stratilat², V. P. Tartachnyk², V. V. Shlapatska³

 ¹ National Pedagogical Dragomanov University, Kyiv, Ukraine
² Institute for Nuclear Research, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine
³ L. V. Pisarzhevski Physical Chemistry Institute, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine

*Corresponding author: t.i.mosiuk@npu.edu.ua

INFLUENCE OF ELECTRON IRRADIATION WITH E = 2 MeV ON ELECTROPHYSICAL AND OPTICAL CHARACTERISTICS OF GREEN InGaN/GaN LEDs

We studied light-emitting diodes (LEDs) with quantum dots made on basis of a solid solution of $In_{0.21}Ga_{0.79}N$. Measurements of current-voltage characteristics and electroluminescence characteristics were carried out in the range of $77 \div 300$ K. On the current-voltage characteristics in the range of $77 \div 150$ K, areas of negative differential resistance, as well as a fine structure of radiation spectra, were detected. The results of the influence of electron irradiation ($E_e = 2$ MeV) on electroluminescence characteristics intensity and quantum yield of the studied samples are presented; the features of the temperature dependence of the glow intensity of irradiated LEDs were revealed.

Keywords: InGaN, light emitting diode, negative differential resistance, current-voltage characteristics, electro-luminescence characteristics.

REFERENCES

- 1. Z. Liu et al. Micro-light-emitting diodes with quantum dots in display technology. Light Sci. Appl. 9 (2020) 83.
- 2. D. Iida et al. 633-nm InGaN-based red LEDs grown on thick underlying GaN layers with reduced in-plane residual stress. Appl. Phys. Lett. 116 (2020) 162101.
- 3. R.M. Vernydub et al. Degradation-Reduction Features of Electrophysical Characteristics of Irradiated Gallium Phosphide Light-Emitting Diodes. Acta Physica Polonica A 140 (2021) 141.
- 4. R.M. Vernydub et al. Spectral characteristics of initial and irradiated GaAsP LEDs. Yaderna Fizyka ta Energetyka (Nucl. Phys. At. Energy) 22 (2021) 143. (Ukr)
- 5. A.E. Yunovich. Light from heterojunctions. Priroda 6 (2001) 38. (Rus)
- D. Iida et al. Demonstration of low forward voltage InGaN-based red LEDs. Applied Physics Express 13(3) (2020) 031001.
- N.I. Bochkareva, Yu.G. Shreter. Influence of deep centers on carrier confinement in InGaN/GaN quantum wells and LED efficiency. Fizika i Tekhnika Poluprovodnikov 52(7) (2018) 796. (Rus)
- A.F. Tsatsulnikov et al. The bridge across the "green valley". On the way to RGB white light sources. In: Gallium, Indium and Aluminum Nitrides – Structures and Devices. Abstracts of 7th All-Russian. Conf., Feb. 1 - 3, 2010, Moskva (St. Petersburg, A.F. Ioffe Physical-Technical Institute RAS, 2010) p. 41. (Rus)

- 9. Y. Jiang et al. Realization of high-luminousefficiency InGaN light-emitting diodes in the "green gap" range. Sci. Rep. 5 (2015) 10883.
- Zh. Lio et. al Micro-light-emitting diodes with quantum dots in display technology. Light Sci. Appl. 9 (2020) 83.
- 11. A.S. Hedzir et al. Influence of electron irradiation on the electroluminescence spectra of white InGaN light emitting diodes. Ukr. J. Phys. Opt. 19(3) (2018) 159.
- H. Zhao et al. Approaches for high internal quantum efficiency green InGaN light-emitting diodes with large overlap quantum wells. Optics Express 19(S4) (2011) A991.
- 13. A.A. Efremov et al. Influence of Joule heating on the quantum efficiency and choice of the thermal regime of high-power blue InGaN/GaN LEDs. Fizika i Tekhnika Poluprovodnikov 40(5) (2006) 621. (Rus)
- I.A. Prudaev et al. Influence of ballistic leakage on the temperature dependence of the quantum yield of LEDs based on InGaN/GaN multiple quantum wells. Fizika i Tekhnika Poluprovodnikov 51(2) (2017) 240. (Rus)
- 15. V.E. Borisenko et al. *Nanoelectronics: Theory and Practice*. Textbook. 3rd ed. (Moskva: Laboratoriya Znaniy, 2013) 366 p. (Rus)
- I.A. Prudaev et al. Effect of temperature on the mechanism of carrier injection in LEDs based on InGaN/GaN multiple quantum wells. Fizika i Tekhnika Poluprovodnikov 47(10) (2013) 1391. (Rus)

Надійшла/Received 05.12.2022