Die elektrische, thermische und optische Charakterisierung der Degradationsmechanismen von Leuchtdioden im UV-A Bereich

Alexander Herzog, M.Sc., Prof. Tran Quoc Khanh, TU Darmstadt, Fachgebiet Lichttechnik, Hochschulstraße 4a, 64289 Darmstadt

Einleitung

Im sichtbaren Spektralbereich werden konventionelle Lichtquellen aufgrund ihrer verhältnismäßig geringen Effizienz zunehmend durch Halbleiterlichtquellen ersetzt. Mit zunehmender Weiterentwicklung und Erforschung neuer Materialsysteme wurde innerhalb der vergangenen Jahre auch der Spektralbereich unterhalb der sichtbaren Strahlung erschlossen. Ultraviolette LEDs, die sowohl auf AlGaN- als auch auf InGaN-Basis gefertigt werden, bieten möglicherweise das Potential konventionelle UV-Strahler abzulösen. Der ultraviolette Spektralbereich von 100-380 nm (DIN 5031-7) ist für zahlreiche Anwendungsfälle in der Medizin und Prozesstechnik von großer Relevanz. Neben dem Einsatz in therapeutischen Bestrahlungsgeräten finden die Strahler Verwendung bei der Desinfektion von Trinkwasser und Oberflächen, aber auch bei der Aushärtung von Klebern und Farben. Speziell für photobiologische Anwendungen sind die schmalbandigen Spektren von Halbleiteremittern prädestiniert, da sich relevante biologische Aktionsspektren gezielt anregen lassen. Zusätzlich bieten sie gegenüber den bestehenden Systemen den Vorteil, dass sich kurze Schaltzeiten realisieren lassen, während Niederdruckentladungslampen deutlich höhere Zeiten aufweisen bis eine konstante Strahlungsleistung emittiert wird. Weiterhin lassen sich in Kombination mit den Dimensionen von wenigen Millimetern pro LED gänzlich neue Therapiemöglichkeiten und Anwendungsgebiete erschließen.

Grundsätzlich muss zwischen zwei Materialsystemen differenziert werden. AlGaN-basierte LEDs können für den UV-Bereich unterhalb von 360 nm (über 3,44 eV) verwendet werden, während InGaN-basierte Systeme aufgrund ihrer materialtechnischen Beschaffenheit oberhalb von 360 nm emittieren. Die externen Quanteneffizienzen der Systeme unterscheiden sich stark. Während AlGaN-LEDs eine Effizenz η_{ext} zwischen 1-10% aufweisen, sind bei InGaN-LEDs Effizienzen von 30-45% zu verzeichnen. Die Unterschiede lassen sich auf Absorptionsprozesse, Defektstellen und Gitterfehlanpassungen im AlGaN-System zurückführen, welches prozesstechnisch deutlich schwerer zu handhaben ist. Im InGaN-System hingegen kann auf eine Prozesstechnik zurückgegriffen werden, die auch für blaue LEDs verwendet wird. Dennoch unterliegen ultraviolette InGaN-LEDs einer stärkeren Degradation als InGaN-LEDs mit Emissionswellenlängen oberhalb des UV-Spektrums. Derzeitige Forschungsarbeiten beschäftigen sich überwiegend mit der Degradation von InGaN-Systemen im blauen Spektralbereich, was auf die Bedeutung für die Allgemeinbeleuchtung zurückzuführen ist. Die derzeitigen Defizite der ultravioletten Emitter bezüglich ihrer Effizienz und Lebensdauer erfordern eine umfangreiche Untersuchung und Charakterisierung der physikalischen Alterungsmechanismen und sind zielführend für eine Optimierung der Materialsysteme.

Versuchsaufbau und Alterungsbedingungen

Zur Untersuchung derartiger Mechanismen werden kommerziell verfügbare ultraviolette High-Power-LEDs auf InGaN-Basis gealtert. Zwei identische Gehäusebauformen mit Emissionswellenlängen von 365 nm und 385 nm ermöglichen eine Separation der materialabhängigen Alterung. Die optische Leistung beträgt bei einem Vorwärtsstrom von I_F = 500 mA nach Herstellerangaben etwa $\Phi_{e,365nm}$ = 780 mW, und $\Phi_{e,385nm}$ = 900 mW. Der maximale Strom I_F wird mit 700 mA angegeben.
Die Alterung wird bei einem Konstantstrom von I_F = 700 mA und einer Gehäusetemperatur von T_C = 55 °C durchgeführt. Aufschluss über die physikalischen Alterungsmechanismen gibt die Kombination von optischen und elektrischen Messungen, die in einem Temperaturbereich von 10 °C bis 85 °C durchgeführt werden. Die Messung der LEDs erfolgt automatisiert, wobei jeweils 4 LEDs für jede Emissionswellenlänge auf einem Peltiercontroller montiert werden. Während der Alterung werden die LEDs in Reihe betrieben, bei der messtechnischen Charakterisierung werden die Emitter auf 25 °C temperiert, einzeln angesteuert und vermessen. Das Spektrum jedes Halbleiters wird mit einem Spektroradiometer CAS140CT(200-800nm) bei einem Vorwärtsstrom von 50 mA aufgenommen. Die Bestimmung der elektrischen Parameter erfolgt mit einer Keithley-SMU 2651A.

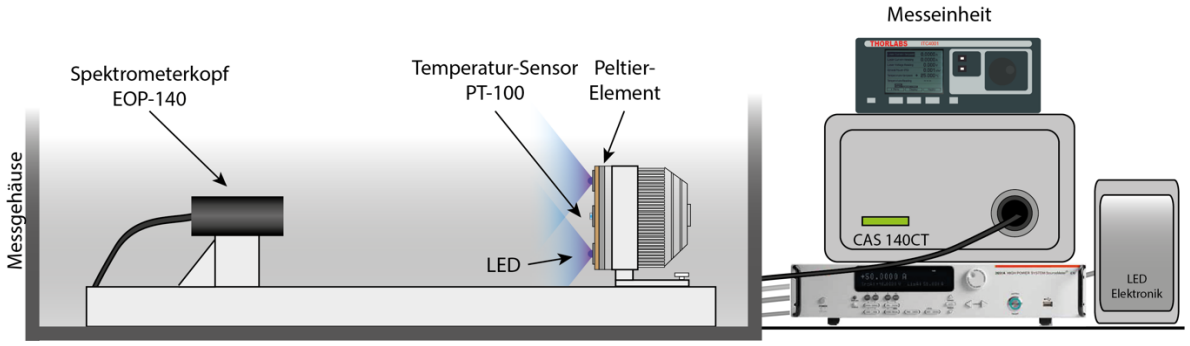

Abbildung 1: Schematische Zeichnung des Messaufbaus

Thermische Charakterisierung

Zur Bestimmung der Sperrschicht-Temperatur während der Alterung wird eine initiale thermische Charakterisierung der LEDs durchgeführt. Die thermischen Widerstände werden mit Hilfe der Vorwärtsspannungs-Methode ermittelt. Hierbei wird der Zusammenhang zwischen Vorwärtsspannung und Sperrschicht-Temperatur genutzt, der ein nahezu lineares Verhalten aufweist. Die im Pulsbetrieb gemessenen Vorwärtsspannungen ergeben sich Abbildung 2 entsprechend.

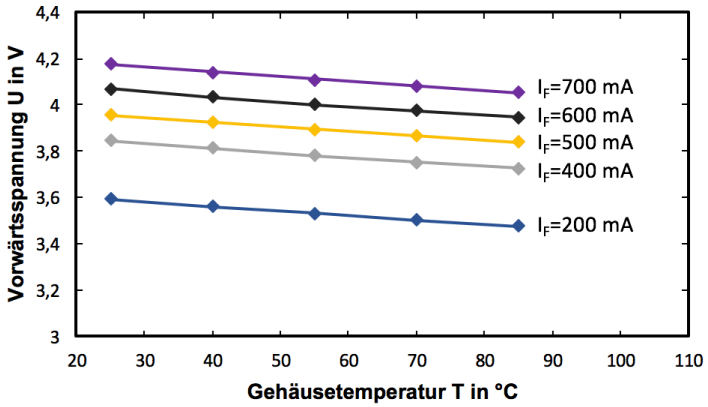

Abbildung 2: Vorwärtsspannung in Abhängigkeit der Gehäusetemperatur – LED4 365 nm

Die annähernd lineare Steigung entspricht dem Temperaturkoeffizienten des Halbleiters und kann mit ~2 mV/K beziffert werden.
Im Anschluss an die initiale Charakterisierung wurden die Halbleiter unter Alterungsbedingung betrieben. Nach einer Einschwingzeit von 10 Minuten wurde die Vorwärtsspannung der LED im Alterungsbetrieb gemessen und mit den Ergebnissen aus der Kalibierphase verrechnet. Hieraus ergibt sich der thermische Widerstand R_{th} zu ~20 K/W. Die Sperrschicht-Temperatur ergibt sich für den kurzwelligeren Emitter zu $T_{j,365nm}$= 94°C, während der Halbleiter mit einer Peakwellenlänge von 385 nm eine Temperatur von $T_{j,385nm}$= 88°C aufweist.
Die Differenzen der Sperrschicht-Temperaturen der unterschiedlichen Materialsysteme von 6 K lassen sich auf die jeweiligen Effizienzen der LEDs zurückführen. InGaN-LEDs bei 385 nm emittieren bei identischer Stromstärke deutlich mehr Strahlung als Emitter bei 365 nm. Folglich unterscheidet sich auch das Verhältnis von optischer und thermischer Leistung, was zu einer erhöhten Eigenerwärmung der kurzwelligeren Halbleiter führt.

Elektrische Charakterisierung

Ergänzend zur thermischen Charakterisierung wird sowohl zu Beginn der Alterung als auch währenddessen eine elektrische Charakterisierung der Halbleiter durchgeführt. Die Aufnahme von Strom-Spannungs-Kennlinien gibt einen umfangreichen Überblick über Alterungsprozesse und elektrische Eigenschaften der Halbleiter. In Abbildung 3 ist die U-I-Kennlinie einer UV-LED mit einer Peakwellenlänge von 365 nm dargestellt. Mit zunehmender Spannung steigt der Strom sowohl in Sperr- als auch in Durchlassrichtung an. Durch die Variation der Umgebungstemperatur lässt sich die energetische Barriere tiefer Störstellen berechnen, die Aufschluss über die Degradationsmechanismen der LED liefern kann.

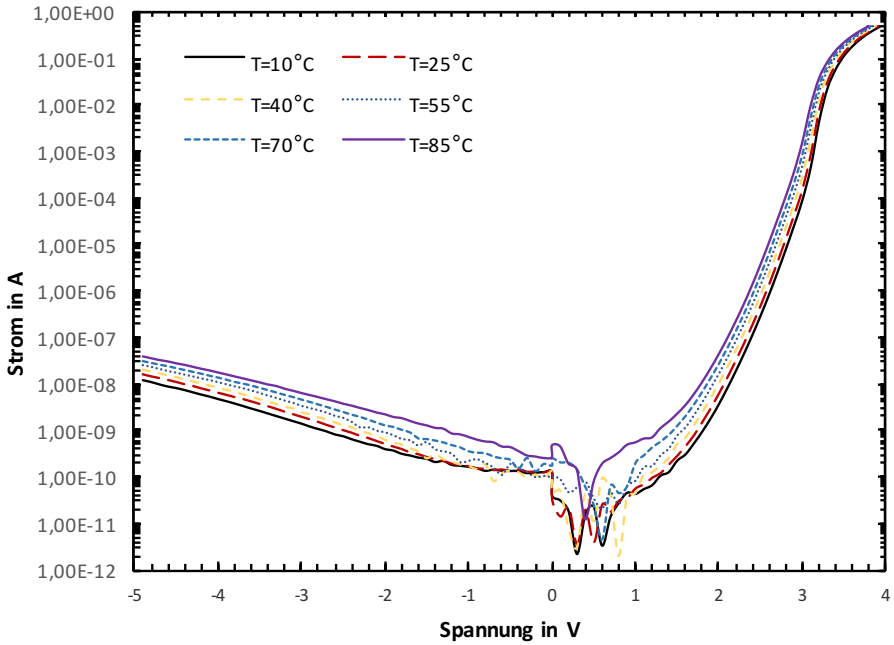

Abbildung 3: U-I-Kennlinie bei unterschiedlichen Gehäusetemperaturen - LED4 365 nm

Zusätzlich lässt sich mit Hilfe der Kennlinie der Idealitätsfaktor n_{ideal} der Diode bestimmen. Über

$$n_{ideal} = \frac{q}{kT}\left(\frac{\partial \ln I}{\partial V}\right)^{-1} \quad (1)$$

lässt sich letzterer mit der Elementarladung *q*, der Boltzmann-Konstanten *k* und der Temperatur *T* ermitteln. Nach [9] lässt sich die Kennlinie Abbildung 4 entsprechend in drei Bereiche unterteilen. Im Bereich niedriger Ströme ist der Idealitätsfaktor n_{ideal} überwiegend auf den Einfluss des Parallelwiderstandes R_p zurückzuführen. Im Bereich höherer Ströme dominiert der Einfluss des Serienwiderstandes R_s den Verlauf der Kennlinie. Folglich lassen sich sowohl R_p als auch R_s für Abweichungen von der idealen Diodenkennlinie verantwortlich machen [8]. Lediglich in einem Strombereich von 1 mA wird die Charakteristik vom Verhalten der Raumladungszone dominiert und folgt einem exponentiellen Verlauf, welcher sich in einem lokalen Minimum des Idealitätsfaktors äußert. Letzterer besitzt ausschließlich in diesem Bereich seine Gültigkeit und ist in Abbildung 4 durch eine gestrichelte Gerade gekennzeichnet.

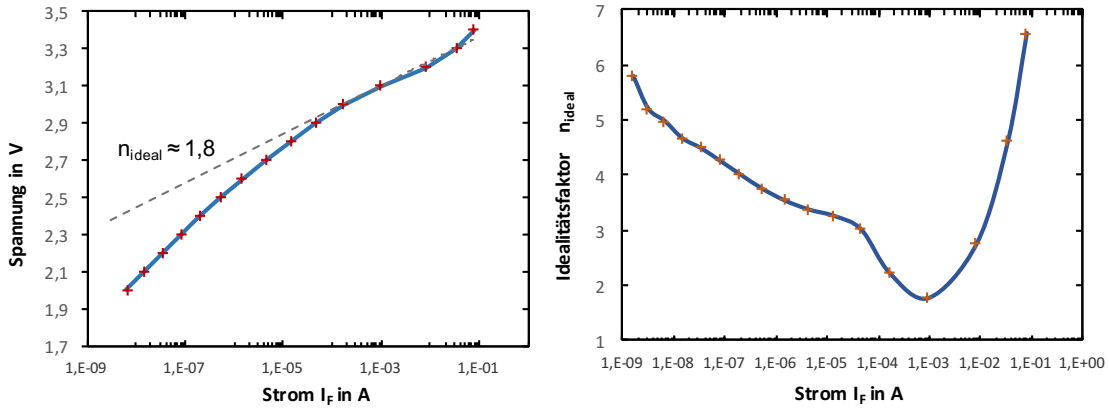

Abbildung 4: (links) Semilogarithmische Darstellung der I-U-Kennlinie
(rechts) Idealitätsfaktor über dem Vorwärtsstrom I_F - LED4 365 nm

Der Idealitätsfaktor der LED mit der Emissionswellenlänge von 385 nm ergibt sich analog zu $n_{ideal,385nm} = 1,84$.
Ergänzend hierzu gibt der Leckstrom in Sperrrichtung Aufschluss über eine fortschreitende Degradation, weshalb sowohl initial als auch während der Alterung temperaturabhängige U-I-Kennlinien ohne Umgebungslicht aufgenommen wurden. Bei einer Spannung von -5 V ergibt sich für den kurzwelligen Emitter ein Leckstrom von etwa 16 nA bei einer Temperatur von 298,15 K. Um den Einfluss des Stromtransports in Sperrrichtung ausmachen zu können, wird der Sperrstrom als Funktion der inversen Temperatur aufgetragen.

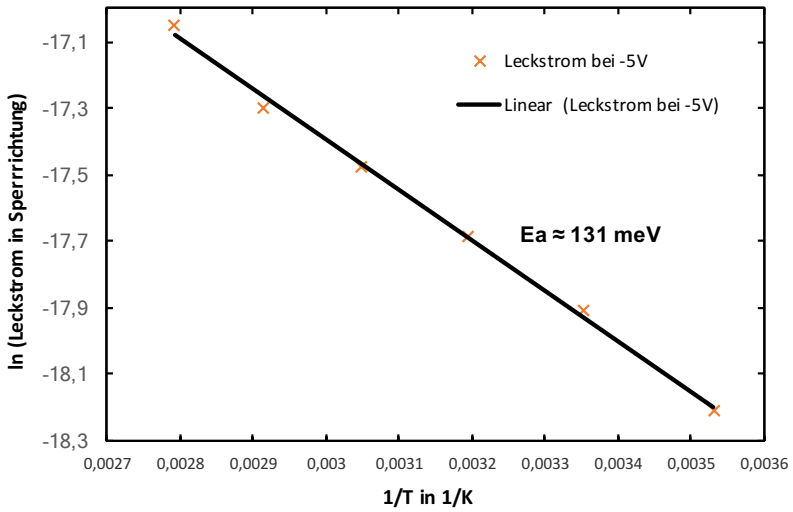

Abbildung 5: Arrhenius Plot des Leckstroms in Sperrrichtung bei -5V

Nach [3] lassen sich grundsätzlich zwei Mechanismen für den Stromfluss verantwortlich machen. Ein verantwortlicher Mechanismus ist Variable-Range-Hopping(VRH) bei dem ein Ladungsträgertransport über ein Springen zwischen lokalen tiefen Störstellen innerhalb der Raumladungszone stattfindet.

Die Abhängigkeit des Leckstroms bei einer festen Spannung ist mit

$$I \propto I_0 exp\left\{-\left(\frac{T_0}{T}\right)^{1/4}\right\} \tag{2}$$

gegeben, wobei T_0 der charakteristischen Temperatur entspricht.
Unter Betrachtung von Abbildung 5 ist zu schlussfolgern, dass sich ein Fit nach (2) als unpassend erweist. Weiterhin lässt sich [2] entnehmen, dass der Effekt bei einer Temperatur unterhalb von 280 K dominant ist. Oberhalb von 280 K steigt der Leckstrom linear auf einer logarithmisch skalierten Ordinatenachse als Funktion von 1/T. Eine Näherung nach

$$I \propto I_0 exp\left\{-\frac{E_a}{kT}\right\} \tag{3}$$

erweist sich in einem Temperaturbereich von 283,15 K – 358,15 K als vielversprechend mit einem Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0{,}997$ [4].
Die aus dem Graphen bestimmte Aktivierungsenergie ergibt sich zu $E_{a,365}$=131 meV bzw. $E_{a,385}$=123 meV und ist vergleichbar mit Werten aus [1]. Die berechneten Energien bestätigen, dass der Leckstrom nicht auf Drift-Diffusion oder Sah-noyce-shockley Ladungsträgergeneration und Rekombination zurückzuführen ist, da derartige Prozesse Aktivierungsenergien aufweisen, die etwa der der Bandlücke entsprächen [3].

Vielmehr ist der Stromanstieg einer thermischen Anregung von Elektronen in tiefen Störstellen zuzuschreiben [2], der auch als thermally assisted multistep tunneling (TAT) bezeichnet wird. Hierbei tunneln Elektronen in Kombination mit thermischer Anregung vom p-dotierten Halbleiter zum Leitungsband des n-dotierten Halbleiters. Tiefe Störstellen lassen sich auf diffundierte Mg-Atome oder strukturelle Ungleichmäßigkeiten wie Punkt-Defekte oder Fehlstellen zurückführen [5,6,7]. Um Weitere Aussagen bezüglich der vorhanden tiefen Störstellen treffen zu können, wird nach [2] die energetische Barriere selbiger bestimmt. Über

$$E_a = \Phi_{PF} - \beta_{PF} F^{1/2} \tag{4}$$

lässt sich Φ_{PF} aus der Extrapolation der thermischen Aktivierungsenergie als Wurzelfunktion der Spannung bestimmen. Für die Absenz eines elektrischen Feldes ergibt sich die durchschnittliche Barrierenhöhe der tiefen Störstellen zu $E_{a\Phi PF,365}$ = 0,2951 eV bzw. $E_{a\Phi PF,385}$ = 0,3285 eV.

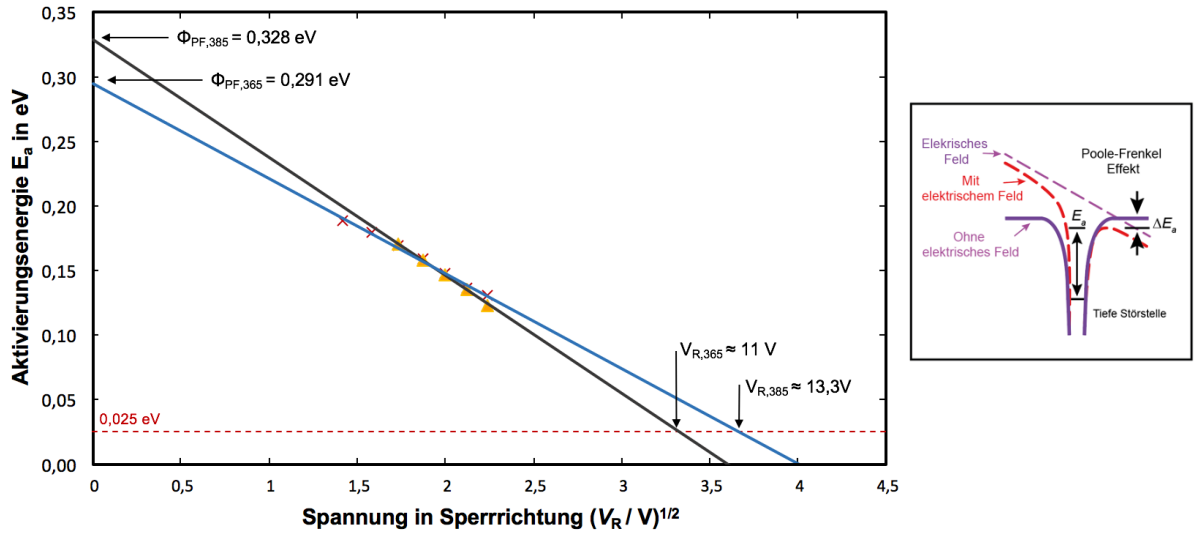

Abbildung 6: (links) Thermische Aktivierungsenergie als Wurzelfunktion der Spannung in Sperrrichtung für LED4/LED 6 (rechts) Schematische Darstellung des Poole-Frenkel Effekts

Unter Berücksichtigung des Poole-Frenkel-Effekts erniedrigt ein zunehmendes elektrisches Feld die Barrieren der Störstellen. Bei einer Spannung in Sperrrichtung von 13,3 V bzw. 11 V entspricht die Potentialbarriere etwa 0,025 eV, was einer thermischen Energie bei Raumtemperatur entspricht. Folglich werden die Elektronen aus den Störstellen freigesetzt und tragen zu einem zusätzlichen Leitungsmechanismus oberhalb der genannten Spannung bei. Für die Alterungsprozesse ist der Zusammenhang von steigender Fehlstellendichte und Abnahme der optischen Leistung maßgeblich entscheidend, weshalb eine Charakterisierung entsprechender Parameter unverzichtbar ist.

Optische Charakterisierung

Für die optische Charakterisierung der Halbleiter wurde sowohl das Spektrum als auch die optische Leistung über den Alterungszeitraum gemessen. In Abbildung 7 ist die Strahlungsleistung als Funktion der Temperatur aufgetragen. Auffällig ist die Abnahme selbiger um 25 % bei 365 nm und um 14 % bei 385 nm. Nach [10] lassen sich hierfür 2 Mechanismen verantwortlich machen: Zum einen entkommen Ladungsträger mit zunehmender Temperatur aus der Quantentopfstruktur, welche sich aufgrund ihrer materialtechnischen Beschaffenheit in ihrem Band-Offset zur umliegenden Halbleiterstruktur unterscheiden. Zum anderen kommt es zum Anstieg nicht strahlender Rekombinationen. Aufgrund der unterschiedlichen Emissionswellenlängen lässt sich jedoch die Ausführung der Quantentopfstruktur für die Abnahme der optischen Leistung mit steigender Temperatur verantwortlich machen, da der Band-Offset bei höherenergetischen Emittern geringer ausfällt.

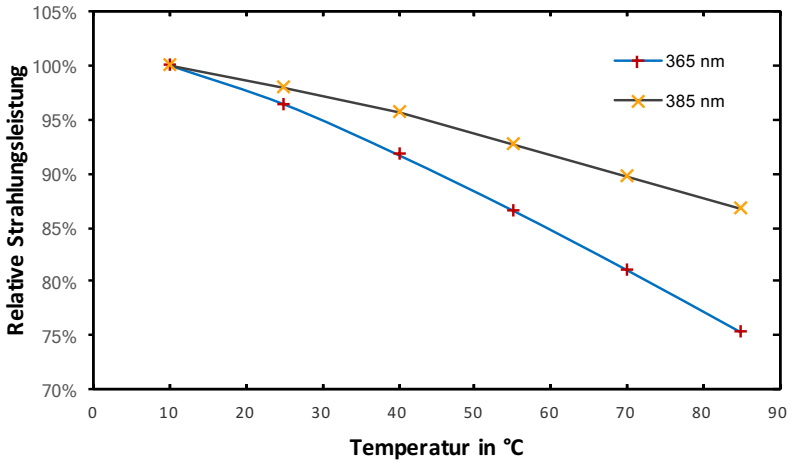

Abbildung 7: Abnahme der optischen Leistung bei unterschiedlichen Gehäusetemperaturen LED4 365 nm / LED6 385 nm @ 50 mA

Ergebnisse der Leuchtdiodenalterung

Nach Abschluss der initialen Charakterisierung werden die LEDs bei einem Konstantstrom von 700 mA und einer Gehäusetemperatur von 55 °C betrieben. Die Messungen wurden zunächst in Intervallen von 30 Minuten durchgeführt und mit zunehmender Alterungszeit vergrößert. Abbildung 8 ist zu entnehmen, dass die Beanspruchung einen signifikanten Einfluss auf die Abnahme der optischen Leistung ausübt. Innerhalb der ersten 60 Stunden ist eine starke Abnahme des Strahlungsflusses zu verzeichnen, welche von einem zweiten Degradationsmechanismus mit geringerer Degradationsrate gefolgt wird. Zusätzlich lässt sich die materialabhängige Degradation ausmachen, die für 365 nm deutlich stärker ausfällt. Der Halbleiter mit 385 nm Peakwellenlänge weist eine deutlich geringere Alterungsrate beim zweiten Degradationsmechanismus auf.

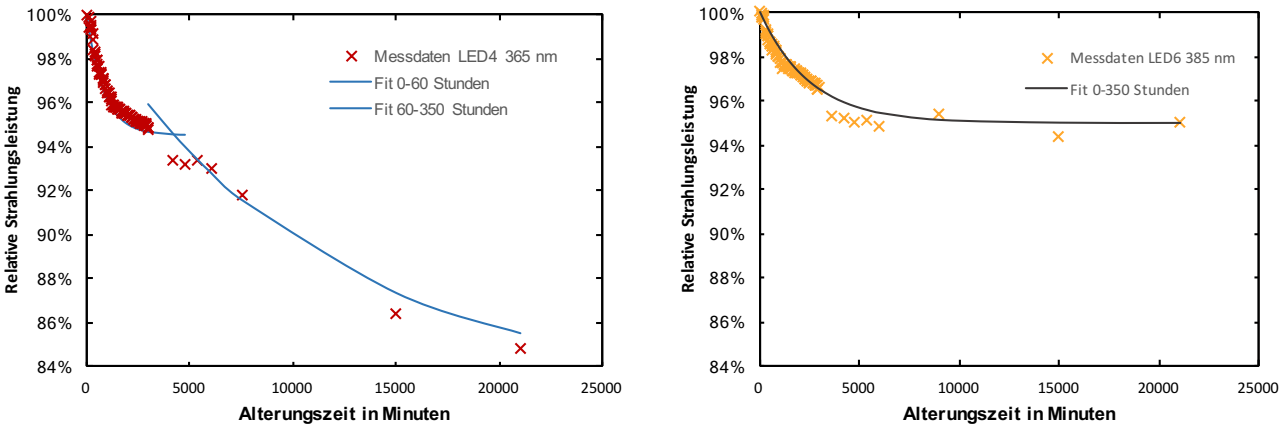

Abbildung 8: Abnahme der optischen Leistung während der Alterung bei I_F=700 mA und T_C=55°C LED4 365 nm und LED6 385nm - gemessen bei T_C = 25°C und I_F=50 mA

Zusätzliche Informationen lassen sich durch die Betrachtung der elektrischen Parameter gewinnen. Die Strom-Spannungskennlinie weist über den Alterungszeitraum eine deutliche Zunahme der Leckströme in Sperr- und Durchlassrichtung auf. Sowohl der Anstieg des Leckstroms bei -4 V als auch die Änderungen im unterschwelligen Durchlassbereich weisen auf die Zunahme von Punkt-Defekten innerhalb des PN-Übergangs hin [3].

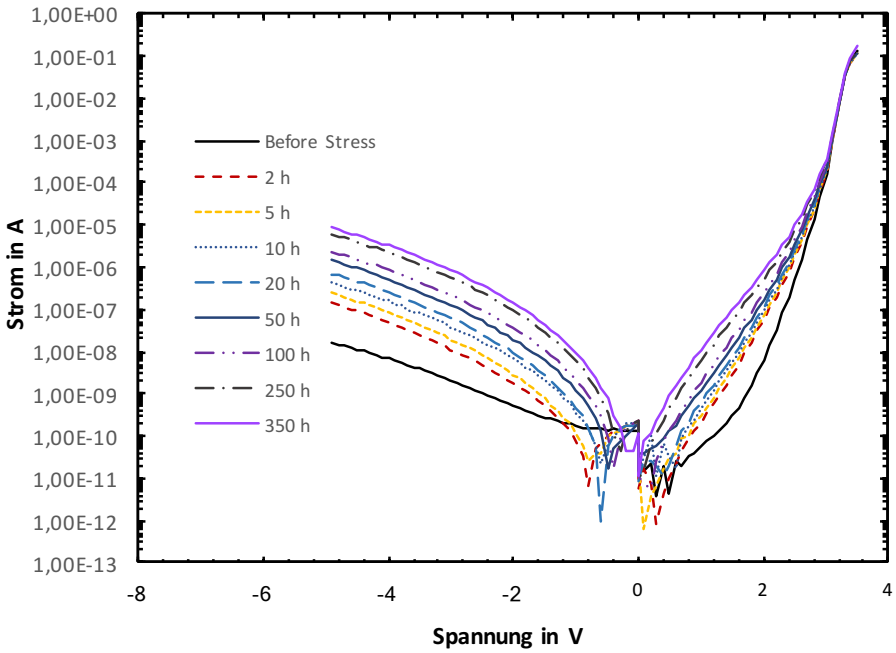

Abbildung 9: Elektrische Degradation des Halbleiters bei I_F=700 mA und T_C=55°C – LED4 365 nm

Um den Anstieg in Durchlassrichtung quantifizieren zu können, wird der Idealitätsfaktor über den Alterungszeitraum bei 3,2 V bestimmt. Eine Berechnung der Degradation der optischen Leistung in Abhängigkeit des Idealitätsfaktors weist eine sehr gute Korrelation auf, weshalb sich die Abnahme der optischen Leistung aufgrund von Störstellen und Punkt-Defekten bestätigen lässt.

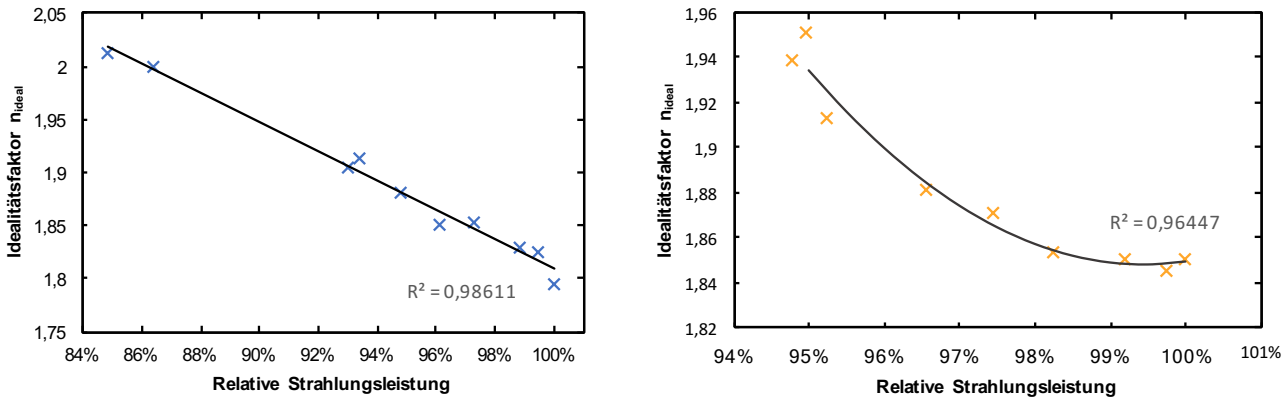

Abbildung 10: (links) Korrelation des Idealitätsfaktors bei 3,2V für LED4 365 nm – $P_{otp\ @\ 50\ mA}$
(rechts) Korrelation des Idealitätsfaktors bei 3,2V für LED4 385 nm- $P_{otp\ @\ 50\ mA}$

Weiterhin ist auch eine Abnahme der durchschnittlichen Barrierenhöhe der tiefen Störstellen zu verzeichnen, was auf eine Zunahme selbiger schließen lässt. Folglich kann die optische Degradation einem Anstieg thermisch aktivierter Tunnelprozesse und der Zunahme nichtstrahlender Rekombination zugeschrieben werden. Die geringere Alterungsrate der langwelligeren Emitter ist auf die höhere externe Quanteneffizienz und die damit verbundene niedrigere Eigenerwärmung zurückzuführen. Eine erhöhte Temperatur beschleunigt die Prozesse der Defektzunahme aufgrund der Eigenerwärmung.

Diskussion und Ausblick

Im Rahmen der bisherigen Untersuchungen konnten grundlegende Alterungsmechanismen der InGaN-Materialsysteme im UV-Bereich ermittelt und zugeordnet werden. Anhand der Ergebnisse lässt sich eine direkte Korrelation zwischen Defektzunahme und optischer Degradation nachweisen. Eine Zunahme von Punktdefekten innerhalb des PN-Übergangs führt zu einer direkten Abnahme der strahlenden Rekombination. Weiterhin weisen die Degradationsraten eine starke Materialabhängigkeit auf und lassen sich bezüglich ihrer Differenzen auf die unterschiedlichen externen Quanteneffizienzen zurückführen. Um zuvor beschriebene Alterungsmechanismen tiefergehend untersuchen zu können, werden zeitnah weitere Alterungen bei veränderten Konstantstrombedingungen und Gehäusetemperaturen durchgeführt werden. Auf diese Weise lassen sich ergänzende Aussagen bezüglich des thermischen Einflusses auf Degradationsprozesse treffen, welche sowohl durch intrinische Erwärmung als auch durch eine Erhöhung der Umgebungstemperatur hervorgerufen werden können. Eine weiterführende temperaturabhängige Charakterisierung elektrischer Parameter während der Alterung wird Aufschluss über das Verhalten tiefer Störstellen geben. Zusätzlich gilt es die Aussagekraft der Korrelation des Idealitätsfaktors und der optischen Leistung über einen längeren Zeitraum zu bewerten.

Literatur

[1] Qifeng Shan, David S. Meyaard, Qi Dai',Jeahee Cho, E.Fred Schubert, Joong Kon Son and Chealsoo Sone: „*Transport-mechanism analysis of the reverse leakage current in GaInN light-emitting diodes",* Appl. Phys. Lett. 99 (2011)

[2] Jaekyun Kim, Jun-Youn Kim, Youngjo Tak, Joosung Kim, Hyun-Gi Hong, Moonseung Yang, Suhee Chae, Junghoon Park and U-In Chung: „*Investigation of reverse leakage characteristics of InGaN/GaN light-emitting diodes on silicon",* IEEE Electron Device letters vol. 33, No. 12 (2012)

[3] Desiree Monti, Matteo Meneghini, Carlo De Santi, Gaudenzio Meneghesso und Enrico Zanoni: „*Degradation of UV-A LEDs: Physical Origin and dependence on stress conditions ",* Transactions on Device and Materials Reliability (2016)

[4] Fedison, J. B.; Chow, T. P.; Lu, H. & Bhat, I. B.: *„Electrical characteristics of magnesium-doped gallium nitride junction diodes",* Applied Physics Letters*,* 72, 2841-2843 (1998)

[5] Mao, A.; Cho, J.; Dai, Q.; Schubert, E. F.; Son, J. K. & Park, Y.: *„Characteristics of dotlike green satellite emission in GaInN light emitting diodes",* Applied Physics Letters*,* 98, 023503 (2011)

[6] Lymperakis, L.; Neugebauer, J.; Albrecht, M.; Remmele, T. & Strunk, H. P.: *„Strain Induced Deep Electronic States around Threading Dislocations in GaN",* Phys. Rev. Lett., American Physical Society*,* 93, 196401 (2004)

[7] Kuksenkov, D. V.; Temkin, H.; Osinsky, A.; Gaska, R. & Khan, M. A.: *„Origin of conductivity and low-frequency noise in reverse-biased GaN p-n junction",* Applied Physics Letters, 72, 1365-1367 (1998)

[8] Schubert, E.: *„Light-Emitting Diodes",* Cambridge: Cambridge University Press. (2006)

[9] Zhu, D.; Xu, J.; Noemaun, A. N.; Kim, J. K.; Schubert, E. F.; Crawford, M. H. & Koleske, D. D.: *„The origin of the high diode-ideality factors in GaInN/GaN multiple quantum well light-emitting diodes",* Applied Physics Letters*,* 94, 081113 (2009)

[10] X. A. Cao, S. F. LeBoeuf and T. E. Stecher: *„Temperature-dependent electroluminescence of AlGaN-based UV LEDs",* IEEE Electron Device Letters, vol. 27, no. 5, pp. 329-331 (2006)