07

GaAs/AlGaAs- и InGaAs/AlGaAs-гетероструктуры для мощных полупроводниковых инфракрасных излучателей

© Д.В. Гуляев,¹ Д.В. Дмитриев,¹ Н.В. Фатеев,¹ Д.Ю. Протасов,^{1,2} А.С. Кожухов,¹ К.С. Журавлев¹

¹ Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, 630090 Новосибирск, Россия ² Новосибирский государственный технический университет, 630073 Новосибирск, Россия e-mail: gulyaev@isp.nsc.ru

Поступило в редакцию 12 мая 2021 г. В окончательной редакции 28 июня 2021 г. Принято к публикации 1 июля 2021 г.

Определен внутренний квантовый выход люминесценции GaAs/AlGaAs- и InGaAs/AlGaAs-гетероструктур для инфракрасных светодиодов. Исследовано влияние ростовых условий гетероструктур, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии и пост-ростового отжига на квантовый выход гетероструктур. По-казано, что совокупной оптимизацией данных процессов удается повысить квантовый выход люминесценции исследуемых гетероструктур до 75–80% при умеренной мощности накачки.

Ключевые слова: гетероструктуры, кельвиновская зондовая микроскопия, молекулярно-лучевая эпитаксия.

DOI: 10.21883/JTF.2021.11.51535.142-21

Введение

ИК светоизлучающие приборы интересны своей незаметностью для человеческого глаза при возможности регистрации излучения электронными системами от фотоприемников до обычных видеокамер. Именно поэтому инфракрасные светодиоды с длиной волны от 850 до 980 nm получили наиболее широкое распространение в составе ИК датчиков, незаменимых практически во всех сферах нашей жизни: от бытовой (пульты управления, системы безопасности) и медицинской техники (пульсоксиметры) до контроля технологических процессов (счетчики предметов и датчики положения, автоматизация) [1–3].

Основной характеристикой таких излучающих приборов по определению является светимость. Повышение светимости излучающих приборов без изменения их конструкции возможно в результате увеличения внутренней и внешней квантовой эффективности. Для увеличения внешней квантовой эффективности применяются такие наиболее распространенные методики, как формирование отражающей поверхности под активной областью прибора [4–6], фотонных кристаллов [7,8], увеличение шероховатости поверхности [9,10] и/или нанесения просветляющих покрытий [11]. Однако без хорошей основы, а именно гетероструктуры с высоким внутренним квантовым выходом, применение этих методик не обеспечит получение светоизлучающего диода с высокими характеристиками. Увеличение внутреннего квантового выхода в первую очередь достигается подбором оптимальных условий роста [12] гетероструктуры, обеспечивающих высокое кристаллическое совершенство структуры и отсутствие центров безызлучательной рекомбинации. В зависимости от условий и

методов изготовления молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) [13,14] или газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений [15,16]), внутренний квантовый выход структур может меняться в достаточно широких пределах, достигая в лучших образцах более 90% [13–18]. В работах, однако, далеко не всегда указывают мощность, при которой проводилось измерение, что зачастую делает сравнение литературных данных между собой невозможным, поскольку квантовый выход зависит от мощности накачки.

В настоящей работе мы приводим результаты работы по получению методом МЛЭ гетероструктур с квантовыми ямами (КЯ) GaAs/AlGaAs и InGaAs/AlGaAs, предназначенных для создания на их основе светодиодов для работы в ближнем ИК диапазоне.

1. Методика эксперимента

Исследуемые гетероструктуры с GaAs/AlGaAs или InGaAs/AlGaAs квантовыми ямами выращивались методом МЛЭ на сильно легированной кремнием подложке GaAs ориентации (100) с буферным слоем GaAs толщиной 0.4μ m. Конструкция выращенных гетероструктур (см. таблицу) соответствует конструкции гетероструктур для мощных полупроводниковых инфракрасных излучателей за одним исключением: отсутствует верхний $3-6 \mu$ m слой растекания AlGaAs, поскольку верхний контактный слой (ширина запрещенной зоны 1.67 eV) при его наличие поглощает все излучение возбуждающего люминесценцию лазера (2.35 eV) и не дает возможность определить внутренний квантовый выход гетероструктуры использованным в работе методом фотолюминесценции (ФЛ). Для каждого типа

N₂	Назначение	Материал	Толщина, nm	Состав $(x в Me_xGa_{1-xc}As)$	Легирование, ст ⁻³
6	Верхний контакт	GaAs	30		C: $5 \cdot 10^{18}$
5	Верхний блокирующий слой	AlGaAs	60	0.2	C: $5 \cdot 10^{18}$
4	Активная область (7 периодов КЯ)	AlGaAs	16	0.2	
		GaAs/InGaAs (для $\lambda = 860/905 \text{nm}$)	15/12 (для $\lambda = 860/905 \mathrm{nm})$	-/0.075	
3	Нижний блокирующий слой		60	0.2	Si: 3 · 10 ¹⁸
2	Зеркало на основе распределенного брегтовского отражателя (3 периода)	AlGaAs	$62/65$ (для $\lambda = 860/905\mathrm{nm})$	0.1	Si: 3 · 10 ¹⁸
		AlGaAs	71/74 (для $\lambda = 860/905\mathrm{nm})$	0.9	Si: 3 · 10 ¹⁸
1	Буферный слой	GaAs	500		Si: $3 \cdot 10^{18}$
0	Подложка	GaAs	400000		Si: 3 · 10 ¹⁸

Конструкция GaAs/AlGaAs- и InGaAs/AlGaAs-гетероструктур

КЯ (GaAs/AlGaAs или InGaAs/AlGaAs) выращивались серии образцов при различных температурах роста: температуры роста GaAs/AlGaAs КЯ варьировались от 590 до 620°C, InGaAs/AlGaAs КЯ от 480 до 525°C соответственно. Определение температур роста проводилось по реконструкционным переходам на ростовой поверхности в картине дифракции быстрых электронов на отражение. Дополнительно выращенные гетероструктуры отжигались при различных температурах от 700 до 850°C в нейтральной атмосфере азота в течение 3 min. Для препятствования десорбции атомов в процессе отжига на поверхность образцов предварительно наносился слой SiO₂ толщиной около 100 nm. Для характеризации образцов поверхность их скола исследовалась методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) в режимах, обеспечивших наилучший контраст изображения, а именно кельвиновской сканирующей зондовой микроскопии и регистрации адгезии сил [19]. Возникновение дополнительной силы адгезии между поверхностью и зондом при его отводе является следствием наличия водяного мениска на поверхности измеряемого образца. Величина адгезии при этом зависит от структуры и материала поверхности, что позволяет исследовать ее особенности с хорошим латеральным разрешением даже в отсутствие существенных перепадов поверхности по высоте.

Внутренний квантовый выход гетероструктур определялся из анализа ФЛ данных. Для возбуждения ФЛ использовался YAG:Nd-лазер с длиной волны 527 nm и максимальной мощностью 150 mW/mm². Диаметр лазерного пятна на образце составлял 1 mm². В качестве эталонного образца использовался раствор радомина 6G в этаноле, обладающий на длине волны 527 nm квантовым выходом, близким к 100% [20,21]. Регистрация ФЛ осуществлялась спектрометром на основе одиночного монохроматора, оснащенного кремниевой CCD (charge-coupled device) камерой. Измерения проводились при комнатной температуре.

2. Экспериментальные результаты и обсуждение

АСМ изображение скола образца вблизи активной области представлено на рис. 1. Квантовые ямы отчетливо видны на АСМ изображении в режиме адгезии сил, а верхние и нижние блокирующие AlGaAs-слои соответствуют минимумам потенциала, измеренного кельвиновской зондовой микроскопией и отражающего работу выхода из материала.

На рис. 2 представлены спектры ФЛ тестовых GaAs/AlGaAs- и InGaAs/AlGaAs-гетероструктур для 860 и 905 nm соответственно. В спектрах ФЛ обоих типов образцов доминирует полоса, связанная с рекомбинацией между уровнями размерного квантования в КЯ с шириной на полувысоте (FWHM) около 10 meV при 300 К.

Внутренний квантовый выход был определен из люминесцентных данных в рамках стандартной ABCмодели, учитывающей излучательную рекомбинацию, безызлучательную рекомбинацию Шокли–Рида и ожерекомбинацию. Для простоты расчета внутреннего квантового выхода экспериментальная зависимость стационарной интенсивности ФЛ образцов от мощности лазерного возбуждения (рис. 3, *a*) была преобразована в обратную функцию $P_{laser}(I_{PL}) = P_1 I_{PL}^{0.5} + P_2 I_{PL} + P_3 I_{PL}^{1.5}$. Такой подход позволяет определить внутренний квантовый выход при произвольной мощности возбуждения без знания коэффициентов А, В и С в уравнениях



Рис. 1. a — АСМ изображение $(0.55 \times 0.55 \,\mu\text{m}); b$ — профиль адгезионных сил и распределение поверхностного потенциала вблизи активной области образца.



Рис. 2. Типичные спектры ФЛ GaAs/AlGaAs и InGaAs/AlGaAs КЯ при комнатной температуре. Мощность лазерного возбуждения — 20 mW.

непрерывности [22]. В этом случае внутренний квантовый выход структур определяется из соотношения

9 Журнал технической физики, 2021, том 91, вып. 11

 $\eta = P_2 I_{PL}/P_{laser}$, где P_2 — подгоночный параметр в зависимости $P_{laser}(I_{PL})$, не зависящий от темпа излучательной и безызлучательной рекомбинации в исследуемом материале. Действительно, согласно [22], $P_2 = 1/(xa)$, где a — константа, определяемая объемом возбуждаемой области и эффективностью сбора люминесценции, а $x = (1 - R)\alpha/(A_{SPOT}h\nu)$, где R отражение от поверхности образца, α — коэффициент поглощения, A_{SPOT} — площадь лазерного пучка на образце, $h\nu$ — энергия фотона.

Дополнительно квантовый выход образцов был оценен из сравнения интенсивностей ФЛ образцов с ФЛ радомина 6G, обладающим на длине волны 527 nm квантовым выходом около 96% [20]. Полученные данные с точностью до нескольких процентов совпали с данными, полученными из анализа мощностной зависимости ФЛ. Результаты расчета квантового выхода для неотожженных образцов ГЭС представлены на рис. 3, b. Как можно увидеть, внутренний квантовый выход GaAs/AlGaAs-структур оказывается значительно выше такового в InGaAs/AlGaAs-структурах. Такое отличие является следствием выращивания In-содержащих



Рис. 3. Зависимости интенсивности (a) ФЛ и квантового выхода (b) от мощности лазерного возбуждения для неотожженных GaAs и InGaAs КЯ. Температура роста GaAs/AlGaAs и InGaAs/AlGaAs КЯ — 510 и 610°С соответственно.



Рис. 4. Зависимость внутреннего квантового выхода люминесценции гетероструктур с InGaAs/AlGaAs и GaAs/AlGaAs KЯ от ростовой температуры (*a*) и температуры отжига (*b*). Мощность лазерного возбуждения — 20 mW.

КЯ при пониженных на 100°С температурах по сравнению со структурами с GaAs КЯ, приводящего к повышению концентрации центров безызлучательной рекомбинации [23].

Поскольку квантовый выход образцов зависит от мощности лазерного возбуждения (рис. 3, b), для сравнения образцов между собой была выбрана средняя мощность в 20 mW. Зависимости квантового выхода гетероструктур с InGaAs/AlGaAs и GaAs/AlGaAs КЯ от ростовой температуры для этой мощности представлены на рис. 4, a. Видно, что для обоих типов ГЭС существует оптимальная температура роста, отклонение от которой вызывает снижение внутреннего квантового выхода. Такое поведение объясняется конкуренцией двух процессов, зависящих от температуры роста:

1) увеличения миграции плохо встраивающихся адатомов 3 группы (Ga, Al) по поверхности, что уменьшает количество ростовых дефектов;

2) сегрегацией и десорбцией атомов Ga и/или In с ростом температуры, что, наоборот, увеличивает концентрацию дефектов [24,25].

Компенсация десорбции атомов Ga и/или In в процессе МЛЭ при повышении температуры возможна за счет увеличения отношения потоков атомов 3 и 5 групп, однако это приводит к сильному перерасходу материалов 3 группы и не применимо для типичной МЛЭ-технологии производства гетероструктур, являющейся компромиссом между расходом материалов и качеством структуры.

Из литературы известно, что концентрацию дефектов в A3B5-материалах, полученных методом МЛЭ, можно понизить температурным отжигом [26–28]. На рис. 4, *b* представлены результаты краткосрочного отжига образцов, выращенных при оптимальных температурах роста. Видно, что повышение квантового выхода InGaAs КЯ происходит только до температуры 775°C, тогда как квантовый выход GaAs КЯ повышается до температуры 850°C. Такое отличие In-содержащих КЯ может быть объяснено их "размытием" из-за начала диффузии атомов индия между барьером и ямой при этих температурах [29,30]. Это утверждение подтверждается сдвигом энергетического положения линий на 1 meV, наблюдаемым в спектрах ФЛ InGaAs/AlGaAs KЯ, оттожженых при 850°С. Максимальный квантовый выход In-содержащих структур, несмотря на меньшую температуру отжига, оказывается несколько выше такового в GaAs KЯ, что вызвано большим значением матричного элемента оптического перехода в InGaAs КЯ из-за ее меньшей толщины (12 nm вместо 15 nm у GaAs KЯ). В любом случае видно, что квантовый выход как GaAs/AlGaAs ГЭС, так и InGaAs/AlGaAs-структур удается повысить кратковременным отжигом в нейтральной атмосфере до значений в 75-80%. При этом следует отметить, что данный результат достигнут при использовании мышьяка чистотой всего 99.99995% (6N), и можно ожидать, что использование более чистых исходных материалов типа 7N еще более увеличит внутренний квантовый выход люминесценции гетероструктуры.

Заключение

Таким образом, в работе проведено исследование внутреннего квантового выхода люминесценции GaAs/AlGaAs- и InGaAs/AlGaAs-гетероструктур, предназначенных для создания на их основе светодиодов для работы в ближнем ИК диапазоне. Квантовый выход определен:

1) из зависимости интенсивности ФЛ от мощности лазерной накачки в рамках стандартной ABC-модели;

2) из сравнения интенсивностей ФЛ образца и эталона.

Продемонстрировано, что подбором условий роста гетероструктур, выращенных методом МЛЭ, в совокупности с последующим кратковременным отжигом удается достичь квантового выхода люминесценции как GaAs/AlGaAs ГЭС, так и InGaAs/AlGaAs-структур в 75–80% при умеренной мощности накачки.

Благодарности

Измерения методом ACM проводились на оборудовании ЦКП Наноструктуры ИФП СО РАН.

Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ и Новосибирской области в рамках научного проекта № 20-42-540009.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- W.A. Cahyadi, Y. Ho Chung. Opt. Express, 26 (15), 19657 (2018). DOI: 10.1364/OE.26.019657
- [2] T. Tamura, Y. Maeda, M. Sekine, M. Yoshida. Electronics, 3, 282 (2014). DOI: 10.3390/electronics3020282
- [3] A.C. Caputo. *Digital Video Surveillance and Security* (Elsevier Inc., 2014)
- [4] E.F. Schubert. *Light-emitting diodes (second edition)* (Cambridge University Press, 2006)
- [5] А.В. Малевская, Н.А. Калюжный, Д.А. Малевский, С.А. Минтаиров, Р.А. Салий, А.Н. Паньчак, П.В. Покровский, Н.С. Потапович, В.М. Андреев. ФТП, 55 (7), 614 (2021). DOI: 10.21883/FTP.2021.07.51028.9646
- [6] S.-Y. Lee, E. Lee, J.-H. Moon, B. Choi, J.-T. Oh, H.-H. Jeong, T.-Y. Seong, H. Amano. Photon. Technol. Lett. IEEE, **32** (17), 1041 (2020). DOI: 10.1109/LPT.2020.3010820
- H.-P.D. Yang, J.-N. Liu, F.-I. Lai, H.-Ch. Kuo, J.Y. Chi. J. Modern Opt., 55 (9), 1509 (2008).
 DOI: 10.1080/09500340701691608
- [8] M. Li, H. Zhen, Y. Jing, H. Wang, N. Li. Opt. Quant Electron., 48 (2), 140 (2016). DOI: 10.1007/s11082-016-0415-3
- [9] I. Schnitzer, E. Yablonovitch, C. Caneau, T.J. Gmitter, A. Scherer. Appl. Phys. Lett., 63 (16), 2174 (1993).
 DOI: 10.1063/1.110575
- [10] R. Windisch, C. Rooman, B. Dutta, A. Knobloch, G. Borghs, G.H. Dohler, P. Heremans. IEEE J. Selected Topics in Quant. Electronics, 8 (2), 248 (2002). DOI: 10.1109/2944.999177
- T. Kato, H. Susawa, M. Hirotani, T. Saka, Y. Ohashi,
 E. Shichi, S. Shibata. J. Crystal Growth, 107 (1-4), 832 (1991). DOI: 10.1016/0022-0248(91)90565-M
- [12] S.-Ch. Ahn, B.-T. Lee, W.-Ch. An, D.-K. Kim, I.-K. Jang, J.-S. So, H.-J. Lee. J. Korean Phys. Society, **69** (1), 91 (2016). DOI: 10.3938/jkps.69.91
- [13] D. Ban, H. Luo, H.C. Liu, Z.R. Wasilewski, A.J. SpringThorpe, R. Glew, M. Buchanan. J. Appl. Phys., 96 (9), 5243 (2004). DOI: 10.1063/1.1785867
- [14] R. Windisch, B. Dutta, M. Kuijk, A. Knobloch, S. Meinlschmidt, S. Schoberth, P. Kiesel, G. Borghs, G.H. Dohler, P. Heremans. IEEE Trans. Electron. Dev., 47 (7), 1492 (2000). DOI: 10.1109/16.848298

- [15] L. Han, M. Zhao, X. Tang, W. Huo, Z. Deng, Y. Jiang,
 W. Wang, H. Chen, Ch. Du, H. Jia. J. Appl. Phys., **127** (8), 085706 (2020). DOI: 10.1063/1.5136300
- [16] I. Schnitzer, E. Yablonovitch, C. Caneau, T.J. Gmitter. Appl. Phys. Lett., 62 (2), 131 (1993). DOI: 10.1063/1.109348
- [17] P. Bai, Y. Zhang, T. Wang, Z. Shi, X. Bai, Ch. Zhou, Y. Xie, L. Du, M. Pu, Z. Fu, J. Cao, X. Guo, W. Shen. Semicond. Sci. Technol., **35** (3), 035021 (2020). DOI: 10.1088/1361-6641/ab6dbf
- [18] M.A. Ladugin, A.A. Marmalyuk, A.A. Padalitsa, K.Yu. Telegin, A.V. Lobintsov, S.M. Sapozhnikov, A.I. Danilov, A.V. Podkopaev, V.A. Simakov. Quant. Electron., 47 (8), 693 (2017). DOI: 10.1070/QEL16441
- [19] A.L. Weisenhorn, P. Maivald, H.-J. Butt, P.K. Hansma. Phys. Rev. B, 45 (19), 11226 (1992).
 - DOI: 10.1103/physrevb.45.11226
- [20] R.F. Kubin, A.N. Fletcher. J. Luminescence, 27 (4), 455 (1982). DOI: 10.1016/0022-2313(82)90045-X
- [21] P.A. Bokhan, N.V. Fateev, T.V. Malin, I.V. Osinnykh, D.E. Zakrevsky, K.S. Zhuravlev. J. Luminescence, **203** (4), 127 (2018). DOI: 10.1016/j.jlumin.2018.06.034
- [22] Y.-S. Yoo, T.-M. Roh, J.-H. Na, S.J. Son, Y.-H. Cho. Appl. Phys. Lett., **102** (21), 211107 (2013). DOI: 10.1063/1.4807485
- [23] T. Murotani, T. Shimanoe, S. Mitsui. J. Crystal Growth, 45, 308 (1978); DOI: 10.1016/0022-0248(78)90453-0
- [24] E.C. Larkins, J.S. Harris. *Molecular Beam Epitaxy of High-Quality GaAs and AlGaAs*, ed. by Robin F.C. Farrow (William Andrew Inc., 1995)
- [25] F. Stietz, Th. Allinger, V. Polyakov, J. Woll, A. Goldmann,
 W. Erfurth, G.J. Lapeyre, J.A. Schaefer. Appl. Surf. Sci., 104/105, 169 (1996). DOI: 10.1016/S0169-4332(96)00140-7
- [26] M. Jalonen, M. Toivonen, P. Savolainen, J. Köngäs, M. Pessa. Appl. Phys. Lett., **71** (4), 479 (1997). DOI: 10.1063/1.119584
- [27] J. Dekker, A. Tukiainen, N. Xiang, S. Orsila, M. Saarinen, M. Toivonen, M. Pessa, N. Tkachenko, H. Lemmetyinen. J. Appl. Phys., 86 (7), 3709 (1999). DOI: 10.1063/1.371283
- [28] H.H. Yee, Ch.-P. Yu. Appl. Opt., **42** (15), 2695 (2003). DOI: 10.1364/AO.42.002695
- [29] T. Bouragba, M. Mihailovic, F. Reveret, P. Disseix, J. Leymarie, A. Vasson, B. Damilano, M. Hugues, J. Massies, J.Y. Duboz. J. Appl. Phys., **101** (7), 073510 (2007). DOI: 10.1063/1.2719289
- [30] H. Peyre, J. Camassel, W.P. Gillin, K.P. Homewood, R. Grey. Mater. Sci. Eng. B, 28 (1-3), 332 (1994).
 DOI: 10.1016/0921-5107(94)90077-9