

Исследование латерального транспорта носителей в структурах с квантовыми точками InGaN в активной области

© В.С. Сизов[¶], Д.С. Сизов, Г.А. Михайловский, Е.Е. Заварин, В.В. Лундин, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов

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

(Получена 20 сентября 2005 г. Принята к печати 10 октября 2005 г.)

Исследовались структуры на основе GaN с квантовыми точками InGaN в активной области, излучающие в синем и зеленом диапазонах света. Сравнивались структуры, выращенные как традиционным способом, так и с применением специальных методик выращивания активной области. Применение таких специальных режимов роста стимулирует активированный фазовый распад, приводящий к образованию квантовых точек с существенно большей глубиной локализации электронов. Показано, что образование таких глубоких квантовых точек, так же как и образование более крупных неоднородностей активной области, существенно подавляет латеральный транспорт носителей. Это улучшает характеристики светодиодных структур при малом уровне инжекции, а также увеличивает температурную стабильность квантовой эффективности.

PACS: 85.60.Th, 68.55.Bd, 78.67.Hc, 85.60.Dm, 78.55.-m, 85.42.+m, 72.40.+w

1. Введение

В настоящее время уделяется большое внимание изучению полупроводниковых систем на основе нитрида галлия. Такой интерес вызван, во многом, возможностью создания на основе этих широкозонных полупроводниковых соединений светоизлучающих приборов видимого диапазона, таких как светодиоды и лазеры [1]. Несмотря на значительный прогресс в этом направлении, существуют некоторые актуальные технологические проблемы. Важной проблемой, препятствующей созданию высокоэффективных светоизлучающих приборов, является наличие большой плотности прорастающих дефектов (дислокаций, границ доменов и т.п.), играющих роль безызлучательных центров. Причиной образования большой плотности дефектов является прежде всего рассогласование параметров решетки подложки и GaN, а также особенности начальных стадий роста GaN. Для эпитаксии слоев GaN широко используются сапфировые подложки, которые, несмотря на то что являются несогласованными со слоями GaN, остаются по сей день наиболее распространенными, поскольку они достаточно дешевы и технологически хорошо освоены.

В современной промышленной технологии широко используются наноразмерные внедрения InGaN в светоизлучающих приборах на основе GaN. Использование таких внедрений позволяет увеличить длину излучения вплоть до ~ 600 нм, а также повысить эффективность светоизлучающих приборов посредством подавления латерального транспорта носителей к центрам безызлучательной рекомбинации [1]. Это позволяет получить эффективные светоизлучающие приборы, несмотря на большую концентрацию центров, отвечающих за безызлучательную рекомбинацию. Подавление латерального транспорта достигается благодаря образованию неоднородного потенциала, локализуя носители заряда и возникающего вследствие неоднородности внедрений

InGaN как по толщине, так и по составу. Последнее происходит вследствие формирования участков, обогащенных индием из-за фазового распада InGaN. Причина образования таких неоднородностей на настоящий момент не достаточно ясна.

Один из механизмов, приводящих к фазовому распаду InGaN, — неустойчивость твердого раствора при определенных условиях роста [2]. Благодаря различию периодов кристаллической решетки встраивание атомов индия более вероятно в тех областях, где состав по индию выше, т.е. период кристаллической решетки ближе к периоду решетки InN. Это приводит к разрастанию спонтанно образовавшихся флуктуаций состава. Такой процесс носит название активированного распада твердого раствора и используется для формирования квантовых точек (КТ) InGaAs в структурах с длиной волны излучения 1.3 мкм. Инициировать такой фазовый распад могут различные неоднородности нижележащих слоев, а также сами КТ в случае их дальнейшего зарастивания слоем твердого раствора [3].

В зависимости от характера неоднородностей, определяемого геометрическими размерами и величиной флуктуаций состава, наноразмерные внедрения могут играть роль неоднородных квантовых ям или массива квантовых точек. Как было показано в работе [4], где исследовались образцы, аналогичные исследованным в данной работе, в таких структурах неоднородности являются квантовыми точками. Естественно, что и энергетический спектр электронных состояний такого массива КТ также сильно неоднороден.

Несмотря на множество работ по исследованию динамики носителей, в том числе и измерений с временным разрешением [5,6], вопрос о непосредственном захвате и выбросе носителей из КТ остается мало изученным, в то время как именно эти процессы определяют эффект подавления транспорта носителей вдоль слоя КТ. Поскольку применение квантовых точек InGaN возможно не только для создания светодиодов и лазеров на их

[¶] E-mail: sizovvictor@mail.ru

основе, а также для создания новых типов приборов, — таких как источники единичных фотонов, или структур для применения в спинтронике, — требуется более точно управлять свойствами КТ (их размерами, составом, концентрацией и т.д.).

В проведенных ранее работах [7–9] исследовались структуры, выращенные традиционным способом, и структуры, при формировании активной области которых применялись режимы роста, стимулирующие активированный фазовый распад, приводящий к образованию глубоких КТ, т.е. КТ с большой энергией активации носителей заряда. Показано, что в структурах с глубокими КТ времена выброса носителей с уровней КТ в область непрерывного спектра оказываются больше времен рекомбинации. Это, в частности, приводит к неоднородной заселенности носителей на уровнях КТ, а также может являться причиной спектрального выжигания мод в лазерах, что в некоторых случаях приводит к уширению линии генерации.

Поскольку процессы захвата и выброса носителей непосредственно отвечают за транспорт носителей вдоль активной области, следует ожидать, что при формировании различных активных областей будет наблюдаться различный характер подавления латерального транспорта. Так как подавление латерального транспорта является важным эффектом, влияющим на характеристики формирования активной области структур, так и свойства массивов КТ, исследование данного процесса является актуальным.

При отсутствии подавления латерального транспорта (ЛТ), а также в том случае, когда этот эффект настолько мал, что им можно пренебречь, в структурах с квантовыми точками InGaN положение максимума излучения фотолуминесценции (ФЛ) определяется распределением положения электронных уровней в различных по составу и размеру КТ. Такое распределение можно аппроксимировать функцией ошибок [10]. Кроме того, при малом эффекте подавления ЛТ распределение носителей на уровнях КТ подчиняется статистике Ферми вне зависимости от того, на каких уровнях рождаются носители. Таким образом, при изменении энергии возбуждающего фотона положение максимума излучения в спектрах ФЛ должно оставаться неизменным.

В структурах же, в которых эффект подавления латерального транспорта выражен в значительной степени, ожидается изменение положения максимума излучения ФЛ при уменьшении энергии возбуждающего фотона ниже определенного значения, соответствующего границе непрерывного спектра [11]. Это является следствием того, что при достаточно низкой энергии возбуждения носители не успевают статистически перераспределиться на уровни массива КТ, так как скорость этого процесса оказывается сравнима со скоростью рекомбинации.

Таким образом, положение максимума излучения ФЛ определяется не только спектром электронных состояний, а еще и энергией возбуждающего фотона. На рис. 1

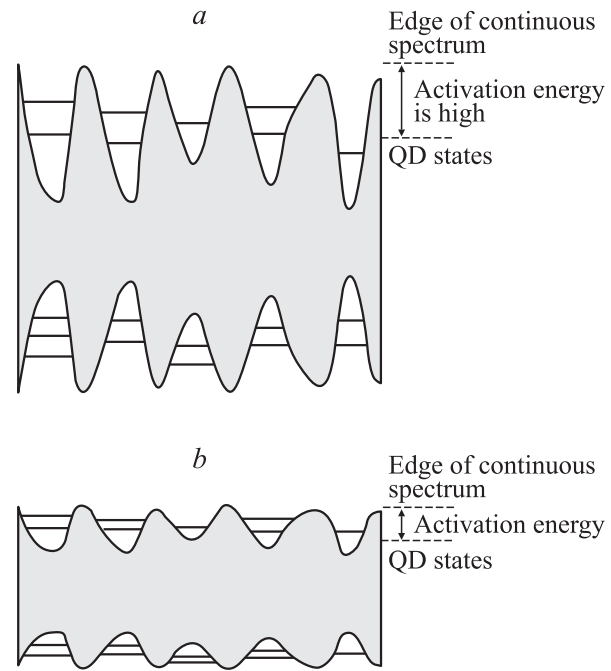


Рис. 1. Схематическое изображение зонной диаграммы в латеральном направлении для структур с различным типом активной области: с глубокими (а) и мелкими (б) квантовыми точками.

представлены схемы зонной диаграммы в латеральном направлении активной области первого типа (ЛТ не подавлен (b)) и второго (ЛТ подавлен (a)). В структурах с активной областью типа А энергия активации электронов велика, и это является препятствием для движения носителей в латеральном направлении.

С целью выявления влияния режимов выращивания структур на эффект подавления ЛТ в них, в данной работе были исследованы структуры с различными технологическими режимами выращивания.

2. Эксперимент

Исследованные структуры были выращены методом MOCVD на установке AIX 2000-NT (образцы A1–A4; C1–C3; D1–D2), а также на установке Epiqueip (образцы B1–B2). Структуры выращивались с использованием сапфировых подложек, на которых после осаждения зародышевого слоя выращивался буферный слой GaN, на котором выращивалась активная область, состоящая из нанослоев InGaN толщиной 3 нм, разделенных барьерами GaN толщиной 7 нм (5 периодов). Далее структуры зарастивались слоем GaN толщиной 50 нм. Для исследования электролюминесценции использовались светодиодные структуры, в которых активная область была заключена между *p*–*n*-переходом, в котором *n*-слой создавался посредством легирования кремния, а *p*-слой — магнием. Для исследования оптических переходов с различной энергией при измерении спек-

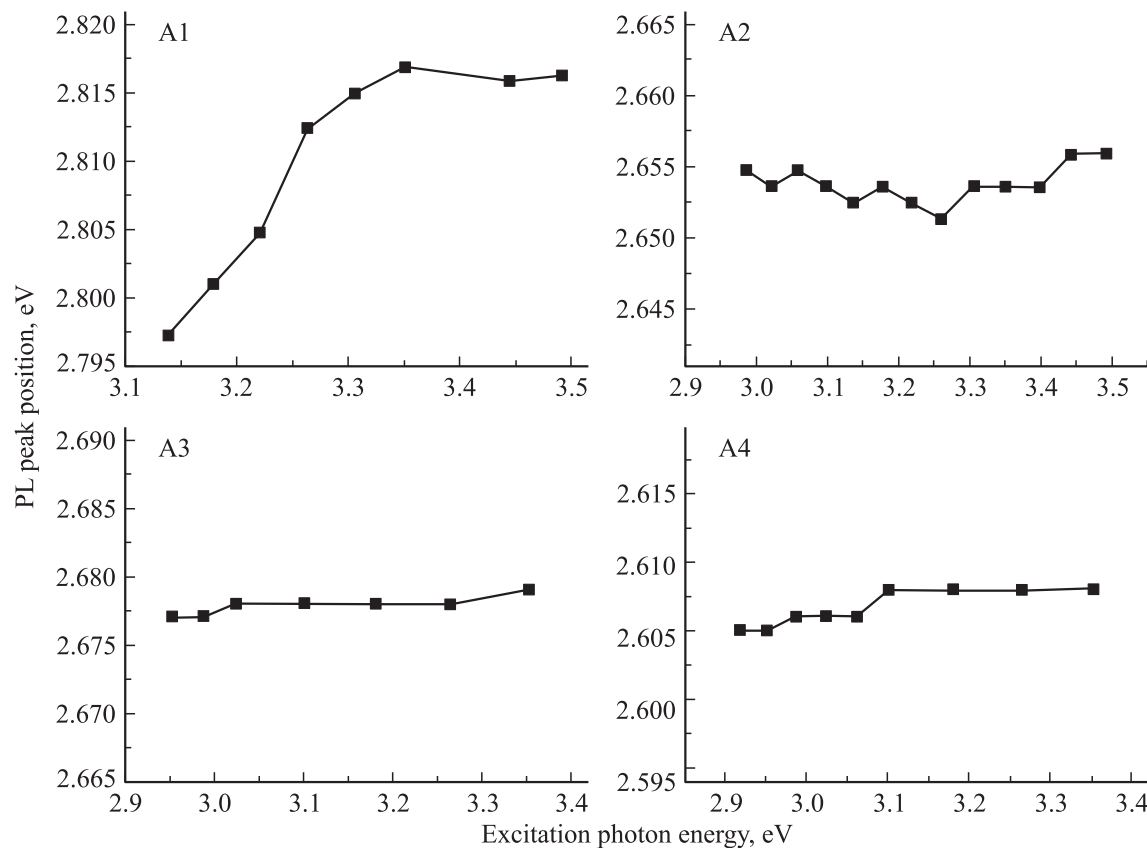


Рис. 2. Положение максимума интенсивности фотолюминесценции для структур A1–A4 с квантовыми точками в матрице GaN в зависимости от энергии возбуждающего фотона. A2–A4 — структуры, выращенные традиционным способом, A1 — структура, выращенная с прерыванием роста и с зарацииванием слоем InGaN с более низким составом по индию.

тров люминесценции применялись ксеноновая лампа и монохроматор с одной дифракционной решеткой. Для возбуждения надбарьерной ФЛ применялся HeCd-лазер.

3. Результаты и обсуждение

3.1. Исследование оптических характеристик

Исследовались серии образцов с КТ InGaN, заключенными в матрице GaN (структуры A1–A4) и в матрице InGaN (структуры B1, B2).

В образцах A2–A4 варьировался ростовой параметр — давление в реакторе при выращивании активной области. В работах [12,13] было показано, что такое увеличение давления приводит к улучшению качества структур и к увеличению интенсивности ФЛ [13]. Увеличение интенсивности излучения мы также связываем с тем, что повышенное давление стимулирует образование более значительных неоднородностей в активной области, являющихся эффективными центрами, локализуя носители заряда, и тем самым подавляющих ЛТ.

При формировании активной области структуры A1 применялось специальное прерывание роста, стимулирующее, как упоминалось выше, активированный фазовый распад. Кроме того, производилось зарациивание массива

КТ слоем InGaN с более низким содержанием In, чем в квантовых точках. Это также способствовало процессу фазового распада, приводящего к образованию в A1 более глубоких флуктуаций потенциала, нежели в структурах A2–A4.

Положение максимума излучения ФЛ в зависимости от энергии возбуждения для структур A1–A4 представлено на рис. 2. Как видно из рисунка, для всех структур, кроме A1, наблюдается слабое изменение положения максимума ФЛ. Эти данные позволяют говорить о том, что в структурах A2–A4 эффект подавления ЛТ выражен в незначительной степени при энергиях возбуждающего фотона, лежащих в рассмотренном диапазоне, в отличие от структуры A1. Мы полагаем, что в этой структуре при энергии возбуждающего фотона меньше 3.1 эВ электроны и дырки рождаются на локализованных уровнях КТ и их энергия ниже энергии края непрерывного спектра. Таким образом, у этой структуры существенно более высокое значение энергии активации носителей заряда с уровней КТ. Следует также отметить, что структура A1 обладает значительно большей интенсивностью излучения при малых уровнях инжекции (примерно на порядок), нежели структуры с меньшими энергиями активации. Это можно объяснить тем, что при глубокой локализации на уровнях КТ времена

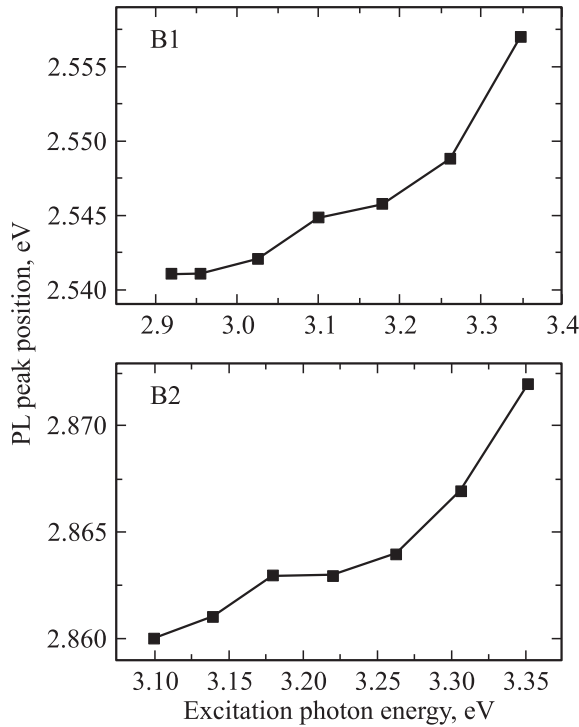


Рис. 3. Зависимости положения максимума интенсивности фотолуминесценции от энергии возбуждающего фотона для структур B1, B2, выращенных в матрице InGaN.

выброса носителей в область непрерывного спектра, соответствующего инфинитному движению носителей, много больше, чем для мелких КТ. Это приводит к подавлению ЛТ и ограничению переноса носителей к центрам безызлучательной рекомбинации и тем самым уменьшает влияние таких центров.

Результаты измерений спектров ФЛ при различных энергиях возбуждения для структур B1, B2, выращенных в матрице InGaN, представлены на рис. 3. Как видно из рисунка, изменение положения максимума при изменении энергии возбуждающего фотона наблюдается для обеих структур, выращенных в матрице InGaN. Мы полагаем, что стимулирование активированного фазового распада возможно не только при заращивании слоем InGaN более низкого по In состава, но и при использовании матрицы InGaN.

С целью подтверждения предположения о том, что использование стимулированного распада твердого раствора приводит к подавлению латерального транспорта, нами были измерены спектральные зависимости латеральной проводимости (LPC) структур при температуре 300 и 77 К (рис. 4, 5) по методике, описанной в работе [14]. На спектрах можно увидеть, что при понижении температуры от 300 до 77 К у структуры с матрицей InGaN наблюдается изменение формы спектра проводимости в области энергий ниже определенного

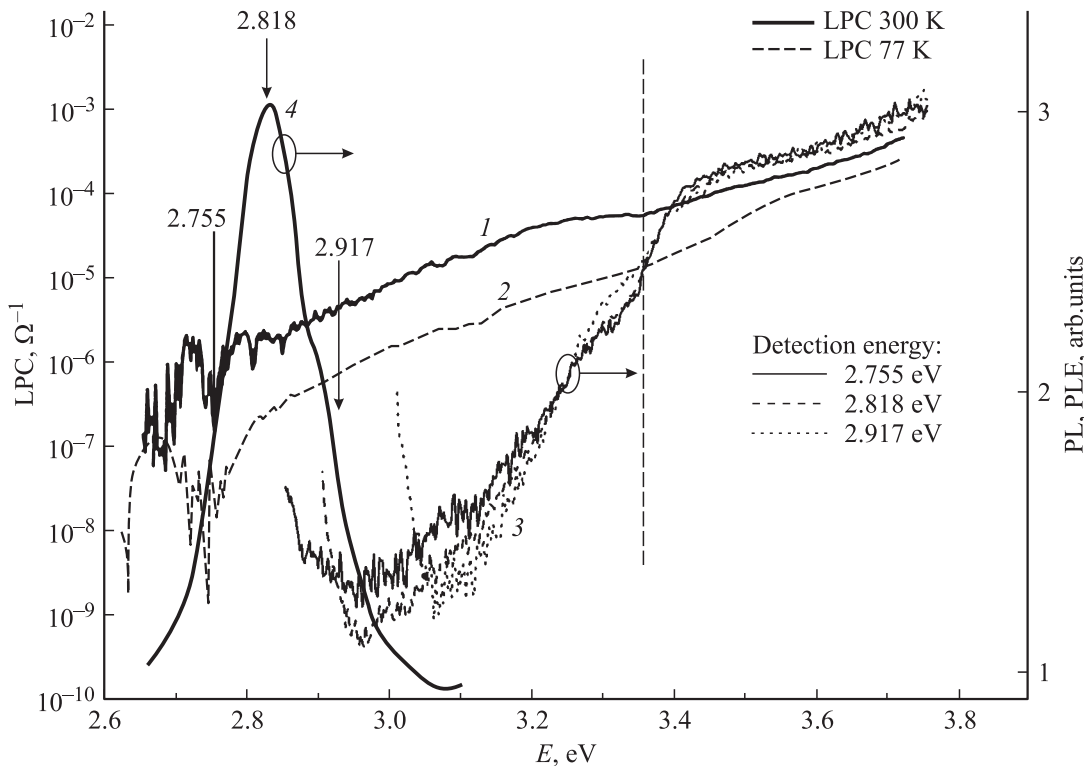


Рис. 4. Зависимости латеральной проводимости от энергии возбуждающего фотона для структуры, выращенной в матрице InGaN, при 300 К (1) и при 77 К (2). Кривые 3 — спектры возбуждения фотолуминесценции при различной энергии возбуждения, приведенной на рисунке; 4 — спектр фотолуминесценции при возбуждении He-Cd-лазером (325 нм). Граница непрерывного спектра отмечена вертикальной штриховой прямой.

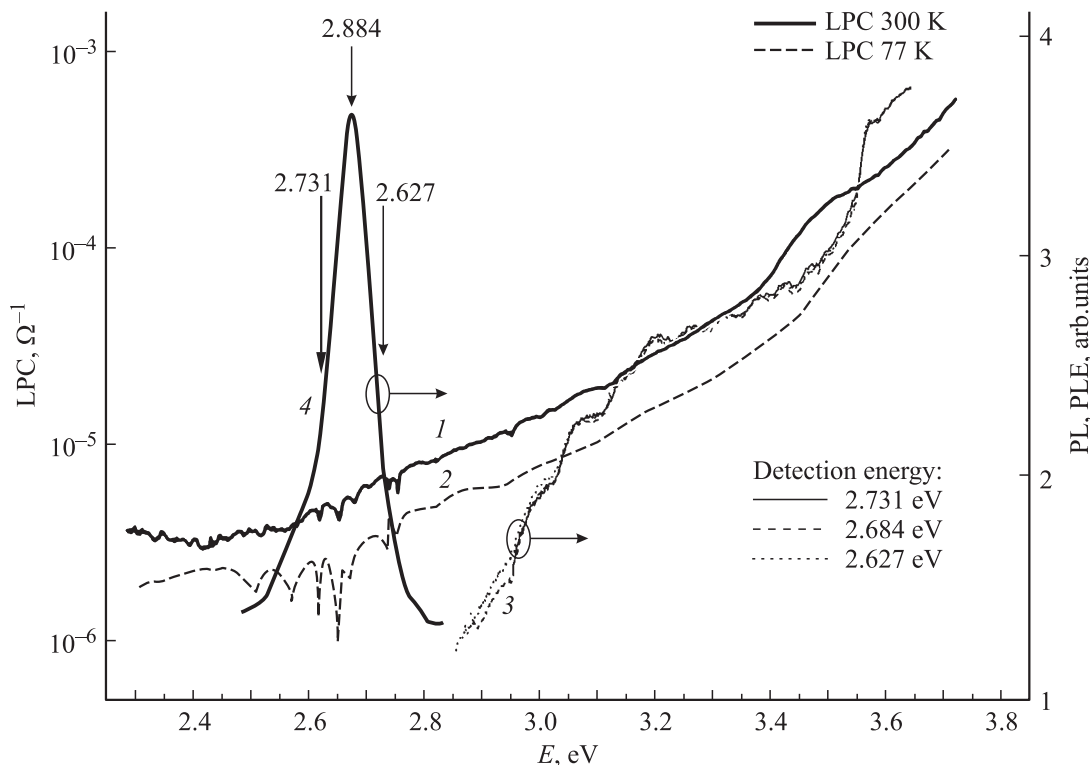


Рис. 5. Зависимости латеральной проводимости от энергии возбуждающего фотона для структуры, выращенной в матрице GaN при 300 К (кривая 1) и при 77 К (кривая 2). Кривые 3 — спектры возбуждения фотолуминесценции при различной энергии возбуждения, приведенной на рисунке; 4 — спектр фотолуминесценции при возбуждении He-Cd-лазером (325 нм).

значения, отмеченного вертикальной штриховой прямой на рис. 4. В то же время у структуры с матрицей GaN (рис. 5) форма спектра практически одинакова во всем диапазоне энергии возбуждения. Уменьшение проводимости при понижении температуры свидетельствует об ограничении движения носителей в латеральном направлении вследствие уменьшения скорости выброса с уровней КТ. В структуре с матрицей InGaN ЛТ сильно подавлен ниже границы непрерывного спектра (рис. 4). В то время как у структуры, выращенной в матрице GaN, граница непрерывного спектра настолько близка к уровням КТ, что на экспериментальных зависимостях не наблюдается (рис. 5). Поскольку граница непрерывного спектра определяет энергию активации при заданном уровне носителей в КТ, который можно найти из спектров люминесценции, это подтверждает предположение об увеличении энергии активации при использовании матрицы InGaN по сравнению с матрицей GaN.

Для этих структур были измерены спектры возбуждения фотолуминесценции (ВФЛ), которые также представлены на рис. 4 и 5. На спектрах можно увидеть, что у структуры с матрицей InGaN (рис. 4) наблюдается различие в спектрах ВФЛ, полученных при различной энергии детектирования в области энергий, меньших энергии границы непрерывного спектра. У структуры в матрице GaN (рис. 5) спектры возбуждения отличаются весьма мало. Различный наклон спектров ВФЛ

на рис. 4 (полученных при различной энергии детектирования) свидетельствует о неравномерном распределении носителей на уровнях КТ, что вызвано большой энергией активации. А именно носитель, рожденный в какой-либо точке пространства, не имеет возможность покинуть КТ и вынужден в ней релаксировать. При энергии возбуждения выше границы непрерывного спектра носители успевают распределиться равномерно. Это также подтверждает предположение о том, что использование матрицы InGaN приводит к образованию глубоких КТ.

3.2. Влияние подавления латерального транспорта на характеристики светодиодных структур

Для исследования влияния глубоких КТ на температурную стабильность эффективности светодиодных структур нами были измерены спектры электролюминесценции при различных температурах для двух светодиодных структур, выращенных традиционным способом (D1) и с использованием заравнивания слоем InGaN низкого состава по In (D2). На зависимостях, приведенных на рис. 6, видно, что образование глубоких КТ в образце D2 способствует получению лучшей температурной стабильности. Как упоминалось выше, это объясняется тем, что локализация на уровнях КТ с

большой энергией активации препятствует латеральному транспорту носителей к центрам безызлучательной рекомбинации.

Известно, что при увеличении среднего состава индия в светодиодных структурах, у которых положение

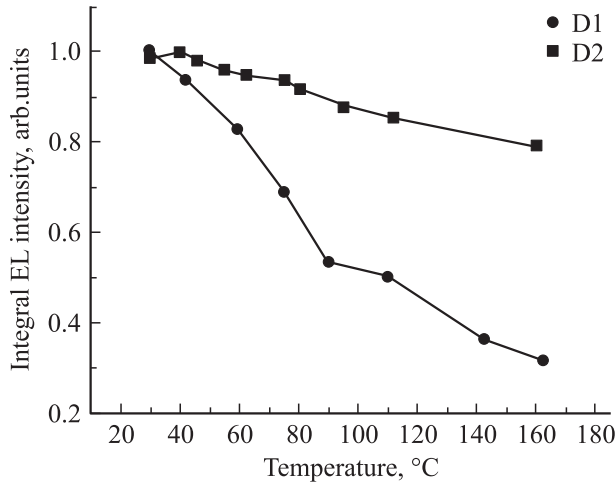


Рис. 6. Температурные зависимости интегральной интенсивности электролюминесценции для структур, выращенных традиционным способом (D1) и с заравниванием массива квантовых точек слоем InGaN с более низким составом по In (D2).

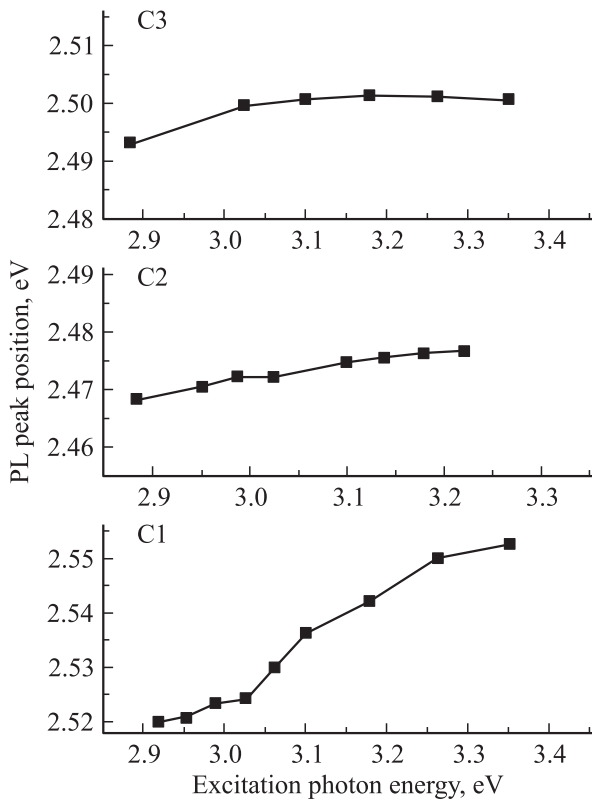


Рис. 7. Положение максимума фотолюминесценции в зависимости от энергии возбуждающего фотона для светодиодных структур зеленого диапазона C1–C3, выращенных при различном давлении в реакторе. Давление понижалось от структуры C1 к структуре C3.

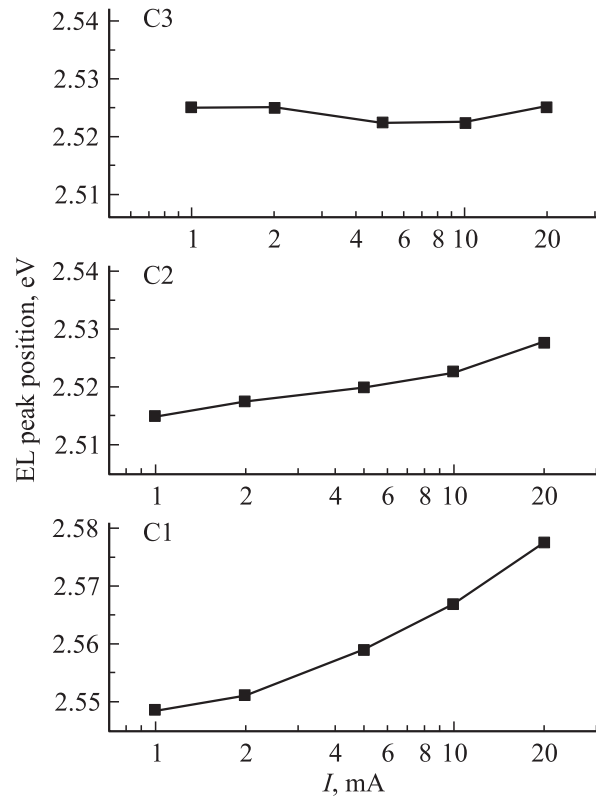


Рис. 8. Положение максимума электролюминесценции в зависимости от тока накачки для светодиодных структур зеленого диапазона C1–C3, выращенных при различном давлении в реакторе. Давление понижалось от структуры C1 к структуре C3.

максимума излучения находится вблизи 480 нм, резко уменьшается эффективность излучения. Причиной этого является резкое ухудшение структурных свойств материала, образование большого числа дислокаций несоответствия и других дефектов вследствие упругих напряжений на гетерогранице GaN/InGaN. Для повышения эффективности может опять-таки быть использован эффект подавления ЛТ. Кроме того, при использовании более сильного фазового распада можно получить КТ со значительно большим составом индия при сохранении среднего состава и тем самым увеличить длину волны излучения.

С целью изучения возможностей повышения эффективности нами также была исследована серия светодиодных структур (C1–C3), излучающих в зеленом диапазоне. Активная область структур выращивалась при различном давлении атмосферы в реакторе. Оно понижалось от структуры C1 к структуре C3.

Как видно из представленных на рис. 7 зависимостей, структура C1, для которой использовалось наибольшее давление при выращивании активной области, обладает наиболее ярко выраженным эффектом подавления ЛТ, что также наблюдалось у структур синего диапазона.

Также, судя по зависимостям положения максимума излучения от тока накачки, представленным на рис. 8,

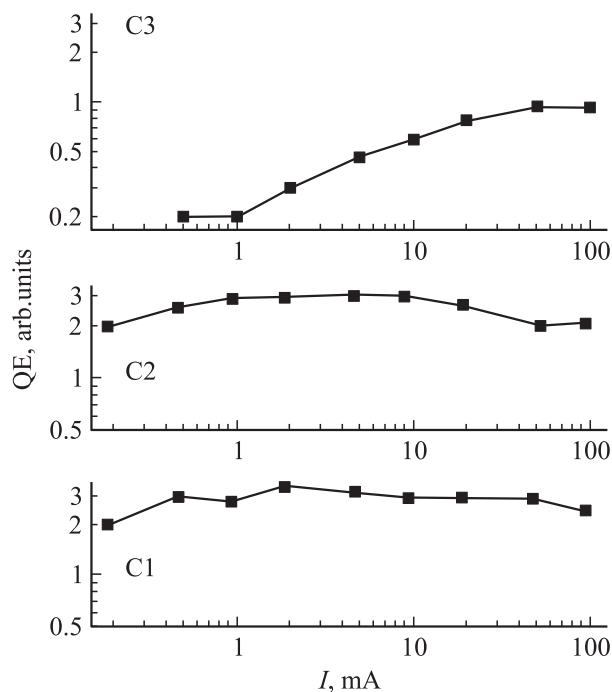


Рис. 9. Зависимости квантовой эффективности от тока накачки для светодиодных структур зеленого диапазона С1–С3, выращенных при различном давлении в реакторе. Давление понижалось от структуры С1 к структуре С3.

у структуры С1 наблюдается наибольший коротковолновый сдвиг максимума излучения в зависимости от тока накачки. Как нами ранее было показано [14], такое поведение вызвано образованием крупных неоднородностей потенциала носителей заряда в активной области, которые являются причиной возникновения неоднородностей инжекции. С другой стороны, такие неоднородности увеличивают энергию активации носителей и тем самым ограничивают ЛТ.

Для этих структур были также получены зависимости квантовой эффективности от тока накачки (рис. 9). На них легко увидеть, что у структур, выращенных при большем давлении (С1), эффективность при малых уровнях инжекции значительно выше, нежели у структур, выращенных при меньшем давлении атмосферы реактора во время роста активной области (С3).

Таким образом, использование режимов роста, стабилизирующих активированный фазовый распад, приводит к увеличению эффективности светодиодов. Действительно, с одной стороны, достигается улучшение структурного качества материала, так как для получения необходимой длины волны излучения требуется меньший средний состав индия в активной области, а с другой, — увеличение энергии активации носителей вследствие образования глубоких КТ и крупных неоднородностей в активной области, препятствующих транспорту носителей к безызлучательным центрам и дефектам.

4. Заключение

В работе показано, что у структур, для получения которых применялись специальные методики роста, такие как прерывание роста и зарастивание слоем InGaN низкого (по In) состава или использование матрицы InGaN, наблюдается уменьшение энергии положения максимума излучения при уменьшении энергии возбуждающего фотона. Также показано различие для таких структур спектральной зависимости латеральной проводимости при различных температурах. Мы объясняем это тем, что использование специальных методик роста приводит к активированному фазовому распаду, способствующему образованию глубоких квантовых точек с большой энергией активации и крупных неоднородностей потенциала в активной области. Глубокие КТ играют роль локализирующих центров и ограничивают движение носителей в латеральном направлении к центрам безызлучательной рекомбинации, создавая эффект подавления латерального транспорта, что улучшает характеристики светодиодных структур. Таким образом, использование специальных методик роста, приводящих к образованию глубоких квантовых точек, позволяет значительно увеличить эффективность электролюминесценции светодиодных структур, а также улучшить их температурную стабильность. Также образование глубоких КТ и крупных неоднородностей позволяет получить необходимую длину волны при меньшем среднем составе индия. Это приводит к улучшению структурного качества материала, что также улучшает характеристики приборов.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, а также грантом Collaborative NATO Grant CBP.NR.CLG 981516.

Авторы выражают благодарность Е.А. Аракчеевой за помощь в подготовке образцов.

Список литературы

- [1] T. Mukai, M. Yamada, S. Nakamura. *Jap. J. Appl. Phys.*, **38**, 3976 (1999).
- [2] F. Scholtz, et al. *Proc. 7th Eur. Workshop „EW MOVPE“* (Berlin, June 8–11, 1997) paper G0.
- [3] M.V. Maximov, A.F. Tsatsul'nikov, D.S. Sizov, Yu.M. Shernyakov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, S.S. Mikhlin, V.M. Ustinov, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, T. Maka, C.M. Sotomayor. *Nanotechnology*, **11** (4), 309 (2000).
- [4] I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, A.V. Sakharov, W.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, A.S. Usikov, Zh.I. Alferov, Yu.G. Musikhin, D. Gerthsen. *Phys. Rev. B*, **66**, 155 310 (2002).
- [5] C.K. Choi, Y.H. Kwon, B.D. Little, G.H. Gainer, J.J. Song, Y.C. Chang, S. Keller, U.K. Mishra, S.P. DenBaars. *Phys. Rev. B*, **64**, 245 339 (2001).
- [6] Yukio Narukawa, Shin Saijou, Yoichi Kawakami, Shigeo Fujita. *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 558 (1999).

- [7] D.S. Sizov, V.S. Sizov, G.E. Onushkin, V.V. Lundin, E.E. Zavarin, A.F. Tsatsul'nikov, A.M. Araktcheeva, N.N. Ledentsov. Proc. Int. Conf. (Minsk, Belarus, May 24–27, 2005) to be published.
- [8] D.S. Sizov, V.S. Sizov, A.I. Besulkin, A.V. Fomin, V.V. Lundin, M.A. Sinityn, A.F. Tsatsul'nikov, E.E. Zavarin, N.N. Ledentsov. Proc. 12th Int. Symp. „Nanostructures. Physics and Technology“ (St. Petersburg, Russia, June 21–25, 2004).
- [9] D.S. Sizov, V.S. Sizov, A.V. Fomin, V.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, E.E. Zavarin, N.N. Ledentsov. Proc. 7th Int. Conf. „PHOTONICS 2004“ (Kochin, India, Dec. 9–11, 2004).
- [10] P.G. Eliseev, J. Appl. Phys., **93**, 5404 (2003).
- [11] A. Reznitsky et al. Proc. 13th Int. Symp. „Nanostructures. Physics and Technology“ (St. Petersburg, Russia, June 19–25, 2005) to be published.
- [12] D.D. Koleske, A.E. Wickenden, R.L. Henry, M.E. Twigg, J.C. Culbertson, R.J. Gorman. MRS Internet. J. Nitride Semicond. Res., 4S1, G3.70 (1999).
- [13] D.S. Sizov, V.S. Sizov, V.V. Lundin, E.E. Zavarin, A.F. Tsatsul'nikov, A.S. Vlasov, N.N. Ledentsov. Proc. 13th Int. Symp. „Nanostructures. Physics and Technology“ (St. Petersburg, Russia, June 19–25, 2005) to be published.
- [14] Д.С. Сизов, В.С. Сизов, Е.Е. Заварин, В.В. Лундин, А.В. Фомин, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов. ФТП, **39** (2), 264 (2005).

Редактор Т.А. Полянская

Investigation of the charge-carrier lateral transport in structures with InGaN quantum dots in an active region

V.S. Sizov, D.S. Sizov, G.A. Mikhailovskii, E.E. Zavarin, V.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, N.N. Ledentsov

loffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia