

Квантово-размерные гетероструктуры на основе AlGaN для светодиодов глубокого ультрафиолетового диапазона, полученные методом субмонослойной дискретной молекулярно-пучковой эпитаксии с плазменной активацией азота

© В.Н. Жмерик[¶], А.М. Мизеров, Т.В. Шубина, А.В. Сахаров, А.А. Ситникова, П.С. Копьев, С.В. Иванов, Е.В. Луценко*, А.В. Данильчик*, Н.В. Ржеуцкий*, Г.П. Яблонский*

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

* Институт общей физики им. Б.Я. Степанова Национальной академии наук Белоруссии, 220072 Минск, Белоруссия

(Получена 13 марта 2008 г. Принята к печати 21 мая 2008 г.)

Исследованы особенности молекулярно-пучковой эпитаксии с плазменной активацией азота (МПЭ ПА) соединений AlGa_xN при относительно низких температурах подложки (до 740°C) и различных стехиометрических условиях роста: азот- и металлобогатенных. Впервые при МПЭ ПА наноструктур с квантовыми ямами (КЯ) Al_xGa_{1-x}N/Al_yGa_{1-y}N использована дискретная субмонослойная эпитаксия для формирования КЯ и электронных блокирующих слоев без изменения потоков компонентов. Исследованы структурные и оптические свойства слоев Al_xGa_{1-x}N в полном диапазоне составов ($x = 0-1$) и наногетероструктур на их основе, демонстрирующих фотолюминесценцию при комнатной температуре с минимальной длиной волны 230 нм. На основании анализа спектров фотолюминесценции объемных слоев и наногетероструктур и их температурных зависимостей делается вывод о наличии локализованных состояний в КЯ. С использованием металлобогатенных условий роста на подложках c-Al₂O₃ получены гетероструктуры для светодиодов с КЯ Al_xGa_{1-x}N/Al_yGa_{1-y}N ($x = 0.4-0.5$, $y = x + 0.15$), демонстрирующие электролюминесценцию в ультрафиолетовой области излучения с длиной волны 320 нм.

PACS: 85.35.Be, 81.15.Ni, 81.40.Tv, 78.67.De, 81.07.St, 68.43.Nr

1. Введение

Возможность варьирования ширины запрещенной зоны в соединении AlGa_xN от 3.4 до 6.1 эВ позволяет успешно вести на основе этого материала разработки светоизлучающих диодов (СИД), работающих в широком диапазоне длин волн в ультрафиолетовой (УФ) области спектра от 365 до 210 нм (УФ СИД). Твердотельные источники УФ излучения, существенно превосходя по эффективности, габаритам и энергопотреблению традиционные газоразрядные источники, найдут широкое применение в системах активного воздействия УФ излучения на различные материалы, медико-биологические объекты и окружающую среду. Начиная с 2000 года в этой области наблюдается значительный прогресс. Спектральный диапазон лучших экспериментальных образцов УФ СИД, выпускаемых в настоящее время фирмой Sensor Electronic Technology Ltd., США на основе разработок группы Khan et al. (South Carolina University), лежит в пределах $\lambda = 245-365$ нм [1,2]. В 2006 группа Taniyasu et al. японской фирмы NTT впервые изготовила УФ СИД с предельно короткой длиной волны — 210 нм [3]. Однако уровень выходной оптической мощности этих диодов на постоянном токе не превышает ~ 1 мВт при эффективности менее 1% (при $\lambda < 300$ нм) и ограниченном сроке службы не более нескольких сотен часов. Эти относительно невысокие

характеристики по сравнению с параметрами СИД видимого диапазона на основе InGa_xN связаны с недостаточно высоким структурным совершенством слоев Al_xGa_{1-x}N с высоким содержанием Al ($x > 0.2$), относительно малой эффективностью излучательной рекомбинации в квантово-размерных гетероструктурах на основе этого материала и, наконец, сложностью его легирования примесями как акцепторными, так и донорными.

Одной из основных технологий эпитаксиального роста гетероструктур на основе AlGa_xN является молекулярно-пучковая эпитаксия (МПЭ) с использованием в качестве источника активного азота либо высокотемпературного крекинга аммиака [4], либо плазменной активации молекулярного азота (МПЭ ПА) [5]. Наблюдаемый в последние несколько лет значительный прогресс этих технологий уже позволил изготовить с их помощью УФ СИД с минимальной длиной волны $\lambda = 280$ нм и мощностью ~ 0.2 мВт [6]. Несмотря на то что эти параметры несколько уступают лучшим результатам, полученным с помощью газофазной эпитаксии из металлорганических соединений, технология МПЭ имеет ряд существенных достоинств, важных для роста наногетероструктур A^{III}N с высоким содержанием Al. Прежде всего это касается возможности прецизионного контроля эпитаксиального роста с атомарным разрешением. Кроме того, МПЭ позволяет выращивать слои GaN и AlGa_xN с проводимостью *p*-типа без послеростовой высокотемпературной активации примеси Mg, и, наконец, необходимые для данной технологии условия сверхвысокого вакуума ис-

[¶] E-mail: jmerik@pls.ioffe.ru

Параметры роста эпитаксиальных слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ и структур с квантовыми ямами

Образец	Слой или структура	Стехиометрические условия роста	Значение x в слое AlGaN или в буфере КЯ	Значение x_{av} в барьере/КЯ
c315	слой AlGaN (1100 нм)	$F_{III}/F_{N^*} > 1$	0.41	—
c318	слой AlGaN (1400 нм)	$F_{III}/F_{N^*} > 1$	0.53	—
c290	3 КЯ AlGaN (для ФЛ)	$F_{III}/F_{N^*} > 1$	0.55	0.55/0.4
c291	3 КЯ AlGaN (для ЭЛ)	$F_{III}/F_{N^*} > 1$	0.55	0.55/0.4
c241	3 КЯ AlGaN (для ФЛ)	$F_{III}/F_{N^*} < 1$	0.47	0.47/0.35

ключают паразитные газофазные реакции между компонентами. В случае же газофазных технологий взаимодействие аммиака с Al-содержащими прекурсорами (например, триметилалюминием) является серьезной проблемой при росте AlGaN-слоев, поскольку приводит к повышенному дефектообразованию в них [7]. Кроме того, достоинством МПЭ является легкость реализации дискретной (импульсной) подачи ростовых материалов (атомарных пучков элементов III группы и активированного азота) в зону эпитаксиального роста. Данный подход уже использовался в различных системах материалов для получения так называемых „digital alloys“, т.е. твердых растворов, как правило тройных, состав которых определяется соотношением между длительностью импульсов подачи материалов бинарных компонент. Развитие дискретной МПЭ привело к улучшению выходных характеристик различных приборов на основе соединений $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$ и $\text{A}^{\text{II}}\text{B}^{\text{VI}}$ [8,9], а недавно применение данного подхода в аммиачной МПЭ соединений AlGaN позволило улучшить параметры УФ СИД [6]. Однако для МПЭ ПА этих соединений дискретная подача пучков использовалась лишь для роста эпитаксиальных слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ с максимальным $x = 0.47$ и структур с квантовыми ямами (КЯ) с небольшим содержанием Al ($x < 0.1$) [10]. И наконец, отметим, что даже обычная МПЭ ПА (т.е. с непрерывной подачей потоков) соединений AlGaN остается малоизученной технологией, и в настоящее время лишь одна группа (Sampath et al.) сумела продемонстрировать двойную диодную гетероструктуру с толщиной активной области 100 нм, излучающую на длине волны $\lambda = 324$ нм [5].

В данной статье анализируется технология МПЭ ПА слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ в полном диапазоне составов с использованием различных стехиометрических условий роста и впервые демонстрируется возможность применения дискретной субмонослойной эпитаксии (ДСЭ) твердых растворов с толщиной чередующихся слоев менее одного монослоя (МС) для формирования гетероструктур с КЯ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$, обладающими фото- и электролюминесценцией в спектральном диапазоне 280–320 нм.

2. Эксперимент

Исследовавшиеся слои и структуры были выращены на установке МПЭ ПА Compact 21T (Riber, Франция)

с плазменным источником Hd25 OAR, управлявшимся в пределах изменения высокочастотной мощности от 115 до 190 Вт при постоянном расходе азота $5 \text{ нсм}^3/\text{мин}$, что с использованием специально изготовленной апертуры обеспечивает возможность линейного регулирования скорости роста соединений $\text{A}^{\text{III}}\text{N}$ в диапазоне 0.2–0.9 мкм/ч соответственно, как подробно было описано в [11]. Слои $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ($x = 0.1–1$) с толщиной ~ 1 мкм и буферные слои в структурах с КЯ выращивались на отожженных при температуре $T_S = 800^\circ\text{C}$ и нитридованных подложках $c\text{-Al}_2\text{O}_3$. Ростовые процессы проводились в различных стехиометрических условиях, что достигалось использованием различных отношений потоков атомов III группы ($F_{III} = F_{\text{Ga}} + F_{\text{Al}}$) к потоку активированного азота (F_{N^*}) $F_{III}/F_{N^*} = 0.8–1.7$ и варьированием $T_S = 650–740^\circ\text{C}$. Для измерения T_S использовался инфракрасный пирометр с рабочей длиной волны 910 нм. При росте большинства слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ($x > 0.3$) на расстоянии ~ 150 нм от интерфейса до подложки вводилась короткопериодная буферная сверхрешетка (СР) $30 \times (\text{AlN}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N})$ с толщинами слоев, обеспечивавшими среднее содержание Al $x_{av} \approx 0.7$. Структуры с КЯ содержали 3 ямы $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}$ номинальной толщиной 3 нм, разделенные барьерными слоями $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$ толщиной 7 нм, которые выращивались в таких же азот- или металлобогатых условиях, как и буферные слои. Особенностью данной работы являлось использование импульсной подачи потока Al во время роста КЯ в режиме ДСЭ, т.е. КЯ представляли собой СР $5 \times (\text{GaN}/\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N})$ с номинальной толщиной GaN-вставок менее ~ 1 МС, что легко обеспечивало варьирование x_{av} до 0.3 при неизменных всех остальных параметрах роста. Основные параметры ростовых процессов для объемных слоев и структур приведены в таблице. Для измерений спектров фотолюминесценции (ФЛ) поверх активной области структуры с КЯ выращивались барьерные слои AlGaN толщиной 50 нм (структуры c290 и c241 в таблице). В структуре c291, предназначенной для исследования спектров электролюминесценции (ЭЛ), вместо барьерного слоя AlGaN методом ДСЭ формировался электронный блокирующий слой в виде модулированно-легированной СР $20 \times (\text{AlN}/\text{GaN}:\text{Mg})$ с $x_{av} = 0.6$, за которым следовал толстый (0.2 мкм) слой p -типа GaN:Mg с концентрацией дырок $p = 2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Для определения концентраций носителей использовались вольт-фарадные измерения.

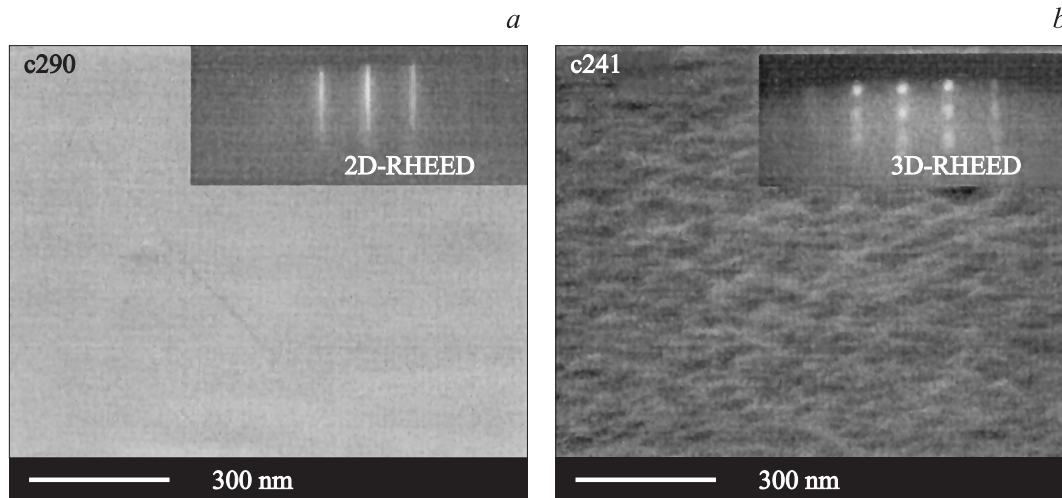


Рис. 1. РЭМ-изображения поверхности слоев AlGaN, выращенных в металл- (а) и азотобогащенных (б) условиях роста. На вставках приводятся картины ДОБЭ по время роста слоев.

Для контроля МПЭ ПА слоев AlGaN использовался феноменологический подход, основанный на *in-situ* измерении интенсивности отраженного от поверхности растущего слоя лазерного сигнала ($\lambda = 532$ нм) и наблюдении поверхностной дифракции отраженных быстрых электронов (ДОБЭ) [12]. Структурные свойства характеризовались с помощью растровой и просвечивающей электронной микроскопии (РЭМ и ПЭМ), в том числе и с высоким разрешением, а для измерений состава x использовался рентгеноспектральный микроанализ (РСМА). Край фундаментального поглощения слоев AlGaN измерялся с помощью спектров оптического пропускания. В качестве источника возбуждения для измерений спектров ФЛ использовалась 4 или 5 гармоники АИГ:Nd-лазера ($\lambda = 266$ или 231 нм соответственно).

3. Результаты и обсуждение

Исследования кинетики роста слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ($x = 0-1$) подтвердили вывод о полном встраивании Al независимо от значений T_S , $F_{\text{III}}/F_{\text{N}^*}$ и $F_{\text{Ga}}/F_{\text{Al}}$, что объясняется относительно низким равновесным давлением Al при использовавшихся нами $T_S \leq 740^\circ\text{C}$ и большей энергией связи Al-N по сравнению с Ga-N [13]. Также было установлено, что при МПЭ ПА соединений AlGaN возможно варьирование значения F_{Ga} в широких пределах от N-обогащенных условий ($F_{\text{III}}/F_{\text{N}^*} < 1$) до металлообогащенных условий ($F_{\text{III}}/F_{\text{N}^*} > 1$) с относительно высоким максимальным значением этого отношения, не приводящим к каплеобразованию и остановке роста. Например, в случае роста слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ со средним составом ($x = 0.4-0.6$) при $T_S = 700-710^\circ\text{C}$ линейчатая картина ДОБЭ (см. вставку на рис. 1, а), свидетельствующая о послойном двумерном механизме роста слоя с атомарно-гладкой поверхностью, наблюдалась лишь при высоких значениях $F_{\text{III}}/F_{\text{N}^*} \approx 1.5-1.75$ и

$F_{\text{Ga}}/F_{\text{Al}} = 2.5$, в то время как в случае роста бинарного GaN при этой же температуре уже при значениях $F_{\text{III}}/F_{\text{N}^*} = 1.15$ наблюдалось образование капель, а при дальнейшем повышении этого отношения — полная остановка роста. Эти данные указывают на большую скорость десорбции Ga с поверхности AlGaN по сравнению с GaN. Оценки показывают, что скорость десорбции Ga с поверхности AlGaN приблизительно равна максимально возможной при данной температуре — равновесной скорости испарения Ga из жидкой фазы (~ 0.27 МС/с для 710°C [13]). В предположении равенства энергии активации десорбции Ga из жидкого Ga на поверхности роста GaN и AlGaN (~ 2.71 эВ) это свидетельствует о более однородном в случае роста AlGaN распределении по поверхности сегрегированного Ga и, следовательно, о большей поверхности испарения Ga, что и приводит к наблюдаемому эффекту. Более подробно кинетические особенности роста слоев AlGaN в сопоставлении с GaN будут рассмотрены в отдельной статье.

Существенным достоинством металлообогащенных условий роста AlGaN является простота управления содержанием Al, поскольку в этом режиме оно определяется отношением потоков $F_{\text{Al}}/F_{\text{N}^*}$ (при $F_{\text{Al}} < F_{\text{N}^*}$) и не зависит от используемых значений $T_S < 740^\circ\text{C}$ и F_{Ga} , что экспериментально было подтверждено измерениями содержания Al в пределах $x = 0.06-0.9$ методом РСМА для слоев, выращенных с известными значениями потоков F_{Al} , F_{Ga} и F_{N^*} . Это поведение Al хорошо согласуется с данным других работ [14,15]. В случае N-обогащенных условий, как и в других соединениях $\text{A}^{\text{III}}\text{N}$, реализовывался трехмерный механизм роста, о чем свидетельствовала точечная картина ДОБЭ, показанная на вставке рис. 1, б. Это приводило к формированию слоев с непланарной морфологией поверхности и наноклончатой внутренней структурой.

Наблюдения с помощью РЭМ морфологии слоев AlGaN и структур, выращенных в металлообогащенных

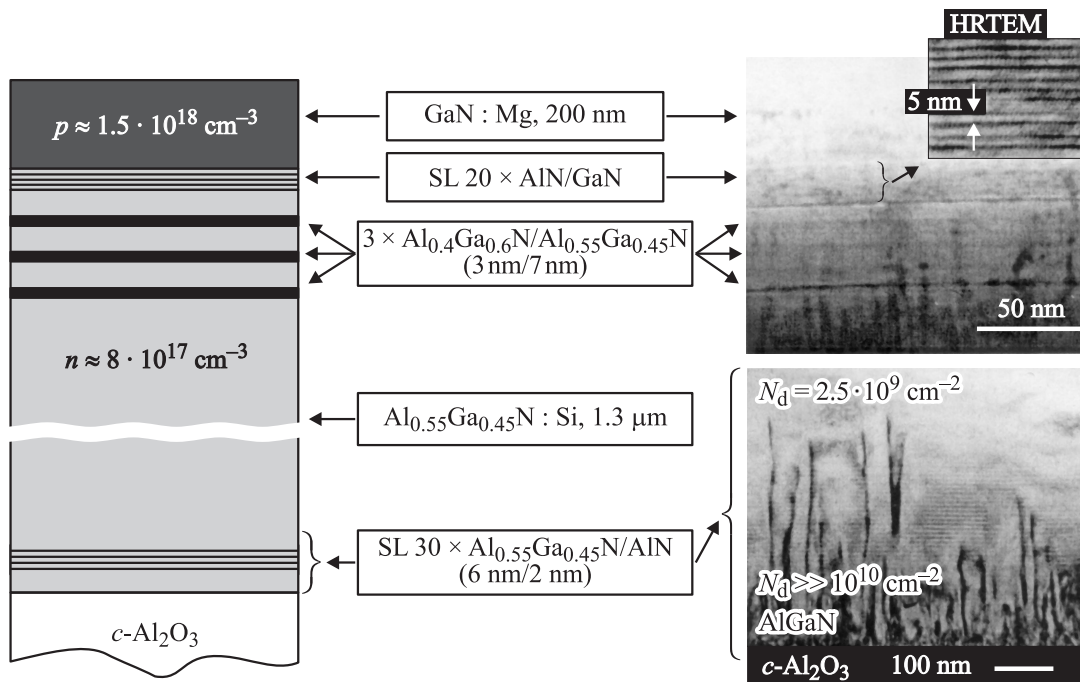


Рис. 2. Схема (слева) и ПЭМ-изображение (справа) гетероструктуры с291 с тремя квантовыми ямами 3 нм- $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}/7$ нм- $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$ и верхним слоем p - $\text{GaN}:\text{Mg}$.

условиях, обнаружили их планарную поверхность и высокую однородность на микроуровне, что демонстрируется на рис. 1. На этих изображениях отсутствуют микротрещины (т.е. можно утверждать об отсутствии *cracking effect*), ямки, металлические микрокапли, хотя можно различить слабо выраженные межзеренные границы с характерным размером зерен несколько сотен нанометров. Исследования структуры образца с291 (см. таблицу) с использованием ПЭМ (в том числе и с высоким разрешением) обнаружили отчетливые интерфейсные границы $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$, GaN/AlN и AlGaN/AlN в структурах с КЯ и сверхрешетками (СР) соответственно, как показано на рис. 2.

Методом ДОБЭ было также обнаружено, что планарность поверхности растущего слоя $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ($x = 0.4-0.6$) может быть улучшена введением в растущий слой буферной СР $30 \times (\text{AlN}/\text{AlGaN})$ с $x_{\text{av}} = 0.7$. Кроме того, анализ ПЭМ-изображений сечения структур с КЯ показал, что данная СР ограничивает распространение прорастающих дислокаций и снижает их концентрацию с уровня более 10^{10} см^{-2} у интерфейса $\text{AlGaN}/c\text{-Al}_2\text{O}_3$ до $2 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$ после СР.

Для диодной структуры с291 необходимо также отметить высокое структурное совершенство верхней СР $20 \times \text{GaN}/\text{AlN}$, выращенной ДСЭ со средним составом $x_{\text{av}} = 0.60$, определяемым исходя из времени роста каждого из бинарных слоев. Это следует не только из анализа обычной ПЭМ, но и из данных, полученных с помощью ПЭМ высокого разрешения (HRTEM), которые приведены на вставке рис. 2. Помимо своего прямого назначения — предотвращения потерь электронов

из активной области УФ СИД, введение данной СР обеспечивало эффективную релаксацию напряжений в эмиттерном p -слое $\text{GaN}:\text{Mg}$ и, как следствие, высокую однородность этого слоя и относительно низкую концентрацию дислокаций в нем на уровне меньше или порядка $2 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$ (т.е. не превышавшем минимальную плотность дислокаций в остальных частях структуры).

В противоположность вышеописанному слою и гетероструктуры, выращенные в N-обогащенных условиях роста, имели трехмерную непланарную поверхность с характерным размером зерна несколько десятков нанометров. Исследования с помощью ПЭМ гетероструктуры с КЯ, выращенной при этих условиях (см. таблицу, структура с241), не выявили четко выраженных межслоевых границ, а концентрация дислокаций в ней всюду превышала уровень 10^{10} см^{-2} .

Оптические свойства слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ характеризовались в первую очередь измерениями спектров оптического пропускания и определения на их основе энергетического положения ширины запрещенной зоны. На рис. 3 приведены экспериментальные значения ширины запрещенной зоны слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, выращенных в металлообогащенных условиях, при различных значениях x , которые независимо контролировалось как *in-situ* с помощью лазерной интерферометрии, так и *ex-situ* методом РСМА. Как видно из рис. 3, эта зависимость наилучшим образом аппроксимируется выражением

$$E_g(x) = xE_g^{\text{AlN}} + (1-x)E_g^{\text{GaN}} - bx(1-x) \quad (1)$$

при значениях $E_g^{\text{GaN}} = 3.42 \pm 0.02 \text{ эВ}$, $E_g^{\text{AlN}} = 6.08 \pm 0.02 \text{ эВ}$ и $b = 1.1 \pm 0.01 \text{ эВ}$.

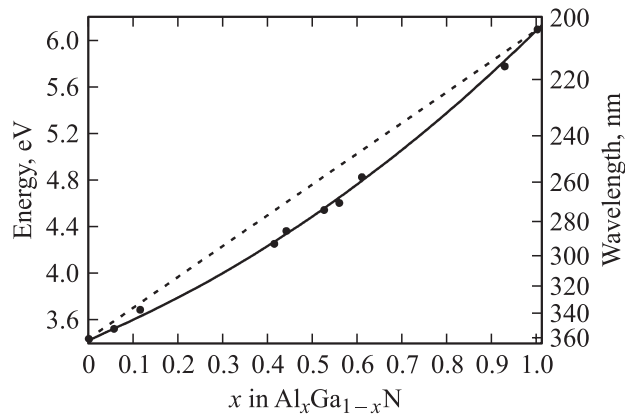


Рис. 3. Зависимости ширины запрещенной зоны объемных слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ (E_g) от содержания Al (x). Для нахождения E_g использовались спектры оптического поглощения, а для определения x использовались *in-situ* измерения скорости роста слоев методом лазерной интерферометрии и *ex-situ* измерения их состава методом РСМА. Экспериментальные точки аппроксимированы зависимостью (1) со значениями $E_g^{\text{GaN}} = 3.42 \pm 0.02$ эВ, $E_g^{\text{AlN}} = 6.08 \pm 0.02$ эВ и $b = 1.1 \pm 0.1$ эВ.

Спектры фотолюминесценции (ФЛ) слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ имели, как правило, один пик при комнатной температуре, положение которого в первую очередь определялось содержанием Al. Минимальная измеренная при 300 К длина волны ФЛ для слоя $\text{Al}_{0.93}\text{Ga}_{0.07}\text{N}$ составила 230 нм. Эти спектры ФЛ обнаружили несколько особенностей. Во-первых, практически все слои продемонстрировали заметный стоксов сдвиг основного одиночного пика ФЛ относительно края фундаментального поглощения, как показано на рис. 4, *a, b*. Для слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ с $x = 0.4-0.7$ величина сдвига составляла примерно 150–200 мэВ и была несколько большей для слоев, выращенных в N-обогащенных условиях. Кроме того, для образцов, выращенных в N-обогащенных условиях, в несколько раз возрастала интенсивность ФЛ. Эти результаты подтверждают данные работы [16], где наблюдалось аналогичное поведение спектров, что связывалось с образованием локализованных состояний в объемных слоях AlGaN, выращенных в N-обогащенных условиях.

Новым и наиболее интересным результатом данной работы, на наш взгляд, является наблюдение относительно интенсивной ФЛ при комнатной температуре в структуре с тремя КЯ $\text{Al}_{0.40}\text{Ga}_{0.60}\text{N}/\text{Al}_{0.56}\text{Ga}_{0.44}\text{N}$ (с290), выращенной в Ga-обогащенных условиях. Для этой структуры основной пик ФЛ, соответствующий люминесценции из КЯ, сдвинут на ~ 600 мэВ относительно края поглощения, определяемого материалом барьерных слоев (рис. 4, *c*). Подтверждением данной интерпретации спектра ФЛ при 300 К является наблюдение при низких температурах в излучении этой гетероструктуры дополнительного коротковолнового пика ФЛ (рис. 5, *c*), положение которого примерно соответствует ФЛ объемного слоя $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$ (с318), имеющего такое же содержание Al, как барьерные и буферные слои структу-

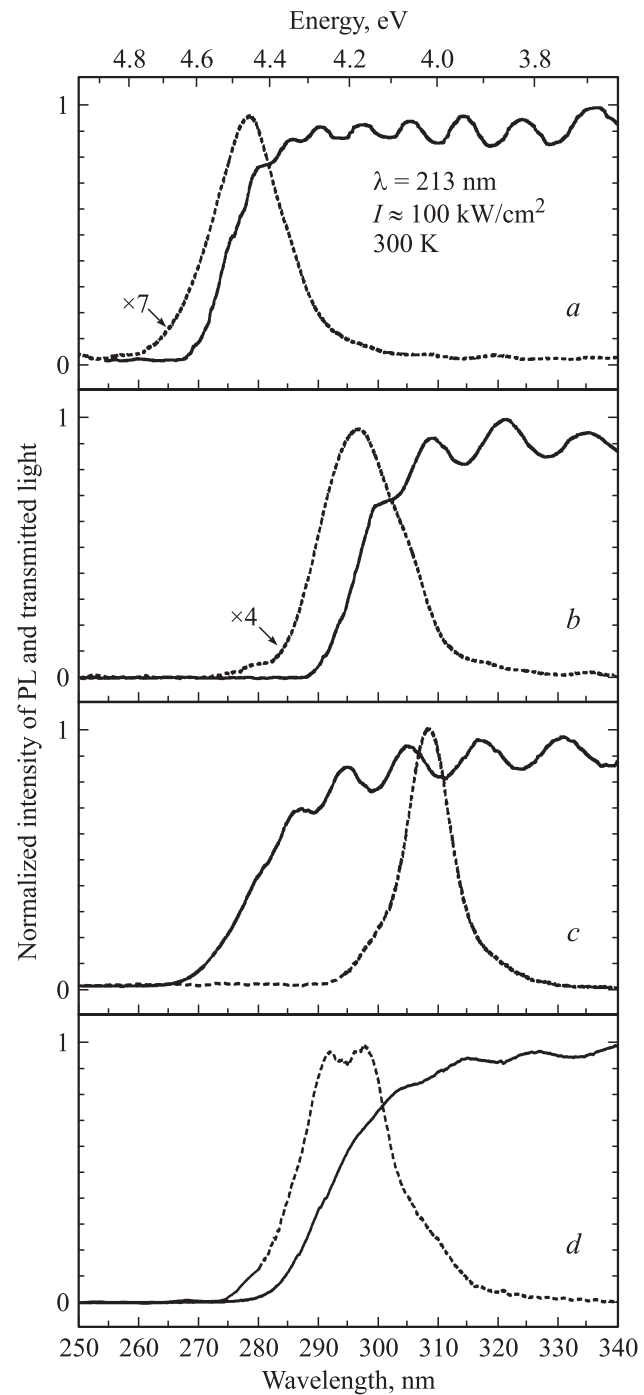


Рис. 4. Спектры фотолюминесценции (300 К) (сплошные линии) и спектры пропускания (пунктирные линии) объемных слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ с различным содержанием Al (*a, b*) и гетероструктур с КЯ (*c, d*). *a* — $x = 0.53$ (слой с318), *b* — $x = 0.41$ (слой с315), *c* — структура с290 с КЯ 3 нм- $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}/7$ нм- $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$ и верхним слоем 50 нм- $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$, выращенная в металлообогащенных условиях; *d* — структура с241 с 3 КЯ 3 нм- $\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{N}/7$ нм- $\text{Al}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{N}$ и верхним слоем 50 нм- $\text{Al}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{N}$, выращенная в N-обогащенных условиях. Для возбуждения фотолюминесценции использовалось излучение 5-й гармоники Nd-лазера ($\lambda = 213$ нм) с плотностью мощности $I \approx 100$ кВт/см².

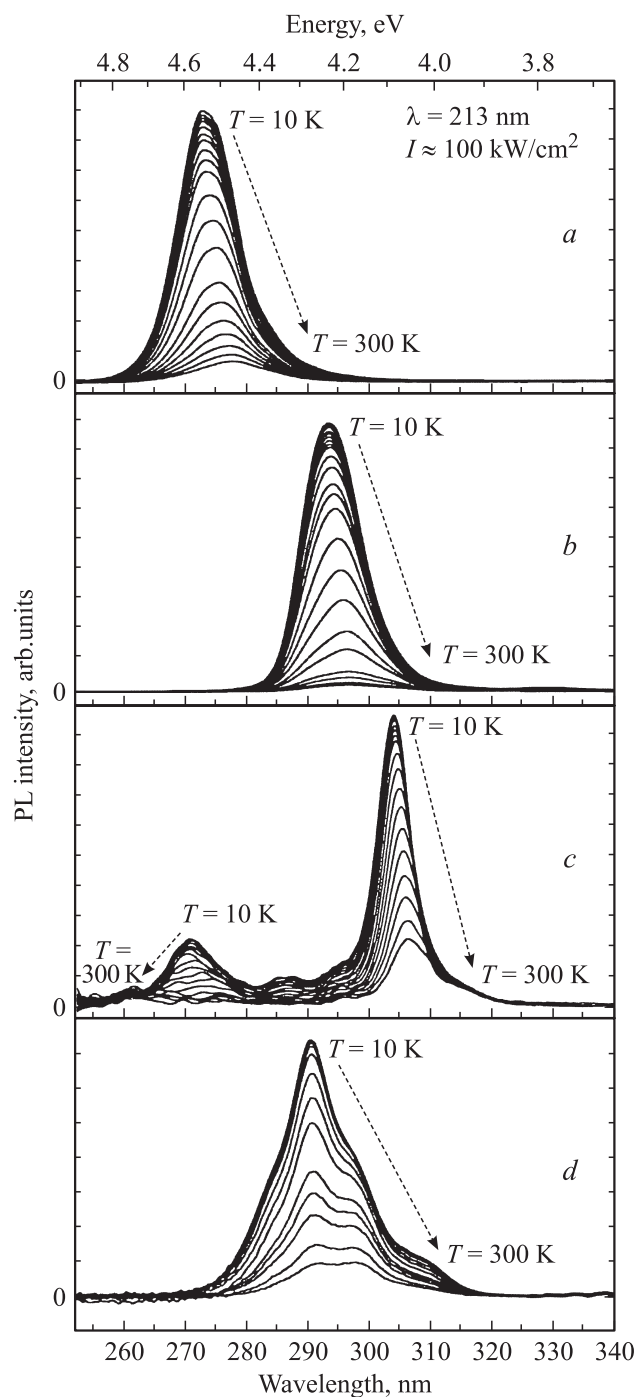


Рис. 5. Температурные зависимости спектров фотолюминесценции объемных слоев $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ с различным содержанием Al и гетероструктур с КЯ. *a* — $x = 0.53$ (слой c318), *b* — $x = 0.41$ (слой c315), *c* — структура c290 с 3 КЯ 3 нм- $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}/7$ нм- $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$ и верхним слоем 50 нм- $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$, выращенная в металлообогащенных условиях; *d* — структура c241 с 3 КЯ 3 нм- $\text{Al}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{N}/7$ нм- $\text{Al}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{N}$ и верхним слоем 50 нм- $\text{Al}_{0.47}\text{Ga}_{0.53}\text{N}$, выращенная в N-обогащенных условиях. Для возбуждения фотолюминесценции использовалось излучение 5-й гармоники Nd-лазера ($\lambda = 213$ нм) с плотностью мощности $I \approx 200$ кВт/см².

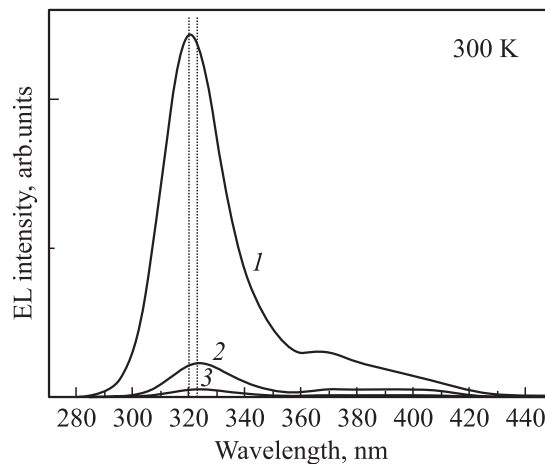


Рис. 6. Спектр электролюминесценции структуры с 3 КЯ 3 нм- $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}/7$ нм- $\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$ при различных токах накачки, мА: 1 — 1.5, 2 — 0.5, 3 — 0.3. $T = 300$ К.

ры c290 (рис. 5, *a*). С увеличением температуры коротковолновый пик быстро исчезает, что связано с быстрым уменьшением концентрации неравновесных носителей в барьерных и буферных слоях за счет улучшения транспорта неравновесных носителей заряда в активную область вследствие увеличения их подвижности. Таким образом, показано, что действительно при комнатной температуре наблюдается только излучение из КЯ.

Положение полосы ФЛ из КЯ наблюдалось в более длинноволновой области по сравнению с пиком ФЛ для объемного слоя близкого состава $\text{Al}_{0.40}\text{Ga}_{0.60}\text{N}$ (c315), показанного на рис. 5, *b*. Дополнительный сдвиг ФЛ из КЯ, по-видимому, связан с образованием сильно локализованных состояний в структуре вследствие большой разницы в содержании Al в КЯ и барьерных слоях (более 15%), приводящий также к сильным упругим напряжениям и квантовому эффекту Штарка. Данные локализованные состояния, вероятно, и обуславливают относительно высокую интенсивность ФЛ этих структур, которая сопоставима с интенсивностью ФЛ слоев и структур, выращенных при N-обогащенных условиях.

Относительно структуры с КЯ, выращенной в N-обогащенных условиях (c241), отметим, что для нее во всем температурном диапазоне наблюдался одиночный пик ФЛ, который имел существенно меньший сдвиг (~ 200 мэВ) относительно края фундаментального поглощения и заметно большую полуширину по сравнению со структурой, выращенной в металлообогащенных условиях, что демонстрируют спектры на рис. 4, *d* и 5, *d*. Это соответствует сделанному выше на основании данных ПЭМ выводу о большем структурном разупорядочении в этой структуре с КЯ, что приводит к более слабой локализации носителей и не позволяет однозначно связать наблюдаемую ФЛ с излучательной рекомбинацией в намеренно формируемых КЯ.

Измерения спектров электролюминесценции (ЭЛ) проводились для диодной структуры c291 с тремя КЯ

$\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}/\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45}\text{N}$, выращенных непосредственно на сапфировой подложке в тех же металлобогатых условиях, что и структура с290. ПЭМ-изображение поперечного сечения с291, на котором отчетливо видны обсуждавшиеся ранее нижняя буферная СР, три КЯ, блокирующий слой и верхний слой $p\text{-GaN:Mg}$, приведено на рис. 2. Спектр ЭЛ, представленный на рис. 6, был измерен при 300 К с использованием точечных контактов к p -слою и различных токов накачки в диапазоне 0.3–1.5 мА. Напряжение отсечки диода составило 8.5 В. Основной пик с длиной волны 320 нм и полушириной 26 нм, вероятнее всего, обусловлен локализованными состояниями в КЯ и эффектом Штарка, что подтверждается его некоторым коротковолновым сдвигом с увеличением тока накачки. Длинноволновые пики с меньшей энергией и существенно меньшей интенсивностью связаны с излучательной рекомбинацией в верхнем слое $p\text{-GaN}$.

4. Заключение

Полученные результаты демонстрируют перспективность технологии МПЭ ПА для роста слоев AlGaIn с высоким содержанием алюминия, а также наногетероструктур на их основе для УФ диапазона излучения ($\lambda = 230\text{--}360$ нм) и показывают большие возможности нового подхода к формированию квантово-размерных гетероструктур методом дискретной субмонослойной эпитаксии в процессе МПЭ ПА. Впервые для данной технологии получены прототипы гетероструктур УФ СИД с КЯ и длиной волны электролюминесценции $\lambda = 320$ нм при комнатной температуре.

Авторы благодарны А.В. Семенову, Т.Б. Поповой, К.Г. Беляеву и Т.А. Комисаровой за помощь в проведении экспериментов.

Данные исследования поддержаны грантами РФФИ (07-02-13618-офи_ц), программой президиума РАН „Квантовые наноструктуры“, программой ОФН „Новые материалы“, РФФИ Белоруссии.

Список литературы

- [1] W.H. Sun, J.P. Zhang, V. Adivarahan, A. Chitnis, M. Shatalov, S. Wu, V. Mandavilli, J.W. Yang, M.A. Khan. *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 531 (2004).
- [2] J. Deng, Yu. Bilenko, A. Lunev, X. Hu, T.M. Katona, J. Zhang, M.S. Shur, R. Gaska. *Jap. J. Appl. Phys.*, **46**, L263 (2007).
- [3] Y. Taniyasu, M. Kasu, T. Makimoto. *Nature*, **441**, 325 (2006).
- [4] G. Kipshidze, V. Kuryatkov, K. Zhu, B. Borisov, M. Holtz, S. Nikishin, H. Temkin. *J. Appl. Phys.*, **93**, 1363 (2003).
- [5] A.V. Sampath, G.A. Garrett, C.J. Collins, W.L. Sarney, E.D. Readinger, P.G. Newman, H. Shen, M. Wraback. *J. Electron. Mater.*, **35**, 641 (2006).
- [6] S. Nikishin, M. Holtz, H. Temkin. *Jap. J. Appl. Phys.*, **44**, 7221 (2005).
- [7] В.В. Лундин, А.В. Сахаров, А.Ф. Цацульников, Е.Е. Завапин, А.И. Бесюлькин, А.В. Фомин, Д.С. Сизов. *ФТП*, **38**, 705 (2004).
- [8] F. Briones, L. Gonzfilez, A. Ruiz. *Appl. Phys. A*, **49**, 729 (1989).
- [9] S.V. Ivanov, O.V. Nekrutkina, S.V. Sorokin, V.A. Kaygorodov, T.V. Shubina, A.A. Toropov, P.S. Kop'ev, G. Reuscher, V. Wagner, J. Geurts, A. Waag, G. Landwehr. *Appl. Phys. Lett.*, **78**, 404 (2001).
- [10] A. Kikuchi, M. Yoshizawa, M. Mori, N. Fujita, K. Kushi, H. Sasamoto, K. Kishino. *J. Cryst. Growth*, **189/190**, 109 (1998).
- [11] В.Н. Жмерик, А.М. Мизеров, Т.В. Шубина, С.Б. Листошин, С.В. Иванов. *Письма ЖТФ*, **33**, 36 (2007).
- [12] S.V. Ivanov, V.N. Jmerik, T.V. Shubina, S.B. Listoshin, A.M. Mizerov, A.A. Sitnikova, M.H. Kim, M. Koike, B.J. Kim, P.S. Kop'ev. *J. Cryst. Growth*, **301–302**, 465 (2007).
- [13] *Физические величины*. Справочник под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова (М., Энергоатомиздат, 1991).
- [14] J.R. Jenny, J.E. Van Nostrand, R. Kaspi. *Appl. Phys. Lett.*, **72**, 531 (1998).
- [15] L. He, M.A. Reshchikov, F. Yun, D. Huang, T. King, H. Morkoc. *Appl. Phys. Lett.*, **81**, 52178 (2002).
- [16] C.J. Collins, A.V. Sampath, G.A. Garrett, W.L. Sarney, H. Shen, M. Wraback, A.Yu. Nikiforov, G.S. Cargill III, V. Dierolf. *Appl. Phys. Lett.*, **86**, 31916 (2005).

Редактор Т.А. Полянская

Deep UV AlGaIn quantum wells heterostructures grown by sub-monolayer digital molecular beam epitaxy with plasma-activated nitrogen

V.N. Jmerik, A.M. Mizerov, T.V. Shubina, A.V. Saharov, A.A. Sitnikova, P.S. Kop'ev, S.V. Ivanov, E.V. Lutsenko*, A.V. Danilchuk*, N.V. Rzhetskii*, G.P. Yablonskii*

Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia
Stepanov Institute of Physics,
National Academy of Sciences of Belarus,
220072 Minsk, Belarus

Abstract The paper reports on plasma-assisted molecular-beam epitaxy (PA MBE) of AlGaIn at the relative low substrate temperature (up to 740°C) and different stoichiometric growth conditions: nitrogen- and metal-enriched ones. A digital sub-monolayer epitaxy has been developed for the first time at PA MBE of quantum-well (QW) structures to grow QWs and electron blocking layers at molecular fluxes kept constant. Structural and optical properties of bulk $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ layers within the full composition range ($x = 0\text{--}1$) and related nanoheterostructures, demonstrating room-temperature photoluminescence with the minimum wavelength of 230 nm, have been studied. Photoluminescence spectra of the bulk layers and nanoheterostructures as well as their temperature behavior evidence for an existence of localized states in the QWs. The $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ ($x = 0.4\text{--}0.5$, $y = x + 0.15$) QW structures of UV LEDs exhibiting electroluminescence at a wavelength of 320 nm at room-temperature have been grown on $c\text{-Al}_2\text{O}_3$ substrates, using metal-rich growth conditions.