

Отражающий p -контакт на основе тонких пленок ИТО для флип-чип светодиодов AlGaInN

© Л.К. Марков¹, И.П. Смирнова, А.С. Павлюченко, Е.М. Аракчеева, М.М. Кулагина

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

(Получена 31 марта 2009 г. Принята к печати 6 апреля 2009 г.)

Методом электронно-лучевого напыления тонких пленок оксида индия и олова (ИТО) был получен отражающий контакт к слою p -GaN, используемый при создании синих флип-чип светодиодов. Высокий коэффициент отражения контакта, превосходящий коэффициент отражения контакта на основе Ni/Ag, обеспечивает прирост внешней квантовой эффективности светоизлучающих кристаллов на 15–20%. Прямые падения напряжения для кристаллов с контактом ИТО (5 нм)/Ag(220 нм) сравнимы с аналогичными величинами для кристаллов с контактом Ni(1.5 нм)/Ag(220 нм). Удельное сопротивление контакта со слоем ИТО составляет $3.7 \cdot 10^{-3}$ Ом \cdot см². Показано, что для полученных данным методом пленок ИТО оптимальные толщины, обеспечивающие наилучшие электрические и оптические характеристики кристаллов, лежат в диапазоне 2.5–5.0 нм.

PACS: 81.16.-z

1. Введение

Несмотря на достигнутые в последние годы значительные успехи в деле повышения эффективности светодиодов синего и ультрафиолетового диапазонов, поставленные задачи использования их в целях общего освещения требуют существенной доработки технологии создания светоизлучающих кристаллов. Одним из возможных подходов к решению проблемы является использование в данной технологии оксида индия и олова (Indium Tin Oxide, или ИТО), соединения, содержащего 90 вес % In₂O₃ и 10 вес % SnO₂. Отличительной чертой этого твердого раствора является оптическая прозрачность тонких слоев материала при его одновременной электропроводности. Такое сочетание наиболее востребовано в приборах, где необходимо создать хороший электрический и при этом оптически прозрачный контакт. Так, например, традиционной сферой применения соединения стали жидкокристаллические дисплеи, сенсорные панели, солнечные элементы и пр. В то же время высокие значения работы выхода материала ИТО (к примеру, в работе [1] для тонких пленок была получена оценка 4.62 эВ) и, следовательно, приемлемые значения контактного сопротивления к слоям p -GaN открывают возможности использования его в качестве контактного материала для создания светоизлучающих кристаллов на основе AlGaInN [2–4]. При этом, как правило, ИТО рассматривается в качестве альтернативы широко распространенному полупрозрачному контакту, состоящему из комбинации тонких слоев Ni/Au. В то же время высокая прозрачность слоев ИТО в синей области спектра может быть использована для создания отражающих контактов в светоизлучающих кристаллах флип-чип геометрии [5,6], в которой кристалл монтируется на теплоотвод своей лицевой стороной, а свет выводится через прозрачную сапфировую подложку. Кристаллы

указанной конструкции имеют преимущество по отношению к кристаллам с полупрозрачными контактами как в эффективности преобразования электрической энергии в световую, так и в создании условий для эффективного отведения тепла от активной области кристалла. Последнее обстоятельство особенно важно при проектировании особо мощных кристаллов, поэтому они, как правило, имеют перевернутый (флип-чип) дизайн.

В кристаллах флип-чип геометрии величина коэффициента отражения света от контакта приобретает особое значение вследствие того, что из-за высокого коэффициента преломления света в структурах AlGaInN и эффекта полного внутреннего отражения существенная часть излучения может покинуть кристалл только после многократного отражения от контактов через специально создаваемые элементы конструкции кристаллов (например, боковые стенки мезоструктуры). Вследствие этого обстоятельства даже небольшие относительные изменения отражательной способности контакта могут существенно повлиять на эффективность прибора в целом.

Для мощных флип-чип светодиодов нами был разработан отражающий контакт к слою p -GaN на основе комбинации металлов Ni(1.5 нм)/Ag(220 нм), обладающей высоким коэффициентом отражения в сине-фиолетовой области спектра [7,8]. В то же время слой никеля в контакте, используемый для улучшения его электрических свойств, обладает ограниченной прозрачностью и снижает отражательную способность контакта. В настоящей работе мы предполагаем повысить коэффициент отражения света от контакта и увеличить квантовый выход приборов заменой слоя Ni слоем ИТО более высокой прозрачности. Однако для достижения указанных результатов требуется тщательная отработка методов нанесения и обработки тонких пленок материала.

Нанесение тонких слоев ИТО может быть осуществлено различными способами, из которых наиболее

¹ E-mail: lmarkov@mail.ioffe.ru

распространены метод магнетронного распыления материала мишени [1,3] и электронно-лучевое испарение из гранул вещества [2,4,9]. Последний метод считается более экономичным в силу того, что не требует дорогостоящих мишеней. В то же время известно и неоднократно наблюдалось нами в экспериментах [10], что поверхность *p*-GaN гетероструктур AlGaInN отличается нестабильностью по отношению к различным способам обработки. В работе [11] подробно рассматривалось влияние индуктивно-связанной плазмы на электрические характеристики слоя *p*-GaN и наблюдалось изменение типа проводимости в приповерхностных областях материала. Исходя из нашего опыта нанесение *p*-контактов методом магнетронного распыления также приводит к деградации светодиодной структуры. По всей видимости, авторы работы [12] также столкнулись с похожими проблемами при напылении контакта ИТО к *p*-GaN магнетронным методом. Поэтому в настоящей работе напыление тонких пленок ИТО проводилось электронно-лучевым испарением, позволяющим исключить негативное воздействие плазмы на структуру.

2. Результаты эксперимента и их обсуждение

Первые эксперименты по нанесению тонких пленок ИТО показали, что прозрачность пленок, напыляемых на холодную подложку, недостаточна, и для ее увеличения требуется дополнительная обработка. В большинстве работ для повышения прозрачности пленок, полученных различными методами, проводился их дополнительный отжиг, однако его оптимальные условия (температура, атмосфера, продолжительность) различны в разных источниках. Для оценки влияния температуры отжига на прозрачность пленок стандартные покровные стекла толщиной 0.17 мм с нанесенным на них слоем ИТО толщиной 140 нм подвергались отжигу как в вакууме с остаточным давлением 0.5 Па, так и при атмосферном давлении, на воздухе. Согласно результатам эксперимента, приведенным в табл. 1, с ростом температуры коэффициент пропускания пленок существенно возрастает, при этом пленки, отожженные в вакууме, проигрывают в прозрачности отожженным на воздухе.

Таблица 1. Зависимость коэффициента пропускания пленки ИТО от условий отжига

Условия отжига		Коэффициент пропускания пленки, %
Температура, °C	Давление, Па	
Исходный образец		3
300	0.5	3
450	0.5	36
300	$1.013 \cdot 10^5$	79
450	$1.013 \cdot 10^5$	90

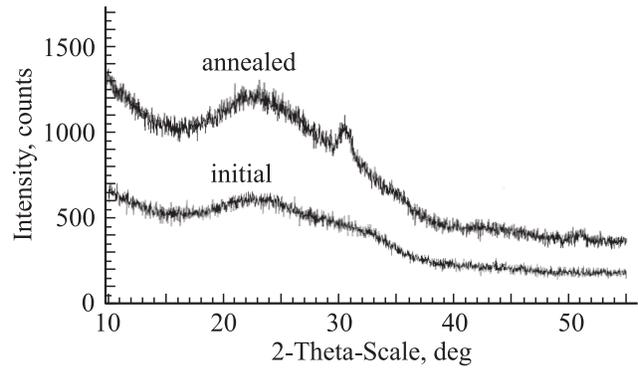


Рис. 1. Рентгенограммы исходного (нижняя кривая) и отожженного при температуре 300°C (верхняя кривая) образцов пленок ИТО толщиной 140 нм.

Известно, что на прозрачность пленок может влиять как число центров поглощения (например, кислородных вакансий), так и размер зерен (кристаллитов) пленок. С целью проверки влияния температуры отжига на структуру получаемых пленок проводился их рентгенофазный анализ. Результаты показали, что исходные пленки являются аморфными, в то время как рентгенограмма отожженных образцов обнаруживала их кристаллическое строение (рис. 1). При этом размер кристаллитов увеличивается с увеличением температуры отжига и давления в камере. Так, оценочное значение размера кристаллитов образцов, отожженных при давлении 0.5 Па и температуре 300°C, составляет 7 нм (рис. 2, *a*), а при атмосферном давлении и 450°C — 14 нм (рис. 2, *b*).

Эксперименты по выбору оптимальной атмосферы для отжига пленок дали приблизительно одинаковые результаты. Опыты проводились при атмосферном давлении в азоте, аргоне и смеси аргона (50%) с кислородом (50%).

Для изготовления светоизлучающих кристаллов с отражающими контактами на основе слоя ИТО использовались гетероструктуры AlGaInN/GaN, выращенные методом MOCVD на сапфировых подложках и содержащие 5 квантовых ям $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$, разделенных барьерами GaN, в активной области. Как видно из сказанного выше, для получения пленок необходимой прозрачности требуется нагрев образцов в области температур выше 300°C. Поэтому была изготовлена опытная партия светоизлучающих кристаллов с *p*-контактом, полученным по следующей технологии: наносились пленки ИТО различной толщины, отжигались в атмосфере воздуха и после закрывались серебром в вакууме для получения отражающего контакта. Однако эксперименты показали, что поведение контактов, полученных описанным выше образом, не стабильно и квантовый выход светодиодных кристаллов быстро уменьшается во времени при приложении токовой нагрузки.

Попытки отжига готовой комбинации ИТО/Ag также не дали положительного результата из-за сильной деградации коэффициента отражения контактов в процессе нагрева.

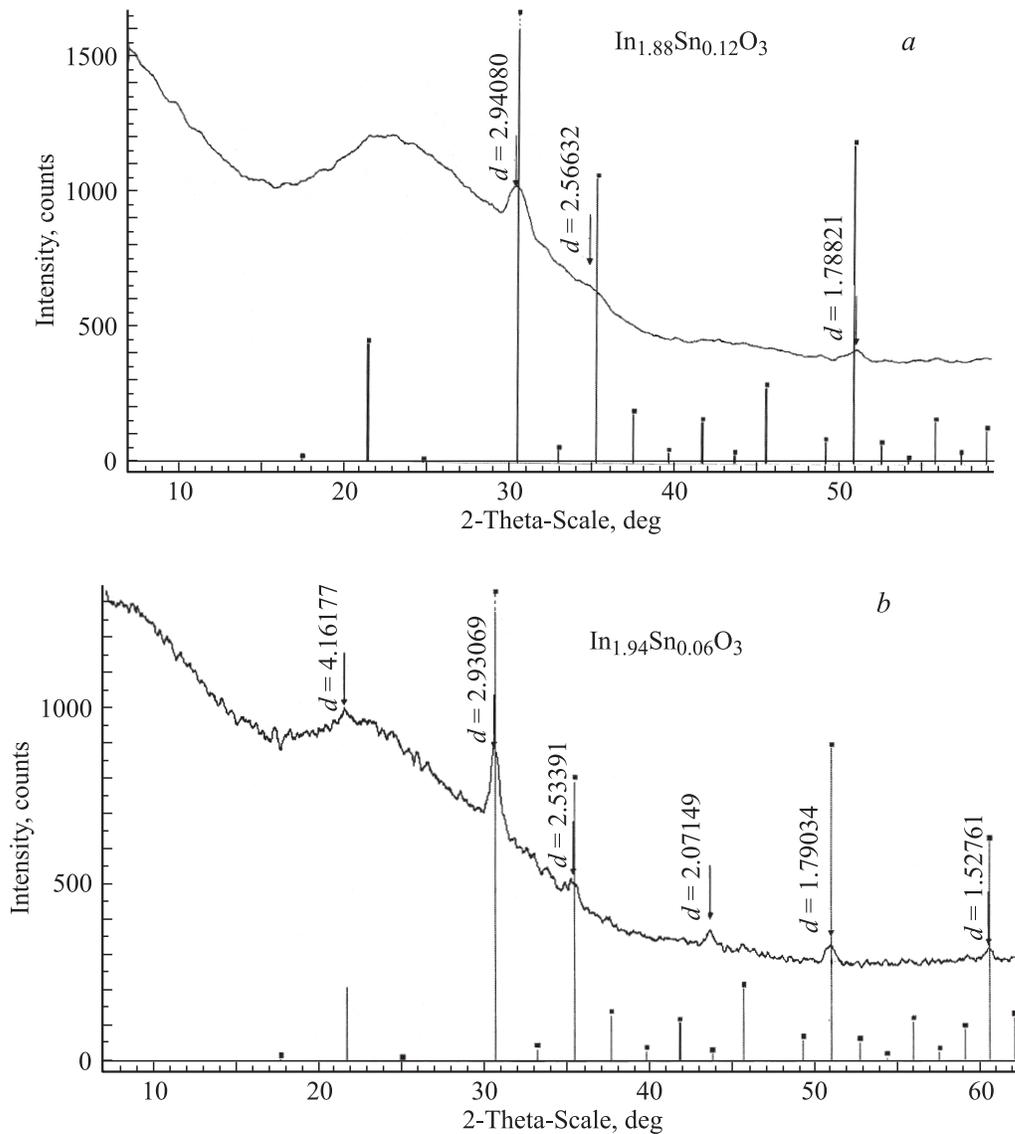


Рис. 2. Сравнение рентгенограмм пленок, отожженных при температуре 300°C и давлении 0.5 Па (a) и при температуре 450°C на воздухе (b).

Исходя из результатов, представленных выше, был выбран вариант напыления пленки ИТО на нагретую подложку с последующим нанесением слоя серебра в одном процессе. Температура подложки во время напыления стабилизировалась на значении 350°C . Для оценки отражательной способности получаемых таким образом контактов и определения оптимальных толщин слоев на покровные стекла толщиной 0.17 мм наносились пленки ИТО различной толщины: $2, 5, 10$ и 70 нм , которые сверху закрывались слоем серебра толщиной 220 нм . Отражательная способность покрытий определялась путем сравнения с отражением от тестового образца, представляющего собой слой серебра толщиной 220 нм , нанесенный непосредственно на стекло. Излучение синего светодиода с длиной волны 470 нм фокусировалось на образце и после отражения от него регистрировалось

фотоприемником. Результаты экспериментов сравнивались с отражением от комбинации металлов, используемой нами для изготовления отражающего контакта к слою $p\text{-GaN}$: 1.5 нм никеля и 220 нм серебра. Результаты приведены в табл. 2. Было установлено, что отражательная способность контакта $\text{Ni}(1.5\text{ нм})/\text{Ag}(220\text{ нм})$ сравнима по отражательной способности с комбинацией ИТО(10 нм)/Ag(220 нм).

Таким образом, используя контакты с меньшими толщинами пленок ИТО, можно получить выигрыш в отражении и соответственно увеличить внешнюю квантовую эффективность светодиода.

Для изготовления отражающих контактов нами была выбрана комбинация ИТО(5 нм)/Ag(220 нм). Изготавливались светодиодные кристаллы площадью $350 \times 470\text{ мкм}^2$ со следующими отражающими p -контак-

Таблица 2. Сравнение коэффициента отражения контактов, содержащих слой ITO различной толщины, с коэффициентом отражения контакта на основе Ni/Ag. Длина волны излучения — 470 нм

Материал и толщины слоев контакта	Отражение от образца по отношению к отражению от тестового образца со слоем Ag 220 нм, %
Ag(220 нм)	100
ITO(2 нм)/Ag(220 нм)	93
ITO(5 нм)/Ag(220 нм)	89
ITO(10 нм)/Ag(220 нм)	85
ITO(70 нм)/Ag(220 нм)	28
Ni(1.5 нм)/Ag(220 нм)	80

тами: ITO(5 нм)/Ag(220 нм) и Ni(1.5 нм)/Ag(220 нм). В качестве *n*-контакта использовалась комбинация металлов Ti/Ag.

Контактные сопротивления напыляемых слоев к материалу *p*-GaN определялись следующим способом. Обычно для исследования электрических характеристик контакта применяется методика TLM (Transmission Line Method), заключающаяся в том, что на поверхности полупроводника изготавливаются последовательно одинаковых контактных площадок с изменяющейся шириной зазора между ними. Однако малая толщина слоя *p*-GaN (~ 0.2 – 0.5 мкм) не обеспечивает достаточной латеральной проводимости, и методика TLM не позволяет определить контактное сопротивление *p*-контактов. Поэтому оно рассчитывалось исходя из полного дифференциального сопротивления светодиодного кристалла. Для этого использовалась разработанная численная модель, основанная на вычислении потенциалов и токов в трехмерной сетке сопротивлений путем решения системы линейных уравнений Кирхгоффа. В модели структура светодиода представлялась в виде трехмерной прямоугольной сетки. В сетку включались сопротивления трех типов, соответствующие удельному объемному сопротивлению материала *n*-GaN и удельному контактным сопротивлениям *n*- и *p*-контактов. В модель не вводилось сопротивление *p*-слоя, а также вольт-амперная характеристика (ВАХ) самого *p*-*n*-перехода, поскольку в режиме работы на больших плотностях тока (когда *p*-*n*-переход полностью спрямлен) он не вносит заметного вклада в общее дифференциальное сопротивление светодиода. Для расчета контактного сопротивления *p*-контактов измерялось полное дифференциальное сопротивление светодиодных кристаллов; методом TLM определялось удельное сопротивление слоя *n*-GaN и сопротивление контактов к нему. Контактное сопротивление *p*-контактов подбиралось таким образом, чтобы расчетное значение полного дифференциального сопротивления светодиода равнялось измеренному.

Сравнение оптических и электрических характеристик изготовленных кристаллов проводилось до разделения

пластины на отдельные чипы. На рис. 3 приведены зависимости внешней квантовой эффективности кристаллов от тока накачки. Как видно из рисунка, использование пленок ITO в качестве первого слоя в двухслойной системе контакта к слою *p*-GaN позволяет существенно ($\sim 15\%$) увеличить значение внешней эффективности светодиодов. Сравнение ВАХ кристаллов (рис. 4) показывает, что применение контактов на основе ITO приводит к небольшому увеличению величины прямого падения напряжения U_f по сравнению с контактом Ni/Ag. Однако следует отметить, что в обоих случаях прямые

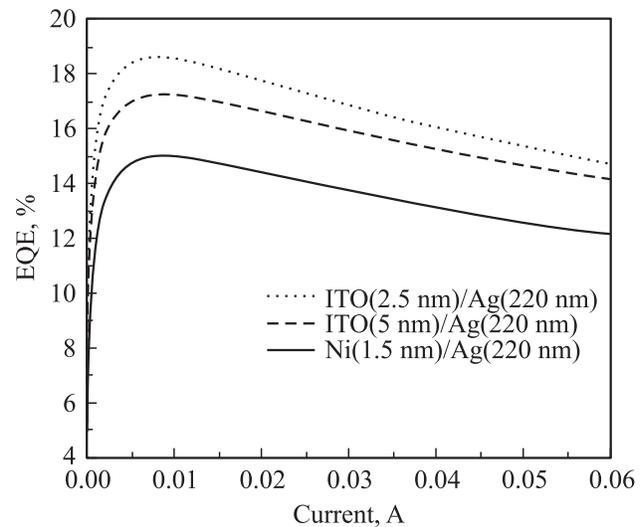


Рис. 3. Зависимость внешней квантовой эффективности от тока накачки для кристаллов с различными контактами к слою *p*-GaN.

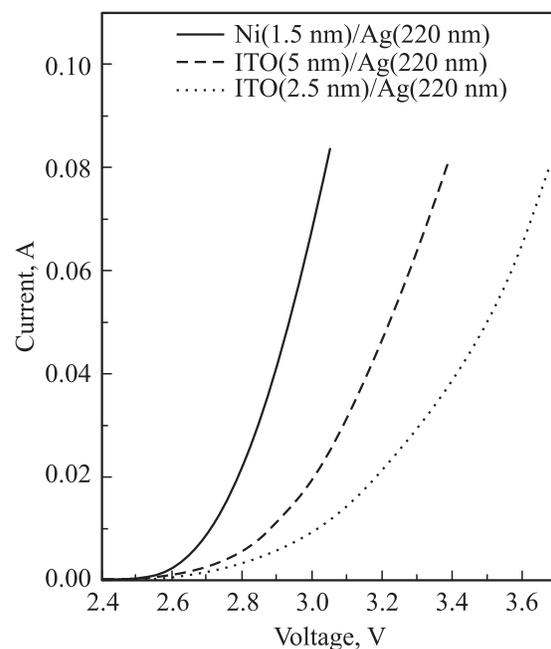


Рис. 4. Вольт-амперные характеристики светодиодных кристаллов с различными контактами к слою *p*-GaN.

падения напряжений лежат в пределах лучших значений, известных для светодиодов AlGaInN, и для кристаллов с контактом ITO(5 нм)/Ag(220 нм) эта величина не превышала $U_f=3$ В на токе $I = 20$ мА. При этом удельное сопротивление p -контакта ITO(5 нм)/Ag(220 нм), рассчитанное согласно описанной выше методике, равно $3.7 \cdot 10^{-3}$ Ом \cdot см².

Дальнейшее увеличение квантового выхода светодиодных кристаллов с p -контактом, созданным согласно рассмотренной выше технологии, возможно за счет уменьшения толщины слоя ITO и, как следствие, сокращения потерь на поглощение света в нем. С этой целью были изготовлены кристаллы с пленками ITO, уменьшенными до 2.5 нм: ITO(2.5 нм)/Ag(220 нм). Внешняя квантовая эффективность и ВАХ полученных кристаллов также приведены на рис. 3 и 4 соответственно. Как и ожидалось, получен дальнейший прирост квантовой эффективности приборов, в то время как ВАХ в случае более тонкого материала становится несколько хуже, а удельные контактные сопротивления соответственно возрастают до значения $6.8 \cdot 10^{-3}$ Ом \cdot см². По этой причине дальнейшее уменьшение толщины слоя ITO, которое приведет к соответствующему ухудшению электрических свойств контакта, не представляется целесообразным, и, по всей видимости, оптимальные толщины тонких пленок материала, полученных указанным методом, лежат в диапазоне 2.5–5.0 нм.

Другим положительным эффектом применения прозрачных и проводящих пленок в качестве контактного материала к слою p -GaN является возможность создания на их основе диффузно-отражающего контакта. Как известно, основным эффектом, ограничивающим эффективность вывода света из светоизлучающего кристалла, является захват излучения в волноводе, образуемый эпитаксиальными слоями нитрида галлия, расположенными между подложкой и верхним металлическим контактом с последующим его поглощением в материале волновода. Следовательно, весьма важным направлением является внесение в конструкцию кристалла каких-либо элементов, способствующих эффективному рассеянию света, распространяющегося в этом волноводе. При этом вследствие малой химической активности и одновременно нестабильности слоя p -GaN добиться существенной модификации его поверхности любыми известными способами травления крайне сложно. В этом случае прозрачные пленки с коэффициентом преломления, близким к коэффициенту преломления материала GaN, предоставляют такую возможность. Их поверхность может быть растравлена как химическими методами, так и при помощи реактивного ионного травления. Таким образом, обрабатывая режимы травления, можно добиться существенного увеличения квантовой эффективности светоизлучающего кристалла. В настоящее время мы проводим ряд экспериментов в этом направлении, о результатах которых сообщим дополнительно.

3. Заключение

В настоящей работе продемонстрирована возможность использования прозрачных проводящих пленок оксида индия и олова, получаемых методом электронно-лучевого напыления, в качестве контактного материала для отражающего контакта к слою p -GaN. Показано, что при толщине слоя ITO ниже 10 нм выигрыш в коэффициенте отражения контакта по сравнению с p -контактом на основе Ni(1.5 нм)/Ag(220 нм) приводит к увеличению квантовой эффективности флип-чип светодиода. Для комбинации ITO(5 нм)/Ag(220 нм) прирост составляет приблизительно 15% при сравнимых значениях их электрических характеристик. Однако использование слоев с толщинами ITO менее 2.5 нм нецелесообразно вследствие ухудшения электрических свойств контакта. Удельное сопротивление отражающего контакта к p -GaN на основе ITO(5 нм)/Ag(220 нм), рассчитанное исходя из суммарного дифференциального сопротивления светоизлучающего кристалла, составило $3.7 \cdot 10^{-3}$ Ом \cdot см².

Авторы выражают благодарность М.В. Кукушкину и Д.А. Закгейму за сотрудничество, ЗАО „Эпицентр“ и Д.А. Бауману за предоставленные гетероструктуры, а также М.А. Яговкиной за проведенный рентгенофазовый анализ пленок.

Список литературы

- [1] K.-H. Shim, M.C. Paek, B.T. Lee, C. Kim, J.Y. Kang. Appl. Phys. A, **72**, 471 (2001).
- [2] D.W. Kim, Y.J. Sung, J.W. Park, G.Y. Yeom. Thin Sol. Films, **398–399**, 87 (2001).
- [3] C.S. Chang, S.J. Chang, Y.K. Su, Y.C. Lin, Y.P. Hsu, S.C. Shei, S.C. Chen, C.H. Liu, U.H. Liaw. Semicond. Sci. Technol., **18**, L21 (2003).
- [4] Y.C. Lin, S.J. Chang, Y.K. Su, T.Y. Tsai, C.S. Chang, S.C. Shei, C.W. Kuo, S.C. Chen. Sol. St. Electron., **47**, 849 (2003).
- [5] J.J. Wierer, D.A. Steigerwald, M.R. Krames, J.J. O’Shea, M.J. Ludowise, G. Christenson, Y.-C. Shen, C. Lowery, P.S. Martin, S. Subramanya, W. Gorz, N.F. Gardner, R.S. Kern, S.A. Stockman. Appl. Phys. Lett., **78**, 3379 (2001).
- [6] D.A. Zakheim, I.P. Smirnova, E.M. Arakcheeva, M.M. Kulagina, S.A. Gurevich, I.V. Rozhansky, V.W. Lundin, A.F. Tsatsulnikov, A.V. Sakharov, A.V. Fomin, A.I. Zakheim, E.D. Vasil’eva, G.V. Itkinson. Physica Status Solidi C, **1**, 2401 (2004).
- [7] Д.А. Закгейм, И.П. Смирнова, И.В. Рожанский, С.А. Гуревич, М.М. Кулагина, Е.М. Аракчеева, Г.А. Онушкин, А.Л. Закгейм, Е.Д. Васильева, Г.В. Иткинсон. ФТП, **39**, 885 (2005).
- [8] И.П. Смирнов, Д.А. Закгейм, М.М. Кулагина, Е.М. Аракчеева. Тез. докл. 5-й Всеросс. конф. (М., 2007) с. 63.
- [9] Jong Kyu Kim, T. Gessmann, E. Fred Schubert. Appl. Phys. Lett., **88**, 013 501 (2006).
- [10] И.П. Смирнова, Д.А. Закгейм, М.М. Кулагина, Л.К. Марков. Тез. докл. 4-й Всеросс. конф. (СПб., 2005) с. 134.

- [11] X.A. Cao, S.J. Pearton, A.P. Zhang, G.T. Dang, F. Ren, R.J. Shul, L. Zhang, R. Hickman, J.M. van Hove. Appl. Phys. Lett., **75**, 2569 (1999).
- [12] T. Margalith, O. Buchinsky, D.A. Cohen, A.C. Abare, M. Hansen, S.P. DenBaars, L.A. Coldren. Appl. Phys. Lett., **74**, 3930 (1999).

Редактор Л.В. Беляков

A reflective *p*-contact based on ITO thin films for the flip-chip AlGaInN LEDs

L.K. Markov, I.P. Smirnova, A.S. Pavlyuchenko,
E.M. Arakcheeva, M.M. Kulagina

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

Abstract In this paper, a reflective *p*-contact is obtained by the electron-beam evaporation of indium tin oxide (ITO) thin films. The *p*-contact is intended for production of the flip-chip blue LEDs. A high reflection factor of the contact is higher than that of the Ni/Ag-based contact and provides an increase in the external quantum efficiency of LED chips by 15–20%. The forward voltages for the chips with ITO(5 nm)/Ag(220 nm) contact are comparable with the similar values of the chips with Ni(1.5 nm)/Ag(220 nm) contact. A specific resistance of the ITO-based contact is $3.7 \cdot 10^{-3} \text{ Ohm} \cdot \text{cm}^2$. It is shown that for the ITO films deposited by this technique the optimal thicknesses providing the best electrical and optical parameters are in the range 2.5–5.0 nm.