

# Варизонная активная область на основе короткопериодных InGaN/GaN-сверхрешеток для мощных светоизлучающих диодов диапазона 440–470 нм

© А.Ф. Цацульников<sup>\*,+,†</sup>, В.В. Лундин<sup>\*,+,‡</sup>, А.В. Сахаров<sup>\*,+,‡</sup>, Е.Е. Заварин<sup>\*,+,‡</sup>, С.О. Усов<sup>\*,+,‡</sup>,  
А.Е. Николаев<sup>\*,+,‡</sup>, Н.А. Черкашин<sup>\*,^</sup>, Б.Я. Бер<sup>\*</sup>, Д.Ю. Казанцев<sup>\*</sup>,  
М.Н. Мизеров<sup>†</sup>, Hee Seok Park<sup>\*</sup>, M. Hytch<sup>^</sup>, F. Hue<sup>^</sup>

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

† Научно-технологический центр микроэлектроники и субмикронных гетероструктур  
при Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

• Samsung Electro-Mechanics Co. Ltd., Suwon,  
Gyeonggi-Do, Korea

^ Center for Material Elaboration & Structural Studies of the National Center for Scientific Research,  
31055 Toulouse, France

(Получена 8 июня 2009 г. Принята к печати 15 июня 2009 г.)

Представлены результаты исследований структурных и оптических свойств светодиодных структур с активной областью на основе сверхтонких InGaN-квантовых ям, ограниченных с обеих сторон короткопериодными сверхрешетками InGaN/GaN. Исследованы зависимости эффективности излучения от дизайна активной области. Показано, что использование InGaN/GaN в качестве ограничивающих варизонных короткопериодных сверхрешеток позволяет существенно увеличить квантовую эффективность излучения.

## 1. Введение

В настоящее время одной из ключевых проблем в области технологии светоизлучающих диодов на основе InGaN диапазона 450–470 нм является повышение эффективности излучения светодиодов в широком интервале плотностей тока через светодиод. Существует много факторов, влияющих на внутреннюю квантовую эффективность излучения, таких как влияние пьезоэлектрических полей в InGaN-квантовых ямах, плотности дислокаций, профилей легирования атомами Mg и Si. Традиционно активная область светодиодов представляет собой последовательность нескольких InGaN-квантовых ям (КЯ) толщиной 2–3 нм, разделенных барьерами GaN. Предлагались различные способы оптимизации дизайна активной области на основе InGaN/GaN, которые заключались в использовании InGaN-барьеров между InGaN-КЯ для улучшения вертикального транспорта носителей [1], использовании InGaAlN-барьеров для подавления эффекта встроенного пьезоэлектрического поля [2], осаждение толстого слоя InGaN между КЯ и *n*-GaN для оптимизации латерального растекания носителей [3], осаждение барьерного слоя InGaN между последней КЯ и блокирующим *p*-легированным слоем AlGaIn [4].

В данной работе выращены и исследованы светодиодные структуры, имеющие новый дизайн активной области на основе нескольких сверхтонких слоев InGaN в матрице GaN, ограниченных с обеих сторон короткопериодными сверхрешетками (КПСР) InGaN/GaN,

имеющими как постоянный, так и переменный (варизонные КПСР) составы по In. Были проведены исследования структурных свойств КПСР и активной области с помощью просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения, вторично-ионной масс-спектропии (ВИМС), рентгеноструктурного анализа. Выполнены исследования оптических свойств структур методами фотолюминесценции (ФЛ) и электролюминесценции (ЭЛ).

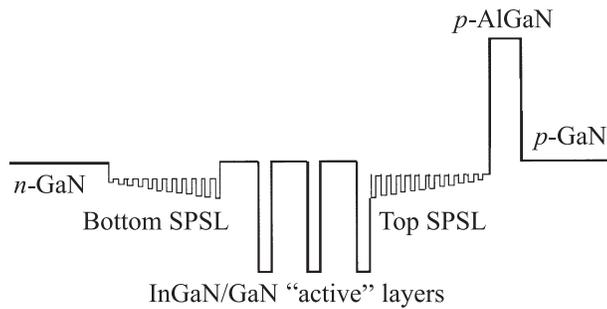
## 2. Эксперимент

Эпитаксиальные структуры выращивались методом МОС-гидридной эпитаксии на сапфировых подложках ориентации (0001). Азот, водород и их смеси использовались в качестве несущих газов. Аммиак, триметилгаллий (ТМГ), триэтилгаллий (ТЭГ), триметилиндий (ТМИ), триметилалюминий, моносилан и биспентациклодиенил магния использовались в качестве соединений-источников. Используемые газы очищались соответствующими очистителями Aegonex.

Активные области этих структур состояли из трех сверхтонких слоев InGaIn толщиной 2 нм, разделенных барьерами GaN толщиной ~ 8 нм. С обеих сторон эти слои были ограничены КПСР InGaIn/GaN с толщинами слоев InGaIn и GaN ~ 1 нм (рис. 1).

КПСР InGaIn/GaN формировались путем циклического осаждения 2 нм In<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>N с последующим прерыванием роста (выключение потоков III группы) в каждом цикле в течение 20 с в атмосфере N<sub>2</sub> : H<sub>2</sub> = 7 : 3. В течение этих прерываний происходила конвертация поверхностного слоя InGaIn с образованием слоя GaN

<sup>†</sup> E-mail: Andrew@beam.ioffe.ru



**Рис. 1.** Схематическое изображение активной области исследованных структур.

толщиной  $\sim 1$  нм. Варизонные КПСР формировались путем линейного уменьшения (увеличения) температуры реактора во время роста нижней (верхней) КПСР. Это приводило к изменению состава по In по толщине сверхрешетки. Выращенные структуры были исследованы рентгеноструктурным анализом, который подтвердил формирование короткопериодных решеток в слоях InGaN, имеющих период 2 нм и средний состав по In 5–6%.

### 3. Результаты и обсуждение

Для изучения структурных свойств КПСР и сверхтонких слоев InGaN в активной области были проведены исследования выращенных образцов методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) высокого разрешения. Для этих исследований образцы приготавливались в геометрии поперечного сечения вдоль направлений  $\langle 2\bar{1}\bar{1}0 \rangle$  и  $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ . Использовалась стандартная процедура механической плоскопараллельной шлифовки и полировки образца триподом (Tripod) до толщины порядка 10 мкм с последующим распылением ионами  $\text{Ag}^+$  материала на установке PIPS при 3 кэВ под  $6\text{--}7^\circ$  к поверхности. Относительно небольшое ускоряющее напряжение и малые токи позволяли избегать локального нагревания образца во время ионного травления, сохраняя локальную температуру ниже  $300^\circ\text{C}$ . Для визуализации дислокаций на микроскопе Jeol 2010 получались темнопольные изображения в слабом пучке. Изображения высокого разрешения были получены на микроскопе Tescan, работающем при 200 кэВ и оборудованном корректором сферической аберрации. Далее эти изображения обрабатывались с помощью метода анализа геометрических фаз (GPA) [5,6], позволяющего получить двумерное распределение деформации в напряженных слоях относительно недеформированной матрицы GaN и далее, используя закон Вегарда, рассчитать распределение индия и алюминия в слоях твердых растворов.

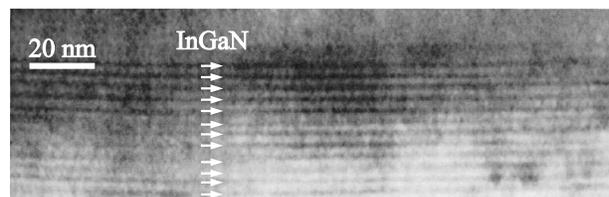
Исследования КПСР InGaN/GaN с помощью ПЭМ высокого разрешения с последующим цифровым анализом показали формирование короткопериодных InGaN/GaN-

сверхрешеток с периодическим изменением состава по In от нуля до 8–11% (рис. 2).

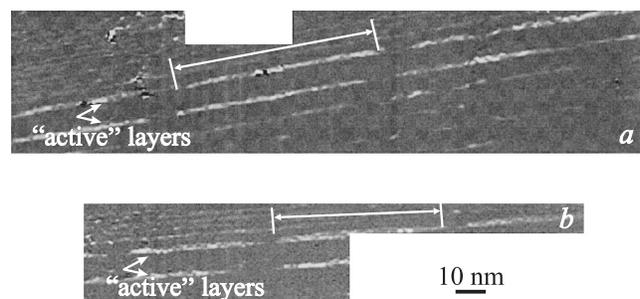
Обычно активная область светодиодных структур содержит набор InGaN-слоев, состоящий из базовых слоев InGaN, имеющих низкий состав по In, и верхних активных слоев InGaN, имеющих высокий состав по In, причем рекомбинационные процессы происходят в верхнем (ближайшем к слою  $p\text{-AlGaN}$ ) активном слое InGaN [7,8]. Использование нижней КПСР в этом случае аналогично использованию набора базовых слоев InGaN и, кроме того, позволяет оптимизировать латеральное растекание электронов при инжекции. При этом необходимо отметить, что замена нескольких слоев InGaN на КПСР может привести к изменению в формировании InGaN-слоев в активной области, а именно к особенностям в образовании локальных областей, обогащенных атомами In, которые определяют оптические свойства структур. Кроме того, эффект диффузии Mg, который будет обсуждаться далее, может стимулировать процессы In–Ga интердиффузии [9], что влияет на особенности формирования тонких слоев InGaN.

На рис. 3 показаны ПЭМ изображения активной области образцов, содержащих два активных слоя InGaN, выращенных на четырех базовых слоях InGaN (рис. 3, *a*) и на 12-периодной 1 нм InGaN / 1 нм GaN КПСР (рис. 3, *b*). В обеих структурах активные слои InGaN были зарощены 12-периодной КПСР 1 нм InGaN / 1 нм GaN.

Сравнение параметров сверхтонких слоев InGaN в активных областях, проведенное с помощью ПЭМ вы-



**Рис. 2.** ПЭМ изображение InGaN/GaN CP (слои InGaN обозначены стрелками).



**Рис. 3.** Изображение слоев InGaN в структурах с 2 активными слоями InGaN, выращенными на 4 базовых слоях InGaN (*a*) и на InGaN/GaN КПСР (*b*), полученное с помощью GPA анализа данных ПЭМ высокого разрешения.

сокого разрешения, показывает следующее. В структуре с двумя активными слоями, выращенными на базовых слоях, каждый из слоев является не сплошным двумерным, а состоит из 2D островков. Смачивающий слой между островками отсутствует. В первых четырех слоях, выращенных при более высокой температуре, эти островки имеют высоту до 1.5 нм. Средняя концентрация In в слоях составляет 11%. Максимальный состав по In в островках достигает 30%. В последних 2 слоях InGaN 2D островки имеют большую высоту 2.5 нм с латеральными размерами  $\sim 50$  нм. Средняя концентрация In в островках в этих слоях составляет  $\sim 25\%$ , а максимальная концентрация доходит до 45%. В структуре с 2 слоями InGaN, ограниченными СПСР, также наблюдается формирование 2D островков. Их размеры составляют  $\sim 40$  нм, и локальный состав по In аналогичен тому, что наблюдается в структуре с 6 КЯ. Таким образом, осаждение нижней СП не приводит к серьезной модификации структурных свойств слоев InGaN в активной области. При этом необходимо отметить, что распределение In в наблюдаемых 2D островках является неоднородным. Детальные ПЭМ исследования, проведенные ранее [10], показали формирование в слоях InGaN плотного массива 3D квантовых точек с размерами  $\sim 2-3$  нм.

На рис. 4, *a* приведены спектры электролюминесценции (ЭЛ) описанных выше структур. Спектральные положения линий образцов с активными InGaN-слоями, выращенными на КПСР и на базовых слоях InGaN, совпадают. Некоторое увеличение эффективности наблюдается для образца, содержащего КПСР, что может быть связано с лучшим растеканием носителей в КПСР. Температурные исследования ФЛ (рис. 4, *b*) показывают, что ширины линий ФЛ обеих структур в низкотемпературной ( $< 50$  К) и высокотемпературной ( $> 250$  К) областях совпадают.

В области температур 50–250 К ширина спектра ФЛ образца с активными слоями, выращенными на базовых слоях InGaN, выше, чем ширина спектра ФЛ образца с активной областью, выращенной на КПСР. Сужение линий ФЛ в области температур 10–50 К связано с термическим выбросом носителей из КТ в активных InGaN-слоях и их транспортом в состоянии с большей энергией локализации. Последующее увеличение ширины линии ФЛ при температуре выше 50 К связано с заселением возбужденных состояний. Таким образом, меньшая ширина линии ФЛ в диапазоне температур 50–250 К в структуре, содержащей КПСР, свидетельствует о меньшей неоднородности КТ по размерам в активных слоях InGaN в этой структуре, приводящей к лучшему транспорту носителей.

Рассмотрим влияние верхней КПСР на свойства светодиодных структур. Использование верхней КПСР приводит к смещению активного слоя InGaN от области *p*-легирования. Это уменьшает в нем концентрацию атомов Mg и, следовательно, снижает плотность глубоких дефектов, подавляющих эффективность излуче-

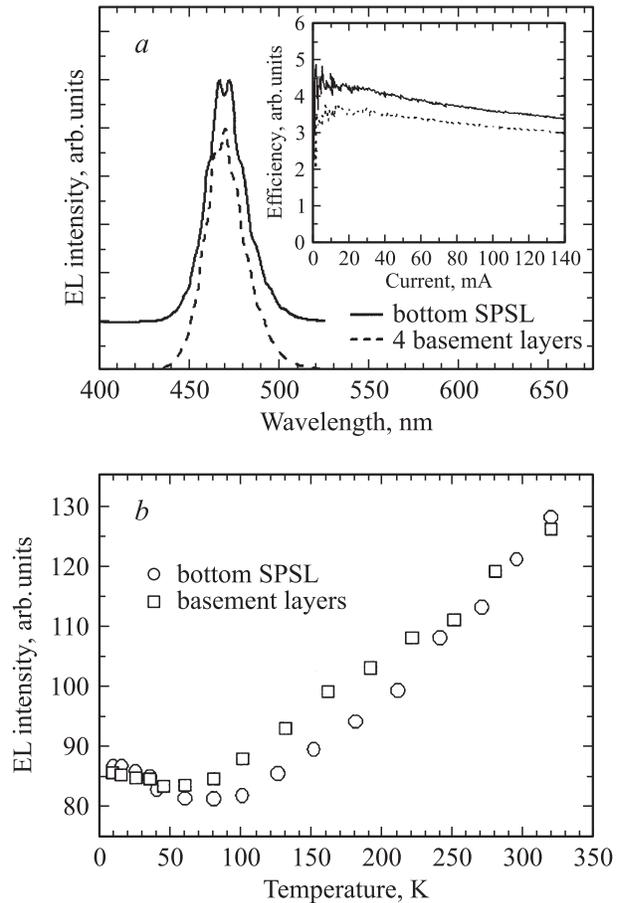
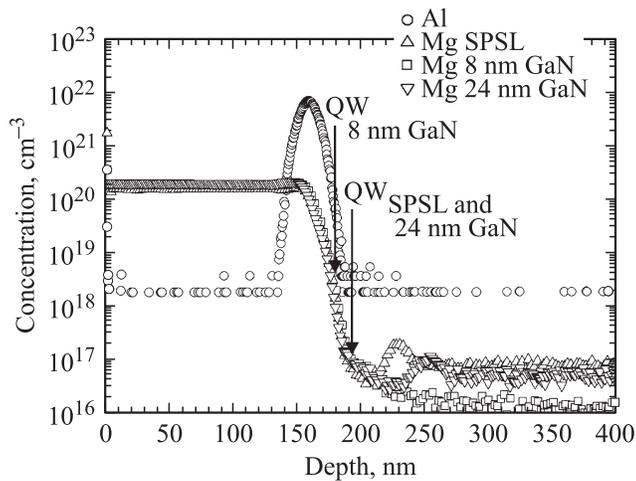


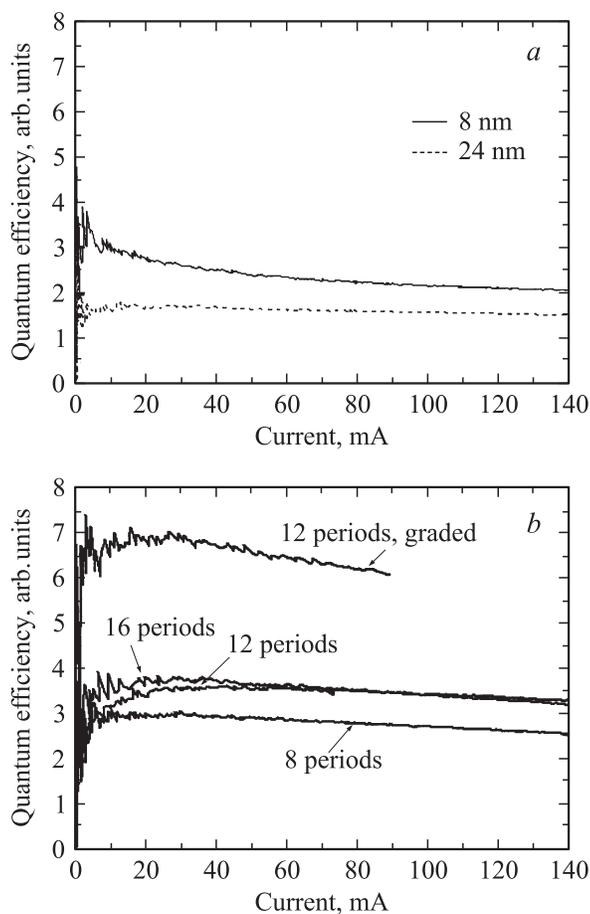
Рис. 4. Спектры ЭЛ исследованных структур (*a*) и зависимость полуширины линии ФЛ от температуры (*b*). На вставке — зависимости внешней квантовой эффективности от тока.

ния [11–13]. Кроме того, в работе [4] были исследованы структуры с GaN- и InGaN-барьерами между InGaN-КЯ в активной области и слоем AlGaIn и было показано, что InGaN-барьер приводит к блокированию диффузии Mg в активную область. Для изучения диффузии магния были проведены исследования светодиодных структур с помощью ВИМС, в которых между активным слоем InGaN и слоем *p*-AlGaIn помещался или GaN-барьер (исследовались структуры с барьерами толщиной 8 и 24 нм), или варизонная InGaIn/GaN КПСР толщиной 24 нм. На рис. 5 приведены профили легирования Mg исследованных образцов.

Изучение диффузии магния в светодиодных структурах, в которых между активным слоем InGaIn и слоем *p*-AlGaIn помещался GaN-барьер (исследовались структуры с барьерами толщиной 8 и 24 нм) или варизонная InGaIn/GaN КПСР толщиной 24 нм, проводилось с помощью ВИМС [14] на магнитосекторном ионном микроскопе CAMECA IMS7f. Профиль залегания Mg определялся при травлении ионами  $O_2^+$  с кинетической энергией 1 кВ и регистрацией сигнала  $^{24}Mg^+$ , профиль залегания Si определялся при травлении ионами  $Cs^+$  с



**Рис. 5.** Профили легирования атомами Mg в исследованных образцах.



**Рис. 6.** Зависимости квантовой эффективности от тока, протекающего через структуру, для светодиодных структур с барьером GaN (a) и КПСР (b).

кинетической энергией 12 кВ и регистрацией аналитического сигнала  $^{28}\text{Si}$ , профили распределения матричных элементов структуры определялись при травлении ионами  $\text{Cs}^+$  с кинетической энергией 3 кВ и регистрацией

аналитического сигнала  $\text{CsX}^+$  ( $X = \text{Al}, \text{Ga}, \text{In}$ ). Количественный анализ проводился с использованием факторов относительной чувствительности [14], определенных на имплантированных стандартах. Глубины кратеров травления определялись с помощью механического профилометра AMBiOS XP-1.

Стрелками на рис. 5 показаны положения активного InGaN-слоя в активной области. Из приведенных профилей видно, что для всех структур профили Mg совпадают, что свидетельствует о том, что InGaN/GaN КПСР не блокирует диффузию атомов Mg. Для структур с КПСР и толстым GaN-барьером концентрация Mg составляет  $9.5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ , в то время как для структуры с 8 нм GaN-барьером концентрация Mg в слое InGaN составляет  $3.7 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ .

На рис. 6 приведены зависимости квантовой эффективности от тока, протекающего через структуру, для светодиодных структур с барьерами GaN и InGaN/GaN КПСР с активным слоем InGaN и слоем p-AlGaIn.

Видно принципиальное различие во влиянии увеличения толщины InGaN/GaN КПСР и GaN-барьера на эффективность излучения. Увеличение толщины GaN-барьера приводит к уменьшению эффективности, в то время как увеличение толщины InGaN/GaN КПСР приводит к увеличению эффективности излучения. Падение интенсивности ЭЛ при увеличении толщины барьера GaN, по-видимому, связано с тем, что рост этого барьера осуществляется при достаточно низкой температуре ( $810^\circ\text{C}$ ), что приводит к ухудшению качества GaN. Использование InGaN/GaN КПСР позволяет улучшить качество барьерного слоя и повысить эффективность излучения. Использование вместо КПСР постоянного состава варизонной КПСР приводит к дальнейшему  $\sim 2$ -кратному увеличению квантовой эффективности. Это предположительно связано с тем, что в случае варизонной КПСР увеличение состава по In по направлению от p-AlGaIn к активному слою InGaN приводит к улучшению сбора носителей в активную область.

#### 4. Заключение

Таким образом, в данной работе были выращены и исследованы светодиодные структуры на основе нового дизайна активной области, в которой сверхтонкие активные слои InGaN были ограничены варизонной короткопериодной InGaN/GaN-сверхрешеткой. Было показано, что данный дизайн обеспечивает увеличение внешней квантовой эффективности излучения за счет улучшения сбора носителей и уменьшения числа дефектов в активной области, вызванных диффузией атомов Mg.

Работа выполнена в рамках Государственного контракта № 02.523.12.3017 от 14 августа 2008 г. и при диагностической поддержке СЗРЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“.

## Список литературы

- [1] Jinqiao Xie, Xianfeng Ni, Qian Fan, Ryoko Shimada, Ümit Özgür, Hadis Morkoç. Appl. Phys. Lett., **93**, 121 107 (2008).
- [2] Martin F. Schubert, Jiuru Xu, Jong Kyu Kim, E. Fred Schubert, Min Ho Kim, Sukho Yoon, Soo Min Lee, Cheolsoo Sone, Tan Sakong, Yongjo Park. Appl. Phys. Lett., **93**, 041 102 (2008).
- [3] J.K. Sheu, G.C. Chi, M.J. Jou. Photon. Technol. Lett., **13** (11), 1164 (2001).
- [4] Fun-Hyun Park, Jin Jang, Shalini Gupta, Ian Ferguson, Soo-Kun Jeon, Jae-Gu Lim, Jun-Serk Lee, Cheol-Hoi Kim, Joong-Seo Park. Appl. Phys. Lett., **93**, 101 112 (2008).
- [5] M.J. Hytch, E. Snoeck, R. Kilaas. Ultramicroscopy, **74**, 131 (1998).
- [6] HREM Research, <http://www.hremresearch.com>.
- [7] А.В. Сахаров, В.В. Лундин, Е.Е. Заварин, М.А. Сеницын, А.Е. Николаев, С.О. Усов, В.С. Сизов, Г.А. Михайловский, Н.А. Черкашин, М. Ныч, Ф. Ние, Е.В. Яковлев, А.В. Лобанова, А.Ф. Цацульников. ФТП, **43** (6), 841 (2009).
- [8] А.А. Арендаренко, И.Г. Ермошин, Ю.Н. Свешников, И.Н. Цыпленков. Тез. докл. VI Всеросс. конф. „Нитриды галлия, индия и алюминия — структуры и приборы“ (СПб., 18–20 июня 2008 г.) с. 123.
- [9] M.D. McCluskey, L.T. Romano, B.S. Krusor, N.M. Johnson, T. Suski, J. Jun. Appl. Phys. Lett., **73** (9), 1281 (1998).
- [10] Yu.G. Musikhin, D. Gerthsen, D.A. Bedarev, N.A. Bert, W.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, A.V. Sakharov, A.S. Usikov, Zh.I. Alferov, I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg. Appl. Phys. Lett., **8** (12), 2099 (2002).
- [11] Sung-Nam Lee, H.S. Paek, J.K. Son, H. Kim, K.K. Kim, K.H. Ha, O.H. Nam, Y. Park. J. Electroceram. Springer Science + Business Media, LLC (2008) DOI 10.1007/s10832-008-9478-2.
- [12] M. Takeya, T. Mizuno, T. Sasaki, S. Ikeda, T. Fugimoto, Y. Ohfuji, K. Oikawa, Y. Yabuki, S. Uchida, M. Ikeda. Phys. Status Solidi C, **0**, 2092 (2003).
- [13] O.H. Nam, K.H. Ha, J.S. Kwak, S.N. Lee, K.K. Choi, T.H. Chang, S.H. Chae, W.S. Lee, Y.J. Sung, H.S. Paek, J.H. Chae, T. Sakong, Y. Park. Phys. Status Solidi C, **0**, 2278 (2003).
- [14] R.G. Wilson, F.A. Stevie, C.W. Magee. *Secondary Ion Mass Spectrometry. A Practical Handbook for Depth Profiling and Bulk Impurity Analysis* (Wiley, 1989).

Редактор Л.В. Беляков

## Active Region Based On Graded InGaN/GaN Short-Period Superlattices For Power LED Structures

A.F. Tsatsulnikov<sup>\*,+,</sup>, W.V. Lundin<sup>\*,+,</sup>,  
A.V. Sakharov<sup>\*,+,</sup>, E.E. Zavarin<sup>\*,+,</sup>, S.O. Usov<sup>\*,+,</sup>,  
A.E. Nikolaev<sup>\*,+,</sup>, N.A. Cherkashin<sup>\*,^,</sup>, B.Ya. Ber<sup>\*</sup>,  
D.Yu. Kazantsev<sup>\*</sup>, M.N. Mizerov<sup>+</sup>, Hee Seok Park<sup>•</sup>,  
M. Hytch<sup>^</sup>, F. Hue<sup>^</sup>

\* Ioffe Physicotechnical Institute,  
of the Russian Academy of Sciences,  
194021 St. Petersburg, Russia

+ Center for Microelectronics at Ioffe Physicotechnical  
Institute of the Russian Academy of Sciences,  
194021 St. Petersburg, Russia

• Samsung Electro-Mechanics Co. Ltd.,  
Suwon, Gyunggi-Do, Korea

^ Center for Material Elaboration & Structural Studies  
of the National Center for Scientific Research,  
31055 Toulouse, France

**Abstract** Structural and optical properties of the LED structures with active region based on the ultrathin InGaN layers, confined by short-period SL, were investigated. Dependences of the external quantum efficiency on the design of active region were studied. It was shown, that using of the short-period SL as confined layers resulted in improvement of the quantum efficiency.