

Структурные и оптические свойства InAlN/GaN распределенных брегговских отражателей

© С.О. Усов^{†,*,+}, Е.Е. Заварин^{*,+}, А.Ф. Цацульников^{*,+}, В.В. Лундин^{*,+}, А.В. Сахаров^{*,+},
А.Е. Николаев^{*,+}, М.А. Сеницын^{*,•}, Н.В. Крыжановская^{*}, С.И. Трошков^{*}, Н.Н. Леденцов^{*}

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

+ Научно-технологический центр микроэлектроники и субмикронных гетероструктур Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

• Санкт-Петербургский физико-технологический научно-образовательный центр Российской академии наук,
195220 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 14 ноября 2009 г. Принята к печати 27 ноября 2009 г.)

Проведено исследование структурных и оптических свойств InAlN/GaN распределенных брегговских отражателей, выращенных методом газовой эпитаксии из металлоорганических соединений на сапфировых подложках. Исследовано влияние режимов роста и толщин слоев InAlN на структурные свойства распределенных брегговских отражателей. Показано, что оптимизация режимов эпитаксиального роста позволяет создавать InAlN/GaN распределенные брегговские отражатели с коэффициентом отражения более 99% и максимумом отражения в диапазоне длин волн 460–610 нм.

1. Введение

Разработка технологии эпитаксиального роста распределенных брегговских отражателей (РБО) для видимого диапазона на основе нитридов третьей группы обусловлена задачами создания вертикально излучающих лазеров и резонансных светодиодов на основе InGaAlN [1]. Использование монолитных РБО вместо РБО на основе диэлектрических покрытий (таких как SiO₂/Si₃N₄, SiO₂/HfO₂, TiO₂/SiO₂ [2]), обладающих широкой полосой и большим коэффициентом отражения, позволяет упростить конструкцию и постростовые операции при изготовлении светоизлучающих приборов. При создании полупроводниковых РБО к ним предъявляются следующие требования: а) высокий коэффициент отражения (> 90% для светодиодов и 99.5% для лазеров) в рабочем спектральном диапазоне, б) малое значение коэффициента поглощения в рабочем спектральном диапазоне, в) возможность получения легированных РБО слоев *p*- или *n*-типа проводимости и г) возможность выращивания РБО и активной светоизлучающей области в одном эпитаксиальном процессе.

Требования к отсутствию поглощения практически исключают использование слоев InGaN при создании РБО видимого диапазона. Использование гетероструктур Al_xGa_{1-x}N/GaN [3] позволяет получать в зависимости от состава Al коэффициент отражения до 99% при количестве периодов от 40 до 60 для длин волн 370–410 нм [4]. Однако в таких структурах из-за рассогласования параметров решеток GaN и AlGaN возникают механические напряжения, что приводит к нарушению морфологии поверхности или образованию трещин.

Использование системы материалов InAlN/GaN позволяет преодолеть проблему возникновения упругих напряжений, поскольку слой In_xAl_{1-x}N при $x = 0.17$

является решеточно-согласованным с GaN в плоскости эпитаксиального роста, при этом имеется значительный контраст в показателях преломления. При изменении количества In в твердом растворе InAlN от 14 до 20% рассогласование постоянной решетки с GaN находится в пределах 0.5%, что позволяет выращивать InAlN/GaN эпитаксиальные структуры большой толщины на буферных слоях GaN без ухудшения морфологии и появления трещин. Разница в показателях преломления между InAlN и GaN, составляющая 6–8% в диапазоне длин волн 400–600 нм, должна обеспечивать возможность создания InAlN/GaN РБО с коэффициентами отражения более 99%.

К сожалению, эпитаксиальный рост тройного соединения InAlN сильно затруднен принципиально различными оптимальными условиями роста алюминий- и индий-содержащих нитридов, что приводит к необходимости поиска неочевидных компромиссов при оптимизации технологических режимов.

В настоящей работе приведены результаты исследований, направленных на создание РБО на основе многослойных структур In_xAl_{1-x}N/GaN. Проведен анализ влияния условий эпитаксиального роста, числа периодов и толщин слоев In_xAl_{1-x}N/GaN на структурные и оптические свойства РБО.

2. Эксперимент

Исследованные образцы были выращены на сапфировых подложках ориентации (0001) с буферным слоем GaN толщиной около 3 мкм методом газовой эпитаксии из металлоорганических соединений (ГФЭ МОС) на модифицированной установке Epiquip VP-50 RP. Аммиак, триметилгаллий (ТМГ), триметилиндий (ТМИ), триметилалюминий и моносилан использовались в качестве соединений-источников. При выращивании эпитаксиальных слоев GaN в качестве несущего газа использовался

[†] E-mail: S.Usov@mail.ioffe.ru

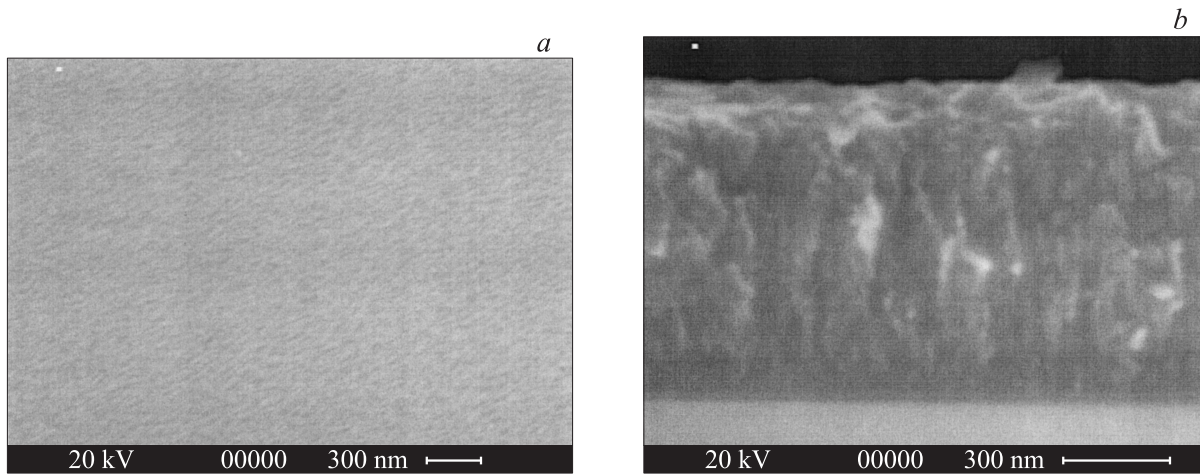


Рис. 1. Изображения, полученные методом растровой электронной микроскопии поверхности тонкого (70 нм) (а) и скола толстого (700 нм) слоя $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ (b).

водород, при выращивании InAlN — азот. Подаваемые в реактор газы очищались соответствующими системами очистки Aegonex®. Детали эпитаксиального роста описаны в [5]. Специально не предпринималось усилий по повышению однородности слоя InAlN по площади эпитаксиальной пластины, поэтому на одном и том же образце имелась возможность исследовать свойства структуры с небольшой вариацией параметров слоя InAlN .

Структурные свойства полученных РБО-структур были исследованы методами растровой электронной микроскопии (РЭМ) на установке CamScan S4-90FE и методом рентгеновской дифракции высокого разрешения (HRXRD) на установке Bruker Discover D8.

Спектры оптического отражения снимались при нормальном падении с использованием галогеновой лампы в качестве источника света и с нормировкой полученных спектров на отражение от эталонного образца. Моделирование спектров оптического отражения осуществлялось с помощью программы, основанной на методе матриц переноса [6].

3. Результаты и обсуждение

3.1. Свойства одиночных слоев InAlN

На первом этапе работы исследовались образцы, содержащие одиночные слои $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ различной толщины, выращенные на буферном слое GaN . На рис. 1 приведены изображения поверхности и скола образцов, содержащих тонкий (70 нм) (а) и толстый (700 нм) слои $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ (b), выращенные в одних и тех же условиях.

На поверхности толстого слоя InAlN наблюдается сильная морфологическая трансформация, возможно обусловленная фазовым распадом слоя. Из анализа изображения скола (рис. 1, b) толстого слоя InAlN видно, что при росте первых 50–60 нм InAlN трансформации слоя не наблюдается. Поверхность слоя InAlN толщиной

70 нм (рис. 1, a) более гладкая, и фазового распада не наблюдается. Исходя из полученных результатов можно сделать вывод, что для сохранения морфологии при данных условиях роста толщины слоев InAlN в РБО не должны превышать ~ 60 нм.

Детальное исследование структурных свойств $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ РБО методом просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения и формирование дефектов в них приведены в работе [5].

3.2. Свойства InAlN/GaN РБО

На рис. 2, a приведено изображение скола образца, содержащего 57 пар слоев InAlN/GaN . Видно, что при росте РБО, состоящего из чередующихся тонких слоев $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$, планарность интерфейсов не нарушается. Качество поверхности такого образца также остается достаточно высоким.

На рис. 2, b приведены спектры отражения для образцов, которые содержат 17, 37 и 57 пар слоев InAlN/GaN , выращенных при одинаковом потоке азота через испаритель с ТМИ, равном $558 \text{ см}^3/\text{с}$. Коэффициент отражения в максимуме составляет 82, 96.6 и 99.5% соответственно. Увеличение числа периодов приводит к появлению трещин, особенно это заметно в образцах, содержащих 37 и 57 пар слоев $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$, несмотря на то что средний состав индия, полученный из анализа кривых качания, во всех этих образцах составляет около 17%. Формирование трещин в РБО связано с различием коэффициентов температурного расширения между InAlN и GaN , в результате чего согласование параметров решетки этих слоев возможно только при одной температуре.

Для исследования влияния содержания In на формирование трещин были выращены РБО, в которых слои InAlN выращивались при различных потоках ТМИ, определяющих состав индия в слоях InAlN .

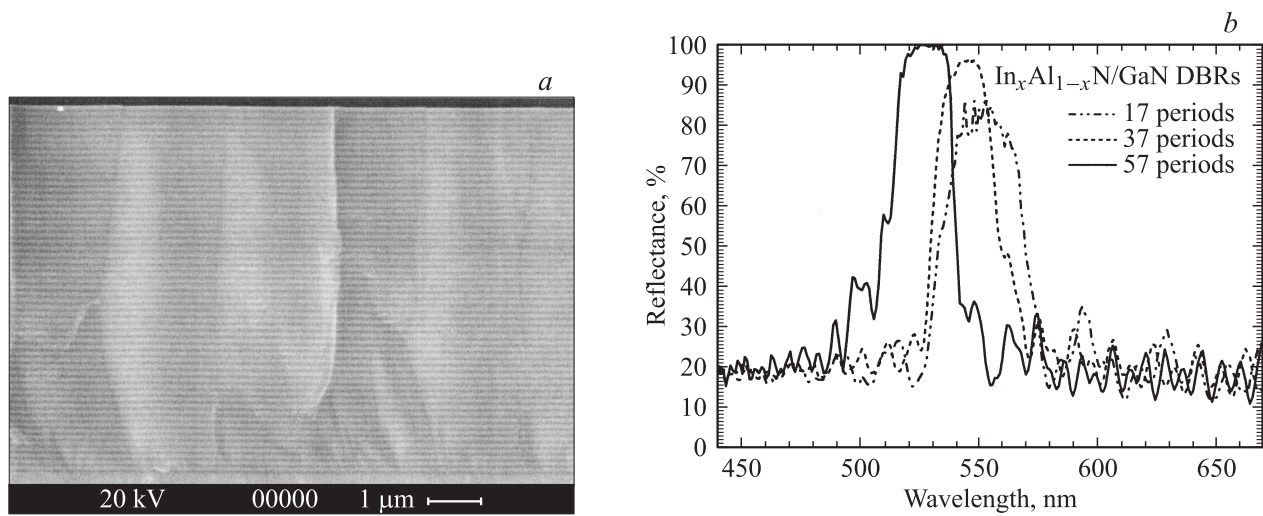


Рис. 2. Изображение, полученное методом растровой электронной микроскопии, скола образца с 57 парами слоев InAlN/GaN (a). Экспериментальные спектры отражения (b) для образцов, которые содержат РБО с 17, 37 и 57 периодами слоев InAlN/GaN соответственно.

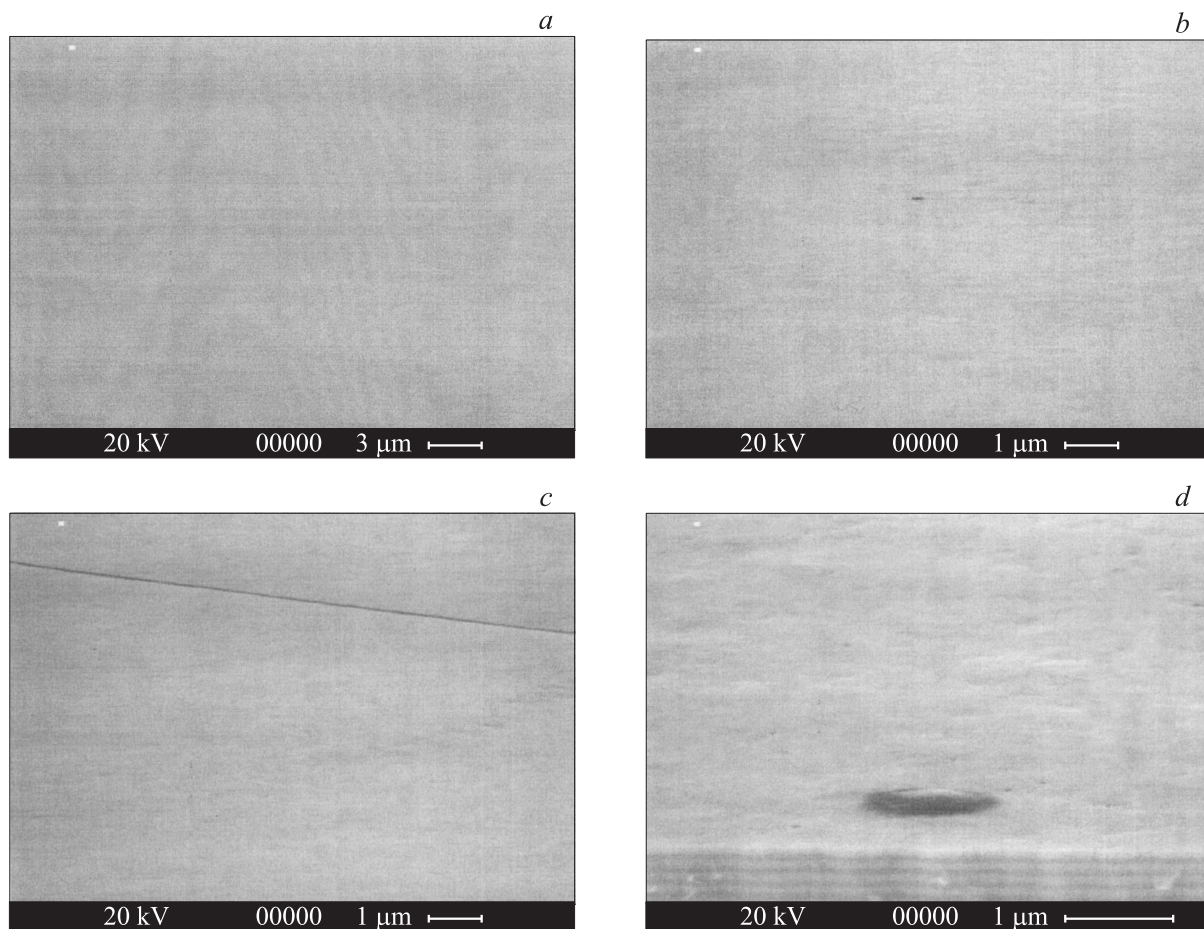


Рис. 3. Изображения, полученные методом растровой электронной микроскопии, поверхностей образцов, содержащих РБО с 37 периодами слоев InAlN/GaN , выращенных при различных потоках азота через испаритель с ТМИ, равных 446 (a), 502 (b), 558 (c) и 613 cm^3/s (d) соответственно.

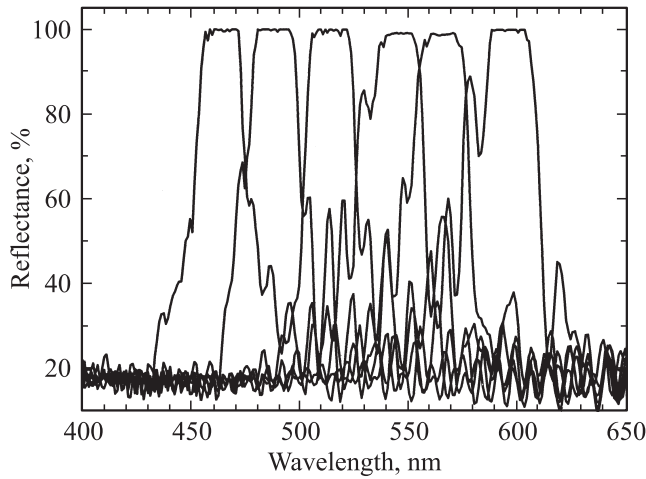


Рис. 4. Экспериментальные спектры отражения образцов, содержащих РБО с 57 периодами слоев InAlN/GaN, снятые в различных точках образца.

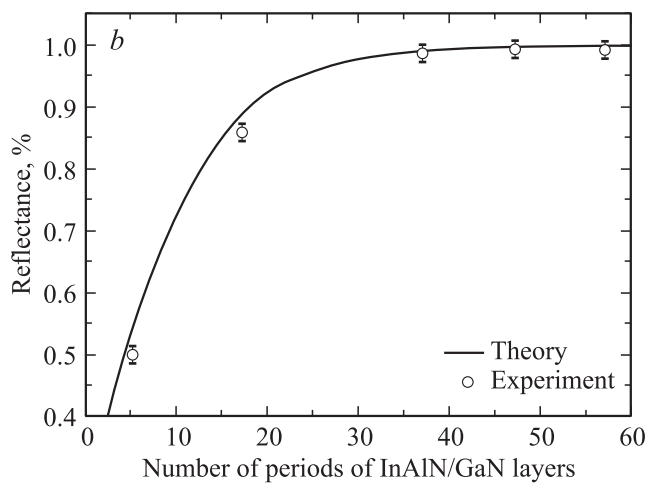
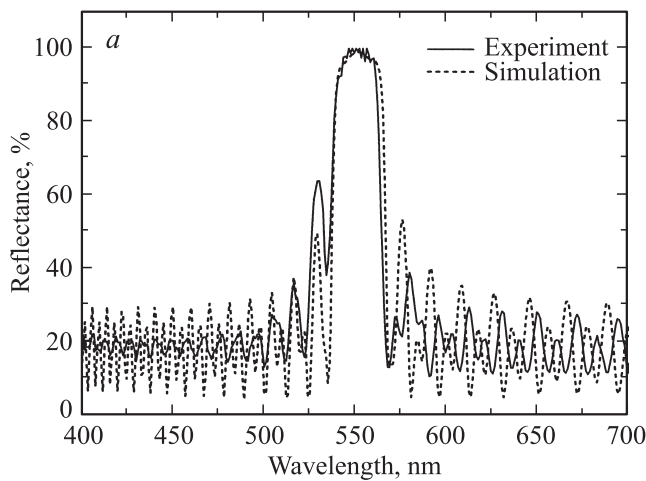


Рис. 5. Экспериментальные (сплошные линии) и расчетные (пунктирные линии) спектры отражения для РБО, содержащего 37 периодов слоев InAlN/GaN (а). Зависимость максимального коэффициента отражения от числа периодов InAlN/GaN в исследуемых структурах (б).

На рис. 3 приведены РЭМ-изображения поверхностей образцов, содержащих РБО с 37 периодами $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$, выращенными при различных потоках азота через испаритель с ТМИ.

При малом потоке азота через испаритель с ТМИ ($446 \text{ см}^3/\text{с}$) поверхность образца гладкая, но наблюдается формирование трещин. При увеличении потока до $613 \text{ см}^3/\text{с}$ поверхность становится волнообразной (рис. 3, *c, d*), что может быть обусловлено эффектом фазовой сепарации, в результате чего появляются V-дефекты [7,8]. Таким образом, уменьшение содержания In ниже оптимального значения приводит к формированию трещин при росте большого количества пар слоев. С другой стороны, увеличение содержания In выше оптимального приводит к увеличению числа дефектов и ухудшению качества поверхности, что вызвано эффектом фазовой сепарации в слоях InAlN. Ухудшение планарности поверхности приводит к уменьшению коэффициента отражения, который для РБО, выращенных при потоках 446 , 502 и $558 \text{ см}^3/\text{с}$, составляет $\sim 99.6\%$, а для РБО, выращенного при потоке $613 \text{ см}^3/\text{с}$, снижается до 87% .

На рис. 4 приведены спектры отражения образцов, содержащих 57 периодов слоев $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$, снятые в различных точках образца и соответственно с различными толщинами слоев в РБО, которые выращены при потоке азота через испаритель с ТМИ, равным $558 \text{ см}^3/\text{с}$. Коэффициент отражения составляет более 99% при изменении максимума спектров отражения в интервале от 460 до 610 нм .

Для анализа оптических свойств распределенных брегговских отражателей использовался метод расчета спектров отражения, основанный на методе матриц переноса [9,10], который позволяет получить спектры отражения, а также спектры распределения электромагнитных полей в многослойных структурах [6,10].

При нормальном падении света на поверхность образца, при пренебрежении поглощением, максимальный коэффициент отражения РБО может быть получен в виде [11]

$$R_{2p+1} = \left(\frac{1 - (n_H/n_L)^{2p}(n_H/n_i)(n_H/n_S)}{1 + (n_H/n_L)^{2p}(n_H/n_i)(n_H/n_S)} \right)^2, \quad (1)$$

где p — число периодов в РБО; n_L , n_H — показатели преломления слоев РБО, причем $n_H > n_L$; n_i — показатель преломления среды, из которой падает свет на структуру, и n_S — подложки. Расчетная и экспериментальная зависимости максимального коэффициента отражения приведены на рис. 5, *b*.

Значения показателей преломления для материалов GaN, Al_2O_3 , $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$, которые использовались для расчета спектров отражения, приведены в таблице [12]. При этом составы твердых растворов для расчета показателей преломления были выбраны в соответствии с данными HRXRD.

Экспериментальные и расчетные спектры отражения образцов с 37 периодами РБО представлены на рис. 5, *a*.

Значения показателей преломления для GaN, Al₂O₃ и In_xAl_{1-x}N, которые использовались для получения расчетных спектров отражения

Материал	Показатель преломления ($\lambda = 550$ нм)
GaN	2.41
Al ₂ O ₃	1.78
In _x Al _{1-x} N при $x = 17\%$	2.25

Для получения расчетных спектров отражения толщины слоев InAlN и GaN были выбраны равными 57 нм, а толщина буферного слоя GaN — 4500 нм. Для образца с 37 периодами In_xAl_{1-x}N/GaN положение максимума спектра отражения составляет 549 нм и коэффициент отражения в максимуме равен 99.4%. Величины ширины на полувысоте спектра для образцов с 37 и 57 периодами In_xAl_{1-x}N/GaN равны 29 и 26 нм соответственно, что свидетельствует о величине контраста показателя преломления слоев около 7.8%. Отсутствие заметных осцилляций коэффициента отражения в максимуме и ярко выраженные осцилляции вне резонанса, особенно в коротковолновой части спектра, указывают на высокое качество слоев и границ раздела в РБО.

4. Заключение

В работе проведено исследование оптических и структурных свойств распределенных брегговских отражателей на основе In_xAl_{1-x}N/GaN. Структурные параметры и состав твердых растворов были определены методами HRXRD и РЭМ.

Было показано, что для роста In_xAl_{1-x}N/GaN РБО толщины слоев InAlN в структуре не должны превышать ~ 60 нм, чтобы подавить эффект фазовой сепарации и предотвратить формирование дефектов в структуре. Продемонстрировано влияние параметров роста, толщины и числа слоев InAlN на оптические и структурные свойства распределенных брегговских отражателей. В результате проведенной оптимизации параметров роста были получены распределенные брегговские отражатели с коэффициентом отражения более 99% в широком интервале длин волн от 460 до 610 нм.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект № 08-02-01344-а) и Программой фундаментальных исследований президиума РАН № 27 „Основы фундаментальных исследований нанотехнологий и наноматериалов“. Рентгенодифракционный анализ был выполнен на оборудовании Центра коллективного пользования „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“.

Список литературы

[1] F. Calle, F.B. Naranjo, S. Fernandez, M.A. Sanchez-Garcia, E. Calleja, E. Munoz. Phys. Status Solidi A, **192**, 277 (2002).

- [2] Y. Yang, G.A. Turnbull, I.D.W. Samuel. Appl. Phys. Lett., **92**, 163 306 (2008).
- [3] R. de Mierry, J.M. Bethoux, H.P.D. Schenk, M. Vaillat, E. Feltrin, B. Beamont, M. Leroux, S. Dalmaso, P. Gibart. Phys. Status Solidi B, **242**, 2326 (2005).
- [4] O. Mitrofanov, S. Schmult, M.J. Manfra, T. Siegrist, N.G. Weimann, A.M. Sergent, R.J. Molnar. Appl. Phys. Lett., **88**, 171 101 (2006).
- [5] W.V. Lundin. Proc. Eur. Workshop on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (EW-MOVPE) XIII (Ulm, Germany, 2009).
- [6] Ammon Yariv, Pochi Yeh. J. Opt. Soc. Amer., **67**, 438 (1977).
- [7] J. Off, F. Scholz, E. Fehrenbacher, O. Gfroerer, A. Hangleiter, G. Brockt, H. Lakner. Phys. Status Solidi B, **216**, 529 (1999).
- [8] J.E. Northrup, J. Neugebauer. Phys. Rev. B, **60**, R8473 (1999).
- [9] Pochi Yeh, Ammon Yariv, Chi-Shain Hong. J. Opt. Soc. Amer., **67**, 423 (1977).
- [10] H.A. Macleod. *Thin-Film Optical Filters*. 3rd edn. (Bristol, UK, Institute of Physics Publishing, 2001).
- [11] Dong Xue Wang, Ian T. Ferguson, John A. Buck. Appl. Optics, **46**, 4763 (2007).
- [12] J.-F. Carlin, P. Royo, R.P. Stanley, R. Houdre, J. Spicher, U. Oesterle, M. Hegems, I. Vurgaftman, J.R. Meyer, L.R. Ram-Mohan. J. Appl. Phys., **89**, 5815 (2001).

Редактор Л.В. Беляков

Structural and optical properties of InAlN/GaN distributed Bragg reflectors

S.O. Usov^{*,+}, E.E. Zavarin^{*,+}, A.F. Tsatsul'nikov^{*,+}, V.V. Lundin^{*,+}, A.V. Sakharov^{*,+}, A.E. Nikolaev^{*,+}, M.A. Sinitsyn^{*,•}, N.V. Kryzhanovskaya^{*}, S.I. Troshkov^{*}, N.N. Ledentsov^{*}

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

+ Submicron Heterostructures for Microelectronics Research & Engineering Center, Russian Academy of Sciences, 194021 St. Petersburg, Russia

• St. Petersburg Physics and Technology Centre for Research and Education, Russian Academy of Sciences, 195220 St. Petersburg, Russia

Abstract The structural and optical properties of InAlN/GaN distributed Bragg reflectors were investigated. Bragg reflectors were grown by metal organic chemical vapor deposition on sapphire substrates. Influence of InAlN layers growth regimes and thickness on the structural properties of the reflectors was investigated. It was shown that optimization of growth regimes allows to realize InAlN/GaN distributed Bragg reflectors with high values of reflectivity (> 99%) and the reflectivity maximum in the spectral range 460–610 nm.