

06

Гетероструктуры InGaN/GaN, полученные методом молекулярно-лучевой эпитаксии с использованием аммиака в качестве источника азота

© С.И. Петров, А.П. Кайдаш, Д.М. Красовицкий, И.А. Соколов,
Ю.В. Погорельский, В.П. Чалый, А.П. Шкурко, М.В. Степанов,
М.В. Павленко, Д.А. Баранов

ЗАО „Научное и технологическое оборудование“, С.-Петербург
E-mail: support@semiteq.ru

Поступило в Редакцию 16 сентября 2003 г.

В окончательной редакции 11 декабря 2003 г.

Гетероструктуры InGaN/GaN выращены методом аммиачной молекулярно-лучевой эпитаксии. Исследовано влияние температуры и скорости роста на вхождение индия в слои и положение пика фотолюминесценции. На основе полученных результатов выбраны условия роста, которые можно считать базовыми для создания с помощью аммиачной молекулярно-лучевой эпитаксии слоев InGaN как материала активной области светодиодов сине-фиолетового диапазона.

Введение. Благодаря своим уникальным свойствам, полупроводниковые соединения нитридов металлов III группы за последние десять лет стали одними из наиболее перспективных материалов современной оптоэлектроники. К настоящему времени в мире освоено массовый выпуск различных типов светодиодов и созданы первые коммерческие образцы твердотельных лазеров на основе нитридов.

Как правило, тройные соединения InGaN используются в качестве материала активной области приборов, излучающих в видимой области спектра. Несмотря на достигнутый прогресс, получение слоев InGaN приборного качества сопряжено с определенными трудностями. К их числу можно отнести, например, большое рассогласование параметров ненапряженных кристаллических решеток, вследствие чего тонкие слои InGaN на относительно толстых GaN и AlGaN всегда оказываются напряженными. При превышении некоторой критической толщины,

отвечающей псевдоморфному росту, это способствует развитию фазовой сепарации индийсодержащих слоев, с образованием областей, обедненных и обогащенных по In, вплоть до образования чистого InN [1]. Далее, давление паров In выше, чем у Ga, в то время как термическая устойчивость InN существенно ниже, чем у GaN, поэтому обычные ростовые температуры для InGaN гораздо ниже по сравнению с GaN [2,3]. Таким образом, для получения слоев InGaN с большим содержанием In необходимо либо понижать температуру роста, что приводит к уменьшению подвижности атомов на ростовой поверхности и, как следствие, к ухудшению структурного качества слоев, либо повышать поток In, что может привести к образованию капель In на ростовой поверхности и появлению чистого In в матрице InGaN. Кроме указанных факторов, экспериментальные данные показывают сильное влияние на входение индия в твердый раствор соотношения падающих потоков индия и галлия, а также соотношения потока V группы к суммарному потоку элементов III группы [4,5].

В настоящее время наиболее распространенной технологией для получения приборных гетероструктур на основе GaN является газофазная эпитаксия из металлоорганических соединений (МОГФЭ) [6]. Вместе с тем прогресс, достигнутый за последние годы в молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) слоев нитридов металлов III группы, позволяет считать данный метод конкурентоспособным МОГФЭ в плане кристаллического совершенства слоев, возможности из легирования и приборных приложений. Слои GaN высокого качества могут быть получены с помощью МЛЭ с использованием как аммиака, так и азотной плазмы в качестве источника азота [7,8]. При этом наиболее привлекательной является аммиачная МЛЭ, позволяющая повысить температуру роста по сравнению с плазменной МЛЭ и повысить тем самым качество растущего слоя. Светодиоды с активной областью InGaN, излучающие в синей области спектра, получены с использованием аммиачной МЛЭ [9].

В данной работе исследовано влияние температуры и скорости роста на входение In в эпитаксиальные слои InGaN, полученные методом аммиачной МЛЭ, и их люминесцентные свойства. На основе полученных результатов определены предпочтительные условия роста активной области на основе InGaN, излучающей в синей области спектра при комнатной температуре.

Эксперимент. Слои InGaN и GaN были выращены на сапфировых подложках на разработанной и созданной в ЗАО „НТО“ установке АТС-EPN1, специализированной для молекулярно-лучевой эпитаксии нитридов третьей группы с использованием аммиака в качестве источника азота. Подложки были покрыты молибденом с нерабочей стороны для осуществления радиационного нагрева и закреплены на безиндиевые держатели. Ростовая температура была откалибрована по скорости термического испарения галлия и температуре начала разложения нитрида галлия под заданным потоком аммиака. Для определения скорости роста и толщины слоев использовался He–Ne лазерный интерферометр. Перед началом роста сапфировая подложка нитридовалась в потоке аммиака 20 sccm при температуре 950°C. Затем температура понижалась до 500°C для роста буферного слоя GaN (25 nm). После этого температура подложки повышалась со скоростью 30 grad/min до температуры начала разложения GaN (900°C) в потоке аммиака 80 sccm, после этого поток аммиака понижался до 20 sccm и открывался поток Ga. Слой GaN толщиной 0.5 μm осаждался со скоростью 1 $\mu\text{m}/\text{h}$. Затем температура подложки понижалась для роста InGaN. Слои InGaN осаждали на поверхность GaN при температурах подложки 580–680°C со скоростью роста 0.1 и 0.05 $\mu\text{m}/\text{h}$. Содержание In в слоях измеряли с помощью рентгеновской дифрактометрии, измерения фотолюминесценции проводились с использованием He–Cd лазера мощностью 5 mW при 77 и 300 K.

Результаты и их обсуждение. На рис. 1, а представлены спектры фотолюминесценции при температуре измерения 77 K слоев InGaN толщиной 50 nm, выращенных на GaN при температурах 580, 630 и 680°C со скоростью 0.1 $\mu\text{m}/\text{h}$ и при температуре 680°C со скоростью 0.05 $\mu\text{m}/\text{h}$. В таблице приведены данные о содержании In в слое InGaN по данным рентгеновской дифрактометрии и о положении пика краевой люминесценции этих образцов. В целом при увеличении температуры роста слоя InGaN пик люминесценции при температуре измерения 77 K сдвигается в коротковолновую сторону от 2.75 до 3.17 eV, а интенсивность люминесценции возрастает примерно на полтора порядка. При температуре роста 580°C пик краевой люминесценции InGaN расположен на 2.75 eV, при этом его интенсивность соизмерима с интенсивностями желтой „дефектной“ и синей „донорно-акцепторной“ полос, а также краевой линии нитрида галлия. Состав индия в слое по данным рентгеновской дифрактометрии составляет 15%. При

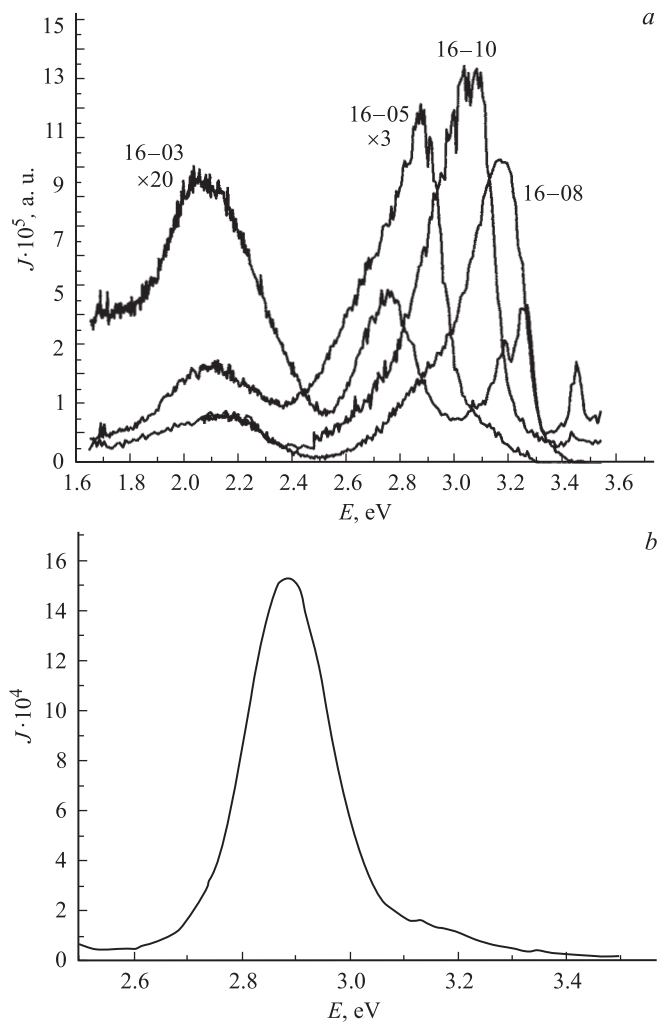


Рис. 1. *a* — спектр фотолюминесценции при 77 К слоев InGaN на GaN, выращенных при температуре 580°C (1603), 630°C (1605), 680°C со скоростью роста $0.1 \mu\text{m/h}$ (1608) и при температуре 680°C со скоростью роста $0.05 \mu\text{m/h}$ (1610). *b* — спектр люминесценции при комнатной температуре трехслойной гетероструктуры InGaN/GaN с температурой роста слоев InGaN 650°C.

Номер образца	Температура роста InGaN, °C	Скорость роста InGaN, $\mu\text{m/h}$	Положение пика люминесценции InGaN, eV	Состав In по данным рентгеновской дифрактометрии, %
1603	580	0.1	2.75	15
1605	630	0.1	2.88	11
1608	680	0.1	3.17	3
1610	680	0.05	3.06	4

увеличении температуры роста на 50°C пик люминесценции InGaN сдвигается до 2.88 eV, а его интенсивность возрастает на порядок, при этом состав индия уменьшается до 11%. Сдвиг в коротковолновую область связан с уменьшением состава In в слое InGaN при увеличении температуры роста слоя, а увеличение его интенсивности может быть связано с улучшением структурного качества слоя InGaN. Большие ширины на полувысоте фотолюминесценции могут быть связаны с неоднородностью состава индия в слое. При увеличении температуры роста до 680°C происходит увеличение интенсивности люминесценции еще в 2 раза и сдвиг положения пика люминесценции до 3.17 eV, состав индия при этом уменьшается до 3%. Снижение скорости роста путем уменьшения потока Ga в 2 раза при сохранении неизменным потока индия при температуре роста 680°C приводит к незначительному увеличению состава индия до 4% и сдвигу положения пика люминесценции с 3.17 до 3.06 eV.

На рис. 2 представлена зависимость ширины запрещенной зоны твердого раствора InGaN от содержания In по данным разных авторов. На одной из кривых зависимость ширины запрещенной зоны рассчитывалась, исходя из того, что ширина запрещенной зоны в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ меняется от 1.9 до 3.49 eV с параметром прогиба $b = 1$ [6], на второй зависимость $E_g(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N})$ рассчитана по формуле $E_g = 3.493 - 2.843 \cdot x - 2.5 \cdot x \cdot (1 - x)$ подразумевая, что InN является узкозонным полупроводником [10]. На эти зависимости наложены экспериментальные точки зависимости положения пика люминесценции от состава In в слое InGaN. Видно, что при увеличении содержания индия в слое увеличивается стоксов сдвиг относительно расчетной зависимости [6], что согласуется с литературными данными [11]. С дру-

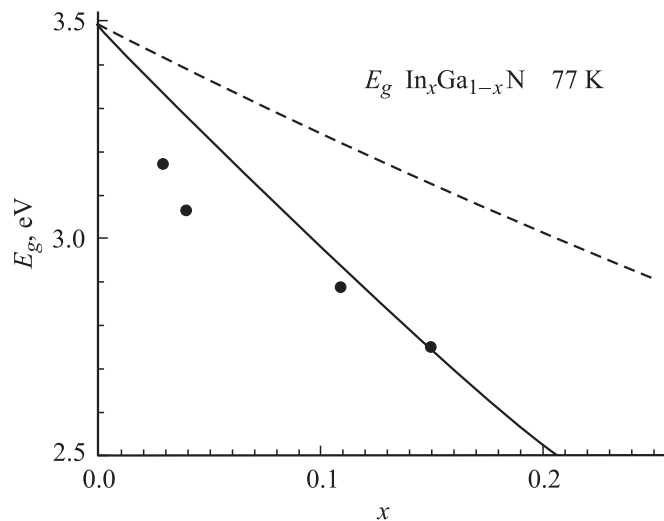


Рис. 2. Расчетная зависимость ширины запрещенной зоны InGaN от состава индия, пунктирная линия [6], сплошная линия [10], с нанесенными на нее экспериментальными точками.

гой стороны, для составов 15 и 11% экспериментальные точки более согласованы с расчетной зависимостью [10]. При уменьшении состава In в слое наблюдается отклонение экспериментальных точек от расчетной зависимости в сторону увеличения длины волны излучения. При этом следует отметить, что при уменьшении состава индия в слое значительно увеличивается погрешность при проведении рентгеноструктурных измерений.

На основании полученных результатов температура 650°C была выбрана оптимальной для получения структуры, имеющей пик люминесценции в синей области спектра при комнатной температуре без значительного уменьшения интенсивности из-за ухудшения качества структуры, связанного со снижением температуры роста. В спектре фотолюминесценции образца, состоящего из трех пар слоев InGaN/GaN (30 nm/30 nm), выращенных при 650°C на высокотемпературном GaN толщиной 0.5 μm при комнатной температуре, доминирует пик 2.88 eV (рис. 1, b). Таким образом, данные условия роста можно считать

базовыми для создания с помощью аммиачной МЛЭ слоев InGaN как материала активной области светодиодов, излучающих в сине-фиолетовом диапазоне спектра.

Заключение. Методом молекулярно-лучевой эпитаксии с использованием аммиака в качестве источника азота получены гетероструктуры GaN/InGaN. Установлено, что в диапазоне температур подложки 580–680°C концентрация индия в слоях InGaN изменяется от 15 до 3%, а положение пика краевой люминесценции — от 2.75 до 3.17 eV соответственно. Изменение скорости роста за счет изменения отношения Ga/In при данной температуре подложки не приводит к пропорциональному изменению состава слоев. Установлены базовые условия роста активной области на основе InGaN, имеющей спектр фотолюминесценции при комнатной температуре с доминирующим пиком в синей области спектра.

Список литературы

- [1] *Beharama M.* et al. // Materials Research Society Symposium Proceedings. 1999. V. 572. P. 357.
- [2] *Lackinson D.E.* et al. // J. Appl. Phys. 1995. V. 78. N 3. P. 1838–1842.
- [3] *Strite S.* et al. // J. Cryst. Growth. 1993. V. 127. N 1–4. P. 204–208.
- [4] *Grandjean N., Massies J.* // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 72. P. 1078–1080.
- [5] *Bottcher T.* et al. // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 73. P. 3232–3234.
- [6] *Nakamura S., Fasol G.* The Blue Laser Diode. Berlin: Springer, 1997.
- [7] *Popovici G., Morkoc H., Mohammad S.* // Group III Nitride Semiconductor Compounds / Ed by B. Gil. Oxford: Clarendon Press, 1998.
- [8] *Grandjean N.* et al. // J. Appl. Phys. 1998. V. 83. P. 1379–1383.
- [9] *Dalmaso S.* et al. // Materials Science and Engineering. 2001. B82. P. 256–258.
- [10] *Davydov V.Yu.* et al. // Phys. stat. sol. (b). 2002. V. 234. N 3. P. 787–795.
- [11] *Martin R.* et al. // Appl. Phys. Lett. 1999. V. 74. P. 263–265.