

О зависимости эффективности $A^{III}N$ светодиодов синего диапазона от структурного совершенства буферных эпитаксиальных слоев GaN

© В.В. Лундин[†], А.Е. Николаев^{*+}, А.В. Сахаров^{*+}, С.О. Усов⁺, Е.Е. Заварин^{*+}, П.Н. Брунков^{*},
М.А. Яговкина^{*}, Н.А. Черкашин^{*}, А.Ф. Цацульников^{*+}

* 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

* Center for Material Elaboration & Structural Studies (CEMES) of the National Center for Scientific Research (CNRS),
31055 Toulouse, France

(Получена 23 мая 2013 г. Принята к печати 4 июня 2013 г.)

Исследованы $A^{III}N$ светодиодные структуры синего диапазона с активными областями на основе InGaN-наноостровков. Структуры были выращены методом МОС-гидридной эпитаксии на слоях GaN, выращенных с использованием различных методов начального формирования эпитаксиального слоя. Показано, что благодаря высокой локализации носителей в узкозонных InGaN-наноостровках эффективность электролюминесценции не зависит от плотности дислокаций и кристаллического совершенства материала.

1. Введение

Прогресс в области $A^{III}N$ электроники и оптоэлектроники начался с разработки технологии роста совершенных эпитаксиальных слоев GaN на сапфировых подложках с использованием низкотемпературных зародышевых слоев AlN [1] и GaN [2]. И по сей день выращивание большинства продемонстрированных, равно как и промышленно выпускаемых приборных структур на основе соединений $A^{III}N$, начинается с формирования буферного слоя GaN толщиной в несколько микрон, а повышение структурного совершенства этих слоев является одной из первичных задач развития $A^{III}N$ технологии. Успехи, достигнутые на сегодня в этом направлении, весьма значительны [3–5]. В то же время, особенно при промышленном производстве, возникает ряд дополнительных требований как технического, так и экономического характера:

- сокращение длительности и снижение стоимости эпитаксиального процесса;
- использование подложек большого диаметра, что зачастую требует введения в структуру прибора специальных слоев для контроля упругих напряжений;
- использование специальных технологических приемов или специально подготовленных подложек для улучшения вывода света из светодиодных структур за счет рассеяния на оптических неоднородностях;
- использование новых типов подложек (например, кремниевых).

Выполнение этих требований зачастую, хотя бы на начальном этапе развития соответствующих технологий, входит в противоречие с задачей улучшения структурного совершенства буферных слоев GaN. Поэтому важным представляется решение встречных задач: оптимизация дизайна приборных структур с целью снижения влияния структурных дефектов на критические параметры

приборов. Одной из таких задач является разработка активной области InGaN/GaN для светодиодов видимого диапазона, эффективность излучения которой не зависит от плотности прорастающих дислокаций. В принципе совокупность физических свойств InGaN и склонность этого материала к спонтанному формированию флуктуаций состава само по себе существенно снижает влияние структурного совершенства на интенсивность люминесценции, что и позволяет создавать эффективные $A^{III}N$ светодиоды при плотности дислокаций в приборной гетероструктуре на много порядков выше, чем предельно допустимая для классических $A^{III}B^V$. Один из самых ярких примеров описан в работе [6]. В то же время при использовании активной области на основе InGaN квантовых ям (КЯ) этих спонтанных эффектов оказывается все же недостаточно для полного подавления влияния плотности дислокаций на эффективность люминесценции [7]. Существует, однако, возможность дальнейшей оптимизации в данном направлении.

Ранее нами был описан метод формирования InGaN/GaN активной области светодиодов, приводящий к трансформации InGaN КЯ в массив изолированных InGaN-островков, разделенных GaN [8,9], что обеспечивает эффективную латеральную локализацию носителей. Очевидно предположить, что в таких структурах плотность дислокаций будет меньше, чем в КЯ, влияя на эффективность люминесценции. В данной работе это предположение было проверено экспериментально.

2. Эксперимент

Эпитаксиальные структуры выращивались методом МОС-гидридной эпитаксии на установке AIX2000HT с планетарным реактором вместимостью 6 подложек диаметром 2 дюйма. Установка снабжена системой оптической *in situ* рефлектометрии. Аммиак, триметилгаллий,

[†] E-mail: e-mail: lundin.vpegroup@mail.ioffe.ru

триэтилгаллий, триметилиндий, триметилалюминий, моносилан и биспентациклодиенил магния использовались в качестве соединений-источников. В качестве несущих газов использовались: водород при росте n -GaN, азот при росте индийсодержащих слоев, азот-водородная смесь при росте p -AlGaN и p -GaN. Используемые газы очищались соответствующими очистителями Aeropex.

Рост светодиодных структур производился в одном процессе на пяти квазиподложках, представлявших собой слои GaN, предварительно выращенные различными методами на сапфировых подложках ориентации (0001) на той же эпитаксиальной установке. Подробности технологии выращивания и описание свойств этих слоев и светодиодных гетероструктур приведены в следующем разделе.

Выращенные структуры исследовались методами рентгеновской дифрактометрии, атомно-силовой микроскопии (АСМ), спектроскопии электролюминесценции (ЭЛ) и просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). Условия проведения ПЭМ исследований и режимы подготовки образцов исключали разложение InGaN под электронным лучом, описанное в [10]. Ватт-амперные характеристики светодиодных структур измерялись на непроцессированных структурах с индиевыми контактами при выводе света сквозь сапфировую подложку на калиброванный фотодиод. Длительная оптимизация этой процедуры позволяет получать достоверную информацию об относительных характеристиках светодиодных структур.

3. Результаты

3.1. Зависимость свойств эпитаксиальных слоев GaN от методов их выращивания

Как написано выше, в работе в качестве квазиподложек были использованы 5 различных типов эпитаксиальных слоев GaN на сапфировых подложках (далее — слои типов I–V). Эти слои выращивались по технологиям, разработанным и систематически используемым нами (или использовавшимся ранее) для роста различных типов приборных структур.

При выращивании слоев I типа после отжига сапфировой подложки в водородной атмосфере при высокой температуре и последующего осаждения низкотемпературного зародышевого слоя GaN производился его отжиг в аммиак-водородной атмосфере, приводящий к формированию на поверхности подложки массива изолированных нанокристаллитов. Последующий высокотемпературный эпитаксиальный рост GaN начинался на этих кристаллитах и имел первоначально выраженный трехмерный характер, сменявшийся на квазидвумерный после срастания отдельных кристаллитов и планаризации поверхности GaN. Данная методика является наиболее распространенной в технологии $A^{III}N$ светодиодов видимого диапазона.

Эпитаксиальные слои II типа выращивались по сходной методике, однако отжиг зародышевого слоя GaN производился в аммиак-азотной атмосфере [11]. В результате сплошность зародышевого слоя при отжиге не нарушалась, и последующий эпитаксиальный рост происходил сразу в квазидвумерном режиме. Такие слои (в отличие от слоев I типа) являются высокоомными и используются нами при выращивании транзисторных структур.

При выращивании слоев III типа на поверхности подложки сначала при высокой температуре со скоростью ~ 2 мкм/ч выращивался слой AlN толщиной 300 нм. Используемые режимы роста обеспечивали его высокую гладкость, близкую к атомарной [12]. Последующий эпитаксиальный рост GaN при высокой температуре происходил, аналогично слоям I типа, в ярко выраженном островковом режиме с последующей планаризацией. Данная технология используется нами для выращивания светодиодных структур как альтернативная технология буферных слоев GaN I типа. Она позволяет избежать термоциклирования (отжиг подложки при высокой температуре — осаждение GaN при низкой температуре — отжиг и эпитаксиальный рост при высокой температуре), что увеличивает ресурс внутренних узлов реактора и обеспечивает сокращение длительности эпитаксиального процесса на 30–40 мин.

Эпитаксиальные слои IV типа по методу выращивания близки к слоям III типа, однако AlN выращивался в других режимах, приводящих к его заметной непланарности (поверхность полностью сформирована из остроконечных пирамидок высотой в несколько десятков нанометров) [12]. В результате последующий эпитаксиальный рост GaN начинался, аналогично росту слоев II типа, сразу в квазидвумерном режиме, и слои являются высокоомными [11]. Данная технология пригодна для использования в технологии $A^{III}N$ транзисторов.

Технология слоев V типа была специально разработана для выращивания тонких слоев GaN (~ 100 нм) на поверхности толстых (~ 1 мкм) слоев AlN. Очевидно, что для формирования таких структур необходимо использовать гладкие слои AlN. Однако эпитаксиальный рост GaN на таких слоях начинается в островковом режиме, что не позволяет сформировать тонкий сплошной слой GaN. Для подавления формирования островков на поверхности AlN выращивался переходной слой $Al_{0.3}Ga_{0.7}N$ толщиной 30 нм, который сам имеет сплошной характер роста и обеспечивает сплошной характер роста и у последующего слоя GaN. В отличие от вышеописанной методики в данной работе при выращивании слоев V типа толщина слоя GaN доводилась до 2 мкм.

Результаты измерения плотности дислокаций по данным ПЭМ в светодиодных структурах, выращенных на вышеописанных слоях GaN, приведены в таблице. Полная плотность дислокаций в структурах различается почти на порядок, плотность смешанных — в 15 раз. При этом существенно различается и доля смешанных дисло-

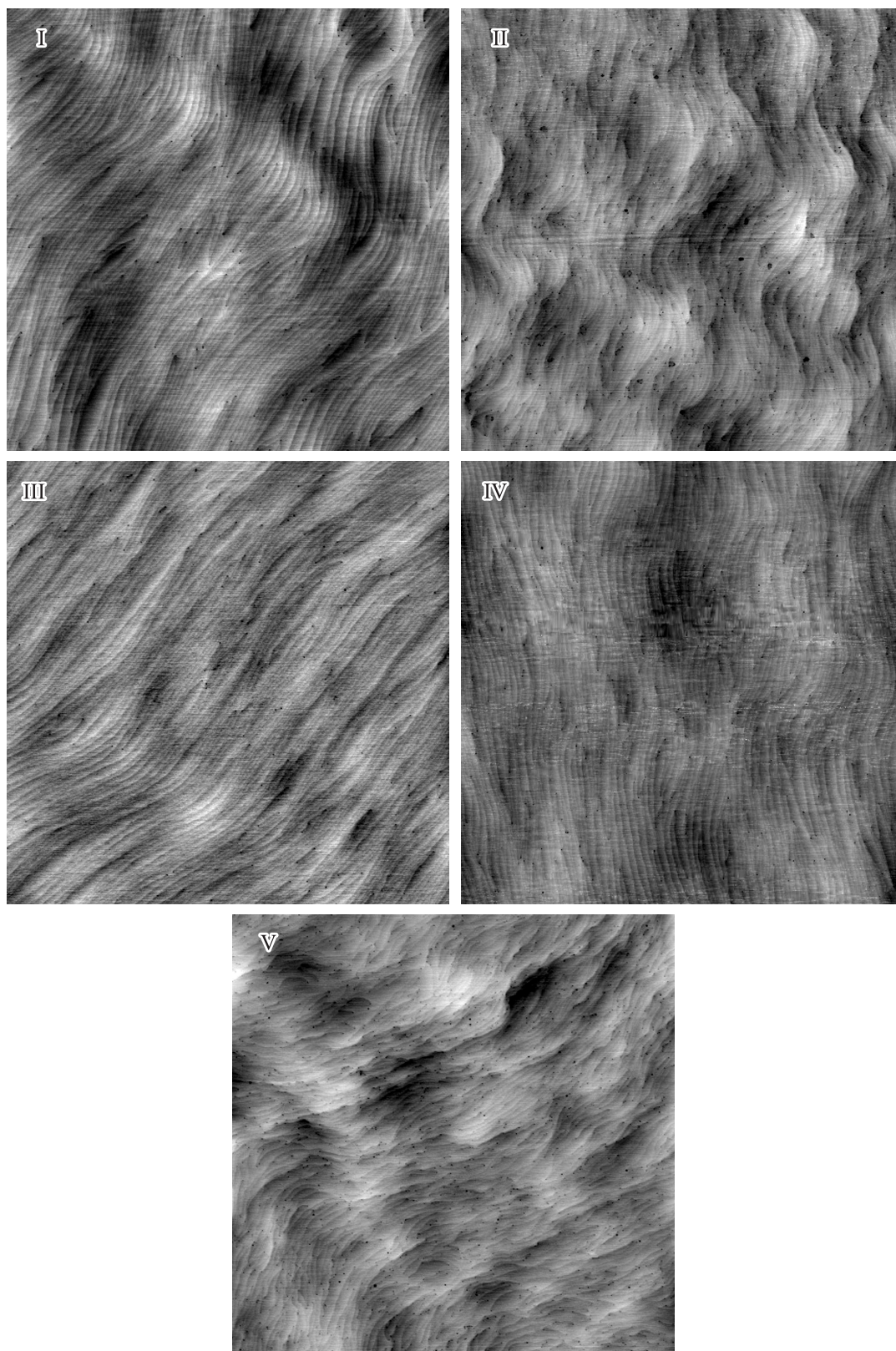


Рис. 1. АСМ изображения морфологии описанных в тексте пяти типов эпитаксиальных слоев GaN. Область сканирования 10×10 мкм.

Структурные свойства использованных в работе эпитаксиальных слоев GaN

	Плотность дислокаций по данным ПЭМ (винтовые на наблюдаются), см ⁻²		Полуширина кривой качания рентгеновской дифракции, угл. мин	
	полная	смешанная	$\omega(00.2)$	$\omega(10.2)$
I	$(6-7) \cdot 10^8$	$3 \cdot 10^8$	4.26	4.26
II	$3 \cdot 10^9$	$1.5 \cdot 10^9$	5.4	13.38
III	$2 \cdot 10^9$	$1 \cdot 10^8$	1.8	4.44
IV	$5 \cdot 10^9$	$1 \cdot 10^9$	5.04	5.34
V	$3 \cdot 10^9$	$3 \cdot 10^8$	7.68	11.52

каций, составляющая от 5 до 50% от полной. Аналогичная картина наблюдается и в отношении рентгеноструктурных характеристик слоев GaN, также приведенных в таблице. Следует отметить разницу в полуширинах кривых качания для симметричного и асимметричного отражений. Все это показывает, что кристаллическое совершенство и характер блочной организации GaN существенно зависят от начальной стадии роста.

Согласно результатам АСМ исследований, все вышеописанные слои GaN атомно-гладкие, однако организация моноатомных ступеней существенно различается. У слоев I, III и IV типов ступени „квазипараллельные“, значительно более регулярные, чем у слоев II и особенно V типа, что также указывает на существенную разницу в их блочной структуре.

3.2. Технология формирования и свойства светодиодных структур, выращенных на слоях GaN различного типа

После выращивания вышеописанных эпитаксиальных структур GaN/Al₂O₃ они были загружены в реактор и на них в едином процессе была выращена светодиодная структура. При этом последовательно выращивались: слой *n*-GaN (2 мкм), короткопериодная сверхрешетка (КПСР) InGaN/GaN суммарной толщиной 24 нм, слой GaN (20 нм), две квантовые ямы InGaN, разделенные барьерами GaN (8 нм), верхний барьерный слой GaN (3 нм), инжекционный слой *p*-AlGaIn (18 нм) и контактный слой *p*-GaIn (180 нм).

КПСР InGaN/GaN формировались путем циклического осаждения 2 нм In_{0.1}Ga_{0.9}N с последующим прерыванием роста (выключение потоков III группы) в каждом цикле на 20 с в атмосфере NH₃ : N₂ : H₂ ≈ 5 : 2 : 1. Во время этих прерываний происходила конвертация поверхностного слоя InGaIn с образованием слоя GaN толщиной ~ 1 нм (рис. 1). Во время формирования КПСР температура в реакторе не изменялась.

После выращивания InGaIn квантовых ям последовательно производились: прерывание роста (выключение потоков III группы без изменения температуры) в атмосфере NH₃ : N₂ : H₂ = 5 : 2 : 1, быстрое выращивание покровного слоя GaN толщиной 2 нм, подъем температуры с прерыванием роста без добавления водорода, выращивание барьерного слоя GaN, снижение темпе-

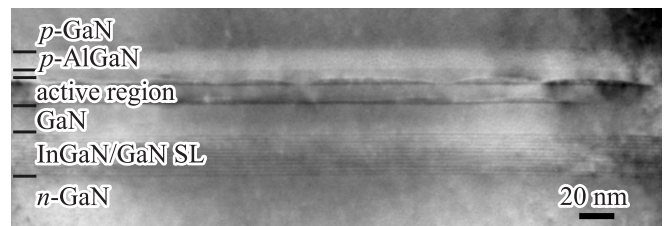


Рис. 2. ПЭМ изображения активной области и прилегающих слоев выращенных светодиодных структур.

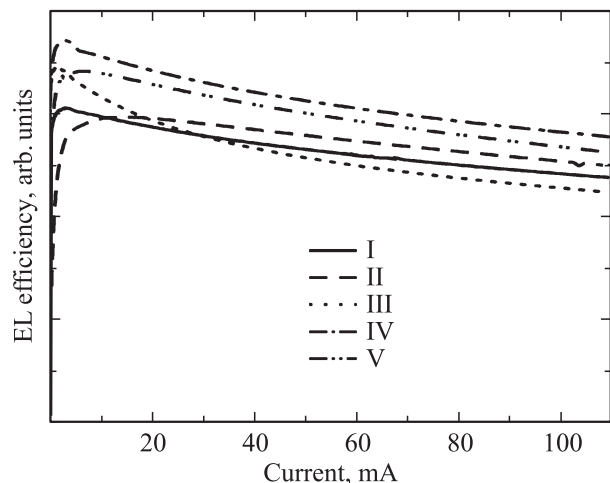


Рис. 3. Зависимость эффективности ЭЛ от тока для светодиодных структур, выращенных на пяти типах эпитаксиальных слоев GaN.

ратуры с прерыванием роста без добавления водорода для роста последующей КЯ. Вышеописанная технология формирования активной области близка к описанной в работах [8,9].

Как показали ПЭМ исследования, выращенные структуры имели идентичные активные области с двумя слоями четко различимых островков InGaIn (рис. 2). Трансформация сплошных КЯ InGaIn в слои изолированных островков настолько ярко выражена, что для ее выявления не требуется использования численных методов анализа изображений высокого разрешения [13], использовавшихся нами ранее для изучения InGaIn/GaN

активных областей [14]. Все выращенные структуры имели пик электролюминесценции, лежащий в диапазоне 458 ± 4 нм. Исследования зависимости внешней квантовой эффективности от тока (рис. 3) выявили некоторые различия между образцами, выходящие за пределы типичной разницы между структурами, выращенными в одном процессе. Однако было очевидно полное отсутствие корреляции между эффективностью электролюминесценции и плотностью проникающих дислокаций, что подтверждает наше исходное предположение. Природа наблюдаемых различий в эффективности светодиодных структур требует дальнейших исследований.

Для формирования у читателя более полной картины следует отметить ряд дополнительных обстоятельств.

Во-первых, вышеописанные светодиодные структуры имеют довольно высокую эффективность, на уровне наших стандартных результатов. Изготовленные из аналогичных структур светодиоды с простой геометрией кристалла с отражающим Ni/Ag p -контактом, близкой к описанной в [15], имеют внешнюю квантовую эффективность $\sim 25\%$, что является достаточно высоким показателем для приборов такого типа, без применения дополнительных конструктивных решений для улучшения вывода света (отделение подложки, профилирование подложки или верхнего слоя эпитаксиальной структуры и т.д.). Таким образом, полученные в работе результаты нельзя объяснить низким качеством структур.

Во-вторых, ранее, когда технология получения InGaN островков еще не была нами освоена и активные области в наших структурах формировались из InGaN КЯ, мы наблюдали зависимость эффективности светодиодов от плотности дислокаций.

В третьих, технологические режимы выращивания всех типов использованных в работе слоев GaN были ранее оптимизированы для соответствующих (вышеописанных) применений. Вполне возможно, что в результате они имеют какие-либо иные сходные свойства, более важные для приборных характеристик, чем плотность дислокаций или ширина кривых качания рентгеновской дифракции. Тут может наблюдаться аналогия с подходами, развиваемыми для изучения свойств $A^{III}N$ структур в работах [16,17].

И наконец, авторы не утверждают, что даже при использовании активной области на основе InGaN островков плотность дислокаций не оказывает никакого влияния на любые значимые свойства светодиодов. Вполне возможно ее влияние на деградационные характеристики, на чувствительность к электростатическому заряду и т.д. Для выяснения этих эффектов необходимы дополнительные исследования.

4. Заключение

Таким образом, в работе показано, что при использовании активной области на основе InGaN-островков возможно получение синих светодиодов, эффективность

которых не зависит от кристаллического совершенства буферных эпитаксиальных слоев GaN.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках государственной поддержки развития кооперации российских высших учебных заведений, государственных научных учреждений и организаций, реализующих комплексные проекты по созданию высокотехнологичного производства, осуществляемой в соответствии с постановлением правительства Российской Федерации от 9 апреля 2010 г. № 218 (контракт № 02.G25.31.0014) и с использованием оборудования регионального ЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“.

Список литературы

- [1] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, Y. Toyoda. Appl. Phys. Lett., **48**, 353 (1986).
- [2] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh. J. Appl. Phys., **71**, 5543 (1992).
- [3] H. Amano, M. Iwaya, T. Kashima, M. Katsuragawa, I. Akasaki, J. Han, S. Hearne, J.A. Floro, E. Chanson, J. Figel. Jpn. J. Appl. Phys., **37**, L1540 (1998).
- [4] K. Pakua, R. Bo'zek, J.M. Baranowski, J. Jasinski, Z. Liliental-Weber. J. Crystal Growth, **267**, 1 (2004).
- [5] Q. Li, J.J. Figiel, G.T. Wang. Appl. Phys. Lett., **94**, 231 105 (2009).
- [6] S.D. Lester, F.A. Ponce, M.G. Craford, D.A. Steigerwald. Appl. Phys. Lett., **66** (10), 1249 (1995).
- [7] M.F. Schubert, S. Chhajed, J.K. Kim, E.F. Schubert, D.D. Koleske, M.H. Crawford, S.R. Lee, A.J. Fischer, G. Thaler, M.A. Banas. Appl. Phys. Lett., **91**, 231 114 (2007).
- [8] W.V. Lundin, A.V. Sakharov, A.F. Tsatsulnikov, V.M. Ustinov. Semicond. Sci. Technol., **26** (1), 014 039 (2011).
- [9] А.Ф. Цацульников, В.В. Лундин, А.В. Сахаров, Е.Е. Заварин, С.О. Усов, А.Е. Николаев, Н.А. Черкашин, Б.Я. Бер, Д.Ю. Казанцев, М.Н. Мизеров, Н.С. Park, М. Hytch, F. Hue. ФТП, **44** (1), 96 (2010).
- [10] T.M. Smeeton, M.J. Kappers, J.S. Barnard, M.E. Vickers, C.J. Humphreys. Appl. Phys. Lett., **83**, 5419 (2003).
- [11] Е.Е. Заварин, В.В. Лундин, М.А. Силицын, Н.А. Черкашин, А.Ф. Цацульников. Тез. докл. 6-й Всеросс. конф. „Нитриды галлия, индия и алюминия — структуры и приборы“ (СПб., Россия, 2008) с. 65.
- [12] W.V. Lundin, A.E. Nikolaev, M. Yagovkina, P. Brunkov, M. Rozhavskaia, B.Ya. Ber, D.Yu. Kazantsev, A.F. Tsatsulnikov, A.V. Lobanova, R.A. Talalaev. J. Cryst. Growth, **352**, 209 (2012).
- [13] M.J. Hytch, E. Snoeck, R. Kilaas. Ultramicroscopy, **74**, 131 (1998).
- [14] В.В. Лундин, Е.Е. Заварин, М.А. Силицын, А.В. Сахаров, С.О. Усов, А.Е. Николаев, Д.В. Давыдов, Н.А. Черкашин, А.Ф. Цацульников. ФТП, **44**, 126 (2010).
- [15] С.А. Гуревич, Д.А. Закгейм, И.П. Смирнова, Е.М. Аракчеева, Е.М. Танклевская, А.Л. Закгейм, Е.Д. Васильева, Г.В. Иткинсон. Тез. докл. 2-й Всеросс. конф. „Нитриды галлия, индия и алюминия — структуры и приборы“ (СПб., Россия, 2003) с. 116.

- [16] V.V. Emtsev, A.G. Kolmakov, A.D. Kryzhanovsky, W.V. Lundin, D.S. Poloskin, V.V. Ratnikov, A.N. Titkov, A.S. Usikov, E.E. Zavarin. *Nanotechnology*, **12**, 471 (2001).
- [17] Б.Я. Бер, Е.В. Богданова, А.А. Грешнов, А.Л. Заггейм, Д.Ю. Казанцев, А.П. Карташова, А.С. Павлюченко, А.Е. Черняков, Е.И. Шабунина, Н.М. Шмидт, Е.Б. Якимов. *ФТП*, **45**, 425 (2011).

Редактор Т.А. Полянская

On the dependence of blue A^{III}N LEDs efficiency on the structural quality of GaN buffer layers

V.V. Lundin+, A.E. Nikolaev*+, A.V. Sakharov*+, S.O. Usov+, E.E. Zavarin*+, P.N. Brunkov*, M.A. Yagovkina*, N.A. Cherkashin*, A.F. Tsatsulnikov*+*

* Ioffe Physicotechnical Institute

Russian Academy of Science,

194021 St. Petersburg, Russia

+ Scientific and Technological Center

for Microelectronics and Submicron Heterostructures

Russian Academy of Science,

194021 St. Petersburg, Russia

• Center for Material Elaboration & Structural Studies

(CEMES) National Center

for Scientific Research (CNRS),

31055 Toulouse, France

Abstract A^{III}N heterostructures for blue light-emitting diodes with InGaN nanoislands — based active regions were studied. Structures were grown by metalorganic vapour phase epitaxy on GaN epilayers grown using various methods of epigrowth initiation. It was shown that due to high localization of carriers in the narrow bandgap InGaN nanoislands electroluminescence efficiency is independent on material crystal perfection.