

Исследование статистики носителей в светодиодных структурах InGaN/GaN

© Д.С. Сизов[¶], В.С. Сизов, Е.Е. Заварин, В.В. Лундин, А.В. Фомин, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов

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

(Получена 5 июля 2004 г. Принята к печати 12 июля 2004 г.)

Исследована статистика носителей в светодиодных структурах с многослойными сверхтонкими внедрениями InGaN в матрице GaN. Оптические данные свидетельствуют о формировании в исследованных структурах массива квантовых точек, имеющих разброс по размерам, что приводит к неоднородному уширению энергетического спектра носителей, локализованных в квантовых точках. Показано, что, несмотря на слабый транспорт носителей между квантовыми точками, при температурах порядка комнатной и выше носители распределяются на уровнях массива квантовых точек квазистатистически. Это позволяет описывать процессы инжекции и рекомбинации носителей в исследованных приборных структурах с позиции квазиуровней Ферми для электронов и дырок.

1. Введение

На сегодняшний день структуры на основе InGaN/GaN широко используются в промышленности для создания светоизлучающих приборов (светодиодов и лазеров) видимого диапазона. Для выращивания приборных структур на базе нитрида галлия наиболее часто применяются сапфировые подложки по причине относительной дешевизны их производства. Сильное рассогласование параметров кристаллической решетки сапфировой подложки и растущего слоя приводит к возникновению большого числа прорастающих дефектов (дислокаций, границ доменов), которые негативно сказываются на оптических свойствах структуры, так как являются каналами безызлучательной рекомбинации. Однако влияние дефектов на эффективность излучения можно уменьшить за счет ограничения транспорта носителей [1,2]. Было показано, что при осаждении тонких слоев InGaN типичен фазовый распад твердого раствора, а также возникновение флуктуаций толщины слоя, приводящие к формированию квантовых точек (КТ) в структурах. Благодаря такой особенности широкозонных полупроводниковых соединений, как большая величина энергии разрывов зон, а также наличие сильных встроенных полей на гетерограницах глубина локализации электронно-дырочной пары (т.е. сумма энергий локализации электронов и дырок) может превосходить энергию в 1 эВ. Таким образом, благодаря сильной трехмерной локализации носителей на уровнях размерного квантования в КТ InGaN/GaN подавляется безызлучательная рекомбинация, что дает возможность получать эффективные светоизлучающие приборы [3] даже при плотности дислокаций $\sim 10^9 \text{ см}^{-2}$. Недостаточно хорошо изученным остается вопрос о высоте барьеров, ограничивающих движение носителей в латеральном направлении (т.е. в плоскости слоя InGaN), создаваемых областями InGaN с меньшим содержанием In и большей запрещенной зоной по

сравнению с КТ. Однако есть данные [1], что высота этих барьеров значительна.

Поскольку глубина локализации может в несколько раз превосходить характерную величину $k_b T$ (k_b — постоянная Больцмана, T — температура) для комнатной температуры, остается открытым вопрос о статистике распределения носителей на локализованных уровнях КТ. Как показано в работе [4], для структур, излучающих в ультрафиолетовом диапазоне, при увеличении температуры от 80 до 300 К наблюдается уменьшение относительной интенсивности коротковолнового края линии фотолюминесценции (ФЛ) и значительное уменьшение интегральной интенсивности излучения, что указывает на увеличение термического выброса носителей из КТ с последующим их захватом на центры безызлучательной рекомбинации. В работе [5] исследовалось влияние внешнего электрического смещения на ФЛ светодиодных структур, излучающих в синем диапазоне, т.е. характеризующихся более сильной локализацией носителей по сравнению с предыдущим случаем. Было показано, что при низких температурах смещение слабо влияет на интенсивность ФЛ. При повышении температуры до 100 К влияние внешнего смещения становится во много раз сильнее. Эти данные свидетельствуют о быстром захвате носителей на КТ InGaN при низких температурах, а также о наличии при более высоких температурах термически активированных, делокализованных носителей в матрице, которые разделяются полем $p-n$ -перехода. Приложение обратного смещения увеличивает разделяющее поле, что обедняет активную область и тем самым уменьшает эффективность ФЛ. В работе [6] была разработана теория поведения носителей на уровнях КТ и матрицы с учетом неоднородного распределения КТ по размерам (значит, положений уровней размерного квантования), а также температурного выброса носителей с этих уровней в матрицу. Показано, что в случае, если температура превышает некую характерную для данной системы температуру, распределение носителей на уровнях КТ описывается законом Ферми, при этом

[¶] E-mail: Dsizov@pop.ioffe.rssi.ru

рассматриваются квазиуровни Ферми для коллектива электронов и для коллектива дырок. Такая модель ранее была применена для описания поведения носителей в КТ в системе $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$, сформированных по механизму Странского–Крастанова [7]. В работе [7], в частности, показано, что в рассматриваемой системе повышение температуры приводит к увеличению концентрации делокализованных носителей и их безызлучательной рекомбинации на дефектах в матрице. Таким образом, повышение температуры делает КТ более чувствительными к наличию безызлучательных каналов в матрице.

В настоящей работе исследована статистика носителей в структурах с КТ InGaN/GaN и показано, что при температурах порядка комнатной и выше термическая активация происходит быстрее рекомбинации носителей, что соответствует случаю квазиравновесного статистического распределения носителей между КТ и остаточной КЯ InGaN . Этот факт позволяет в некотором приближении описывать систему с позиции рассмотрения квазиуровней Ферми. В то же время в случае КТ с большой глубиной локализации возможно заметное отклонение от равновесия. Данные, касающиеся этой проблемы, будут представлены в последующих работах. Нами также изучено влияние центров безызлучательной рекомбинации на эффективность ФЛ при различных температурах. Кроме того, подробно исследовано влияние внешнего смещения на статистику носителей вблизи активной области.

2. Эксперимент

Структуры были выращены методом МOCVD (газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений) на установке AIX 2000-NT. В исследованных структурах активная область выращивалась на буферном слое GaN и состояла из нескольких слоев InGaN толщиной 3 нм, разделенных барьерными слоями GaN , легированными кремнием. Структуры исследовались методами ФЛ, электролюминесценции (ЭЛ) и методом спектроскопии фототока (ФТ). Ряд структур был выращен специально для исследования методом ФЛ. В таких структурах активная область зарастивалась слоем GaN толщиной 50 нм и тонким слоем AlGaIn для предотвращения утечки носителей на поверхность. В светодиодных структурах активная область была заключена в p - n -переход, при этом n -слой легировался кремнием, а p -слой был легирован магнием. Светодиодные структуры также исследовались методом ФЛ, причем ФЛ светодиодных структур возбуждалась и детектировалась с поверхности структуры, а для приложения внешнего смещения использовался полупрозрачный p -контакт NiAu . Для возбуждения фотолуминесценции применялся HeCd -лазер, работающий в постоянном режиме, а также импульсный N_2 -лазер с длительностью импульса 10 нс. Для возбуждения фототока применялась газоразрядная ксеноновая лампа.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведены спектры ФТ и спектры ФЛ структур с различной концентрацией In в слоях InGaN . Известно, что увеличение концентрации In приводит к увеличению длины волны излучения за счет большей глубины локализации носителей относительно матрицы GaN , что в свою очередь может быть связано как с увеличением глубины квантовой ямы (КЯ) InGaN , так и с увеличением глубины локализации носителей в КТ относительно КЯ. Глубину локализации носителей в КТ относительно КЯ можно оценить, исследуя величину стоксова сдвига [8] — разности между энергиями фотонов, соответствующих максимуму излучения и началу пологого участка на кривой фототока (пунктирные кривые на рис. 1). Данное рассмотрение основано на том, что при достаточно большой скорости термической активации и экстракции электронов и дырок, фотоиндуцированных в активной области (когда можно пренебречь спонтанным переизлучением), форма спектра фототока определяется произведением плотности состояний в КТ на интеграл перекрытия волновых функций электронов и дырок в КТ. В то же время в случае эффективного транс-

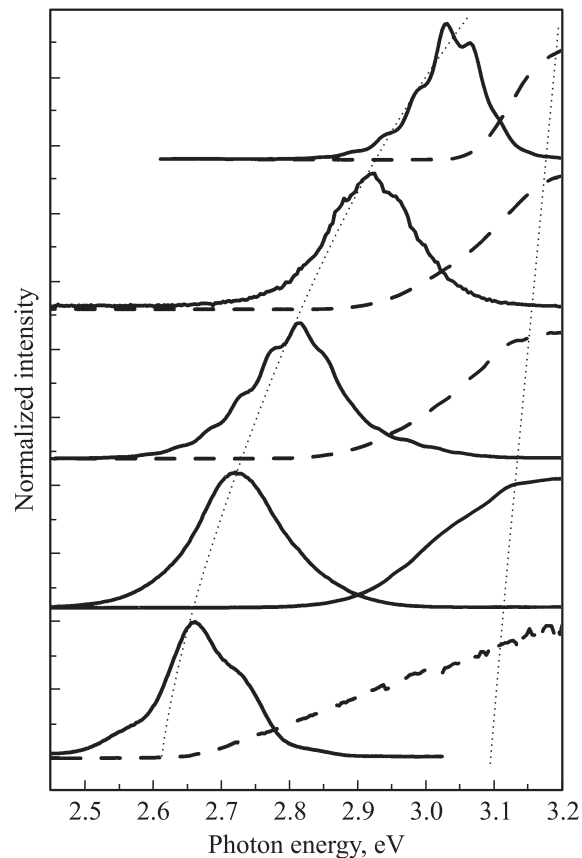


Рис. 1. Спектры фотолуминесценции (сплошные кривые) и фототока (штриховые) для структур с различной средней концентрацией In в активной области (концентрация In увеличивается сверху вниз) и с различной энергией локализации. $T = 300 \text{ K}$.

порта носителей, вызванного термической активацией, заселенными оказываются состояния КТ с наибольшей энергией локализации (с учетом термостатистического распределения). С другой стороны, когда энергия локализации превышает некоторое критическое значение, термический выброс из столь глубоко локализованных состояний будет маловероятен [6], что приведет к иным закономерностям положения максимума излучения и форме спектра ФТ. Таким образом, результат оценки глубины локализации носителей в КТ посредством рассмотрения стока сдвига зависит от статистики носителей.

В исследованной серии структур наибольшая локализация носителей, как предполагалось, реализуется в структуре с длиной волны излучения 460 нм: данная структура характеризуется максимальной длиной волны излучения и максимальным значением стока сдвига. Нами исследованы оптические свойства такой структуры с целью выяснения статистики захвата и выброса носителей. Для исследования методом ФЛ была выращена структура с идентичной активной областью, но без $p-n$ -перехода.

Обе структуры имеют одинаковую длину волны и одинаковую ширину линии излучения ФЛ. На рис. 2 приведены спектры фототока и спектры ФЛ для светодиодной и оптической структур соответственно. В спектрах ФЛ хорошо видна синусоидальная модуляция, связанная с интерференцией света в резонаторе Фабри-Перо, образованном гетерограницей эпитаксиального слоя и сапфировой подложкой, а также поверхностью эпитаксиального слоя. Модуляция менее заметна в спектрах фототока из-за меньшей разрешающей способности соответствующего спектрометра. С увеличением температуры фототок увеличивается, а интенсивность ФЛ уменьшается. Данный результат объясняется исходя из представления о том, что с увеличением температуры возрастает концентрация делокализованных носителей. Это, с одной стороны, увеличивает эффект безызлучательной рекомбинации, так как способствует захвату носителей безызлучательными ловушками, а с другой стороны, делокализация носителей способствует разделению их по полю $p-n$ -перехода. Важно, однако, отметить, что при увеличении температуры форма края фототока не меняется в пределах погрешности измерений (в то время как край смещается в длинноволновую сторону, что связано с уменьшением энергии запрещенной зоны). Этот результат свидетельствует о том, что в локализованных состояниях происходит эффективная термическая активация, т.е. электронно-дырочная пара, рожденная на уровнях с любой глубиной локализации (в пределах изучаемого диапазона), переходит в матрицу и разделяется $p-n$ -переходом быстрее, чем успевает рекомбинировать. Такая ситуация реализуется в случае, если время излучательной рекомбинации оказывается много больше времени термической активации или фоновой релаксации, иными словами, если носители

распределены на уровнях размерного квантования квазистатистически. Другим объяснением этого явления может быть возможная туннельная экстракция носителей, которая не должна зависеть от температуры. Данные, помогающие объяснить наблюдаемый эффект, будут рассмотрены далее.

Как уже отмечалось, термическое заселение возбужденных уровней КТ InGaN приводит к увеличению транспорта носителей (в том числе к центрам безызлучательной рекомбинации), а также к уменьшению крутизны спада коротковолнового края в спектре ФЛ. При малой плотности накачки ($\sim 1 \text{ Вт/см}^2$) уровни слабо заселены, и в случае статистического распределения система близка к равновесию. В таком случае, если полагать время излучательной рекомбинации слабо зависящим от энергии перехода [9], коротковолновый край линии ФЛ должен описываться законом [4]. $I = Ap(E) \exp(-E/k_bT)$, где I — интенсивность излучения, A — константа, а функция $p(E)$ представляет собой отношение плотности состояний с соответствующими

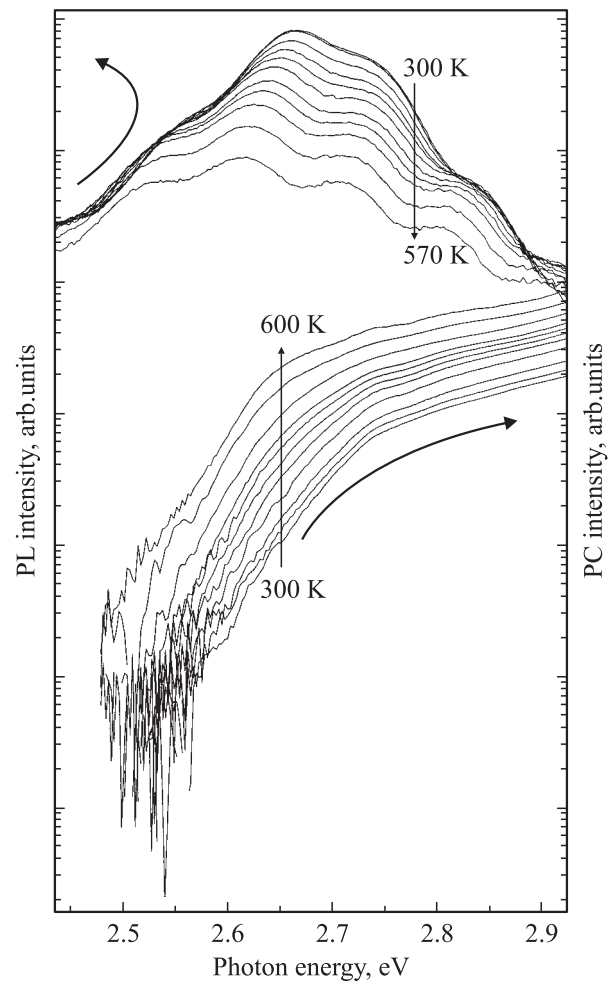


Рис. 2. Спектры фототока (PC) и фотолюминесценции (PL) для структур с КТ при комнатной температуре и выше. Стрелками подчеркивается увеличение фототока и уменьшение интенсивности фотолюминесценции с температурой.

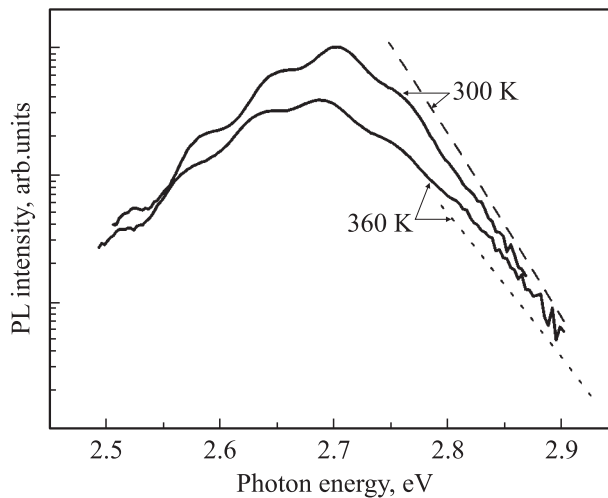


Рис. 3. Сопоставление экспериментальных спектров фотолюминесценции (PL) (сплошные кривые) и аппроксимационного расчета (штриховые) в области коротковолнового края.

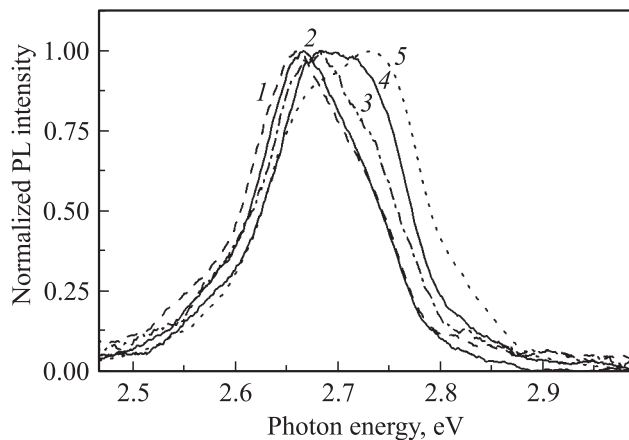


Рис. 4. Изменение формы спектра фотолюминесценции (PL) при плотностях накачки, достаточных для заполнения уровней КТ. Плотность мощности накачки, Вт/см²: 1 — 75, 2 — 144, 3 — 275, 4 — 422, 5 — 1000. $T = 300$ К.

ющей энергией E электронно-дырочного перехода и времени излучательной рекомбинации. Величина $p(E)$ в относительных единицах может быть определена из спектров фототока [4,7]. При таком определении функции плотности состояний форма коротковолнового края ФЛ действительно близка к расчетной (рис. 3). Это подтверждает наличие статистического распределения носителей в данных структурах.

Для определения положения квазиуровня Ферми в активной области были проведены измерения спектров ФЛ в зависимости от плотности накачки. Как видно из рис. 4, при сравнительно малых плотностях накачки (≤ 144 Вт/см²) положение максимума при изменении плотности накачки почти не меняется. Мы полагаем, что этот случай соответствует положению квазиуровня Ферми ниже (для валентной зоны выше) уровней локализации носителей в InGaN. При увеличении плотности

накачки выше 144 Вт/см² наблюдается смещение линии в коротковолновую сторону и увеличение ее ширины. Такое изменение формы спектра обусловлено заполнением возбужденных уровней в КТ, а также заполнением КТ с меньшей глубиной локализации. В случае фермиевского распределения носителей по состояниям массива КТ насыщение глубоко локализованных состояний приводит к заселению локализованных состояний с меньшей глубиной локализации, что соответствует повышению положения квазиуровня Ферми для электронов и понижению квазиуровня Ферми для дырок. Поскольку величина фототока, пропорциональная $p(E)$, увеличивается с увеличением энергии перехода, такое смещение квазиуровней Ферми приводит к увеличению числа состояний, вовлеченных в излучательный процесс. Время излучательной рекомбинации для подобных структур обычно составляет величину $\sim 10^{-9}$ с. Зная плотность накачки, при которой начинается изменение формы спектра ФЛ, можно оценить плотность состояний в КТ: плотность состояний оказывается равной по порядку величины 10^{12} см⁻², что согласуется с данными просвечивающей электронной микроскопии по плотности КТ в аналогичных структурах [1].

Было рассмотрено влияние обратного смещения на статистику носителей в активной области светодиодной структуры. С этой целью измерялась ФЛ светодиодной структуры с внешним смещением. При высоких температурах термически активированные носители разделяются полем p - n -перехода. Внешнее смещение искажает зонную диаграмму структуры и влияет на разделение носителей. На рис. 5 показана зависимость интегральной интенсивности ФЛ от приложенного внешнего смещения при разных температурах. Для комнатной температуры представлена более подробная зависимость. На ней можно выделить три участка. Первый участок соответствует экспоненциальному спаду интенсивности при обратном смещении, который мы связываем с усилением разделяющего поля p - n -перехода. Второй участок

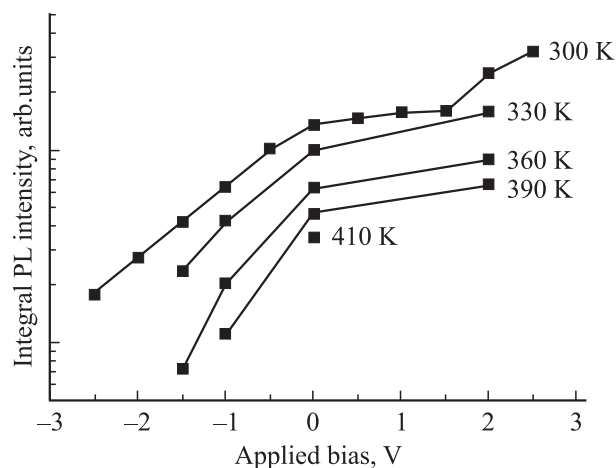


Рис. 5. Влияние смещения на интенсивность фотолюминесценции (PL) при разных температурах.

соответствует слабому увеличению интенсивности ФЛ при положительном смещении менее 1.5 В. Мы полагаем, что при таких значениях смещение незначительно искажает поле вблизи p - n -перехода и слабо сказывается на разделении носителей. При положительных смещениях больше 1.5 В наблюдается более сильное увеличение интенсивности. Поведение ФЛ на последнем участке может быть обусловлено инжекцией в активную область неравновесных носителей, которые рождаются в p -области и в отсутствие положительного смещения не попадают в активную область из-за разделяющего поля p - n -перехода. Это предположение подтверждается тем, что при рассматриваемой величине смещения наблюдается крайне слабая, но детектируемая электролюминесценция. Увеличение температуры приводит к увеличению эффекта делокализации носителей, а следовательно, к более сильному разделению носителей полем p - n -перехода. Несмотря на одинаковую энергию локализации носителей в структуре без p - n -перехода и светодиодной структуре, температурная зависимость интенсивности излучения в светодиодной структуре оказывается более резкой, что объясняется дополнительным каналом безызлучательных потерь вследствие разделения носителей полем p - n -перехода.

При отрицательном смещении температурная зависимость оказывается еще более сильной (эквивалентно тому, что при увеличении температуры разделение носителей более сильно зависит от обратного смещения). Таким образом, можно предположить, что внешнее смещение обедняет (или аккумулирует) лишь статистически делокализованные носители, причем повышение температуры увеличивает их долю, приводя к более сильному влиянию смещения на статистику носителей. Далее, поскольку при одинаковой температуре концентрации локализованных и делокализованных носителей взаимосвязаны, описанные эффекты влияют на интенсивность излучения. Если в данных процессах играют роль также туннельные эффекты, то они оказываются зависимыми от температуры, т.е. нельзя говорить о непосредственном туннелировании частицы из p -области структуры на локализованный уровень КТ и наоборот.

4. Заключение

Нами изучены электронные оптические свойства структур с КТ InGaN/GaN в температурном диапазоне 300–600 К. Показано, что в исследованном диапазоне температур скорость термической активации и релаксации носителей выше скорости рекомбинации, благодаря чему распределение носителей на уровнях КТ близко к фермиевскому.

Благодаря статистическому распределению носителей неравновесные носители заселяют наиболее глубоко локализованные состояния КТ, в результате чего даже при сильной неоднородности электронного спектра КТ наблюдается узкая линия излучения, соответствующая

переходам между уровнями КТ с наибольшей глубиной локализации. В то же время благодаря трехмерной локализации носителей в КТ подавляется транспорт по направлению к дефектам в латеральном направлении, что обеспечивает относительную температурную стабильность приборов с активной областью на основе КТ. На наш взгляд, рассмотренные особенности поведения носителей в системе InGaN/GaN важно учитывать при моделировании процессов инжекции и рекомбинации в светодиодных структурах.

Список литературы

- [1] I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, A.V. Sakharov, W.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, A.S. Usikov, Zh.I. Alferov, Yu.G. Musikhin, D. Gerthsen. *Phys. Rev. B*, **66**, 155 310 (2002).
- [2] S. Chichibu, T. Sota, K. Wada, S. Nakamura. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **16**, 2204 (1998).
- [3] T. Mukai, M. Yamada, S. Nakamura. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, 3976 (1999).
- [4] K.L. Teo, J.S. Colton, P.Y. Yu, E.R. Weber, M.F. Li, W. Liu, K. Uchida, H. Tokunaga, N. Akutsu, K. Matsumoto. *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 1697 (1998).
- [5] H. Kudo, T. Tanbe, H. Ishibashi, R. Zheng, Y. Yamada, T. Taguchi. *J. Appl. Phys.*, **89**, 5779 (2001).
- [6] L.V. Asryan, R.A. Suris. *Semicond. Sci. Technol.*, **11**, 554 (1996).
- [7] M.V. Maximov, D.S. Sizov, L.V. Asryan, I.N. Kajander, A.G. Makarov, Yu.M. Shernyakov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, N.A. Maleev, V.M. Ustinov, N.N. Ledentsov, N.A. Cherkashin, Zh.I. Alferov, D. Bimberg. *Proc. 26th Int. Conf. Physics of Semiconductors*, 2002 (Edinburgh, 2002).
- [8] R.W. Martin, P.G. Middleton, K.P. O'Donnell, W. Van der Stricht. *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 263 (1999).
- [9] S.F. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, T. Mukai, S. Nakamura. *J. Appl. Phys.*, **88**, 5153 (2000).

Редактор Л.В. Шаронова

Investigations of carrier statistics in InGaN/GaN LEDs

D.S. Sizov, V.S. Sizov, E.E. Zavarin, V.V. Lundin, A.V. Fomin, A.F. Tsatsul'nikov, N.N. Ledentsov

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

Abstract Carrier statistics in structures with multiple ultrathin InGaN insertions embedded in GaN matrix has been investigated. Optical data indicate formation of arrays of quantum dots in the structures with inhomogenous broadening of electron spectra due to the quantum dot size dispersion. We show in this work that although the carrier transport is suppressed, the carrier distribution in the quantum dot states is quasi-statistical. This makes possible to describe the injection and recombination processes in structures under consideration in terms of quasi-Fermi levels both for electrons and holes.