

Нановключения InGaN в матрице AlGaN

© В.С. Сизов[¶], А.Ф. Цацульников, В.В. Лундин

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

(Получена 10 октября 2007 г. Принята к печати 25 октября 2007 г.)

Исследованы структуры на основе GaN с квантовыми точками InGaN в активной области, излучающие в ближнем ультрафиолетовом диапазоне. В работе сравниваются два типа структур — с квантовыми точками InGaN в матрице GaN или AlGaN. Получены спектры фотолюминесценции для обоих типов структур в диапазоне температур 80–300 К и при различных плотностях накачки, а также спектры электролюминесценции для светодиодных структур с различными типами активной области. Показано, что структуры с квантовыми точками в матрице AlGaN термически более стабильны вследствие большей по сравнению с квантовыми точками в матрице GaN энергии локализации. Благодаря этому светодиодные структуры с квантовыми точками в матрице AlGaN имеют большую эффективность.

PACS: 73.21.La, 78.55.Cr, 78.60.Fi, 78.67.Hc, 85.60.Jb

1. Введение

Интерес к нитридам элементов III группы (далее III-нитриды) вызван прежде всего созданием приборов на их основе, излучающих в широком видимом спектральном диапазоне. Как источники основного освещения, они гораздо более эффективны, а следовательно, и более экономичны по сравнению с традиционными люминесцентными лампами и лампами накаливания. Кроме того, благодаря высокой химической, механической и деградационной стойкости по сравнению с традиционными источниками света такие приборы являются более надежными [1]. Возможность изменения ширины запрещенной зоны соединений на основе III-нитридов в широком диапазоне, $\sim (0.8-6)$ эВ, позволяет создавать инжекционные лазеры, излучающие в ближнем ультрафиолетовом (УФ) диапазоне, что в свою очередь позволяет увеличить плотность записи на оптических носителях информации в ~ 4 раза. Несмотря на огромное внимание исследователей к III-нитридам, до настоящего времени остается множество нерешенных проблем, как технологических, так и фундаментальных.

Помимо поиска оптимальных условий роста эпитаксиальных структур III-нитридов, для получения более совершенных структур интенсивно ведутся исследования, связанные с разработкой структур для конкретных типов приборов.

Поскольку в настоящее время по-прежнему отсутствуют коммерчески доступные подложки, согласованные со слоями нитрида галлия по параметру решетки, ориентации и коэффициенту термического расширения, получение слоев с малым количеством дефектов является невозможным. Однако благодаря тенденции слоев InGaN к фазовому распаду в процессе роста образуются локальные области, обогащенные индием. По своим геометрическим размерам и степени неоднородности такие области играют роль квантовых точек (КТ). Носители заряда локализируются по трем направлениям на уровнях

КТ, в результате чего транспорт к дефектным областям оказывается подавленным, тем самым уменьшается темп безызлучательной рекомбинации. Использование квантовых точек InGaN в активной области светодиодов позволило, несмотря на большую плотность дислокаций и дефектов, получить приборы с внешней квантовой эффективностью $> 60\%$ [2–4]. Однако иногда образование КТ затруднено — например, в случае структур для светодиодов, работающих в фиолетовой области спектра, с активной областью на основе InGaN с малым содержанием In. Уменьшение концентрации индия в активной области приводит к уменьшению локализации носителей и, следовательно, к резкому падению эффективности приборов.

В данной работе исследованы способы увеличения энергии локализации носителей в структурах с активной областью InGaN. Показано, что осаждение InGaN в широкозонной по сравнению с GaN матрице AlGaN позволяет значительно увеличить температурную стабильность излучения. Исследованы электронные и оптические свойства светодиодных структур с активной областью на основе InGaN в матрицах GaN и AlGaN.

2. Эксперимент

Исследованные структуры были выращены методом газофазной эпитаксии из металлорганических соединений (MOCVD) на установке Aixtron 2000 HT. Последовательность слоев и зонная диаграмма представлены на рис. 1. После осаждения буферного слоя на сапфировую подложку ориентации (0001) выращивался контактный слой *n*-типа проводимости, далее осаждалась сверхрешетка (SL) AlGaIn/GaN для уменьшения плотности прорастающих дислокаций. Активная область состояла из 5 сверхтонких слоев InGaIn, разделенных барьерами GaN или AlGaIn, причем нижний слой InGaIn осаждался при более низкой температуре и имел большее содержание индия по сравнению с последующими слоями InGaIn. Нижний слой InGaIn играл роль слоя контроля

[¶] E-mail: sizovviktor@mail.ru

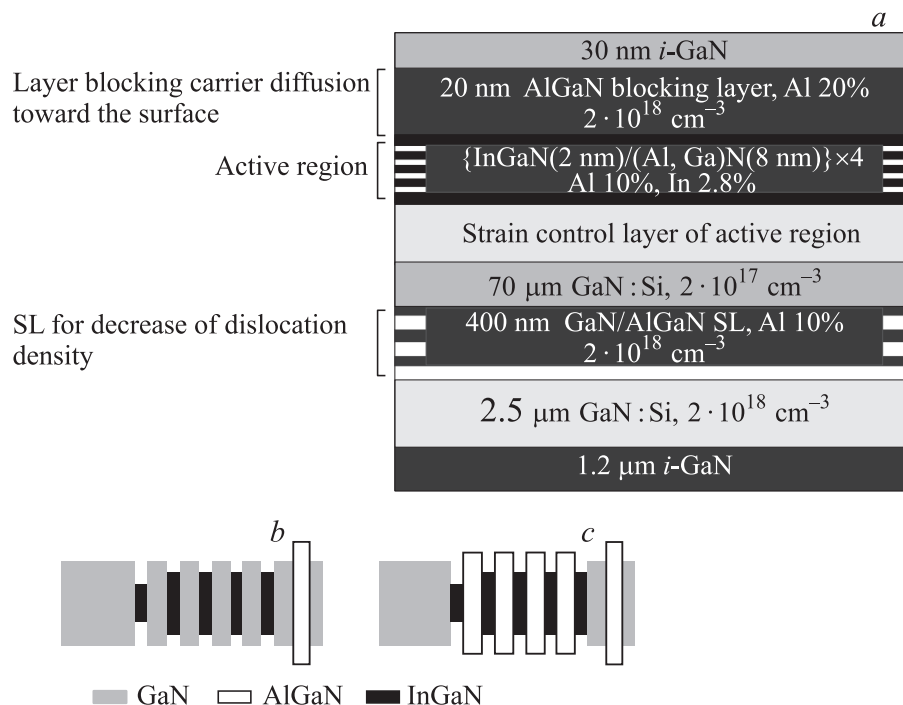


Рис. 1. Последовательность слоев (a) и зонные диаграммы структур с матрицей GaN (b) и с матрицей AlGaN (c).

напряжений и стимулировал образование КТ InGaN в верхних слоях InGaN [5,6]. После осаждения слоев InGaN/GaN выращивался слой AlGaN, блокирующий диффузию электронов в область *p*-GaN. В зависимости от того, предназначались ли структуры для исследований оптическими методами или для измерения электролюминесценции, сверху не выращивали или выращивали контактный *p*-слой.

Для исследования фотолюминесценции (ФЛ) использовались He–Cd- и азотный лазеры, имеющие основные линии излучения при 325 и 333 нм соответственно. Для измерения ФЛ в диапазоне температур $T = 100\text{--}300\text{ К}$ использовался азотный проточный криостат. Регистрация фотонов производилась фотоэлектронным умножителем с использованием синхронного детектора STANFORD RESEARCHER SYSTEM SR 810 DSP.

3. Результаты

3.1. Просвечивающая электронная микроскопия

Схематически идея использования матрицы с большим значением ширины запрещенной зоны для светодиодных структур представлена на рис. 2. Благодаря увеличению ширины запрещенной зоны матрицы удается достичь большего значения разрыва зон на гетерогранице, несмотря на малое содержание индия, и тем самым увеличить локализацию носителей относительно матрицы.

На рис. 3, a представлено изображение активной области светодиодной структуры, полученное с помощью просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ). На изображении хорошо разрешается сверхрешетка AlGaN/GaN, слои InGaN/GaN и блокирующий слой AlGaN.

На рис. 3, b представлены ПЭМ-изображения высокого разрешения, на которых изображены фрагменты активной области InGaN/GaN, осажденной в матрицы GaN и AlGaN. Области, имеющие темный контраст,

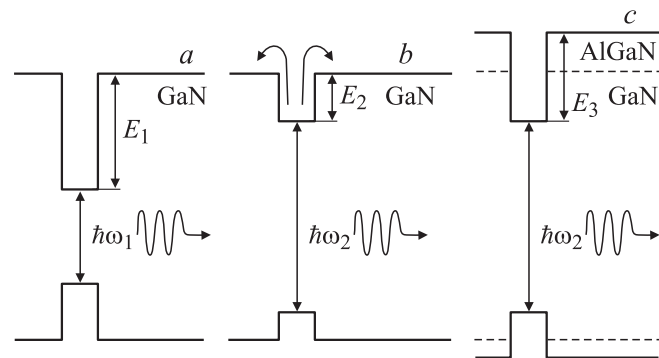


Рис. 2. Идея использования широкозонной матрицы: a — высокое содержание индия, матрица GaN, носители сильно локализованы; b — уменьшение содержания индия приводит к уменьшению локализации и выбросу носителей в матрицу GaN; c — использование матрицы AlGaN позволяет увеличить глубину локализации, сохраняя энергию излучаемого фотона. E_1, E_2, E_3 — энергии локализации носителей, $\hbar\omega_1, \hbar\omega_2$ — энергии излучаемых фотонов.

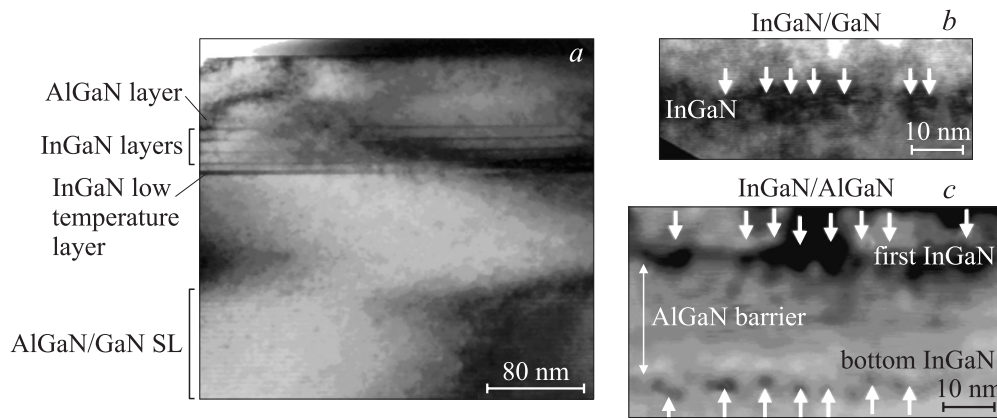


Рис. 3. ПЭМ-изображение активной области светодиодной структуры (а) и ПЭМ-изображения высокого разрешения фрагментов активной области InGaIn/GaN, осажденной в матрицы GaN (b), AlGaIn (c).

отражают поля внутренних упругих напряжений в слоях, что свидетельствует об образовании локальных обогащенных In областей, т.е. формирование КТ InGaIn. Также отчетливо видно формирование КТ в низкотемпературном слое InGaIn.

3.2. Температурные зависимости фотолюминесценции

Для изучения влияния матрицы AlGaIn на оптические свойства светодиодных структур были исследованы температурные зависимости интенсивности ФЛ. Зависимости интенсивности ФЛ от температуры в диапазоне $T = 120\text{--}300\text{ К}$ представлены на рис. 4. На рис. 5 изображены спектры ФЛ для обоих типов структур, полученные при 300 К.

Из рис. 4 видно, что между структурами с КТ в матрицах GaN и AlGaIn качественных различий в поведении зависимости интенсивности ФЛ от температуры для синего пика от низкотемпературного слоя не наблюдается. Однако для структуры с матрицей GaN резкое падение интенсивности УФ линии наблюдается уже при 200 К, в то время как в случае структуры с матрицей AlGaIn резкого падения интенсивности не наблюдается вплоть до 300 К. Такое поведение объясняется следующим: поскольку темп безызлучательной рекомбинации в основном зависит от концентрации носителей в матрице, которая определяется отношением времен рекомбинации и термического выброса, экспоненциально зависящего от температуры, концентрация носителей в матрице также экспоненциально зависит от температуры.

Вероятность захваченных в КТ носителей снова термически выброститься в матрицу $\propto \exp(-E_{\text{act}}/kT)$, E_{act} — энергия активации с уровней КТ в матрицу, k — постоянная Больцмана [7]. Так как энергия активации стоит в показателе экспоненты, ее увеличение ведет к тому, что при большем значении энергии активации падение интенсивности, связанное с выбросом носителей, начинается при больших температурах. Если

аппроксимировать эти зависимости по закону Аррениуса можно оценить энергию активации для обоих типов структур (рис. 6). Для структуры с мат-

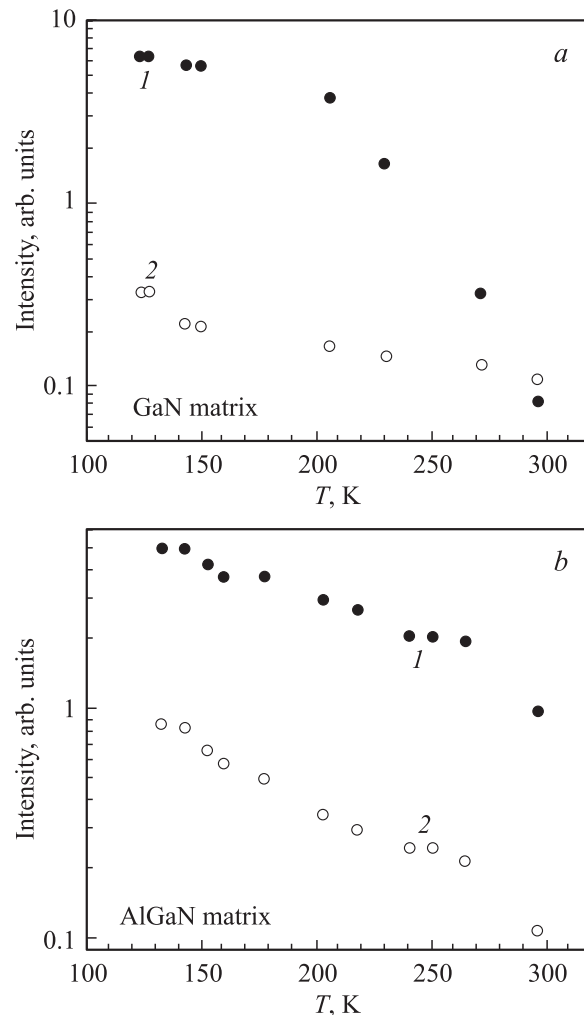


Рис. 4. Температурные зависимости интенсивности УФ (1) и синего (2) пиков ФЛ в диапазоне $T = 120\text{--}300\text{ К}$ для структур с матрицей GaN (а) и AlGaIn (b).

рицей AlGaN значение энергии активации составляет ~ 250 мэВ, а для структуры с матрицей GaN ~ 180 мэВ, что хорошо согласуется со значением разрыва зон на гетерогранице.

Неоднородность КТ по размеру и составу приводит к уширению линий излучения. На рис. 7 показаны температурные зависимости ширины линий излучения для структур обоих типов. Видно, что в случае структуры с матрицей GaN резкое уширение линии ФЛ, связанное с выбросом носителей в матрицу, начинается при температуре 240 К, в то время как для структуры с матрицей AlGaN ширина линии ФЛ начинает увеличиваться лишь при $T = 270$ К.

Наблюдаемый эффект может быть объяснен следующим. Благодаря высокой плотности КТ даже в области низких температур существенную роль играет транспорт носителей между КТ. Слабая зависимость интенсивности ФЛ и ширины пика излучения от температуры для КТ в

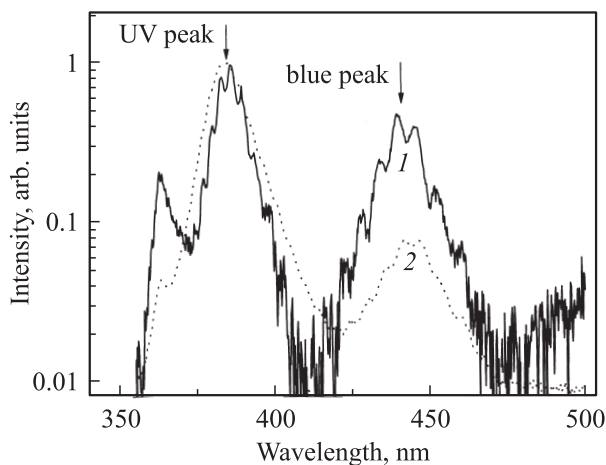


Рис. 5. Спектры ФЛ при $T = 300$ К структур с матрицей GaN (1) и AlGaN (2).

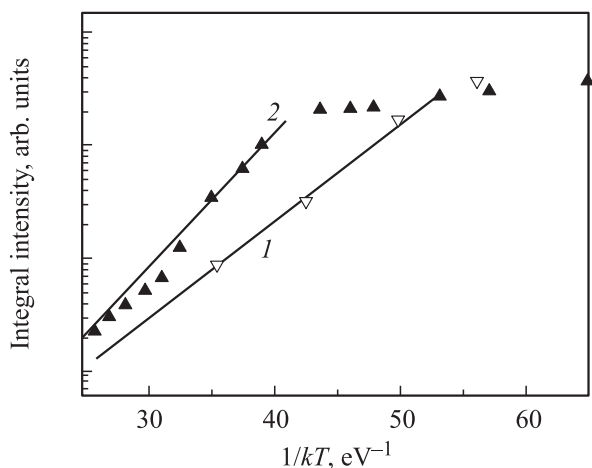


Рис. 6. Оценка энергии активации электронов в КТ из температурной зависимости интегральной интенсивности полосы ФЛ в координатах Аррениуса. 1 — структура с матрицей GaN, 2 — структура с матрицей AlGaN.

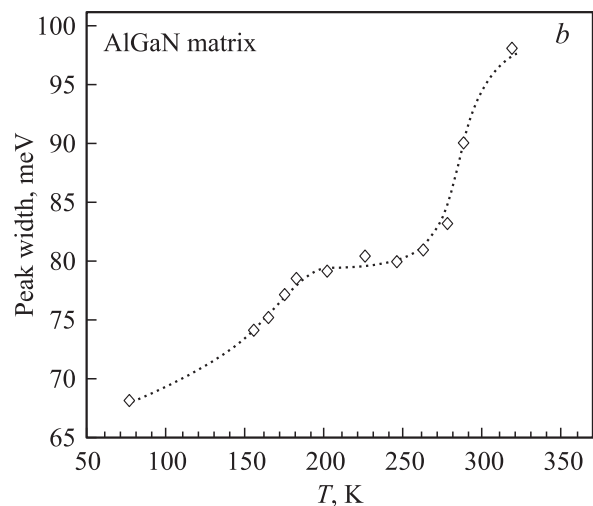
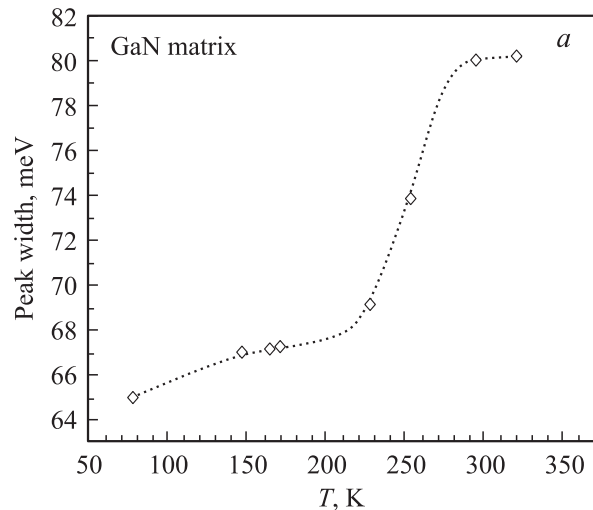


Рис. 7. Температурные зависимости ширины линии излучения для структур с матрицей GaN (a) и AlGaN (b).

матрице AlGaN в диапазоне $T = 80\text{--}270$ К свидетельствует о том, что основным механизмом транспорта носителей является туннелирование между состояниями КТ, т.е. даже в области низких температур распределение носителей является равновесным. Увеличение температуры приводит к заселению возбужденных состояний КТ, а также КТ с меньшей энергией локализации, что обуславливает уширение линии излучения. Большая температура, при которой начинается уширение линии, для структуры с барьерами AlGaN, таким образом, согласуется с выводом об увеличении энергии локализации в таких структурах.

3.3. Фотолюминесценция при различных плотностях мощности возбуждения

Для исследования особенностей электронного спектра в обоих типах структур были проведены измерения ФЛ при различных значениях плотности мощности накачки и $T = 77$ К. Результаты исследований представлены на

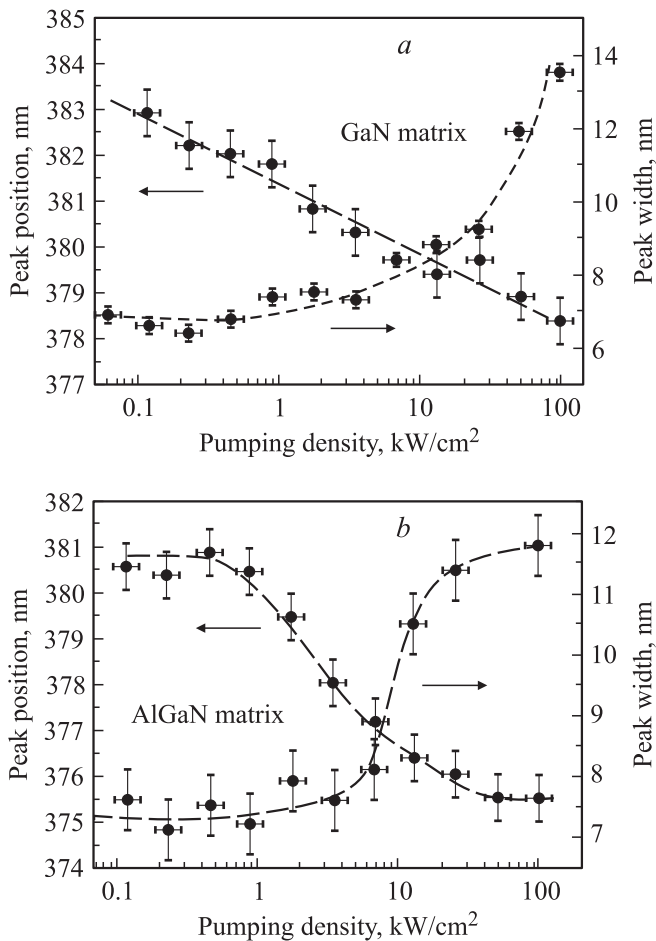


Рис. 8. Положение максимума и ширина линии ФЛ в зависимости от плотности мощности накачки при $T = 77$ К для структур с матрицей GaN (a) и AlGaIn (b).

рис. 8. Из приведенных зависимостей видно, что для КТ в матрице GaN наблюдается непрерывное уменьшение длины волны максимума ФЛ при увеличении плотности мощности накачки, в то время как для структуры с КТ в матрице AlGaIn положение максимума ФЛ постоянно на двух участках — при больших и малых плотностях мощности накачки. Кроме того, для структуры с КТ в матрице AlGaIn характерна неизменная ширина линии ФЛ в областях большой и малой плотности накачки, в то время как для структуры с КТ в матрице GaN непрерывное изменение ширины линии ФЛ наблюдается во всем диапазоне накачек. Такое поведение можно объяснить следующим. При высоких плотностях мощности накачки происходит заполнение как основных, так и возбужденных состояний КТ. В случае слабой локализации носителей в КТ (КТ в матрице GaN) энергетическое расстояние между основным и возбужденными состояниями меньше неоднородного уширения, обусловленного разбросом КТ по размерам. Увеличение накачки приводит к постепенному смещению уровня Ферми, что и обуславливает монотонный сдвиг линии излучения и увеличение ширины линии ФЛ. В случае

сильной локализации носителей в КТ (КТ в матрице AlGaIn) энергетическое расстояние между основным и возбужденными состояниями становится больше величины неоднородного уширения, т.е. в энергетическом спектре КТ между основным и возбужденными состояниями КТ появляется энергетический зазор. В этом случае сдвиг уровня Ферми с ростом накачки перестает быть непрерывным, что и приводит к наблюдаемым зависимостям ширины линии ФЛ и положения максимума от накачки.

3.4. Использование матрицы AlGaIn в активной области светодиодов

В данной работе проводились исследования светодиодных структур с активной областью, содержащей КТ в матрицах GaN и AlGaIn. Для обоих типов структур проводились измерения электролюминесценции при различных токах смещения. На рис. 9 представлена зависимость квантовой эффективности от тока для обоих типов структур.

Из приведенных зависимостей видно, что при малом токе смещения эффективность для обоих типов структур примерно одинакова. Однако при увеличении тока смещения квантовая эффективность светодиодов с активной областью на основе КТ в матрице AlGaIn оказывается больше. Поскольку падение эффективности, в частности, связано с разогревом активной области, такое поведение можно объяснить следующим. Как было показано выше, структуры с матрицей AlGaIn характеризуются более высокой температурной стабильностью излучения. Поэтому падение интенсивности при больших токах смещения оказалось меньше. Таким образом, использование AlGaIn в качестве материала матрицы является перспективным для создания светодиодов УФ диапазона.

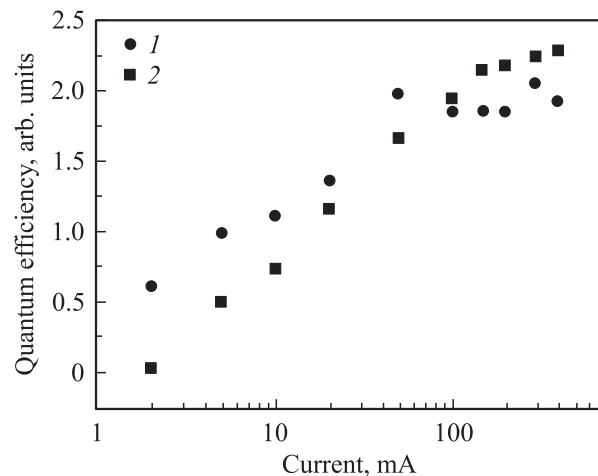


Рис. 9. Зависимость квантовой эффективности от тока для структур с матрицей GaN (1) и AlGaIn (2).

4. Заключение

Показано, что использование КТ InGaN в матрице AlGaN позволяет повысить локализацию носителей на уровнях КТ как относительно матрицы, так и относительно края непрерывного спектра внутри слоя КТ и тем самым повысить эффективность излучения в ультрафиолетовом и фиолетовом оптических диапазонах. Этот подход позволяет получить более эффективные приборы данного диапазона с более высокой температурной стабильностью излучения.

Список литературы

- [1] V. Harle, A. Avramescu, J. Baur, M. Peter, A. Weimar, M. Sabathil, G. Plaine, D. Hahn. *11th European Workshop „EW MOVPE“* (Lausanne, 2005) p. 365.
- [2] N. Nakayama, S. Itch, T. Ohata, K. Nakano, H. Okuyama, H. Ozawa, M. Ishibas, A. Ikeda, Y. Mori. *Electron. Lett.*, **29**, 1488 (1993).
- [3] S. Nagahama, N. Iwasa, M. Senoh, T. Matsushita, Y. Sugimoto, H. Kiyoku, T. Kozaki, M. Sano, H. Matsumura, H. Umemoto, K. Chocho, T. Yanamoto, T. Mukai. *Phys. Status Solid. A*, **188**, 1 (2001).
- [4] S.E. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, T. Mukai, S. Nakamura. *J. Appl. Phys.*, **88**, 5153 (2000).
- [5] U. Kops, P. Blome, M. Gregor, A. Heinrich, M. Wenderoth, R.G. Ulbrich, M. Burkrad, C. Geng, F. Scholtz, H. Schweizer. *7th European Workshop „EW MOVPE“* (Berlin, 1997) G0.
- [6] M.V. Maximov, A.F. Tsatsul'nikov, D.S. Sizov, Yu.M. Shernyakov, A.E. Zhukov, A.R. Kovsh, S.S. Mikhrin, V.M. Ustinov, Zh.I. Alferov, N.N. Ledentsov, D. Bimberg, T. Maka, C.M. Sotomayor. *Nanotechnology*, **11** (4), 309 (2000).
- [7] M. Vening, D.J. Duntas. *Phys. Rev. B*, **48** (4), 2412 (1993).

Редактор Л.В. Шаронова

InGaN inclusions in AlGaN matrix

V.S. Sizov, A.F. Tsatsul'nikov, V.V. Lundin

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

Abstract In this work, GaN-based structures with InGaN quantum dots (QDs) emitting in near UV were investigated. The two types of structures were compared: with InGaN QDs in GaN or in AlGaN matrix. Photo- and electroluminescence spectra were observed in the temperature range 80–300 K and with different pumping density for both of the structures. The structures with InGaN QDs in AlGaN matrix demonstrated higher temperature stability in comparison to the structures with InGaN QDs in GaN matrix due to larger localization energy. Because of larger localization energy the light emitting diode (LED) structures with InGaN QDs in AlGaN shown bigger efficiency at high pumping density as compared with the LED structures with InGaN QDs in GaN.