

Формирование композитных квантовых точек InGaN/GaN/InAlN

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

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

^{*} Научно-технологический центр микроэлектроники и субмикронных гетероструктур
при Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе 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 13 апреля 2010 г. Принята к печати 23 апреля 2010 г.)

Представлены результаты исследований формирования композитных квантовых точек InGaN/GaN/InAlN. Исследованы структурные свойства тонких слоев InAlN, выращенных GaN, и показано формирование в таких структурах трехмерных островков, имеющих латеральные размеры $\sim (20-30)$ нм. Показано, что осаждение тонкого слоя InGaN на поверхность островков InAlN, выращенных тонким слоем GaN, приводит к трансформации непрерывного слоя InGaN в массив изолированных квантовых точек, имеющих латеральные размеры 20–30 нм и высоту 2–3 нм, положение которых в направлении роста коррелирует с положением островков InAlN.

1. Введение

Увеличение эффективности излучения светодиодов на основе нитрида галлия является одной из ключевых задач современной оптоэлектроники, обусловленных перспективами широкого использования таких светодиодов в системах общего освещения. Одной из основных проблем, ограничивающих эффективность светодиодов в системе III–IV, является высокая плотность дислокаций в эпитаксиальных структурах, выращенных на подложках сапфира, что обусловлено рассогласованием параметров кристаллической решетки сапфира и GaN. Кроме того, поскольку постоянные решетки InGaN и GaN являются несогласованными, это вносит возникновение дополнительных дефектов в активной области светодиодов. Данная проблема становится особенно актуальной для светодиодов зеленого диапазона, в активной области которых содержание атомов In велико. Одним из способов преодоления падения эффективности излучения является формирование в активной области светодиодных структур на основе InGaN массива изолированных квантовых точек (КТ), которые ограничивают транспорт носителей. В этом случае вероятность захвата носителей центрами безызлучательной рекомбинации значительно уменьшается, что позволяет увеличить эффективность излучения. Среди способов формирования КТ наибольший интерес представляют методы, позволяющие получать КТ непосредственно в ходе эпитаксиального процесса путем намеренной трансформации сплошного тонкого слоя InGaN в массив КТ [1–3].

В данной статье предложен новый способ получения КТ InGaN путем осаждения тонкого слоя InGaN на поверхность островков InAlN, имеющих большую по сравнению с InGaN ширину запрещенной зоны. Проведен-

ны исследования особенностей формирования островков InGaN, и изучены структурные и оптические свойства полученных композитных КТ InGaN/GaN/InAlN.

2. Эксперимент

Эпитаксиальные структуры выращивались методом МОС-гидридной эпитаксии (газофазной эпитаксии из металлорганических соединений) на сапфировых подложках ориентации (0001). Азот, водород и их смеси использовались в качестве несущих газов. Аммиак, триметилгаллий, триметилиндий, триметилалюминий использовались в качестве соединений-источников. Свойства выращенных структур были исследованы с помощью атомно-силовой микроскопии (АСМ), просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) высокого разрешения и с помощью фотолюминесценции (ФЛ).

Активная область исследованных структур состояла из слоя InAlN, выращенного на буферном слое GaN толщиной 4 мкм, барьера GaN толщиной 6 нм, слоя InGaN толщиной 3 нм и слоя GaN толщиной 15 нм. Толщины слоев InAlN в различных структурах изменялись в диапазоне 0–18 нм. Сверху активной области были осаждены слой $Al_{0.2}Ga_{0.8}N$, имеющий толщину 15 нм, и слой GaN толщиной 40 нм. Для исследования структурных свойств слоев InAlN методом атомно-силовой микроскопии были выращены структуры, содержащие слой InAlN различной толщины, осажденный на буферном слое GaN.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведены изображения слоев InAlN, имеющих различную толщину. Из приведенных изображений

[†] E-mail: andrew@beam.ioffe.ru

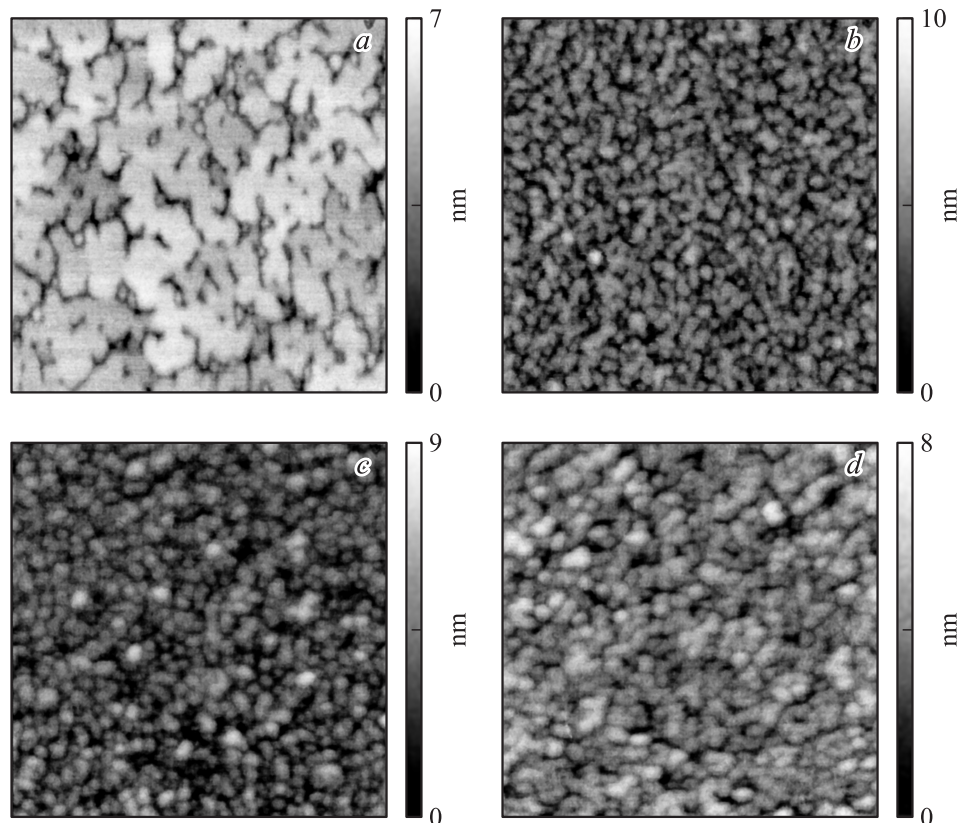


Рис. 1. АСМ-изображения размером 800×800 нм слоев InAlN, выращенных слоем GaN. Толщина слоя InAlN, нм: (a, d) — 4, b — 9, c — 18. Толщина слоя GaN, нм: (a, b, c) — 2, d — 6.

видно, что в выращенных структурах на поверхности наблюдается формирование островков. Латеральные размеры островков во всех структурах составляют 20–30 нм, а высота и плотность островков зависят от толщины слоя InAlN. Для структуры со слоем InAlN толщиной 4 нм (рис. 1, a) высота островков находится в диапазоне 1–2 нм и их плотность составляет $\sim 8 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$. В структурах со слоем InAlN толщиной 9 и 18 нм (рис. 1, b, c) наблюдается увеличение плотности островков до $\sim (7-8) \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ при высоте островков 2–4 нм. Отметим, что аналогичный эффект формирования островков достигается в структуре, содержащей слой InAlN толщиной 4 нм, выращенный поверхностным слоем GaN толщиной 6 нм [4] (рис. 1, d).

Для детального изучения структурных свойств активной области были проведены исследования выращенных образцов методом ПЭМ высокого разрешения. Полученные изображения обрабатывались с помощью метода анализа геометрических фаз (GPA) [5,6], позволяющего получить двумерное распределение деформации в напряженных слоях относительно недеформированной матрицы GaN и далее, используя закон Вегарда, рассчитать распределение индия и алюминия в слоях твердых растворов (детали условий получения ПЭМ-изображений высокого разрешения GaN и применения к ним GPA можно найти в [7]). На рис. 2 приведено

полученное таким образом изображение распределения деформации в направлении роста образца, активная область которого содержит слой InAlN толщиной 9 нм, барьер GaN толщиной 6 нм и слой InGaN толщиной 3 нм. Количественный анализ данного изображения (рис. 3) позволяет сделать несколько выводов от-

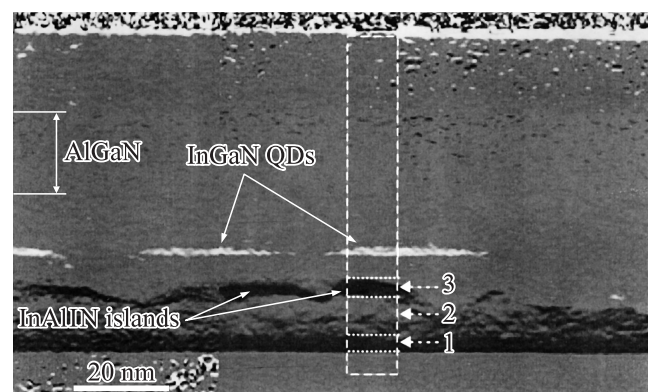


Рис. 2. Изображение распределения деформации вдоль направления роста относительно недеформированной матрицы GaN образца, активная область которого содержит слой InAlN толщиной 9 нм, барьер GaN толщиной 6 нм и слой InGaIn толщиной 3 нм.

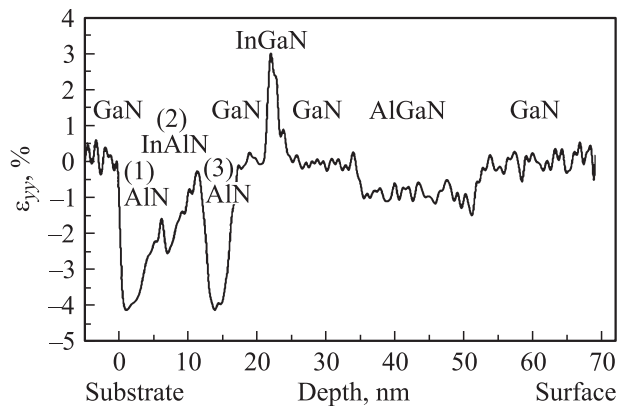


Рис. 3. Профиль изменения упругих напряжений ε_{yy} по отношению к GaN, полученный вдоль направления $[0001]$ и усредненный на 7 нм вдоль плоскости интерфейсов (область усреднения выделена штриховыми прямыми на рис. 2).

носителем характера формирования гетероструктуры InAlN/GaN/InAlGaN. Во-первых, осаждение слоя InGaN приводит к образованию массива изолированных островков InGaN. Во-вторых, наблюдается пространственная корреляция между положением островков InGaN и морфологией нижележащих слоев InAlN/GaN.

Слой InAlN с номинальной толщиной 9 нм представляет собой сложную структуру толщиной, достигающей 17 нм, состоящую из трех областей, на рис. 2 различающихся по морфологии и распределению In и Al в направлении роста и обозначенных как 1, 2, 3. Слой 1, обозначенный на рис. 3 как (1) AlN, является непрерывным двумерным слоем $\text{In}_{0.02}\text{Al}_{0.98}\text{N}$ толщиной 4 нм с достаточно резкими границами и постоянным составом по толщине. Слой 2, обозначенный на рис. 3 как (2) InAlN, также является двумерным, но с неоднородным распределением In (и Al) по толщине. Он состоит из двух частей. Первая часть, начинающаяся на границе с нижним слоем $\text{In}_{0.02}\text{Al}_{0.98}\text{N}$, имеет толщину 2.5 нм. Концентрация атомов In в ней в направлении роста увеличивается в диапазоне от 2 до 17%. Вторая часть слоя InAlN имеет толщину 5.5 нм. На границе между первой и второй частями концентрация атомов In падает до 10% с последующим ее увеличением в направлении роста до 22%. Слой 3, обозначенный на рис. 3 как (3) AlN, формируется на поверхности слоя 2. Он представляет собой массив трехмерных островков, имеющих форму усеченной пирамиды с плоскими основаниями и боковыми гранями, с размером основания $\sim (20\text{--}30)$ нм и высотой 4–5 нм. Островки плотно примыкают друг к другу без видимого свободного расстояния между основаниями пирамид, что согласуется с данными АСМ. Содержание In в островках InAlN изменяется в диапазоне 2–5% и постоянно по толщине островка. Зарощивание слоя 3 тонким слоем GaN с последующим осаждением слоя InGaN приводит к тому, что слой InGaN формируется в виде массива изолированных

островков InGaN, имеющих средний латеральный размер ~ 30 нм, высоту 2.2 нм, со средним расстоянием между островками ~ 10 нм. Среднее содержание In в них составляет 20–22%. При этом КТ InGaN формируются непосредственно над поверхностью островков InAlN, составляющих слой 3.

Полученные результаты свидетельствуют о сложных процессах формирования слоев InAlN и возможной корреляции морфологий слоя InAlN и барьерного слоя GaN в процессе зарощивания. В этом случае процесс формирования КТ InGaN зависит не только от толщины слоя InAlN, но и от толщины барьерного слоя GaN. На это указывают результаты АСМ, свидетельствующие о формировании островков в структуре, содержащей более тонкий слой InAlN толщиной 4 нм, зарощенный более толстым поверхностным слоем GaN толщиной 6 нм. Таким образом, результаты исследований методами ПЭМ и АСМ позволяют сделать вывод о формировании в структурах композитных КТ InGaN/GaN/InAlN. Подобный эффект наблюдался для случая квантовых ям InGaAs и КТ, осажденных на поверхности КТ InAlAs [8].

На рис. 4 приведены спектры фотолюминесценции выращенных структур при температурах 77 и 300 К.

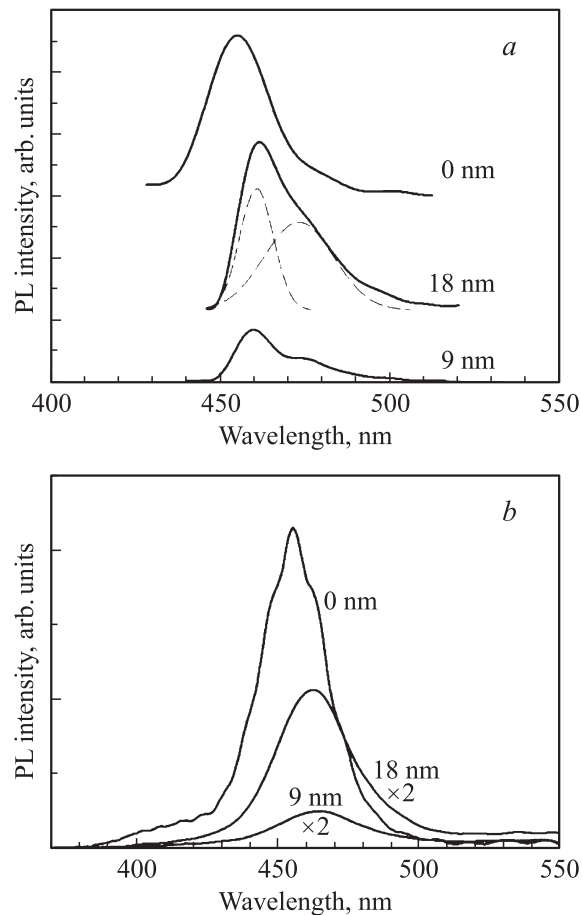


Рис. 4. Спектры фотолюминесценции (PL) выращенных структур при температурах 77 (а) и 300 К (б). Указаны толщины слоя InAlN в структурах.

В спектре образца, в котором слой InAlN отсутствовал, наблюдается одна линия излучения с максимумом при ~ 455 нм и шириной на половине высоты ~ 20 нм. Осаждение слоя InAlN толщиной 4 нм приводит к исчезновению линии излучения, лежащей в синей области спектра. Увеличение толщины слоя InAlN до 9 и 18 нм снова приводит к появлению линий ФЛ, лежащих в синей области спектра, причем форма линии в этих структурах отличается от формы линии ФЛ в структуре без InAlN. Видно, что при низкой температуре линия излучения является суперпозицией двух линий с максимумами при 460 и 473 нм, причем ширина на половине высоты линии с максимумом при 460 нм составляет всего ~ 10 нм. Наличие двух линий в спектре ФЛ свидетельствует о неоднородном распределении КТ InGaN по размерам либо по составу (содержанию индия). При комнатной температуре среди образцов, содержащих слой InAlN, наиболее интенсивную ФЛ имеет структура со слоем InAlN толщиной 18 нм. Полученная зависимость эффективности излучения от толщины слоя InAlN может быть объяснена особенностями роста InAlN и последующего зарастивания слоем GaN, которые рассматривались выше. Увеличение эффективности излучения с увеличением толщины слоя InAlN связано с формированием изолированных КТ InGaN, которые подавляют транспорт носителей в дефектные области структуры. В случае осаждения тонкого слоя InAlN, толщиной 4 нм, плотность КТ очень низка и, следовательно, не происходит образования изолированных КТ InGaN, подавляющих транспорт носителей к дефектам, что приводит к исчезновению ФЛ, связанной с InGaN. Проведенные исследования свидетельствуют о том, что существует оптимальная архитектура активной области на основе композитных КТ InGaN/GaN/InAlN (оптимальные толщины слоя InAlN, барьера GaN и слоя InGaN), при которой происходит формирование плотного массива островков InAlN и стимулируется трансформация слоя InGaN с образованием изолированных КТ, подавляющих влияние дефектов на эффективность излучения. Отметим, что осаждение InAlN приводит к падению эффективности излучения относительно структуры, в активной области которой InAlN отсутствует. Это обусловлено несколькими причинами. Во-первых, в случае структур со слоем InAlN, который является потенциальным барьером, препятствующим сбору носителей в слой InGaN, уменьшается эффективная плотность накачки. Во-вторых, осаждение InAlN сопровождается формированием дополнительных дефектов в слое InAlN, вызванных неоптимальными условиями роста InAlN. Однако в случае роста светодиодных структур зеленого диапазона эффективность излучения падает в разы с увеличением длины волны, что обусловлено формированием дефектов в активной области, вызванных увеличением содержания индия. Для таких структур формирование композитных КТ InGaN/GaN/InAlN может, напротив, увеличить эффективность излучения за счет подавления транспорта носителей в дефектные области. Кроме того,

изменяя состав слоя InAlN, можно изменять упругие напряжения, влияя как на вхождение индия при росте InGaN [9], так и на суммарные упругие напряжения в активной области InGaN/GaN/InAlN, которые определяют образование дефектов.

4. Заключение

В работе проведены исследования синтеза композитных КТ InGaN/GaN/InAlN и показано формирование изолированных КТ InGaN на островках InAlN, зарастив тонким барьерным слоем GaN. Показано, что оптические свойства композитных КТ InGaN/GaN/InAlN сильно зависят от толщин слоя InAlN и барьера GaN, что связано с особенностями роста слоев InAlN.

Работа выполнена в рамках Государственного контракта № 02.523.12.3017 от 14 августа 2008 г., грантов РФФИ № 09-02-12449-офи_м, 08-02-01344, 10-02-01190-а, программы фундаментальных исследований президиума РАН № 27 и при диагностической поддержке СЗРЦКП „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“.

Список литературы

- [1] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, S. Nakamura. *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 4188 (1996).
- [2] Yu.G. Musikhin, D. Gerthsen, D.A. Bedarev, N.A. Bert, W.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, A.V. Sakharov, A.S. Usikov, Zh.I. Alferov, I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg. *Appl. Phys. Lett.*, **8**(12), 2099 (2002).
- [3] В.В. Гончаров, М.Н. Корытов, П.Н. Брунков, В.В. Лундин, Е.Е. Заварин, А.Ф. Цацульников, С.Г. Конников. *Изв. РАН. Сер. физ.*, **73**(1), 40 (2009).
- [4] W.V. Lundin, E.E. Zavarin, M.A. Sinitsyn, A.V. Sakharov, S.O. Usov, A.E. Nikolaev, S.I. Troshkov, M.A. Yagovkinga, E.V. Yakovlev, R.A. Talalaev, D.V. Davydov, A.V. Lobanova, N.A. Cherkashin, M.J. Hytch, P.N. Brunkov, A.F. Tsatsulnikov. *Buklet. Ext. Abstr. 13th Eur. Workshop on Metalorganic Vapour Phase Epitaxy* (Ulm, Germany, 2009).
- [5] M.J. Hytch, E. Snoeck, R. Kilaas. *Ultramicroscopy*, **74**, 131 (1998).
- [6] *HREM Research*. <http://www.hremresearch.com>
- [7] А.В. Сахаров, В.В. Лундин, Е.Е. Заварин, М.А. Синецын, А.Е. Николаев, С.О. Усов, В.С. Сизов, Г.А. Михайловский, Н.А. Черкашин, М. Hytch, F. Hue, Е.В. Яковлев, А.В. Лобанова, А.Ф. Цацульников. *ФТП*, **43**(6), 841 (2009).
- [8] А.Ф. Цацульников, А.Ю. Егоров, А.Е. Жуков, А.Р. Ковш, В.М. Устинов, Н.Н. Леденцов, М.В. Максимов, А.В. Сахаров, А.А. Суворова, П.С. Копьев, Ж.И. Алферов, Д. Бимберг. *ФТП*, **31**(1), 109 (1997).
- [9] А.В. Сахаров, В.В. Лундин, Е.Е. Заварин, М.А. Синецын, А.Е. Николаев, С.О. Усов, В.С. Сизов, Г.А. Михайловский, Н.А. Черкашин, М. Hytch, F. Hue, Е.В. Яковлев, А.В. Лобанова, А.Ф. Цацульников. *ФТП*, **43**(6), 841 (2009).

Редактор Л.В. Шаронова

Formation of composite InGaN/GaN/InAlN quantum dots

A.F. Tsatsul'nikov^{†*}, *E.E. Zavarin*^{†*},
N.V. Kryzhanovskaya^{†*}, *W.V. Lundin*^{†*},
A.V. Saharov^{†*}, *S.O. Usov*^{†*}, *P.N. Brunkov*[†],
V.V. Goncharov[†], *N.A. Cherkashin*[•], *M.Hytch*[•]

[†] Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

* Center for Microelectronics at Ioffe Physicotechnical
Institute, Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

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

Abstract Composite InGaN/GaN/InAlN quantum dots (QDs) were formed and investigated. Structural properties of thin InAlN layers, overgrown by GaN, were studied and formation of 3D islands having lateral sizes of 20–30 nm was revealed. It was shown, that deposition of a thin InGaN layer on InAlN islands, overgrown by GaN, results in transformation of the continuous InGaN layer on the array of separated InGaN QDs having lateral sizes of 20–30 nm, height of 2–3 nm. Position of the InGaN QDs correlates with position of the InAlN islands in the growth direction.