

УДК 535.37

*Е. А. Менькович<sup>1</sup>, С. А. Тарасов<sup>1</sup>, И. А. Ламкин<sup>1</sup>, S. Suihkonen<sup>2</sup>, O. Svensk<sup>2</sup>,  
H. Lipsanen<sup>2</sup>*

<sup>1</sup>Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет «ЛЭТИ»  
им. В.И. Ульянова (Ленина)

<sup>2</sup>Aalto University, Department of Micro and Nanosciences

## Исследование физических процессов, возникающих в условиях низких температур и токов в светоизлучающих наногетероструктурах на основе полупроводниковых нитридов\*

Исследованы светоизлучающие наногетероструктуры с множественными квантовыми ямами на основе твердых растворов (Al, Ga, In)N. Изучены свойства структур двух типов: содержащие сверхрешетку (тип А) или имеющие в своем составе увеличенное число квантовых ям (тип В). Эксперимент был проведен в условиях криогенных температур (10–300 К) и низких токов (10 нА–2 мА). Было проведено сравнение параметров наноструктур разного типа. Установлено, что структуры типа А обладают лучшими рабочими характеристиками и более высокой стабильностью излучения. Рассмотрено влияние сверхрешетки на упругие напряжения и деформацию решетки на гетерограницах, в том числе на возникающее из-за них встроенное электрическое поле. Показано увеличение интенсивности излучения и снижение эффекта саморазогрева в структуре типа А, что обусловлено уменьшением дефектности в таких наноструктурах.

**Ключевые слова:** наногетероструктуры, люминесценция, сверхрешетка, криогенные температуры, упругие напряжения.

### 1. Введение

Современный уровень технологии создания наногетероструктур на основе твердых растворов полупроводниковых нитридов позволил получать яркие и высокоэффективные светоизлучающие диоды (СИД). В будущем их рассматривают не только как элементы сигнальной аппаратуры, но и как основу для энергоэффективного, экологичного и недорогого освещения. В настоящий момент созданы СИД, светотдача которых достигает 180 Лм/Вт. Это не только многократно превышает эффективность традиционных ламп накаливания, но и в 2 раза выше светового коэффициента преобразования люминесцентных ламп. Тем не менее достигнутые значения эффективности белых светодиодов все еще существенно ниже теоретического предела, близкого к 100%. Поэтому и в настоящий момент ведутся работы по оптимизации их конструкции с целью дальнейшего повышения коэффициента преобразования энергии и надежности их работы, а также снижения их стоимости.

Известно, что упругие напряжения на гетерограницах и дефекты в активной области структуры ограничивают внутреннюю квантовую эффективность коротковолновых нитридных СИД [1]. Разрабатываются различные технологические методы снижения таких напряжений и дефектов. В излучающем кристалле светодиода создают квантовые ямы, которые существенно повышают его эффективность люминесценции и температурную стабильность мощностных характеристик. Но более существенное преимущество дает добавление в структуру излучателя множественных квантовых ям и сверхрешеток. Одним из вариантов является использование короткопериодной сверхрешетки AlGaIn/GaN или InGaIn/GaN [1, 2, 3, 4]. В частности, такая сверхрешетка позволяет увеличить эффективность инжекции носителей в квантовую яму, расположенную на большом расстоянии от области р-легирования [1]. Далее будет показано, что использование сверхрешетки AlGaIn/GaN дает возможность увеличить интенсивность излучения и уменьшить эффект саморазогрева, что

может быть связано со снижением величины упругих напряжений в активной области, приводящим к уменьшению плотности дефектов в структуре.

## 2. Эксперимент

В работе исследовалась люминесценция излучающих наногетероструктур, выполненных на основе твердых растворов (Al, Ga, In)N. Эксперимент проводился в широком диапазоне воздействующих температур (10–300 К) и пропускаемых токов (10 нА – 2 мА).

Экспериментальные образцы (рис. 1) выращивались методом МOCVD на сапфировой подложке с *c*-ориентацией поверхности толщиной 430 мкм. Далее для защиты активной области от дефектов, возникающих из-за несоответствия периодов решеток сапфира и полупроводника, наращивался буферный слой GaN толщиной 2 мкм с концентрацией легирующей примеси около  $10^{18}$  см<sup>-3</sup>. Затем создавался высоколегированный слой *n*-GaN толщиной 2 мкм, служащий для подведения нижнего контакта к структуре. Активная область СИД содержала набор из 5–10 In<sub>0,1</sub>Ga<sub>0,9</sub>N квантовых ям шириной 4–5 нм. Ямы были разделены барьерами GaN толщиной 50 нм. Далее выращивался слой *p*-GaN толщиной 300 нм с концентрацией легирующей примеси около  $5 \cdot 10^{17}$  см<sup>-3</sup>. Омический контакт к *p*-области выполнялся из золота с подслоем никеля, толщина которых составляла 5 нм. Для вскрытия нижнего контактного слоя *n*-GaN проводилось травление мезаструктуры, после чего создавался двухслойный контакт из Ti и Al толщиной 20 и 5 нм соответственно.

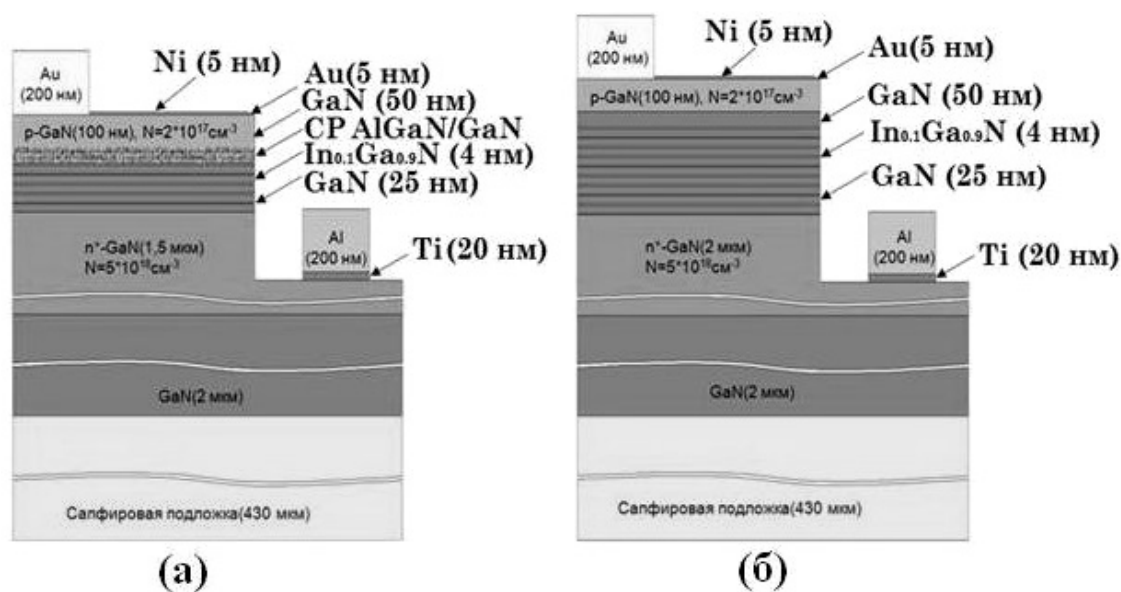


Рис. 1. Исследуемые СИД: тип А (а) и тип В (б)

Из-за сильного различия периодов решетки между квантовыми ямами In<sub>0,1</sub>Ga<sub>0,9</sub>N и барьерными слоями GaN в структурах возникают сильные деформации и упругие напряжения [5], приводящие к появлению электрических полей на гетерограницах [3]. Кроме того, релаксация подобных напряжений может приводить к возрастанию концентрации дефектов в активной области. Одной из основных задач исследования был поиск пути снижения влияния этих эффектов на характеристики светоизлучающих наноструктур. С этой целью в часть светодиодных наногетероструктур между завершающим слоем *p*-GaIn и активной областью была встроена сверхрешетка Al<sub>0,1</sub>Ga<sub>0,9</sub>N/GaN с периодом 20 нм. Для удобства кристаллы, содержащие в себе сверхрешетку, мы в дальнейшем будем называть типом А, а не содержащие — типом В.

Отдельное внимание в работе было уделено оптимизации получения омических контактов к эпитаксиальным слоям. Для *p*-GaIn использовался двухслойный контакт Ni/Au, где никель является подслоем для золота с последующим отжигом в окислительной среде при

температуре 500 °С [6]. Для эпитаксиального слоя  $n$ -типа использовался контакт на основе металлов Ti и Al. Для получения омической характеристики контакт отжигался в вакууме при температуре 750 °С. Для структур со сверхрешетками время отжига было уменьшено. Это позволило уменьшить перемешивание составов на гетерограницах, что было подтверждено при исследовании структур методом вторичной ионной масс-спектрометрии (ВИМС). Оптимизированные варианты контактов были использованы не только для создания светодиодных наноструктур, но и для DHFET, что позволило существенно улучшить их параметры [7].

Для лучшего растекания тока на излучающую площадку были нанесены тонкие слои никеля и золота.

В эксперименте применялась тест-система определения параметров светодиодов [8], содержащая гелиевый криостат замкнутого типа Janis CCS-150 и оптические приборы фирмы Ocean Optics (интегральная сфера FOIS-1, спектрометры быстрого сканирования USB4000, HR4000 и эталонная лампа LS-1-CAL-IN). Стенд управлялся специально разработанной в среде LabVIEW программой автоматизации исследований. Эксперимент осуществлялся в соответствии с международным стандартом CIE 127:2007. Это повысило точность измерения спектров люминесценции.

Криостат замкнутого цикла Janis CCS-150 позволял проводить эксперименты в диапазоне температур 10–325 К. Ее регулировка осуществлялась посредством контроллера температуры Lake Shore—325. Малогабаритные оптоволоконные спектрометры быстрого сканирования USB4000 и HR4000 позволяли проводить эксперимент в диапазоне 350–1100 нм. Эталонная лампа LS-1-CAL-IN позволяла откалибровать спектрометры по чувствительности. Это дало возможность проводить измерения мощности люминесцентного излучения наногетероструктур.

### 3. Результаты и их обсуждение

Проведенные эксперименты позволили изучить влияние на спектр люминесценции изменения силы пропускаемого прямого тока при различных температурах окружающей среды. Было обнаружено не только тепловое смещение пиковой длины волны излучения, но и скачкообразное переключение максимума свечения на другую длину волны, что говорит об изменении рабочих уровней в квантовой яме. Основное внимание при анализе экспериментальных данных было уделено сравнению люминесцентных свойств структур типа А и В с учетом влияния сверхрешетки.

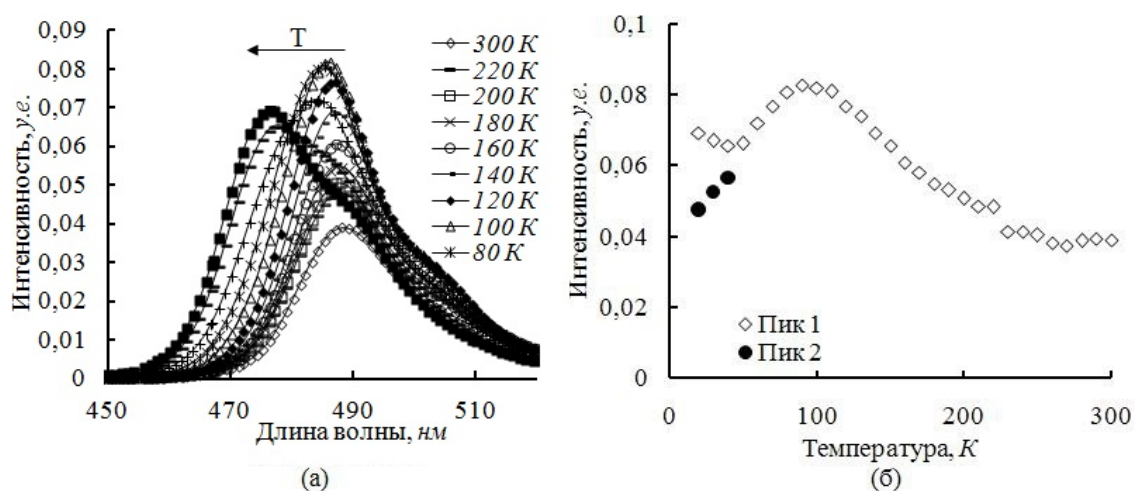


Рис. 2. Зависимость интенсивности излучения в максимуме (а) и спектра люминесценции (б) от температуры

На рис. 2 рассмотрено изменение спектра люминесценции структуры типа А при понижении температуры окружающей среды от комнатной до значений порядка 10 К. Анализ спектра обнаруживает несколько эффектов. Снижение температуры приводит к сдвигу спектра люминесценции в сторону коротких длин волн. Этот эффект является следствием увеличения ширины запрещенной зоны полупроводника. Также происходит увеличение интенсивности люминесценции, что объясняется снижением количества фононов в кристалле и повышением эффективности люминесценции. Однако при температуре 100 К рост интенсивности на рабочей длине волны неожиданно сменяется падением (рис. 2б). При дальнейшем охлаждении в спектре возникает дополнительный коротковолновый максимум в районе длины волны 475 нм. Его интенсивность растет, и при температуре 50 К именно он становится доминирующим. Длинноволновый максимум продолжает уменьшаться, и его можно обнаружить по перегибу на спектре люминесценции.

Обнаруженный эффект, скорее всего, связан с изменением вероятностей оптических переходов между различными уровнями размерного квантования при понижении температуры. С физической точки зрения эффект объясняется затруднением процессов термализации носителей заряда, попавших в яму. В этом случае они задерживаются на вышележащих уровнях и оптический переход осуществляется уже с них. При снижении температуры эффект задержки усиливается. Другим фактором, влияющим на изменение интенсивности переходов, может являться наличие упругих напряжений и встроенного электрического поля, возникшего из-за деформации решетки на гетерогранице. При сильном снижении температуры их влияние может становиться более заметным. Однако на основании анализа всех экспериментальных данных можно сделать вывод, что основное влияние в данном случае оказывает первый фактор, поскольку рассмотренный эффект весьма ярко наблюдался в образцах со сверхрешетками.

По нашему мнению, наиболее сильно влияние упругих напряжений проявляется при исследовании спектров люминесценции наногетероструктур при очень малых прямых токах. Для изучения этого влияния в работе проводились измерения при понижении значения пропускаемого тока до уровня 10 нА. На рис. 3 представлены спектры люминесценции структур типа А и В, получаемые при подаче малых токов. Самонагревом структур в этом случае можно пренебречь. Очевидна существенная разница в поведении спектров для структур разного типа. Доминирующая длина волны излучения структуры со сверхрешеткой практически не изменялась. В то же время у структуры типа В сдвиг был очень существенным. Это наглядно продемонстрировано на рис. 4. Сдвиг для структур типа В составлял более 10 нм и происходил в длинноволновую сторону. У наногетероструктур на основе полупроводниковых нитридов с квантовыми ямами при увеличении силы пропускаемого прямого тока может происходить сдвиг в коротковолновую сторону вследствие заполнения вышележащих уровней в хвостах плотностей состояний. Однако этот эффект не очень велик и не может объяснить столь существенный сдвиг спектра. Скорее всего, у наших образцов такой эффект проявляет себя при токах, больших 1 мА.

Мы полагаем, что сдвиг спектра люминесценции при малых токах у структур типа В обусловлен влиянием упругих напряжений, вызывающих появление деформации решетки на гетерогранице и встроенного электрического поля. На активную область структуры и располагающиеся там ямы влияют три основных составляющих: встроенное электрическое поле ( $p - n$ )-перехода; встроенное поле, вызванное деформациями; внешнее поле, обусловленное приложенным напряжением. Несмотря на важнейшее влияние поля ( $p - n$ )-перехода на свойства светоизлучающих наноструктур в целом, оно не может являться основной причиной возникновения описанных выше эффектов. Значение этого поля в активной области структуры типа А весьма близко к величинам напряженностей, достигаемых в структурах типа В, поскольку по составу излучающей части слоя и его общей толщине они похожи друг на друга. Тем не менее в структуре типа А сильных сдвигов в спектре люминесценции не наблюдается. При пропускании через излучающую структуру малых прямых токов, величины напряжений, падающих на активной области, будут очень малы. На их фоне особенно

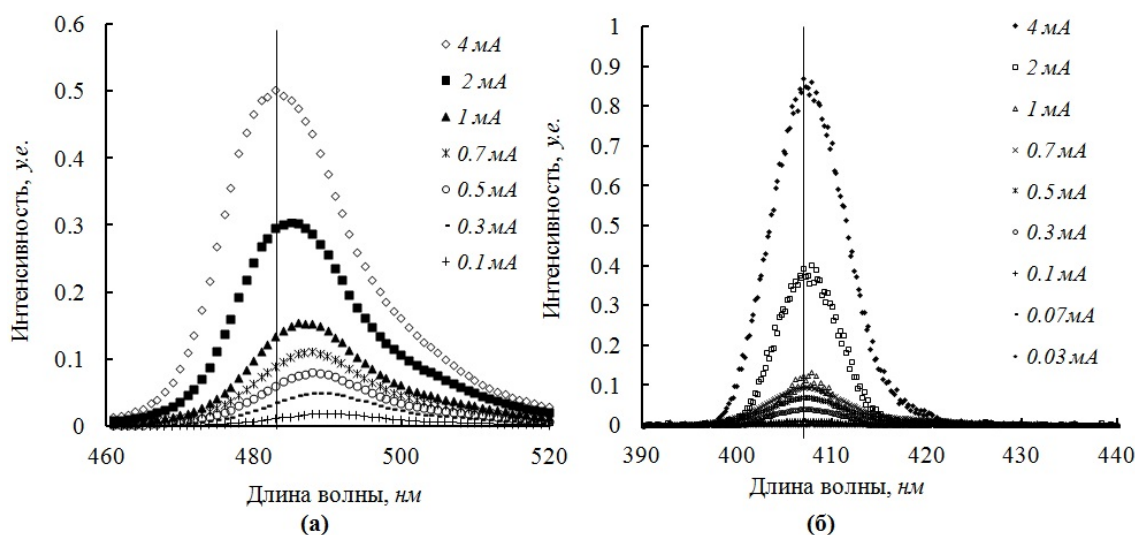


Рис. 3. Зависимость интенсивности излучения от пропускаемого тока СИД типа В (а) и типа А (б)

заметен вклад встроеного поля, вызванного деформациями. Под его воздействием форма ямы сильно искажается и возникает квантово-размерный эффект Штарка [10]. Это приводит к существенному снижению расстояния между рабочими уровнями. При повышении внешнего напряжения воздействие встроеного поля компенсируется и сдвиг уменьшается.

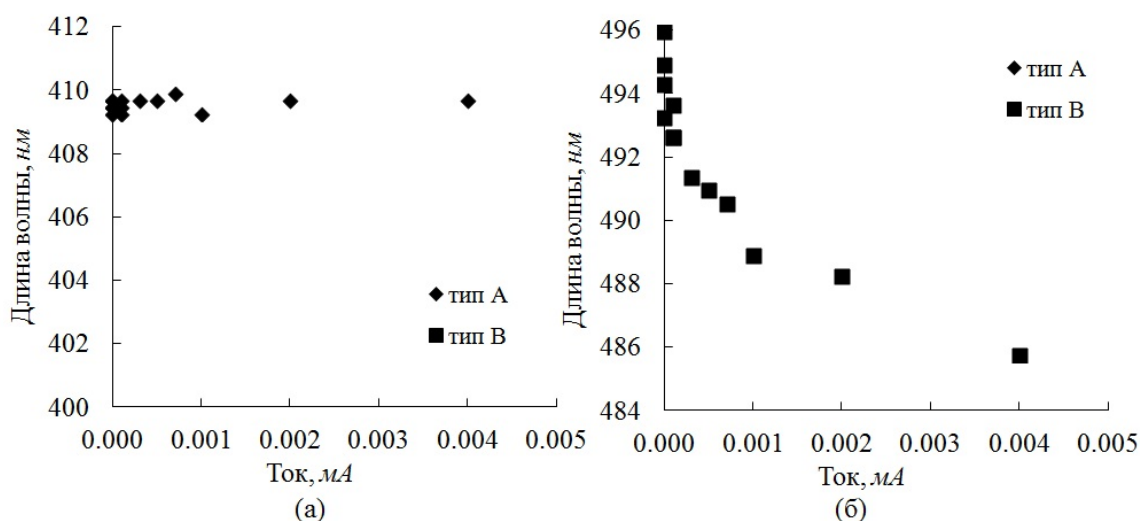


Рис. 4. Зависимость длины волны в максимуме излучения от пропускаемого тока СИД типа А (а) и типа В (б)

Наногетероструктуры со сверхрешеткой демонстрируют отсутствие сдвига рабочего максимума спектра (рис. 4а). Как мы считаем, это обусловлено компенсацией упругих напряжений сверхрешеткой и снижением связанного с ними электрического поля на гетерограницах до очень малых величин. Объясняется это следующим образом. Квантовые ямы сделаны на основе твердых растворов InGaN. Период решетки в них больше периода решетки барьеров из нитрида галлия. Сверхрешетка сделана с использованием твердого раствора AlGaN. Ее период решетки меньше, чем у нитрида галлия. В результате растягивающие и сжимающие воздействия компенсируют друг друга. Таким образом, структура типа А демонстрирует значительно более высокую стабильность длины волны излучения.

Упругие напряжения будут релаксировать в процессе работы излучателя с образованием дислокационных дефектов в активной области. Компенсация напряжений, создаваемая

сверхрешеткой, должна снизить образование дислокаций в структуре типа А. Для определения величины этого снижения были проведены сравнительные исследования структур типа А и В методами рентгеновской дифрактометрии (XRD), ВИМС и атомно-силовой микроскопии (АСМ) аналогично [11]. Дифрактометрия продемонстрировала высокие параметры структур типа А с точки зрения периодичности следования слоев и качества гетероинтерфейсов. ВИМС-профили показали весьма похожие распределения концентрации атомов в слоях квантовых ям активной области, что говорит об отсутствии взаимопроникновения атомов алюминия в активную область структур типа А. Важные результаты получены при исследовании структур методом АСМ. Было показано, что в структурах типа А, содержащих сверхрешетку, наблюдается снижение концентрации прорастающих дислокаций примерно на 20% до значений  $(3-4) \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$ . Поскольку остальная часть структуры осталась прежней, можно уверенно утверждать, что снижение концентрации дефектов обусловлено влиянием введения сверхрешетки и связанным с ним снижением величины упругих напряжений. Остаточное значение плотности дислокаций обусловлено рассогласованием периода решетки сапфира и нитрида галлия, что лишь частично может быть скомпенсировано за счет использования буферного слоя на границе с подложкой.

Эксперименты, проведенные в представленной работе, также показали, что интенсивность люминесценции и эффективность структур со сверхрешетками существенно выше, чем у типа В. Кроме того, в кристаллах типа А отклонение от линейной зависимости начинается при больших токах. Это говорит о меньшем влиянии самонагрева [9], что, в свою очередь, обусловлено меньшей концентрацией дефектов. Поэтому такая структура может обладать лучшими рабочими параметрами.

Таким образом, структуры со сверхрешеткой позволяют создать более яркие светоизлучающие диоды.

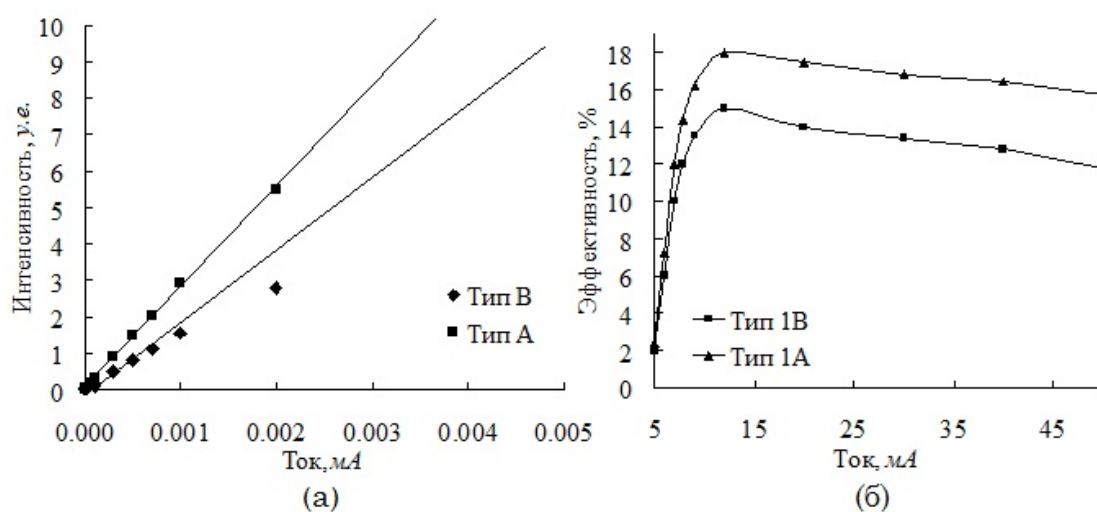


Рис. 5. Зависимость интенсивности излучения в максимуме (а) и эффективности (б) от пропускаемого тока СИД типа А и типа В

#### 4. Выводы

В работе исследовалась люминесценция излучающих наногетероструктур, выполненных на основе твердых растворов  $(\text{Al,Ga,In})\text{N}$ . Некоторые из них между активной областью и завершающим  $p$ -слоем GaN содержали сверхрешетку. Такие образцы были названы типом А, остальные типом — В. Эксперимент проводился в широком диапазоне воздействующих температур (10–300 К) и пропускаемых токов (10 нА – 2 мА). Основное внимание при анализе экспериментальных данных было уделено сравнению люминесцентных свойств структур типа А и В с учетом влияния сверхрешетки.

Было рассмотрено влияние на спектр люминесценции изменения силы пропускаемого прямого тока при различных температурах окружающей среды (10–300 К). В этих условиях наблюдалось не только тепловое смещение пиковой длины волны излучения, но и скачкообразное переключение максимума свечения на другую длину волны, что может говорить об изменении рабочих уровней в квантовой яме. Обнаруженный эффект, скорее всего, связан с изменением вероятностей оптических переходов между различными уровнями размерного квантования при понижении температуры.

Кроме того, было установлено, что структура типа А обладает более высокой стабильностью работы и лучшими рабочими характеристиками. Мы считаем, что это вызвано следующими факторами: релаксацией упругих напряжений, как следствие, снижением дефектности и самонагрева структуры. Использование сверхрешетки позволяет компенсировать упругие напряжения и встроенное электрическое поле, возникшее из-за деформации решетки на гетерогранице. Показано, что такая компенсация напряжений снижает образование дислокаций в структуре типа А, что увеличивает интенсивность излучения, эффективность и уменьшает эффекты самонагрева.

\*Работа доложена на 5-й Всероссийской конференции молодых ученых «Микро-, нанотехнологии и их применение» им. Ю.В. Дубровского, ИПТМ РАН, Черноголовка, 19–22 ноября 2012 года.

## Литература

1. Цацульников А.Ф., Лундин В.В., Сахаров А.В., Заварин Е.Е., Усов С.О., Николаев А.Е., Крыжановская Н.В., Синицын М.А., Сизов В.С., Закгейм А.Л., Мизеров М.Н. Монолитный белый светодиод с активной областью на основе квантовых ям InGaN, разделенных короткопериодными InGaN/GaN-сверхрешетками // Физика и техника полупроводников. — 2010. — Т. 44, вып. 6. — С. 837–840.
2. Menkovich E.A., Tarasov S.A., Lamkin I.A. Luminescence of nanostructures based on semiconductor nitrides // Functional Materials. — 2012. — Т 19, N 2. — P. 233–237.
3. Кладько В.П., Кучук А.В., Сафрюк Н.В., Мачулин В.Ф., Беляев А.Е., Конакова Р.В., Явич Б.С., Бер Б.Я., Казанцев Д.Ю. Эволюция деформационного состояния и компонентного состава при изменении количества квантовых ям в многослойных структурах InGaN/GaN // Физика и техника полупроводников. — 2011 — Т. 45, вып. 6. — С. 770–777.
4. Лундин В.В., Николаев А.Е., Сахаров А.В., Заварин Е.Е., Усов С.О., Сизов В.С., Закгейм А.Л., Черняков А.Е., Цацульников А.Ф. Высокоэффективные InGaN/GaN/AlGaIn светодиоды с короткопериодной InGaN/GaN сверхрешеткой для диапазона 530–560 нм // Письма в Журнал технической физики. — 2010. — Т. 36, вып. 22. — С. 89–95.
5. Davydov S.Yu., Solomonov A.V. Elastic properties of gallium and aluminum nitrides // Technical Physics Letters. — 1999. — Т. 25, N 8. — С. 601–602.
6. Ламкин И.А., Тарасов С.А., Пихтин А.Н. Оптимизация технологии получения омических контактов к эпитаксиальным слоям p-GaN // Известия СПбГЭТУ «ЛЭТИ». — 2011. — № 5. — С. 14–18.
7. Калинин В.В., Ламкин И.А., Тарасов С.А. Моделирование вольт-фарадных и вольт-амперных характеристик ДНФЕТ на основе гетероструктур AlGaIn/GaN // Известия СПбГЭТУ «ЛЭТИ». — 2012. — № 2. — С. 16–20.
8. Менькович Е.А., Ламкин И.А., Тарасов С.А. Тест-система определения параметров светодиодов и быстрой диагностики их качества // Известия СПбГЭТУ «ЛЭТИ». — 2012. — № 10. — С. 18–23.

9. Кучерова О.В., Зубков В.И., Цвелев Е.О., Яковлев И.Н., Соломонов А.В. Неразрушающая диагностика наногетероструктур с множественными квантовыми ямами InGaN/GaN методом температурной спектроскопии адмиттанс // Заводская лаборатория. Диагностика материалов. — 2010. — Т. 76, № 3. — С. 24–28.
10. Nanhui N., Huaibing W., Jianping L., Naixin L., Yanhui X., Jun H., Jun D., Guangdi S. Improved quality of InGaN/GaN multiple quantum wells by a strain relief layer // Journal of Crystal Growth. — 2006. — V. 286, N 2. — P. 209–212.
11. Törmä P.T., Svensk O., Ali M., Suikkonen S., Sopanen M., Odnoblyudov M.A., Bougrov V.E. Effect of InGaN underneath layer on MOVPE-grown InGaN/GaN blue LEDs // Journal of Crystal Growth. — 2008. — V. 310, N 23. — P. 5162–5165.

Поступила в редакцию 18.11.2012.