

УДК 538.911:535.376

В.И. ОЛЕШКО, С.Г. ГОРИНА*, В.И. КОРЕПАНОВ*, В.М. ЛИСИЦЫН*, И.А. ПРУДАЕВ**, О.П. ТОЛБАНОВ***

ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ СВЕТОДИОДНЫХ СТРУКТУР ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ СИЛЬНОТОЧНЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ¹

Изучена возможность применения сильноточных электронных пучков для люминесцентного контроля светодиодных гетероструктур InGaN/GaN, нанесенных на сапфировые подложки. Показано, что возбуждение образцов электронным пучком со стороны гетероструктуры приводит к интенсивной люминесценции эпитаксиальных слоев GaN и InGaN, характеристики которой определяются предысторией образцов. Обнаружено вынужденное излучение, возникающее в отдельных светодиодных структурах при достижении плотности энергии электронного пучка порогового значения. Переход в режим вынужденного излучения в InGaN-квантовых ямах сопровождается появлением светящегося «гало» вокруг зоны возбуждения.

Ключевые слова: светодиодные гетероструктуры, нитрид галлия, люминесценция, сильноточные электронные пучки, вынужденное излучение.

Введение

Технология эпитаксиального выращивания светодиодных структур с множественными квантовыми ямами (MQW) на основе InGaN/GaN требует контроля отдельных технологических операций ростового процесса и оценки влияния дефектов собственной и примесной природы на оптические свойства гетероструктур. Люминесцентная диагностика, как известно, позволяет контролировать степень стехиометрии, наличие примесей и дефектов, определять параметры переходных областей в гетеропереходах и на границах раздела слой – подложка в эпитаксиальных структурах, пригодность структур для изготовления источников света [1–4].

При исследовании люминесценции светодиодных структур толщиной 10–100 нм обычно используется возбуждение фотонами с энергией кванта, превышающей ширину запрещенной зоны эпитаксиальных слоев [1, 2]. Метод фотолюминесценции (ФЛ) позволяет получать информацию о достаточно тонких слоях, что связано с большим коэффициентом поглощения возбуждающего излучения. Преимущество катодолюминесцентного (КЛ) метода диагностики светодиодных структур заключается в возможности более однородного возбуждения толстых (1–10 мкм) слоев и получении информации обо всей структуре в целом. Для реализации КЛ-метода обычно используют электронные пучки с энергией 10–50 кэВ и током 10^{-9} – 10^{-7} А [3, 4].

Широкое распространение при проведении фундаментальных исследований и катодолюминесцентной диагностики полупроводниковых и диэлектрических макрокристаллов получили высокоэнергетические (100–400 кэВ), сильноточные (1 – 10^3 А) электронные пучки (СЭП), формируемые в высоковольтном вакуумном диоде со взрывоэмиссионным катодом [5–8]. Малая длительность импульса тока СЭП и высокая энергия электронов позволяют реализовать метод импульсной спектрометрии при однородном возбуждении слоя твердого тела толщиной ≈ 10 мкм. В литературе отсутствуют сведения о люминесценции тонкопленочных (10–100 нм) светодиодных гетероструктур на основе InGaN-квантовых ям, возбуждаемой СЭП.

Цель настоящей работы заключается в выявлении дополнительных возможностей, открывающихся при применении высокоэнергетических СЭП в качестве источника возбуждения для люминесцентной диагностики тонкопленочных светодиодных структур с MQW на основе InGaN/GaN, выращенных на сапфировых подложках.

1. Эксперимент

В работе исследовались три светодиодные структуры AlGaIn/InGaN/GaN (ГС₁, ГС₂ и ГС₃). Структуры были выращены в различных лабораториях методом металлоорганической газофазной эпитаксии на сапфире с ориентацией [0001]. Общая схема для всех гетероструктур приведена на

¹ Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки РФ (госзадание № 2.3302.2011) и ФЦП ГК № 16.516.11.6100.

рис. 1. Активная область состояла из квантовых ям и барьеров InGaN/GaN. Плотность дислокаций в образцах ГС₁, ГС₂ и ГС₃ составляла соответственно $(1-5) \cdot 10^7 \text{ см}^{-2}$, $(1-5) \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$ и $(1-5) \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$.

Светодиодные структуры изучались методом импульсной КЛ с возбуждением СЭП. Облучение образцов и измерение КЛ проводились со стороны гетероструктуры при температуре 300 К.

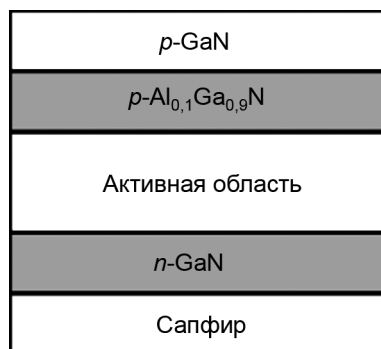


Рис. 1. Схематическое изображение структуры исследуемых образцов

Средняя энергия электронов в спектре $\approx 250 \text{ кэВ}$, длительность импульса тока $\approx 10 \text{ нс}$. Плотность энергии электронного пучка H варьировалась в диапазоне $0,005-0,3 \text{ Дж/см}^2$.

Использовались два метода регистрации спектров КЛ: «спектр по точкам» и «спектр за импульс». Первый метод позволял регистрировать спектры КЛ с временным разрешением $\approx 10 \text{ нс}$ с помощью монохроматора МДР-23, ФЭУ-84 и осциллографа TDS 2014.

Во втором методе регистрировались интегральные (по времени) спектры КЛ с помощью оптоволоконного спектрометра AvaSpec-3648 с 3648 элементной CCD-детекторной матрицей. Спектральный диапазон измерений $200-1100 \text{ нм}$. Обратная линейная дисперсия $1,2 \text{ нм/мм}$. Пространственное распределение КЛ по поверхности образца фотографировалось зеркальной цифровой фотокамерой SONY DSLR-A500 за один импульс возбуждения через микроскоп МБС-10.

2. Результаты и их обсуждение

Типичные для комнатной температуры спектры КЛ светодиодных структур ГС₁ (кривая 2) и ГС₃ (кривая 1), измеренные в момент окончания импульса возбуждения при $H = 0,04 \text{ Дж/см}^2$, приведены на рис. 2. Видно, что при малой H спектр КЛ образцов состоит из двух явно выраженных полос излучения, максимумы которых $h\nu_m$ соответствуют энергиям $3,35-3,37$ и $2,80-2,82 \text{ эВ}$. УФ-линия излучения в области $3,35-3,37 \text{ эВ}$ (ширина на полувысоте $\text{FWHM} \approx 100 \text{ мэВ}$, время затухания не больше 10 нс), согласно данным, приведенным в [9], принадлежит GaN ($E_g = 3,39 \text{ эВ}$ при 300 К) и обусловлена рекомбинацией связанных на дефектах экситонов. Спектральные характеристики «голубой» полосы люминесценции ($h\nu_m \approx 2,80-2,82 \text{ эВ}$, $\text{FWHM} \approx 160-200 \text{ мэВ}$) и сдвиг максимума полосы со временем в длинноволновую область спектра позволяют сделать предположение о том, что она связана с рекомбинацией донорно-акцепторных пар, образующихся в InGaN-квантовых ямах в процессе выращивания гетероструктур. Это предположение подтверждают и кинетические характеристики полосы. Время затухания полосы с $h\nu_m \approx 2,80-2,82 \text{ эВ}$ не экспоненциально, находится во временном диапазоне $50-250 \text{ нс}$ при 300 К и определяется предысторией образцов. При увеличении уровня возбуждения максимум «голубой» полосы сдвигается в коротковолновую область спектра.

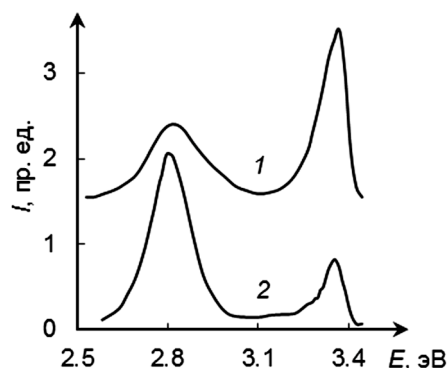


Рис. 2. Спектры КЛ образцов ГС₃ (кр. 1) и ГС₁ (кр. 2), измеренные «по точкам» при $H = 0,04 \text{ Дж/см}^2$

Изучено влияние плотности энергии электронного пучка H на спектрально-кинетические характеристики и интенсивность КЛ светодиодных структур. Обнаружено, что при достижении H порогового значения (для образца ГС₁ $H \approx 0,06 \text{ Дж/см}^2$) на фоне широкой «голубой» полосы начинает формироваться узкая линия излучения с пиком при $h\nu = 2,78 \text{ эВ}$. При увеличении H наблюдается сверхлинейный рост её интенсивности и уменьшение длительности импульса свечения, что свидетельствует о переходе спонтанной люминесценции в режим вынужденного излучения.

На рис. 3 представлены спектры КЛ исследованных образцов, измеренные при $H = 0,26 \text{ Дж/см}^2$. Видно, что в образце ГС₁ формируются две узкие линии вынужденного излучения. Первая с пиком при $h\nu = 3,30 \text{ эВ}$ ($\text{FWHM} \approx 17 \text{ мэВ}$) принадлежит GaN, вторая ($h\nu = 2,78 \text{ эВ}$, $\text{FWHM} \approx 15 \text{ мэВ}$) является преимущественной в спектре излучения квантовых ям. В образце ГС₂ вынужденное излучение в GaN отсутствует и наблюдается только в квантовых ямах при $h\nu = 2,78 \text{ эВ}$ ($\text{FWHM} \approx 15 \text{ мэВ}$). Формирование узких линий интенсивного излучения можно объяснить вынужденной излучательной рекомбинацией в электронно-дырочной плазме, которая обра-

зуется в эпитаксиальных слоях при достижении уровня возбуждения порогового значения. В образце ГС₃ наблюдаются только полосы спонтанной люминесценции (рис. 3, кривая 3). Отсутствие вынужденного излучения в образце ГС₃ свидетельствует о высокой концентрации дефектов (в частности высокой плотности дислокаций), образующихся при выращивании данной структуры.

Изучено пространственное (по поверхности образцов) распределение КЛ. Облучение светодиодных структур в эксперименте проводилось со стороны гетероструктуры через отверстие в коллиматоре диаметром $D = 2$ мм однородным по облучаемой поверхности электронным пучком. Фотографирование осуществлялось со стороны сапфировой подложки.

Обнаружено, что в образцах ГС₁ и ГС₂ формирование вынужденного излучения в InGaN-квантовых ямах сопровождается появлением «галло» – светящегося кольца вокруг области, возбуждаемой электронным пучком. На рис. 4 приведена фотография пространственного распределения КЛ в образцах ГС₁ и ГС₃ при $H = 0,26$ Дж/см²

Образец ГС₁ располагался слева, а образец ГС₃ справа относительно центра коллиматора. Видно, что «галло» формируется только в образце ГС₁, в котором наблюдается вынужденное излучение.

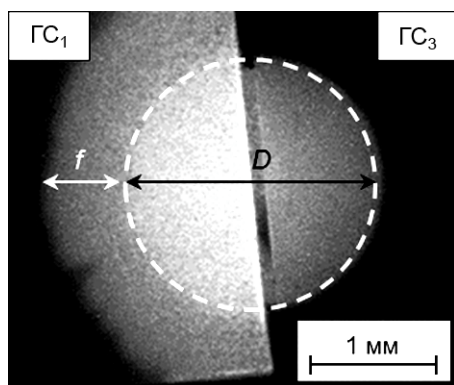


Рис. 4. Фотография свечения образцов ГС₁ и ГС₃, полученная за один импульс возбуждения электронным пучком ($H = 0,26$ Дж/см²); D – диаметр коллиматора; f – ширина «галло»

Интенсивность свечения сапфировой подложки, в которой поглощается 95 % энергии высокоэнергетического СЭП, как минимум на порядок меньше и в спектрах КЛ светодиодных гетероструктур не проявляется. Спектрально-кинетические, амплитудные и плотностные характеристики спонтанной КЛ гетероструктур могут быть использованы для получения информации о типе и концентрации дефектов, образующихся в процессе их выращивания. Дополнительными параметрами, характеризующими качество светодиодных структур, являются пороговая плотность энергии СЭП, при которой наблюдается переход спонтанной КЛ в режим вынужденного излучения, спектральный состав и интенсивность вынужденного излучения эпитаксиальных слоев.

Результаты исследований позволяют сделать заключение о возможности разработки экономичного и экспрессного метода контроля эпитаксиальных слоев светодиодных гетероструктур с возбуждением высокоэнергетическим электронным пучком. Отличительной чертой предлагаемого метода является возможность однородного возбуждения всех слоев светодиодной структуры и получения информации о качестве гетероструктуры в целом.

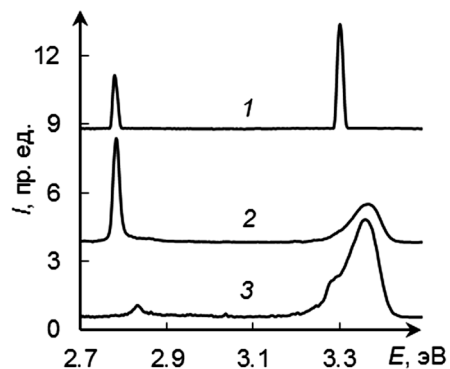


Рис. 3. Спектры КЛ образцов ГС₁ (кр. 1), ГС₂ (кр. 2) и ГС₃ (кр. 3), измеренные «за импульс» при $H = 0,26$ Дж/см²

Установлено, что ширина кольца f увеличивается по мере увеличения интенсивности вынужденного излучения. Результаты предварительных исследований позволяют сделать заключение о том, что «галло» формируется в процессе распространения вынужденного излучения квантовых ям в волноводе гетероструктуры AlGaIn/InGaIn/GaN в направлении, перпендикулярном направлению распространения электронного пучка. Часть этого излучения рассеивается и регистрируется фотоаппаратом со стороны сапфировой подложки.

Заключение

Впервые исследованы характеристики КЛ светодиодных гетероструктур AlGaIn/InGaIn/GaN, возбуждаемых СЭП. Установлено, что при низкой плотности энергии СЭП ($H \leq 0,04$ Дж/см²) в спектре КЛ исследованных образцов наблюдаются полосы спонтанной люминесценции эпитаксиальных слоев GaN- и InGaIn-квантовых ям.

Интенсивность свечения сапфировой подложки, в которой поглощается 95 % энергии высокоэнергетического СЭП, как минимум на порядок меньше и в спектрах КЛ светодиодных гетероструктур не проявляется. Спектрально-кинетические, амплитудные и плотностные характеристики спонтанной КЛ гетероструктур могут быть использованы для получения информации о типе и концентрации дефектов, образующихся в процессе их выращивания. Дополнительными параметрами, характеризующими качество светодиодных структур, являются пороговая плотность энергии СЭП, при которой наблюдается переход спонтанной КЛ в режим вынужденного излучения, спектральный состав и интенсивность вынужденного излучения эпитаксиальных слоев.

Результаты исследований позволяют сделать заключение о возможности разработки экономичного и экспрессного метода контроля эпитаксиальных слоев светодиодных гетероструктур с возбуждением высокоэнергетическим электронным пучком. Отличительной чертой предлагаемого метода является возможность однородного возбуждения всех слоев светодиодной структуры и получения информации о качестве гетероструктуры в целом.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Reshchikov M.A., Shahedipour F., Korotkov R.Y., et al. // *J. Appl. Phys.* – 2000. – V. 87. – No. 7. – P. 3351–3354.
2. Xu S.J., Li G., Chua S.J., et al. // *J. Appl. Phys.* – 1998. – V. 72. – No. 19. – P. 2451–2453.
3. Домрачева Я.В., Заморянская М.В., Попова Т.Б., Флегонтова Е.Ю. // *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования.* – 2009. – № 8. – С. 10–15.
4. Dassonneville S., Amokrane A., Sieber B., and Farvacque J.-L. // *J. Appl. Phys.* – 2001. – V. 89. – No. 12. – P. 7966–7972.
5. Lisitsyn V.M., Oleshko V.I., Polisadova E.F., et al. *Cathodoluminescence* /ed. by Naoki Yamamoto. – Rijeka: InTech, 2012. – 324 p.
6. Oleshko V.I., Vilchinskaya S.S., Lisitsyn V.M., and Korepanov V.I. // *Funct. Mater.* – 2011. – V. 18. – No. 4. – P. 457–461.
7. Oleshko V.I., Vilchinskaya S.S., and Gorina S.G. // *Euras. Phys. Tech. J.* – 2011. – V. 8. – No. 1(15). – P. 3–9.
8. Лисицына Л.А., Олешко В.И., Путинцева С.Н., Лисицын В.М. // *Опт. и спектр.* – 2008. – Т. 105. – № 4. – С. 598–604.
9. Reshchikov M.A. and Markoç H. // *J. Appl. Phys.* – 2005. – V. 97. – P. 061301.

*Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
г. Томск, Россия

Поступила в редакцию 15.06.12.

**Национальный исследовательский Томский государственный университет,
г. Томск, Россия
E-mail: oleshko@tpu.ru

Олешко Владимир Иванович, д.ф.-м.н., профессор;
Горина Светлана Геннадьевна, аспирантка;
Корепанов Владимир Иванович, д.ф.-м.н., профессор;
Лисицын Виктор Михайлович, д.ф.-м.н., профессор;
Прудаев Илья Анатольевич, к.ф.-м.н., ст. науч. сотр.;
Толбанов Олег Петрович, д.ф.-м.н., профессор.