

УДК 621.382.2

*И.С. РОМАНОВ**, *И.А. ПРУДАЕВ**, *В.Н. БРУДНЫЙ**, *В.В. КОПЬЕВ**, *Вад.А. НОВИКОВ**,
*А.А. МАРМАЛЮК***, *В.А. КУРЕШОВ***, *Д.Р. САБИТОВ***, *А.В. МАЗАЛОВ***

ВЛИЯНИЕ ТОЛЩИНЫ БАРЬЕРОВ СВЕТОДИОДНЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУР (0001) InGaN/GaN/Al₂O₃ НА ИХ ОПТИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ¹

Представлены результаты численного и экспериментального исследования напряженности электрического поля, длины волны фотолюминесценции и внутренней квантовой эффективности светодиодных гетероструктур (0001) InGaN/GaN синего свечения с множественными квантовыми ямами InGaN и с толщиной барьерных слоев GaN 3, 10 и 15 нм. Показано, что уменьшение толщины барьерных слоев GaN приводит к коротковолновому сдвигу длины волны излучения светодиодных структур и росту внутренней квантовой эффективности структуры в области высокой плотности мощности накачки.

Ключевые слова: нитриды галлия и индия, квантовая яма, квантово-размерный эффект Штарка, фотолюминесценция, внутренняя квантовая эффективность, светодиод.

Введение

Характерной особенностью светодиодных гетероструктур InGaN/GaN/Al₂O₃(0001) является наличие встроенных электрических полей, вызванных спонтанной поляризацией P_s и пьезоэффектом P_z , напряженность которых может составлять 1–3 МВ/см [1]. В гетероструктурах с множественными квантовыми ямами (МКЯ) на основе InGaN встроенные электрические поля приводят к длинноволновому сдвигу энергии излучения и пространственному разделению электронов и дырок (квантово-размерному эффекту Штарка (Quantum-Confined Stark Effect, QCSE)). Как следствие, это вызывает снижение интенсивности излучательной рекомбинации в активной области квантово-размерных гетероструктур и приводит к коротковолновому смещению спектров излучения при повышении уровня инжекции носителей заряда в активную область структуры вследствие кулоновского экранирования встроенного электрического поля.

Величина встроенного электрического поля определяется значением спонтанной поляризации используемых материалов и величиной пьезоэлектрической поляризации, которая зависит от биаксиальных упругих напряжений сжатия (растяжения), развиваемых на интерфейсе InGaN/GaN вследствие несоответствия постоянных решеток в базальных плоскостях InN (3.582 Å) и GaN (3.223 Å). В случае твердого раствора In_xGa_{1-x}N постоянная решетки a может быть оценена в приближении виртуального кристалла. Изменение состава In_xGa_{1-x}N и толщины барьерных слоев GaN в активной области структуры приводит к изменению упругих напряжений в квантовой яме (КЯ) и соответственно величины встроенных электрических полей, что также влияет на значение внутренней квантовой эффективности светодиодной гетероструктуры (0001) InGaN/GaN.

В работе проведена численная оценка напряженности встроенного электрического поля в КЯ InGaN и длины волны излучения при изменении толщины барьерных слоев GaN в светодиодной структуре (0001) InGaN/GaN. Экспериментально исследовано влияние толщины барьерных слоев GaN на внутреннюю квантовую эффективность (IQE) и длину волны излучения фотолюминесценции (ФЛ) таких структур.

Методика расчета

Для расчета длины волны фотолюминесценции светодиодных структур с МКЯ InGaN/GaN использовалась аналитическая модель [2], основанная на самосогласованном решении уравнений Шредингера и Пуассона и учитывающая экранирование электрического поля неравновесными носителями заряда, инжектированными в КЯ. Ширина запрещенной зоны и энергия основного состояния в КЯ при отсутствии электрического поля рассчитывались по формулам [2, 3]

$$E_g(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) = 3.42 \text{ эВ} - x \cdot 2.65 \text{ эВ} - x(1-x)2.4 \text{ эВ}; \quad (1)$$

¹ Работа выполнена при поддержке госзадания № 3.398.2014/К.

$$E_{e,h}^0 = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m_{e,h} d^2}. \quad (2)$$

Длина волны ФЛ оценивается как энергия рекомбинации электронов и дырок на основных уровнях размерного квантования в КЯ. Смещение основного состояния, вызванное встроенным электрическим полем, рассчитывалось по формуле [2]

$$E_{e,h} - E_{e,h}^0 = \frac{512m_{e,h}e^2F^2d^4}{243\pi^6\hbar^2\chi^2}; \quad (3)$$

$$\chi = 1 + \frac{n}{n_{\text{scr}}}, \quad n_{\text{scr}} = \frac{27\pi^3\epsilon\hbar^2}{80e^2d^3(m_e + m_h)}, \quad (4)$$

где $E_{e,h}^0$ – энергия основного состояния при отсутствии электрического поля; $m_{e,h}$ – эффективная масса электронов (e) и дырок (h); e – заряд электрона; F – напряженность электрического поля; d – толщина КЯ; \hbar – приведенная постоянная Планка; χ – параметр, учитывающий кулоновское экранирование электрического поля в КЯ носителями заряда; n_{scr} – двумерная концентрация электронно-дырочных пар в КЯ. Формулы (2) – (4) могут быть использованы для КЯ с конечной высотой барьера U_0 , если заменить номинальную толщину КЯ на ее эффективную толщину; $d_{e,h}^{\text{eff}} = d + K\hbar\sqrt{2m_{e,h}U_0}$ где K – аппроксимирующий параметр равный 2.4 [2]. Для определения глубины КЯ использовано соотношение разрыва зоны проводимости ΔE_c и валентной зоны ΔE_v на гетерогранице InGaN/GaN: $\Delta E_v/\Delta E_c = 0.3/0.7$ [4].

Напряженность встроенного электрического поля F в квантовой яме InGaN оценивалась в соответствии с выражением [1]

$$F = -\frac{l(P_S^{\text{InGaN}} + P_{PZ}^{\text{InGaN}} - P_S^{\text{GaN}})}{\epsilon_0(\epsilon^{\text{GaN}}d + \epsilon^{\text{InGaN}}l)}, \quad (5)$$

где l – толщина барьерного слоя GaN; P_S^{InGaN} , P_S^{GaN} и P_{PZ}^{InGaN} – значения спонтанной поляризации в GaN, спонтанной и пьезоэлектрической поляризации в InGaN; ϵ_0 – абсолютная диэлектрическая проницаемость; ϵ^{GaN} и ϵ^{InGaN} – относительные диэлектрические постоянные GaN и InGaN. Как видно из выражения (5), величина встроенного электрического поля зависит от толщины энергетического барьера и КЯ и от содержания In в слоях InGaN.

Таким образом, вышеприведенные выражения позволяют рассчитать длину волны ФЛ светодиодной структуры InGaN/GaN/Al₂O₃ и напряженность электрического поля при различных толщинах барьерных слоев GaN и составов InGaN.

Эксперимент

Светодиодные структуры InGaN/GaN/Al₂O₃ выращивались методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений в горизонтальном планетарном реакторе установки AIXTRON 2400. В качестве источников элементов III группы использовались металлоорганические соединения: триметилиндий In(CH₃)₃, триметилгаллий Ga(CH₃)₃ и триэтилгаллий Ga(C₂H₅)₃, а в качестве источника азота – аммиак NH₃. Для получения материала p -типа проводимости использовался бис-циклопентодиенил магния Mg(C₅H₅)₂, а для получения материала n -типа проводимости – моносилан SiH₄. В качестве газа-носителя во время роста КЯ InGaN/GaN применялся азот, остальная часть гетероструктуры выращивалась с использованием газа-носителя водорода. Светодиодные структуры содержали низкотемпературный зародышевый слой, буферный слой i -GaN толщиной 2 мкм, слой n -GaN толщиной 2 мкм, активную область на основе 5 КЯ InGaN/GaN и слой p -GaN толщиной 140 нм. Исследованы структуры с толщиной барьерных слоев GaN в активной области 3, 10 и 15 нм (образцы A , B и C соответственно) при постоянной толщине КЯ 3 нм.

Для определения IQE проводились измерения интегральной интенсивности фотолюминесценции в зависимости от интенсивности возбуждающего излучения при низкой (10 К) и комнатной (300 К) температурах по методике [5], подробно описанной в [6, 7]. При измерениях IQE в качестве возбуждающего оптического источника использовался импульсный YAG-лазер со

средней мощностью 35 мВт (длительность импульса – 10 нс, частота следования импульсов 1 кГц, длина волны излучения – 355 нм). Измерения ФЛ по площади 2-дюймовой пластины проводились при возбуждении YAG-лазером с длиной волны 266 нм при низком уровне возбуждения (концентрация носителей заряда в активной области около 10^{15} см^{-3}). Для регистрации спектров ФЛ использовался оптоволоконный спектрометр Ocean Optics USB2000.

Результаты и их обсуждение

При оценке напряженности встроенного электрического поля использовалось значение спонтанной поляризации нитрида галлия $P_S^{\text{GaN}} = -0.0329 \text{ Кл/м}^2$ [1]. По данным высокоразрешающей рентгеновской дифрактометрии в исследованных образцах доля индия в КЯ InGaN/GaN составляет около 16.8 %, что в соответствии с расчетными данными [1] позволяет оценить $P_S^{\text{InGaN}} = -0.037 \text{ Кл/м}^2$ и $P_{PZ}^{\text{InGaN}} = 0.0202 \text{ Кл/м}^2$. Используются расчетные значения статических диэлектрических постоянных $\epsilon^{\text{GaN}} = 11.71$ и $\epsilon^{\text{InN}} = 15.28$ [1], что близко соответствующим экспериментальным значениям 10.4 и 14.4 этих величин. Для твердого раствора $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ значения статической диэлектрической постоянной оценивалось из закона Вегарда. В таблице приведены результаты оценки величины F для структур A , B и C .

Расчетные напряженность электрического поля F и длина волны ФЛ λ_t , измеренные длина волны ФЛ λ_s и максимальное значение IQE гетероструктур (0001) InGaN/GaN, 300 К

Структура	l , нм	F , МВ/см	λ_t , нм	λ_s , нм	IQE, %
A	3	-0.76	456.9	454.4 ± 4.0	31.1 ± 1.1
B	10	-1.15	468.6	469.7 ± 2.5	26.7 ± 0.9
C	15	-1.24	472.1	477.3 ± 4.7	25.6 ± 0.9

Расчетные оценки проводились при концентрации носителей заряда 10^{15} см^{-3} в активной области структуры, что соответствует экспериментальным условиям. Стоит отметить, что при данной концентрации носителей заряда коэффициент χ равен 1, что свидетельствует о пренебрежимо малом кулоновском экранировании электрического поля в КЯ. Рассчитанные и измеренные значения длин волны ФЛ, представленные в таблице, демонстрируют хорошее совпадение экспериментальных и оценочных значений для исследованных образцов.

Значение длины волны в предположении отсутствия встроенного электрического поля составляет 448.4 нм. Таким образом, длинноволновый сдвиг ФЛ, вызванный встроенным электрическим полем для структур A , B и C , составляет около 8.5, 20.2 и 23.7 нм соответственно. Величина сдвига основных уровней размерного квантования электронов и дырок, вызванная QCSE, изменяется от 12 и 33 мэВ до 40 и 107 мэВ соответственно при изменении толщины барьерных слоев от 3 до 15 нм.

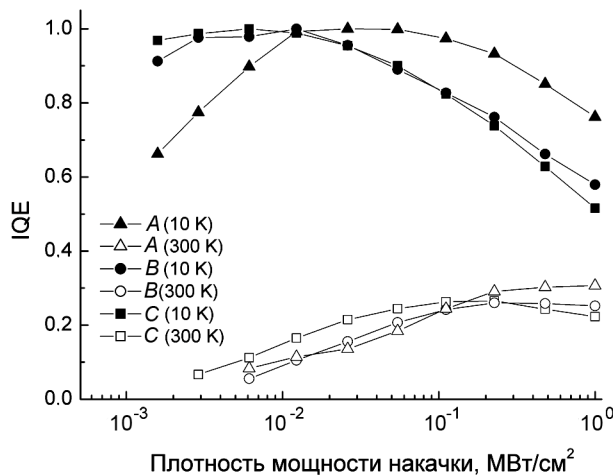


Рис. 1. Зависимость IQE от плотности мощности накачки при температурах 10 и 300 К для образцов A , B и C

от 12 и 33 мэВ до 40 и 107 мэВ соответственно при изменении толщины барьерных слоев от 3 до 15 нм.

На рис. 1 представлены экспериментальные зависимости IQE от плотности мощности накачки для исследованных образцов при температурах 10 и 300 К, которые могут быть описаны в рамках ABC -модели [8] с учетом рекомбинацией Шокли – Рида, излучательной рекомбинации и ожерекрекомбинации. В области низких температур, при 10 К, время жизни излучательной рекомбинации становится много меньше времени жизни рекомбинации Шокли – Рида, что приводит к росту IQE до значений, близких к 100 %. Это позволяет провести нормировку зависимости IQE от мощно-

сти накачки и оценить максимальное значение внутренней квантовой эффективности при комнатной температуре. Как следует из представленных данных, уменьшение толщины барьерных слоев от 15 до 3 нм приводит к увеличению максимального значения IQE от 25.6 до 31.1 %, что коррелирует с уменьшением величины встроенных электрических полей.

Из рис. 1 следует, что уменьшение толщины барьера вызывает смещение кривых IQE(P) в область больших плотностей мощности накачки и росту значений IQE в области, что указывает на увеличение темпа излучательной рекомбинации предположительно за счет улучшения равномерности распределения носителей заряда по всем КЯ в структуре A при повышении туннельной прозрачности тонких барьеров [4]. Стоит отметить, что эффект туннелирования носителей заряда может иметь место при толщинах барьерных слоев более 3 нм, что связано с прыжковым механизмом переноса носителей по дефектным состояниям барьеров GaN в активной области структуры [9–11].

Заключение

Проведена численная оценка напряженности встроенного электрического поля и длины волны фотолюминесценции «синих» светодиодных структур (0001) InGaN/GaN с МКЯ с различной толщиной барьерных слоев GaN. Экспериментальные значения длины волны фотолюминесценции структур хорошо соответствуют расчетным значениям. Показано, что уменьшение толщины барьерных слоев GaN приводит к коротковолновому сдвигу полосы излучения структуры и росту ее внутренней квантовой эффективности в области высокой плотности мощности накачки.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Dong L., Mantese J.V., Avrutin V., et al. // *J. Appl. Phys.* – 2013. – V. 114. – P. 043715.
2. Bulashevich K.A., Karpov S.Yu., and Suris R.A. // *Phys. Status Solidi B.* – 2006. – V. 243. – No. 7. – P. 1625–1629.
3. Шуберт Ф. Светодиоды: пер. с англ. под ред. А.Э. Юновича. – М.: Физматлит, 2008. – 496 с.
4. Zakheim D.A., Pavluchenko A.S., Bauman D.A., et al. // *Phys. Stat. Sol. A.* – 2012. – V. 209. – No. 3. – P. 456–460.
5. Watanabe S., Yamada N., Nagashima M., et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2003. – V. 83. – P. 4906.
6. Романов И.С., Прудаев И.А., Мармалюк А.А. и др. // *Изв. вузов Физика.* – 2013. – Т. 56. – № 7. – С. 33–35.
7. Прудаев И.А., Романов И.С., Копьев В.В. и др. // *Изв. вузов Физика.* – 2013. – Т. 56. – № 7. – С. 30–32.
8. Shen Y.C., Muller G.O., Watanabe S., et al. // *Appl. Phys. Lett.* – 2007. – V. 91. – P. 141101.
9. Прудаев И.А., Голыгин И.Ю., Ширапов С.Б. и др. // *ФТП.* – 2013. – Т. 47. – Вып. 10. – С. 1391.
10. Прудаев И.А., Зубрилкина Ю.Л., Бактыбаев А.А., Романов И.С. // *Изв. вузов Физика.* – 2014. – Т. 57. – № 9. – С. 86–89.
11. Prudaev I., Tolbanov O., and Khludkov S. // *Phys. Stat. Sol. A.* – 2015. – V. 212. – No. 5. – P. 930–934.

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

E-mail: rff.romis@gmail.com; funcelab@gmail.com; brudnyi@mail.tsu.ru

**ООО «СигмПлюс», г. Москва, Россия

E-mail: almarm@mail.ru

Романов Иван Сергеевич, мл. науч. сотр.;

Прудаев Илья Анатольевич, к.ф.-м.н., ст. науч. сотр.;

Брудный Валентин Натанович, д.ф.-м.н., профессор;

Копьев Виктор Васильевич, магистрант;

Новиков Вадим Александрович, науч. сотр.;

Мармалюк Александр Анатольевич, д.т.н., технический директор;

Курешов Владимир Александрович, инженер;

Сабитов Дамир Равильевич, инженер;

Мазалов Александр Владимирович, инженер.