

06

## **Выращивание гетероструктур GaN/InGaN методом аммиачной МЛЭ с использованием „смачивающего“ слоя металлического индия**

© А.Н. Алексеев, А.Э. Бырназ, Д.М. Красовицкий, М.В. Павленко, С.И. Петров, Ю.В. Погорельский, И.А. Соколов, М.А. Соколов, М.В. Степанов, В.П. Чалый, А.П. Шкурко

ЗАО „Светлана-РОСТ“, Санкт-Петербург  
E-mail: support@semiteq.ru

Поступило в Редакцию 11 января 2008 г.

Исследовано влияние условий роста слоев InGaN методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) с использованием аммиака в качестве источника азота на свойства гетероструктур GaN/InGaN. Установлено, что зависимость критического потока индия, приводящего к каплеобразованию при выращивании слоев InGaN на GaN, экспоненциальна и определяется усиливающейся десорбцией индия с поверхности растущего слоя при повышении температуры роста. Выращивание слоев InGaN на GaN даже при максимально возможном не приводящем к каплеобразованию потоке индия приводит к тому, что профиль распределения индия в слоях InGaN растянут. Показано, что для получения резких гетерограниц и увеличения содержания индия в тонких слоях InGaN необходимо поддержание на поверхности GaN перед и в ходе роста InGaN так называемого „смачивающего“ слоя металлического индия. На основании полученных результатов установлены базовые условия роста тонких слоев InGaN для активной области светоизлучающих приборов сине-фиолетовой области спектра.

PACS: 71.55.Eq, 74.78.Fk, 81.15.-z, 81.16.-c

В настоящее время на основе нитридов металлов III группы промышленно производятся синие и зеленые светодиоды, которые находят применение в полноцветных дисплеях, светофорах, индикаторных и других приборах. Созданы синие лазеры, использование которых в устройствах хранения информации позволяет значительно увеличить плотность записи, однако стоимость подобных устройств пока доста-

точно высока. Активно развивается направление по созданию белых источников света с низким энергопотреблением на основе ультрафиолетовых светодиодов, покрытых люминофором. В таких светоизлучающих приборах в активной области находится один или несколько квантовых слоев InGaN с различным содержанием In, расположенные в обкладках широкозонных материалов GaN и AlGaN. Гетероструктуры для массового производства светоизлучающих приборов выращиваются в основном методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений (МОГФЭ). Это обусловлено меньшей по сравнению со слоями, получаемыми МЛЭ, плотностью дислокаций, являющихся центрами безызлучательной рекомбинации и значительно уменьшающими квантовый выход. Типичная выходная мощность оптического излучения светодиодов на основе нитридов металлов третьей группы, выращенных методом МОГФЭ, составляет несколько мW при токе 20 мА, что соответствует внешнему квантовому выходу 5–10%. При этом мощность излучения уменьшается при увеличении длины волны, так как слои с большим содержанием In имеют более низкое качество [1]. Выходные мощности светодиодов, выращенных МЛЭ на сапфире, не превышают 0.1 мW [2,3]. С этой точки зрения МЛЭ с использованием аммиака в качестве источника азота более перспективна в сравнении с плазменной МЛЭ, поскольку позволяет задать более высокие отношения V/III и более высокие температуры роста.

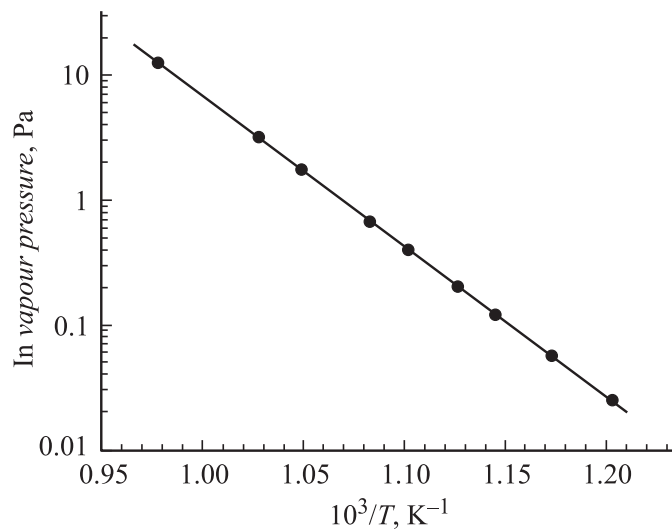
С другой стороны, на структурах, выращенных МЛЭ на „темплитах“ GaN, полученных методом МОГФЭ, изготовлены светодиоды с выходной мощностью около 1 мW при токе 20 мА и внешним квантовым выходом 1.5% [4]. Сообщается также об изготовлении светодиодов с выходной мощностью 3.75 мW при токе 20 мА и синих лазеров на структурах, выращенных МЛЭ с аммиаком на низкодислокационных „темплитах“ [5], что демонстрирует потенциальные возможности данного метода и делает его конкурентоспособным при получении сложных лазерных гетероструктур.

В данной работе приводятся результаты исследования влияния условий роста слоев InGaN методом МЛЭ с использованием аммиака в качестве источника азота на свойства гетероструктур GaN/InGaN. В частности, показано, что для получения резких гетерограниц и увеличения содержания индия в тонких слоях InGaN необходимо поддержание на поверхности GaN перед и в ходе роста InGaN так называемого „смачивающего“ слоя металлического индия.

Слои InGaN и GaN были выращены на сапфировых подложках на установке STE3N2 (Semiteq), специализированной для аммиачной молекулярно-лучевой эпитаксии нитридов III группы. Содержание In в слоях оценивали методами оже-спектроскопии и рентгеновской дифрактометрии, измерения фотолюминесценции проводили при 77 и 300 К с использованием He–Cd лазера мощностью 5 mW.

Вследствие летучести металлического In и низкой термической устойчивости InN, обычно ростовые температуры InGaN гораздо ниже по сравнению с температурами роста GaN. Проведение процесса в высоком вакууме и существенно меньшие по сравнению с МОГФЭ значения достижимых соотношений V/III в МЛЭ приводят к еще более резким температурным ограничениям вхождения индия в InGaN. Для увеличения содержания индия необходимо поддерживать достаточно высокие соотношения потоков In/Ga. Однако выше некоторого критического значения потока In при выращивании InGaN происходит образование жидких капель индия на ростовой поверхности и срыв роста. Поэтому прежде всего были определены критические потоки In, приводящие к каплеобразованию при выращивании слоев InGaN на GaN.

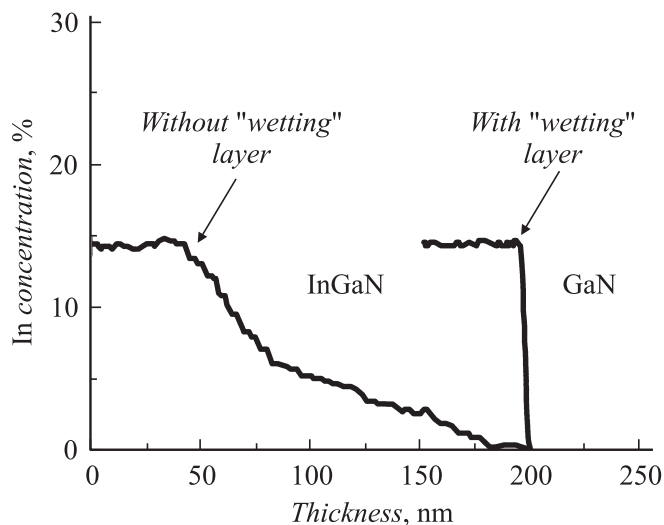
Образование капель индия исследовано в диапазоне температур роста от 560 до 750°C и потоке аммиака 400 sccm (максимальное в данной конфигурации установки значение потока аммиака). После выращивания слоя GaN толщиной 0.5 μm при температуре 900°C со скоростью роста 1 μ/h, понижали ее до 0.1 μm/h, а температуру подложки — до значения, соответствующего началу исследуемого диапазона. Далее, во время роста GaN с указанной скоростью, открывали поток индия, при котором образования капель еще не происходит. Затем поток индия плавно увеличивали. При некотором критическом потоке In наблюдался срыв роста, о чем свидетельствует увеличение интенсивности отраженного сигнала, тогда как продолжение процесса роста должно сопровождаться уменьшением интенсивности отраженного сигнала. Аналогичное изменение интенсивности отраженного сигнала наблюдается в процессе напыления металлов (Ga или In) на какую-либо подложку, поэтому срывы роста в нашем процессе можно связать с началом каплеобразования. После этого поток индия перекрывался с одновременным увеличением температуры до значений, при которых происходит заметная десорбция индия. Если поток индия оставался открытым, то на поверхности



**Рис. 1.** Характерные потоки индия в зависимости от температуры подложки.

образцов после роста обнаруживались капли металлического индия. Затем температура изменялась до следующего исследуемого значения, и процедура определения критического потока индия повторялась. С использованием данной методики определены критические потоки In в зависимости от температуры подложки. Установлено, что зависимость экспоненциальна и определяется усиливающейся десорбцией индия с поверхности растущего слоя при повышении температуры роста (рис. 1).

Слои InGaN выращивали при температуре 580°C и при максимально возможных, не приводящих к каплеобразованию, потоках индия (90–95% от критического). Выбор температуры роста был обусловлен уменьшением степени разложения аммиака при меньших температурах и усилением термического разложения InGaN при увеличении температуры. Однако выращивание слоев InGaN на GaN даже при максимально возможном, не приводящем к каплеобразованию, потоке индия приводит к тому, что профиль распределения индия в слоях InGaN, по данным оже-спектроскопии, растянут (рис. 2 — без „смачивающего“ слоя).



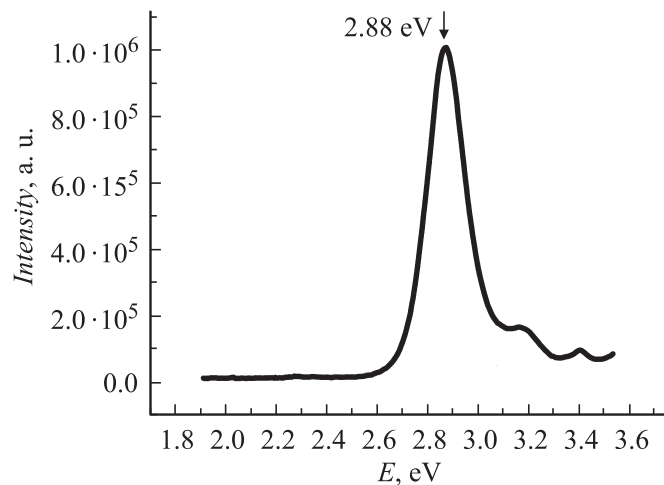
**Рис. 2.** Профили распределения индия, полученные при помощи спектроскопии, в слоях InGaN, выращенных на GaN при температуре подложки 580°C, потоке аммиака 400 sccm и потоке индия 90–95% от критического, приводящего к каплеобразованию с использованием различных методик.

Для получения резких гетерограниц и увеличения содержания индия в тонких слоях InGaN необходимы специальные процедуры. Установлено, что наличие на поверхности GaN перед выращиванием InGaN так называемого „смачивающего“ слоя металлического индия позволяет получить не только резкую гетерограницу GaN/InGaN (рис. 2 — со „смачивающим“ слоем), но и увеличить содержание индия в тонких слоях InGaN. При этом для каждой температуры подложки существует оптимальный, необходимый для образования такого „смачивающего“ слоя поток индия, равный критическому потоку индия, приводящему к образованию капель металлического индия и срыву роста при выращивании слоя InGaN. Уменьшение потока индия перед выращиванием слоя InGaN до значений, меньших оптимальных, приводит к размытию гетерограницы, а повышение потока индия до значений, больших оптимальных, приводит к изменению стехиометрии твердых растворов InGaN в сторону избытка индия.

Рассмотрим возможные причины увеличения резкости гетерограниц GaN/InGaN. При „обычном“ росте слоев InGaN из-за более слабой по сравнению с GaN связи в InN, а также механических напряжений часть индия не встраивается в растущий слой и выходит из твердой фазы на поверхность, а слой InGaN обедняется по индию. Таким образом, образуется сегрегационный слой металлического индия на поверхности, толщина которого увеличивается в течение времени. Увеличение толщины сегрегационного слоя препятствует выходу индия, что приводит к увеличению его содержания в InGaN. При использовании „смачивающего“ слоя он играет роль сегрегационного, т.е. слой индия необходимой толщины искусственно создается на поверхности до начала роста, что приводит к образованию резкой гетерограницы.

Таким образом, разработана следующая методика выращивания слоев InGaN на GaN с использованием „смачивающего“ слоя. После выращивания слоя GaN температура подложки понижалась до температуры роста слоя InGaN и открывался поток индия. При этом картина лазерной интерференции изменяется следующим образом: сначала наблюдается увеличение отраженного сигнала, связанное с образованием на поверхности образца квазиметаллического слоя адсорбированного индия, затем интенсивность сигнала падает, что связано с сегрегацией индия на поверхности и образованием кластеров, обогащенных по индию. Этот процесс сопровождается развитием шероховатости поверхности и соответствующим уменьшением отраженного сигнала. При этом возможен подбор потока In, соответствующего стационарному состоянию, т.е. равенству испаряющегося с поверхности и поступающего на нее потоков индия. По достижении стационарного состояния открывали поток галлия, что сопровождалось началом роста слоя InGaN и соответствующим ему дальнейшим уменьшением отраженного сигнала. Во время роста слоев при увеличенной температуре для подавления возрастающей десорбции индия его поток на подложку увеличивали до значений, превышающих поток галлия. При этом скорость роста слоя определяется главным образом потоком галлия, поступающим на растущую поверхность.

Далее, было исследовано влияние температуры роста на вхождение индия в тонкие (20 nm) слои InGaN, выращенные на GaN с использованием оптимального „смачивающего“ слоя, а также люминесцентные свойства этих слоев. Установлено, что при увеличении температуры подложки от 580 до 630°C концентрация индия в слоях InGaN



**Рис. 3.** Спектр фотолюминесценции при комнатной температуре образца, состоящего из трех пар слоев InGaN/GaN (20 nm/20 nm), выращенных при 650°C с использованием „смачивающего“ слоя на высокотемпературном слое GaN.

уменьшается от 15 до 11%, а положение пика краевой люминесценции при 77 K сдвигается от 2.75 до 2.88 eV соответственно. При этом происходит увеличение интенсивности фотолюминесценции на порядок. Дальнейшее увеличение температуры роста до 680°C слабее влияет на увеличение интенсивности фотолюминесценции, но при этом происходит уменьшение содержания индия в слое до 3%, а положение пика сдвигается до 3.17 eV. В спектре фотолюминесценции образца, состоящего из трех пар слоев InGaN/GaN (20 nm/20 nm), выращенных при 650°C на высокотемпературном слое GaN толщиной 1  $\mu\text{m}$ , при комнатной температуре доминирует пик 2.88 eV (рис. 3).

Таким образом, показано, что для получения резких гетерограниц и увеличения содержания индия в тонких слоях InGaN, выращиваемых методом аммиачной МЛЭ, необходимо поддержание на поверхности GaN перед ростом и в ходе роста InGaN так называемого „смачивающего“ слоя металлического индия. Установлены базовые условия роста слоев InGaN, эффективно люминесцирующих в сине-фиолетовой области спектра.

## Список литературы

- [1] *Nakamura S.* // Sol. St. Comm. 1997. V. 102. N 2–3, P. 237–248.
- [2] *Grandjean N., Massies J., Dalmaso S.* et al. // Appl. Phys. Lett. 1999. V. 74. P. 3616–3619.
- [3] *Naranjo F.B., Fernandez S., Sanchez-Garcia M.A.* et al. // Appl. Phys. Lett. 2002. V. 80. P. 2198–2200.
- [4] *Waltreit P., Sato H., Poblenz C.* et al. // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 84. N 15. P. 2748–2750.
- [5] [http://www.sle.sharp.co.uk/research/advanced\\_optoelectronics/blue\\_led\\_and\\_ld.php](http://www.sle.sharp.co.uk/research/advanced_optoelectronics/blue_led_and_ld.php)