

## ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНОК ТВЕРДЫХ РАСТВОРОВ $\text{AlN-GaN}$ , ВЫРАЩЕННЫХ НА СЛОЯХ НИТРИДА ГАЛЛИЯ

© А.С.Зубрилов, Д.В.Цветков, В.И.Николаев, И.П.Никитина

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия  
(Поступила в Редакцию 29 марта 1996 г.)

Исследовалась катодолюминесценция вблизи края поглощения из эпитаксиальных слоев твердых растворов  $\text{Al}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{N}$  ( $0 < x < 0.3$ ), выращенных на микронном слое нитрида галлия на подложке  $6H\text{-SiC}$ . Установлена зависимость энергии краевой полосы от состава твердого раствора. Рассмотрен вопрос о ее спектральном уширении.

1. В настоящее время большой интерес вызывают нитриды металлов III группы ( $\text{AlN}$ ,  $\text{GaN}$ ,  $\text{InN}$ ) и их твердые растворы. Известно, что нитриды III группы, являющиеся широкозонными полупроводниками с прямой зонной структурой [1,2], образуют непрерывный ряд твердых растворов с шириной запрещенной зоны от 6.2 ( $\text{AlN}$ ) до 1.9 eV ( $\text{InN}$ ). Благодаря этому они являются наиболее перспективными материалами для полупроводниковых приборов, излучающих в диапазоне ультрафиолетового — синего света [1-4]. До недавнего времени монокристаллические эпитаксиальные слои  $\text{GaN}$  и твердых растворов  $\text{AlGaN}$  и  $\text{InGaN}$  обычно выращивались на сапфировых подложках [5-7]. Однако, как было показано в нашей работе [8], подложка полупроводникового карбида кремния ( $\text{SiC}$ ) политипа  $6H$  для эпитаксии высококачественных монокристаллических пленок  $2H\text{-GaN}$  более предпочтительна. Это объясняется меньшим рассогласованием параметров кристаллической решетки (около 3%) и коэффициентов термического расширения слоя и подложки [1,2].

2. Эпитаксиальные слои твердых растворов  $\text{AlGaN}$  с содержанием  $\text{AlN}$  до 28% и толщиной 0.3-0.8  $\mu\text{m}$  были выращены методом химического осаждения из металлорганических соединений галлия и алюминия [9]. В качестве подложек использовались пластины  $6H\text{-SiC}$  производства фирмы Cree Research, Inc. (США), на которые тем же методом предварительно наращивался слой  $\text{GaN}$ . Эпитаксия проводилась в направлении [0001] со стороны Si-границы подложки. Люминесценция образцов изучалась при возбуждении эпитаксиальных слоев электронным пучком с энергией электронов от 4 до 15 keV. Исследование структурных свойств образцов проводилось методом рентгеновской дифракции. Состав твердого раствора определялся из рентгеновских кривых

качания, исходя из правила Вегарда. Использование последнего для твердых растворов  $\text{AlGa}_x\text{N}$  мы считаем оправданным в нашем случае по следующим причинам. Во-первых, тетраэдрические ковалентные радиусы и электроотрицательности для Ga и Al наиболее близки среди элементов III группы [10]; во-вторых, периоды кристаллических решеток  $2H\text{-AlN}$  и  $2H\text{-Ga}_x\text{N}$  различаются слабо [1]. В силу этого твердые растворы  $\text{AlGa}_x\text{N}$  близки к идеальным растворам замещения. В нашем случае, когда эпитаксия  $\text{AlGa}_x\text{N}$  осуществляется на подслое GaN соизмеримой толщины, можно было ожидать, что остаточные деформации в слоях  $\text{Al}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{N}$  при  $x < 0.3$  будут не очень велики. Действительно, оказалось, что экспериментальные значения параметра Вегарда кристаллической решетки близки к рассчитанным по правилу Вегарда. Вместе с тем полуширина кривой качания слоя  $\text{AlGa}_x\text{N}$  зависела от содержания AlN и росла с увеличением его процентного содержания. Нами обнаружена корреляция между кривыми качания подслоя GaN и выращенного на нем слоя  $\text{AlGa}_x\text{N}$ . Так, наращивание верхнего слоя приводило к уширению кривых качания подслоя до 5–7 угл. минут, в то время как сам факт существования подслоя с толщиной, близкой к толщине слоя твердого раствора, приводил к сужению кривых качания  $\text{AlGa}_x\text{N}$ .

3. На рис. 1 показаны характерные спектры катодолюминесценции (CL) при  $T = 300\text{ K}$  для твердых растворов  $\text{AlGa}_x\text{N}$  с различным процентным содержанием AlN. Можно отметить характерный синий сдвиг, рост полуширины и снижение интенсивности полосы люминесценции с увеличением процентного содержания AlN в твердом растворе. Экспериментальная зависимость энергии фотонов для максимума полосы краевой люминесценции от состава твердого раствора хорошо описывается известным выражением  $E(x) = E(0) + Ax + Bx^2$ . Параметры  $E(0)$ ,  $A$  и  $B$  для нашего случая составляют  $E(0) = 3.39\text{ eV}$ ,  $A = 2.19\text{ eV}$ ,  $B = 0.65\text{ eV}$ . Отметим, что значение коэффициента прогиба ( $B$ ) невелико и не выходит за пределы интервала известных из литературы значений этого коэффициента [11–14] для  $\text{AlGa}_x\text{N}$ , полученных из измерений края поглощения и фотолюминесценции. Экспериментальная зависимость уширения полосы краевой люминесценции от состава твердого раствора показана на рис. 2. Как известно, уширение краевой полосы люминесценции может быть вызвано многими факторами [15,16], например температурой, легированием, локальными электрическими полями, макронеоднородностями состава, а также статистически неупоря-

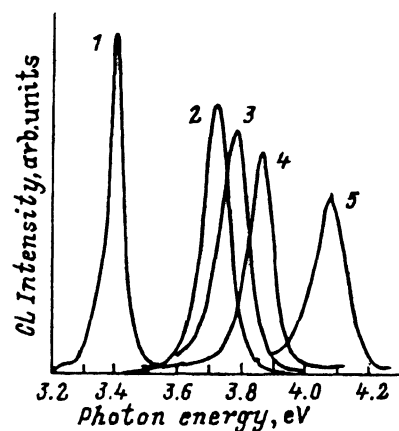


Рис. 1. Спектры катодолюминесценции эпитаксиальных слоев GaN и его твердых растворов  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  при комнатной температуре вблизи соответствующего края поглощения.  
 $x$ : 1 — 0, 2 — 0.11, 3 — 0.13, 4 — 0.16, 5 — 0.24.

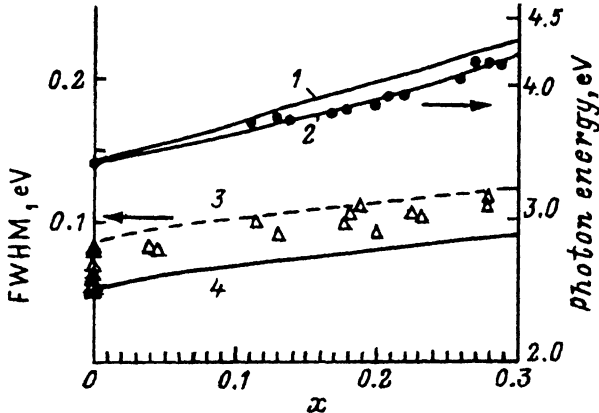


Рис. 2. Концентрационные зависимости положения краевой полосы люминесценции и полуширины этой полосы (FWHM) при 300 К.

1 — в предположении линейной зависимости  $E_g$  от  $x$ , 2 — экспериментальная зависимость энергии пика краевой люминесценции, 3, 4 — зависимость полуширины краевой полосы люминесценции в двух предельных случаях.

доченным распределением компонентов твердого раствора по узлам соответствующей подрешетки. Здесь мы полагаем, что только последний из упомянутых механизмов зависит от состава твердого раствора, во всех остальных случаях уширение краевой полосы AlGaN соответствует уширению для GaN. Для описания концентрационного уширения  $\text{Al}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{N}$  мы воспользовались моделью, предложенной для тройных соединений Al(In)GaAs [17,18]. Согласно этой модели, среднее квадратичное отклонение от состава твердого раствора  $x$  в некотором объеме  $V$  (например, экситона, свободного электрона или дырки), определяющем энергию фотонов вблизи края запрещенной зоны, задается выражением  $\Delta x = \sqrt{x(1-x)/NV}$ , где  $N$  — количество атомов в единичном объеме. Считая природу краевой полосы люминесценции экситонной [19], в качестве  $V$  мы брали объем экситона ( $V_{\text{ex}}$ ) с приведенной эффективной массой  $(m_e/m_0) \sim 0.05E_g(x)$  [13], где  $E_g$  — ширина запрещенной зоны твердого раствора, выраженная в электронвольтах. Указанная оценка  $(m_e/m_0)$  для GaN и AlN дает значения 0.17 и 0.31 соответственно. При оценке  $V_{\text{ex}}$  полагали, что диэлектрическая проницаемость AlGaN линейно зависит от состава. Полуширина краевой полосы определялась из следующего соотношения:

$$\Delta E(x) = 2\sqrt{2 \ln 2} \frac{dE_g}{dx} \sqrt{\frac{x(1-x)}{NV_{\text{ex}}}}, \quad (1)$$

а величину  $N$  оценивали как

$$N(x) = \frac{2Z}{\sqrt{3}[c_1 - (c_1 - c_2)x][a_1 - (a_1 - a_2)x]^2}, \quad (2)$$

где  $Z$  — количество атомов в элементарной ячейке,  $a$ ,  $c$  — постоянные кристаллической решетки. Выражение (1) соответствует GaN, (2) — AlN. Зависимость  $dE_g/dx$  получена дифференцированием экспериментальной зависимости  $E(x)$ . Наши расчеты показывают, что уширение

краевой полосы люминесценции для AlGaN примерно на полтора порядка больше, чем для известных узкозонных растворов  $A^{III}B^V$ . Это можно объяснить сильной локализацией экситона и большим значением производной  $dE_g/dx$  для системы AlGaN. Как видно из рис. 2, экспериментальные полуширины полос краевой люминесценции имеют разброс около  $\pm 0.015$  eV. С учетом этого полученные нами расчетные зависимости соответствуют: кривая 3 — нижней границе, а кривая 4 — верхней. Для получения суммарного уширения краевой полосы люминесценции за счет всех возможных механизмов к полученной зависимости  $\Delta E(x)$  добавлялась величина уширения, соответствующая GaN. Поскольку экспериментальные значения достаточно хорошо согласуются с результатами расчетов (рис. 2), можно полагать, что справедливо наше предположение о доминировании концентрационно-го механизма в уширении краевой полосы в AlGaN.

В заключение выражаем благодарность В.А. Дмитриеву за предоставленные образцы и внимание к работе.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 95-02-04148-а).

### Список литературы

- [1] S. Strite, H.J. Morkoc. *Vac. Sci. Technol.* **B10**, 4, 1237 (1992).
- [2] H. Morkoc, S. Strite, G.B. Gao, M.E. Lin, B. Sverdlov, M.J. Burns. *Appl. Phys.* **76**, 3, 1363 (1994).
- [3] I. Akasaki, H. Amano. *J. Electrochem. Soc.* **141**, 8, 2266 (1994).
- [4] S. Nakamura, T. Mukai, M.J. Senoh. *J. Appl. Phys.* **76**, 12, 8189 (1994).
- [5] Y. Koide, H. Itoh, M.R.H. Khan, K. Hiramatsu, N. Sawaki, I. Akasaki. *J. Appl. Phys.* **61**, 9, 4540 (1987).
- [6] S. Nakamura, Y. Harada, M. Senoh. *Appl. Phys. Lett.* **58**, 18, 2021 (1991).
- [7] N. Yoshimoto, T. Matsuoka, T. Sasaki, A. Katsui. *J. Appl. Phys. Lett.* **59**, 18, 2251 (1991).
- [8] V. Dmitriev, K. Irvine, G. Bulman, J. Edmond, A. Zubrilov, V. Nikolaev, I. Nikitina, D. Tsvetkov, A. Babanin, A. Sitnikova. *Cryst. Growth*. To be published.
- [9] S. Sakai, Y. Ueta, Y. Terauchi. *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 10, 4413 (1993).
- [10] П.И. Баранский, В.П. Клочков, И.В. Потыкевич. *Полупроводниковая электроника. Справочник*. Киев (1975). 704 с.
- [11] I. Akasaki, K. Hiramatsu, H. Amano. *Memoris of the Faculty of Engineering, Nagoya University* **43**, 2, 147 (1991).
- [12] S. Yoshida, S. Misawa, S. Gonda. *J. Appl. Phys.* **53**, 10, 6844 (1982).
- [13] D.K. Wickenden, C.B. Bargerion, W.A. Bryden, J. Miragliotta, T. Kistenmacher. *Appl. Phys. Lett.* **65**, 16, 2024 (1994).
- [14] M.R.H. Khan, Y. Koide, H. Itoh, N. Sawaki, I. Akasaki. *Sol. Stat. Commun.* **60**, 6, 509 (1986).
- [15] L. Pavesi, M.J. Guzzi. *J. Appl. Phys.* **75**, 10, 4779 (1994).
- [16] E.O. Kane. *J. Phys. Chem. Sol.* **1**, 4, 249 (1957).
- [17] E.F. Schubert, E.O. Gobel, Y. Horikoshi, K. Ploog, H. Queisser. *J. Phys. Rev.* **B30**, 2, 813 (1984).
- [18] C. Charreux, G. Guillot, A. Nouailhat. *J. Appl. Phys.* **60**, 2, 768 (1986).
- [19] J.P. Bergman, B. Monemar, H. Amano, I. Akasaki. *Technical Digest of Int. Conf. SiC and Related Materials (ICSCRM'95)*. Kyoto. Japan (1995). P. 287.