

Кинетика и неоднородная инжекция носителей в нанослоях InGaN

© Д.С. Сизов[¶], В.С. Сизов, Е.Е. Заварин, В.В. Лундин, А.В. Фомин, А.Ф. Цацульников, Н.Н. Леденцов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 21 июня 2004 г. Принята к печати 30 июня 2004 г.)

Исследовались электронно-оптические свойства светодиодных структур, содержащих в активной области несколько рядов квантовых точек InGaN/GaN, разделенных спейсерами GaN. Показано, что заравнивание слоя квантовых точек слоем InGaN более низкого состава с повышением температуры позволяет усилить глубину локализации носителей в квантовых точках. Кроме того, наблюдается неоднородная инжекция носителей преимущественно в области с большей глубиной локализации. Подробно исследованы электронно-оптические свойства p - n -перехода и влияние указанных неоднородностей на эти свойства и показано, что сдвиги линий излучения фото- и электролюминесценции при изменении условий измерений связаны с данными свойствами неоднородности в p - n -переходе.

1. Введение

Несмотря на прогресс в лазерах и светодиодах на базе GaN, излучающих в видимом диапазоне, за последние годы так и не достигнуто четкое понимание электронно-оптических свойств сверхтонких слоев InGaN в активной области светоизлучающих приборов на базе GaN. Большое количество экспериментальных данных и различные способы их интерпретации зачастую противоречат друг другу. Многообразие экспериментальных данных может объясняться сильным влиянием особенностей эпитаксиального роста на свойства структур [1], что приводит к сильной зависимости излучательных и электрических параметров структур от технологических режимов. К условиям эпитаксиального роста InGaN чувствительны такие параметры материала, как его состав и неоднородность [2], пространственные масштабы данной неоднородности [3], а также морфологические особенности и дефекты в эпитаксиальных слоях. Неоднородное уширение пиков излучения [4–6] в системе InGaN/GaN связывается как с фазовым распадом твердого раствора, так и с флуктуациями толщины слоев InGaN. Если масштабы неоднородностей сравнимы с длиной волны де-Бройля электрона и дырки, а глубина локализации носителей достаточно велика, можно говорить о наличии квантовых точек (КТ) [7] в структурах InGaN/GaN. Образование КТ с размерами менее 10 нм при осаждении сверхтонких слоев InGaN в матрицу GaN было продемонстрировано экспериментально [8,9]. Согласно данным по изучению оптических свойств, энергетический спектр массива таких КТ сильно уширен вследствие неоднородности по размерам и составу КТ [5,8,10]. Однако излучение наблюдается из хвоста состояний, соответствующих КТ с наибольшей энергией локализации. Нами ранее показано [11], что при температуре порядка комнатной, благодаря температурной активации, распределение носителей по ансамблю КТ близко к статистическому, в результате чего носители заселяют КТ с большей энергией локализации.

Помимо КТ, в системе InGaN/GaN наблюдают также неоднородности более крупного масштаба, с характер-

ным размером порядка одного микрона [1,5,12]. Оба вида неоднородностей приводят к уширению спектра излучения, но по-разному проявляют себя при более детальном рассмотрении их свойств. Наличие сильных встроенных пьезо- и пирополей в гетероструктурах на основе нитридов третьей группы приводит к существенному искажению зонной диаграммы. В этом случае неоднородности концентрации In в активной области сказываются на упругих напряжениях в структуре и приводят к локальному искажению высоты барьера для инжекции неравновесных носителей, что в свою очередь приводит к неоднородности в протекании тока.

Для реализации лазерной генерации при инжекционной накачке необходима оптимизация технологических параметров и получение как можно более однородного массива КТ с высокой плотностью. Статистическое перераспределение носителей позволяет носителям занимать наиболее глубокие уровни этого массива. Однако неоднородная инжекция и кинетические задержки перераспределения носителей между уровнями КТ могут ухудшать однородность заселения излучающих уровней, что увеличивает пороговые характеристики лазеров. В настоящей работе исследовались процессы инжекции носителей в структурах с активной областью InGaN и рассмотрено влияние неоднородностей инжекции на спектры излучения структуры.

2. Эксперимент

Исследованные структуры были выращены методом газофазной эпитаксии из металлорганических соединений на установке AIX 2000-НТ. Эпитаксия производилась на сапфировых подложках с ориентацией (0001). После осаждения буферного слоя GaN:Si n -типа выращивалась активная область, состоящая из нескольких слоев InGaN. В структуре А слой КТ выращивался посредством осаждения слоя InGaN средней толщины 3 нм. В структуре В, в отличие от структуры А, данный слой заравнивался слоем InGaN с малым содержанием In при более высокой температуре, что приводит к формированию КТ с большей энергией локализации.

[¶] E-mail: Dsizov@pop.ioffe.rssi.ru

Барьеры GaN толщиной 10 нм легировались Si. Активная область структур наращивалась слоем $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{N}$ толщиной 20 нм и слоем GaN:Mg p -типа толщиной 250 нм.

Для исследования фотолюминесценции (ФЛ) при приложенном внешнем смещении на поверхность структур напылялся полупрозрачный контакт Ni/Au. ФЛ возбуждалась He-Cd-лазером с плотностью накачки 100 Вт/см^2 и измерялась в режиме синхронного детектирования, что позволило исключить влияние постоянного излучения электролюминесценции (ЭЛ) при положительных смещениях. Фототок (ФТ) возбуждался при помощи газоразрядной ксеноновой лампы.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены спектры ЭЛ, ФЛ и ФТ для двух исследованных структур. Сопоставление спектров ЭЛ и ФТ показывает, что излучение структур происходит из „хвоста“ плотности состояний, т. е. из областей, создающих локализацию носителей более сильную, чем в среднем по слою. Такое поведение типично для структур с КТ, и разница в энергиях между максимумом излучения и максимумом плотности состояний, которая может быть оценена по спектру ФТ (Стоксов сдвиг [10]),

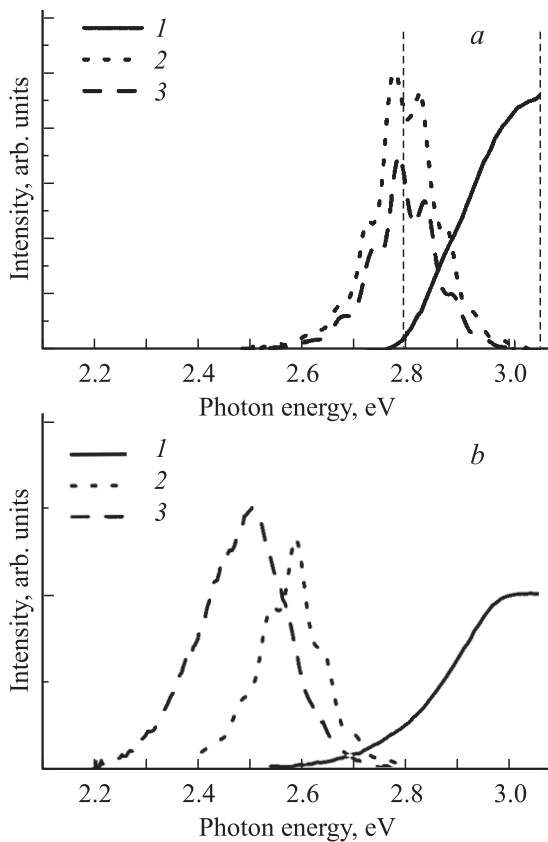


Рис. 1. Спектры ФТ (1), ФЛ (2) и ЭЛ (3): *a* — для структуры с высокой однородностью активной области и слабой локализацией носителей; *b* — для структуры с увеличенной неоднородностью активной области, содержащей КТ с сильной локализацией носителей. $T = 300 \text{ К}$.

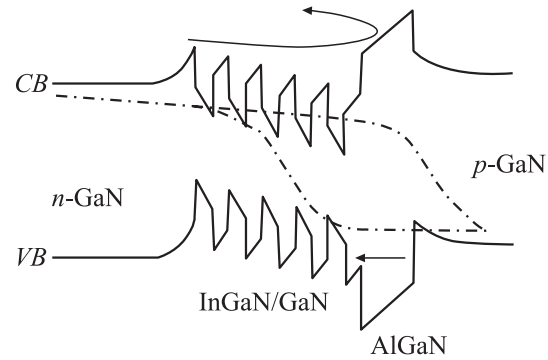


Рис. 2. Схема профиля зон исследованных светодиодных структур (при положительном смещении). Стрелками обозначено направление движения неравновесных носителей.

тем больше, чем эффективнее локализация носителей на уровнях КТ. В структуре *B*, в отличие от структуры *A*, применялся режим роста, способствующий образованию областей, локально обогащенных по составу In в InGaN. Это приводит к образованию КТ с большей энергией локализации носителей и большей дисперсией по составу и размеру КТ, о чем свидетельствует большее значение величины Стоксова сдвига в структуре *B*. Кроме того видно, что в структуре *B* пик ФЛ сдвинут относительно пика ЭЛ в коротковолновую сторону, в отличие от структуры *A*, где эта разница крайне мала.

Чтобы выяснить причину различия в положении максимумов пиков ФЛ и ЭЛ в структуре *B*, рассмотрим более подробно процесс инжекции носителей в активную область. На рис. 2 схематически изображены зонные диаграммы структур, исследованных в данной работе. Поскольку барьеры активной области легировались донорной примесью, можно считать, что в отсутствие смещения уровень Ферми располагается вблизи локализованных уровней активной области. При приложении смещения зонная диаграмма активной области слабо смещается относительно уровня Ферми электронов, в то время как квазиуровень Ферми дырок смещается вниз, и при пересечении им потолка валентной зоны AlGa_N, играющего роль инжекционного барьера, происходит инжекция дырок в активную область. В литературе также встречаются данные, свидетельствующие о значительном вкладе туннельного механизма инжекции в p - n -переходе [13,14], что связывается с крайне малыми концентрациями неосновных носителей в широкозонных полупроводниках. Экспериментальные данные, касающиеся этого эффекта, будут нами подробно рассмотрены в следующих работах. Отметим здесь, что незначительные флуктуации состава и полей упругих напряжений в активной области могут создавать значительные локальные искажения зонной диаграммы структуры. Это будет приводить к флуктуациям высоты инжекционного барьера. В случае, если данные флуктуации превосходят характерную энергию $k_B T$ (где k_B — постоянная Больцмана), при однородном положении уровня Ферми вдали от p - n -перехода, количество носителей, способных пре-

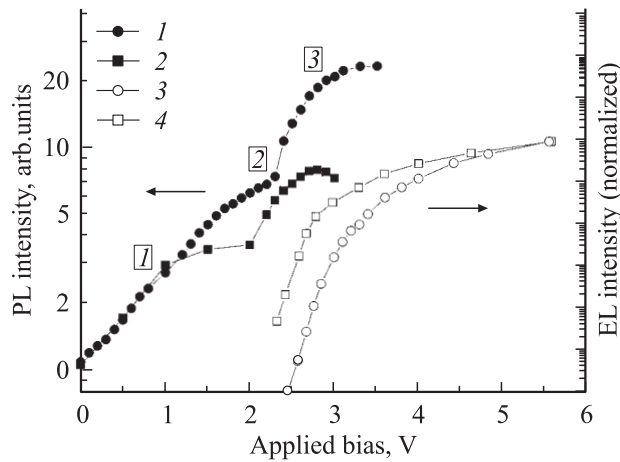


Рис. 3. Зависимости интенсивности ФЛ (1,2) и ЭЛ (3,4) от приложенного внешнего смещения. 1, 3 — структура с высокой однородностью активной области; 2, 4 — структура с увеличенной неоднородностью активной области. Интенсивность ФЛ нормирована на 1 при нулевом внешнем смещении.

одолеть барьер в областях с меньшей высотой, будет во много раз больше, что приведет к инжекции носителей лишь в локальных областях структуры.

На рис. 3 показаны интенсивности ФЛ и ЭЛ рассматриваемых структур в зависимости от приложенного смещения. Для ФЛ можно выделить три участка. Первый соответствует монотонному росту интенсивности с увеличением величины внешнего смещения. Эту зависимость мы интерпретируем следующим образом: положительное смещение ослабляет поле $p-n$ -перехода и уменьшает разделение неравновесных носителей, увеличивая интенсивность излучения.

Второй участок зависимостей, в интервале смещений выше 1.5 В, соответствует более слабому увеличению интенсивности ФЛ с увеличением смещения, а на структуре В увеличение интенсивности вообще прекращается. Мы полагаем, что при таких смещениях разделяющее поле меняется слабо. При дальнейшем увеличении приложенного смещения (третий участок) вновь наблюдается увеличение интенсивности ФЛ. Если сопоставить рассмотренные зависимости с зависимостями интенсивности ЭЛ от смещения, видно, что третий участок соответствует началу излучения, вызванного электрической инжекцией. Не вдаваясь в детали механизма данной инжекции, можно сказать, что третий участок сопровождается инжекцией дырок (рожденных возбуждающим лазером в p -слое) в активную область. Таким образом, третий участок соответствует излучению, при котором доминирует рекомбинация носителей, не родившихся в активной области, а попавших посредством преодоления инжекционного барьера. Характерно, что у структуры А с более однородной активной областью и меньшей локализацией носителей третий участок начинается при больших смещениях (2.3 В), в то время как у структуры В этот участок начинается при 2 В. Это можно объяснить более низким инжекционным барьером у

структуры с более глубоко локализованными уровнями в InGaN. Кроме того, такое различие в напряжениях смещения, необходимых для появления излучения, можно объяснить наличием туннельной инжекции. Туннельная инжекция более вероятна на более глубоко лежащие уровни, так как им соответствует большее число резонансных дырок p -области. Чтобы выявить роль неоднородностей инжекции и рекомбинации на спектральные характеристики излучения, обратимся к рис. 4, из которого видно влияние положительного смещения на спектры ФЛ структуры В. При положительном смещении на первом участке наблюдается длинноволновый сдвиг, который выходит на насыщение на участке два. Однако на третьем участке наблюдается вновь длинноволновый сдвиг, который далее сменяется коротковолновым. Обратим внимание на то, что для структуры А наблюдается

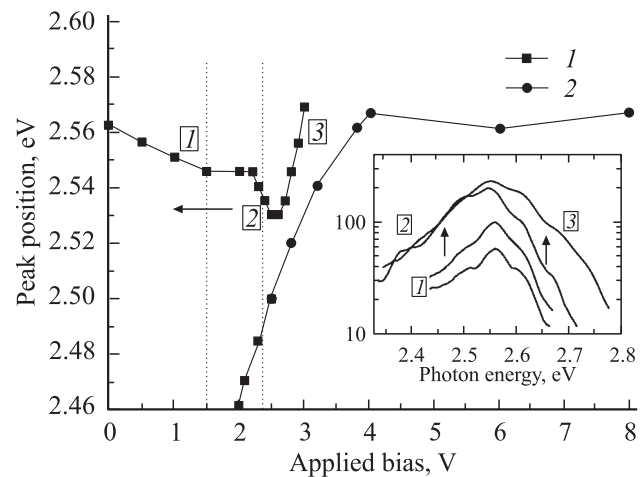


Рис. 4. Зависимости положения максимумов ФЛ (1) и ЭЛ (2) от приложенного внешнего смещения для структуры с увеличенной неоднородностью активной области. На вставке — изменение спектра ФЛ в логарифмическом масштабе. Цифрами в рамках обозначены характерные участки на кривой (1) и соответствующие им спектры.

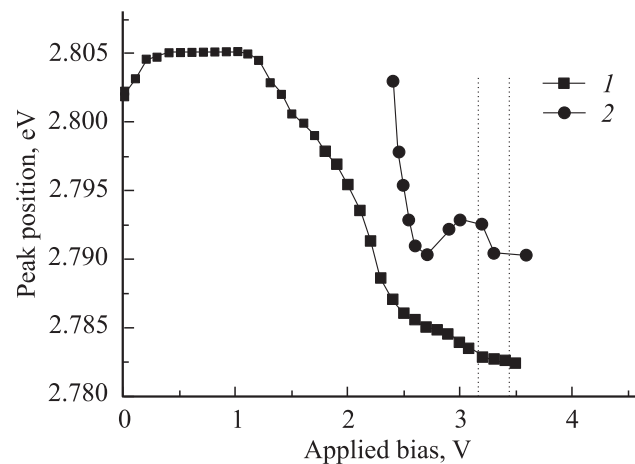


Рис. 5. Зависимости положения максимумов ФЛ (1) и ЭЛ (2) от приложенного внешнего смещения для структуры с высокой однородностью активной области.

принципиально иная зависимость (рис. 5): более слабый, но монотонный длинноволновый сдвиг при положительных смещениях. Изменение положения максимума при приложении смещения принято связывать с эффектом Штарка [15]. Мы полагаем, что в оценках данного эффекта необходимо учитывать возможность неоднородной инжекции носителей. Как мы видим из рис. 2, положительное смещение сопровождается увеличением интенсивности ФЛ, что связывается с уменьшением разделяющего поля $p-n$ -перехода. Однако из-за неоднородного распределения In при осаждении слоя InGaN формируется массив КТ с сильной дисперсией по размерам и глубине локализирующего потенциала. Помимо этого формируются области с характерным масштабом порядка микрона, в которых не только различна средняя энергия локализации носителей в КТ, но и различно влияние положительного смещения на электронно-оптические свойства $p-n$ -перехода. В результате этого интенсивность ФЛ при увеличении положительного смещения возрастает не равномерно по всей структуре, а в отдельных выделенных областях. В то же время максимум излучения соответствует излучению, усредненному по всем областям, которые в общем случае излучают на разных длинах волн. Если в некоторых таких областях с выделенной длиной волны интенсивность излучения увеличивается, то это приводит к смещению максимума усредненного излучения по направлению к длине волны излучения в указанных выделенных областях.

При малых смещениях максимум излучения ЭЛ (рис. 4) соответствует энергии 2.4 эВ и значительно смещается в коротковолновую область с увеличением напряжения (тока накачки). Такое поведение спектра ЭЛ может быть объяснено заполнением локализованных состояний носителями. Однако, по нашим оценкам, рассматриваемый диапазон токов инжекции много меньше значения, необходимого для заполнения имеющейся плотности состояний даже при квантовом выходе около 100%. Плотность состояний может быть определена из спектра ФТ, если предположить, что интегральная плотность состояний близка к плотности состояний в квантовой яме — 10^{14} см^{-2} . На спектре ФТ, в точке соответствующей энергии излучения, плотность состояний лишь на 1.5–2 порядка меньше максимальной. В случае полного заполнения носителями уровней КТ с энергией перехода вблизи максимума излучения число заполненных состояний (с учетом ширины спектра) будет составлять величину порядка $10^{11} - 10^{12} \text{ см}^{-2}$. При токах накачки порядка 10^{-1} А и времени жизни носителей на уровнях КТ порядка 10^{-9} с [8] только незначительная часть КТ будет заселена. В работах [1,12] в различных областях структуры наблюдалось излучение на разных длинах волн. При этом при малых смещениях наблюдалось излучение только из областей с наиболее длинноволновым положением пика излучения. Аналогичная картина наблюдалась и на наших структурах. Поэтому мы полагаем, что смещение максимума излучения ЭЛ в коротковолновую область с

увеличением приложенного смещения обусловлено следующими процессами: при увеличении смещения носители начинают инжектироваться не только в локальные области с повышенным средним составом In и длиной волны излучения, большей, чем в среднем по структуре, но и в области с меньшим средним составом In, соответствующие более коротковолновому излучению. Концентрация КТ с меньшей энергией локализации и большей энергией оптического перехода значительно больше, чем концентрация КТ с большей глубиной локализации, что видно из спектров ФТ, однако для инжекции носителей на эти уровни требуется большее напряжение смещения. В случае квазистатистического распределения носителей на уровнях КТ носители могут перераспределиться на эти менее локализованные уровни, но с существенно большей концентрацией благодаря термическим выбросам. Тем не менее подавленный латеральный транспорт носителей между различными КТ препятствует этому процессу, создавая кинетические задержки данного статистического перераспределения. Поэтому при малых смещениях наблюдается излучение только из областей, в которых локально осуществляется инжекция носителей. Данные области характеризуются меньшей энергией оптических переходов.

Тот факт, что малое смещение прежде всего оказывает влияние на локальные области $p-n$ -перехода, где длина волны излучения больше, чем в среднем по структуре, дает основания полагать, что увеличение интенсивности ФЛ при малых смещениях происходит благодаря аккумуляции носителей в областях с большим средним содержанием In и, значит, с меньшей энергией электронно-дырочного перехода в КТ. Это смещает максимум ФЛ в длинноволновую сторону и вносит дополнительный вклад в смещение пика наряду с искажением зонной диаграммы (см. вставку на рис. 4). На втором участке зависимости положения пика излучения от положительного смещения сдвиг положения максимума ФЛ прекращается, что сопровождается прекращением увеличения интенсивности излучения. При дальнейшем увеличении напряжения смещения, на третьем участке, опять наблюдается длинноволновое смещение, что также сопровождается увеличением интенсивности ФЛ. Однако в области максимальных напряжений смещения наблюдается резкий обратный сдвиг пика ФЛ, так называемый коротковолновый „отскок“. На зависимости положения максимума ЭЛ в данном диапазоне напряжений смещения наблюдается коротковолновый сдвиг, соответствующий инжекции носителей в области с меньшей средней энергией электронно-дырочного перехода. Мы полагаем, что ФЛ также смещается по направлению к энергии, соответствующей уровням КТ, наиболее обогащенным носителями.

В структуре А не наблюдается какого-либо коротковолнового смещения линии ЭЛ с увеличением смещения, а наблюдается незначительный длинноволновый сдвиг максимума ЭЛ синхронно со сдвигом линии ФЛ. Мы полагаем, что в данной структуре инжекция носителей происходит однородно, иными словами, области

с различной глубиной локализации носителей заполняются с одинаковой эффективностью при данном смещении. Спектральное распределение излучения из такой структуры определяется неоднородностью массива КТ по размерам и составу, а также статистическим распределением носителей на этих уровнях. Длинноволновое смещение ЭЛ и ФЛ связано с искажением профиля зон (эффект Штарка).

4. Заключение

В работе показано, что в зависимости от ростовых режимов возможно получение массивов КТ InGaN в активной области светоизлучающих структур, характеризующихся различными типами инжекции в активную область. Возможно получение массива КТ, инжекция на уровни которых происходит однородно, и носители распределяются на уровнях КТ статистически. Однако при других режимах роста образуются массивы КТ, на уровни которых носители инжектируются неоднородно, что связано с тем, что внешнее смещение $p-n$ -перехода преимущественно влияет на те локальные участки активной области, где глубина локализации больше. Это может объясняться туннельными эффектами (туннельной инжекцией на состояния с глубиной локализации, заметно большей, чем среднее значение для случая квазиравномерного заселения при оптической накачке) или неоднородностью самого $p-n$ -перехода. В обоих случаях геометрические масштабы инжекционной неоднородности должны быть много больше размеров КТ, поскольку в противном случае влияние инжекционных неоднородностей было бы незаметно из-за статистического перераспределения носителей, которое наблюдается в таких структурах. В рассматриваемом нами случае наблюдается кинетическая задержка перераспределения. Поэтому положение уровня Ферми в плоскости активной области, параллельной плоскости $p-n$ -перехода, в общем случае не одинаково.

Список литературы

- [1] R. P. O'Donnell, S. Pereira, R.W. Martin, P.R. Edwards, M.J. Tobin, J.F.W. Masselmanns. *Phys. Status Solidi A*, **195**, 532, (2003).
- [2] T. Okumura, Y. Akagi. *J. Cryst. Growth*, **223**, 43 (2001).
- [3] M.S. Jeong, J.Y. Kim, Y.-W. Kim, J.O. White, E.-K. Suh, C.-H. Hong, H.J. Lee. *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 976 (2001).
- [4] T. Mukai, M. Yamada, S. Nakamura. *Jap. J. Appl. Phys.*, **38**, 3976 (1999).
- [5] S. Chichibu, T. Sota, K. Wada, S. Nakamura. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **16**, 2204 (1998).
- [6] P.G. Eliseev, P. Perlin, J. Lee, M. Osinski. *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 569 (1997).
- [7] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Шукин, П.С. Копьев, Ж.И. Алфёров, Д. Бимберг. *ФТП*, **32**, 385 (1998).
- [8] I.L. Krestnikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, A.V. Sakharov, W.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, A.S. Usikov, Zh.I. Alferov, Yu.G. Musikhin, D. Gerthsen. *Phys. Rev. B*, **66**, 155 310 (2002).
- [9] A.V. Sakharov, W.V. Lundin, I.L. Krestnikov, E.E. Zavarin, A.S. Usikov, A.F. Tsatsul'nikov, N.N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, Zh.I. Alferov. *Proc. 8th Int. Symposium „Nanostructures Physics and Technology“*, St.Petersburg, June 19–23, 2000, p. 216.
- [10] R.W. Martin, P.G. Middelton, K.P. O'Donnell, W. Van der Stricht. *Appl. Phys. Lett.*, **74** (2), 263 (1999).
- [11] D.S. Sizov, V.S. Sizov, A.I. Besulkin, A.V. Fomin, V.V. Lundin, M.A. Sinitsyn, A.F. Tsatsul'nikov, E.E. Zavarin, N.N. Ledentsov. *Proc. 12th Int. Symposium „Nanostructures Physics and Technology“*, St.Petersburg, June 21–25, 2004.
- [12] P. Fisher, J. Christen, S. Nakamura. *Jap. J. Appl. Phys.*, **39**, L129 (2000).
- [13] В.Е. Кудряшов, К.Г. Золин, А.Н. Туркин, А.Э. Юнович, А.Н. Ковалев, Ф.И. Маняхин. *ФТП*, **31**, 1304 (1997).
- [14] H.C. Casey, jr., J. Muth, S. Krishnankutty, J.M. Zavada. *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 2867 (1996).
- [15] T. Takeuchi, C. Wetzel, S. Yamaguchi, H. Sakay, H. Amano, I. Akasaki, Y. Kaneko, S. Nakagawa, Y. Yamaoka, N. Yamada. *Appl. Phys. Lett.*, **73**, 1691 (1998).

Редактор Л.В. Беляков

Kinetics and inhomogeneous carrier injection in InGaN nanoinsertions

D.S. Sizov, V.S. Sizov, A.V. Fomin, V.V. Lundin, A.F. Tsatsul'nikov, E.E. Zavarin, N.N. Ledentsov

loffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

Abstract We have investigated electrical and optical properties of GaN-based light emitting devices. The structures contain several layers of InGaN quantum dots (QD) separated by GaN spacers. It is demonstrated that the overgrowth of the QD layer at a higher temperature by an InGaN layer with a lower In composition allows to increase the confinement energy in QD. In this case, inhomogeneous carrier injection into areas with a higher average In composition has been observed. Electrical and optical properties of the $p-n$ -junction as well as the influence of these inhomogeneities on the above mentioned properties have been studied in detail. It has been shown that the emission line shift with the measurement conditions change is due to those peculiarities.