

## Вакуумная, плазменная и квантовая электроника

УДК 621.382: 539.23

**Ю.А. Авксентьев<sup>1</sup>**, канд. экон. наук, **С.Ю. Ларкин<sup>1</sup>**, канд. техн. наук, **П.В. Парфенюк<sup>2</sup>**

<sup>1</sup> Публичное акционерное общество «Научно-производственный концерн «Наука», ул. Довнар-Запольского, 2/20, Киев-16, 04116, Украина.

<sup>2</sup> Государственный научно-исследовательский центр «Фонон», ул. Довнар-Запольского, 2/20, Киев-16, 04116, Украина.

### Сравнение эффективности рекомбинации неравновесных носителей в структурах с квантовыми точками и квантовыми ямами, выращенных методом МОС-гидридной эпитаксии

*В статье приводятся результаты сравнения эффективности рекомбинации неравновесных носителей в InGaN квантовых точках (QDs) и квантовых ямах (QWs), излучающих в зеленом диапазоне спектра. Результаты оптических исследований с использованием температурно-зависимой фотолюминесценции (PL) показали, что внутренняя квантовая эффективность InGaN квантовых точек при комнатной температуре была в 8,7 раза больше, чем полученная для InGaN квантовых ям из-за лучшей пространственной локализации электрически заряженных частиц. Результаты измерений спектров фотолюминесценции при различных уровнях лазерного возбуждения показали, что влияние поляризационно-встроенных электрических полей на рекомбинационные процессы электрически заряженных частиц в квантовых точках ничтожно малы по сравнению с квантовыми ямами. Полученные результаты показывают, что InGaN квантовые точки улучшают эффективность люминесценции светодиодов в зеленом и голубом спектральных диапазонах. Библиограф. 19, рис. 4, табл. 1.*

**Ключевые слова:** МОС-гидридная эпитаксия, гетероструктуры, квантовые точки, квантовые ямы, квантовая эффективность, светодиод.

#### Введение

Материальные системы с релаксацией механических напряжений при гетероэпитаксиальном росте становятся все более привлекательными, поскольку они предполагают возможность создания низкоммерных наноструктур с локализацией носителей заряда таких как квантовые точки (QDs) и квантовые ямы (QWs) [1]. Особенно перспективными являются нитрид-

базисные полупроводники, имеющие прямозонную структуру энергетических зон с возможностью изменения ширины запрещенной зоны в широких пределах от 1,8 эВ до 6,2 эВ и их применение в оптических приборах, таких как светодиоды (LED) и лазерные диоды (LDs) [2, 3]. В мультиквантовых ямах (MQWs) электроны и дырки пространственно локализируются в стеночных слоях и можно достигнуть высокой внутренней квантовой эффективности от гетероструктур, созданных на их основе, поскольку вероятность рекомбинации электронно-дырочных пар в таких слоях значительно увеличивается [4, 5]. Несмотря на то, что сверхъяркие InGaN/GaN светодиоды с квантовыми ямами коммерчески доступны, теоретически предсказано, что реализация светодиодов с квантовыми точками в качестве активных слоев улучшает внутреннюю квантовую эффективность гетероструктур и, следовательно, рабочие характеристики светодиодов. Показано, что нитридные наноструктуры могут самоорганизовываться с релаксацией напряжения в соответствии с Странски-Краштанова моделью роста, исключая дополнительные процессы обработки нижележащих слоев [6-8]. Самоорганизованного роста квантовых точек можно достигнуть при использовании метода прерывания роста [9, 10]. Несмотря на то, что флуктуация размеров самоорганизованных квантовых точек приводит к неоднородности оптических и электрических характеристик, самоорганизованные, с релаксацией напряжений островки обеспечивают способ создания низкоммерных квантовых структур без ограничений, свойственных при использовании процессов литографии. В этой работе проводится сравнительное изучение эффективности рекомбинации гетероструктур с квантовыми точками и квантовыми ямами, выращенными методом МОС-гидридной эпитаксии.

### Экспериментальные образцы

Структуры с InGaN квантовыми точками и квантовыми ямами выращивались на (0001) сапфировой подложке при давлении 200 Torr на установке m-GaN Zilla MOCVD System (modification E300). Самоорганизованные InGaN квантовые точки выращивались на GaN слое методом прерывания [9]. После выращивания n-GaN слоя толщиной 2 мкм при температуре 1050°C с использованием двухступенчатого метода роста, выращивались  $\text{In}_{0,46}\text{Ga}_{0,54}\text{N}$  квантовые точки при температуре 630°C с временем роста 9, 15 и 30 с. при использовании  $\text{N}_2$  как носителя газа с последующим ростом GaN барьерного слоя толщиной 20 нм. Прерывание роста в течении 10 с. использовалось перед ростом каждого барьерного GaN слоя. Барьерный GaN слой выращивался при температуре 750°C.

Этот порядок повторялся пять раз для получения пяти периодов InGaN квантовых точек. После роста пяти периодов InGaN/GaN квантовых точек, p-GaN слой толщиной 0,13 мкм выращивался на квантовоточечном InGaN слое при температуре 900°C. Температура p-GaN слоя была на 100°C ниже роста обычного p-GaN при температуре 100°C, чтобы защитить QD слой от термических повреждений.

Мультиквантовые ямы, излучающие в зеленом диапазоне спектра, состояли из пяти периодов  $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{N}$  слоев толщиной 2,5 нм и GaN барьерных слоев толщиной 13 нм, выращенных при температуре 730°C. P-GaN слой толщиной 0,13 мкм выращивался при температуре 950°C, которая была оптимальной температурой роста для InGaN/GaN светодиодов с квантовыми ямами в этой системе.

Схематическая структура светодиодов с InGaN квантовыми точками и квантовыми ямами показана на рис. 1. Структурные и оптические свойства квантовых точек и квантовых ям исследовались с применением атомно-силовой микроскопии (AFM) и фотолюминесценции (PL). Фотолюминесценция возбуждалась с использованием He-Cd лазера, излучающего в непрерывном режиме на длине волны 325 нм. Мощность возбуждения лазера изменялась от 0,08 мВт до 24 мВт с использованием оптических фильтров, имеющих различные значения коэффициента поглощения, на указанной длине волны. Излучение лазера фокусировалось на поверхность образца с применением оптических линз; диаметр области возбуждения составлял приблизительно 400 мкм.

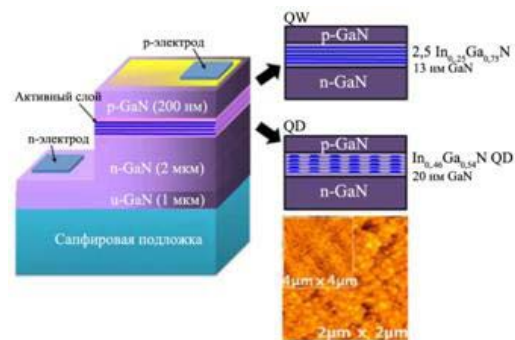


Рис. 1. Схематическая структура светодиода с InGaN QDs и InGaN QWs активными слоями

### Результаты экспериментов и их обсуждение

Квантовые точки  $\text{In}_{0,46}\text{Ga}_{0,54}\text{N}$  выращивались по Странски-Краштанова модели роста; размер квантовых точек контролировался через изменение времени роста, и таким образом контролировалась длина волны излучения [10]. С увеличением времени роста плотность, диаметр и высота квантовых точек увеличивалась [11]. Высота, диаметр и плотность квантовых точек определялась на основе измерений атомно-силового микроскопа и составляла 1,85 нм, 45 нм и  $9,8 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$  соответственно.

При использовании двухступенчатого метода роста эпитаксиального GaN слоя, плотность дислокации в нем не превышает  $1 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$ . Из полученных плотностей квантовых точек можно предположить, что дислокации в эпитаксиальном GaN слое будут слабо влиять на интенсивность излучения InGaN квантовых точек.

На рис. 2 представлен спектр фотолюминесценции InGaN квантовых точек, измеренный при комнатной температуре с использованием He-Cd лазера, излучающего на длине волны 325 нм. Длина волны пика фотолюминесценции смещалась от 467 до 512 нм с увеличением времени роста от 9 до 12 с. из-за квантового ограничения в вертикальном направлении квантовых точек [11]. Влиянием диаметра на спектр квантовых уровней в квантовых точках можно пренебречь, поскольку диаметр квантовых точек намного больше, чем величина боровского радиуса экситона в объемном InGaN, поэтому боковая локализация электрически заряженных частиц будет наблюдаться в квантово-точечных структурах. Это будет препятствовать боковой диффузии частиц к безызлучательным центрам рекомбинации и будет улучшать эффективность излучения в квантовых точках [12].

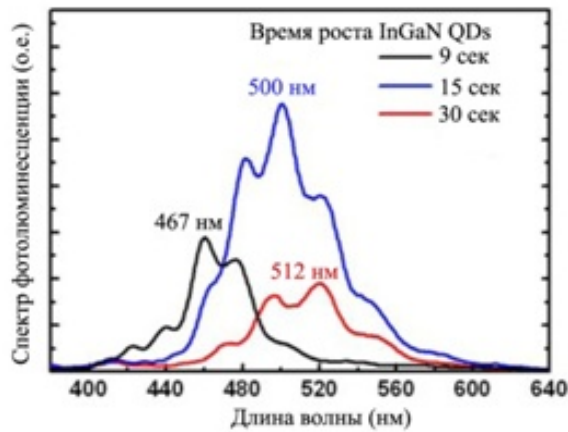
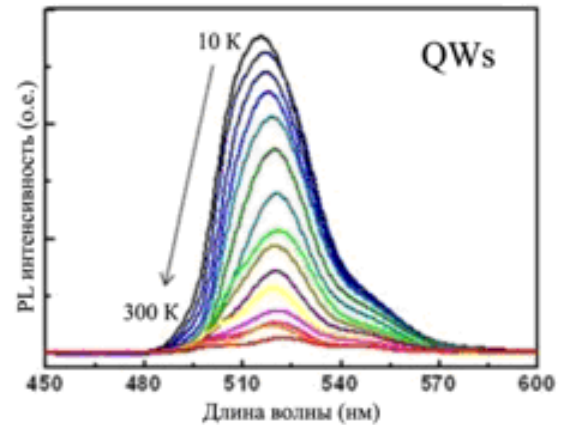


Рис. 2. Графики спектра фотолюминесценции InGaN квантовых точек, измеренный при комнатной температуре с временами роста 9, 15 и 30 с

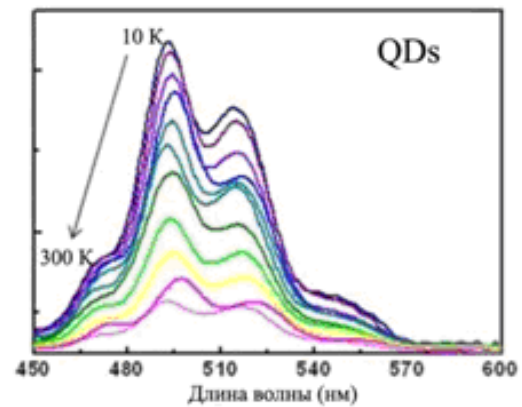
InGaN квантовые точки, выращенные при времени роста 30 с., показывают пик излучения на длине волны 512 нм в зелен диапазоне спектра. Поэтому этот слой использовался для QDs и QWs структур в зеленом диапазоне спектра. Для сравнения эффективности рекомбинации квантовых ям и квантовых точек измерялась температурная зависимость спектра фотолюминесценции, представлена на рис. 3 (а) и (b). При увеличении температуры от 10 К до 300 К наблюдается более резкий спад интенсивности излучения от квантовых ям, чем от квантовых точек. На рис. 3 (с) показана кривые Аррениуса для интегральной интенсивности QDs и QWs. Из температурной зависимости интенсивности спектра фотолюминесценции можно получить термическую энергию активации [13, 14].

$$I(T) = \frac{I_0}{\left[ 1 + A \cdot \exp\left(-\frac{E_{aA}}{k \cdot T}\right) + B \cdot \exp\left(-\frac{E_{aB}}{k \cdot T}\right) \right]}, \quad (1)$$

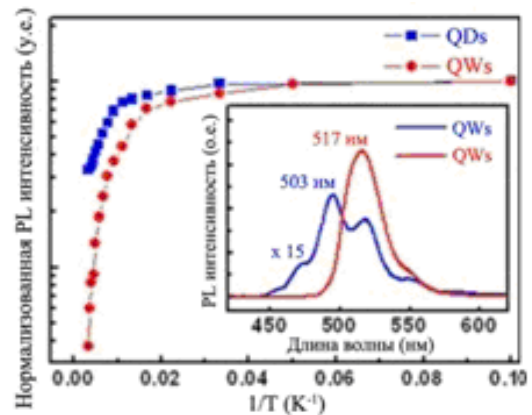
где  $I_0$  – интенсивность PL при 0 К; А, В – константа скорости при высоких и низких температурах соответственно;  $E_{aA}, E_{aB}$  – термические энергии активации при высоких и низких температурах;  $k_B$  и  $T$  – константа Больцмана и температура активных слоев.



а)



б)



в)

Рис. 3. Изображение (а) зависимость интенсивности PL спектра от температуры для InGaN QWs; (б) зависимость интенсивности PL спектра от температуры для InGaN QDs; (с) нормализованная PL интенсивность как функция 1/T для InGaN QDs (синяя кривая) и QWs (красная кривая). На вставке показан PL спектр InGaN QDs и InGaN QWs, измеренный при температуре 10 К

Низкотемпературный параметр  $B$  и  $E_{aB}$  доминируют в температурном диапазоне ниже 60 К, тогда как высокотемпературный параметр

$A$  и  $E_{aA}$  – в температурном диапазоне выше 60 К [13, 14]. Полученные энергии активации и константы скоростей представлены в таблице 1.

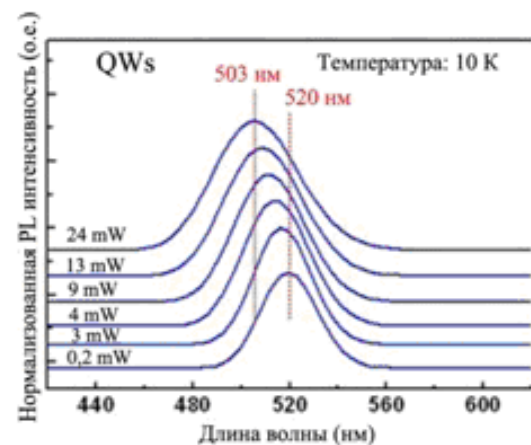
**Таблица 1. Итоговые параметры для температурно-зависимого PL спектра**

Тип активной области	A: константа скорости	$E_{aA}$ ( $E_a$ при высокой T)	B: константа скорости	$E_{aB}$ ( $E_a$ при низкой T)	$\eta_{\text{ВНУТ}}$ (I300 K/I10 K)
QW	2000	115 meV	9	16 meV	3,8%
QD	200	150 meV	2.5	15 meV	33%

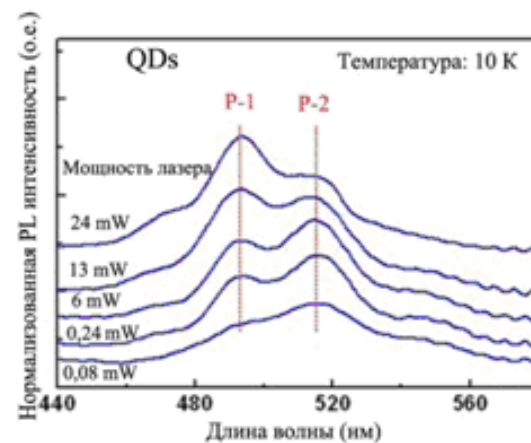
Поскольку энергия термической активации при низких температурах ( $E_{aB}$ ) зависит от энергии связи экситона [14], не существует значительного различия в этих величинах для QDs и QWs структур, которые совпадают с величинами, сообщенными в [15]. Однако, энергия термической активации при высоких температурах ( $E_{aA}$ ) для QDs равна 150 meV, которая в 1,3 раза больше, чем для QWs структур. Величина  $E_{aA}$  представляет энергетический барьер, который носители должны преодолеть для того, чтобы достигнуть безызлучательного центра рекомбинации при увеличении температуры [14]. Это указывает, что QDs создают эффективные центры излучательной рекомбинации, поскольку выше температуры необходимы для отрыва носителей от квантовых точек, возможно через присутствие InGaN смачивающего или GaN барьерного слоя. В QWs, электрически заряженные частицы, которые уходят из квантовой ямы, созданной флуктуациями состава или толщины, могут захватываться безызлучательными центрами рекомбинации даже в стеночных слоях, прежде чем они преодолеют GaN квантовый барьер.

Внутренняя квантовая эффективность при комнатной температуре ( $\eta_{\text{ВНУТ}}$ ) оценивается через использование отношений интегрированных интенсивностей фотолюминесценции (I300 K/I10 K) при условии, что  $\eta_{\text{ВНУТ}}$  (10 K) примерно равно 1 [16]. Внутренняя квантовая эффективность, вычисленная для QDs структур составила 33 %, что 8,7 раза выше чем для QWs структур. Для исследования влияния поляризационно-возбужденных электрических полей на эффективность рекомбинации измерялся спектр фотолюминесценции для различных уровней лазерного возбуждения при 10 К, как представлено на рис. 4 (а) и (б). Спектр фотолюминесценции QWs показывает голубое смещение положения пика с увеличением мощности лазерного возбуждения через влияние экранирования квантово-локализованного эффекта Штарка, обусловленного увеличением концентрации

свободных носителей [17]. Это указывает, что рекомбинационные процессы в QWs в значительной степени зависят от эффекта Штарка, вызванного возбужденными пьезоэлектрическими полями, которые разделяют электроны и дырки на противоположные стороны квантовых ям [17].



а)



б)

**Рис. 4. Графики зависимости интенсивности PL спектра от мощности возбуждения лазера, измеренная при 10 К для (а) InGaN QWs и (б) InGaN QDs в диапазоне мощности возбуждений от 0,08 мВт до 24 мВт**

Спектр фотолюминесценции QDs имеет множество пиков. Доминирующий пик P-1 изме-

нялся в сторону более высоких энергий, пик P-2 приближался к P-1 в спектре фотолюминесценции с увеличением мощности лазерного возбуждения, что указывает на то, что эти пики могут быть приписаны к квантовым состояниям с более высокой энергией в QDs [18]. Однако, положение пиков фотолюминесценции QDs структурах не показывает голубого смещения с увеличением мощности возбуждения, которые указывают, что влияние деформационно-возбужденных электрических полей на процессы рекомбинации в QDs незначительны. Изотропная локализация и поляризация в QDs ослабляет влияние пьезоэлектрических полей по сравнению с QWs [19].

Таким образом, эффективность рекомбинации электрически заряженных частиц в InGaN QDs улучшается по сравнению с QWs структурами в зеленом диапазоне спектра.

#### Выводы

Проведено сравнение эффективности рекомбинации электрически заряженных частиц InGaN QDs и QWs структур в зеленом спектральном диапазоне. Результаты температурно-зависимой фотолюминесценции показали, что внутренняя квантовая эффективность QDs структур составила 33 %, что в 8,7 раза больше, поскольку QDs создают бездислокационные центры рекомбинации для частиц. Фотолюминесценция при различных уровнях лазерного возбуждения показала, что влияние поляризационно-возбужденных электрических полей на процессы рекомбинации в QDs незначительно по сравнению с QWs. В результате InGaN QDs структуры более предпочтительны, чем InGaN QWs структуры для улучшения эффективности люминесценции зеленых светодиодов, если плотность InGaN квантовых точек выше плотности дислокаций в эпитаксиальном GaN слое.

#### Список использованных источников

1. *D. Leonard, M. Krinshnamurthy, C.M. Reaves, S.P. Denbaars, P.M. Petroff*, Appl. Phys. Lett. 63 (1993) 3203.
2. *F.A. Ponce, D.P. Bour*, Nature 386 (1997) 351.
3. *S. Nakamura*, Science 281 (1998) 956.
4. *Y.K. Su, S.J. Chang*, IEEE Trans. Electron Dev. 49 (2002) 1361.
5. *L.W. Wu, T.C. Wen*, IEEE J. Quantum Electron, 38 (2002) 446.
6. *B. Damilano, N. Grandjean*, Appl. Phys. Lett., 75 (1999) 3751.
7. *K. Tachibana, T. Someya*, Appl. Phys. Lett., 74 (1999) 383.
8. *C. Adelman, J. Simon*, Appl. Phys. Lett., 76 (2000) 1570.
9. *L.W. Ji, Y.K. Su, S.J. Chang, J. Cryst. Growth* 249 (2003) 144.
10. *L.W. Ji, T.H. Fang*, Mater. Lett. 57 (2003) 4218.
11. *I.K. Park, M.K. Kwon, C.Y. Cho, J.Y. Kim, C.H. Cho and S.J. Park*, Appl. Phys. Lett. 92, 253105 (2008).
12. *D.J. Eaglesham and M. Cerullo*, Phys. Rev. Lett. 64, 1943 (1990).
13. *J.D. Lambkin, L. Considine, S. Walsh, G.M. Connor, C.J. McDonagh and T.J. Glynn*, Appl. Phys. Lett. 65, 73 (1994).
14. *W. Stadler, D.M. Hofmann, H.C. Alt, T. Muschik, B.K. Meyer, E. Weigel, G. Muller-Vogt, M. Salk, E. Rupp and K. W. Benz*, Phys. Rev. B 51, 10619 (1995).
15. *S.H. Park, J.J. Kim and H.M. Kim*, J. Korean Phys. Soc. 45, 582 (2004).
16. *Y.H. Cho, H.S. Kwack, B.J. Kwon, J. Barjon, J. Brault, B. Daudin and L.S. Dang*, Appl. Phys. Lett. 89, 251914 (2006).
17. *J. Bai, T. Wang and S. Sakai*, Appl. Phys. 88, 4729 (2000).
18. *S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, J.L. Merz and P.M. Petroff*, Phys. Rev. B 52, 5752 (1995).
19. *Y. Narukawa, Y. Kawakami, S. Fujita and S. Nakamura*, Phys. Rev. B 59, 10283 (1997).

Поступила в редакцию 16 декабря 2013 г.

УДК 621.382: 539.23

**Ю.А. Авксентьев<sup>1</sup>**, канд. укон. наук, **С.Ю. Ларкін<sup>1</sup>**, канд. техн. наук, **П.В. Парфенюк<sup>2</sup>**<sup>1</sup> Публічне акціонерне товариство «Науково-виробничий концерн «Наука», вул. Довнар-Запольського, 2/20, Київ-16, 04116, Україна.<sup>2</sup> Державне підприємство «Державний науково-дослідний центр «Фонон», вул. Довнар-Запольського, 2/20, Київ-16, 04116, Україна.

## **Порівняння ефективності рекомбінації нерівноважних носіїв у структурах із квантовими точками й квантовими ямами, вирощених методом МОС-гібридної епітаксії**

*У статті наводяться результати порівняння ефективності рекомбінації нерівноважних носіїв в InGa квантових точках (QDs) і квантових ямах (QWs), що випромінюють у зеленому діапазоні спектра. Результати оптичних досліджень із використанням температурно-залежної фотолюмінесценції (PL) показали, що внутрішня квантова ефективність InGa квантових точок при кімнатній температурі була в 8,7 рази більше, ніж отримана для InGa квантових ям через кращу просторову локалізацію електрично заряджених часток. Результати вимірів спектрів фотолюмінесценції при різних рівнях лазерного збудження показали, що вплив поляризаційно-вбудованих електричних полів на рекомбінаційні процеси електрично заряджених часток у квантових точках мізерно малі в порівнянні із квантовими ямами. Отримані результати показують, що InGa квантові точки поліпшують ефективність люмінесценції світлодіодів у зеленому й блакитному спектральному діапазонах. Бібл. 19, рис. 4, табл. 1.*

**Ключові слова:** МОС-гібридна епітаксія, гетероструктури, квантові точки, квантові ями, квантова ефективність, світлодіод.

UDC 621.382: 539.23

**Yu. Avksentyev<sup>1</sup>**, Ph.D., **S. Larkin<sup>1</sup>**, Ph.D., **P. Parfenuk<sup>2</sup>**<sup>1</sup>Public Joint Stock Company «Scientific and Production Concern «Nauka», str. Dovnar-Zapolskogo, 2/20, Kyiv-16, 04116, Ukraine.<sup>2</sup>State Enterprise «State Research Center «Fonon», str. Dovnar-Zapolskogo, 2/20, Kyiv-16, 04116, Ukraine.

## **Comparison of efficiency recombination of nonequilibrium carriers in structures with quantum dots and quantum wells, grown by mcvd**

*The article presents the results of comparing the efficiency of recombination of nonequilibrium carriers in the InGaN quantum dots (QDs) and quantum wells (QWs), emitting in the green region of the spectrum. Results of studies using optical temperature-dependent photoluminescence (PL) showed that the internal quantum efficiency of the InGaN quantum dots at room temperature was 8.7 times greater than that obtained for the InGaN quantum wells, due to better spatial localization of electrically charged particles. The results of measurements of photoluminescence spectra at different levels of laser excitation showed that the effect of polarization-built electric fields on recombination processes of electrically charged particles in quantum dots are negligible compared to the quantum wells. The results show that the InGaN quantum dots improve the luminescence efficiency of the LEDs in green and blue spectral bands. Reference 19, figures 4, tables 1.*

**Keywords:** MOCVD epitaxy, heterostructures, quantum dots, quantum wells, quantum efficiency, the LED.