

# Особенности формирования объемных слоев $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ в зоне несмешиваемости твердых растворов ( $x \sim 0.6$ ) методом молекулярно-пучковой эпитаксии с плазменной активацией азота

© М.А. Калинин<sup>1</sup>, Д.Н. Лобанов<sup>1</sup>, К.Е. Кудрявцев<sup>1</sup>, Б.А. Андреев<sup>1</sup>, П.А. Юнин<sup>1</sup>,  
Л.В. Красильникова<sup>1</sup>, А.В. Новиков<sup>1</sup>, Е.В. Скороходов<sup>1</sup>, З.Ф. Красильник<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Институт физики микроструктур Российской академии наук,  
603087 Нижний Новгород, Россия

<sup>2</sup> Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,  
603950 Нижний Новгород, Россия

E-mail: kalinnikov@ipmras.ru

Поступила в Редакцию 24 августа 2023 г.

В окончательной редакции 1 сентября 2023 г.

Принята к публикации 1 сентября 2023 г.

Изучены особенности формирования объемных слоев  $\text{InGaN}$  с содержанием индия  $\sim 60\%$  — в зоне несмешиваемости тройных твердых растворов  $\text{InGaN}$  — методом молекулярно-пучковой эпитаксии с плазменной активацией азота. Рост исследуемых структур проводился на сапфировых подложках, при этом варьировались температура эпитаксии и соотношение потоков металлов ( $\text{In} + \text{Ga}$ ) и активированного (атомарного) азота. Продемонстрировано, что темпы разложения и фазового распада для тройных растворов  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$  немонокотонно зависят от температуры роста в диапазоне  $T_{\text{гр}} = 430\text{--}470^\circ\text{C}$ . Обнаружено, что процессы разложения  $\text{InGaN}$  происходят на поверхности роста и приводят к появлению поверхностных фаз металлического  $\text{In}$  и бинарного  $\text{InN}$ , в то время как фазовый распад приводит к возникновению фаз  $\text{InGaN}$  различного состава во всем объеме осаждаемого слоя  $\text{InGaN}$ . Показано, что в исследуемом диапазоне температур фазовый распад определяется поверхностной диффузией, которую можно подавить за счет роста в сильно азотобогащенных условиях, что позволило получить однородные слои  $\text{InGaN}$  с содержанием  $\text{In} \sim 60\%$  при высокотемпературном ( $T_{\text{гр}} = 470^\circ\text{C}$ ) росте. Продемонстрировано, что подавление процессов разложения  $\text{InGaN}$  является определяющим в достижении эффективной межзонной люминесценции полупроводниковых структур, в то время как наличие фазовой сепарации в меньшей степени влияет на излучательные свойства слоев  $\text{InGaN}$ , по крайней мере в области низких ( $T = 77\text{ K}$ ) температур.

**Ключевые слова:** нитрид индия и галлия, молекулярно-пучковая эпитаксия, фотолюминесценция, термическое разложение, спинодальный распад.

DOI: 10.61011/FTP.2023.06.56472.38k

## 1. Введение

Твердый раствор нитрид индия–галлия ( $\text{InGaN}$ ) является одним из наиболее перспективных материалов для широкого применения в современных системах телекоммуникации и отображения информации. Благодаря возможности варьирования ширины запрещенной зоны за счет изменения состава  $\text{InGaN}$  можно создать оптоэлектронные устройства, работающие в спектральном диапазоне от ультрафиолета до ближней инфракрасной (ИК) области. В настоящее время технология роста эпитаксиальных слоев  $\text{InGaN}$  успешно развита только для составов с высоким содержанием  $\text{Ga}$ , на основе которых созданы оптоэлектронные устройства, работающие в сине-зеленой области спектра [1,2]. В то же время в ИК области спектра для систем связи представляют интерес устройства, работающие в одном из окон прозрачности оптоволокна (0.85, 1.3 и 1.55 мкм), а для современных систем отображения информации необходимы эффективные светодиоды, работающие во всей видимой области спектра.

Продвижение рабочего спектрального диапазона оптоэлектронных устройств на основе  $\text{InGaN}$  в красную и ближнюю ИК области спектра затруднено из-за проблем с получением высококачественных слоев  $\text{InGaN}$  с содержанием  $\text{In} > 30\%$ . Здесь основными проблемами являются: высокая плотность дислокаций, связанная с большим рассогласованием параметров решеток  $\text{InN}$  и  $\text{GaN}$  ( $\sim 11\%$ ) [3], низкая температура разложения ( $\sim 470^\circ\text{C}$  для  $\text{InN}$ ), а также фазовый распад (ФР)  $\text{InGaN}$  „средних“ составов, связанный с термодинамической неустойчивостью этого раствора при типичных температурах эпитаксии [4–9]. Для борьбы с термическим разложением и ФР есть только одно решение — физическое ограничение кинетики процессов. Ограничить кинетику процесса разложения и ФР возможно за счет значительного снижения температуры роста, что позволяет получать однородные растворы  $\text{InGaN}$ , однако это приводит к существенной деградации кристаллического качества и оптических свойств [10–12]. Подавить разложение нитридов III группы при повышенных температурах роста возможно за счет роста в сильно азотобогащенных условиях ( $V/III \gg 1$ ). В част-

ности, именно соотношение  $V/III > 1000$  при росте методом газовой фазной эпитаксии из металлоорганических соединений (МОГФЭ) позволяет подавлять разложение и выращивать структуры III-нитридов при повышенной температуре и более высокого кристаллического качества, чем методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) [13]. Явление ФР напрямую связано с диффузией и перераспределением атомов растущего слоя. С увеличением температуры как объемная, так и поверхностная диффузия усиливаются. Тем не менее в методе роста молекулярно-пучковой эпитаксии с плазменной активацией азота (МПЭ ПА) поверхностная диффузия существенным образом зависит от условий роста, в частности от соотношения потоков  $III/V$ . Различными авторами при росте InN были получены значения для энергии активации поверхностной диффузии от 1.15 эВ (металлобогатые условия  $III/V > 1$ ) [14] до 3.7 эВ (азотообогащенные условия  $III/V < 1$ ) [15]. Таким образом, поверхностную диффузию можно существенно замедлить с помощью роста в сильно азотообогащенных условиях.

Недавно авторами данной работы была успешно продемонстрирована возможность формирования однородных эпитаксиальных слоев InGaN с содержанием InN  $\sim 80\text{--}50\%$  при температурах, близких к началу активного разложения InN,  $\sim 470^\circ\text{C}$  [16]. Несмотря на то что явлению ФР InGaN посвящено множество работ (например, [5,8,9]), подробных исследований влияния условий роста МПЭ ПА на фазовый распад в InGaN-растворах с высоким и средним содержанием In, а также на их оптические свойства крайне мало.

Цель данной работы — исследование влияния ростовых параметров на формирование InGaN-слоя (содержание In  $\sim 60\%$ ), сформированного вдали от термодинамического равновесия, а также на его кристаллическое качество, электрические и оптические характеристики.

## 2. Методика эксперимента

Рост слоев InGaN проводился методом МПЭ ПА на установке STE 3N3 (ЗАО „НТО“). Использовались сапфировые ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) подложки диаметром 2” с ориентацией [0001], на которых последовательно выращивались высокотемпературные буферные слои AlN и GaN ( $T_{\text{gr}}^{\text{AlN}} = 820^\circ\text{C}$  и  $T_{\text{gr}}^{\text{GaN}} = 710^\circ\text{C}$ ) с толщинами  $d_{\text{AlN}} \sim 200$  нм и  $d_{\text{GaN}} \sim 700$  нм. Далее осуществлялся рост слоя  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  толщиной  $\sim 700$  нм с содержанием In в пределах  $60 \pm 3\%$  при значительно меньших температурах роста. При росте всех структур потоки индия и галлия составляли  $F_{\text{In}} \sim 0.2$  мкм/ч и  $F_{\text{Ga}} \sim 0.13$  мкм/ч соответственно. В первой серии образцов при неизменном соотношении потоков ( $III/V \sim 0.85$ ) варьировалась температура роста InGaN ( $T_{\text{gr}} = 430 \rightarrow 470^\circ\text{C}$ ), а во второй серии образцов при неизменной  $T_{\text{gr}} = 470^\circ\text{C}$  постепенно снижалось соотношение  $III/V$  до 0.65. Для создания потока активированного азота использовался

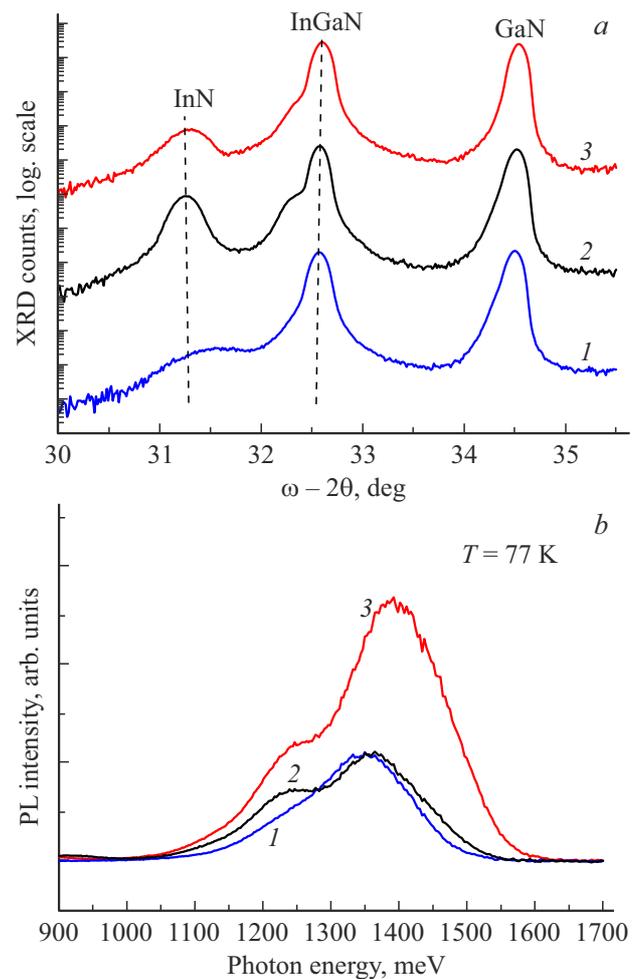
плазменный источник RF Atom Source HD 25 производства Oxford Applied Research; поток азота оставался неизменным в процессе роста на уровне 2 sccm (стандартных кубических сантиметра в минуту), мощность разряда плазменного источника азота варьировалась, обеспечивая необходимое соотношение потоков атомов III группы к активному азоту  $III/V \sim 0.65\text{--}0.85$ . Для характеристики выращенных структур были проведены исследования методами рентгенодифракционного (РД) анализа на дифрактометре BRUKER D8 DISCOVER, с помощью сканирующего электронного микроскопа SUPRA 50VP (СЭМ), измерений эффекта Холла и спектроскопии фотолюминесценции. Измерения спектров спонтанной ФЛ проводились при накачке структур непрерывным лазером с длиной волны излучения 450 нм и плотностью мощности накачки  $\sim 20$  Вт/см<sup>2</sup> при температуре  $T = 77$  К. Спонтанное излучение собиралось с поверхности образца и анализировалось решеточным монохроматором, оснащенным многоэлементным InGaAs-фотоприемником с длиной волны отсечки 2.1 мкм. Для исследования свойств InGaN-слоев по толщине использовалось ионное травление  $\text{Ag}^+$ , глубина травления контролировалась с помощью оптического интерферометра TALYSURF CCI 2000 и СЭМ.

## 3. Результаты и обсуждение

При исследовании первой серии образцов, в которой варьировалась температура роста InGaN  $T_{\text{gr}} = 430\text{--}470^\circ\text{C}$  при неизменном соотношении потоков  $III/V \sim 0.85$ , было обнаружено, что даже в образцах, выращенных при наименьшей температуре  $T_{\text{gr}} = 430^\circ\text{C}$ , наблюдается частичное разложение InGaN в процессе роста. Это отражается в наличии в спектрах рентгеноструктурного анализа при  $\omega - 2\theta$  сканировании наряду с симметричным сигналом от InGaN-слоя слабого (на несколько порядков меньше) сигнала от InN (рис. 1, а). Предполагается, что, несмотря на азотообогащенные условия роста, часть In не встраивается в растущий слой InGaN и на поверхности происходит накопление металлического In. Так как в данной работе  $T_{\text{gr}}$  существенно ниже температур реиспарения металлического In, то весь накопленный In остается на поверхности роста [14]. О том, что коэффициент встраивания In в растущую пленку  $\leq 1$  и снижается с увеличением температуры роста (разложение усиливается), сообщалось в разных работах [17,18]. По-видимому, для  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$  температура роста  $T_{\text{gr}} = 430^\circ\text{C}$  достаточно высока, коэффициент встраивания существенно  $< 1$ , и азотообогащенных условий с соотношением потоков  $III/V \sim 0.85$  недостаточно для того, чтобы подавить разложение. По окончании роста, во время остывания образца его поверхность выдерживается некоторое время под потоком активного азота, что и приводит к формированию фазы InN на поверхности основного слоя InGaN. То, что фаза InN формируется на поверхности, а не в объеме слоя InGaN,

будет показано далее. Пик от InGaN (рис. 1, *a* — спектр 1) при  $T_{gr} = 430^\circ\text{C}$  симметричен и однороден, и каких-либо признаков ФР в InGaN при этой температуре роста не наблюдается.

При повышении температуры роста до  $450^\circ\text{C}$  сигнал от InN заметно растет, что говорит об усилении разложения InGaN, и при этом у основного пика от InGaN-слоя наблюдается плечо, которое говорит о ФР и появлении фаз InGaN разного состава (рис. 1). Рост диффузии с температурой, что приводит к перераспределению атомов In и Ga, ФР и появлению фаз InGaN разного состава, является ожидаемым эффектом. Однако дальнейшее повышение температуры роста до  $470^\circ\text{C}$ , соответствующей началу активного разложения бинарного InN [4], несмотря на ожидаемое дальнейшее усиление диффузии, приводит к ослаблению эффектов как разложения, так и фазового распада. Об уменьшении эффектов ФР говорит снижение интенсивности плеча основного пика InGaN (рис. 1, *a*). Одной из причин, снижающих эффекты ФР при повышении  $T_{gr}$ , может быть приближение к линии солидуса на фазовой диаграмме состояния твердого раствора InGaN, т. е. к состоянию термодинамического равновесия [5,8,9]. О снижении темпов разложения можно судить по уменьшению интенсивности сигнала от InN при увеличении  $T_{gr}$  с  $450$  до  $470^\circ\text{C}$ . Также снижение количества накопленного металлического In подтверждается временем изменения картины дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО). Сразу после окончания роста InGaN ДБЭО демонстрирует тусклую точечную картину, что говорит о шероховатой поверхности InGaN и наличии металла на поверхности роста. После выдержки под потоком активного азота металлический In трансформируется в InN, и дифракция становится яркой с характерной для двумерного InN [0001] реконструкцией ( $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ ). Время изменения картины дифракции прямо пропорционально количеству накопленного In и снижается с 7 мин в случае роста при  $T_{gr} = 450^\circ\text{C}$  до 4 мин для  $T_{gr} = 470^\circ\text{C}$ . Зная скорость осаждения азотной компоненты ( $0.38$  мкм/ч для  $\text{III/V} = 0.85$ ), умножая ее на время смены картины дифракции (время связывания накопленного металлического In), можно оценить количество сформированного InN  $\sim 44$  нм для  $T_{gr} = 450^\circ\text{C}$  и  $\sim 25$  нм для  $T_{gr} = 470^\circ\text{C}$ . Эти оценки являются оценками сверху, так как при столь высоких  $T_{gr}$  и сильных упругих напряжениях (InN формируется на  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ ) идет активное разложение InN и скорость формирования InN существенно ниже скорости осаждения азотной компоненты. Снижение скорости разложения при повышении  $T_{gr}$  с  $450$  до  $470^\circ\text{C}$  неочевидно, так как в разных работах сообщается о монотонном снижении коэффициента встраивания In в InGaN с температурой роста [17,18], что должно приводить к увеличению количества накопленного In на поверхности роста с увеличением  $T_{gr}$ . Возможно, снижение скорости разложения, как и интенсивности ФР, при увеличении  $T_{gr}$  с  $450$  до  $470^\circ\text{C}$  связано с приближением к линии солидуса, т. е. к



**Рис. 1.** *a* — (0004)  $\omega - 2\theta$  спектры рентгеновской дифракции образцов с InGaN-слоями, выращенными при соотношении III/V  $\sim 0.85$  и  $T_{gr} = 430$  (1),  $450$  (2) и  $470^\circ\text{C}$  (3); пик от GaN происходит от буферного слоя. *b* — спектры спонтанной фотолюминесценции, измеренные при  $77$  К от образцов 1 (1), 2 (2) и 3 (3) с InGaN-слоями.

состоянию термодинамического равновесия на фазовой диаграмме состояния твердого раствора InGaN [5,8,9].

Происходящие в твердом растворе InGaN процессы разложения и ФР находят свое отражение и в спектрах фотолюминесценции (рис. 1, *b*). В образце с InGaN, выращенном при  $T_{gr} = 430^\circ\text{C}$ , в котором не наблюдается в спектре РД (рис. 1, *a*) признаков ФР, сигнал фотолюминесценции от InGaN представляет собой одиночный пик (рис. 1, *b*). В образцах с InGaN, полученных при более высоких температурах, наряду с основным пиком ФЛ наблюдается низкоэнергетическое плечо. Это полностью соответствует результатам РД анализа, по результатам которого в этих образцах, кроме основного пика отражения (0004) от InGaN с содержанием InN  $\sim 58\%$ , наблюдается плечо, соответствующее фазе InGaN с содержанием InN  $\sim 65\%$ . Полагается, что более „узкозонная“ фаза с большим содержанием InN связана

Основные параметры исследуемых структур с InGaN-слоями\*

Номер образца	$x_{\text{In}}$ , %	$T_{\text{gr}}$ , °C	III/V	$N_{\text{D}}$ , $10^{11} \text{ см}^{-2}$	$n_e$ , $10^{19} \text{ см}^{-3}$
1	58	430	0.85	2.4	2
2	58	450	0.85	1.8	1.3
3	58	470	0.85	1.3	0.8
4	61	470	0.75	0.6	1.1
5	62	470	0.65	0.6	1.8
6	60	450	0.85	1.2	2

Примечание\*:  $x_{\text{In}}$  — содержание InN в InGaN, определенное с помощью РД анализа;  $T_{\text{gr}}$  — температура роста InGaN; III/V — соотношение потоков во время роста InGaN;  $N_{\text{D}}$  — плотность прорастающих дислокаций в InGaN, определенная из РД анализа;  $n_e$  — фоновая концентрация электронов в InGaN, полученная из измерений эффекта Холла при 300 К.

с появлением низкоэнергетического плеча в спектре ФЛ (рис. 1, b). Интегральная интенсивность ФЛ растет с  $T_{\text{gr}}$ , что отражает улучшение кристаллического качества InGaN, снижение плотности прорастающих дислокаций и фоновой концентрации электронов в InGaN (см. таблицу). Такой же монотонный рост интенсивности ФЛ с температурой роста, даже несмотря на начавшееся разложение, наблюдался для слоев InGaN с содержанием InN ~ 80% вплоть до начала их разложения [19].

Как было показано выше, повышение температуры роста снижает плотность прорастающих дислокаций, фоновую концентрацию электронов (см. таблицу) и положительно сказывается на увеличении интенсивности фотолуминесценции гетероструктур с InGaN-слоями. Однако рост при высоких температурах может вызывать разложение и ФР твердого раствора InGaN. Для исследования возможности подавления указанных эффектов и их влияния на фотолуминесценцию образцов была выращена серия структур с  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$  слоями при  $T_{\text{gr}} = 470^\circ\text{C}$  с разным соотношением потоков III/V ~ 0.65–0.85.

Методами рентгеноструктурного анализа было обнаружено, что понижение соотношения III/V с 0.85 до 0.75 приводит к исчезновению в спектре дифракции при  $\omega - 2\theta$  сканировании плеча при основном пике отражения от слоя InGaN (рис. 2, a). Это говорит о существенном подавлении ФР в растворе  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$  при данных условиях роста. В то же время слабый сигнал от InN все еще наблюдается, что указывает на неполное подавление разложения. Лишь понижение соотношения III/V до 0.65 приводит к полному исчезновению сигнала от бинарного InN, и при  $\omega - 2\theta$  сканировании наблюдается только симметричный пик отражения от InGaN. Так как в образцах 3, 4 и 5  $T_{\text{gr}} = 470^\circ\text{C}$  одинакова, то объемная диффузия в них также не должна отличаться. Изменение соотношений III/V, как было отмечено во Введении, сказывается лишь на поверхностной диффузии. При данных  $T_{\text{gr}}$  именно она является основным механизмом, ответственным за перераспределение атомов In и Ga и приводящим к ФР.

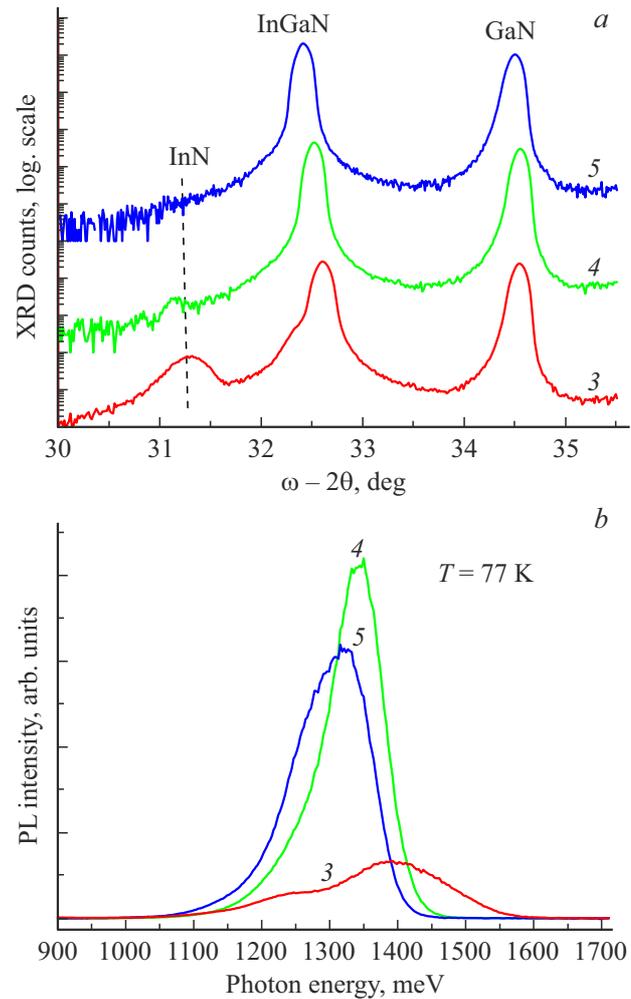


Рис. 2. a — (0004)  $\omega - 2\theta$  спектры рентгеновской дифракции образцов с InGaN-слоями, выращенными при  $T_{\text{gr}} = 470^\circ\text{C}$  и соотношении III/V ~ 0.85 (3), 0.75 (4) и 0.65 (5); пик от GaN происходит от буферного слоя. b — спектры спонтанной фотолуминесценции, измеренные при 77 К от образцов 3 (3), 4 (4) и 5 (5) с InGaN-слоями. (Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи).

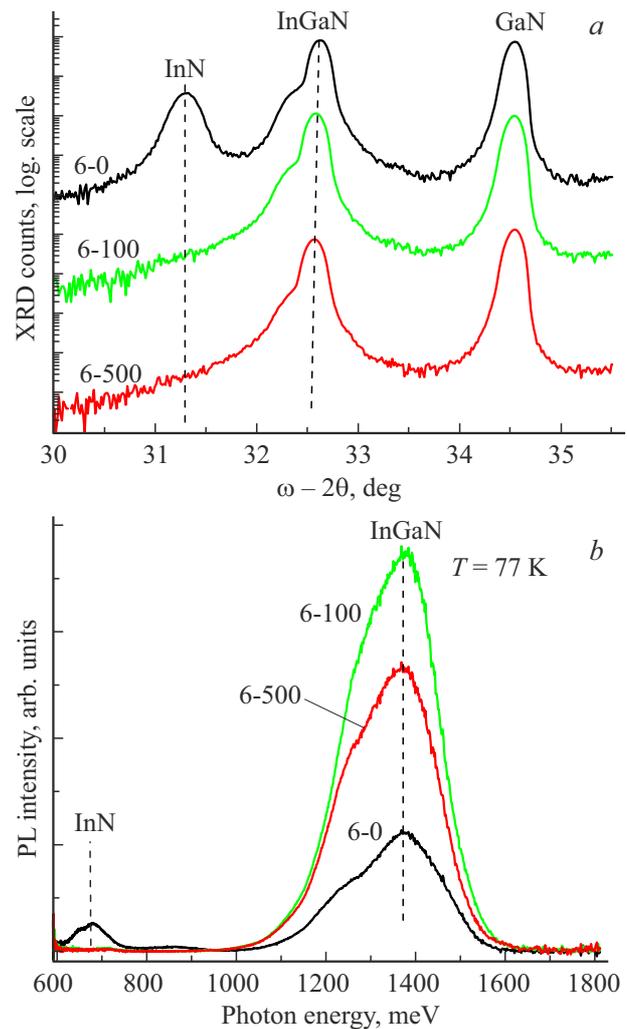
Ограничение поверхностной диффузии за счет перехода в сильно азотообогащенные условия роста приводит к подавлению ФР и возможности получения однородных слоев InGaN.

Анализ спектров ФЛ образцов с InGaN-слоями, выращенными при  $T_{\text{gr}} = 470^\circ\text{C}$  и разных соотношениях III/V, показал, что подавление ФР при уменьшении III/V с 0.85 до 0.75 приводит к существенному (~ 6 раз) увеличению интенсивности ФЛ (рис. 2, b). Это может быть отчасти связано с улучшением кристаллического качества получаемых слоев InGaN и снижением плотности прорастающих дислокаций (см. таблицу), однако можно предположить, что основную роль в „гашении“ ФЛ образца 3 относительно образцов 4 и 5 играет наличие приповерхностного слоя InN. Этот слой вносит как сильное поглощение излучения накачки при измерениях ФЛ, так

и перепоглощение спонтанного излучения (ФЛ) InGaN, снижая эффективность вывода излучения из образца. В то же время при дальнейшем снижении III/V до 0.65 и полном подавлении как ФР, так и разложения InGaN интенсивность ФЛ даже немного снижается, несмотря на снижение плотности прорастающих дислокаций (см. таблицу). Возможно, снижение интенсивности ФЛ от однородного InGaN (III/V ~ 0.65) по сравнению с частично разлагающимся InGaN (III/V ~ 0.75) связано с увеличением фоновой концентрации электронов и усилением безызлучательной оже-рекомбинации в этом образце (см. таблицу). Как утверждает некоторыми авторами, наличие на поверхности роста избыточного металлического In препятствует встраиванию в растущий слой InN разных примесей, которые, являясь мелкими донорами, дают основной вклад в фоновую концентрацию электронов [20]. Возможно, это и приводит к пониженной  $n_e$  в частично разлагающемся по сравнению с однородным InGaN.

Как утверждалось выше, разложение InGaN в процессе роста приводит к накоплению металлического In на поверхности InGaN, который формирует InN в процессе выдержки поверхности под потоком азота по окончании роста. В то же время ФР приводит к формированию фаз разного состава по всей толщине слоя InGaN. Для проверки этих утверждений был исследован образец со слоем  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ , выращенным при  $T_{\text{gr}} = 450^\circ\text{C}$  и соотношением потоков III/V ~ 0.85, в котором с помощью рентгеноструктурного анализа наблюдалось и разложение (фаза InN), и фазовый распад (плечо основного пика InGaN, указывающее на наличие фазы InGaN состава, отличного от номинального) (рис. 3, а). С помощью ионного травления на одной части образца сверху выращенной гетероструктуры был удален слой толщиной ~ 100 нм, а на другой ~ 500 нм при изначальной толщине InGaN слоя ~ 700 нм. Как можно видеть на рис. 3, после удаления приповерхностного слоя толщиной ~ 100 нм в спектре рентгеновской дифракции при  $\omega - 2\theta$  сканировании сигнал, связанный с InN, исчез. Это говорит о том, что фаза InN присутствует только в приповерхностной области. Важно отметить, что форма, положение и взаимные интенсивности как основного пика от  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$ -слоя, так и плеча почти не меняются при травлении на ~ 100 и 500 нм. Это позволяет предположить, что также не меняется количественное соотношение фаз разного состава InGaN, и подтверждает идею о том, что фазовый распад идет по всему объему InGaN-слоя.

На рис. 3, б приведены спектры ФЛ рассматриваемой серии образцов. Так, в исходной структуре („6-0“), кроме основного интенсивного отклика слоя InGaN, присутствует и ФЛ в длинноволновой области, характерной для InN. В травленных образцах подобная длинноволновая ФЛ отсутствует, что также подтверждает приповерхностное формирование InN при разложении слоя InGaN в процессе роста. При этом интенсивность ФЛ InGaN в образце „6-100“ оказывается существенно выше, чем



**Рис. 3.** а — (0004)  $\omega - 2\theta$  спектры рентгеновской дифракции образца 6 с InGaN-слоем, выращенными при  $T_{\text{gr}} = 450^\circ\text{C}$  и соотношении III/V ~ 0.85 после роста (6-0), после ионного травления на глубину 100 нм (6-100), после ионного травления на глубину 500 нм (6-500). б — спектры спонтанной фотолюминесценции, измеренные при 77 К от образцов 6-0, 6-100 и 6-500 из рис. 3, а.

в образце „6-0“ что можно объяснить (как и ранее для образцов 4 и 5 в сравнении с образцом 3) отсутствием сильно поглощающего приповерхностного слоя InN. При большей глубине травления (~ 500 нм в образце „6-500“) интенсивность ФЛ InGaN несколько снижается. Это может быть связано как с тем, что сам излучающий слой становится довольно тонким (~ 200 нм), так и с возрастающей дефектностью InGaN по мере приближения к интерфейсу с буферным слоем GaN, что усиливает процессы безызлучательной рекомбинации.

#### 4. Заключение

Таким образом, в работе исследованы особенности формирования с помощью метода МПЭ ПА объемных

слоев  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  в области составов, соответствующих зоне несмешиваемости тройных твердых растворов  $\text{InGaN}$  ( $x_{\text{In}} \sim 60\%$ ). Изучены проявления эффектов разложения осаждаемого  $\text{InGaN}$  и его фазового распада в зависимости от ростовых условий — температуры эпитаксии  $T_{\text{gr}}$  и соотношения потоков III/V. Показано, что при формировании  $\text{InGaN}$  с содержанием  $\text{In} \sim 60\%$  возникновение фазы бинарного  $\text{InN}$  связано с процессами разложения, которые происходят в приповерхностной области, в то время как фазовый распад идет по всему объему слоя  $\text{InGaN}$ ; при этом интенсивности процессов разложения и фазового распада немонотонно зависят от температуры эпитаксии в диапазоне  $T_{\text{gr}} = 430\text{--}470^\circ\text{C}$ . Продемонстрировано, что в исследуемом диапазоне температур фазовый распад в слоях  $\text{InGaN}$  определяется поверхностной диффузией, которую можно подавить за счет роста в сильно азотобогащенных условиях, что позволило получить однородные слои  $\text{InGaN}$ . Подтверждено, что подавление указанных процессов за счет снижения ростовых температур также позволяет формировать однородные слои  $\text{InGaN}$ , в то время как структурное качество таких слоев оказывается невысоким, что выражается в низкой эффективности люминесценции получаемых образцов. Значительно более выигрышным здесь оказывается высокотемпературный ( $T_{\text{gr}} = 470^\circ\text{C}$ ) рост в сильно азотобогащенных условиях ( $\text{III/V} \sim 0.65$ ). Показано, что в таких условиях формируются однородные слои  $\text{InGaN}$  значительно лучшего качества, демонстрирующие интенсивную ФЛ в ближней ИК области спектра.

### Финансирование работы

Работа выполнена на оборудовании УСУ „Фемтоспектр“ Центра коллективного пользования ИФМ РАН при поддержке Российского научного фонда (грант РНФ № 22-22-00630).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] R. Kour, S. Arya, S. Verma, A. Singh, P. Mahajan, A. Khosla. *ECS J. Solid State Sci. Technol.*, **9**, 015011 (2020). DOI: 10.1149/2.0292001JSS
- [2] Z.C. Feng, *Handbook of Solid-State Lighting and LEDs* (Boca Raton, FL, CRC Press, Taylor & Francis Group, 2017) p. 3. DOI: 10.1201/9781315151595
- [3] H. Morkoc, S. Strite, G.B. Gao, M.E. Lin, B. Sverdlov, M. Burns. *J. Appl. Phys.*, **76**, 1363 (1994). DOI: 10.1063/1.358463
- [4] S.V. Ivanov, T.V. Shubina, T.A. Komissarova, V.N. Jmerik. *J. Cryst. Growth*, **403**, 83 (2014). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2014.06.019
- [5] G.B. Stringfellow. *J. Cryst. Growth*, **312**, 735 (2010). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2009.12.018
- [6] M.A. Der Maur, A. Pecchia, G. Penazzi, W. Rodrigues, A. Di Carlo. *Phys. Rev. Lett.*, **116**, 027401 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.027401
- [7] E.L. Piner, N.A. El-Mastry, S.X. Liu, S.M. Bedair. *Mater. Res. Soc. Proc.*, **482**, 125 (1998). DOI: 10.19009/jjacg.43.4\_222
- [8] S.Y. Karpov. *MRS Internet J. Nitride Semicond. Res.*, **3**(1), 16 (1998). DOI: 10.1557/S1092578300000880
- [9] S.Y. Karpov, N.I. Podolskaya, I.A. Zhmakin, A.I. Zhmakin. *Phys. Rev. B*, **70**, 235203 (2004). DOI: 10.1103/PhysRevB.70.235203
- [10] E. Iliopoulos, A. Georgakilas, E. Dimakis, A. Adikimenakis, K. Tsagaraki, M. Androulidaki, N.T. Pelekanos. *Phys. Status Solidi A*, **203**(1), 102 (2006). DOI: 10.1002/pssa.200563509
- [11] C.A.M. Fabien, B.P. Gunning, W.A. Doolittle, A.M. Fischer, Y.O. Wei, H. Xie, F.A. Ponce. *J. Cryst. Growth*, **425**, 115 (2015). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2015.02.014
- [12] S.A. Kazazis, E. Papadomanolaki, M. Kayambaki, E. Iliopoulos. *J. Appl. Phys.*, **123**, 125101 (2018). DOI: 10.1063/1.5020988
- [13] A.K. Tan, N.A. Hamzah, M.A. Ahmad, S.S. Ng, Z. Hassan. *Mater. Sci. Semicond. Process.*, **143**, 106545 (2022). DOI: 10.1016/j.mssp.2022.106545
- [14] G. Koblmuller, C.S. Galliant, J.S. Speck. *J. Appl. Phys.* **101**, 083516 (2007). DOI: 10.1063/1.2718884
- [15] R. Averbeck, H. Riechert. *Phys. Status Solidi A*, **176**, 301 (1999). DOI: 10.1002/(SICI)1521-396X(199911)176:1<301::AID-PSSA301>3.0.CO;2-H
- [16] Б.А. Андреев, Д.Н. Лобанов, Л.В. Красильникова, К.Е. Кудрявцев, А.В. Новиков, П.А. Юнин, М.А. Калинин, Е.В. Скороходов, З.Ф. Красильник. *ФТП*, **56**(7) (2022). DOI: 10.21883/FTP.2022.07.52763.18
- [17] H. Komaki, T. Nakamura, R. Katayama, K. Onabe, M. Ozeki, T. Ikari. *J. Cryst. Growth*, **301**, 473 (2007). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2006.11.123
- [18] A. Kraus, S. Hammadi, J. Hisek, R. Buß, H. Jönen, H. Bremers, A. Hangleiter. *J. Cryst. Growth*, **323**(1), 72 (2011). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2010.10.124
- [19] K.E. Kudryavtsev, D.N. Lobanov, L.V. Krasilnikova, A.N. Yablonskiy, P.A. Yunin, E.V. Skorokhodov, M.A. Kalinnikov, A.V. Novikov, B.A. Andreev, Z.F. Krasilnik. *ECS J. Solid State Sci. Technol.*, **11**, 014003 (2022). DOI: 10.1149/2162-8777/ac4d80
- [20] C.S. Gallinat, G. Koblmuller, J.S. Speck. *Appl. Phys. Lett.*, **95**, 022103 (2009). DOI: 10.1063/1.3173202

Редактор А.Н. Смирнов

## Features of Formation of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ Bulk Layers in the Immiscibility Gap of Solid Solutions ( $x \sim 0.6$ ) by Molecular Beam Epitaxy with Plasma Nitrogen Activation.

*M.A. Kalinnikov<sup>1</sup>, D.N. Lobanov<sup>1</sup>, K.E. Kudryavtsev<sup>1</sup>,  
B.A. Andreev<sup>1</sup>, P.A. Yunin<sup>1</sup>, L.V. Krasilnikova<sup>1</sup>,  
A.V. Novikov<sup>1</sup>, E.V. Skorokhodov<sup>1</sup>, Z.F. Krasilnik<sup>1,2</sup>*

<sup>1</sup> Institute for Physics of Microstructures

Russian Academy of Sciences,  
603950 Nizhny Novgorod, Russia

<sup>2</sup> Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod,  
603950 Nizhny Novgorod, Russia

**Abstract** In this paper, the features of the formation of bulk InGaN layers with an indium content of  $\sim 60\%$  in the immiscibility gap of InGaN ternary solid solutions by the method of molecular-beam epitaxy with plasma nitrogen activation are studied. The structures under study were grown on sapphire substrates, while the epitaxy temperature and the ratio of metal (In+Ga) and activated (atomic) nitrogen fluxes were varied. It has been demonstrated that the rates of thermal decomposition and phase separation for  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{N}$  ternary solutions depend nonmonotonically on the growth temperature in the range  $T_{\text{gr}} = 430\text{--}470^\circ\text{C}$ . It is shown that InGaN thermal decomposition processes occur on the growth surface and lead to the appearance of surface phases of metallic In and binary InN, while phase separation leads to the appearance of InGaN phases of various compositions throughout the volume of the deposited InGaN layer. It is shown that, in the temperature range under study, phase separation is determined by surface diffusion, which can be suppressed by growth under highly nitrogen-enriched conditions, which made it possible to obtain homogeneous InGaN layers with an In content of  $\sim 60\%$  during high-temperature ( $T_{\text{gr}} = 470^\circ\text{C}$ ) growth. It is shown that the suppression of InGaN thermal decomposition processes is decisive in achieving effective interband luminescence of the obtained structures, while the presence of phase separation affects the radiative properties of InGaN layers to a lesser extent, at least in the region of low ( $T = 77\text{ K}$ ) temperatures.