

Формирование планарных структур с InGaN-слоями для источников света красного диапазона длин волн

© Д.Н. Лобанов¹, М.А. Калинников¹, К.Е. Кудрявцев¹, Б.А. Андреев¹, П.А. Юнин¹,
А.В. Новиков¹, Е.В. Скороходов¹, З.Ф. Красильник^{1,2}

¹ Институт физики микроструктур Российской академии наук,
603087 Нижний Новгород, Россия

² Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
603950 Нижний Новгород, Россия

E-mail: dima@ipmras.ru

Поступила в Редакцию 9 июля 2025 г.

В окончательной редакции 1 октября 2025 г.

Принята к публикации 16 октября 2025 г.

По сравнению со структурами InGaN для хорошо освоенного сине-зеленого диапазона формирование слоев InGaN, эффективно излучающих и фоточувствительных в красном и инфракрасном диапазонах длин волн, является трудной задачей для существующих ростовых технологий. Понижение температуры роста является основным способом повысить содержание In в растворе InGaN, однако это может приводить к деградации кристаллического качества и излучательных свойств получаемых слоев. В методе молекулярно-пучковой эпитаксии с плазменной активацией (МПЭ ПА) на ростовые процессы, кроме температуры, можно существенно влиять с помощью изменения стехиометрических соотношений разных компонент InGaN. В данной работе исследовано влияние температуры роста, соотношения потоков элементов III и V групп на особенности формирования планарных структур со слоями InGaN, их структурное совершенство и морфологию поверхности. Обнаружено, что в условиях роста, близких к стехиометрическим, понижение температуры роста до 575 °C позволяет повысить эффективность встраивания In и увеличить его содержание в InGaN до 39 %. Однако при этом в слоях InGaN существенно увеличиваются флуктуации состава, растет шероховатость поверхности и плотность прорастающих дислокаций. Продемонстрировано, что при высоких температурах роста ~ 605 °C увеличение потока In, компенсирующего его десорбцию с поверхности роста, позволяет получить однородный слой InGaN с содержанием In до ~ 33.5 % и гладкой морфологией поверхности.

Ключевые слова: нитрид индия и галлия, молекулярно-пучковая эпитаксия, красный диапазон длин волн.

DOI: 10.61011/FTP.2025.07.62005.8371

1. Введение

Полупроводниковые гетероструктуры на основе InGaN (GaN с небольшой долей InN) занимают лидирующие позиции в светодиодных и лазерных применениях в коротковолновой, сине-зеленой части видимого спектра [1–3]. Продвижение в сторону длинных волн, в красно-оранжевый диапазон и далее к инфракрасной (ИК) области спектра сдерживается технологическими сложностями получения InN и тройных растворов InGaN с содержанием In > 30 %. По этой причине излучатели красного диапазона строятся на системе AlInGaP, и даже в полноцветных микропикселях на базе GaN красный цвет „закрывается“ на настоящий момент AlInGaP-пикселями, что является проблемой для монолитной интеграции подобных систем. Реализация полностью III-нитридных дисплеев — актуальная задача, требующая разработки эффективных красных InGaN-микросветодиодов. Замена нитридов фосфидами в качестве источников красного диапазона уже сейчас рассматривается для микропикселеев и очков виртуальной (или дополненной) реальности. Одной из проблем фосфидов является высокая скорость поверхностной рекомбина-

ции, которая существенно усугубляется при уменьшении размеров светоизлучающих устройств до микронных размеров и приводит к резкому снижению квантовой эффективности их работы. У нитридов подобная проблема не так выражена, что может приводить к большей эффективности их работы по сравнению с фосфидами для чипов микронных размеров [4]. Среди традиционных преимуществ нитридов над материалами A^{III}B^V обычно упоминают хорошо отработанную технологию формирования высококачественных эпитаксиальных слоев GaN на кремниевых подложках, что не только удешевляет производство, но и позволяет интегрировать нитриды с кремниевой электроникой и фотоникой. Еще одним преимуществом можно назвать экологичность нитридов по сравнению с производством структур на основе A^{III}B^V, содержащих крайне ядовитые фосфор и мышьяк.

Основные проблемы продвижения нитридов в красный и ИК диапазоны связаны с увеличением рассогласования параметров решеток между буферными слоями GaN и слоями InGaN с ростом содержания In в них, а также необходимостью снижения температуры роста для увеличения коэффициента встраивания In в растущий слой InGaN, что приводит к росту дефектности

получаемых структур [1–7]. Кроме того, по мере продвижения к растворам „средних“ составов *InGaN* усугубляется проблема фазового распада этого соединения и растет шероховатость поверхности. Все вышесказанное привело к отсутствию коммерческих источников света на основе этого материала в красном и ИК диапазонах [4]. Таким образом, получение однородных *InGaN* слоев с содержанием In до 50 % и атомарно-гладкой поверхностью, демонстрирующих высокое кристаллическое качество и излучательные характеристики, является актуальной задачей для создания эффективных источников красного диапазона длин волн.

Мотивация исследования связана также с тем, что авторами настоящей работы было впервые получено стимулированное излучение (СИ) в планарных структурах с *InN* и *InGaN* (с долей In > 60 %), выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии с плазменной активацией азота (МПЭ ПА) [8–10]. Высокая плотность прорастающих дислокаций в *InGaN* является одним из основных факторов, определяющих низкую температуру ($T < 200$ К) и высокие пороги для реализации стимулированного излучения. В работах [11,12] было показано, что снижение плотности прорастающих дислокаций является важным фактором для увеличения эффективности спонтанного и стимулированного излучения *InN* в ИК диапазоне. Одним из способов снижения плотности прорастающих дислокаций является формирование буферных слоев, уменьшающих рассогласование параметров решетки между подложкой и активным слоем. Так, рост методами газофазной эпитаксии высококачественных *InGaN*-буферных слоев с малым содержанием In, излучающих в синем диапазоне, позволил сформировать на них *InGaN*-структуры с большим содержанием In улучшенного кристаллического качества, излучающих в желто-оранжевом диапазоне длин волн с внешней квантовой эффективностью до 18 % [13]. Таким образом, *InGaN*-слои высокого кристаллического качества с атомарно-гладкой поверхностью и как можно более высоким содержанием In могли бы послужить буферным слоем для дальнейшего формирования на них структур на основе *InN* для ИК диапазона.

Настоящая работа направлена на исследование возможности получения однородных слоев *InGaN* высокого кристаллического качества и атомарно-гладкой поверхностью с содержанием In до 50 %.

2. Методика эксперимента

Исследуемые слои *InGaN* были выращены на 2-дюймовых подложках сапфира (с — Al_2O_3) методом ПА-МПЭ на установке STE 3N3 (ЗАО „НТО“). Высокотемпературные буферные слои *AlN* (200 нм) и *GaN* (700 нм) последовательно выращивались на сапфировой подложке при температурах (T_g) 820 и 710 °C соответственно. Температура подложки поддерживалась в режиме постоянной мощности нагревателя. После

роста высокотемпературных буферных слоев *GaN/AlN* мощность нагрева снижалась, и температура подложки перед ростом *InGaN* стабилизировалась в течение ~ 30 мин. Изменений по показаниям пирометра или термопары в процессе роста *InGaN* не наблюдалось. Далее в течение 2 ч проходил рост слоя *InGaN* при температурах $T_g \sim 575$ –605 °C. Толщина *InGaN* слоев составляла 490–600 нм в зависимости от состава. Поток Ga оставался неизменным во время роста всех *InGaN*-слоев и составлял ~ 0.17 мкм/ч. В первой серии образцов, в которой исследовалось влияние температуры роста на формирование и свойства *InGaN* слоев, поток In составлял ~ 0.14 мкм/ч, а активной компоненты азота ~ 0.33 мкм/ч. Во второй серии образцов, в которой исследовался рост *InGaN* при наиболее высокой из рассматриваемых температур $T_g \sim 605$ °C, поток In менялся от ~ 0.14 до ~ 0.26 мкм/ч, а поток азота от ~ 0.33 до ~ 0.45 мкм/ч.

Для сравнения с результатами других работ, в которых указывались другие единицы измерения потоков, использовались известные геометрические соотношения. Концентрация атомов Ga для *GaN* в решетке типа вюрцита составляет $4.38 \cdot 10^{22}$ атом/см³ [14]. 1 МС (моносвой) *GaN* соответствует $c/2 = 0.259$ нм или ~ $1.14 \cdot 10^{15}$ атом/см² [15]. Таким образом, для потока атомов Ga 1 мкм/ч = $1.22 \cdot 10^{15}$ атом/см² · с.

Для создания потока активированного азота использовался источник плазмы RF Atom Source HD 25 (Oxford Applied Research); поток азота в процессе роста оставался неизменным на уровне 2 sccm (стандартных кубических сантиметров в минуту), мощность разряда источника азотной плазмы варьировалась в диапазоне 170–220 Вт. Выращенные образцы были охарактеризованы методами рентгеновской дифракции (РДА) на дифрактометре Bruker D8 Discover, с помощью цифрового оптического микроскопа Keyence VHX-1000E, сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) на микроскопе Supra 50VP, фотолюминесцентной (ФЛ) спектроскопии и эффекта Холла. Плотность дислокаций определялась по полуширине дифракционных пиков, зарегистрированных при сканировании в направлениях (0004) и (1012), в соответствии с методом, описанным в работе [16]. Для определения состава *InGaN*-слоев снимались карты обратного пространства, поскольку в них была обнаружена неполная релаксация упругих напряжений. Остаточные упругие напряжения варьировались от ~ 50 % для *InGaN*-слоев, выращенных при 605 °C, до ~ 30 % для *InGaN*-слоев, выращенных при 575 °C. Концентрация электронов, по данным измерений эффекта Холла, в исследуемых образцах составляла ~ 10^{17} см⁻³. Для измерений ФЛ образцы возбуждались диодным лазером непрерывного действия (CW), работающим на длине волны 450 нм. Излучение образца анализировалось решеточным монохроматором и детектировалось с помощью кремниевой ПЗС-матрицы (Princeton Instruments).

3. Модели ростовых процессов

При рассмотрении влияния температуры роста на состав InGaN-слоев методом МПЭ обычно упоминают всего два процесса — десорбция атомов In с поверхности роста и термическое разложение, которое подразумевает разрыв связей In-N [17,18].

Следующим важным процессом, определяющим состав растущего InGaN-слоя, является термическое разложение. Диапазон температур, в котором методом МПЭ ПА получают слои InGaN, обычно 450–650 °C [19]. В этом диапазоне температур не наблюдается термического разложения GaN и десорбции Ga с поверхности роста. Поэтому состав InGaN при заданной температуре роста определяется скоростями разложения связей In-N, десорбции In, а также соотношениями потоков Ga, In и активного азота (N*) [17,19]. В случае азотобогащенных условий роста содержание In в слое InGaN будет даваться выражением

$$x_{\text{In}} = (F_{\text{In}} - F_{\text{In}}^{\text{des}}) / (F_{\text{In}} - F_{\text{In}}^{\text{des}} + F_{\text{Ga}}),$$

$$F_{\text{In}}^{\text{des}} = C^{\text{In}} \exp(-E_a^{\text{In}}/kT), \quad (1)$$

где x_{In} — доля In в InGaN, F_{In} и F_{Ga} — потоки In и Ga, поступающие на поверхность роста, $F_{\text{In}}^{\text{des}}$ — поток испаряющегося In с поверхности роста. Важно заметить, что азотобогащенные условия роста задаются не просто условием $F_{\text{In}} + F_{\text{Ga}} - F_{\text{In}}^{\text{des}} < F_{\text{N}}$, а более жестким условием, учитывающим частичное разложение связей In-N:

$$F_{\text{In}} + F_{\text{Ga}} - F_{\text{In}}^{\text{des}} + F_{\text{InN}}^{\text{dec}} < F_{\text{N}}, \quad (2)$$

где $F_{\text{InN}}^{\text{dec}}$ — скорость разложения связей In-N [19]. Для случая металлобогащенных условий роста

$$x_{\text{In}} = 1 - F_{\text{Ga}} / (F_{\text{N}} - F_{\text{InN}}^{\text{dec}}), \quad (3)$$

где скорость разложения связей In-N зависит от состава InGaN (x_{In}) и определяется выражением

$$F_{\text{InN}}^{\text{dec}} = C^{\text{InN}} x_{\text{In}} \exp(-E_a^{\text{InN}}/kT), \quad (4)$$

где E_a^{InN} — энергия активации разложения InN, C^{InN} — константа скорости разложения. В результате полное выражение для содержания In в растворе InGaN для случая металлобогащенного роста:

$$x_{\text{In}} = \left(F_{\text{N}} + B - \left((F_{\text{N}} + B)^2 - 4B(F_{\text{N}} - F_{\text{Ga}}) \right)^{1/2} \right) / 2B,$$

$$B = C^{\text{InN}} \exp(-E_a^{\text{InN}}/kT). \quad (5)$$

В изложенной выше модели зависимости состава растущего InGaN-слоя от потоков и температуры роста имеется ряд существенных недостатков. Во-первых, процесс десорбции рассматривается независимо от состава InGaN и количества In на поверхности, а энергия активации этого процесса $E_{\text{In}}^{\text{des}}$ принимается равной 2.49 эВ [18,19], что соответствует процессу испарения In из металлической фазы. Другой недостаток отмечается

авторами вышеизложенной модели и связан с зависимостью E_a^{InN} от состава InGaN [15]. В работе [17] экспериментально показано, что энергия активации разложения InGaN монотонно меняется от 3.48 для бинарного InN до 3.81 эВ для GaN. В то же время в работе [19] для описания экспериментальных данных авторы используют независящую от состава энергию активации разложения $E_a^{\text{InN}} = 1.84$ эВ. Таким образом, получаемые разными авторами зависимости скорости разложения In-N-связей от составов растворов InGaN, полученные в разных соотношениях потоков материалов и температур роста, приводят к тому, что состав InGaN-слоев определяется в значительной степени экспериментально. В данной работе результаты модели, изложенной в работе [19] и рассчитанные по формулам (1)–(5) будут сопоставлены с нашими экспериментальными результатами. Более комплексные исследования, включающие в себя зависимость шероховатости поверхности, кристаллического качества и излучательных свойств от условий роста для слоев InGaN „красного“ диапазона длин волн, в литературе представлены единичными работами. Научной группой из ФТИ им. А.Ф. Иоффе было продемонстрировано, что при росте методом МПЭ ПА [20] уже при увеличении среднего содержания In в InGaN с 10 до 17% наблюдались значительные флуктуации состава, а ширина интегрального сигнала фотолюминесценции увеличивалась в разы, демонстрируя сигнал от зеленой области спектра до красной. Это подчеркивает сложность формирования однородных растворов InGaN для красного диапазона длин волн, для которого необходимо содержание In ~ 40 –50% [21].

4. Результаты и обсуждение

В данной работе рост InGaN-слоев в первой серии образцов проходил номинально в слабоазотобогащенных условиях (соотношение потоков III/V ~ 0.94). Основные параметры этой серии образцов и условий роста указаны в табл. 1. Если бы отсутствовали процессы реиспарения In, разложения InGaN и фазового распада, то следовало бы ожидать сформирования раствора с содержанием In $\sim 45\%$, согласно формуле (1).

Таблица 1. Основные параметры исследуемых структур с InGaN-слоями первой серии

№ образца	T_g , °C	x_{In} , %	N_D , см^{-2}	$K_{\text{incorp}}^{\text{In}}$	Капли In
1	605	29	$8.9 \cdot 10^{10}$	0.5	Нет
2	595	35	$9.5 \cdot 10^{10}$	0.65	Нет
3	585	37	$1.8 \cdot 10^{11}$	0.71	Есть
4	575	39	$2 \cdot 10^{11}$	0.78	Есть

Примечание. Указаны температура роста (T_g), доля индия (x_{In}) в составе тройного раствора, плотность дислокаций (N_D), коэффициент встраивания In ($K_{\text{incorp}}^{\text{In}}$), который равен отношению потоков встраившегося в InGaN In к упавшему на поверхность роста, а также наличие капель металлического In на поверхности InGaN-слоя.

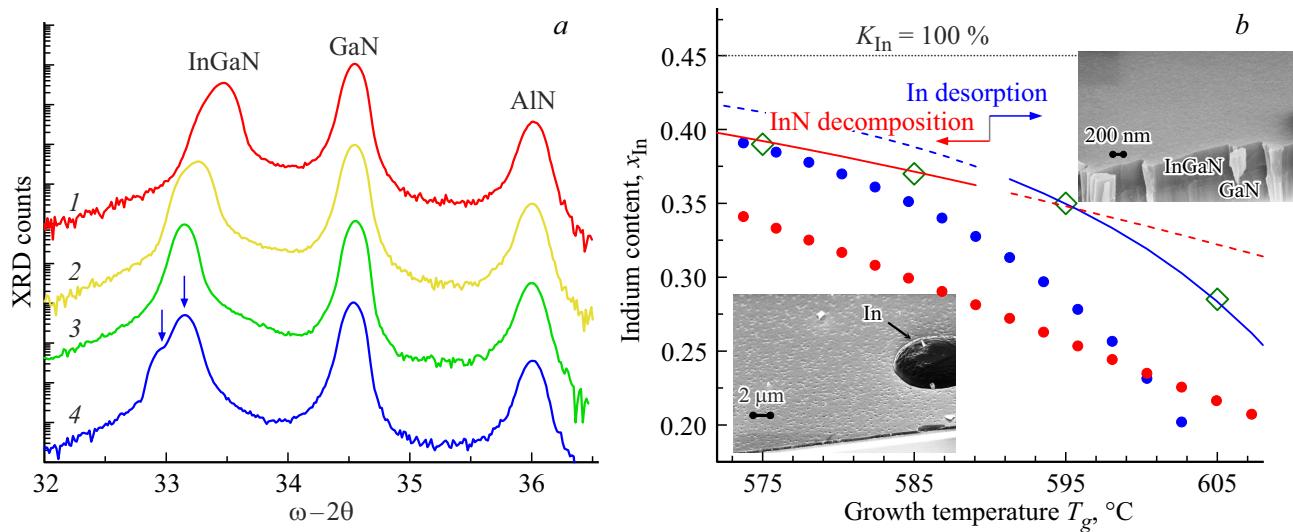


Рис. 1. *a* — (0004) $\omega - 2\theta$ спектры рентгеновской дифракции образцов 1, 2, 3 и 4 с InGaN-слоями, выращенными при разных температурах, из табл. 1 (номера кривых соответствуют номерам образцов). Синими стрелками для образца 4 показаны сигналы от InGaN с разным содержанием In (39 % — основной пик, правый и 43 % — „плечо“, слева от основного пика). Рефлексы GaN и AlN соответствуют буферным подслоям. *b* — зависимость состава InGaN от температуры: зеленые ромбы — экспериментальные данные для образцов 1, 2, 3 и 4; красные кружки — расчет состава InGaN в условиях металлобогащенного роста (согласно (3)), с C^{InN} и E_a^{InN} , взятыми из работы [19]; синие кружки — расчет состава InGaN в условиях азотобогащенного роста (согласно (1)), с C^{In} и E_a^{In} , взятыми из работы [17]; красная линия (сплошная и штриховая) — расчет состава InGaN в условиях металлобогащенного роста (согласно (3)), с C^{InN} и E_a^{InN} , уточненными в данной работе; синяя линия (сплошная и штриховая) — расчет состава InGaN в условиях азотобогащенного роста (согласно (1)), с C^{In} и E_a^{In} , уточненными в данной работе. СЭМ-снимки образцов 1 (справа сверху) и 4 (слева снизу). Черной штриховой линией показано содержание In в InGaN (0.45 или 45 %) для случая его полного встраивания ($K_{\text{Incorp}}^{\text{In}} = 1$ или 100 %).

В результате роста при наиболее высокой температуре 605 °C (образец 1), согласно данным рентгеноструктурного анализа (рис. 1, *a*), формируется однородный раствор с содержанием In $\sim 29\%$. Это означает, что в слой InGaN встраивалось лишь около половины атомов In, попадающих на поверхность роста, — коэффициент встраивания In ($K_{\text{Incorp}}^{\text{In}}$), рассчитываемый как отношение потока встроившегося In к падающему потоку In, составляет ~ 0.5 .

Методами СЭМ было обнаружено, что у образца 1 гладкая двумерная поверхность InGaN-слоя, и капли металлического In на ней отсутствуют (рис. 1, *b*). Из этого следует, что одна часть падающего потока In встроилась в InGaN, другая — испарилась, а это значит, что состав InGaN в этом образце определяется скоростью десорбции металлического In. Понижение температуры до 595 °C (образец 2 из табл. 1), по данным СЭМ, не привело к накоплению металлического In на поверхности, что также говорит о режиме роста, в котором количество встраиваемого In ограничивается скоростью его десорбции. Содержание In в образце 2 повысилось до 35 %, что связано со снижением скорости десорбции In при понижении T_g . Согласно работе [19], скорость испарения In:

$$F_{\text{In}}^{\text{des}} = C^{\text{In}} \exp(-E_a^{\text{In}}/kT) = 3.4 \cdot 10^{28} \text{ атом}/\text{см}^2 \cdot \text{с} \exp(-2.49 \text{ эВ}/kT). \quad (6)$$

Рассчитанное, согласно этим данным, содержание In в InGaN по формуле (1) должно быть существенно меньше, чем обнаружено с помощью рентгеноструктурного анализа в образцах 1 и 2 (рис. 1, *b*). Для того чтобы наши экспериментальные данные по содержанию In в InGaN-слоях образцов 1 и 2 описывались моделью, необходимо, чтобы $C^{\text{In}} = 1.2 \cdot 10^{29} \text{ атом}/\text{см}^2 \cdot \text{с}$, а $E_a^{\text{In}} = 2.63 \text{ эВ}$ (рис. 1, *b*). Заметное увеличение энергии активации испарения In может быть связано с тем, что $E_a^{\text{In}} = 2.49 \text{ эВ}$ описывает испарение In из металлической фазы — когда на поверхности роста сформирован бислой In, а его излишки — в металлических каплях [18]. Когда на поверхности находится $< 2 \text{ МС}$ In, E_a^{In} может вырастать. Из литературы известно, что энергия активации испарения Ga с поверхности GaN меняется в зависимости от толщины адслоя Ga от 0 до $\sim 2 \text{ МС}$, с 3.7 до 3.1 эВ [22]. А именно при формировании на поверхности GaN бислой Ga и „капельном“ режиме роста испарение Ga с поверхности GaN соответствует испарению из металлической фазы. Подобный переходный режим для адслоя от 0 до $\sim 2 \text{ МС}$ присутствует и для In, но подробно в литературе не рассматривается.

По данным рентгеноструктурного анализа, слой InGaN в образце 2 остался однородным, несмотря на то что плотность прорастающих дислокаций увеличилась. Понижение температуры роста до $T_g \sim 585 \text{ °C}$ приводит к появлению на поверхности InGaN капель металли-

ческого In, что говорит о переходе в „классический“ металлобогащенный режим роста с формированием на поверхности бислой металла и накоплением его избытка в каплях на поверхности (СЭМ-снимок на рис. 1, *b*). При таком режиме роста состав InGaN-слоя в образце 3 определяется скоростью разрыва связей In-N по формулам (3)–(5). Рентгеноструктурный анализ показывает, что слой однороден, а содержание In в нем $\sim 42\%$ (см. табл. 1). При понижении температуры роста до $T_g \sim 575^{\circ}\text{C}$ сохраняется „классический“ металлобогащенный режим роста с присутствием капель In на поверхности. В работе [19] определены постоянные для расчета скорости разложения связей In-N:

$$B = C^{\text{InN}} \exp(-E_a^{\text{InN}}/kT) \\ = 2.55 \cdot 10^{25} \text{ атом/см}^2 \cdot \text{с} \exp(-1.84 \text{ эВ}/kT). \quad (7)$$

Рассчитанное, согласно этим данным, содержание In в InGaN по формуле (5) должно быть меньше, чем обнаружено с помощью рентгеноструктурного анализа в образцах 3 и 4 (рис. 1, *b*). Однако, для того чтобы наши экспериментальные данные описывались моделью, энергию активации $E_a^{\text{InN}} = 1.84 \text{ эВ}$ необходимо снизить до $\sim 1.4 \text{ эВ}$, а C^{InN} до $2.4 \cdot 10^{22} \text{ атом/см}^2 \cdot \text{с}$. Различие в нашей оценке E_a^{InN} и полученной в работе [19] может быть связано с присутствием в рентгенодифракционном спектре образца 4 двух пиков от InGaN — основного, соответствующего содержанию In $\sim 39\%$, и менее интенсивного, соответствующего содержанию In $\sim 43\%$ (рис. 1, *a*). Это говорит о том, что среднее содержание In в InGaN-слое образца 4 немного выше использовавшегося в расчетах (In $\sim 39\%$). Данный факт приведет к увеличению значения E_a^{InN} и приблизит его к полученному в работе [19]. Появление двух пиков в рентгенодифракционном спектре образца 4 можно связать с дальнейшим смещением в область спинодального распада при понижении температуры роста [23]. Поэтому процессы фазового распада и флуктуации состава усиливаются, что и приводит к явному появлению сигналов от InGaN разных составов в образце 4.

В результате исследований серии образцов с InGaN (соотношение потоков III/V ~ 0.94), выращенных при изменении температуры, было обнаружено, что понижение температуры роста приводит к деградации их кристаллического качества, несмотря на то что наблюдается некоторое повышение содержания In в InGaN-слоях (см. табл. 1). Кроме того, даже при росте в металлобогащенных условиях (с наличием капель In на поверхности) при понижении температуры роста, по данным СЭМ, происходит увеличение шероховатости поверхности InGaN-слоев (СЭМ-снимки на рис. 1, *b*).

Следующая серия образцов с InGaN-слоями была выращена при наиболее высокой температуре 605°C , чтобы обеспечить высокое кристаллическое качество InGaN. Кроме того, интенсивное испарение In при температурах $\sim 600^{\circ}\text{C}$ и выше позволяет проводить рост

в металлобогащенных условиях, что способствует получению атомарно-гладкой поверхности без образования капель металлического In на поверхности роста. Как мы определили выше, при этой температуре состав InGaN-слоя определяется испарением In с поверхности роста. В этой серии образцов мы повышали поток In, чтобы определить, насколько можно продвинуться в область составов с содержанием In 40–50%, необходимых для источников красного диапазона длин волн. Переход от номинально азотобогащенных условий в образце 1 к номинально металлобогащенным условиям образца 4 (соотношение падающих потоков III/V ~ 0.94 и 1.06) привел к существенному росту содержания In в InGaN-слое с 29 до 33.5% (табл. 2).

В то же время на поверхности образца 5 не наблюдается капель металлического In. Следовательно, мы все еще находимся в режиме, когда состав определяется десорбией In с поверхности роста. Увеличение соотношения потоков III/V до ~ 1.2 увеличило содержание In в InGaN до 35% (табл. 2). Кроме того, с помощью оптического микроскопа было обнаружено появление капель металлического In на поверхности InGaN (см. вставку на рис. 2, *b*).

Появление капель металлического In говорит о том, что поток падающего на поверхность роста In превышает скорость его десорбции ($F_{\text{In}}^{\text{des}}$). Поток невстренившегося In определяется выражением $F_{\text{In}}(1 - K_{\text{incorp}}^{\text{In}})$. Для образца 5 значение этого выражения меньше чем $F_{\text{In}}^{\text{des}}$, а для образца 6 больше $F_{\text{In}}^{\text{des}}$. Это означает, что $0.08 \text{ мкм/ч} < F_{\text{In}}^{\text{des}} < 0.14 \text{ мкм/ч}$. Если вычислить $F_{\text{In}}^{\text{des}}$ по формуле (6) для температуры 605°C , то получим $F_{\text{In}}^{\text{des}} \sim 0.11 \text{ мкм/ч}$, что неплохо совпадает с полученными нами данными. А постоянные C^{In} и E_a^{In} , полученные в работе [19], хорошо описывают десорбцию In для случая формирования на поверхности роста капель металлического In, т. е. из металлической фазы.

Составы InGaN-слоев в образцах 5 и 6 близки, их рост проходил при одной и той же температуре, следовательно, можно предположить, что с точки зрения термодинамической неустойчивости твердого раствора процессы фазового распада в них должны также идти с одной и той же интенсивностью [23]. Однако явным образом эти процессы проявились лишь в образце 6 в качестве дополнительного сигнала от фазы InGaN с содержанием In $\sim 42\%$ (рис. 2, *a*). Предполагается, что поверхностная диффузия атомов, ответственная за перераспределение материала и фазовый распад, существенно ускоряется для нитридов при действительно металлобогащенном росте, когда на поверхности формируется бислой атомов металла [24]. Объемной диффузией при эпитаксиальном росте полупроводниковых кристаллических пленок обычно пренебрегают [25].

При увеличении потока активного азота (F_{N}) в образце 7 в ~ 1.5 раза по сравнению с образцом 6 содержание In в InGaN увеличивается с 35 до 39% (табл. 2). При этом сохраняются металлобогащенные условия роста, о чем свидетельствует наличие капель металлического

Таблица 2. Основные параметры исследуемых структур второй серии с InGaN-слоями

№ образца	Поток In, мкм/ч	Поток N*, мкм/ч	x_{In} , %	N_D , см $^{-2}$	$K_{\text{incorp}}^{\text{In}}$	Капли In
1	0.14	0.33	29	$8.9 \cdot 10^{10}$	0.5	Нет
5	0.18	0.33	33.5	$7.3 \cdot 10^{10}$	0.5	Нет
6	0.23	0.33	35	$9.3 \cdot 10^{10}$	0.42	Есть
7	0.23	0.45	39	$1.8 \cdot 10^{11}$	0.5	Есть

Примечание. Указаны потоки In и N* поступающие на поверхность роста (T_g), доля индия (x_{In}) в составе тройного раствора, плотность дислокаций (N_D), коэффициент встраивания In ($K_{\text{incorp}}^{\text{In}}$), который равен отношению потоков встроившегося в InGaN In к упавшему на поверхность роста, а также наличие капель металлического In на поверхности InGaN-слоя.

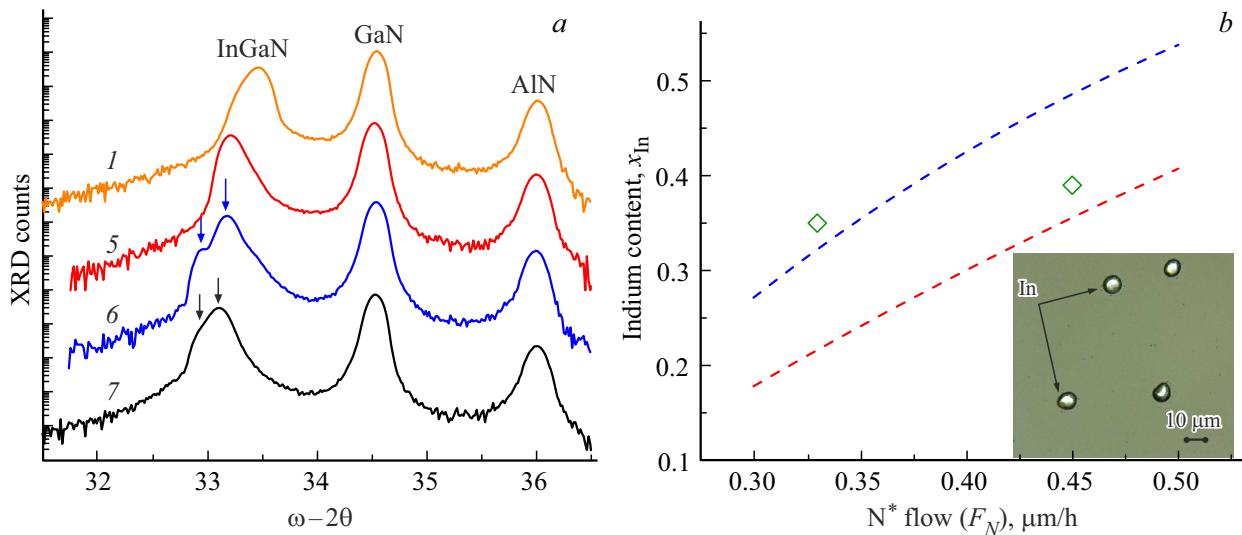


Рис. 2. *a* — (0004) $\omega-2\theta$ спектры рентгеновской дифракции образцов второй серии из табл. 2 (номера кривых соответствуют номерам образцов). Рефлексы GaN и AlN соответствуют буферным подслоям. Стрелками для образцов 6, 7 показаны сигналы от InGaN с разным содержанием In. *b* — зависимость состава InGaN от потока активного азота (F_N). Зеленые ромбы — экспериментальные данные для образцов 6 и 7. Штриховая линия — расчет состава InGaN в условиях металлобогащенного роста (согласно (3)): синяя линия — с C^{InN} и E_a^{InN} , уточненными в данной работе; красная линия — с C^{InN} и E_a^{InN} , взятыми из работы [19].

In на поверхности InGaN-слоя образца 7. Согласно формулам (3)–(5), содержание In в слое InGaN было рассчитано для температуры роста 605 °C в зависимости от потока активного азота как с использованием C^{InN} из работы [19], так и полученного значения в первой части настоящей работы (рис. 2, *b*). Как видно из рис. 2, *b* обе кривые плохо описывают экспериментально наблюдаемое изменение содержания In в InGaN с увеличением F_N . Слабое изменение состава при существенном увеличении потока азота может быть связано с резким увеличением скорости разложения связей In-N ($F_{\text{InN}}^{\text{dec}}$) при увеличении содержания In до ~40% или, другими словами, согласно формуле (4), с существенным понижением энергии активации разрыва связей In-N. Значительный рост скорости разложения InGaN по мере приближения к „средним“ составам может быть связан с ростом энталпии образования InGaN-сочленений „средних“ составов вследствие увеличения энталпии смешивания растворов InGaN [26,27]. Также можно

заметить снижение темпов фазового распада в образце 7 по сравнению с образцом 6 — в нем наблюдается почти однородный пик от InGaN с содержанием In ~39% с неявным „плечом“-фазой InGaN с содержанием In ~43%. Это может быть связано со смещением условий роста в сторону более азотобогащенных и снижением темпов поверхностной диффузии, ответственной за фазовый распад.

При исследовании спектров фотолюминесценции образцов второй серии (рис. 3) было обнаружено, что пик сигнала ФЛ смещается в сторону меньших энергий по мере увеличения содержания In в InGaN-слое, что очевидным образом связано с уменьшением ширины запрещенной зоны [21]. Интересным результатом является слабая зависимость ширины пика ФЛ от состава InGaN-слоя (110–120 мэВ при 77 K) в интервале составов 31–42% содержания In (рис. 3). В то же время многие научные группы наблюдали существенное уширение спектра ФЛ по мере увеличения содержания In

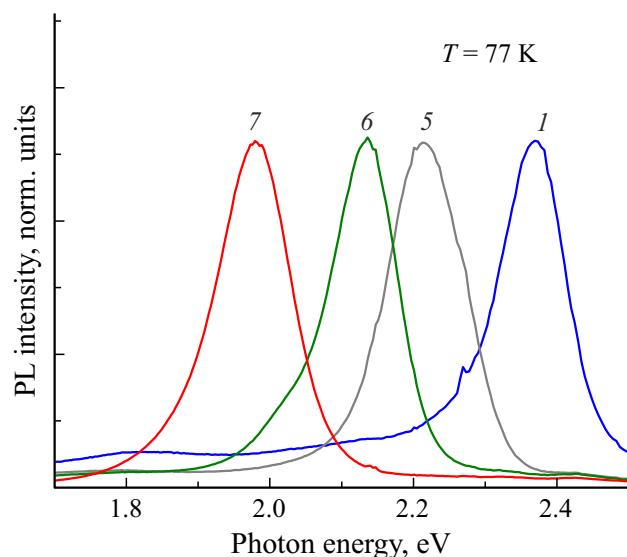


Рис. 3. Спектры ФЛ образцов 1, 5, 6, 7 с InGaN-слоями, выращенными при 605°C , но различных потоках In и N^* из табл. 2 (номера кривых соответствуют номерам образцов). Измерения выполнены при 77 К.

в InGaN, которое связывалось с усилением флюктуаций состава по мере приближения к растворам „средних“ составов [20,28]. Результаты ФЛ могут указывать на хорошую однородность образцов второй серии, несмотря на усиление флюктуаций состава в некоторых из них (рис. 2, a).

5. Заключение

Таким образом, в работе исследована возможность получения методом МПЭ ПА однородных слоев InGaN высокого кристаллического качества с содержанием In до 50 %. Снижение температуры роста позволяет увеличивать содержание In в растворах InGaN, однако приводит к росту плотности прорастающих дислокаций и росту шероховатости поверхности. Показано, что при снижении T_g до $\sim 585^{\circ}\text{C}$ возможно получение однородных растворов InGaN с содержанием In до 37 %. Дальнейшее понижение температуры роста до $T_g \sim 575^{\circ}\text{C}$ приводит к усилению процессов фазового распада и формированию неоднородного раствора InGaN.

Увеличение потока In для наиболее высокой из рассматриваемых в данной работе $T_g \sim 605^{\circ}\text{C}$ позволяет формировать однородные растворы InGaN с содержанием In до $\sim 33.5\%$, демонстрирующие интенсивный сигнал ФЛ и гладкую двумерную поверхность. Продемонстрирована возможность повышения содержания In в InGaN при $T_g \sim 605^{\circ}\text{C}$ до $\sim 35\%$ за счет еще большего повышения потока In, однако при этом на поверхности роста наблюдаются капли избыточного металлического In и флюктуации состава такого раствора InGaN. Увеличение потока азота в ~ 1.5 раза позволяет увеличить

встраивание In и его содержание в InGaN до $\sim 39\%$ для $T_g \sim 605^{\circ}\text{C}$ и снизить неоднородность получаемого раствора InGaN.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания ИФМ РАН FFUF-2024-0019.

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] F. Roccaforte, M. Leszczynski. *Nitride Semiconductor Technology Power Electronics and Optoelectronic Devices* (Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2020) p. 254.
- [4] Ray-Hua Horng, Chun-XinYe, Po-Wei Chen, Daisuke Iida, Kazuhiro Ohkawa, Yuh-RennWu, Dong-Sing Wuu. *Scientific Rep.*, **12**, 1324 (2022). <https://doi.org/10.1038/s41598-022-05370-0>
- [5] C. Adelmann, R. Langer, G. Feuillet, B. Daudin. *Appl. Phys. Lett.*, **75**, 3518 (1999). DOI: 10.1063/1.125374
- [6] G.B. Stringfellow. *J. Cryst. Growth*, **312**, 735 (2010). DOI: 10.1016/j.jcrysGro.2009.12.018
- [7] H. Chen, R.M. Feenstra, J.E. Northrup, T. Zywietz, J. Neugebauer, D.W. Greve. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **18**, 2284 (2000). DOI: 10.1116/1.1306296
- [8] B.A. Andreev, K.E. Kudryavtsev, A.N. Yablonskiy, D.N. Lobanov, P.A. Bushuykin, L.V. Krasilnikova, E.V. Skorokhodov, P.A. Yunin, A.V. Novikov, V.Yu. Davydov, Z.F. Krasilnik. *Sci. Rep.*, **8**, 9454 (2018). DOI: 10.1038/s41598-018-27911-2
- [9] D.N. Lobanov, K.E. Kudryavtsev, M.I. Kalinnikov, L.V. Krasilnikova, P.A. Yunin, E.V. Skorokhodov, M.V. Shaleev, A.V. Novikov, B.A. Andreev, Z.F. Krasilnik. *Appl. Phys. Lett.*, **118**, 151902 (2021). DOI: 10.1063/5.0047674
- [10] Д.Н. Лобанов, М.А. Калинников, К.Е. Кудрявцев, Б.А. Андреев, П.А. Юнин, А.В. Новиков, Е.В. Скороходов, З.Ф. Красильник. *ФТП*, **58** (4), 220 (2024). DOI: 10.61011/FTP.2024.04.58547.6357H
- [11] B.A. Andreev, K.E. Kudryavtsev, A.N. Yablonskiy, D.N. Lobanov, A.V. Novikov, H.P. Liu, B. Sheng, X.Q. Wang. *J. Appl. Phys.*, **137**, 025701 (2025). DOI: 10.1063/5.0239375
- [12] H. Liu, B. Sheng, T. Wang, K. Kudryavtsev, A. Yablonskiy, J. Wei, A. Imran, Z. Chen, X. Zheng, R. Tao, X. Yang, F. Xu, W. Ge, B. Shen, B. Andreev, X. Wang. *Fundamental Res.*, **2** (5), 794 (2022). <https://doi.org/10.1016/j.fmre.2021.09.020>
- [13] S. Zhang, J. Zhang, J. Gao, X. Wang, C. Zheng, M. Zhang, X. Wu, L. Xu, J. Ding, Z. Quan, F. Jiang. *Photonics Res.*, **8** (11), 1671 (2020). <https://doi.org/10.1364/PRJ.402555>
- [14] E. Iliopoulos, T.D. Moustakas. *Appl. Phys. Lett.*, **81**, 295 (2002). DOI: 10.1063/1.1492853
- [15] G. Koblmüller, S. Fernández-Garrido, E. Calleja, J.S. Speck. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 161904 (2007). DOI: 10.1063/1.2789691

- [16] M.A. Moram, M.E. Vickers. *Rep. Progr. Phys.*, **72**, 036502 (2009). DOI: 10.1088/0034-4885/72/3/036502
- [17] R. Averbeck, H. Riechert. *Phys. Status Solidi A*, **176**, 301 (1999).
[https://doi.org/10.1002/\(SICI\)1521-396X\(199911\)176:1<301::AID-PSSA301>3.0.CO;2-H](https://doi.org/10.1002/(SICI)1521-396X(199911)176:1<301::AID-PSSA301>3.0.CO;2-H)
- [18] C.S. Gallinat, G. Koblmüller, J.S. Brown, J.S. Speck. *J. Appl. Phys.*, **102**, 064907 (2007). DOI: 10.1063/1.2781319
- [19] Z. Gacevic, V.J. Gomez, N. Garcia Lepetit, P.E.D. Soto Rodriguez, A. Bengoechea, S. Fernandez-Garrido, R. Notzel, E. Calleja. *J. Cryst. Growth*, **364**, 123 (2013).
<http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysGro.2012.11.031>
- [20] K.G. Belyaev, M.V. Rakhlin, V.N. Jmerik, A.M. Mizerov, Ya.V. Kuznetsova, M.V. Zamoryanskaya, S.V. Ivanov, A.A. Toropov. *Phys. Status Solidi C*, **10** (3), 527 (2013). DOI: 10.1002/pssc.201200838
- [21] J. Wu, W. Walukiewicz, K.M. Yu, J.W. Ager, E.E. Haller, H. Lu, William J. Schaff. *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 4741 (2002).
<https://doi.org/10.1063/1.1489481>
- [22] G. Koblmüller, R. Averbeck, H. Riechert, P. Pongratz. *Phys. Rev. B*, **69**, 035325 (2004).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.69.035325>
- [23] S.Yu. Karpov, N.I. Podolskaya, I.A. Zhmakin, A.I. Zhmakin. *Phys. Rev. B*, **70**, 235203 (2004).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.70.235203>
- [24] G. Koblmüller, S. Fernández-Garrido, E. Calleja, J.S. Speck. *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 161904 (2007).
<https://doi.org/10.1063/1.2789691>
- [25] I.P. Ipatova, V.G. Malyshkin, A.A. Maradudin, V.A. Shchukin, R.F. Wallis. *Phys. Rev. B*, **57**, 12968 (1998).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.57.12968>
- [26] B.V. L'vov, V.L. Ugolkov. *Thermochimica Acta*, **438**, 1 (2005).
<https://doi.org/10.1016/j.tca.2005.07.007>
- [27] R. Mohamad, A. Bere, J. Chen, P. Ruterana. *Phys. Status Solidi A*, **214**, 1600752 (2017). DOI: 10.1002/pssa.201600752
- [28] S.A. Kazazis, E. Papadomanolaki, M. Androulidaki, M. Kayambaki, E. Iliopoulos. *J. Appl. Phys.*, **123**, 125101 (2018). <https://doi.org/10.1063/1.5020988>

Редактор Г.А. Оганесян

Formation of planar structures with InGaN layers for red wavelength light sources

D.N. Lobanov¹, M.A. Kalinnikov¹, K.E. Kudryavtsev¹, B.A. Andreev¹, P.A. Yunin¹, A.V. Novikov¹, E.V. Skorokhodov¹, Z.F. Krasilnik^{1,2}

¹ Institute for Physics of Microstructures

Russian Academy of Sciences,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

² Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

Abstract Compared to the well-mastered blue-green range, the formation of InGaN-based structures that effectively emit and are photosensitive in the red and infrared wavelength ranges is a difficult task for existing growth technologies. Lowering the growth temperature is the main way to increase the In content in the InGaN solution and reduce composition fluctuations, but this can lead to degradation of the crystalline quality and radiative properties of the resulting layers. In the MBE PA method, in addition to temperature, the growth processes can be significantly influenced by changing the stoichiometric ratios of the different InGaN components. In this paper, we study the effect of growth temperature, the ratio of fluxes of III and V group elements on the formation features of planar structures with InGaN layers, their structural perfection and radiative properties in the red wavelength range. It is found that under growth conditions close to stoichiometric, a decrease in the growth temperature to 575 °C allows increasing the efficiency of In incorporation and increasing its content in InGaN to 39 %. However, in this case, composition fluctuations in the InGaN layers increase significantly, and the surface roughness and density of growing dislocations grow. It is demonstrated that at high growth temperatures of ~ 605 °C, an increase in the In flux compensating for its desorption from the growth surface allows obtaining a homogeneous InGaN layer with an In content of up to ~ 33.5 % and smooth surface.