

Спонтанное и стимулированное излучение в среднем ультрафиолетовом диапазоне квантово-размерных гетероструктур на основе AlGaIn-соединений, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках *c*-сапфира

© Е.В. Луценко¹, Н.В. Ржеуцкий¹, В.Н. Павловский¹, Г.П. Яблонский¹, Д.В. Нечаев²,
А.А. Ситникова², В.В. Ратников², Я.В. Кузнецова², В.Н. Жмерик², С.В. Иванов²

¹ Институт физики НАН Белоруссии,
Минск, Белоруссия

² Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: e.lutsenko@ifanbel.bas-net.by

Исследовалась спонтанная и стимулированная люминесценция в AlGaIn-гетероструктурах с одиночной квантовой ямой и высоким содержанием Al (до ~ 80 mol.% в барьерных слоях), выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии с плазменной активацией на *c*-сапфировых подложках. Продемонстрировано стимулированное излучение в среднем ультрафиолетовом диапазоне спектра на длинах волн 259, 270 и 289 nm с пороговыми значениями плотности мощности возбуждения 1500, 900 и 700 kW/cm² соответственно. Показана возможность получения ТЕ-поляризации ($\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$) как стимулированной, так и спонтанной люминесценции, вплоть до длин волн 259 nm.

Работа выполнена при поддержке программы РАН „Новые материалы“, гранта РФФИ № 12-02-00865-а и проекта KACST.

1. Введение

Лазеры ультрафиолетового (УФ) диапазона широко используются в спектральном анализе различных веществ и сред как в исследовательских целях, так и при решении практических задач (например, для обнаружения опасных для жизни химических и биологических реагентов). Такие лазеры необходимы и для широкого круга медико-биологических приложений, развития новых систем скрытой помехозащищенной УФ-оптической связи и др. [1]. Использование полупроводниковых УФ-лазерных источников вместо газовых и твердотельных УФ-лазеров повысит эффективность, надежность и компактность упомянутых выше систем, расширит их возможности и уменьшит стоимость. Наиболее перспективными для получения полупроводниковых источников лазерного излучения в поддиапазонах УФА, УФВ и большей части УФС (вплоть до минимальной длины волны ~ 214 nm) являются широкозонные нитридные соединения AlGaIn с шириной запрещенной зоны, непрерывно регулируемой от 3.4 (GaIn) до 6.1 eV (AlN). Однако минимальная длина волны инжекционных УФ-лазеров, достигнутая в 2008 г., составляет 336 nm [2], а для генерации более коротковолнового лазерного излучения используется, как правило, оптическая накачка. Стимулированное излучение с длиной волны $\lambda = 214$ nm было достигнуто при оптическом возбуждении с пороговой плотностью мощности 9 MW/cm² объемного слоя AlN на подложке *c*-Al₂O₃ [3]. Недавно сообщалось о возбуждении усиленной спонтанной фотолюминесценции (ФЛ) в диапазоне 235–250 nm с

помощью накачки электронным пучком гетероструктур AlGaIn/AlN [4]. Однако для получения лазерного излучения из AlGaIn-гетероструктур с квантовыми ямами (КЯ), выращенных с помощью различных технологий на *c*-сапфировых или 4H-SiC-подложках, большинство групп исследователей использует оптическую накачку, которая позволила наблюдать лазерную генерацию и стимулированное излучение в спектрах ФЛ в диапазоне длин волн 303–241 nm при пороговых плотностях оптической мощности 0.8–1.3 MW/cm² соответственно [5,6]. Существенно меньшее значение последнего параметра (126 kW/cm²) было достигнуто в 2011 г. для лазерной генерации на длине волны 267 nm в гетероструктуре с множественными КЯ AlGaIn, выращенной на подложке из монокристаллического AlN с плотностью прорастающих дислокаций ~ 10⁵ cm⁻² [7]. К сожалению, вследствие высокой стоимости массовое применение таких подложек ограничено, и разработка технологий выращивания AlGaIn-гетероструктур на гетероэпитаксиальных подложках (как правило, *c*-Al₂O₃) остается актуальной задачей. Кроме того, необходимо развивать методы повышения эффективности излучательной рекомбинации в таких структурах с плотностью прорастающих дислокаций до ~ 10⁹ cm⁻².

Крайне важной проблемой гетероструктур на основе слоев AlGaIn с высоким содержанием Al является перестройка их валентной зоны с повышением содержания Al, что приводит к смене типа дырочной подзоны, занимающей верхнее положение [8–10]. Для релаксированных слоев AlGaIn в случае небольшого содержания Al (менее 25 mol.%, ширина запрещенной

Параметры гетероструктур с ОКЯ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$

Параметр	Структура		
	№ 1	№ 2	№ 3
Температура роста зародышевого слоя AlN, °C	570	790	790
Параметры буферного слоя AlN:			
Толщина слоя, μm	1.0	2.4	1.2
Толщина (nm)/количество вставок GaN	3.5/2	3.5/2	Нет
СР $\{\text{AlGaN}/\text{AlN}\}_{20}$ после буферного AlN-слоя	Есть	Есть	Нет
Параметры ограничивающего слоя:			Нет
Заданное содержание Al	0.85	0.85	–
Толщина, nm	300	1100	–
Толщина барьерного слоя, nm	120	100	110
Содержание Al в барьерных слоях (y) согласно: отношению калиброванных потоков	0.58	0.70	0.80
измерениям методом РСМА	0.60	0.73	0.78
измерениям методом РД в предположении полной релаксации упругих напряжений	0.60	0.71	0.63
Разница между содержанием Al в барьерном слое и средним содержанием Al в КЯ ($y - x$)	0.1	0.1	0.1
Толщина КЯ, nm	3.0	2.3	2.1

зоны $E_g < 4.1 \text{ eV}$ верхней является подзона тяжелых дырок, что обуславливает преимущественную ТЕ-поляризацию ФЛ с $\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$. В случае более высокого содержания Al (выше 25 mol.%) верхнее положение занимает спин-орбитально отщепленная подзона, что приводит к преимущественной ТМ-поляризации ФЛ с вектором электрического поля, направленным параллельно оси c ($\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$). Данная поляризация крайне нежелательна для приборных структур, поскольку выход излучения с такой поляризацией из активной области структур в направлениях, перпендикулярных плоскости (0001) подложки (сапфира), невозможен. Кроме того, коэффициенты отражения от поверхностей резонатора Фабри–Перо, образованного сколами, в лазерной полосковой конструкции для излучения с ТМ-поляризацией меньше по сравнению с аналогичными коэффициентами для излучения с $\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$ [11], что ухудшает пороговые характеристики лазеров [12].

Весь комплекс описанных выше проблем приводит к тому, что эффективность светоизлучающих приборов на основе AlGaN существенно (более чем на порядок величины) уступает эффективности аналогичных приборов на основе InGaN-гетероструктур, и получение низкопороговой лазерной генерации в области среднего УФ-излучения с $\lambda < 300 \text{ nm}$ до сих пор проблематично.

В настоящей работе исследуются спектральные и поляризационные характеристики спонтанной и стимулированной ФЛ в диапазоне длин волн 255–289 nm гетероструктур с КЯ на основе твердых растворов AlGaN с высоким содержанием Al (40–80 mol.%), выращенных на c -сапфировых подложках методом

молекулярно-пучковой эпитаксии с плазменной активацией (МПЭ ПА).

2. Методика эксперимента

AlGaN-гетероструктуры выращивались методом МПЭ ПА на подложках сапфира (0001) (подробное описание приведено в наших работах [5,13–16]). Параметры трех исследованных структур приводятся в таблице. Буферные слои AlN толщиной от 1 до 2.4 μm выращивались при относительно высоких температурах подложки $T_s \sim 780^\circ\text{C}$ и в Al-обогащенных условиях. Импульсная подача Al при непрерывном потоке азота использовалась с целью исключения образования металлических микрокапель на ростовой поверхности [14]. Кроме того, в буферные слои образцов № 1 и 2 вводились два напряженных слоя GaN толщиной 3.5 nm и сверхрешетки (СР) $\{\text{Al}_{0.85}\text{Ga}_{0.15}\text{N}(5 \text{ nm})/\text{AlN}(5 \text{ nm})\}_{20}$ со средним содержанием Al 90 mol.%. Выше СР в образцах № 1 и 2 выращивались ограничивающие слои AlGaN с одинаковым содержанием Al (85 mol.%) толщиной 300 и 1100 nm соответственно. Верхние барьерные (они же волноводные) слои $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ с различным содержанием Al ($y = 0.58–0.8$) и примерно одинаковой во всех образцах толщиной (100–120 nm) выращивались при температуре $T_s \sim 700^\circ\text{C}$ в металл-обогащенных условиях вблизи порога начала образования металлических (Ga) капель, как подробно описано в [15]. При использовании этих условий содержание Al в ограничивающих и барьерных слоях AlGaN определялось отношением калиброванных

потоков алюминия и активированного азота [16]. Оди-ночные КЯ (ОКЯ) $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ ($y - x = 0.1$) формировались методом субмонослойной дискретной эпитаксии и располагались в волноводе несимметрично, что, как было показано в [5], обеспечивало их пространственное совпадение с максимумом распределения поля электромагнитной волны в волноводе.

Калибровка потоков ростовых элементов для определения составов слоев AlGaIn проводилась с помощью измерений *in situ* скоростей роста слоев в различных стехиометрических условиях методом лазерной рефлектометрии. Содержание Al также контролировалось постро-стовыми измерениями методами рентгеноспектрального микроанализа (РСМА) и рентгеновской дифракции (РД). Структура и морфология образцов контролировались с помощью *in situ* метода дифракции отраженных быстрых электронов и исследовались после роста с помощью РД, а также растровой, атомно-силовой и просвечивающей электронной микроскопии (РЭМ, АСМ и ПЭМ соответственно).

Для возбуждения ФЛ использовалось излучение чет-вертой и пятой гармоник Nd:YAG-лазера LS-2134 про-изводства Lotis Tii с длинами волн 266 и 213 nm соответственно, частотой повторения импульсов 15 Hz и длительностью импульсов 12 ns. Нормально падаю-щее излучение с максимальной плотностью мощно-сти $\sim 10 \text{ MW/cm}^2$ фокусировалось на поверхности об-разцов с помощью цилиндрической линзы и имело форму полоски шириной 60 μm . Для изменения уров-ня возбуждения использовался градиентный ослаби-тель. Спектры излучения регистрировались с помощью спектрометра, оснащенного ПЗС-линейкой производства Hamamatsu с высокой линейностью в большом дина-мическом диапазоне чувствительности. Регистрация ФЛ проводилась как с поверхности, так и с торца гетеро-структур. Для измерений поляризационных спектров ФЛ с торца гетероструктуры использовалась призма Глана, помещенная перед оптическим входом спектрометра. Все оптические измерения выполнялись при комнатной температуре с помощью спектральных приборов, калиб-рованных по длинам волн и спектральной чувствитель-ности в каждой конкретной конфигурации.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

При исследованиях структур с помощью различных микроскопических методов были обнаружены резкие планарные границы между областями с различным со-ставом во всех образцах, что иллюстрируется на рис. 1, где приводятся РЭМ- и ПЭМ-изображения некоторых исследованных образцов. Во всех структурах с помощью ПЭМ наблюдались ОКЯ в волноводных слоях. Кроме то-го, анализ ПЭМ-изображений позволил также исследо-вать поведение прорастающих дислокаций, являющихся основными дефектами в AlGaIn -гетероструктурах.

На рис. 1, с приводится одно из общих ПЭМ-изобра-жений образца № 1, полученное в дифракционных условиях с волновым вектором $g = (0002)$. Из него следует, что большинство дислокаций зарождается на интерфейсной границе $\text{AlN}/c\text{-Al}_2\text{O}_3$, где их концентра-ция превышает 10^{11} cm^{-2} . Однако в результате использо-вания оптимизированных начальных условий роста, описанных в [5], и введения упругонапряженных тонких слоев GaN в буферные слои AlN возрастала вероятность отклонения как винтовых, так и краевых дислокаций от вертикального направления их распространения. Это приводило к остановке распространения дислокаций, а также к их объединению или аннигиляции, что в конечном итоге обеспечивало постепенное снижение концентрации дислокаций к верхним активным областям (волноводным слоям) гетероструктур.

Кроме того, недавно нами было показано, что концен-трация дислокаций может быть дополнительно снижена за счет использования для роста зародышевого слоя AlN высокотемпературной ($T_s = 790^\circ\text{C}$) эпитаксии с повы-шенной миграцией. Это позволяет ограничить генера-цию прорастающих дислокаций на самых ранних стадиях роста за счет укрупнения зародышевых блоков [13]. Вывод о существенном снижении концентрации дисло-каций (особенно на ранних стадиях роста) подтвержде-тся сравнением рис. 1, с и d, где приводятся общие ПЭМ-изображения образцов № 1 и 2 соответственно с зародышевыми слоями, выращенными в различных условиях. Однако в верхних (барьерных) слоях разница в концентрациях дислокаций была не столь существен-ной. Согласно оценкам ПЭМ, в образце № 2, лучшем по качеству в исследовавшейся серии структур, плот-ности вертикальных винтовых и краевых дислокаций составляли $< 8 \cdot 10^8$ и $< 2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ соответственно, а в остальных образцах эти величины были примерно в 2 раза выше.

Результаты характеризации морфологии поверхности образцов с помощью АСМ (здесь не приводятся) подтвердили выводы анализа ПЭМ-изображений: наибольшая среднеквадратичная шероховатость $\text{rms} = 1.45(2.19) \text{ nm}$ наблюдалась для площадей $1 \times 1(10 \times 10) \mu\text{m}^2$ в образце № 1, в то время как в образце № 2 $\text{rms} = 0.81(1.18) \text{ nm}$. Характер морфологии свидетельствовал о ступенчато-слоевом механизме роста по спиралям вокруг дислокаций, причем бoльшая шероховатость соответствовала повышенной concentra-ции дислокаций в образце.

Измерения спектров спонтанной ФЛ проводились при плотности мощности возбуждения $\sim 1 \text{ MW/cm}^2$ с целью уменьшения влияния фоновой концентрации равнове-сных носителей на интенсивность люминесценции [17]. Из сравнения спектров, показанных на рис. 2, следует, что наиболее узкая одиночная полоса с полушири-ной $\sim 10 \text{ nm}$ при комнатной температуре наблюдается в спектре ФЛ образца № 1 с минимальным для ис-следовавшейся серии содержанием Al в волноводном

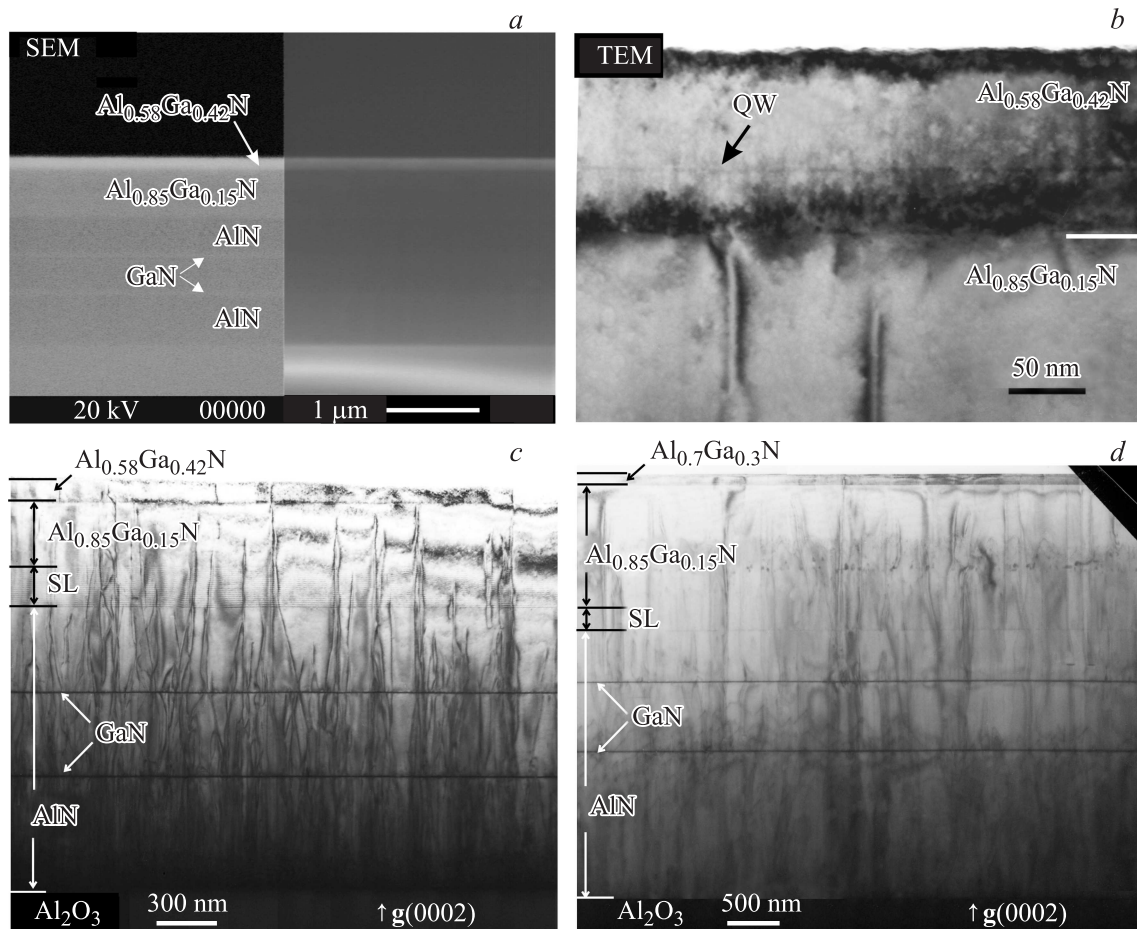


Рис. 1. Изображения гетероструктуры образца № 1, полученные РЭМ с помощью обратно рассеянных (слева) и вторичных (справа) электронов (*a*). ПЭМ-изображение барьерного слоя $\text{Al}_{0.58}\text{Ga}_{0.42}\text{N}$ с ОКЯ $\text{Al}_{0.48}\text{Ga}_{0.52}\text{N}$ толщиной 2 нм в этой же структуре (*b*), а также общие ПЭМ-изображения гетероструктур в образцах № 1 (*c*) и 2 (*d*), полученные в дифракционных условиях электронного пучка с волновым вектором $\mathbf{g} = (0002)$.

слое ($y < 0.6$). В образцах № 2 и 3 с большим содержанием Al в этом слое ($y > 0.7$) наблюдаются, как минимум, два уширенных перекрывающихся пика ФЛ, из которых коротковолновый можно предварительно связать с ФЛ барьерного слоя, а длинноволновый — с КЯ. Более мелкие флуктуации интенсивности ФЛ, вероятно, связаны с наложением интерференционной картины, период которой больше в структуре № 3 с меньшей толщиной. На спектрах ФЛ также указаны положения края запрещенной зоны волноводных слоев $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ (E_g^{AlGaN}), вычисленные по формуле $E_g^{\text{AlGaN}}(y) = yE_g^{\text{AlN}} + (1-y)E_g^{\text{GaN}} + by(1-y)$ (в предположении соответствующих ширин запрещенной зоны бинарных соединений $E_g^{\text{AlN}} = 6.08$ eV, $E_g^{\text{GaN}} = 3.42$ eV с параметром провисания $b = 1.1$ [16]). Наблюдающиеся в образцах № 2 и 3 спектры ФЛ занимают существенно более широкую область (~ 60 nm), начинающуюся примерно от номинальной ширины запрещенной зоны барьерного слоя, причем стоксов сдвиг максимума ФЛ барьерного слоя составляет ~ 400 meV для обоих об-

разцов. Эти результаты свидетельствуют о том, что в образцах № 2 и 3 спонтанная ФЛ определяется различными локализованными состояниями как в барьерных слоях $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ ($y > 0.7$), так и в КЯ, и состояния эти в существенной степени перекрываются. Глубокие флуктуации потенциального рельефа в слоях AlGaN с высоким содержанием Al (более 60 mol.%), ответственные за эти локализованные состояния, могут возникать вследствие неоднородности состава этого тройного твердого раствора [18–21]. В качестве возможной причины этого явления рассматривалось спонтанное образование в слоях с высоким содержанием Al естественных CP структур с периодом в несколько монослоев [18]. Кроме того, к локальному изменению потенциала в слоях AlGaN может приводить образование Al- и Ga-обогащенных областей вследствие диффузии Ga к прорастающим дислокациям и на межзеренные границы слоя в процессе роста [19].

Сопоставление спектров ФЛ со структурными свойствами образцов № 1 и 2 показывает, что прорастающие дислокации и межзеренные границы относительно

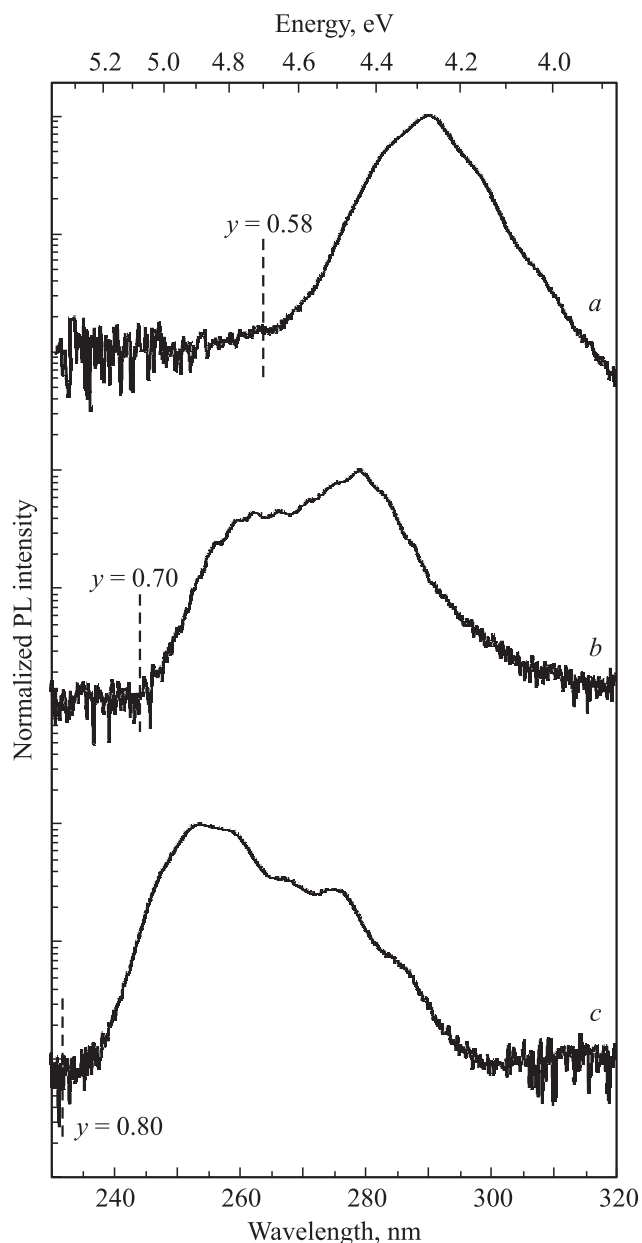


Рис. 2. Спектры ФЛ гетероструктур AlGaN с КЯ в образцах № 1 (a), 2 (b) и 3 (c), измеренные для поверхности гетероструктуры при комнатной температуре и плотности мощности возбуждения 1 MW/cm^2 ($\lambda = 213 \text{ nm}$). Штриховыми линиями показаны энергетические положения, соответствующие предполагаемым значениям ширины запрещенной зоны (E_g) барьерных слоев $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ с заданным y .

слабо влияют на усиление неоднородности состава в барьерных слоях. Это следует из того, что наиболее широкий спектр ФЛ наблюдается в образце № 2 — самом структурно совершенном из исследовавшихся — с наименьшей плотностью дислокаций и относительно большим размером зерна. Таким образом, в качестве наиболее вероятной причины наблюдавшегося нами уширения спектров спонтанной ФЛ можно рассматри-

вать спонтанное образование СР структуры в слоях $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$ ($y > 0.6$) [18]. Детальные исследования этой проблемы будут представлены в другой работе.

Для всех исследованных гетероструктур при регистрации спектров излучения ФЛ с торца образца при повышении уровня возбуждения наблюдались сужение спектра и сверхлинейный рост интенсивности, вызванные появлением стимулированной ФЛ. На рис. 3 приведены спектры ФЛ всех гетероструктур при различных уровнях возбуждения и зависимости интегральной интенсивности от уровня возбуждения. Стимулированная ФЛ наблюдалась на длинах волн 289, 270 и 259 nm с пороговыми плотностями мощности возбуждения 700, 900 и 1500 kW/cm^2 для образцов № 1–3 соответственно.

Для образца № 1 положения максимумов полос стимулированной и спонтанной ФЛ практически совпадают, что позволяет сделать вывод об относительно узком распределении локализованных энергетических состояний в КЯ $\text{Al}_{0.48}\text{Ga}_{0.52}\text{N}/\text{Al}_{0.58}\text{Ga}_{0.42}\text{N}$, обладающих высокой плотностью, что также подтверждается сравнительно небольшой полушириной полосы спонтанного излучения. Кроме того, данная гетероструктура имеет меньший порог стимулированного излучения по сравнению со структурами № 2 и 3, что подтверждает предположение о большей однородности состава и толщины КЯ в этой гетероструктуре.

В отличие от структуры № 1 для образцов № 2 и 3 пик стимулированной ФЛ наблюдается на коротковолновом краю длинноволновой полосы спонтанной ФЛ, приписываемой нами излучению КЯ, в спектральной области хвоста локализованных состояний барьерного слоя. Это обусловлено, вероятно, более неоднородным составом соединений AlGaN с содержанием Al выше 70 mol.% вследствие спонтанного образования в них СР, как предполагалось выше. В результате происходит уширение хвостов плотности состояний как в барьере, так и в КЯ. Кроме того, квантово-размерный эффект Штарка в вюрцитных гетероструктурах с ориентацией (0001) [22] должен приводить к дополнительному „размытию“ спектра и увеличению времени излучательной рекомбинации в спектральной области длинноволнового края полосы ФЛ КЯ. Это не позволяет развиваться там стимулированному излучению из-за малой плотности локализованных состояний и малой вероятности излучательной рекомбинации вследствие квантово-размерного эффекта Штарка. В результате оптическое усиление в этой области спектра недостаточно для преобладания над потерями, и заметное усиление спонтанной рекомбинации наблюдается лишь в коротковолновой области полосы ФЛ КЯ. Подобное положение полосы стимулированной люминесценции и лазерной генерации наблюдалось и другими авторами в гетероструктурах с КЯ InGaN и AlGaN [23–26].

Относительно высокая пороговая плотность мощности возбуждения стимулированного излучения в образце № 3, вероятно, также связана с более высокой концентрацией прорастающих дислокаций в активной

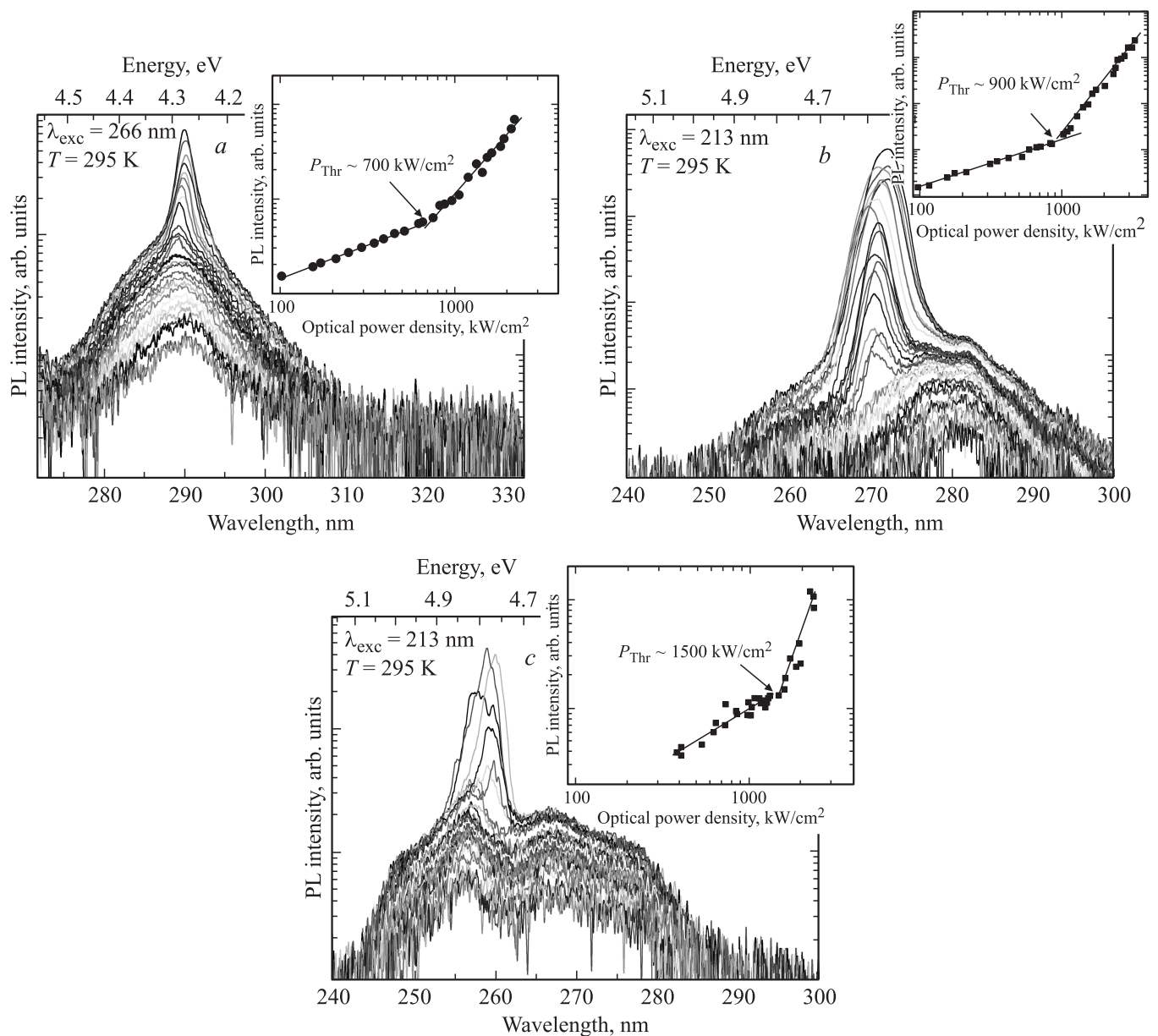


Рис. 3. Спектры ФЛ гетероструктур № 1 (a), 2 (b) и 3 (c), измеренные с торца гетероструктуры при различных уровнях возбуждения. На вставках показаны зависимости интегральной интенсивности ФЛ от уровня возбуждения, с помощью которых оценивались пороговые плотности мощности стимулированного излучения.

области этой структуры из-за небольшой толщины буферного слоя AlN, свободного от упругонапряженных вставок GaN и CP AlN/AlGaIn, ограничивающих распространение дислокаций.

При измерениях поляризационных ($\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$ и $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$) спектров как спонтанной, так и стимулированной ФЛ степень поляризации излучения оценивалась по стандартной формуле

$$\rho = \frac{(I_{\perp} - I_{\parallel})}{(I_{\perp} + I_{\parallel})}, \quad (1)$$

где I_{\perp} и I_{\parallel} — интегральные интенсивности полос ФЛ, поляризованных в направлениях $\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$ (ТЕ-поляризация)

и $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$ (ТМ-поляризация) соответственно. Для стимулированной ФЛ во всех гетероструктурах величина степени поляризации имела положительные, относительно высокие значения ($\rho \geq 0.7$), как показано на рис. 4, a.

Спектры стимулированного излучения для всех образцов (на рис. 4, b, c приводятся спектры для образцов № 1 и 3 соответственно) показали значительно большую интенсивность и меньшую полуширину компоненты излучения с ТЕ-поляризацией по сравнению с ТМ-поляризованной компонентой.

Степень поляризации спонтанного излучения в отличие от стимулированного в исследованных образцах была различной и принимала как положительные значения

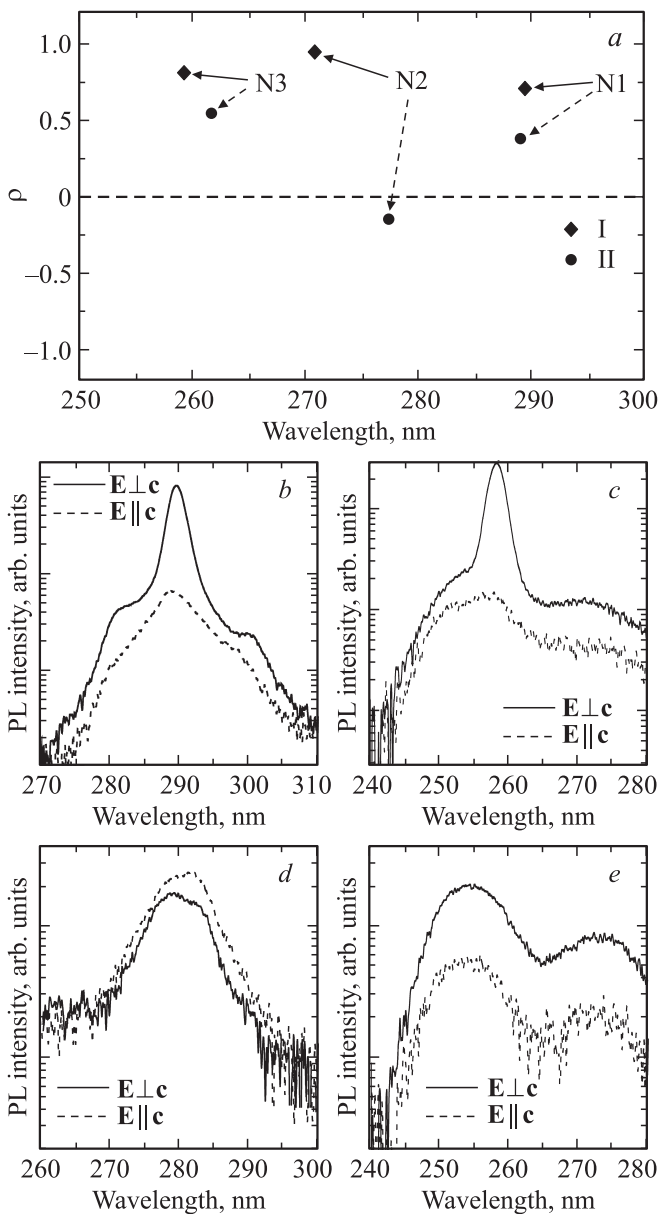


Рис. 4. Зависимость степени поляризации ρ от спектрального положения полосы стимулированной (I) и спонтанной (II) ФЛ в исследованных гетероструктурах, возбуждение осуществлялось лазерным излучением с $\lambda = 213$ nm и плотностью мощности ~ 2 MW/cm² (стимулированная ФЛ) и ~ 0.5 MW/cm² (спонтанная ФЛ) (a), поляризационные спектры стимулированной ФЛ в гетероструктурах № 1 (b) и 3 (c), а также спонтанной ФЛ в гетероструктурах № 2 (d) и 3 (e) при указанных условиях возбуждения.

(в образцах № 1 и 3), так и отрицательное значение (в образце № 2 с волноводным слоем Al_{0.7}Ga_{0.3}N) (рис. 4, a). Наблюдение преимущественной ТМ-поляризации в последнем случае соответствует теоретическим расчетам и экспериментальным результатам различных авторов для КЯ (с $y - x = 0.1$) в релаксированных и слабо напряженных барьерных слоях Al_yGa_{1-y}N с $y > 0.7$ [8–10]. Поэтому положительная степень поляри-

зации ($\rho = 0.5$) наиболее коротковолновой спонтанной ФЛ для структуры № 3 (рис. 4, a, e) с максимальным в исследовавшейся серии образцов содержанием Al в волноводном слое ($y = 0.8$) стала неожиданным результатом. Этот эффект можно объяснить действием упругих напряжений в данной гетероструктуре, в которой расчетное значение сжимающей деформации в барьерном слое Al_{0.78}Ga_{0.22}N в предположении псевдоморфного роста составляет $\epsilon_{xx} = -0.55\%$. В КЯ сжимающее напряжение приблизительно в 1.5 раза больше ($\epsilon_{xx} \sim -0.8\%$). Эти значения деформаций соответствуют теоретическим оценкам упругих напряжений, необходимых для подавления перестройки валентной зоны в гетероструктурах AlGa_yN с КЯ с высоким содержанием Al (выше 70 mol.% в барьерном слое), в результате чего становится возможным достижение в них ТЕ-поляризации спонтанного излучения [9,10]. Отметим, что в этих работах экспериментальным подтверждением расчетов до сих пор служило наблюдение положительной степени поляризации ($\rho > 0.75$) излучения с длиной волны 253 nm из светодиодной AlGa_yN-гетероструктуры с КЯ, псевдоморфно выращенной на гомоэпитаксиальной подложке AlN [9].

В исследовавшемся нами образце № 3 реализация псевдоморфного роста подтверждается существенным расхождением между содержанием Al в барьерном слое, определенным с помощью относительного положения пика РД в предположении полной релаксации упругих напряжений в слое ($y = 0.63$), и значениями состава слоя, полученными из отношения потоков алюминия и активированного азота ($y = 0.8$) и данных РСМА ($y = 0.78$). Данное расхождение свидетельствует о сжимающей деформации в барьерном слое Al_yGa_{1-y}N. Согласно [27], состав этого слоя в предположении псевдоморфного роста может быть получен с помощью выражения

$$y = \frac{(1 - \nu)}{(1 + \nu)} \frac{(c_{\text{meas}}^{\text{AlGa}_y\text{N}} c_0^{\text{CaN}})}{(c_0^{\text{AlN}} - c_0^{\text{Ga}_y\text{N}})}, \quad (2)$$

где ν — коэффициент Пуассона, точное значение которого для AlGa_yN не определено, и поэтому для его оценки использовалось значение $\nu = 0.20$, полученное в результате усреднения данных многих работ по экспериментальному и теоретическому определению упругих постоянных для слоев AlN и GaN, обобщенных в [27]; $c_{\text{meas}}^{\text{AlGa}_y\text{N}}$ — значение постоянной решетки, найденное в соответствии с положениями пиков на кривой качания РДА, c_0^{AlN} , $c_0^{\text{Ga}_y\text{N}}$ — постоянные решетки ненапряженных бинарных соединений AlN и GaN (4.981 и 5.185 Å соответственно согласно [28,29]). При подстановке этих значений в (2) содержание Al в слое было определено как $y = 0.75$, что лишь немного отличается от данных РСМА ($y = 0.78$). Этот результат подтверждает высокое значение деформации сжатия ($\epsilon_{xx} < -0.5\%$) в образце № 3 (гетероструктуре Al_{0.7}Ga_{0.3}N(2.1 nm)/Al_{0.8}Ga_{0.2}N/AlN/c-Al₂O₃), что и яв-

ляется причиной наблюдавшейся положительной степени поляризации спонтанной ФЛ этой структуры.

Необходимо отметить, что различие значений содержания Al в барьерных слоях, определенных различными методами, было существенно меньше для образцов № 1 и 2 (см. таблицу), что позволяет сделать вывод о практически полной релаксации упругих напряжений в верхних слоях указанных структур. Действительно, при росте этих образцов использовались относительно толстые буферные слои AlN с несколькими вставками тонких бинарных слоев GaN, сверхрешетки AlGaN/AlN. Перед ростом барьерного слоя в этих образцах выращивались толстые (~ 500 nm) ограничивающие слои $Al_{0.85}Ga_{0.15}N$. Все перечисленные особенности снижали сжимающие напряжения в верхних барьерных слоях, что и послужило причиной наблюдения отрицательной степени поляризации спонтанной ФЛ в образце № 2. Для образца № 1 положительная степень поляризации спонтанной ФЛ может быть объяснена недостаточной перестройкой валентной зоны $Al_{0.58}Ga_{0.42}N$ вследствие меньшей концентрации алюминия. Изменение направления преимущественной поляризации излучения ФЛ образца № 2 при увеличении уровня возбуждения выше порога стимулированной ФЛ свидетельствует о том, что в режиме усиленной ФЛ направление поляризации излучения определяется большим коэффициентом отражения ТЕ-моды.

4. Заключение

Исследования спонтанной ФЛ гетероструктур с КЯ на основе тройных соединений AlGaN с высоким содержанием Al (больше 60 mol.%) и концентрацией прорастающих дислокаций $10^8 - 10^9$ cm^{-2} показали сложный характер спектров, свидетельствующий об излучательной рекомбинации через локализованные состояния в барьерных слоях и КЯ. Обнаружено, что ширина спектра ФЛ обусловлена неоднородностью состава AlGaN в этих слоях, возрастающей с увеличением средней концентрации алюминия ($y > 0.7$).

Продемонстрирована стимулированная люминесценция в среднем УФ-диапазоне спектра на длинах волн 289, 270 и 259 nm в гетероструктурах с одиночными квантовыми ямами AlGaN, выращенных на *c*-сапфировых подложках, с пороговыми значениями плотности мощности оптического возбуждения 700, 900 и 1500 kW/cm^2 соответственно, что является в настоящее время лучшим результатом для гетероэпитаксиальных полупроводниковых гетероструктур. Для всех исследованных структур стимулированное излучение было поляризовано в направлении $E \perp c$, что определяется в основном большим коэффициентом отражения ТЕ-моды. Положительная ($E \perp c$) степень поляризации $\rho = 0.5$ спонтанной ФЛ гетероструктуры с КЯ $Al_{0.7}Ga_{0.3}N(2.1\text{ nm})/Al_{0.8}Ga_{0.2}N/AlN/c-Al_2O_3$ объясняется действием упругих сжимающих напряжений,

ограничивающих перестройку валентных зон твердого раствора в КЯ.

Список литературы

- [1] H. Yoshida, Y. Yamashita, M. Kuwabara, H. Kan. *Nature Photonics* **2**, 551 (2008).
- [2] H. Yoshida, Y. Yamashita, M. Kuwabara, H. Kan. *Appl. Phys. Lett.* **93**, 241 106 (2008).
- [3] M. Shatalov, M. Gaevski, V. Adivarahan, A. Khan. *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, L1286 (2006).
- [4] E.F. Pecora, W. Zhang, A.Yu. Nikiforov, L. Zhou, D.J. Smith, J. Yin, R. Paiella, L.D. Negro, T.D. Moustakas. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 061 111 (2012).
- [5] V.N. Jmerik, A.M. Mizerov, A.A. Sitnikova, P.S. Kop'ev, S.V. Ivanov, E.V. Lutsenko, N.P. Tarasuk, N.V. Rzhetskii, G.P. Yablonskii. *Appl. Phys. Lett.* **96**, 141 112 (2010).
- [6] T. Takano, Y. Narita, A. Horiuchi, H. Kawanishi. *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3567 (2004).
- [7] T. Wunderer, C.L. Chua, J.E. Northrup, Z. Yang, N.M. Johnson, M. Kneissl, G.A. Garrett, H. Shen, M. Wraback, B. Moody, H.S. Craft, R. Schlessler, R.F. Dalmau, Z. Sitar. *Phys. Status Solidi C* **9**, 822 (2012).
- [8] K.B. Nam, J. Li, M.L. Nakarmi, J.Y. Lin, H.X. Jiang. *Appl. Phys. Lett.* **84**, 5264 (2004).
- [9] J.E. Northrup, C.L. Chua, Z. Yang, T. Wunderer, M. Kneissl, N.M. Johnson, T. Kolbe. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 021 101 (2012).
- [10] M.V. Durnev, S.Yu. Karpov. *Phys. Status Solidi B* **250**, 180 (2013).
- [11] T. Ikegami. *IEEE J. Quantum Electron* **QE-8**, 470 (1972).
- [12] H. Kawanishi, M. Senuma, T. Nukui. *Appl. Phys. Lett.* **89**, 041 126 (2006).
- [13] D.V. Nechaev, P.A. Aseev, V.N. Jmerik, P.N. Brunkov, Y.V. Kuznetsova, A.A. Sitnikova, V.V. Ratnikov, S.V. Ivanov. *J. Cryst. Growth*, in press (2013).
- [14] V.N. Jmerik, A.M. Mizerov, D.V. Nechaev, P.A. Aseev, A.A. Sitnikova, S.I. Troshkov, P.S. Kop'ev, S.V. Ivanov. *J. Cryst. Growth*, **354**, 188 (2012).
- [15] A.M. Mizerov, V.N. Jmerik, P.S. Kop'ev, S.V. Ivanov. *Phys. Status Solidi C* **7**, 2046 (2010).
- [16] В.Н. Жмерик, А.М. Мизеров, Т.В. Шубина, А.В. Сахаров, А.А. Ситникова, П.С. Копьев, С.В. Иванов, Е.В. Луценко, А.В. Данильчик, Н.В. Ржеуцкий, Г.П. Яблонский. *ФТП* **42**, 1452 (2008).
- [17] E.V. Lutsenko, M.V. Rzhetskii, V.Z. Zubialevich, V.N. Pavlovskii, G.P. Yablonskii, A.S. Shulenkov, I. Reklaitis, A. Kadys, T. Malinauskas, S. Nargelas, K. Jarašiūnas, A. Žukauskas. *Phys. Status Solidi C* **10**, 511 (2013).
- [18] M. Gao, S.T. Bradley, Yu Cao, D. Jena, Y. Lin, S.A. Ringel, J. Hwang, W.J. Schaff, L.J. Brillson. *J. Appl. Phys.* **100**, 103 512 (2006).
- [19] A. Pinos, V. Liulolia, S. Marcinkevicius, J. Yang, R. Gaska, M.S. Shur. *J. Appl. Phys.* **109**, 113 516 (2011).
- [20] V. Fellmann, P. Jaffrennou, D. Sam-Giao, B. Gayral, K. Lorenz, E. Alves, B. Daudin. *Jpn. J. Appl. Phys.* **50**, 031 001 (2011).
- [21] E. Kuokstis, W.H. Sun, M. Shatalov, J.W. Yang, M.A. Khan. *Appl. Phys. Lett.* **88**, 261 905 (2006).

- [22] J. Mickevicius, E. Kuokstis, V. Liuolia, G. Tamulaitis, M.S. Shur, J. Yang, R. Gaska. *Phys. Status Solidi A* **207**, 423 (2010).
- [23] A. Žukauskas, K. Kazlauskas, G. Tamulaitis, P. Pobedinskas, S. Juršėnas, S. Miasojedovas, V.Yu. Ivanov, M. Godlewski, C. Skierbiszewski, M. Siekacz, G. Franssen, P. Perlin, T. Suski, I. Grzegory. *Phys. Status Solidi B* **243**, 1614 (2006).
- [24] J. Mickevicius, J. Jurkevicius, K. Kazlauskas, A. Zukauskas, G. Tamulaitis, M.S. Shur, M. Shatalov, J. Yang, R. Gaska. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 081 902 (2012).
- [25] M. Strassburg, A. Hoffmann, J. Holst, J. Christen, T. Riemann, F. Bertram, P. Fischer. *Phys. Status Solidi C*, **0**, 1835 (2003).
- [26] G.P. Yablonskii, E.V. Lutsenko, V.N. Pavlovskii, I.P. Marko, A.L. Gurskii, V.Z. Zubialevich, A.V. Mudryi, O. Schon, H. Protzmann, M. Lunenburger, B. Schineller, M. Heuken. *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1953 (2001).
- [27] M.A. Moram, M.E. Vickers. *Rep. Prog. Phys.* **72**, 036 502 (2009).
- [28] W. Paszkowicz, M. Knapp, S. Podsiado, G. Kamler, G.B. Peka. *Acta Phys. Pol.* **101**, 781 (2002).
- [29] C. Kisielowski, J. Kruger, S. Ruvimov, T. Suski, J.W. Ager III, E. Jones, Z. Liliental-Weber, M. Rubin, E.R. Weber, M.D. Bremser, R.F. Davis. *Phys. Rev. B* **54**, 17 745 (1996).