

# Стимулированное излучение эпитаксиальных слоев AlGaN, выращенных методом аммиачной молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках сапфира

Е.В.Луценко, Н.В.Ржеуцкий, А.Г.Войнилович, И.Е.Свитенков, А.В.Нагорный, В.А.Шуленкова, Г.П.Яблонский, А.Н.Алексеев, С.И.Петров, Я.А.Соловьёв, А.Н.Петлицкий, Д.В.Жигулин, В.А.Солодуха

*В результате оптимизации температуры роста слоев AlGaN и использования высокотемпературных буферных слоев AlN получены высококачественные слои  $Al_xGa_{1-x}N$  ( $x = 0.15, 0.21, 0.26$  и  $0.3$ ), в которых реализовано стимулированное излучение в ультрафиолетовом спектральном диапазоне 330–297 нм с пороговыми интенсивностями возбуждения  $I_{th} \approx 0.7–1.4$  МВт/см<sup>2</sup> соответственно. Установлено, что величина порога стимулированного излучения слоев AlGaN, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии, в значительной мере определяется интенсивностью процесса термического разложения GaN, который влияет на морфологию поверхности и, следовательно, на величину оптических потерь на рассеяние. Показано, что в слоях AlGaN не происходит выраженной локализации неравновесных носителей заряда, что проявляется в отсутствии большого стока сдвига и в реализации оптического усиления на переходах в электронно-дырочной плазме, а также свидетельствует об относительно однородном составе материала.*

**Ключевые слова:** оптическая накачка, ультрафиолетовое стимулированное излучение, эпитаксиальные слои AlGaN, аммиачная молекулярно-пучковая эпитаксия.

## 1. Введение

Твердые растворы на основе AlGaN являются основным материалом, из которого изготовлено большинство современных оптоэлектронных приборов, работающих в УФ диапазоне спектра и востребованных для таких применений, как дезинфекция, спектральный анализ в медицине, биологии, криминалистике, контроль атмосферы и др., а также приборов силовой и высокочастотной электроники. При этом, несмотря на впечатляющие результаты, достигнутые в последние годы в области создания светоизлучающих и фотоприемных приборов на основе AlGaN для УФ области спектра [1–4], их характеристики еще далеки от характеристик аналогичных устройств на основе InGaN, работающих в видимой области спектра. Одной из главных проблем при росте эпитаксиальных слоев AlGaN является низкая поверхностная подвижность атомов алюминия, обусловленная относительно высокой энергией связи AlN [5]. В результате рост AlN или AlGaN по сравнению с GaN имеет более выраженный трехмерный характер с образованием множества островков с большей плотностью межзеренных границ и, соответственно, дислокаций. К слоям AlGaN в составе приборных гетероструктур, характеристики которых за-

висят от эффективности транспорта носителей заряда (светодиоды, фотоприемники, транзисторы с высокой подвижностью электронов), часто предъявляется требование обеспечения высокой однородности состава и гладкой морфологии поверхности, что является трудной задачей ввиду склонности AlGaN образовывать трехмерную поверхность во время роста. Кроме того, гладкость гетероинтерфейсов квантовых ям может влиять также на величину коэффициента оже-рекомбинации [6].

В настоящей работе исследовались излучательные свойства слоев  $Al_xGa_{1-x}N$  различного состава, выращенных методом аммиачной молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ), и основные факторы, определяющие величину порога возбуждения стимулированного излучения в них.

## 2. Эксперимент

Эпитаксиальные структуры со слоями AlGaN, исследованные в работе, были выращены методом аммиачной МПЭ в установке STE3N (SemiTEq, Россия) на подложках сапфира диаметром 50.8 мм с шероховатостью не хуже 0.2 нм. Предростовая подготовка подложки включала в себя отжиг при температуре 1000 °С в течение 30 мин и нитридизацию в потоке аммиака 30 см<sup>3</sup>/мин при стандартных условиях и температуре 850 °С. Конструкция исследованных гетероструктур схематически представлена на рис.1. Эпитаксиальный процесс начинался с роста буферной структуры общей толщиной 460 нм, которая включала в себя зародышевый и буферные слои AlN, а также согласующий слой  $Al_xGa_{1-x}N$  переменного состава. Рост зародышевого слоя AlN начинался при низкой (0.05 мкм/ч) скорости роста, которая к моменту начала роста буферного слоя повышалась до 0.2 мкм/ч. Температура подложки и поток аммиака при росте слоев AlN составляли 1085 °С и 100 см<sup>3</sup>/мин. Как было показано в

Е.В.Луценко, Н.В.Ржеуцкий, А.Г.Войнилович, И.Е.Свитенков, А.В.Нагорный, В.А.Шуленкова, Г.П.Яблонский. Институт физики НАН Беларуси, Беларусь, 220072 Минск, просп. Независимости, 68/2; e-mail: e.lutsenko@ifanbel.bas-net.by

А.Н.Алексеев, С.И.Петров. ЗАО «НТО», Россия, 194156 С.-Петербург, просп. Энгельса, 27

Я.А.Соловьёв, А.Н.Петлицкий, Д.В.Жигулин, В.А.Солодуха. ОАО «ИНТЕГРАЛ» – управляющая компания холдинга «ИНТЕГРАЛ», Беларусь, 220108 Минск, ул. Казинца, 121А

Поступила в редакцию 4 апреля 2019 г.

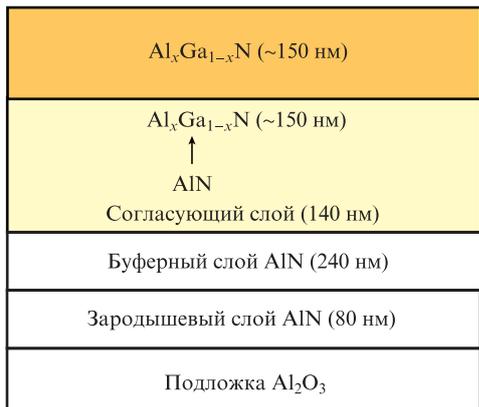


Рис.1. Конструкция эпитаксиальных структур со слоями AlGaN.

работах [7, 8], такие условия роста слоев AlN позволяют обеспечить их хорошие структурные свойства и гладкую морфологию поверхности. Рост согласующего и активного слоев  $Al_xGa_{1-x}N$  различных образцов проводился при фиксированном потоке аммиака  $100 \text{ см}^3/\text{мин}$ , различных температурах ( $T_{gr} = 860 - 935^\circ\text{C}$ ) и соотношениях потоков  $x = Al/(Al + Ga) = 0.15 - 0.3$ .

Исследовалась фотолюминесценция (ФЛ) и стимулированное излучение (СИ) в выращенных слоях AlGaN при возбуждении излучением 5-й или 4-й гармоники Nd:YAG-лазера ( $\lambda_{exc} = 213 \text{ нм}$  и  $I_{exc} \approx 0.1 \text{ МВт}/\text{см}^2$  (ФЛ),  $\lambda_{exc} = 266 \text{ нм}$  и  $I_{exc} \approx 0.1 - 10 \text{ МВт}/\text{см}^2$  (СИ)). При измерениях параметров СИ излучение возбуждающего лазера фокусировалось на поверхности структуры в полосу с размерами  $100 \text{ мкм} \times 2 \text{ мм}$ , ориентированную перпендикулярно торцу. Измерения специально проводились без создания резонатора Фабри–Перо, чтобы исключить случайное влияние качества зеркал резонатора, образованного сколами, на порог СИ. Регистрация спектров ФЛ и СИ осуществлялась с помощью спектрометра MayaPro (Ocean Optics) с поверхности и торца слоя AlGaN соответственно. Измерения коэффициента оптического пропускания для определения края поглощения AlGaN производились с помощью спектрофотометра Cary 500, а морфология поверхности исследовалась с использованием атомно-силового микроскопа (АСМ) Nanoflex (Solar LS).

### 3. Результаты и их обсуждение

Пороговая интенсивность возбуждения СИ является величиной, чувствительной к качеству границ волновода, рассеяние излучения на шероховатостях которого может давать существенный вклад в величину оптических потерь [9]. В лазерах на основе эпитаксиальных структур границами волновода являются гетеропереходы между слоями различного состава и граница полупроводник–воздух. Соответственно, для создания низкопороговых полупроводниковых лазеров критически важным является контроль влияния различных параметров роста на гладкость гетероинтерфейсов и поверхностей эпитаксиальных структур.

Для определения излучательных характеристик слоев AlGaN в зависимости от температуры их роста  $T_{gr}$  исследована ФЛ серии слоев AlGaN, выращенных при  $T_{gr}$  в диапазоне  $860 - 935^\circ\text{C}$ . Соотношение потоков  $Al/(Al + Ga)$  для этой серии слоев составило  $x = 0.3$ . Результаты измерений приведены на рис.2.

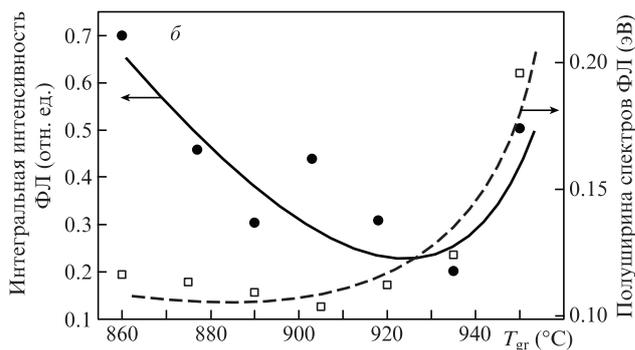
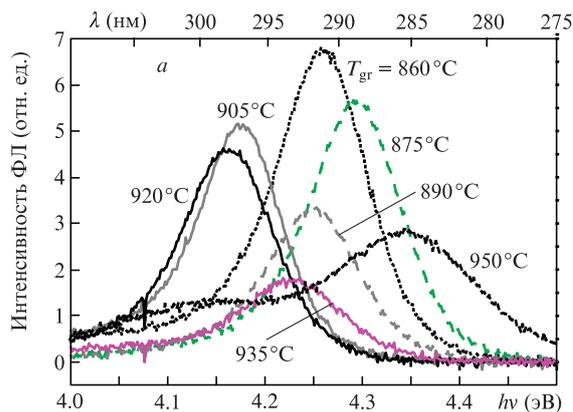


Рис.2. Спектры ФЛ слоев AlGaN, выращенных при различных температурах (а), и зависимости интегральной интенсивности и полуширины спектров ФЛ от температуры роста (б).

Повышение температуры от  $920$  до  $935^\circ\text{C}$  приводит к существенному возрастанию полуширины спектра, что свидетельствует о формировании неоднородностей состава AlGaN. Немонотонный характер зависимости интенсивности ФЛ от температуры роста очевидно является результатом конкуренции двух процессов, связанных с увеличением неоднородности состава AlGaN. С одной стороны, увеличение неоднородности приводит к повышению скорости излучательной рекомбинации за счет усиления локализации неравновесных носителей заряда и подавления их транспорта к центрам безызлучательной рекомбинации. С другой стороны, образование неоднородностей может приводить к ухудшению качества структуры и, соответственно, к увеличению концентрации центров безызлучательной рекомбинации материала вследствие создания локальных областей с высокими механическими напряжениями.

Для слоев, выращенных при  $T_{gr} = 860, 875$  и  $905^\circ\text{C}$  и имеющих малую полуширину спектров ФЛ, было получено СИ на  $\lambda \approx 300 \text{ нм}$  при пороговых интенсивностях возбуждения  $I_{th} \approx 2, 1.4$  и  $9 \text{ МВт}/\text{см}^2$  соответственно. Спектр СИ и зависимость его интенсивности от интенсивности возбуждающего излучения для слоя, выращенного при  $T_{gr} = 875^\circ\text{C}$ , приведены на рис.3.

Для оценки влияния морфологии поверхности слоев на СИ в них были проведены измерения с использованием АСМ, результаты которых приведены на рис.4. Относительно невысокие значения среднеквадратичной шероховатости поверхности  $\sigma$  получены для диапазона  $T_{gr} = 875 - 920^\circ\text{C}$  (минимальное  $\sigma = 1.2 \text{ нм}$  получено для  $T_{gr} = 875^\circ\text{C}$ ), который соответствует относительно небольшой полуширине спектров ФЛ (см. рис.2). Причиной более выраженного формирования неоднородностей состава

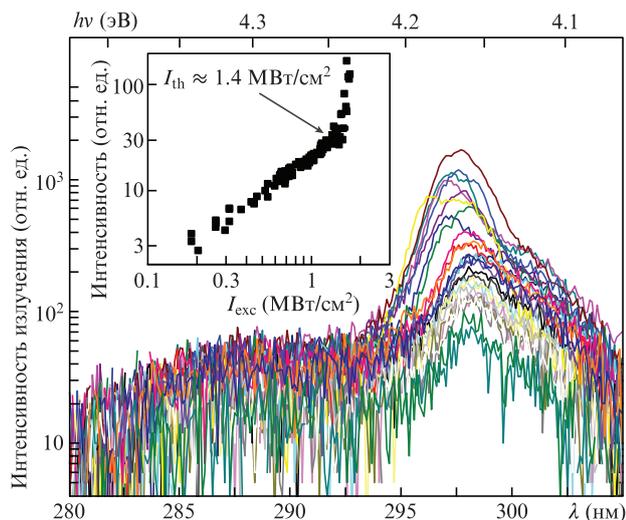


Рис.3. Спектры излучения с торца AlGaIn, выращенного при  $T_{gr} = 875^\circ\text{C}$  (на вставке – зависимость интегральной интенсивности излучения от интенсивности возбуждающего излучения).

AlGaIn при высоких  $T_{gr}$  является процесс термического разложения GaN, который при типичных давлениях в камере роста ( $10^{-4} - 10^{-3}$  Па) оказывается достаточно интенсивным [10, 11]. Этот процесс приводит к формированию развитой поверхности растущего слоя с образованием неоднородностей состава и других структурных дефектов в AlGaIn, способных существенно ухудшить его лазерные свойства. Следует отметить, что для слоя с минимальным значением  $\sigma$  минимальна величина пороговой интенсивности возбуждения СИ, а причиной отсутствия СИ для слоев, выращенных при высоких температурах, является образование развитой поверхности слоев. Одной из причин ее формирования в случае слоя, выращенного при низкой температуре ( $T_{gr} = 860^\circ\text{C}$ ), может быть недостаточно высокая подвижность поверхностных атомов во время роста, способствующая реализации трехмерного режима роста.

Таким образом, можно сделать вывод, что величина пороговой интенсивности возбуждения СИ в слоях AlGaIn в значительной мере определяется морфологией поверхности и, следовательно, величиной оптических по-

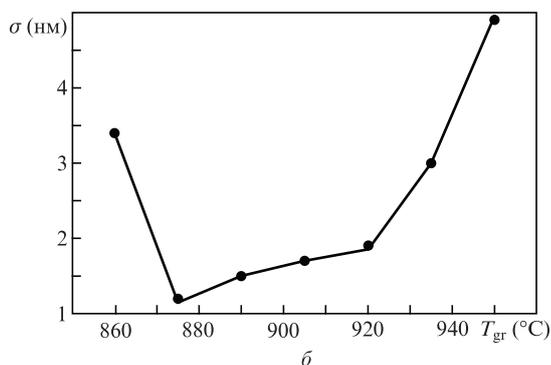
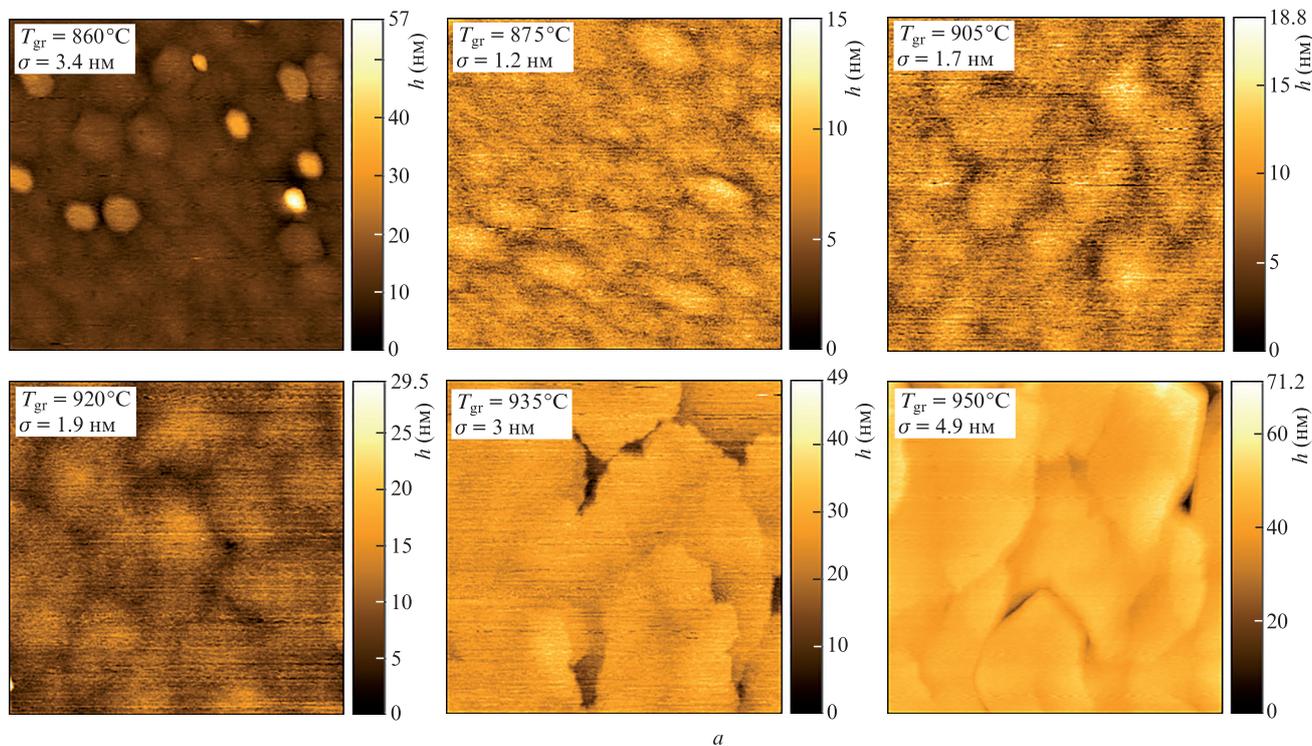


Рис.4. АСМ-изображения участков поверхностей слоев AlGaIn с размерами  $5 \times 5$  мкм (а) и зависимость среднеквадратичной шероховатости  $\sigma$  от  $T_{gr}$  (б).

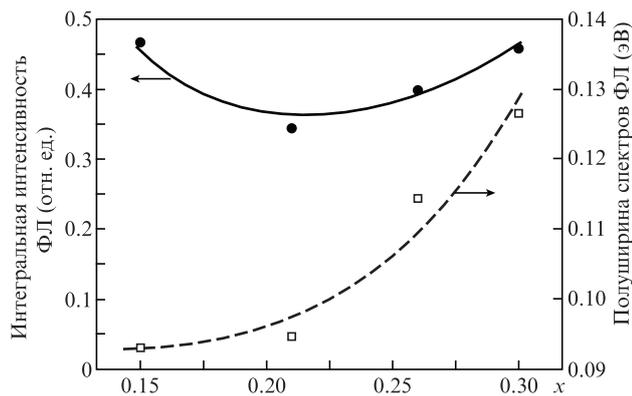


Рис.5. Интегральная интенсивность и полуширина спектров ФЛ слоев  $Al_xGa_{1-x}N$ , выращенных при  $T_{gr} = 875^\circ C$  и потоке аммиака  $100 \text{ см}^3/\text{мин}$ , в зависимости от мольной доли AlN.

ть на рассеяние, которые зависят от интенсивности термического разложения GaN в процессе роста.

Исследовались излучательные свойства  $Al_xGa_{1-x}N$ -слоев различного состава, выращенных в оптимальных условиях ( $T_{gr} = 875^\circ C$ , поток аммиака  $100 \text{ см}^3/\text{мин}$ ) при соотношениях потоков металлов  $Al/(Al+Ga) = 0.3, 0.26, 0.21$  и  $0.15$ , значения которых определяли мольную долю AlN  $x$ . На рис.5 приведены характеристики ФЛ полученных слоев  $Al_xGa_{1-x}N$  в зависимости от состава. С увеличением мольной доли AlN возрастает полуширина спектра, что свидетельствует о более выраженном формировании неоднородностей состава AlGaN. По интегральной интенсивности ФЛ слои различаются незначительно, однако в соответствующей зависимости можно выделить минимум при  $x = 0.21$ . Увеличение интенсивности ФЛ с уменьшением  $x$  от 0.21 до 0.15 очевидно вызвано улучшением качества материала из-за его приближения по составу к бинарному соединению GaN, а также увеличением коэффициента вывода люминесценции из слоя вследствие увеличения сил осциллятора оптических переходов с поляризации TE [11, 12]. Возрастание интенсивности ФЛ при увеличении  $x$  от 0.21 до 0.3 может быть обусловлено усилением локализации неравновесных носителей заряда и, соответственно, ослаблением их транспорта к центрам безызлучательной рекомбинации за счет неоднородностей состава.

Во всех слоях, выращенных при  $T_{gr} = 875^\circ C$ , получено СИ с  $I_{th} \approx 0.7, 1.1, 1.4$  и  $1.4 \text{ МВт}/\text{см}^2$  для  $x = 0.15, 0.21, 0.26$  и  $0.3$  соответственно. Как видно из рис.5, для слоя  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N$  с наименьшим значением  $I_{th} \approx 0.7 \text{ МВт}/\text{см}^2$  отношение интегральной интенсивности к полуширине спектра ФЛ максимально. Спектры СИ и пороговая характеристика для этого слоя приведены на рис.6.

На рис.7 приведены спектры ФЛ и СИ для всех слоев серии, а также отмечены значения энергии, соответствующие ширине запрещенной зоны и определенные из спектров пропускания [13]. Стоксов сдвиг для всех слоев не превышает 20 мэВ, что свидетельствует об относительно слабой локализации неравновесных носителей заряда. При этом для каждого из образцов полоса СИ смещена от максимума ФЛ в длинноволновую сторону, что говорит об отсутствии выраженных хвостов зон [15]. Основным механизмом стимулированного излучения в исследованных слоях, по-видимому, является оптическое усиление на переходах в электронно-дырочной плазме, поскольку спектры стимулированного излучения доста-

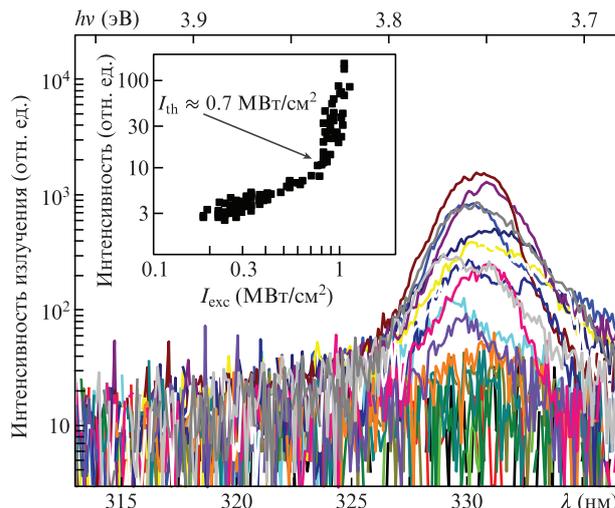


Рис.6. Спектры СИ в слое  $Al_{0.15}Ga_{0.85}N$  (на вставке – зависимость интегральной интенсивности излучения от интенсивности возбуждающего излучения).

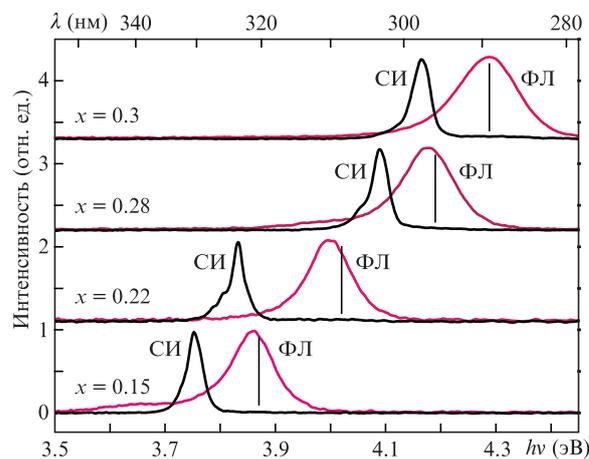


Рис.7. Нормированные спектры ФЛ и СИ в слоях  $Al_xGa_{1-x}N$  различного состава. Вертикальными линиями отмечены энергетические положения края поглощения.

точно сильно смещены в длинноволновую область относительно края поглощения. Таким образом, можно сделать вывод, что выращенные слои AlGaN имеют относительно высокую однородность по составу, что является критически важным для применения в гетероструктурах, требующих обеспечения эффективного транспорта носителей заряда (проводящие слои светоизлучающих и фотоприемных приборов, барьерные слои транзисторов с высокой подвижностью электронов и т.д.) Относительно низкий порог СИ в эпитаксиальных слоях AlGaN без выраженных флуктуаций состава (локализованных состояний) свидетельствует об их высоком качестве.

#### 4. Заключение

В работе показано, что величина порога возбуждения СИ в слоях AlGaN, выращенных методом аммиачной МПЭ, в значительной мере определяется интенсивностью процесса термического разложения GaN, который влияет на морфологию поверхности и, соответственно, на величину оптических потерь на рассеяние. Определены условия роста, позволившие изготовить серию слоев

$\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  толщиной 150 нм различного состава ( $x = 0.15, 0.21, 0.26$  и  $0.3$ ), в которых получено стимулированное излучение в диапазоне  $\lambda = 330\text{--}297$  нм с относительно низкими значениями пороговой интенсивности возбуждения  $I_{\text{th}} \approx 0.7\text{--}1.4$  МВт/см<sup>2</sup>. Показано, что в данных слоях  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  отсутствует сильно выраженная локализация неравновесных носителей заряда, что свидетельствует об их однородном составе.

- Grandusky J.R., Chen J., Gibb S.R., Mendrick M.C., Moe C., Rodak L., Garrett G.A., Wraback M., Schowalter L.J. *Appl. Phys. Express*, **6**, 032101 (2013).
- Mino T., Hirayama H., Takano T., Tsubaki K., Sugiyama M. *Proc. SPIE*, **8625**, 59 (2013).
- Inoue S., Tamari N., Taniguchi M. *Appl. Phys. Lett.*, **110**, 141106 (2017).
- Ichikawa M., Fujioka A., Kosugi T., Endo S., Sagawa H., Tamaki H., Mukai T., Uomoto M., Shimatsu T. *Appl. Phys. Express*, **9**, 072101 (2016).
- Khan A., Balakrishnan K., Katona T. *Nature Photon.*, **2**, 77 (2008).
- Tan C.-K., Sun W., Wierer J.J., Jr., Tansu N. *AIP Advances*, **7**, 035212 (2017).
- Lutsenko E.V., Rzhetski M.V., Vainilovich A.G., Svitsiankou I.E., Shulenkova V.A., Muravitskaya E.V., Alexeev A.N., Petrov S.I., Yablonskii G.P. *Semiconductors*, **52**, 2107 (2018).
- Alyamani A., Lutsenko E.V., Rzhetski M.V., Zubialevich V.Z., Vainilovich A.G., Svitsiankou I.E., Shulenkova V.A., Yablonskii G.P., Petrov S.I., Alexeev A.N. *Jpn. J. Appl. Phys.*, accepted for publishing (2019).
- Tien P.K. *Appl. Opt.*, **10**, 2395 (1971).
- Webb J.B., Tang H., Bardwell J.A., Moisa S., Peters C., MacElwee T. *J. Cryst. Growth*, **230**, 584 (2001).
- Alexeev A.N., Borisov B.A., Chaly V.P., Demidov D.M., Dudin A.L., Krasovitsky D.M., Pogorelsky Yu.V., Shkurko A.P., Sokolov I.A., Stepanov M.V., Ter-Martirosyan A.L. *Mater. Res. Soc. Internet J. Nitride Semiconductor Research*, **4**, e6 (1999).
- Banal R.G., Taniyasu Y., Yamamoto H. *Appl. Phys. Lett.*, **105**, 053104 (2014).
- Ryu H.-Y., Choi I.-G., Choi H.-S., Shim J.-I. *Appl. Phys. Express*, **6**, 062101 (2013).
- Robertson J. *Phil. Mag. B*, **63**, 307 (1994).
- Mickevičius J., Jurkevičius J., Tamulaitis G., Shur M.S., Shatalov M., Yang J., Gaska R. *Opt. Express*, **22**, A491 (2014).