Федеральное государственное бюджетное учреждении науки Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Научно-технологический центр микроэлектроники и субмикронных гетероструктур Российской академии наук

На правах рукописи

### ЦАЦУЛЬНИКОВ Андрей Федорович

## СВЕТОИЗЛУЧАЮЩИЕ III-N ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ С ТРЕХМЕРНОЙ ЛОКАЛИЗАЦИЕЙ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА

специальность 01.04.10 – физика полупроводников

ДИССЕРТАЦИЯ на соискание ученой степени доктора физико-математических наук

> Санкт-Петербург 2019

## Оглавление

Введение	4
Список сокращений и условных обозначений	11
Глава 1. Формирование областей трехмерной локализации	12
носителей заряда в InGaN/(Al,Ga)N квантоворазмерных	
гетероструктурах	
1.1. Влияние состава газовой атмосферы в реакторе на	13
структурные свойства InGaN/GaN гетероструктур	
1.2. Влияние давления при эпитаксиальном росте на	25
структурные свойства КЯ InGaN.	
1.3. Неоднородное распределение индия в КЯ и островках InGaN	31
1.3.1. Влияние прерываний роста в азот-водородной	31
атмосфере на распределение индия в островках InGaN	
1.3.2. Неоднородное распределение индия в InGaN/GaN	36
структурах, выращенных методом термоциклирования	
1.3.3. Исследования In-обогащенных областей методом ФЛ	42
с временным разрешением	
1.3.4. Исследования температурной зависимости ФЛ и	47
зависимости ФЛ от интенсивности накачки КЯ InGaN,	
содержащих In-обогащенные области	
1.4. Формирование однородных по составу КЯ InGaN.	56
1.5. Выводы.	60
Глава 2. Различные типы InGaN/(Al,Ga)N гетероструктур,	62
основанные на технологических методах формирования областей	
с трехмерной локализацией носителей заряда	
2.1. Короткопериодные сверхрешетки InGaN/GaN,	62
сформированные методом конвертации InGaN в GaN в азот-	
водородной атмосфере.	
2.2. Субмонослойные InGaN/GaN гетероструктуры.	78
2.3. Влияние материала матрицы на свойства КЯ InGaN.	87

2.3.1. КЯ In <sub>x</sub> Ga <sub>1-x</sub> N в матрице In <sub>y</sub> Ga <sub>1-y</sub> N.	87
2.3.2. КЯ InGa <sub>x</sub> N в матрице AlGaN.	94
2.4. Композитные InAlN/InGaN гетероструктуры.	103
2.5. Формирование In-обогащенных островков методом in-situ	114
наномаскирования.	
2.6. Выводы.	120
Глава 3. Светоизлучающие структуры с активной областью на	122
основе КЯ InGaN и короткопериодных сверхрешеток	
InGaN/GaN.	
3.1. Светодиодные структуры синего диапазона.	122
3.1.1. Транспорт носителей и эффективность излучения в	123
светодиодных InGaN/GaN гетероструктурах с InGaN	
островками.	
3.1.2. Влияние КПСР на эффективность излучения.	127
3.2. Светодиодные структуры желто-зеленого диапазона.	135
3.3. Монолитные белые светодиоды с активной областью на	148
основе КЯ InGaN и короткопериодных InGaN/GaN	
сверхрешеток.	
3.3.1. Безлюминофорные светодиоды с монолитной	150
активной областью на основе КЯ InGaN и КПСР	
InGaN/GaN.	
3.3.1.1. Оптимизация дизайна гетероструктуры.	150
3.3.1.2. Управление цветовыми параметрами	161
монолитного светодиода.	
3.3.2. Монолитные белые светодиоды с люминофорным	163
покрытием.	
3.4. Выводы.	171
Заключение	173
Публикации по теме диссертации	177
Список цитированной литературы	186

#### 1. Введение

Актуальность проблемы, рассмотренной в диссертации, обусловлена высокими темпами развития твердотельной оптоэлектроники и электроники на основе III-N гетероструктур даже в областях, которые изначально были основаны на приборах, работающих на других принципах. Например, коммерчески доступные источники белого света на основе III-N светодиодов уже превзошли все другие типы ламп по всем основным показателям [1]. Однако, несмотря на значительные успехи, существует ряд фундаментальных проблем, ограничивающих развитие III-N технологии, основной из которых является то, что все III-N соединения (GaN, AlN, InN) имеют различные постоянные кристаллической решетки [2], а эпитаксиальный рост осуществляется на инородных подложках (в основном, подложках сапфира или карбида кремния). С одной стороны, в результате разработки технологии [3] и дизайна активной области [4], эта проблема не явилась критической для создания высокоэффективных светодиодов синего диапазона [5] или СВЧ транзисторов [6]. С другой стороны, несмотря на то, что III-N оптоэлектроника потенциально позволяет перекрыть весь видимый диапазон длин волн, различие в постоянных решетки не позволят создавать квантовые ямы (КЯ) InGaN с высоким содержанием индия, что приводит к падению эффективности излучения III-N светодиодов в желтой и красной областях спектра и затрудняет создание, например, RGB белых светодиодов с высокими индексами цветопередачи возможностью динамического управления И цветовыми параметрами на одной системе материалов [7, 8]. Таким образом, актуальной становится задача разработки новых методов эпитаксиального роста III-N гетероструктур, состоящих из материалов значительно различающихся по параметрам решетки. Подход, исследованный в данной работе, основан на том, что при росте светоизлучающих квантоворазмерных гетероструктур InGaN/GaN с многокомпонентными напряженными КЯ InGaN толщиной несколько нанометров, внутри этих КЯ происходит фазовый распад и распределение атомов является неоднородным, приводя к образованию локальных In-обогащенных областей, имеющих меньшую ширину запрещенной зоны и обеспечивающих

трехмерную локализацию носителей заряда. Фазовый распад обусловлен тем, что из-за различия в длинах связей в кристаллической решетке, которое связано с различием в параметрах решетки между InN и GaN, составляющим 10.7 % для параметра *a* и 15.0 % для параметра *c*, тройное соединение InGaN является термодинамически нестабильным. В случае КЯ InGaN/GaN, образование узкозонных областей приводит к значительной модификации локальных оптических свойств гетероструктур, в частности, с одной стороны, расширяя диапазон излучения, с другой стороны, увеличивая ширину линии излучения. Параметры формирующихся областей определяются как технологическими условиями эпитаксиального роста, так и, в случае многослойных InGaAlN гетероструктур, последовательностью и толщинами слоев их составляющих. Для наиболее важных с практической точки зрения гетероструктур InGaN/GaN формирование локальных In-обогащенных областей наблюдалось экспериментально даже в случае низкого содержания индия [2, 9], но исследований технологических систематических методов, позволяющих управлять формированием таких областей, не проводилось. Также практически исследования отсутствовали комплексные взаимосвязи параметров эпитаксиального роста и структурных и оптических свойств гетероструктур InGaN/GaN, содержащих локальные In-обогащенные области. Таким образом, работы разработке экспериментальных цель заключалась В методов формирования In-обогащенных областей в светоизлучающих гетероструктурах на основе III-N материалов, обеспечивающих трехмерную локализацию носителей, методом газофазной эпитаксии из металлорганических соединений (ГФЭ МОС), комплексном исследовании взаимосвязи условий роста и структурных и оптических свойств выращенных гетероструктур, и создании на основе разработанных методов новых типов гетероструктур для светоизлучающих приборов.

<u>Методы исследования</u>. Гетероструктуры на основе III-N материалов в данной работе выращивались методом ГФЭ МОС, который является в настоящее время основным промышленным методом получения таких гетероструктур.

Структурные свойства исследовались методами просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения (ПЭМ ВР), атомно-силовой микроскопии (ACM), рентгеноструктурного анализа (XRD). Оптические исследования были проведены методами спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ) и электролюминесценции (ЭЛ), возбуждения ФЛ в широком диапазоне температур и плотностей возбуждения.

Создание приборных светоизлучающих структур, содержащих в активной области локальные In-обогащенные области, возможно лишь при условии, что данный эффект контролируется либо технологическими условиями в реакторе ГФЭ МОС, либо последовательностью и толщинами осаждаемых слоев (дизайном гетероструктуры). При этом необходимо отметить, что для определенных применений, например, таких как светодиоды, ширина линии излучения должна быть не минимальной, а наоборот иметь определенное значение, чтобы обеспечить высокий индекс цветопередачи. Кроме того, для приборных применений необходимо обеспечить высокую локализацию носителей в формирующихся локальных областях вплоть до комнатной температуры, то есть энергия локализации должна превосходить несколько  $k_bT$  при T=300K.

Таким образом, с учетом этих требований для достижения поставленной цели работы решались следующие <u>основные задачи</u>:

- 1. Исследование технологических методов формирования Inобогащенных областей в InGaN КЯ.
- Изучение влияния дизайна (последовательности, толщин и химического состава слоев) многослойных III-N гетероструктур на формирование In-обогащенных областей в КЯ InGaN.
- 3. Комплексное исследование взаимосвязи условий роста, структурных и оптических свойств, выращенных КЯ InGaN.
- 4. Создание на основе разработанных методов роста КЯ InGaN новых типов гетероструктур, в том числе приборных.

Научная новизна работы состоит в следующем:

- Впервые продемонстрирована in-situ трансформация сплошной КЯ InGaN в массив изолированных островков, стимулированная условиями эпитаксиального роста: прерываниями роста в азотводородной атмосфере после осаждения КЯ InGaN и давлением при росте КЯ InGaN.
- 2. Впервые проведено комплексное исследование влияния технологических параметров эпитаксиального роста КЯ InGaN (температуры роста, потока индия, давления, состава газовой атмосферы в реакторе) на формирование локальных In-обогащенных областей, в том числе на формирование квантовых точек (КТ).
- 3. Впервые для InGaN/GaN гетероструктур предложен и изучен метод субмонослойного роста.
- Впервые методом циклической конвертации слоя InGaN в GaN при прерываниях роста в азот-водородной атмосфере созданы короткопериодные сверхрешетки InGaN/GaN.
- 5. Впервые для III-N материалов предложены и изучены композитные гетероструктуры InGaN/GaN/InAlN, позволяющие расширить спектр излучения KЯ InGaN.
- 6. Впервые предложены и изучены светоизлучающие структуры синего и желто-зеленого диапазона, а также светоизлучающие структуры с монолитной активной областью, комбинации основанные на короткопериодных сверхрешеток (КПСР) InGaN/GaN, InGaN сформированных методом GaN, конвертации В И трансформированных в островки КЯ InGaN.

<u>Практическая значимость</u> работы состоит в следующем.

1. Разработанные методы формирования как пространственно неоднородных, так и пространственно однородных КЯ InGaN, позволяют контролировать длину волны и ширину линии излучения,

подавлять транспорт носителей к центрам безызлучательной рекомбинации и создавать светоизлучающие приборы с высокой эффективностью излучения.

- Разработанные технологии и конструкция активной области светодиодных структур синего и желто-зеленого диапазона, позволили продемонстрировать высокую квантовую эффективность для излучения в диапазонах 430-460 нм и 540-560 нм.
- 3. На основе монолитных светодиодных структур, излучающих в диапазоне 430-510 нм, созданы белые светодиоды, обеспечивающие предельные значения индекса цветопередачи Ra(8)=98.6 и Ra(14)=97.4 при коррелированной цветовой температуре CCT=3300-3500 К, что соответствует лучшему мировому уровню.

#### На защиту выносятся следующие основные положения:

- 1. Технология роста квантовых ям InGaN методом газофазной эпитаксии из металлорганических соединений позволяет трансформировать сплошную квантовую яму в массив островков с размерами от единиц до десятков нанометров, обеспечивая трехмерную локализацию носителей заряда.
- 2. Азот-водородная атмосфера реактора при эпитаксиальном росте квантовой ямы InGaN методом газофазной эпитаксии из металлорганических соединений обеспечивает формирование однородной по составу квантовой ямы.
- Периодические прерывания при росте InGaN методом газофазной эпитаксии из металлорганических соединений позволяют формировать короткопериодные сверхрешетки InGaN/GaN за счет конвертации поверхностного слоя InGaN в GaN.
- 4. Локальные области трёхмерной локализации носителей заряда в квантовой яме InGaN образуются при ее осаждении на поверхность намеренно сформированных трехмерных стрессоров.

5. Использование комбинации короткопериодных сверхрешеток InGaN/GaN и квантовых ям InGaN, трансформированных в массив островков, в активной области светоизлучающих приборов позволяет реализовать высокую эффективность излучения благодаря подавлению безызлучательной рекомбинации при сохранении эффективной инжекции носителей.

Апробация работы. Результаты, вошедшие в диссертационную работу, докладывались обсуждались Всероссийских И на И международных конференциях. семинарах и симпозиумах: Международных симпозиумах Наноструктуры: Физика и Технология (1996, 1997, 1998, 1999, 2000, 2001, 2002, 2003, 2005, 2006, 2015, 2016, 2017); Всероссийских конференциях «Нитриды галлия, индия и алюминия – структуры и приборы» (С.Петербург, Москва, 2000, 2001, 2004, 2005, 2007, 2008, 2010, 2011, 2013, 2015); Российские конференции по физике полупроводников (Новосибирск, 1999; Нижний Новгород, 2001; Ершово, 2015; Екатеринбург, 2017); на Международных семинарах по нитридным полупроводникам (Нагойя, Япония, 2000; Флорида, США, 2010; Вроцлав, Польша, 2014); Европейских семинарах по металлорганической газофазной эпитаксии и связанным техникам роста (Берлин, Германия, 1997; Прага, Чехия, 1999; Метц, Франция, 2008); Международных конференциях по нитридным полупроводникам (Монпелье, Франция, 1999; Глазго, Великобритания, 2011); Международных конференциях по физике полупроводников (Осака, Япония, 2000; Сеул, Корея, 2010); Международной конференции по газофазной эпитаксии из металлорганических соединений (Невада, США, 2010;) Международном симпозиуме по росту Ш-нитридов (Санкт-Петербург, Россия, 2012); IX Конференции по материалам и приборам на основе нитрида галлия (Сан-2014); Франциско, США, 15-ой Международной конференции по нанотехнологиям (Рим, Италия, 2015); Российско-Белорусских семинарах "Полупроводниковые лазеры и системы на их основе" (Минск, 2005, 2011, 2013, 2017); 7 Международной конференции Фотоники-2004 (Кочин, Индия, 2004);

Международной конференции по полупроводниковой электроники (Куала Лумпур, Малазийя, 2004).

Основное содержание диссертации опубликовано в 51 научной статье.

<u>Структура и объем диссертации</u>. Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения и списка литературы. Она содержит 200 страницу текста, включая 113 рисунков и 9 таблиц. Список цитируемой литературы содержит 126 наименований.

## Список сокращений и условных обозначений

ГФЭ МОС	газофазная эпитаксия из металлорганических соединений
КЯ	квантовая яма
КТ	квантовая точка
КПСР	короткопериодная сверхрешетка
MC	монослой
GI	прерывание роста
РБО	распределенный брегговский отражатель
ФЛ	фотолюминесценция
ЭЛ	электролюминесценция
ФТ	фототок
ПЭМ ВР	просвечивающая электронная микроскопия высокого разрешения
GPA	метод геометрических фаз
ACM	атомно-силовая микроскопия
XRD	рентгеноструктурный анализ
КРОО	карты рассеяния рентгеновских лучей в пространстве обратной
	решетки
ВИМС	вторично-ионная масс спектрометрия
ВКЭ	внешняя квантовая эффективность
IQE	внутренняя квантовая эффективность
LER	световая эффективность излучения
CRI	индекс цветопередачи
CCT	цветовая характеристическая температура

# Глава 1. Формирование областей трехмерной локализации носителей заряда в InGaN/(Al,Ga)N квантоворазмерных гетероструктурах.

Данная глава содержит результаты исследований технологии получения методом ГФЭ МОС и изучения свойств КЯ InGaN в которых намеренно формировались или, наоборот, происходило подавление формирования Inобогащенных областей. Поскольку такие области в КЯ, формирующиеся в результате фазового распада, определяют оптические свойства InGaN/GaN гетероструктур [10, 11, 12], то принципиальным становится изучить условия эпитаксиального роста, позволяющие управлять этим эффектом. В случае КЯ InGaN высокого состава неоднородность в распределении атомов индия начинает играть все более важную роль из-за сильного влияния размеров In-обогащенных областей и их состава на энергию оптического перехода. Важным также является тот факт, что поскольку все слои гетероструктур на основе (In,Ga,Al)N являются In-обогащенных образование решеточно-несогласованными, то областей определяется не только химическим составом, толщиной и режимами роста КЯ InGaN, но и параметрами (толщинами и химическим составом) и режимами роста остальных слоев гетероструктуры. В данной главе были проведены детальные исследования зависимости структурных и оптических свойств КЯ InGaN, содержащих In-обогащенные области, от технологических параметров их роста. В общем случае, различные параметры влияют формирование таких областей в КЯ: послеростовой (in-situ) отжиг КЯ InGaN [13, 14], рост на буферном слое AlN вместо GaN [15], циклические прерывания роста InGaN [16], прерывания подачи аммиака при росте KЯ InGaN, позволяющие формировать KT InGaN по механизму Странски-Крастанова [17, 18]. Однако, данные методы, давая возможность влиять на структурные свойства КЯ, не позволяют реализовать высокую эффективность излучения, необходимую для приборных применений. В представленной работе акцент был сделан на исследовании влияния легко контролируемых, но достаточно малоизученных технологических параметров, таких как давление и атмосфера в реакторе, рост КЯ InGaN методом

термоциклирования, на фазовый распад, приводящий к неоднородности распределения атомов индия в КЯ, и реализацию высокой эффективности излучения.

## 1.1. Влияние состава газовой атмосферы в реакторе на структурные свойства InGaN/GaN гетероструктур.

Роль водорода при эпитаксиальном росте III-N соединений методом ГФЭ МОС значительной отличается от его роли при росте ГФЭ МОС классических соединений АЗВ5. Хорошо известно, что выращивание высококачественных КЯ InGaN для активных областей светоизлучающих приборов должно производиться в безводородной атмосфере [19, 20]. Наиболее известным проявлением влияния водорода на рост InGaN является подавление вхождения индия в InGaN из-за испарения атомов индия в присутствие водорода [21]. В работе [22] впервые было показано, что добавка малого количества водорода к несущему газу во время прерывания роста (GI) после выращивания КЯ InGaN приводит к существенному увеличению эффективности фото- (ФЛ) и электролюминесценции (ЭЛ). Данный эффект более детально исследован в работах [23, 24, 25], где было показано, что данная процедура позволяет удалить избыточные атомы индия с поверхности слоев, что улучшает структурное качество и эффективность излучения InGaN/GaN гетероструктур. Однако, прерывания роста в азот-водородной атмосфере после осаждения КЯ InGaN, как будет показано ниже, позволяют также изменять микроструктуру КЯ InGaN, трансформируя ее в массив островков с латеральными размерами в десятки нанометров [А26, А30, А39, А47] себя локальные внутри In-обогащенные области, имеющие содержащих латеральные размеры единицы нанометров [А8, А36].

Рассмотрим сначала рост КЯ InGaN с небольшим содержанием индия, излучающих в УФ диапазоне в диапазоне длин волн 400-410 нм. Для роста многоямных InGaN/GaN гетероструктур использовался метод термоциклирования [A1, A8, A11, A36], при котором поток индия подавался в реактор всегда, а содержание индия в растущем слое контролировалось периодическим

изменением температуры. Особенности данного метода будут подробно рассмотрены далее в разделе 1.3. Исследованные структуры содержали пять КЯ InGaN толщиной 3 нм, разделенных слоями GaN толщиной 8 нм. Температуры роста GaN и InGaN составляли 900°C и 805°C, соответственно. Рост активной области осуществлялся в атмосфере азота. После осаждения каждой КЯ InGaN была проведена остановка роста, длительность которой в различных образцах изменялась от 0 до 20 сек (Рис. 1а). В течение этой остановки роста в реактор подавалось 50 sccm водорода, то есть создавалась азот-водородная атмосфера.

На рис. 1 (б-г) приведены карты распределения концентрации атомов индия в выращенных структурах, полученные с помощью обработки изображений ПЭМ ВР методом DALI [26].



Рис. 1. Схематическое изображение процесса роста InGaN/GaN гетероструктур (a) [A35], карты распределения локальной концентрации индия в КЯ InGaN, выращенных с различными временами прерываний роста после осаждения InGaN (б-в, времена указаны на рисунках) [A36].

Видно, что распределение атомов индия в КЯ неоднородно и наблюдается локальное изменение толщины КЯ и формирование In-обогащенных областей, имеющих размеры единицы нанометров. Зависимости структурных параметров КЯ InGaN (общего количества индия и максимального локального содержания индия в In-обогащенных областях) от времени прерывания приведены на рис.2.



Рис. 2. Зависимости структурных параметров слоев InGaN (общего количества индия, максимального локального состава индия) и положения максимума линии ФЛ от времени прерывания [АЗ6].

Из полученных результатов видно, что прерывания роста в азот-водородной атмосфере приводят к уменьшению общего количества индия, уменьшению размеров локальных In-обогащенных областей и, возможно, некоторому увеличению максимального содержания индия в этих областях (в разделе 1.3 свойства таких областей будут рассмотрены подробно). При этом в случае КЯ InGaN с небольшим содержанием индия, наблюдается формирование сплошной в плоскости КЯ, без образования изолированных островков. Совместные эффекты уменьшения размеров локальных областей и общего количества индия приводят к сдвигу линии ФЛ при прерываниях роста в область больших энергий фотонов на ~40-60 мэВ. Аномальным является некоторое увеличение максимального

локального содержания индия в In-обогащенных островках, которое, повидимому, свидетельствует о том, что в случае незарощенного слоя InGaN при прерываниях роста существует транспорт атомов индия к этим островкам [A36]. Полученные результаты, как будет показано далее, согласуются с поведением ЭЛ светодиодных структур, активная область которых была выращена подобным образом.

Были проведены исследования влияния прерываний роста на свойства КЯ InGaN с бо́льшим содержанием индия, излучающих в синем диапазоне [А47]. В Таблице 1 приведены результаты исследований трех серий образцов, выращенных без прерываний роста (серия 1), с прерываниями роста в атмосфере азота (серия 2) и с прерываниями роста в азот-водородной атмосфере (серия 3). Стандартный образец, выращенный без прерываний роста, имел максимум излучения на длине волны 503 нм и интегральную интенсивность спектра ФЛ 50 отн.ед. Уменьшение времени роста КЯ InGaN, потока In или увеличение температуры роста в серии 1 (Таблица 1, образцы О2-О6) приводили к коротковолновому сдвигу линии излучения, уменьшению ee ширины и увеличению интенсивности ФЛ. Сопоставление данных ФЛ, толщин и среднего содержания индия в КЯ InGaN, полученных методом XRD, позволяет заключить, что наблюдаемое изменение параметров излучения обусловлено или уменьшением толщины слоя InGaN, или содержания в нем индия. Такое поведение оптических свойств является характерным для «классического» роста КЯ.

Применение прерываний роста в атмосфере азота (серия 2, образцы N2-N4) приводит к коротковолновому сдвигу линии излучения, обусловленному уменьшением содержания индия (Таблица 1). Толщина КЯ InGaN при этом меняется незначительно. Коротковолновый сдвиг линии ФЛ сопровождается увеличением интегральной интенсивности ФЛ. Наблюдаемый эффект зависит от длительности прерываний. Что интересно, прерывания роста в атмосфере азота слабо влияют на ширину линии излучения, приводя в случае длительных прерываний к ее увеличению относительно стандартного образца (Таблица 1, образец Ref.).

Таблица 1. Оптические и структурные параметры InGaN/GaN гетероструктур, выращенных с различными прерываниями [A47].

Серия	Образец	время	поток	Длительность	поток	T <sub>QW</sub> ,	среднее	QW	$\lambda_{\Phi \Pi}  ^{*}$	FWHM	I. Int
		роста КЯ,	ТМИ,	прерываний,	H <sub>2</sub> ,	°C	содержа-	период,	(300 K),	(300 K/	ΦЛ <sup>**</sup> ,
		сек	sccm	сек	slm		ние In, %	НМ	НМ	10 К), нм	отн. ед.
1.	Ref.	87	150	0	0	760	4.9	12.1	503	26/15	50
	O2	87	75	0	0	760	4.1	12.0	472	19/10	103
	O3	65	150	0	0	760	4.1	11.6	480	22/11	59
	O4	53	150	0	0	760	3.5	11.1	461	20/11	68
	05	87	150	0	0	777	4.1	12.1	473	21/10	134
	O6	87	150	0	0	784	3.6	12.1	454	17/9.5	186
2.	N2	87	150	64	0	760	4.1	12	484	25/13	83
	N3	87	150	128	0	760	3.3	12	472	25/16	136
	N4	87	150	256	0	760	2.0	11.8	470	28/22	178
3.	H2	87	150	20	1	760	3.5	12	484	28/19	94
	H3	87	150	20	2	760	2.1	11.9	473	26/18	141
	H4	87	150	20	4	760	1.2	12	461	30/28	171
	H5	87	150	20	8	760	0.26	7.2	432	24/30	124

\* положение максимума спектров ФЛ, \*\*интегральная интенсивность спектров ФЛ

Последняя серия образцов была выращена с использованием прерываний (Таблица 1, роста В азот-водородной атмосфере образцы H2-H5). Сопоставление оптических и структурных свойств образцов, выращенных в сериях 2 и 3, показывает, что качественно эффект прерываний роста в азотводородной атмосфере подобен тому, что наблюдалось при прерываниях роста в атмосфере азота. Однако, в случае добавки водорода эффект модификации КЯ InGaN является более сильным, и аналогичные изменения толщин и составов достигаются при меньших временах прерываний. При этом образец НЗ показывает лучшую эффективность излучения по сравнению с образцами О2 и N3, имеющими одинаковую длину волны. Следовательно, можно заключить, что использование азот-водородной атмосферы ускоряет эффект прерываний роста и улучшает эффективность излучения в синем диапазоне.

В следующей серии экспериментов были исследованы при инжекционной накачке структуры с активными областями, содержащими КЯ InGaN, излучающими в синем диапазоне длин волн, выращенные с различными прерываниями роста. В табл. 2 приведены условия эпитаксиального роста, структурные параметры КЯ InGaN, полученные методом ПЭМ ВР, и оптические характеристики, полученные с помощью измерения спектров ЭЛ. В серии образцов, приведенных в табл. 2, содержится стандартный образец LED-Ref, выращенный без прерываний роста, образец LED-H4, выращенный с прерываниями в атмосфере азота, и образцы LED-H1, H2, H3, H5, H6, выращенные с прерываниями в азот-водородной атмосфере с различными потоками водорода и длительностями прерываний. Стандартная структура LED-Ref имела длину волны излучения 494 нм, ширину линии 25 нм и внешнюю квантовую эффективность (ВКЭ), равную 3.55 отн.ед. Применение прерываний роста длительностью 16 сек в атмосфере азота привело к коротковолновому сдвигу линии излучения, увеличению ВКЭ, но не повлияло на ширину линии излучения. При той же длительности прерываний даже небольшая добавка водорода приводит к значительно более сильному коротковолновому сдвигу и уширению линии излучения и значительному

увеличению ВКЭ. Эффект добавки водорода усиливается при увеличении длительности прерываний при одинаковом потоке водорода (образцы LED-H1, H3, и H6), и, в результате, наблюдается более значительный коротковолновый сдвиг и уширение линии излучения и возрастание ВКЭ.

Таблица 2. Оптические и структурные параметры InGaN/GaN гетероструктур синего диапазона, выращенных с различными прерываниями [А47].

Образец	Длительность	$H_2$	InGaN	InGaN	Длина	FWHM	ВКЭ
	прерываний	поток,	толщина*,	содержание	волны,	(10 мА),	(100 мА),
	роста, сек	slm	НМ	индия***,	НМ	HM	отн.ед.
				%			
LED-Ref	0	0	3.8	18	494	25	3.55
LED-H1	3	5.5	3.5	16	488	24	4.15
LED-H2	5	11	1.4-2.8**	16	474	30	4.85
LED-H3	6	5.5	1.7-3**	16	481	26	4.82
LED-H4		0	3.5	16	489	23	4.0
LED-H5	16	1.8			476	30	4.16
LED-H6		5.5	1.4-3.4**	16	469	30	5.71

\* $\pm 0.2$ нм, \*\* минимальная и максимальная толщина К<br/>Я InGaN, \*\*\* $\pm 1\%$ 

Для анализа причин изменения оптических характеристик излучения InGaN/GaN гетероструктур, выращенных с различными прерываниями роста, выращенные образцы (табл. 2) были исследованы с помощью ПЭМ ВР. На рис. 3 приведены изображения распределения локальных деформаций  $(5\overline{410})$ кристаллической решетки, полученные с помощью обработки изображений ПЭМ ВР методом геометрических фаз (GPA) [27, 28] (GPA изображения), образцов LED-Ref (a), LED-H4 (б), LED-H1 (в), LED-H2 (г), LED-H3 (д), и LED-H6 (е). На рис. За видно, что в структуре LED-Ref формируется КЯ InGaN толщиной 3.8±0.2 нм с содержанием индия 18±1%.

Прерывания роста длительностью 16 сек в атмосфере азота (рис. 36) или 3 сек в азот-водородной атмосфере при потоке водорода 5.5 slm (Рис. 3в) не влияют на сплошность КЯ InGaN, но уменьшают толщину КЯ и содержание в ней индия.



Рис. 3. GPA изображения образцов LED-Ref (a), LED-H4 (б), LED-H1 (в), LED-H2 (г), LED-H3 (д), и LED-H6 (е) [A47].

Дальнейшее увеличение длительности прерываний или потока водорода не влияет но приводит сильному на содержание индия, К изменению микроструктуры КЯ InGaN (Рис. 3 г, д, е). Видно, что сплошная КЯ InGaN трансформируется в массив латерально-связанных островков. Чем дольше водорода, прерывания роста или больше эффект поток тем сильнее трансформации (Рис. 3д, е). Наиболее сильно этот эффект проявляется в образце LED-H6 (Рис. 3е), в котором наблюдается даже некоторое уменьшение латеральных размеров и высоты островков, что хорошо согласуется с сильным коротковолновым сдвигом линии излучения.

Рассмотрим зависимости ВКЭ излучения образцов LED-Ref (без прерываний), LED-H1, LED-H3 и LED-H6 (прерывания роста 3, 6 и 16 сек, соответственно, при потоке водорода 5.5 slm) (рис.4).



Рис. 4. Токовые зависимости ВКЭ для структур, выращенных с различными прерываниями роста [А47].

Видно, что прерывания роста приводят, помимо увеличения значения ВКЭ, к более быстрому нарастанию ВКЭ с током и смещению максимума в токовой зависимости ВКЭ в область меньших значений токов. Токовая зависимость ВКЭ для образца LED-Ref характерна для светодиодных структур с активной областью на основе KЯ InGaN с относительно однородным распределением атомов индия. В таких КЯ носители свободно двигаются в плоскости, достигая дефектных областей, что уменьшает ВКЭ в области малых токов, а насыщение безызлучательной рекомбинации при увеличении тока приводит К монотонному росту ВКЭ. Образование островков при прерываниях роста подавляет латеральный транспорт носителей к областям дефектов. Это приводит к смещению максимума токовой зависимости в область меньших токов и к увеличению максимального значения ВКЭ (Рис.4, образцы LED-H3 и

LED-H6). Дальнейшее падение ВКЭ с током определяется типичной для светодиодов на основе InGaAlN безызлучательной Оже рекомбинацией [29, 30].

На рис. 5 а и б приведены GPA изображения КЯ InGaN, излучающих в синей области спектра, выращенных с применением прерываний роста в азотводородной атмосфере, осажденных либо на 4 «базовые» КЯ InGaN с меньшим УΦ области (Рис. 5а), либо содержанием индия, излучающие В на (КПСР) InGaN/GaN короткопериодную сверхрешетку (Рис. 5б) [A26]. Подробности роста таких КПСР будут подробно обсуждены далее в разделе 2.1.



Рис. 5. GPA изображения активных областей светоизлучающих гетероструктур, содержащих в активных областях три (а, б) и две (в) КЯ InGaN, выращенные с применением прерываний роста в присутствии водорода, соответственно. Корреляция в направлении эпитаксиального роста островков InGaN (г). [A26, A39, A51].

Дизайн гетероструктур, содержащий «базовые» низкосоставные КЯ под активной областью, является типичным для Ш-N светодиодов и позволяет улучшить эффективность излучения. Подробно различные дизайны активной области светоиодов будут рассмотрены в разделе 3.1.2.

Видно, что использование прерываний роста приводит к формированию вместо сплошной KЯ InGaN изолированных островков с латеральными размерами в десятки нанометров, между которыми полностью отсутствует InGaN (Puc. 5a), а при оптимизированных условиях роста, включая оптимизацию давления [A39], в структуре с КПСР наблюдается достаточно четкая огранка боковых стенок островков (Puc. 5 в). При уменьшении толщины барьера между КЯ InGaN можно реализовать корреляцию в расположении островков в соседних КЯ (рис.5 в).

Для исследования влияния прерываний в азот-водородной атмосфере на свойства КЯ InGaN высокого состава была выращена серия светодиодных структур, излучающих в зеленом диапазоне длин волн [A36]. Температуры роста КЯ InGaN, длительности прерываний роста и потоки водорода во время прерываний для исследованных структур приведены в Таблице 3.

Образец	Температура	Длительность	Поток водорода,	
	роста InGaN, °C	прерывания, сек	slm	
1	690	0	0	
2	690	18	0	
3	690	18	3.5	
4	675	18	3.5	
5	675	18	0.5	

Таблица 3. Параметры роста InGaN/GaN гетероструктур зеленого диапазона, выращенных с различными прерываниями и потоками водорода [36].

Для того, чтобы предотвратить формирование дефектов из-за большого общего содержания индия, активные области этих структур состояли из одной КЯ

InGaN, осажденной на КПСР, содержащую 12 периодов InGaN/GaN с толщинами каждого слоя 1 нм. Прерывания роста проводились непосредственно после осаждения КЯ InGaN. Подробно оптимизация дизайна таких структур обсуждается далее в разделе 3.2.

На рис. 6а приведено GPA изображение одиночной KЯ InGaN с высоким содержанием индия, на котором наблюдается формирование островков большого размера.



a)



Рис. 6. GPA изображение одиночной КЯ InGaN с высоким содержанием индия, выращенной с использованием прерываний роста (а). Спектры ЭЛ структур (Таблица 3), выращенных с и без прерываний роста (б), и с различным потоком водорода во время прерываний роста (в). Температуры роста КЯ InGaN в активной области, потоки водорода и длительности прерываний роста указаны на рисунках [A36].

Из спектров ЭЛ (рис. 6 б) видно, что прерывания роста после осаждения КЯ, приводят к значительному коротковолновому сдвигу излучения, причем с

увеличением количества водорода сдвиг линии ЭЛ растет (рис. 6 в). Полученные результаты согласуются с полученными выше данными ПЭМ ВР для КЯ, излучающих в синем диапазоне, показывающими уменьшение содержание индия и уменьшение толщины КЯ при подаче водорода во время прерываний роста InGaN.

Таким образом, в результате проведенных исследований можно сделать следующие выводы. В случае КЯ InGaN с низким содержанием индия, излучающими в УФ диапазоне, прерывания роста приводят к удалению избытка атомов индия с поверхности, улучшая структурное качество КЯ, но не нарушают сплошность КЯ. В случае КЯ InGaN с содержанием индия, соответствующим излучению в синем диапазоне, прерывания роста при определенных условиях роста приводят к трансформации сплошной КЯ InGaN в массив изолированных островков. При этом смещения длины волны излучения практически не происходит, а ВКЭ излучения значительно возрастает. В случае КЯ InGaN с высоким содержанием индия, излучающих в желто-зеленом диапазоне, помощью прерываний роста с можно трансформировать сплошную КЯ в изолированные островки, но происходит значительный сдвиг линии излучения в область больших энергий фотонов.

## 1.2. Влияние давления при эпитаксиальном росте на структурные свойства КЯ InGaN.

Синтез III-N соединений в целом существенно зависит от давления в реакторе [31, 32, 33, 34], причем, как будет показано ниже, для КЯ InGaN изменение давления при росте вызывает модификацию их структурных и оптических свойств [A27, A39]. В данном разделе приведены результаты детального исследования трансформации КЯ InGaN в массив островков при комбинированном воздействие давления в реакторе при росте КЯ InGaN и прерываний роста в азот-водородной атмосфере после осаждения КЯ. На рис. 7 приведены GPA изображения КЯ InGaN/GaN, излучающих в синем диапазоне, выращенных при различном давлении. КЯ InGaN имели толщину ~3 нм и были

разделенны барьерами GaN толщиной ~8 нм. С целью сохранения неизменных начальных условий формирования активной области, давление в реакторе при выращивании первой KЯ InGaN для всех структур составляло 300 мбар, и эта КЯ заращивалась барьерным слоем GaN без прерывания роста.



Рис. 7. GPA изображения активных областей, выращенных при давлении 100 (а), 450 (б), 600 (в) и 940 мбар (г), полученные из изображения ПЭМ ВР. д) – структура InGaN/GaN, в которой различные КЯ InGaN были выращены при различных давлениях с и без прерываний роста [A27].

При выращивании верхних четырех КЯ и барьеров между ними давление в реакторе варьировалось от структуры к структуре в диапазоне 100-940 мбар. После выращивания каждой из этих четырех КЯ производилось одинаковое 20секундное прерывание роста с добавлением водорода в атмосферу несущего газа [А27]. На рис. 7 для всех исследованных образцов отчетливо видно формирование КЯ InGaN, причем структурные свойства КЯ сильно зависят от давления. Рост КЯ при низком давлении (100 мбар) приводит к образованию сплошной в плоскости КЯ (рис. 7 а) с заметными флуктуациями состава на масштабе длин в единицы нанометров. КЯ InGaN, выращенные при высоком давлении (450 и 600 мбар), имеют принципиально другую структуру (рис.2 б-г). Они разделены на плоские островки, имеющие большую дисперсию по размерам от единиц до нескольких десятков нанометров. При этом высота островков практически совпадает с толщиной КЯ и составляет 2.3-2.5 нм, а среднее содержание индия в КЯ и островках также остается неизменным и составляет 27 ± 8%. Таким образом, увеличение давления с одновременным прерыванием роста в азот-водородной атмосфере после осаждения КЯ приводит к трансформации сплошной КЯ в массив отдельных, несвязанных двумерных островков при сохранении одинакового среднего содержания атомов индия.

Для того, чтобы разделить влияние давления и прерываний роста на процесс трансформации КЯ, была выращена многослойная InGaN/GaN структура, в которой различные КЯ InGaN были осаждены при различных давлениях с и без прерываний роста (рис. 7 д). Видно, что само по себе увеличение давления без использования прерываний роста не приводит к формированию островков, но при использовании прерываний роста увеличение давления стимулирует формирование островков.

На рис. 8 приведены результаты исследования оптических свойств выращенных при различных давлениях КЯ InGaN. Для корректного сравнения локализации носителей в КЯ, излучающих при различных длинах волн, анализировалось отношение сдвига линии излучения к положению линии

излучения при давлении 100 мбар ( $\Delta h v$ ), нормированного на разницу энергий запрещенной зоны GaN и оптического перехода [A27, A42]. Видно, что увеличение давления приводит к увеличению  $\Delta h v$ , что свидетельствует о возрастании роли локализации носителей в структурах, выращенных при повышенном давлении (рис.8 а).



Рис. 8. Зависимости от давления сдвига максимума линии излучения (по отношению к положению линии излучения при давлении 100 мбар) ( $\Delta h \nu$ ), нормированного на разницу энергий запрещенной зоны GaN ( $E_g^{GaN}$ ) и оптического перехода ( $h\nu$ ), (а) и полуширины линии излучения (FWHM) (б) [A27, A42].

Этот эффект сопровождается увеличением ширины линии излучения (рис.8 б), что показывает увеличение неоднородного уширения линии излучения, обусловленного дисперсией островков по размерам и содержанию в них индия.

На рис. 9 а приведены токовые зависимости положения линии излучения для образцов, выращенных при различных давлениях. Для образцов, выращенных при давлении 100 мбар и 200 мбар, положение максимума излучения практически не изменяется с ростом тока, что типично для КЯ. При

наблюдается коротковолновый увеличении давления сдвиг максимума излучения, что согласуется с формированием островков. Интересно, что в исследованной серии структур наблюдается аномальная взаимосвязь между длиной волны излучения и ее шириной — структуры с большей длиной волны излучения, выращенные при относительно низком давлении (100-200 мбар), имеют более узкий спектр излучения. Если бы увеличение длины волны излучения InGaN/GaN-структур достигалось снижением температуры роста (что является общепринятым способом управления длиной волны излучения), то структуры с большей длиной волны имели бы более широкий спектр и большую величину сдвига максимума излучения с током. Увеличение давления приводит к различному характеру токовой зависимости длины волны излучения InGaN КЯ (рис. 9 б).



Рис. 9. Зависимости длины волны излучения (а) и зависимости ЭЛ (б) от тока для структур с активной областью, выращенной при различных давлениях [А27].

С ростом давления наблюдается смещение максимума токовой зависимости ВКЭ в область малых значений токов аналогично случаю применения

прерываний роста при осаждении КЯ (рис. 4). Это согласуется с возрастанием роли флуктуаций в процессе излучения [35]. Увеличение давления роста до 600 мбар приводит к значительному увеличению эффективности излучения (рис. 10) [A50], связанному с подавлением латерального транспорта носителей к центрам безызлучательной рекомбинации, что повышает эффективность излучения, особенно в области малых (< 20 мА) токов.



Рис. 10. Зависимость максимального значения ВКЭ от давления [А50].

Дальнейшее увеличение давления выше 650-700 мбар приводит к уменьшению эффективности излучения, что может быть обусловлено уменьшением числа и размеров островков при увеличении давления, что наблюдается ПЭМ ВР.

Таким образом, проведенные исследования показали, что для структур, излучающих в синем спектральном диапазоне, увеличение давления усиливает эффект трансформации сплошных КЯ InGaN в массив пространственно разделенных островков при прерываниях роста в азот-водородной атмосфере.

#### 1.3. Неоднородное распределение индия в КЯ и островках InGaN.

B предыдущих разделах было показано, что при определенных технологических режимах роста КЯ InGaN происходит трансформация сплошной КЯ в массив островков, имеющих размеры десятки нанометров (островки малого размера, формирующиеся при высоком давлении роста, не рассматриваются, так как характеризуются низкой ВКЭ излучения). С другой стороны, результаты экспериментов, приведенных на Рис. 1, 3, 5, показывают, что распределение атомов индия внутри как КЯ, так и островков является неоднородным и также зависит от условий эпитаксиального роста. Поскольку такие In-обогащенные области имеют размеры единиц нанометров, то они могут рассматриваться как КТ и, во многом, обуславливают оптические свойства InGaN/GaN гетероструктур: длину волны излучения, ширину полосы излучения, температурную зависимость ФЛ и ЭЛ и т.д. В данном разделе подробно рассматриваются технологические способы влияния на структурные свойства таких объектов и приведены результаты исследования связи их структурных и оптических свойств с условиями их роста.

1.3.1. Влияние прерываний роста в азот-водородной атмосфере на неоднородное распределение индия в островках InGaN.

В разделе 1.1 было показано сильное влияние прерываний роста в азотводородной атмосфере морфологию КЯ InGaN. Однако, на помимо возможности трансформации КЯ в массив островков, рассмотренные прерывания влияют на структуру КЯ в масштабах единиц нанометров. Рассмотрим с этой точки зрения GPA изображения КЯ InGaN, представленные на рис. 3. Видно, ЧТО внутренняя структура КЯ образцов LED-Ref (выращенного без прерываний роста) и LED-H2 и LED-H3 (выращенных с прерываниям) различна [А47]. Более подробно данное различие демонстрирует рис. 11.



Рис. 11. GPA изображения образцов LED-Ref (в), LED-H2 (г) и LED-H3 (д) [A47]. Стрелки указывают на КТ.

Видно, что распределение атомов индия на уровне единиц нанометров, выраженное в различном цвете изображений на рис 11, неоднородно для всех исследованных структур. Однако, если в случае образца LED-Ref, нельзя выделить каких-то хорошо выраженных локальных In-обогащенных областей, то в случае образцов, выращенных с прерываниями роста, такие области внутри КЯ хорошо разрешаются (стрелки на рис.11). Рассмотрим, как формирование таких областей влияет на оптические свойства InGaN/GaN гетероструктур.

На рис. 12 приведены спектры фототока (ФТ) и спектры ФЛ структур с КЯ InGaN, выращенных с прерываниями роста в азот-водородной атмосфере, имеющих различную концентрацию индия, которая задавалась изменением температуры роста [A15]. Увеличение длины волны излучения с ростом содержания индия обусловлено большей локализацией носителей относительно матрицы GaN, что в случае островковой структуры может быть связано как с ростом глубины КЯ InGaN, так и с увеличением локализации носителей в островках нанометрового размера относительно КЯ. Энергию локализации носителей в таких островках относительно КЯ можно оценить, исследуя величину стоксова сдвига [35] — разности между энергиями фотонов,

соответствующих максимуму излучения и началу пологого участка на кривой фототока (пунктирные кривые на рис. 12).



Рис. 12. Спектры ФЛ (сплошные кривые) и фототока (штриховые) для структур с различной средней концентрацией In в активной области (концентрация In увеличивается сверху вниз) и с различной энергией локализации. Т = 300 К. [A15].

В наибольшая исследованной структур серии локализация носителей реализуется в структуре, излучающей в синей области спектра с положением максимума при ~2.69 эВ (длина волны излучения 460 нм), так как эта структура максимальной длиной волны излучения, характеризуется как так И максимальным значением стоксова сдвига.

Рассмотрим свойства исследованных выше КЯ (табл. 3), излучающих в желто-зеленой области спектра, для которых применение прерываний роста приводило к сильному смещению линии излучения в область меньших энергий фотонов (рис. 6). Исследования ФЛ при приложении обратного смещения [АЗ6]

показали различное поведение ФЛ структур, выращенных без и с прерываниями роста в азот-водородной атмосфере (рис. 13). В спектре образца 1 (табл. 3), выращенного без прерываний роста, наблюдается две линии, имеющие различную зависимость положения максимума от обратного смещения (рис. 13а).



Рис. 13. Спектры ФЛ при различных значениях обратного напряжения смещения (а) и зависимости положений максимумов спектров ФЛ от величины обратного смещения для образцов 1 и 3 (табл. 3) (б) [АЗ6].

Основной вклад в ФЛ вносит коротковолновая линия 2. Длинноволновая линия 1 может быть связана с рекомбинацией в областях вблизи дефектов. Приложение внешнего обратного смещения приводит к увеличению изгиба зон, смещению линии излучения 2 в коротковолновую сторону и падению ее интенсивности, что обусловлено увеличением пространственного разделения электронов и дырок из-за изгиба зоны проводимости и валентной зоны при приложении обратного смещения и типично для случая КЯ InGaN, для которых сильный эффект Штарка. Линия 1 слабо смешается характерен В длинноволновую сторону, что согласуется с ее дефектной природой. В спектре ФЛ образца 3, выращенного с применением прерываний роста, наблюдается только одна линия, которая практически не смещается с приложением обратного напряжения. Отсутствие смещения этой линии и малое изменение ее интенсивности при приложении обратного смещения свидетельствует о том,

что рекомбинация в данной структуре происходит через сильно локализованные состояния, в которых эффект Штарка и влияние внешнего поля может быть существенно подавлено.

В структурах 3-5, выращенных с использованием прерываний роста в азот-водородной атмосфере, наблюдается резкий коротковолновый сдвиг максимума линии излучения с током в области малых токов (10-20 мА) (рис. 14). В области токов более ~20 мА сдвиг линии излучения с током значительно уменьшается, по сравнению со структурой 1, выращенной без прерываний роста.



Рис. 14.Зависимости положений максимумов спектров ЭЛ для образцов, описанных в табл. 3 [АЗ6].

Поскольку зависимость положения линии излучения от тока, в том числе, определяется неоднородностью распределения атомов индия, резкое изменение поведения данной зависимости при изменении технологических параметров свидетельствует об изменении в распределении атомов индия в КЯ InGaN при прерываниях роста. В принципе, подобная зависимость согласуется с тем, что наблюдалось ПЭМ ВР для структур, излучающих в синем диапазоне. Образование «хорошо сформированных» островков нанометрового размера (рис. 11) приводит к более сильной токовой зависимости положения максимума излучения (сравнение образцов 1 и 3, 5 и 4).

1.3.2. Неоднородное распределение индия в InGaN/GaN структурах, выращенных методом термоциклирования.

Рассмотренные выше способы формирования КЯ InGaN основывались на традиционном методе роста многослойных InGaN/GaN структур, который заключается в периодической модуляции потока атомов индия в течение роста, всей InGaN/GaN причем температура роста структуры соответствует роста InGaN. Низкая температура роста барьеров GaN, температуре разделяющих КЯ, приводит к ухудшению их структурного качества и, как показано в работе [36], приводит к неоднородному распределению индия в КЯ InGaN. В данном разделе приведены результаты исследований структурных и оптических свойств периодических InGaN/GaN структур, которые были сформированы путем модуляции не потока индия, а температуры, в то время как поток индия при росте структур не изменялся [А1, А8, А11, А36]. Такой метод называется методом термоциклирования и при нем исключаются прерывания роста, влияние которых на структурные параметры InGaN было рассмотрено выше, И можно исследовать непосредственно влияние температуры роста на распределение индия в КЯ.

Для сравнения свойств КЯ InGaN, выращенных различными методами, были изучены свойства многоямных InGaN/GaN структур, полученных с использованием метода термоциклирования и без него [A8]. На рис. 15 а приведены спектры ФЛ выращенных структур. Видно, что при комнатной температуре форма линий излучения всех образцов симметрична, что связано с тем, что при комнатной температуре все носители делокализованы. Спектры возбуждения (рис. 15 б) показывают значительный стоксов сдвиг излучения (~150 мэВ), причем такой стоксов сдвиг наблюдается как для образцов, выращенных с использованием термоциклирования, так и без него. Это свидетельствует о том, что образование In-обогащенных областей в КЯ InGaN имеет место во всех исследованных образцах.


Рис. 15. Спектры ФЛ (а) и возбуждения ФЛ (цифрами показаны энергии регистрации ФЛ) (б) InGaN/GaN КЯ, выращенных с и без термоциклирования [A8].

Изменения в положении максимума линии излучения с увеличением плотности возбуждающего ФЛ света различны для образцов, выращенных с использованием термоциклирования и без него (Рис. 16).



Рис. 16. Зависимость положения максимума ФЛ от плотности накачки [А8].

Увеличение накачки вплоть до 1 МВт/см<sup>2</sup> [18] показывает, что смещение линии излучения меньше, чем величина стоксова сдвига (рис. 15 б), что свидетельствует о том, что рекомбинация происходит через локализованные состояния вплоть до сверхвысоких плотностей возбуждения. При увеличении

плотности возбуждения от 25 BT/см<sup>2</sup> до 3 кВт/см<sup>2</sup> коротковолновое смещение линии излучения меньше для образцов, выращенных с использованием термоциклирования, что может быть обусловлено увеличением в этих образцах числа локализованных состояний. Это приводит к тому, что, как будет показано далее, структуры, содержащие в активной области набор КЯ InGaN/GaN, выращенные с использованием термоциклирования демонстрируют стимулированное излучения через локализованные состояния, как В вертикальном направлении, так и в торцевой геометрии.

Сравнение ЭЛ (Рис. 17) КЯ InGaN/GaN, выращенных с использованием термоциклирования и при постоянной температуре, показало увеличение эффективности излучения в структуре, выращенной с использованием термоциклирования. Температуры роста структур были выбраны такими, чтобы получить одинаковую длину волны излучения.



Рис. 17. Спектры ЭЛ светодиодных структур с активной областью, выращенной с использованием термоциклирования и без него [А8].

Наблюдаемый эффект объясняется, во-первых, улучшением структурного качества КЯ при росте GaN барьеров при высокой температуре и, во-вторых, подавлением транспорта носителей в дефектные области за счет их

локализации в In-обогащенных областях, образование которых стимулируется при термоциклировании.

На рис. 18 приведены карты распределения локальной концентрации индия в КЯ InGaN, выращенных методом термоциклирования при различных температурах, полученные с помощью обработки изображений ПЭМ ВР методом DALI [A11].



Рис. 18 Карты распределения локальной концентрации индия в многоямных InGaN/GaN структурах, выращенных методом термоциклирования при температуре роста барьеров и КЯ InGaN, соответственно, 900 °C и 785°C (а, б) и 870 °C и 755°C (в) [A11].

Температура роста КЯ InGaN составляла 785°С или 755°С, а температура роста GaN барьеров составляла 900°С или 870°С, соответственно. Из полученных

изображений ВИДНО неоднородное распределение атомов индия И формирование нанометровых In-обогащенных областей. Размеры наблюдаемых островков составляют ~3-4 нм и слабо зависят от температуры роста. Уменьшение температуры роста приводит к увеличению плотности Inобогащенных областей с  $\sim 0.5 \times 10^{12}$  см<sup>-2</sup> до  $\sim 3 \times 10^{12}$  см<sup>-2</sup>, при этом содержание индия в них увеличивается с ~35% до ~50%. Суммарное содержание индия в КЯ InGaN, которое было определено из полученных результатов, составляет 1.5 МС и 2 МС для образцов, выращенных при высокой и низкой температуре, соответственно. Увеличение содержание индия приводит к тому, что линия ФЛ образца, выращенного при низкой температуре, сдвинута на 200 мэВ в сторону меньших энергий фотонов.

На рис. 19 а,б приведены обработанные изображения ПЭМ ВР образцов, выращенных с помощью термоциклирования, но с разными отношениями потоков элементов III и V группы (TMIn/TMGa) [A11].



Рис. 19. Карты распределения атомов индия в образцах, выращенных при разных отношениях потоков TMIn/TMGa с использованием термоциклирования [A11]. a) TMIn/TMGa = 1.2 температуры роста КЯ InGaN и GaN составляли 820°C и 915°C. б) TMIn/TMGa = 1, температуры роста КЯ InGaN и GaN составляли 790°C и 900°C.

Температуры роста были выбраны достаточно высокими, чтобы можно было оценить влияние потока атомов индия. Из рис.19 видно сильное увеличение плотности In-обогащенных областей в образце с более высоким отношением TMIn/TMGa (рис. 19а). ПЭМ ВР показала, что средняя концентрация атомов индия составляет 19% и 11%, а суммарное содержание индия равное ~1.4 МС и ~0.9 МС для образцов, выращенных при потоках TMIn/TMGa равных 1.2 и 1, соответственно. Увеличение содержания индия также подтверждается длинноволновым сдвигом линии ФЛ в структуре с большим отношением TMIn/TMGa, несмотря на большую температуру роста InGaN (рис. 20).



Рис. 20. Спектры ФЛ образцов, выращенных при большем и меньшем отношениях потоков TMIn/TMGa с использованием термоциклирования [A11].

Таким образом, изменение соотношения потоков TMIn/TMGa и в случае использования термоциклирования сильно влияет на содержание индия в КЯ InGaN. Полученные результаты качественно согласуются с результатами исследований структур, выращенных без использования методики термоциклирования [37, 38, 39].

1.3.3. Исследования In-обогащенных областей методом ФЛ с временным разрешением.

свойств InGaN/GaN Были проведены исследования оптических гетероструктур, содержащих In-обогащенные области, выращенных с помощью термоциклирования, методом ФЛ с временным разрешением при резонансном и нерезонансном возбуждении [A12, A13]. В случае если эти области представляют собой КТ, имеющие б-образную плотность состояний, то резонансное возбуждение не приведет к длинноволновому смещению линии излучения после выключения накачки. Это отличается от случая КЯ с непрерывным спектром состояний, в которой носители релаксируют в состояние с меньшей энергией после выключения накачки, что обуславливает длинноволновое смещение энергии оптического перехода. Таким образом, эксперимент по исследованию временной зависимости спада ФЛ InGaN/GaN при импульсном резонансном возбуждении позволяет непосредственно сделать вывод о природе формирующихся In-обогащенных областей.

На рис. 21 приведены спектры ФЛ выращенных образцов, содержащих 10 КЯ InGaN в матрице GaN.



Рис. 21. Интегральные спектры ФЛ образцов с КЯ InGaN, выращенными при температурах 790°С и 820°С, при возбуждении лазером с длиной волны возбуждения 291 нм [A13].

Исследованные структуры были выращены методом термоциклирования с изменением температуры роста в диапазонах 790°С-885°С или 820°С-915°С в различных образцах. Временные зависимости поведения ФЛ приведены на рис. 22. ФЛ возбуждалась перестраиваемым импульсным лазером, имеющим частоту импульсов 3.79 МГц, длину волны 291 нм (4.26 эВ) или 424 нм (2.925 эВ) и мощность 600 Вт/см<sup>2</sup>. Излучение с длиной волны 291 нм позволило осуществить нерезонансное возбуждение ФЛ, а излучение с длиной волны 424 нм – резонансное возбуждение ФЛ КЯ InGaN.



Рис. 22. Временные зависимости интенсивности ФЛ при λ=428 нм при резонансном и нерезонансном возбуждении. На вставке приведены временные зависимости ФЛ при нерезонансном возбуждении при различных длинах волн [A13].

Анализ временных зависимостей показывает, что спад интенсивности  $\Phi Л$ имеет неэкспоненциальный характер и описывается выражением  $I(t)=Io \times exp[-(t/\tau^*)^{\beta}]$  (светлые линии на рис.22), где  $\beta$  - параметр,  $\tau^*$  - постоянная времени. Неэкспоненциальная зависимость падения  $\Phi Л$  со временем характерна для неупорядоченных сред [40] и наблюдалась для InGaN/GaN гетероструктур [41, 42]. В случае рекомбинации через локализованные состояния неэкспоненциальная зависимость интенсивности  $\Phi Л$  от времени может объясняться зависимостью времени рекомбинации от размеров In-обогащенных

областей и содержания индия в них. В этом случае должна наблюдаться зависимость параметра  $\beta$  от технологических условий роста KЯ InGaN, поскольку, как было показано выше, состав и плотность In-обогащенных областей в случае роста InGaN методом термоциклирования зависит от температуры роста. С другой стороны, неэкспоненциальная зависимость падения ФЛ со временем также может быть объяснена формированием KЯ InGaN, в которых экранирование встроенного пьезоэлектрического поля зависит от концентрации носителей и при ее уменьшении экранирование поля также уменьшается, что приводит к уменьшению перекрытия волновых функций электрона и дырки и увеличению времени рекомбинации.

На рис. 23 приведены спектры  $\Phi Л$  и спектральные зависимости параметров *Io*,  $\beta$  и  $\tau^*$  для выращенных образцов [A12].



Рис. 23. Спектры ФЛ и спектральные зависимости параметров *Io*,  $\beta$  и  $\tau^*$  для образцов, в которых температура роста InGaN составляла 820°С (а) и 790°С (b) [A12].

Видно, что параметр  $\beta$  зависит от условий эпитаксиального роста, при этом из спектральных зависимостей  $\beta$  следует, что он различен для двух образцов в областях спектра, где их длины волн излучения совпадают. Следовательно,  $\beta$  определяется в большей степени структурными параметрами КЯ InGaN, а не

зонной структурой. Для образца, в котором температура роста InGaN/GaN была меньше, наблюдается уменьшение времени  $\tau^*$ , что свидетельствует о большем перекрытии волновых функций электронов и дырок.

Как отмечалось выше, прямым экспериментом, позволяющим заключить, что излучение в выращенных КЯ InGaN/GaN определяется рекомбинацией в Inобогащенных областях, является измерение временной зависимости положения возбуждении КЯ максимума излучения резонансном InGaN. при Длинноволновое смещение линии излучения в случае однородных КЯ должно усиливаться из-за зависимости энергии перехода от концентрации носителей, экранирующих встроенное электрическое поле в КЯ InGaN. На рис. 24 представлены спектры ФЛ, записанные в различные промежутки времени после выключения накачки при нерезонансном (а, в) и резонансном (б, г) возбуждении. В случае нерезонансного возбуждения (рис.24 а,в), наблюдается уширенный спектр излучения, неоднородно интенсивность которого постепенно уменьшается после выключения накачки, а максимум сдвигается в область меньших энергий фотонов. При резонансном возбуждении (рис. 24 б,г) форма спектра принципиально другая: после выключения накачки спектр ФЛ достаточно точно воспроизводит спектр источника возбуждения. Этот факт прямо доказывает, что рекомбинация происходит через дискретные уровни, то есть формирующиеся In-обогащенные области имеют б-образную плотность состояний. Положение линии ФЛ не сдвигается во времени и отсутствует спектральное уширение линии излучения. Это позволяет исключить любое альтернативное объяснение, основанное на значительной роли спектральной диффузии и постепенного уменьшения пьезоэлектрического экранирования с уменьшением концентрации носителей, которые должны иметь место в случае рекомбинации в однородной КЯ. Такое поведение ФЛ совпадает с поведением ФЛ, наблюдаемом для КТ с б-образной плотностью состояний [43], для которых отсутствует транспорт экситонов или носителей при низкой температуре.



Рис. 24. Спектры ФЛ, записанные после различных промежутков времени после выключения накачки, при нерезонансном (а, в) и резонансном (б, г) возбуждении для образца, в котором температура роста InGaN составляла 820°С [A12, A13]. В момент времени t=0 в спектре наблюдается только рассеянный свет лазера (г). Спектры, обозначенные открытыми квадратами на рис. г, получены путем вычитания нормированной линии лазера из спектров излучения образца.

Кроме того, на длинноволновом краю спектра излучения наблюдается дополнительное слабое плечо, а сдвиг линии накачки в область меньших энергий приводит к подавлению его интенсивности. Это плечо трансформируется в отдельную линию, если вычесть основную линию ФЛ при резонансном возбуждении (рис. 24г). Оно возникает в спектре спустя ~5 пс после выключения накачки и может быть обусловлено быстрой релаксацией носителей из возбужденного состояния в основное. Благодаря большой In-обогащенные области большого дисперсии, размера могут иметь возбужденные состояния, которые совпадают по энергии с основным состоянием In-обогащенных областей меньшего размера. Максимум линии, с которой связано наблюдаемое плечо, отстоит от энергии возбуждающей линии на 40-50 мэВ, что дает оценку расщепления основного и возбужденного состояния. Применяя простейшую модель сферической КТ с бесконечными барьерами [44] можно оценить расщепление основного и возбужденного состояний КТ  $\Delta E = (3/2m_h) \times (\pi\hbar/R)^2 - 0.248 \times E^*_{Rv}$ , где  $m_h - эффективная масса$ дырки, R – радиус КТ, Е<sup>\*</sup><sub>Ry</sub> – энергия связи экситона. Полагая, что для наблюдаемых объектов  $m_h = 0.1 m_0$  и исходя из данных ПЭМ ВР R=2.5 нм, можно получить значение  $\Delta E=70$  мэВ. Это значение достаточно хорошо совпадает с экспериментальным с учетом погрешности в размерах и содержанию индия в In-обогащенных областях.

1.3.4. Исследования температурной зависимости ФЛ и зависимости ФЛ от интенсивности накачки КЯ InGaN, содержащих In-обогащенные области.

На рис. 25 приведены изображения ПЭМ ВР и спектры ФЛ образца, содержащего 12 КЯ InGaN в GaN, выращенных методом термоциклирования с изменением температуры роста в диапазоне 730-860°C [A2, A4]. Отношение потоков ТМІп и ТМGа во время роста InGaN/GaN не изменялось, а отношение потока ТМІп к общему потоку TMIn+TMGa составляло 0.4. Такой поток приводил к тому, что, несмотря на низкую температуру роста, линия излучения лежала в ультрафиолетовой области спектра. InGaN/GaN КЯ были выращены

на относительно толстых слоях InGaN толщиной 25 нм с содержанием индия 7-8%, чтобы компенсировать напряжения в активной области при росте большого числа КЯ и предотвратить образование дислокаций (рис. 25 а). Обработка изображений ПЭМ ВР методом DALI показала неоднородное распределение индия в КЯ (рис. 25 а).





Рис. 25. Изображения ПЭМ (а) и температурные зависимости параметров ФЛ (б) для структуры, содержащей 12 КЯ InGaN в GaN, выращенных методом термоциклирования с изменением температуры роста в диапазоне 730-860°С [A2, A4].

Неоднородность в распределении атомов индия приводит к тому, что с ростом температуры ширина линии излучения растет, а ее максимум не следует за изменением ширины запрещенной зоны, сдвигаясь в область больших энергий фотонов (рис. 25 б), что обусловлено дисперсией In-обогащенных областей по размерам и/или содержанию индия. При температуре больше 140К выброс носителей из локализованных состояний приводит к длинноволновому сдвигу линии излучения. Такое S-образное поведение длины волны излучения типично для рекомбинации через локализованные состояния [45].

Рассмотрим оптические свойства КЯ, содержащих нанометровые Inобогащенные области, при сверхвысоких плотностях возбуждения. Возбуждение ФЛ осуществлялось импульсным азотным лазером (λ= 337.1 нм) с

мощностью 1.5 kW в импульсе. При наблюдении ФЛ с поверхности луч лазера фокусировался в пятно диаметром 400  $\mu$ m (плотность возбуждения 1 MBT/cm<sup>2</sup>). Для наблюдения ФЛ с торца был выколот резонатор длиной 3 мм, на который с помощью цилиндрической линзы лазерный луч фокусировался в пятно размером 5 × 0.3 мм (плотность возбуждения 100 кBT/cm<sup>2</sup>). Снижение плотности накачки осуществлялось с помощью нейтральных фильтров. Спектр ФЛ, снятый при низкой температуре и малой плотности возбуждения (25 BT/cm<sup>2</sup>) имеет несимметричную форму с "плечом" на низкоэнергетическом краю спектра (рис. 26 а). Такая форма характерна для КТ, имеющих дисперсию по размерам или составу. Сильное увеличение плотности возбуждения до 0.6-1 MBT/cm<sup>2</sup> в различных образцах [A2, A4, A7] приводит к тому, в спектре люминесценции, модулированном модами микрорезонатора Фабри-Перо, образованного границей GaN-воздух и GaN-сапфировая подложка, одна из мод



Рис. 26. Спектры ФЛ (а) и зависимость интенсивности ФЛ от плотности накачки (б) для структуры, содержащей 12 КЯ InGaN в GaN, выращенных методом термоциклирования с изменением температуры роста в диапазоне 730-860°C [A1, A2].

резко усиливается и начинает доминировать в спектре, причем пороговый характер зависимости интенсивности люминесценции от плотности накачки резко выражен (рис. 26 б). Выраженный одномодовым характер спектра излучения при больших плотностях накачки свидетельствует о наличии обратной связи и переходе в режим стимулированного излучения, а оценки пороговой плотности накачки дают значение ~2×10<sup>5</sup> см<sup>-1</sup> [A1, A4]. При наблюдении ФЛ с торца при плотностях накачки 50 кВт/см<sup>2</sup> линия ФЛ резко сужается, что свидетельствует о переходе в режим стимулированного излучения. Следует отметить, что плотности возбуждения для возникновения стимулированного излучения в направлении, параллельном к поверхности, значительно меньше, чем в случае поверхностной генерации.

Были исследованы структуры с КЯ InGaN с большим содержанием индия, излучающие в сине-зеленом спектральном диапазоне [A9] (рис. 27). Структуры содержали 10 КЯ InGaN толщиной 3 нм, разделенные барьерами GaN толщиной 10 нм. КЯ снизу (со стороны подложки) и сверху были ограничены слоями AlGaN толщиной 2 µm и 10 нм, соответственно.



Рис. 27. Спектры ФЛ при различных плотностях возбуждения (a) и спектры возбуждения ФЛ (б) [A9].

На рис. 27 приведены спектры ФЛ и возбуждения ФЛ, из которых следует, через что рекомбинация происходит локализованные состояния, обуславливающие стоксов сдвигу между линией ФЛ и краем зоны поглощения 27 б), и сверхвысоких плотностей возбуждения (рис. ЧТО вплоть ДО рекомбинация происходит через такие состояния. Исследования ФЛ на полосках длиной 1 мм со сколотыми торцами для формирования зеркал показали, что наблюдается стимулированное излучение вплоть до комнатной температуры с пороговой плотностью 7 кВт/см<sup>2</sup> при 77К и 17 кВт/см<sup>2</sup> при 293К [A9].

На основе InGaN/GaN гетероструктур, выращенных с использованием термоциклирования, был создан ряд модельных структур торцевых и поверхностно-излучающих лазеров и проведены исследования стимулированного излучения при оптической накачке. Были исследованы структуры с активными областями [A10], содержащими в разных образцах от 10 до 20 периодов КЯ InGaN/GaN, выращенных методом термоциклирования в различных температурных диапазонах, что позволило получить излучение с длинами волн в диапазоне от ультрафиолетового (405 нм) до сине-зеленого (496 нм).

На рис. 28 приведено схематическое изображение исследованных структур.



Рис. 28. Схематическое изображение исследованных образцов [А10].

Изучение зависимости ФЛ от плотности возбуждения образцов с InGaN/GaN активной областью, осажденной на GaN, слой AlGaN толщиной 50 нм и AlGaN/GaN сверхрешетку общей толщиной 600 нм, показало, что для всех этих образцов наблюдается стимулированное излучение через локализованные состояния с пороговыми плотностями накачки 100, 23 и 16 кВт/см<sup>2</sup>, соответственно. Уменьшение пороговой плотности возбуждения при осаждении активной области на относительно тонкий слой AlGaN не может быть объяснено улучшением оптического ограничения И связано с электронным ограничением носителей в активной области.

На рис. 29 приведены спектры ФЛ образцов с активной областью, содержащей 20 КЯ InGaN/GaN, осажденных на GaN/AlGaN сверхрешетку, имеющую общую толщину 600 нм (образцы 1 и 2), что обеспечивало, как ограничение носителей в активной области, так и относительное оптическое ограничение.



Рис. 29. Спектры ФЛ образцов с длиной волны возбуждения 405 нм (а) и 435 нм (б) при различных плотностях возбуждения и зависимость интегральной интенсивности ФЛ от плотности накачки (в) для исследованных структур [A10].

Видно, что для структур, характеризующихся спектрами ФЛ с максимумами при 405 нм и 435 нм, при увеличении плотности возбуждения наблюдается интегральной увеличение интенсивности линии ΦЛ, сопровождающееся сужением линии излучения, что свидетельствует о возникновении стимулированного излучения. Для образца, имеющего максимум излучения при 405 нм, пороговая плотность возбуждения составляет 13.5 кВт/см<sup>2</sup>, а для образца, имеющего максимум при 435 нм, пороговая плотность возбуждения выше и составляет 40 кВт/см<sup>2</sup>.

Были исследования свойств проведены модельных структур поверхностно-излучающих лазеров [АЗ, А5, А6, А7] с активной областью на основе InGaN/GaN КЯ, содержащих In-обогащенные области нанометрового размера. Эпитаксиальные структуры состояли из буферного слоя Al<sub>0.08</sub>Ga<sub>0.92</sub>N толщиной 1.1 µm, на котором были выращены: распределенный брегговский отражатель (РБО), состоящий из 37 пар Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N/GaN с толщиной каждого слоя, равной четверти длины волны ( $\lambda$ =400-415 нм в различных структурах); резонатор толщиной 2λ, в центр которого была осаждена многослойная структура, состоящая из 12 пар КЯ InGaN/GaN (рис. 30). Содержание Al в буферном слое было выбрано соответствующим среднему составу в брегговском отражателе, чтобы предотвратить формирование дефектов, вызванных различием в постоянных решетки GaN и AlGaN [46]. КЯ InGaN/GaN (вставка на рис.30 а) были выращены методом термоциклирования в диапазоне температур 780-910°С, либо 755-885 °С, что обеспечивало различные диапазоны излучения. Рентгеноструктурный анализ показал формирование периодической InGaN/GaN структуры с периодом 12 нм и толщиной слоев InGaN ~3 нм.



Рис. 30. Фотография поперечного сечения, полученная методом ПЭМ ВР (а), схематическое изображение (б) и зависимость температуры подложки от времени (в) для структуры без РБО. На вставке к рис. 30 а приведено математически обработанное (DALI) изображение, полученное методом ПЭМ ВР [A6].

На рис. 31 приведены спектры отражения, записанные в различных точках одного из исследованных образцов [А5].



Рис. 31. Спектры отражения структуры с РБО. Схематическое изображение структуры приведено на вставке [A5].

Поскольку при росте структуры не применялось специальных методов повышения однородности, приведенные спектры показывают, что коэффициент отражения изменялся по площади образца в достаточно широких пределах. Тоже относится и к положению линии излучения. Максимальное полученное значение коэффициента отражения превышало 90%. Кроме того, в исследованных структурах верхний брегговский отражатель отсутствовал для того, чтобы обеспечить оптическое возбуждение излучения.

Однако, несмотря на это, в структурах с нижним РБО стимулированное излучение наблюдалось для образцов, излучающих при разных длинах волн при комнатной температуре (рис. 32 а, б) [А3], что свидетельствует о высоком значении усиления. Исследования зависимости излучения от угла сбора [А3, А7] подтвердили вывод, что стимулированное излучение наблюдается с поверхности образца. Пороговые плотности тока составили 400 кВт/см<sup>2</sup> и 550 кВт/см<sup>2</sup> для образцов, излучающих при 402 нм и 415 нм, соответственно (рис. 32 в, г).



Рис. 32. Спектры отражения (а), ФЛ (б, в) и зависимости интегральной интенсивности ФЛ от плотности возбуждения (г, д) [А3].

Таким образом, полученные результаты свидетельствуют о высоком коэффициенте усиления активной области на основе КЯ InGaN, содержащих In-

обогащенные области размеров единицы нанометров, что позволяет использовать их для создания структур для торцевых и поверхностноизлучающих лазеров.

## 1.4. Формирование однородных по составу КЯ InGaN.

Выше было показано, что используя специальные технологические методы можно стимулировать в КЯ InGaN либо формирование In-обогащенных областей с размерами единицы нанометров, либо изолированных островков InGaN, имеющих размеры десятки нанометров. В данном разделе приведены результаты исследований, направленных на получение однородных по распределению атомов индию КЯ [A36, A45].

На рис. 33 приведены карты распределения атомов индия в КЯ InGaN, выращенных методом термоциклирования в атмосфере азота (рис. 33 а) и при добавке 50 sccm водорода непосредственно во время роста КЯ (рис. 33 б).



Рис. 33. Карты распределения локальной концентрации индия в КЯ InGaN, выращенных без (а) и с подачей водорода (б) при росте InGaN. Спектры ФЛ структур, выращенных с и без подачи водорода во время роста InGaN (б). На вставке приведена температурная зависимость максимума излучения образца, выращенного с подачей водорода [АЗ6].

Температуры роста GaN и InGaN составляли в этих образцах 840°С и 720°С, соответственно. Видно, что добавка водорода в течение роста приводит к тому, что плотность локальных In-обогащенных областей значительно уменьшается, и распределение атомов индия становится более равномерным. Это сопровождается уменьшением толщины КЯ InGaN, что наблюдалось также и для структур, выращенных с прерываниями роста после осаждения InGaN (Puc.3) [A47].

На рис. 33 в приведены спектры ФЛ исследованных образцов. Видно, что добавка водорода приводит к значительному коротковолновому сдвигу, что согласуется с уменьшением толщины КЯ InGaN. Кроме того, интенсивность ФЛ образца с КЯ InGaN, выращенного с добавкой водорода во время роста, превышает интенсивность ФЛ образца, в котором при росте КЯ InGaN данная процедура не проводилась (как и прерываний роста после осаждения КЯ). Это может быть объяснено наличием избыточного индия на поверхности КЯ, выращеной без добавки водорода, который может быть удален, например, прерываниями роста [47, 48]. Однако, линия излучения образца, выращенного с добавкой водорода, все равно имеет длинноволновую затяжку, что указывает на неоднородное распределение атомов индия в данной структуре, что согласуется с данными ПЭМ ВР. Это вывод подтверждается температурной зависимостью максимума излучения, показанной на вставке к рис. 33в. Видно, что с увеличением температуры смещение максимума линии излучения немонотонно и не совпадает с ходом запрещенной зоны GaN. Таким образом, несмотря на уменьшение концентрации локальных In-обогащенных областей, эти области вносят вклад в излучение таких структур.

Другим параметром, который влияет на распределение атомов индия в КЯ InGaN, как было показано выше, является давление в реакторе при росте InGaN. Уменьшение давления, даже при использовании прерываний роста, уменьшает неоднородность в распределении атомов индия. Были проведены исследования влияния давления при росте КЯ InGaN на свойства КЯ для получения максимально однородного распределения атомов индия [A45].

Критерием оценки такой однородности служило уменьшение значения ширины линии ФЛ на половине высоты (FWHM) при низкой температуре. В качестве стандартной была выращена структура, в которой на буферном слое GaN была осаждена одиночная КЯ InGaN толщиной 3 нм (температура роста (T<sub>or</sub>) составляла 780°С, давление при росте - 1000 мбар). После осаждения КЯ была проведена остановка роста в азот-водородной атмосфере в течение 16 сек. Далее КЯ была зарощена низкотемпературным слоем GaN толщиной 2 нм, далее, температура роста была увеличена до 920 °C, чтобы эмулировать рост барьерного слоя GaN, и при данной температуре был выращен слой GaN толщиной 8 нм. После этого температура роста была поднята до 1030°С, и был выращен 50 нм слой GaN. Спектр ФЛ данной структуры содержит один пик с энергией 2.875эВ (430 нм) и FWHM равной 120 мэВ при 300К. При 77К параметры составляют 2.919 эВ 100 мэВ, температуре ЭТИ И соответственно. На рис. 34 приведены спектры ФЛ КЯ InGaN, выращенных при различных давлениях роста.



Рис. 34. Спектры ФЛ исследованных образцов при T=77К [A45].

В Таблице 4 приведены подробные условия роста и характеристики спектров излучения выращенных структур при T=300K и T=77K. Как видно из полученных результатов, уменьшение давления при росте KЯ InGaN (образцы

1-3), приводит к значительному уменьшению значения FWHM. Исключение прерываний роста (образец 4) привело к небольшому длинноволновому сдвигу линии излучения, что согласуется с уменьшением толщины КЯ при прерываниях роста, и позволило уменьшить значение FWHM с 46 до 41 мэВ при T=77К, но при T=300 К значение FWHM возросло. Уменьшение ширины спектра при низкой температуре свидетельствует о более однородном распределении атомов индия. Изменение скорости роста КЯ (образцы 5 и 6) по отношению к скорости роста КЯ в образце 4 не привело к сужению линии излучения при низкой температуре. Приведенные выше результаты были получены для образов, выращенных при давлении 100 мбар. Однако, такое давление является неоптимальным в случае роста многоямных InGaN/GaN структур, что связано с низким качеством барьеров GaN, выращенных при низком давлении. Увеличение давления при росте GaN до 200 мбар позволяет улучшить структурное качество GaN, но изменение давления при росте периодической InGaN/GaN структуры, содержащей тонкие КЯ и барьеры, сложно реализовать технологически. Поэтому была исследована возможность роста КЯ InGaN при 200 мбар с использованием подмешивания водорода во время роста КЯ (образец 7). Видно, что наблюдается некоторое увеличение FWHM относительно образца 4, однако, значения оно представляется разумным, принимая во внимание близость в этом случае условий роста КЯ InGaN и барьеров GaN в многослойных InGaN/GaN гетероструктурах.

Таким образом, совместное использование пониженного давления и азотводородной атмосферы непосредственно во время роста КЯ InGaN позволяет улучшить однородность в распределении атомов индия внутри КЯ. Полученные результаты могут быть использованы для создания гетероструктур для оптоэлектронных приборов, для которых важна узость линии излучения. Например, к таким перспективным гетероструктурам относятся резонансные брегговские структуры, формируемые квази-двумерными экситонами в периодической системе InGaN КЯ [49, 50, 51].

<u>№</u> образца	Давление, мбар	GI	Скорость роста	$d_{ m QW}$ , нм	Поток водорода, sccm	T=	=300K	T=77K	
						hv <sub>max</sub> , эВ	FWHM, мэВ	hv <sub>max</sub> , эВ	FWHM, мэВ
Ref (1)	1000	+	1	3	0	2.875	121	2.919	100
2	400	+	1	3	0	2.897	103	2.928	63
3	100	+	1	3	0	3.112	74	3.135	46
4	100	-	1	3	0	3.036	86	3.056	41
5	100	-	2	3	0	2.928	81	2.949	50
6	100	-	0.7	3	0	3.137	77	3.131	63
7	200	-	1	3	150	3.159	75	3.164	51

Таблица 4. Условия роста КЯ InGaN [А45].

 ${
m GI}$  – наличие прерываний роста,  $d_{
m QW}$  - толщина КЯ InGaN, hv<sub>max</sub>, - положение линии излучения

## 1.5. Выводы.

Проведенные исследования позволяют сделать следующие выводы.

- 1. Применение прерываний роста в азот-водородной атмосфере после осаждения КЯ InGaN позволяет трансформировать сплошную КЯ в массив изолированных островков с латеральными размерами от единиц до десятков нанометров. Увеличение давления при росте КЯ стимулирует данный процесс.
- Применение прерываний роста в азот-водородной атмосфере или рост КЯ InGaN/GaN методом термоциклирования позволяет формировать выраженные In-обогащенные области, имеющие латеральные размеры единицы нанометров, т.е. КТ, с плотностью до 3×10<sup>12</sup> см<sup>-2</sup>.
- Формирующиеся In-обогащенные области с размерами единицы нанометров влияют на оптические свойства гетероструктур InGaN/GaN вплоть до комнатной температуры и высоких плотностей возбуждения.
- Рост КЯ InGaN в азот-водородной атмосфере при низком давлении (до 200 мбар) позволяет подавить формирование In-обогащенных областей и получать однородные по распределению атомов индия КЯ.

Глава 2. Различные типы InGaN/(Al,Ga)N гетероструктур, основанные на технологических методах формирования областей с трехмерной локализацией носителей заряда.

2.1. Короткопериодные сверхрешетки InGaN/GaN, сформированные методом конвертации InGaN в GaN в азот-водородной атмосфере.

Использование эффекта влияния водорода при прерываниях роста в азотводородной атмосфере на свойства КЯ InGaN позволило разработать новый метод формирования короткопериодных сверхрешеток (КПСР) InGaN/GaN, с помощью периодических прерываний во время роста толстого слоя InGaN в азот-водородной атмосфере [52, A29, A34]. Описание метода иллюстрируется на рис. 35.





В этом методе используются две фазы: рост слоя InGaN с подачей в реактор ТЕGa и TMIn и прерывания роста в азот-водородной атмосфере. Во время прерывания роста происходит декомпозиция приповерхностного слоя InGaN, удаление атомов In с поверхности и формирование слоя GaN. Таким образом, при циклическом повторении двух этих фаз (роста и прерывания) происходит формирование сверхрешетки, состоящей из слоев InGaN и GaN. Ключевым в этом случае является детальное исследование процесса конвертации InGaN в GaN при прерываниях роста в зависимости от технологических условий.

На рис. 36 приведены GPA изображения образцов, содержащих слои InGaN толщиной ~25 нм, при росте которых были осуществлены два прерывания роста (в различных образцах длительности прерываний отличались) в азот-водородной атмосфере.



Рис. 36. GPA изображения слоев InGaN, при росте которых проводились остановки длительностью 10 сек (а), 80 сек (б) и 160 сек (в) с подачей в реактор водорода [A40].

Содержание индия в слоях InGaN составляло 8-9%. Из приведенных изображений видно, что при прерываниях роста длительностью 10 сек. глубина конвертации InGaN в GaN составляет ~1 нм, а при прерываниях роста длительностью 80 сек и 160 сек. глубина конвертации практически одинакова и составляет ~2 нм. Таким образом, глубина конвертации слабо увеличивается с ростом длительности прерываний, что может быть объяснено тем, что при испарении атомов индия с поверхности InGaN образуется тонкий слой GaN, который препятствует дальнейшей конвертации InGaN в GaN. Следовательно, данный метод позволяет контролировать толщину слоев GaN не потоками

элементов, а «самоконтролирующимся» процессом конвертации, что позволяет получать сверхтонкие слои сверхрешетки с высокой точностью.

Из изображений ПЭМ ВР следует, что морфология верхнего и нижнего интерфейсов InGaN/GaN/InGaN сильно зависит от длительности прерываний. В случае прерывания длительностью 10 сек. слой GaN является сильно неоднородным, и его толщина изменяется от нуля до ~1 нм. Образец с 80 сек. прерываниями роста демонстрирует хорошую планарность интерфейсов, а в образце с 160 сек. прерываниями резкость интерфейсов опять ухудшается. Ухудшение качества интерфейсов в структуре с длительными прерываниями может быть обусловлено тем, что, несмотря на образование блокирующего конвертацию слоя GaN, происходит диффузия атомов из глубины слоя InGaN на его поверхность, что приводит к частичному образованию InGaN на поверхности.

Были проведены исследования формирования КПСР в широком диапазоне технологических условий [А44]. Для этого изучались структуры, содержащие слой InGaN толщиной ~60 нм, при росте которого производилось 24 прерывания длительностью в различных образцах 0, 5, 10, 20, 80 и 160 сек. Тем самым многократно повторялся сценарий технологического перехода от роста InGaN к росту GaN, приводящий к формированию КПСР. Во время прерываний роста атмосфера в реакторе оставалась постоянной (азотной) или часть потока азота заменялось на водород. В первом случае разложение InGaN происходило только из-за его нестабильности при высокой температуре, во втором случае процесс дополнительно активировался присутствием водорода [53]. Структуры InGaN/GaN формировались при температуре подложки 780°С (высокотемпературная серия) и 755°C (низкотемпературная серия). Условия роста, данные XRD и оптических измерений исследованных структур приведены в табл. 5. Согласно результатам XRD, во всех структурах релаксация механических напряжений отсутствует.

Номер	Температура	Длительность	Атмосфера в	Средний	Длина
	роста, °С	прерывания	реакторе	состав,	волны,
		роста, сек.		%	HM
#1	780 °C	-	-	10.1	412
#2	780 °C	5	$NH_3 + N_2 + H_2$	8	405
#3	780 °C	8	$NH_3 + N_2 + H_2$	6.8	403+436
#4	780 °C	10	$NH_3 + N_2 + H_2$	5.0	403+437
#5	780 °C	20	$NH_3 + N_2 + H_2$	4.0	403+431
#6	780 °C	80	$NH_3 + N_2 + H_2$	3.5	398
#7	780 °C	160	$NH_3 + N_2 + H_2$	2.2	398
#8	780 °C	10	$NH_3 + N_2$	9.7	409
#9	780 °C	80	$NH_3 + N_2$	5.4	404+435
#10	780 °C	160	$NH_3 + N_2$	3.05	398+419
#11	755 °C	-	-	15.8	447+515
#12	755 °C	5	$NH_3 + N_2 + H_2$	13.8	470
#13	755 °C	10	$NH_3 + N_2 + H_2$	7.4	478
#14	755 °C	20	$NH_3 + N_2 + H_2$	4.9	446
#15	755 °C	80	$NH_3 + N_2 + H_2$	2.6	430
#16	755 °C	10	$NH_3 + N_2$	15	440+515
#17	755 °C	80	$NH_3 + N_2$	10.5	515

Таблица 5. Условия формирования структур [А44].

Рис. 37, суммирующий данные табл. 5, демонстрирует, что с увеличением длительности прерываний роста как в безводородной, так и азот-водородной атмосфере, средняя по всему слою InGaN мольная доля InN по данным XRD монотонно снижается [A44]. Однако, следует отметить примерно 8-кратное ускорение этого процесса в присутствии водорода.



Рис. 37. Зависимость средней мольной доли InN в структуре InGaN/GaN от условий технологического процесса. Кружки — температура подложкодержателя 755°C, звездочки — 780°C, заполненные символы — прерывания роста в безводородной атмосфере, незаполненные символы — в присутствии водорода. На вставке — типичная кривая рентгеновской дифракции структуры, выращенной с прерываниями роста [A44].

На рис. 38а представлена эволюция спектров ФЛ структур высокотемпературной серии с прерываниями роста в присутствии водорода [A44].



Рис. 38. Снятые при комнатной температуре спектры ФЛ структур InGaN/GaN, сформированных при температуре 780°С (а, б, в) и 755°С (г, д). Длительности прерываний роста (в секундах) указаны на спектрах. Пунктирными линиями показаны смещения спектрального положения линий люминесценции при изменении условий формирования структуры. а, б, д — прерывания роста в азот-водородной атмосфере. в, г — прерывания роста в безводородной атмосфере [A44].

Основная линия излучения с увеличением длительности прерываний роста в азот-водородной атмосфере монотонно сдвигается в сторону меньших длин волн и уширяется (рис. 38а). Однако этот сдвиг существенно меньше, чем должен был бы быть для однородных по толщине слоев InGaN с Это соответствующим средним содержанием индия. согласуется С полученными выше результатами, показывающими, что снижение среднего содержания индия в InGaN связано с трансформацией очень тонких приповерхностных слоев InGaN в GaN во время прерываний роста, а свойства ФЛ определяются более глубокими областями InGaN, состав которых во время прерываний роста практически не изменяется. При циклически повторяющихся прерываниях роста формируется периодическая структура, что приводит к сверхструктурным осцилляциям на кривых рентгеновской дифракции (SL-1 на вставке на рис. 37), подтверждающими формирование сверхрешеток. Их период составляет 2.1-2.7 нм и уменьшается вместе с содержанием индия в структуре, отражая уменьшение полного количества материала в слое при испарении индия. Однако модель процесса, состоящая в формировании сверхрешеток InGaN/GaN с резкими планарными интерфейсами, некорректно описывает совокупность экспериментальных данных. Во-первых, она не очень хорошо соотносится с данными о среднем составе структур. Например, в рамках такой модели, исходя из длины волны излучения и среднего содержания, толщина КЯ InGaN в структуре #7 должна быть 0.47 нм, что слишком мало для наблюдаемой длины волны. Во-вторых, разница между толщинами слоев InGaN в структурах измерялась бы единицами ангстрем, что не имеет физического смысла. Поэтому, если рассматривать эффективную глубину конвертации не превышающую 1-2 нм, можно сделать вывод, что, реально формируются не вполне планарные и резкие интерфейсы InGaN/GaN, что согласуется с данными ПЭМ ВР (рис. 36).

Для детальных исследований формирующихся КПСР были выращены структуры, в которых количество периодов составляло 6, 30 и 60,

соответственно, причем прерывания роста проводились в азот-водородной атмосфере [А29].

На рис. 39 приведены дифракционные кривые образцов, содержащих InGaN/GaN сверхрешетки в области углов отражения (0002) [A29].



Рис. 39. Дифракционные кривые образцов в области углов отражения (0002). Кривые на рисунках смещены друг относительно друга по вертикали для наглядности [А29].

Положение пика буферного слоя GaN соответствует брегговскому отражению от плоскости (0002) GaN. Дифракционные кривые демонстрируют достаточно интерференционную картину. Слева пика буферного яркую ОТ слоя располагается пик SL0, являющийся центром интерференционной картины. На кривых, полученных от образцов с 30-ю и 60-ю периодами сверхрешетки, присутствуют интерференционные максимумы различной периодичности: осцилляции соответствующие сумме толщин слоев GaN и InGaN (SL-1 и SL+1), а также короткопериодные осцилляции, полученные от всей структуры в целом. На дифракционной кривой для образца В', в котором после роста сверхрешетки был осажден слой GaN толщиной 10 нм, короткопериодные осцилляции осложнены дополнительной модуляцией, связанной с толщиной верхнего слоя GaN, которая больше, чем в остальных образцах. На рис. 39 отчетливо видно

изменение частоты короткопериодных осцилляций в зависимости от количества пар слоев GaN-InGaN в структуре для разных образцов. Подобные дифракционные кривые характерны для периодических структур с хорошо развитым в латеральном направлении интерфейсом. Дифракционная кривая для образца с 6-ю периодами имеет осцилляции только одного периода, соответствующие толщине всей структуры. Интерференционные максимумы SL-1 и SL+1 не проявляются, вероятнее всего, из-за их малой интенсивности.

На рис. 40 приведен характерный пример карт рассеяния рентгеновских лучей в пространстве обратной решетки (КРОО) в области плоскостей (0002) и (11-24) в координатах волновых векторов  $q_x$  и  $q_z$  для образца, содержащем 30-периодную сверхрешетку с осажденным на нее слоем GaN толщиной 10 нм.



Рис. 40. Карта рассеяния рентгеновских лучей в пространстве обратной решетки в области плоскостей (0002) и (11-24), образец В [А29].

На КРОО в области асимметричного отражения от плоскости (11-24) видно, что максимумы рассеяния GaN, SL0 и SL-1 располагаются строго вдоль вектора  $q_z$ , что свидетельствует об отсутствии релаксации в структуре.

B табл. 6 приведены результаты анализа полученных карт И дифракционных кривых. Результаты, полученные разными способами вычисления, совпали в пределах ошибки.

Таблица 6. Результаты исследования выращенных сверхрешеток методом рентгеноструктурного анализа [А29].

Кол-во	$\Delta c/c$ ,	Содержа	Полуширины кривых, град				Толщина	Толщина
периодов	×10 <sup>-3</sup>	ние In ,%	GaN-2мкм		SL0		периода,	периодической
		по SL0	θ	θ-2θ	θ	θ-2θ	HM	структуры, нм
6	5,56	4,5±0,5					2,5±0,1*	15±1
30	8,08	5.0±0.5	0,12	0,01	0,067	0,134	2,1±0,1	63±1
30+GaN	7.32	5.0±0.5			0.061	0,121	2,0±0,1	60±1
60	8.77	5.5±0.5	1		0,067	0,075	2,0±0,1	120±1

Замечание. При моделировании диффракционной кривой для образца А, две модели показали хорошее согласие с экспериментом. В первой модели структура описывалась как 6-периодная КПСР с общей толщиной слоев InGaN/GaN 2.5 нм, а во второй модели структура представляла собой слой InGaN толщиной 15 нм.

Для детального анализа распределения индия внутри периода, а так же для выяснения состояний интерфейсов в исследуемых образцах использовался метод рефлектометрии и были получены карты рассеяния в обратном пространства вблизи нулевого пика (рис. 41).



Рис. 41. Рефлектометрические кривые образцов в области углов отражения (0000) [А29].

Отчетливо видно, что кривые для образцов с 30-ю и 60-ю периодами сверхрешетки чрезвычайно близки и различаются только интенсивностью пика толщинной осцилляции SL1. На кривой для образца, в котором сверхрешетка заращивалась 10 нм слоем GaN, этот пик сильно размыт. На кривой для образца с 6-ю периодами сверхрешетки присутствуют осцилляции связанные со слоем GaN, а доказательства наличия периодичности в структуре отсутствуют. Также как и для дифракционных кривых, для кривых малоуглового рассеяния проводилось построение модельных кривых. Изменяемыми параметрами являлись состав слоев, распределение индия В пределах периода, среднеквадратичное значение амплитуды шероховатости и средняя плотность слоев. Из полученных данных следует, что для всех образцов характерно плавное изменение содержания индия в пределах периода - сначала его концентрация возрастает с 6% до 10-12%, а затем падает практически до нуля. Следовательно, интерфейсы GaN/InGaN являются нерезкими, что согласуется с результатами ПЭМ ВР, приведенными выше. Внутренние интерфейсы КПСР имеют волнообразную шероховатость, некоррелированную в вертикальном направлении.

На GPA изображениях полученных с помощью обработки данных ПЭМ BP наблюдается периодическое изменение контраста, соответствующее формированию сверхрешетки InGaN/GaN (рис. 42). Была проведена оценка двумерного распределения напряжений в слоях InGaN относительно матрицы GaN и, используя закон Вегарда, было получено, что средняя концентрация In в каждом слое InGaN составляет 8-11 %, что хорошо согласуется с данными Видно, InGaN рентгеноструктурного анализа. что слои являются неоднородными – внутри слоев наблюдается формирование локальных Inобогащенных областей, имеющих латеральный размер ~2-4 нм (обозначены стрелками). То есть даже в сверхтонких КЯ InGaN толщиной 1-2 нм наблюдается формирование In-обогащенных областей. Это может быть объяснено тем, что при любом прерывании роста структура стремится перейти к более равновесному состоянию, и возможно даже увеличение флуктуаций
состава в эпитаксиальных слоях InGaN при их высокотемпературном отжиге [54]. Можно предположить, что во время прерываний роста вблизи поверхности за счет миграции атомов также возникают области с более высоким содержанием индия.



Рис. 42. GPA изображения КПСР. Темные полосы – слои InGaN, светлые полосы – слои GaN, пунктирные линии – области смыкания соседних слоев InGaN, стрелки – In-обогащенные области [A29].

Помимо образования In-обогащенных областей в отдельных местах КПСР, наблюдается формирование областей, в которых происходит смыкание соседних слоев InGaN (пунктирные линии на рис. 42). Данный эффект может быть связан, как отмечалось выше, с локальной неоднородностью конвертации InGaN при прерываниях роста. Формирование непланарных интерфейсов может объяснить уменьшение сдвига длины волны ФЛ с увеличением длительности прерываний роста (рис. 38а) за счет локализации возбужденных носителей в локальных областях с большей толщиной и/или большим содержанием индия. Помимо сдвига основной линии ФЛ, в спектрах структур 1-7 (табл. 5), выращенных при промежуточных длительностях прерываний роста, наблюдается вторая линия ФЛ с длиной волны, существенно большей, чем у основной линии слоя InGaN (линия I<sub>2</sub>), выращенного при той же

температуре без прерываний роста. Эволюция спектров ФЛ в этом узком диапазоне длительности прерываний роста представлена на рис. 38 б.

Аналогичное поведение демонстрируют спектры ΦЛ структур, выращенных при той же температуре с прерываниями роста в безводородной атмосфере (рис. 38 в). Однако, в хорошем согласии с представленными на рис. 37 результатами характерные длительности прерываний роста, приводящие к подобным трансформациям спектров ФЛ, оказываются больше, чем при прерываниях роста с добавкой водорода. Например, два пика в спектре ФЛ наблюдаются при длительности прерываний роста 80 сек, а не 10 сек.

Возникновение длинноволновой линии ФЛ не может быть объяснено морфологическими дефектами в InGaN, так как по данным ACM все структуры имеют практически одинаковую морфологию, близкую к атомно-гладкой, с амплитудой шероховатости поверхности порядка одного нанометра. На поверхности наблюдаются также выходы дислокаций, но их плотность практически одинакова для всех структур. Природа этой полосы ФЛ может быть объяснена причинами, рассмотренными выше: образованием локальных областей смыкания соседних КЯ, в которых из-за рассогласования параметров решетки GaN и InGaN возникают пьезополя, приводящие к длинноволновому сдвигу люминесценции (эффект Штарка), или формированием In-обогащенных областей с размерами единицы нанометров (рис. 42). В пользу второй гипотезы свидетельствуют результаты исследования структур низкотемпературной серии (образцы #11-17, табл. 5). Спектры ФЛ этих структур развиваются с увеличением длительности прерываний роста несколько иначе (рис. 38 г, д). Во-первых, в спектре соответствующего сплошного слоя InGaN уже присутствует слабая длинноволновая полоса, которая может быть связана с начавшимся в слое фазовым распадом, приводящей к формированию Inобогащенных областей. Во-вторых, за исключением структуры #12, выращенной с минимальным воздействием прерываний роста, в спектрах ФЛ наблюдается только одна линия. Если предположить, что ее природа совпадает с природой слабой длинноволновой полосы в спектре сплошного слоя InGaN,

то прерывания роста, как и в случае КЯ InGaN, исследованных выше, стимулируют фазовый распад И развитие локализующих центров, эффективность рекомбинации через которые оказывается достаточной для подавления коротковолновой линии ФЛ. При этом, в отличие от структур высокотемпературной серии, для которых прерывания роста различной длительности и наличие водорода практически не влияли на спектральное положение длинноволновой полосы ФЛ, для структур низкотемпературной серии, с большим исходным содержанием индия, присутствие водорода в реакторе во время прерываний роста приводило к коротковолновому сдвигу полосы ФЛ, нараставшему с длительностью прерываний роста. В-третьих, отсутствие прямой взаимосвязи между средним составом и длиной волны излучения в этих структурах иллюстрируется также сравнением свойств структур #15 и #6: структура #15 заметно более длинноволновая, несмотря на меньший средний состав, что свидетельствует о том, что рекомбинация происходит через локализующие центры.

Для детального исследования свойств КПСР были изучены спектры ФЛ 6- и 60-периодных КПСР InGaN/GaN, сформированных с использованием прерываний роста в азот-водородной атмосфере, снятые при различных температурах (рис. 43) [A29]. Линия спектра ФЛ с максимумом при 363 нм (3.413 эВ) соответствует излучению из слоев GaN. Излучению из КПСР InGaN/GaN соответствуют две линии ФЛ: одна линия коротковолновая (I1) с максимумом при ~420 нм (2.95 эВ), другая линия длинноволновая (I2) с максимумом при ~450 нм (2.753 эВ). Положение линии I1 соответствует длине волны излучения твердого раствора  $In_xGa_{1-x}N$  при x=~0,1, что хорошо согласуется с результатами рентгеноструктурного анализа. Длинноволновая линия I2, положение которой не изменяется от числа периодов сверхрешетки, может быть связана с рассмотренными выше центрами локализации. По мере увеличения температуры от 10К до 300К, во всех образцах наблюдалось увеличение интенсивности линии I2, что обусловлено транспортом носителей в сверхрешетке и их релаксацией в локализованные состояния с большей

энергией. Таким образом, при комнатной температуре оптические свойства таких КПСР определяются рекомбинацией через локализованные состояния.



Рис. 43. Спектры ФЛ полученные при различных температурах для структуры с 6- (а) и 60-периодами (б) (спектры сдвинуты по оси ординат) [А29].

На рис. 44 приведены зависимости спектров излучения исследованных образцов от плотности возбуждения при низкой температуре [А29]. Для КПСР образца с 6-периодной при малых плотностях возбуждения доминирующими являются линия, связанная с излучением GaN матрицы (3,495 эВ), и линия BL (3,304 эВ), которая обусловлена излучением различных точечных дефектов в GaN [55, 56]. Линии BL соответствуют два фононных повторения (на рисунке обозначены как 1LO, 2 LO), отстоящих на 92мэВ и 184 мэВ от основного пика. С увеличением накачки в спектре появляется линия SL, которая связана с рекомбинацией в сверхрешетке. В спектре образца с 60-

периодной КПСР при всех плотностях возбуждения излучение GaN матрицы отсутствует.



Рис. 44. Спектры ФЛ полученные при различной плотности оптической накачки, T=10K, для структуры с 6-ю (а) и 60-периодами (б) [А29].

При низких плотностях возбуждения на спектрах наблюдается длинноволновое плечо, связанное с линией I2, и соответствующее излучению из локализованных состояний. По мере увеличения плотности возбуждения линия I2 насыщается, а линия I1 смещается в область меньших длин волн, что связано с постепенным насыщением локализованных состояний сверхрешетки.

Таким образом, проведенные исследования показали, что периодические прерывания при росте толстых слоев InGaN за счет конвертации InGaN в GaN позволяют формировать КПСР InGaN/GaN с толщинами слоев около 1 нм, имеющие непланарные интерфейсы. Использование азот-водородной атмосферы при прерываниях роста ускоряют процесс такой конвертации. КПСР представляют собой хорошо сформированные периодические структуры, обладающие высоким структурным совершенством, сложным градиентным

распределением индия внутри периода и образованием локальных Inобогащенных областей.

## 2.2. Субмонослойные InGaN/GaN гетероструктуры.

Субмонослойный рост КЯ был продемонстрирован для различных гетероструктур на основе A3B5 [57, 58, 59, 60] и A2B6 [61] материалов. При использовании этого метода роста, КЯ узкозонного материала формируется путем нескольких циклов осаждения слоев узкозонного и широкозонного материала, например, InAs-GaAs или InGaN-GaN, при этом эффективная толщина слоев в каждом цикле составляет менее одного монослоя (МС). С использованием данной технологии были сформированы InGaAs KT [58] и получены на их основе мощные лазеры [62, 63]. Формирование КТ InGaAs основано на том, что при субмонослойном осаждении распределение атомов индия неоднородно по поверхности и происходит образование островков InGaAs высотой около одного монослоя. При нескольких циклах осаждения InGaAs-GaAs положения островков, формирующихся в каждом цикле осаждения, являются вертикально коррелированными, что приводит к образованию КТ. Поскольку при росте увеличению их размеров И гетероструктур в системе материалов InGaN-GaN неоднородное распределение атомов индия сильно выражено даже при малых составах можно ожидать, что субмонослойный метод роста будет применим для создания локальных Inобогащенных областей и в этой системе материалов. Похожим методом роста КЯ InGaN является атомно-слоевая эпитаксия, которая интенсивно изучалась различными авторами [64, 65], но в отличие от атомно-слоевой эпитаксии, при которой элементы III и V групп подаются в разные промежутки времени, при субмонослойном росте элементы III и V групп подаются одновременно.

Концепция субмонослойного роста интересна, в первую очередь, с точки зрения ее применимости для роста КЯ InGaN с малым содержанием индия, излучающих в УФ области. Ниже приведены результаты исследований субмонослойного роста гетероструктур с КЯ InGaN в матрице (Al,Ga)N [A25,

A40]. Необходимо отметить, что каждый слой InGaN или GaN толщиной менее одного MC (субмонослой) нельзя рассматривать как осаждение отдельного слоя, поскольку эффективные толщины таких отдельных вставок InGaN и GaN очень малы. Таким образом, рассматривая свойства KЯ InGaN, выращенных таким методом, можно только говорить о свойствах KЯ InGaN в целом.

На вставке к рис. 45 приведено схематическое изображение исследованных структур, которые содержали пять КЯ InGaN, разделенных барьерами Al<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>N толщиной 8 нм.



Рис. 45. Спектры ФЛ КЯ InGaN толщиной 3 нм, выращенной при температуре роста 790°С без применения метода субмонослойного осаждения (1) и КЯ InGaN выращенных путем осаждения пяти субмонослоев InGaN толщиной 0.5 MC (2, 3, 4) и 0.25 MC (5) при температурах роста 790°С (2), 710°С (3) и 650°С (4, 5). Толщины барьеров GaN между субмонослоями InGaN составляли 1.2 MC и 1.5 MC для субмонослоев InGaN толщиной 0.5 MC и 0.25 MC, соответственно. На вставке - схематическое изображение исследованных структур [A40].

Каждая КЯ InGaN выращивалась с помощью пяти циклов осаждения InGaN субмонослоев, разделенных барьерами GaN. После каждого субмонослойного цикла осаждения InGaN в атмосфере азота проводилось прерывание роста с подачей в атмосферу реактора потока водорода, который варьировался в диапазоне ~150-200 см<sup>3</sup>/мин. Поскольку энергия локализации носителей в исследованных субмонослойных структурах была мала, то использование матрицы AlGaN между КЯ позволило увеличить высоту барьеров и повысить эффективность излучения. Так как содержание Al в барьерах и индия в КЯ InGaN невелико, то изменение упругих напряжений на гетерогранице AlGaN/InGaN, не оказывает значительного влияния на процессы фазового распада в InGaN, аналогично тому, как это, например, наблюдалось в случае InAs квантовых точек в GaAs и AlGaAs [66]. В качестве стандартного был использован образец с КЯ InGaN толщиной 3 нм, выращенной в обычном (непрерывном) режиме. Описание исследованных образцов приведено в табл. 7.

N⁰	d <sub>InGaN</sub> , MC	d <sub>GaN</sub> , MC	n	T <sub>gr</sub> , <sup>o</sup> C	H <sub>2</sub> (GI),
					см <sup>3</sup> /мин
A1	10	-	-	790	-
A2	0.5	1.2	5	790	150
A3	0.5	1.2	5	710	150
A4	0.5	1.2	5	650	150
A5	0.25	1.5	5	650	150
A6	0.5	1.2	5	650	200

Таблица 7. Условия роста субмонослойных КЯ InGaN [A40].

№ - номер образца (соответствует номеру спектра ФЛ на Рис. 45). Т<sub>gr</sub> – температуры роста InGaN и GaN.  $d_{InGaN}$  и  $d_{GaN}$ – толщины слоев InGaN и GaN. n – число субмонослойных циклов осаждения InGaN-GaN, H<sub>2</sub> (GI) – поток водорода при прерывании роста.

На рис. 45 приведены спектры излучения образцов, выращенных с и без применения метода субмонослойного роста. Видно, что при температурах роста InGaN 710°C и 790°C в спектрах наблюдается одна линия L1 и применение субмонослойного роста не приводит к значительному изменению формы линии излучения. Субмонослойный рост InGaN при 710°C вызывает длинноволновый сдвиг линии L1 относительно излучения образца, выращенного при 790°C, что обусловлено увеличением среднего содержания индия в КЯ. Возникновение плеча на длинноволновом краю спектра, связано с формированием центров локализации. Рентгеноструктурный анализ показал, что осаждение пяти субмонослоев InGaN толщиной 0.5 MC, разделенных барьерами GaN толщиной 1.2 MC, при температуре 710°C приводит к уменьшению среднего содержания индия по сравнению с образцом, выращенным при той же температуре без применения субмонослойного роста, более чем в два раза (с 7-8% до 3-4%).

Понижение температуры роста до 650°С вызывает появление в спектрах, кроме коротковолновой линии (L1), выраженной длинноволновой линии излучения (L2). Это свидетельствует об увеличении неоднородности распределения атомов индия и об образовании в КЯ InGaN In-обогащенных островков, с которыми связана линия L2. Интересным является тот факт, что уменьшение толщины субмонослоев InGaN до 0.25 МС приводит к увеличению интенсивности линии L2 относительно коротковолновой линии L1, что, как будет показано далее, свидетельствует об увеличении роли In-обогащенных областей в процессах рекомбинации.

Формирование островков подтверждается результатами исследований ACM, демонстрирующими изменение топографии поверхности при уменьшении температуры роста InGaN [A25] (рис. 46). Для образца, выращенного при температуре 650°С (рис. 46 а), наблюдается однородный массив плотноупакованных островков одинакового размера. Из статистической обработки полученных изображений можно сделать вывод, что характерные латеральные размеры островков без учета конволюции изображения (то есть

влияния формы зонда) составляют 20-30 нм, а плотность островков составляет  $\sim 3.5 \times 10^9$  см<sup>-2</sup>.



Рис. 46. ACM-изображение (сверху) площади  $1 \times 1$  мкм образца, выращенного при температуре  $T_{gr}$ =650°C (а)  $T_{gr}$ =730°C (б), и профиль поверхности в указанном месте (снизу) [A25].

На рис. 46 б показана морфология образца, выращенного при температуре 730°С. Видно начало процесса формирования островков InGaN с характерным латеральным размером более 50 нм при сохранении высоты рельефа на прежнем уровне. Таким образом, при увеличении температуры осуществляется переход от формирования однородного массива отдельных островков к образованию более сложных структур большей размерности.

На рис. 47 показаны изображения ПЭМ ВР в геометрии поперечного сечения образцов А5 и А6.



Рис. 47. Изображения ПЭМ в геометрии поперечного сечения образцов A6 (а) и A5 (б). Стрелками обозначение In-обогащенные области в КЯ InGaN [A40].

Несмотря на низкий контраст, обусловленный малым содержанием индия, из приведенных изображений видно, что распределение атомов индия в КЯ InGaN является неоднородным и наблюдается формирование In-обогащенных островков. При этом, неоднородность в распределении индия лучше выражена в образце с субмонослойными внедрениями толщиной 0.25 MC (A6), что хорошо согласуется с данными оптических исследований. Из-за низкого контраста между InGaN и  $Al_{0.1}Ga_{0.9}N$  точное определение размеров островков затруднено. Фурье-обработка изображения для образца с субмонослоями InGaN толщиной 0.5 MC позволила оценить латеральные размеры островков ~5-8 нм и высоту ~3-4 нм.

В исследованных образцах при субмонослойном росте InGaN после каждого цикла осаждения InGaN в атмосфере азота проводилось прерывание роста с подачей в атмосферу реактора водорода. Исследования с помощью рентгеноструктурного анализа показали, что эти прерывания роста приводят к уменьшению содержания индия от 4% до 2-3%. Увеличение потока водорода во время прерываний со 150 до 200 см<sup>3</sup>/мин вызывает коротковолновое смещение линии излучения (рис. 48), что обусловлено эффектом уменьшения содержания индия в КЯ InGaN.



Рис. 48. Спектры ФЛ структур А4 и А6, выращенных с различными потоками водорода при прерываниях роста [А40].

Но, что более интересно, при увеличении потока водорода интенсивность длинноволновой линии излучения относительно коротковолновой растет, что указывает на увеличение неоднородности в распределении атомов индия при увеличении содержания водорода, что согласуется с эффектом влияния водорода на стимулирование формирования In-обогащенных областей.

Метод субмонослойного роста, использующий прерывания роста в азотводородной атмосфере, может быть использован для более сложной модификации структурных свойств КЯ InGaN с помощью изменения дизайна гетероструктуры. Если предположить, что образование островков происходит уже при первом цикле субмонослойного осаждения InGaN то, изменяя

эффективные толщины субмонослоев InGaN, барьеров GaN, температуру роста субмонослойной КЯ, можно влиять на формирование In-обогащенных островков и их оптические свойства. Для данных исследований была выращена серия структур с «комбинированными» субмонослойными КЯ InGaN (табл. 8).

Таблица 8. Условия роста «комбинированных» субмонослойных КЯ InGaN [A40].

N⁰	$T_{gr}^{1}$ ,	$T_{gr}^{2}$ ,	$d_{InGaN}^{1}$ ,	$d_{GaN}^{1}$ ,	n	$d_{InGaN}^{2}$ ,	$d_{GaN}^{2}$ ,	
	°C	°C	MC	MC		MC	MC	
B1	650	650	0.25	1.5	4	0.25	1.5	
B2	650	730	0.25	4.8	4	0.25	1.2	AlGaN
B3	680	730	0.5	4.8	4	0.5	1.2	
B4	680	750	0.25	4.8	4	0.25	1.2	
B5	680	730	0.25	4.8	2	0.25	1.2	InGaN <sup>1</sup> InGaN <sup>2</sup>
B6	680	730	0.5	4.8	2	0.25	1.2	

№ - номер образца (соответствует номеру спектра ФЛ на Рис. 49).  $T_{gr}^{1, 2}$  – температуры роста InGaN<sup>1</sup>, GaN<sup>1</sup> и InGaN<sup>2</sup>, GaN<sup>2</sup>, соответственно.  $d_{InGaN}^{1, 2}$  – толщины слоев InGaN<sup>1</sup> и InGaN<sup>2</sup>.  $d_{GaN}^{1, 2}$  – толщины слоев GaN<sup>1</sup> и GaN<sup>2</sup>. n – число субмонослойных циклов осаждения InGaN-GaN.

В этих структурах после осаждения первого слоя InGaN толщиной 0.25 или 0.5 MC, выращивался относительно толстый барьер GaN (толщиной 4.8 MC), а затем проводилось несколько субмонослойных циклов осаждения InGaN-GaN, в которых эффективная толщина GaN составляла 1.2 MC (рисунок в таблице 8).

В образце B1 все циклы субмонослойного осаждения InGaN-GaN были проведены с одинаковыми эффективными толщинами InGaN и GaN (0.25 и 1.5 MC, соответственно) и этот образец является стандартным для последующего сравнения структур. На рис. 49 а приведены спектры ФЛ

образцов, для которых изменялись температуры роста в первом и четырех последующих субмонослойных циклах осаждения InGaN-GaN.



Рис. 49. Спектры ФЛ «комбинированных» субмонослойных КЯ InGaN [A40].

Необходимо отметить, что температура BO время роста верхних субмонослойных циклов осаждения была выбрана равной не менее 730°С. При этой температуре в образцах, имеющих дизайн аналогичный стандартному образцу, образования островков, с которыми связана линия L2 (рис. 45), не наблюдается. Появление линии L2 в спектрах образцов B2-B3 свидетельствует о формировании в этих образцах In-обогащенных островков и позволяет сделать вывод, что их образование стимулируется островками (стрессорами), формирующимися в течение первого субмонослойного цикла осаждения InGaN. Коротковолновое смещение линий L1 и L2 в структуре B2 по сравнению с образцом В1 обусловлено изменением дизайна структуры и технологических Увеличение условий роста. температуры первого субмонослойного осаждения InGaN с 650°С до 680°С при одновременном увеличении эффективной толщины InGaN в каждом цикле субмонослойного осаждения до 0.5 МС приводит к уменьшению энергетического расстояния между линиями L1 и L2, что свидетельствует об уменьшении степени неоднородности в распределении атомов In. Последующее увеличение

температуры роста верхних субмонослоев InGaN до 750°С приводит к практически полному исчезновению линии L2, сужению спектра излучения, что связано с однородным распределением атомов индия при высоких температурах роста. Уменьшение числа циклов субмонослойного осаждения InGaN с 4 до 2 вызывает коротковолновый сдвиг линии излучения L1, связанный с уменьшением толщины КЯ InGaN, и линии L2 (Рис. 38 б), что обусловлено уменьшением размеров островков и/или содержания в них атомов индия. С другой стороны, увеличение толщины первого субмонослоя InGaN до 0.5 MC вызывает длинноволновый сдвиг линии L2 и увеличение ее интенсивности, что прямо указывает на то, что формирование островков стимулируется осаждением первого субмонослоя InGaN. Осаждение верхних субмонослоев при этом может привести к увеличению размеров островков за счет стимулированной фазового распада. Положение линии L1 практически не изменяется при увеличении эффективной толщины InGaN в первом цикле субмонослойного осаждения, что позволяет сделать вывод, что данная полоса обусловлена рекомбинацией в КЯ InGaN, формирующейся при четырех верхних циклах субмонослойного осаждения.

Таким образом, проведенные исследования показывают, что формирование In-обогащенных областей в КЯ InGaN наблюдается даже при осаждении InGaN с эффективной толщиной менее одного монослоя. При росте тонких КЯ InGaN (толщиной ~3 нм) с помощью субмонослойного осаждения свойства определяются не только технологическими ИХ структурные условиями, но и дизайном структуры (количеством и эффективной толщиной субмонослоев и барьерами между ними).

### 2.3. Влияние материала матрицы на свойства КЯ InGaN.

#### 2.3.1. КЯ In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N в матрице In<sub>y</sub>Ga<sub>1-y</sub>N.

Были проведены исследования КЯ  $In_xGa_{1-x}N$  зарощенных слоями  $In_yGa_{1-y}N$ , имеющими меньшее содержание индия [A14, A17, A18, A19]. В таких  $In_xGa_{1-x}N/In_yGa_{1-y}N$  (x>y) гетероструктурах можно ожидать, во-первых, увеличения

энергии локализации носителей относительно состояний материала матрицы за счет изменения свойств In-обогащенных областей и, во-вторых, изменения транспорта носителей. Поскольку, в исследуемых КЯ InGaN существует как непрерывный спектр состояний, так И локализованные состояния, то InGaN заращивание КЯ слоем может привести как увеличению К энергетического расстояния между локализованными состояниями И непрерывным спектром, так и к его уменьшению.

На рис. 50 приведены изображения КЯ InGaN с содержанием индия 8%, которая была зарощена в разных образцах слоем GaN или InGaN с содержанием индия 4% [A17].



Рис. 50. Изображения ПЭМ  $In_xGa_{1-x}N/In_yGa_{1-y}N$  гетероструктур с КЯ, зарощенной слоем GaN (a) и  $In_{0.04}Ga_{0.96}N$  (б) [A17].

Из сравнения полученных изображений даже без специальной обработки видно более неоднородное распределение индия в структуре с КЯ, зарощенной низкосоставным слоем InGaN.

На рис. 51 показаны экспериментальные и расчетные спектры ФЛ, полученные из спектров фототока (ФТ) при помощи соотношения между спектральной зависимостью коэффициента поглощения и спектром спонтанного излучения [67]  $Ir(E) = \text{const} \times \alpha(E) \times E^2 \times \exp(-E/k_BT)$ . Здесь Ir(E) -

спектральная зависимость скорости излучательной рекомбинации, а α(E) — спектральная зависимость вероятности поглощения света при прохождении через КЯ.



Рис. 51. Сравнение экспериментальных спектров ФЛ со спектрами, полученными из спектров ФТ, для структур с InGaN КЯ, зарощенными InGaN меньшего состава (а) или GaN (б). 1 — эксперимент, 2 — расчет. Т = 300 К. [A19]

Для случая структуры InGaN/GaN наблюдается небольшое различие между экспериментальным спектром излучения и расчетными кривыми (расстояние между максимумами ~15мэВ), как это видно из рис. 51 б. В то же время, для

структуры In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/In<sub>y</sub>Ga<sub>1-y</sub>N различие значительно более сильное (рис. 51a) разница между максимумами составляет 50мэВ. Такое поведение можно объяснить более неоднородным распределением индия в структурах In<sub>x</sub>Ga<sub>1-</sub> <sub>x</sub>N/In<sub>y</sub>Ga<sub>1-y</sub>N, обуславливающим большую энергию локализации. При этом, чем больше энергия локализации, тем более высокие температуры нужны для достижения квазиравновесной заселенности. Для рассматриваемой структуры  $In_xGa_{1-x}N/In_yGa_{1-y}N$  (y=0.04), квазиравновесный случай при резонансном возбуждении наблюдался лишь при температуре ~600 К, в то время как для структуры InGaN/GaN квазиравновесный случаи наблюдается уже при комнатной температуре [A16, A17]. Кроме того, для структур In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/In<sub>y</sub>Ga<sub>1-</sub> <sub>v</sub>N, выявлено формирование мезоскопических In-обогащенных областей, имеющих размеры порядка микрона [A14]. В результате этого излучение при протекании тока возникает не равномерно по всей структуре, а в отдельных выделенных областях. Максимум излучения соответствует излучению, усредненному по всем таким областям, которые в общем случае излучают на разных длинах волн.

На рис. 52 приведены зависимости положения максимума излучения от энергии возбуждающего света для образцов, содержащих 5 КЯ InGaN (толщиной ~3 нм), разделенных барьерами GaN (толщиной ~7 нм), зарощенных либо GaN (образцы A2-A4), либо тонким слоем InGaN меньшего состава (4%) с использованием прерываний роста (образец A1). В образцах A2-A4 при росте КЯ изменялось давление роста (200, 350 и 500 мбар), а прерываний роста после осаждения InGaN не было. Это приводило к формированию сплошных КЯ, без образования изолированных островков с размерами несколько десятков нанометров. Как видно, изменение давления приводило к изменению энергии оптических переходов, что соответствует результатам, приведенным в разделе 1.2, однако, а зависимость энергии излучения от энергии возбуждающего света практически отсутствует. Это свидетельствует о том, что в этих структурах существует латеральный транспорт носителей, обеспечивающий их релаксацию в состояние с минимальной энергией, что характерно для КЯ. Данные

результаты согласуются с приведенными выше исследованиями, которые показали, что увеличение давления само по себе без прерываний роста не приводит к трансформации КЯ в массив островков. В структуре A1, с InGaN КЯ, зарощенной низкосоставным InGaN наблюдается сильная зависимость энергии оптического перехода от энергии возбуждающего света, что свидетельствует о том, что электроны и дырки рождаются на локализованных уровнях и их энергия ниже энергии непрерывного спектра, т.е. происходит формирование In-обогащенных областей.



Рис. 52. Положение максимума интенсивности ФЛ КЯ InGaN в матрице GaN (структуры A2—A4) и в матрице InGaN (структура A1) в зависимости от энергии возбуждающего фотона [A18].

Следует также отметить, что структура A1 обладает значительно большей интенсивностью излучения при малых уровнях накачки (примерно на порядок), нежели структуры с меньшими энергиями активации. Это можно объяснить подавлением транспорта носителей в таких структурах, что связано с сильной локализацией носителей.

Были проведены исследования оптических свойств КЯ In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N, имеющих различные длины волн излучения (структуры B1 и B2), выращенных в матрице In<sub>y</sub>Ga<sub>1-y</sub>N (т.е. КЯ осаждалась внутри слоя InGaN меньшего состава

(~4%)). Спектры ФЛ структур Bl и B2 представлены на рис. 53. Как видно из этого рисунка, изменение положения максимума при изменении энергии возбуждающего света наблюдается для обеих структур, что позволяет сделать вывод, что формирование In-обогащенных областей происходит и при использовании матрицы InGaN.



Рис. 53. Положение максимума интенсивности ФЛ для структур с КЯ InGaN в матрице InGaN меньшего состава [A18].

Для изучения свойств локальных In-обогащенных областей в In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/In<sub>y</sub>Ga<sub>1-</sub> <sub>v</sub>N гетероструктурах были проведены исследования их оптических свойств методами микро-ФЛ и ФЛ ближнего поля в магнитном поле [А17, 68]. Спектры возбуждались лазером с длиной волны возбуждения 351 нм. На рис. 54 приведены спектры ФЛ КЯ InGaN, зарощенных слоем InGaN меньшего состава или слоем GaN, снятые с локальным пространственным разрешением 100 нм, 300 нм и 2 µм. Видно, что при уменьшении пространственного разрешения до 300 нм, на сплошном спектре появляются узкие линии, соответствующие излучению отдельных In-обогащенных областей нанометрового размера, т.е. КТ (рис. 42 а). На вставке к рис. 546 приведены зависимость положения линии ФЛ одиночной КТ от магнитного поля и спектр излучения одиночной КТ, снятый без магнитного поля и при приложении внешнего магнитного 9 Т КЯ. Обнаружено, перпендикулярно плоскости что для узких линий диамагнитный сдвиг излучения в диапазоне полей 0-9 Т очень слаб (вставка на рис. 42 б), что свидетельствует о сильной локализации носителей, что подтверждает вывод, что эти линии связаны с излучением отдельных In-

обогащенных КТ. Анализ спектров, снятых при различных плотностях возбуждения, позволил выявить в спектрах наличие кроме узких линии CO1 и CO2, связанных с излучением отдельных КТ [69], дополнительных широких линий излучения (обозначенных на рис. 54 в как линии A01, B01 и B02).



Рис. 54. Спектры ФЛ структур, содержащих одну и пять КЯ  $In_xGa_{1-x}N$  в GaN и  $In_yGa_{1-y}N$  матрице, снятые с пространственным разрешением 300 нм и 2 µm (а) и 100 нм (б). Спекты ФЛ ближнего поля, снятые с пространственным разрешением 100 нм и со спектральным разрешением 0.6 мэВ (в) [A17, 68].

Из измерений диамагнитного сдвига следует, что линии В и С могут быть приписаны излучению In-обогащенных областей, имеющих размеры ~3 нм и

~30 нм. Полоса А может быть связана с неразрешившимся излучением Inобогащенных областей. На вставке к рис. 54 в приведены карты ФЛ ближнего поля, записанной при сканировании зонда в пределах 600 нм при температурах 30 и 90 К. Из данных карт следует, что линия излучения А обусловлена локальными областями размером ~100 нм и плотностью ~5×10<sup>8</sup> см<sup>-2</sup>. Таким образом, полученные результаты согласуются с приведенными выше данными ПЭМ ВР, свидетельствующими о том, что в зависимости от режимов эпитаксиального роста в КЯ InGaN могут формироваться двумерные области размером в десятки нанометров, содержащие в себе In-обогащенные размером единицы нанометров.

# 2.3.2. КЯ InGa<sub>x</sub>N в матрице AlGaN.

Осаждение КЯ InGaN в матрицу AlGaN позволяет улучшить локализацию носителей относительно состояний матрицы за счет увеличения высоты потенциального барьера между InGaN и AlGaN (рис. 55).



Рис. 55. Схематическое изображение зонной структуры исследованных гетероструктур с КЯ InGaN в AlGaN и GaN матрицах: а) — высокое содержание индия, матрица GaN, носители сильно локализованы; б) — уменьшение содержания индия приводит к уменьшению локализации и выбросу носителей в матрицу GaN; в) — использование матрицы AlGaN позволяет увеличить глубину локализации, сохраняя энергию излучаемого фотона.  $E_1$ ,  $E_2$ ,  $E_3$  — энергии локализации носителей,  $\hbar\omega_1$ ,  $\hbar\omega_2$  — энергии излучаемых фотонов [A21].

При этом, как будет показано ниже, использование матрицы AlGaN приводит к модификации распределения атомов индия внутри КЯ InGaN [A20, A21, A22].

Были исследованы структурные и оптические свойства КЯ InGaN в широкозонной матрице AlGaN, излучающих в ультрафиолетовом диапазоне длин волн 380-410 нм, в которых при использовании матрицы GaN локализация носителей слабая [A21]. Последовательность слоев и зонная диаграмма исследованных структур показаны на рис. 56. Активная область состояла из 5 КЯ InGaN, разделенных барьерами GaN или AlGaN, причем нижняя КЯ InGaN осаждалась при более низкой температуре и имела большее содержание индия по сравнению с последующими КЯ. Нижняя КЯ InGaN в светодиодных структурах играет роль слоя контроля напряжений [70] и не оказывает влияния на положение спектров излучения.



Рис. 56. Последовательность слоев в исследованных структурах и зонные диаграммы структур с матрицей GaN и AlGaN [A21].

В случае формирования в КЯ InGaN In-обогащенных областей, имеющих сильную локализацию носителей, изменение ширины запрещенной зоны матрицы не должно приводить к сильной зависимости энергии оптического перехода и смещению линии излучения. С другой стороны, благодаря увеличению ширины запрещенной зоны матрицы удается достичь большего значения разрыва зон на гетерогранице, и тем самым увеличить локализацию носителей относительно матрицы.

На рис. 57а представлено изображение светодиодной структуры, полученное с помощью ПЭМ. На нем хорошо разрешаются КЯ InGaN/GaN в активной области и блокирующий слой AlGaN.



Рис. 57. Изображения ПЭМ исследованной структуры (а, б) и изображения ПЭМ ВР КЯ InGaN/AlGaN (в) [A20, A21].

На подробном изображении активной области (рис. 576) видны области, имеющие темный контраст и обусловленные образованием нанометровых Inобогащенных областей. ПЭМ ВР (рис. 57 в) позволила определить латеральные размеры этих областей, которые составляют 3-4 нм.

Спектры ФЛ (рис. 58) содержат две линии, связанные с излучением верхних КЯ с меньшим содержанием индия (УФ пик) и нижней КЯ с большим содержанием индия (синий пик). Из спектров ФЛ следует, что, несмотря на осаждение InGaN в широкозонную матрицу, сдвига линии ФЛ не произошло, чо свидетельствует об очень сильной локализации носителей.



Рис. 58. Спектры ФЛ при T = 300 К структур с матрицей GaN (1) и AlGaN (2). [A21]

Были исследованы температурные зависимости интенсивности ФЛ в диапазоне температур T= 120—300 К, приведенные на рис. 59. Из данного рисунка видно, что между структурами с КЯ InGaN в матрицах GaN и AlGaN качественных различий в поведении зависимости интенсивности ФЛ от температуры для синего пика, связанного с излучением нижней КЯ InGaN, выращенной при низкой температуре, не наблюдается. Однако, для КЯ в матрице GaN резкое падение интенсивности линии, лежащей в ультрафиолетовой области, происходит уже при 200 К, в то время как для КЯ в

матрице AlGaN падения интенсивности УФ линии не наблюдается вплоть до 300 К.



Рис. 59. Температурные зависимости интенсивности УФ (1) и синего (2) пиков  $\Phi$ Л, в диапазоне T = 120—300 К для КЯ InGaN в матрице GaN (a) и AlGaN (б) [A21].

Оценки энергии активации для этой линии дают значения ~250 мэВ для КЯ в матрице AlGaN и ~180 мэВ для КЯ в матрице GaN, что хорошо согласуется со значением разрыва зон на гетерогранице. На рис. 60 показаны температурные зависимости ширин линий излучения для структур обоих типов.



Рис. 60. Температурные зависимости ширины линии излучения для КЯ InGaN в матрице GaN (a) и AlGaN (б) [A21].

Видно, что в случае структуры с матрицей GaN резкое уширение линии ФЛ, связанное с выбросом носителей в матрицу, начинается при температуре ~240К, в то время как для структуры с матрицей AlGaN, ширина линии ФЛ начинает увеличиваться лишь при T≈270 К. Большая температура, при которой начинается уширение линии, для структуры с барьерами AlGaN, таким образом, также согласуется с увеличением энергии локализации в таких структурах.

На рис. 61 приведены зависимости ВКЭ излучения от тока для структур с КЯ InGaN в GaN и AlGaN матрицах.



Рис. 61. Зависимость ВКЭ от тока для структур с матрицей GaN (1) и AlGaN (2) [A21].

Из данных зависимостей видно, что при малых токах, большее значение ВКЭ наблюдается для структуры с GaN матрицей, что обусловлено, по-видимому, меньшим количеством дефектов в этом образце. Однако, при увеличении тока более ~100 мА ВКЭ излучения активной области на основе КЯ InGaN в матрице AlGaN оказывается больше, что обусловлено лучшей локализацией носителей и меньшим выбросом носителей.

Рассмотрим КЯ InGaN с большим содержанием индия, излучающие в области спектра около 510-530 нм, в матрицах AlGaN и GaN [A22]. Была выращена серия структур, дизайн которых представлен на рис. 62.



Рис. 62. Схемы исследованных структур: а — с матрицей GaN, структуры типа A; б — с матрицей AlGaN, структуры типа B [A22].

Среднее содержание индия в верхней КЯ InGaN было больше, чем в нижних КЯ, и эта КЯ располагалась либо в матрице GaN (структуры типа A), либо AlGaN (структуры типа В). Нижние КЯ InGaN для обоих типов структур выращивались при идентичных условиях в матрице GaN. Спектры ФЛ этих 20-300 К структур температурах представлены на рис. 63. при Длинноволновая полоса в структурах обоих типов связана с излучательной рекомбинацией в верхней КЯ InGaN, коротковолновая — с рекомбинацией в остальных четырех КЯ InGaN. Температурные зависимости ФЛ исследованных образцов не выявили значительного различия в изменении формы линии излучения или в зависимости положения максимума от температуры. Для обеих структур характерно наличие длинноволнового плеча в спектрах ФЛ, что свидетельствует значительной пространственной неоднородности 0 В

распределении In в КЯ InGaN, но заметного различия в температурной зависимости этого плеча для двух образцов также не наблюдается.



Рис. 63. Спектры фотолюминесценции структур A (а) и B (б), измеренные в диапазоне температур 20–300 К [A22].

Однако, для образца, в котором верхняя КЯ InGaN была осаждена в матрице AlGaN, наблюдается длинноволновое смещение линии излучения, которое составляет ~25-30 мэВ.

Для исследования влияния заращивания КЯ InGaN слоем AlGaN на положение линии излучения, были выращены структуры, в которых КЯ, осажденная на GaN, заращивалась либо тонким (~1нм), либо толстым слоем  $Al_{0.1}Ga_{0.9}N$ . Даже в случае осаждения тонкого слоя  $Al_{0.1}Ga_{0.9}N$  наблюдался сдвиг линии в область меньших энергий фотонов (~5-20 эВ в зависимости от условий роста). При заращивании толстым слоем  $Al_{0.1}Ga_{0.9}N$  этот сдвиг увеличивался до ~30 мэВ. По-видимому, влияние матрицы AlGaN на свойства КЯ InGaN можно объяснить совместным действием следующих эффектов. Во-первых, в структуре InGaN/AlGaN происходит изменение встроенных электрических полей, приводящих к уменьшению энергии оптического перехода [71, 72, 73, 74, 75]. Во-вторых, при заращивании InGaN слоем AlGaN может происходить

модификация свойств In-обогащенных областей в КЯ, которая обусловлена уменьшением испарения индия или подавлением диффузии атомов индия. Подобный эффект наблюдался для КТ InAs при заращивании их AlAs [76].

Для подробного изучения свойств In-обогащенных областей в InGaN/AlGaN гетероструктурах были проведены исследования зависимости положения максимума спектра ФЛ от энергии фотонов возбуждающего света при температуре 77К (рис. 64).



Рис. 64. Зависимости положения максимума ФЛ при 77К от длины волны возбуждающего света для двух типов структур: *1* — КЯ InGaN в матрице GaN, *2* — КЯ InGaN в матрице AlGaN [A22].

Видно, что для КЯ InGaN в матрице AlGaN положение максимума ФЛ с изменением энергии возбуждения изменяется значительно слабее, чем для структуры с матрицей GaN. Как уже обсуждалось выше для случая КЯ InGaN в матрице InGaN, сдвиг положения максимума ФЛ при изменении энергии возбуждения вызван тем, что носители, родившиеся внутри In-обогащенных областей, не успевают статистически распределиться по всему ансамблю таких состояний из-за сильной локализации. Чем сильнее изменение положения максимума ФЛ с изменением энергии возбуждения, тем больше

неоднородность в локализации носителей в In-обогащенных областях. Поэтому, меньший сдвиг максимума ФЛ, который наблюдается для КЯ InGaN/AlGaN с относительно высоким содержанием индия, излучающих в зеленой области спектра, свидетельствует о меньшей степени локализации носителей в In-обогащенных областях в таких КЯ.

### 2.4. Композитные InAlN/InGaN гетероструктуры.

Выше было показано, что помимо влияния технологических условий роста на структурные свойства KЯ InGaN, большое значение имеет дизайн структуры, т.е. последовательность слоев в ней, которая, например, в случаях субмонослойного роста или  $In_xGa_{I-x}N/In_yGa_{I-y}N$  (InGaN/AlGaN) структур приводит к модификации структурных свойств КЯ InGaN.

В данном разделе представлены результаты исследований in-situ стимулирования формирования In-обогащенных областей в КЯ InGaN путем роста композитных InAlN/InGaN структур, в которых тонкий напряженный слой **УЗКОЗОННОГО** материала осаждается на поверхность стрессоров, сформированных с использованием широкозонного материала (рис. 65) [А31, А41]. За счет неоднородных упругих напряжений, создаваемых массивом широкозонных стрессоров InAlN. В узкозонной КЯ InGaN будет стимулироваться неоднородное распределение атомов в КЯ, что приведет к формированию локальных In-обогащенных областей. Данная технология была продемонстрирована для KT InAs и было показано, что в качестве широкозонных стрессоров можно использовать либо слой одиночных широкозонных КТ InAlAs [77], либо массив вертикально связанных КТ [78]. Для гетероструктур на основе InAlGaN можно создать InAlN/InGaN композитные гетероструктуры путем осаждения КЯ InGaN на поверхность InAlN островков, имеющих большую, по сравнению с InGaN, ширину запрещенной зоны [А31, А41]. Особенность использования гетероструктур InAlN/GaN состоит в возможности контролировать упругие напряжения и создавать как решеточно-согласованные гетероструктуры, не содержащие

упругих напряжений, при содержании In около 18 %, так и гетероструктуры с управляемыми напряжениями.



Рис. 65. Схематическое изображение композитной гетероструктуры, содержащей тонкий слой напряженного материала, осажденного на поверхность зарощенных стрессоров. Цифрами обозначены матрица (1), стрессоры (2) и напряженный узкозонный слой (3), имеющий локальные Inобогащенные области (темные участки в слое 3).

Были выращены и исследованы композитные структуры, которые состояли из слоя InAlN различной толщины, выращенного на буферном слое GaN толщиной 4 мкм, барьера GaN, имеющего различную толщину, и КЯ InGaN толщиной 3 нм. Толщины слоев InAlN в различных структурах изменялись в диапазоне 0-18 нм. Сверху композитной структуры осаждались слой Al<sub>0.2</sub>Ga<sub>0.8</sub>N, имеющий толщину 15 нм, и слой GaN толщиной 40 нм.

На рис. 66 приведены изображения ACM слоев InAlN, имеющих различную толщину, осажденных на буферном слое GaN.



Рис. 66 ACM изображения размером 800х800 нм слоев InAlN, имеющих толщину 4 нм (а), 9 нм (б) и 18 нм (в) и зарощенных 2 нм GaN. г) - ACM изображение слоя InAlN толщиной 4 нм, зарощенного 6 нм GaN [A31].

Из приведенных изображений видно, что в выращенных структурах на поверхности наблюдается формирование островков. Латеральные размеры островков во всех структурах составляют 20-30 нм, а высота и плотность островков зависят от толщины слоя InAlN. Для структуры с 4 нм InAlN (рис. 66а) высота островков находится в диапазоне 1-2 нм, и их плотность составляет ~ $8\times10^9$  см<sup>-2</sup>. В структурах со слоем InAlN толщиной 9 и 18 нм (рис. 66 б,в) наблюдается увеличение плотности островков до ~ $7-8\times10^{10}$  см<sup>-2</sup> при значениях высоты островков 2-4 нм. Отметим, что аналогичный эффект формирования островков достигается в структуре, содержащей слой InAlN толщиной 4 нм, зарощенного поверхностным слоем GaN толщиной 6 нм (рис. 48г).

Для изучения способов контроля структурных параметров островков InAlN было исследовано влияние прерываний роста в азот-водородной атмосфере при осаждении слоя InAlN. В стандартном образце с незарощенным слоем InAlN толщиной 20 нм, выращенным без прерываний роста, видно образование плотного массива островков с латеральными размерами 40-80 нм и плотностью ~9-11×10<sup>10</sup> см<sup>-2</sup> (рис. 67 а).



Рис. 67. АСМ изображения слоев InAlN толщиной 20 нм, выращенных без прерываний роста (а), с четырьмя прерываниями роста длительностью 16 сек и потоком водорода 200 см3/сек (б) и с четырьмя прерываниями длительностью 48 сек и потоком водорода 200 см3/сек (в) [A41].

В образце, при росте которого через равные промежутки времени были проведены четыре прерывания длительностью 16 сек. и потоком водорода 200 см<sup>3</sup>/сек, наблюдается уменьшение размеров островков (латеральные размеры островков не превышают ~60 нм) при сохранении их плотности (рис. 67 б). Увеличение длительности прерываний до 48 сек. приводит к исчезновению островков InAlN (рис. 67 в). Таким образом, прерывания роста позволяют контролировать размеры формирующихся островков InAlN.

Был исследован рост композитных гетероструктур InAlN/GaN/InGaN в зависимости от толщины слоя InAlN, для чего была выращена и исследована серия образцов, в которых толщины КЯ InGaN и барьера GaN не изменялись и составляли 3 нм и 6 нм соответственно, а толщина слоя InAlN изменялась в пределах 2-18 нм. На рис. 68 приведены GPA изображения структур

InAlN/GaN/InGaN с различной толщиной слоев InAlN. Эффект частичной упругой релаксации напряжений в тонкой ПЭМ пленке учитывался с помощью моделирования конечными элементами [79]. Количественное содержание индия и алюминия в слоях оценивался из полученных значений параметров решетки, используя закон Вегарда.



Рис. 68. GPA изображения композитных гетероструктура InAlN/GaN/InGaN с толщинами слоев InAlN 2 нм (а), 9 нм (б), 18 нм (в). Толщины слоев GaN и KЯ InGaN во всех структурах составляли 6 нм и 3 нм, соответственно [A41].

Технологические параметры роста всех слоев InAlN были одинаковы, и при росте образцов, содержащих только толстые слои InAlN, они приводили к

содержанию индия в InAlN 17% (по данным рентгеноструктурного анализа). При данном содержании индия параметр гексагональной решетки InAlN, а<sup>InAlN</sup>, близок параметру решетки GaN, а<sup>GaN</sup>. Плотность дислокаций В исследованных образцах измерялась по изображениям ПЭМ, полученным в темном поле в слабом пучке при соответствующих дифракционных векторах, используя критерии видимости дислокаций [80]. Плотность дислокаций в композитной структуре в исследованных образцах определяется плотностью прорастающих дислокаций во всем слое, которая составляет 7-8×10<sup>8</sup> см<sup>-2</sup>, и плотностью дополнительных дислокаций, связанных с ростом InAlN/GaN/InGaN. Дополнительные дислокаций отсутствовали В InAlN/GaN/InGaN области только для образца с толщиной InAlN слоя равной 2 нм. В образцах с толщиной слоя InAlN равной 9 нм и 18 нм наблюдалось формирование дополнительных краевых дислокаций с плотностью 7-8×10<sup>8</sup> см<sup>-2</sup> и 1-2×10<sup>9</sup> см<sup>-2</sup> соответственно. Наличие дополнительных краевых дислокаций подтверждает частичную пластическую релаксацию напряжений В композитной структуре.

В образце с толщиной слоя InAlN, равной 2 нм, наблюдается формирование изолированных островков AlN высотой ~3 нм и размерами 25-30 нм (рис. 68 а). Следовательно, при осаждении сверхтонкого слоя InAlN индий в этот слой не входит, что может быть связано с значительным фазовым распадом в InAlN и большими полями напряжений. В КЯ InGaN распада на островки, стимулированного островками AlN, не наблюдается. При этом КЯ InGaN является неоднородной по составу с максимальным содержанием индия около 42% при среднем содержании индия 18±7%.

Слой InAlN с номинальной толщиной 9 нм представляет собой сложную островковую структуру с номинальной толщиной, достигающей 17 нм, состоящую из трех областей, различающихся по морфологии и распределению In и Al в направлении роста (рис. 69).


Рис. 69. GPA изображение композитной InAlN/GaN/InGaN гетероструктуры, содержащей слой InAlN толщиной 9 нм, барьер GaN толщиной 6 нм и КЯ InGaN толщиной 3 нм (а). Профиль изменения упругих напряжений по отношению к GaN (б), полученный вдоль направления [0001] и усредненный на 7 нм вдоль плоскости интерфейсов (область усреднения выделена пунктирным прямоугольником на рис. 51 а) [A31].

Слой 1, обозначенный на рис. 69 б как (1) AlN, является непрерывным двумерным  $In_{0.02}Al_{0.98}N$  слоем толщиной 3-4 нм с небольшим содержанием

атомов индия (около 2%). Слой 2, обозначенный на рис. 69 б как (2) AlInN, также является двумерным, но с неоднородным распределением In и Al по толщине. Он состоит из двух частей. Первая часть, начинающаяся на интерфейсе с нижним  $In_{0.02}Al_{0.98}N$  слоем, имеет толщину 2.5 нм. Концентрация атомов In в ней в направлении роста увеличивается в диапазоне от 2 до 17%. Вторая часть AlInN слоя имеет толщину 5.5 нм. На интерфейсе между первой и второй частями концентрация атомов In падает до 10 % с последующим ее увеличением в направлении роста до 22%. Слой 3, обозначенной на рис. 69 б формируется на поверхности слоя 2. Он представляет собой как (3) AlN, массив трехмерных островков, имеющих форму усеченной пирамиды, с плоскими поверхностями и боковыми гранями, с размером основания ~20-30 нм и высотой 4-5 нм. Островки плотно примыкают друг к другу без видимого свободного расстояниями между основаниями пирамид, ЧТО согласуется с данными ACM. Содержание индия в островках InAlN составляет 2-5% и постоянно по толщине островка. Заращивание слоя InAlN островков тонким слоем GaN и последующее осаждение КЯ InGaN приводит к формированию массива изолированных островков InGaN, имеющих средний латеральный размер ~30 нм и высоту – 2.2 нм. Среднее расстояние между островками составляет ~10 нм. Среднее содержание индия в них составляет 20-22%. островки InGaN формируются При ЭТОМ непосредственно над поверхностью InAlN островков, составляющих слой 3.

Дальнейшее увеличение толщины слоя InAlN до 18 нм (рис. 68 в) приводит к тому, что сложная структура InAlN, обусловленная значительным фазовым распадом сохраняется, но островки InAlN увеличиваются в размерах. Кроме того, наблюдается формирование дефектов в островках. Рост InAlN также начинается с образования тонкого слоя AlN толщиной около 2 нм, имеющего резкие границы. Однако, в отличие от образца со слоем InAlN толщиной 9 нм, в котором после образования тонкого слоя AlN происходило формирование слоя InAlN, имеющего сложную структуру, в данном образце

содержание индия в слое InAlN составляет 17-19% в ее центре, спадая до 13% на нижнем и верхнем интерфейсах.

Таким образом, проведенные исследования показали, что рост InAlN начинается с образования сплошного слоя AlN толщиной несколько нанометров (2-4 нм), который затем трансформируется в массив островков InAlN, которые имеют сложную структуру, представляя собой, по сути, последовательность областей AlN-InAlN-AlN. Из изображения ПЭМ образца со слоем InAlN толщиной 9 нм (рис. 69 а) видна непосредственная корреляция между наличием высоких InAlN островков и последующим формированием InGaN островков над ними. Очевидно, что в областях локального увеличения параметра решетки формирование InGaN более выгодно.

Однако, интересным является вопрос, формируются ли островки InGaN непосредственно над InAlN островками или между ними. Для исследования данного эффекта была выращена структура, в которой слой GaN между КЯ InGaN и слоем InAlN отсутствовал, т.е. КЯ осаждалась непосредственно на островки InAlN. Из изображения поля вертикальной деформации, полученного для этого образца (рис. 70) видно, что образование островка InGaN происходит действительно непосредственно на поверхности InAlN островка и, частично, на его боковой грани.



Рис. 70. GPA изображение композитной гетероструктуры InAlN/InGaN с толщиной слоя InAlN 18 нм и толщиной слоя InGaN 3 нм [A41].

Данный эффект позволяет предположить, что сложное распределение индия внутри InAlN островка и упругая (и/или частично пластическая) латеральная релаксация напряжений внутри него приводит к сложному локальному пространственно неоднородному изменению параметра решетки непосредственно над островком. Это, в свою очередь, вызывает локально неоднородное (в пределах поверхностной области островка) распределение атомов индия в КЯ InGaN, приводящее к наблюдаемой корреляции в положении островка InGaN и граней и поверхности островка InAlN.

Ни рис. 71 приведены спектры ФЛ композитных структур InAlN/GaN/InGaN с разной толщиной слоев InAlN при температурах 77 К и 300 К.



Рис. 71. Спектры ФЛ выращенных композитных структур при температурах 77 К и 300 К. Цифрами около кривых указаны толщины слоя InAlN в структурах [A31].

В спектре стандартного образца, в котором слой InAlN отсутствовал, наблюдается одна линия излучения с максимумом при ~455 нм и шириной на половине высоты ~20 нм. В композитных гетероструктурах наблюдается длинноволновое смещение линии излучения, причем форма линии в этих структурах отличается от формы линии ФЛ в стандартной структуре без InAlN. Видно, что при низкой температуре линия излучения композитных

гетероструктур является суперпозицией двух линий с максимумами при 460 нм и 473 нм, причем полуширина линии с максимумом при 460 нм составляет всего ~10 нм. Наличие двух линий в спектре ФЛ свидетельствует о неоднородном распределении InGaN островков по размерам, либо по содержанию индия. Вклад в длинноволновую линию может также вносить фононная реплика

Таким образом, существует оптимальный дизайн композитных InGaN/GaN/InAlN структур (толщины слоя InAlN, барьера GaN и KЯ InGaN), при котором происходит формирование плотного массива островков InAlN и стимулируется трансформация KЯ InGaN с образованием массива островков InGaN. Отметим, падение эффективности излучения относительно структуры без InAlN. Это обусловлено формированием дополнительных дефектов в слое InAlN.

Принимая во внимание длинноволновое смещение линии излучения в композитных InAlN/GaN/InGaN структурах, были проведены их исследования при инжекционной накачке. Для этого была выращена серия светодиодных образцов, в которых толщины КЯ InGaN и барьера GaN составляли 3 и 8 нм соответственно, а слой InAlN имел различную толщину, не превышающую 5 нм, чтобы предотвратить формирование дефектов. Технологические условия роста исходной КЯ InGaN (без слоя InAlN) были выбраны такими, чтобы обеспечить длину волны излучения в «глубокой» зеленой области спектра (540-550 нм). Спектры ЭЛ выращенных структур приведены на рис. 72. Видно, что таких композитных гетероструктур наблюдается значительный для длинноволновый сдвиг линии излучения, что свидетельствует либо об содержания индия В КЯ InGaN, либо об увеличении изменении пьезоэлектрических полей, которое может быть объяснено изменением упругих напряжений, обусловленным нижележащими слоями InAlN/GaN, на которые осаждалась КЯ InGaN. Похожий эффект наблюдался, например, при росте многослойных InGaN/GaN гетероструктур с высоким содержанием индия

[A23]. Смещение максимума линии излучения наблюдалось вплоть до длины волны ~620 нм, соответствующей красной области спектра.



Рис. 72. Спектры ЭЛ композитных гетероструктур InAlN/GaN/InGaN с различной толщиной слоя InAlN при величине тока 100 мА [A41].

При увеличении толщины слоя InAlN более 3 нм наблюдается расщепление полосы излучения на две линии, причем при малых токах при комнатной температуре доминирует длинноволновая полоса. Это эффект может быть объяснен началом трансформации сплошной КЯ InGaN в массив островков, что согласуется с данными ПЭМ, описанными выше. В этом случае зависимость оптических свойств будет сильно зависеть от плотности формирующихся островков InAlN, что дает возможность управления спектром излучения.

2.5. Формирование индий-обогащенных островковых структур методом in situ наномаскирования.

В данном разделе приведены результаты исследований еще одного подхода к формированию областей с трехмерной локализацией носителей в КЯ InGaN с помощью осаждения КЯ на поверхность AlN/GaN структуры, в которой *in-situ* сформированы локальные ямки травления [A24]. В таких КЯ формирование областей локализации с большим содержанием атомов индия позволяет существенно увеличить длину волны излучения при невысоком

среднем содержании индия. Изученный подход, как и в случае композитных гетероструктур, основан на том, что твердые растворы InGaN имеют склонность к фазовому распаду с выделением областей с большим, чем в окружающей матрице, содержанием индия [81] и любые неоднородности на поверхности эпитаксиального слоя могут локально стимулировать данный эффект. Наилучшими представляются неоднородности, которые локально повышают эффективность вхождения индия, поскольку в этом случае влияние данного типа неоднородностей и склонность слоя InGaN к спонтанному образованию областей с повышенным составом будут взаимно усиливаться.

Предложенный подход основан на хорошо известной химической нестабильности GaN в присутствии водорода [82, 53]. Если при росте GaN в типичных условиях (T>1000°C, H<sub>2</sub> несущий газ) прервать подачу триметилгаллия в реактор, рост сменится на травление, сохраняющее атомную гладкость поверхности (рис. 73 а).



Рис. 73. ACM-изображение поверхности слоя GaN (a) и слоя GaN, маскированного слоем AlN (b), после *in-situ* травления в атмосфере  $NH_3 + H_2$  [A24].

В отличие от GaN, AlN стабилен при любых реализуемых условиях роста в реакторе, что и использовалось для создания масок при *in-situ* травлении. Флуктуации толщины тонкого (<1 нм) слоя AlN приводят к неоднородности его маскирующей способности. В результате при травлении закрытого таким слоем AlN нитрида галлия на поверхности образуются ямки травления (рис. 73 б). Их плотность ( $5-7\times10^9$  см<sup>-2</sup>) на порядок превышает плотность прорастающих дислокаций, которые частично проявляются при данном травлении в виде существенно более крупных ямок с плотностью  $\sim 1\times10^8$  см<sup>-2</sup>. В области ямки травления нарушение сплошности напряженного слоя AlN приводит к его локальной релаксации и локальному увеличению параметра решетки GaN (рис. 74), что должно локально повысить эффективность вхождения индия при выращивании КЯ InGaN непосредственно после формирования описываемых ямок.



Рис. 74. Схема локальной деформации кристаллической решетки в области ямки травления. Серым цветом обозначен слой AlN [A24].

Таким образом, сформированные в результате *in-situ* травления маскированной AlN слоем поверхности GaN ямки соответствуют требованиям к локальным неоднородностям для стимуляции неоднородности в распределении индия в КЯ InGaN.

На рис. 75 а представлено ACM-изображение поверхности структуры с одной КЯ InGaN, толщиной 2.5 нм, заключенной между слоями GaN, толщиной 1 нм каждый.



Рис. 75. ACM-изображение (а) и профиль поверхности (б) структуры с одной GaN/InGaN/GaN КЯ, выращенной после формирования ямок травления [A24].

Эта GaN–InGaN–GaN структура суммарной толщиной 4.5 нм выращивалась на поверхности AlN после формирования вышеописанных ямок. На поверхности наблюдаются четко различимые островки двух типов: мелкие, с латеральными размерами ~10 нм и плотностью  $5-7\times10^9$  см<sup>-2</sup>, соответствующей плотности мелких ямок травления, и крупные, с латеральными размерами ~ 30–100 нм и плотностью  $1\times10^8$  см<sup>-2</sup>, соответствующей плотности крупных ямок травления, предположительно формирующихся над прорастающими дислокациями.

Высота островков обоих типов составляет 4–5 нм (рис. 75 б), что соответствует суммарной толщине осажденной GaN–InGaN–GaN структуры. Подобная, но несколько более сложная морфология наблюдалась также для аналогичной структуры с тремя КЯ, разделенными барьерами толщиной 8 нм (рис. 76).



Рис. 76. ACM-изображение структуры с тремя КЯ GaN/InGaN/GaN, выращенными после формирования ямок травления [A24].

Исследования стандартных КЯ InGaN/GaN, выращенных на обычных эпитаксиальных слоях GaN, не выявили формирования островковых объектов с высокой плотностью. Это позволяет предположить, что данные образования формируются над ямками травления. В то же время на поверхности AlN между ямками травления возможно формирование обычных КЯ InGaN.

Следует отметить, что в данной работе для маскирования использовались слои AlN, выращенные в режимах, разработанных для структур с двумерным электронным газом [83], при которых не происходит генерация дислокаций и, следовательно, наблюдаемые эффекты не связаны с формированием новых дислокаций, обусловленных ростом AlN.

Поскольку корректные исследования оптических свойств InGaN/GaN структур, предназначенных для АСМ-исследований, невозможны из-за близости активной области к поверхности, то для оптических исследований были выращены структуры с большей толщиной верхнего слоя GaN. На рис. 77 приведены спектры низкотемпературной (10К) ФЛ двух структур А и В с активной областью на основе трех КЯ InGaN толщиной 2.5 нм, разделенных барьерами GaN толщиной 8 нм. Толщина верхнего прикрывающего слоя GaN составляла 70 нм. Режимы выращивания были такими же, как и при выращивании вышеописанных структур для АСМ-исследований. В структуре А активная область выращивалась на поверхности AlN после формирования вышеописанных ямок травления. В структуре В слой AlN не осаждался. В спектре ФЛ структуры В присутствует только линия L2, связанная с КЯ InGaN.



Рис. 77. Спектры ФЛ структур А и В, описанных в тексте [А24].

Спектр ФЛ структуры A содержит 2 линии с максимумами ~2.15 эВ (L1), лежащая в желтой области спектра, и ~2.55 эВ (L2), лежащая в синей области спетра. При исследованиях InGaN/GaN структур, излучающих в желто-зеленой области спектра, всегда возникает методологическая проблема разделения

излучения активной области InGaN и хорошо известной дефектной «желтой полосы» GaN. В исследованных структурах линия L1 имела максимум излучения, несколько смещенный относительно дефектной полосы (2.2 эВ) и была значительно уже (200 мэВ), чем дефектная желтая полоса (~400 мэВ). Кроме того, интенсивность линии L1 снижалась при повышении температуры до 300 К более чем на порядок, что не типично для дефектной желтой полосы, интенсивность которой слабо зависит от температуры. Соответственно можно связать линию L1 с излучением из активной области. Сопоставление спектров ФЛ позволяет связать линию L2 с однородной КЯ, сформированной под слоем AlN, а линию L1 с островками InGaN, сформированными над ямками травления.

Таким образом, использование наномасок AlN позволяет реализовать новый метод формирования наноструктур InGaN/GaN, излучающих в длинноволновом спектральном диапазоне.

# 2.6. Выводы.

На основе разработанных методов роста КЯ InGaN были разработаны новые подходы к росту и предложены новые типы III-N гетероструктур.

- Использование циклических прерываний роста слоя InGaN в азотводородной атмосфере позволяет формировать КПСР InGaN/GaN с толщинами слоев ~1 нм и большим количеством периодов (были продемонстрированы 60-периодные КПСР).
- Для формирования КЯ InGaN возможно применение метода субмонослойного роста, позволяющего стимулировать формирование In-обогащенных областей в КЯ.
- Осаждение КЯ InGaN в матрицы In<sub>y</sub>Ga<sub>1-y</sub>N меньшего состава или AlGaN позволяет изменять их структурные свойства и увеличить энергии локализации носителей.
- 4. Предложена концепция композитных InAlN/GaN/InGaN гетероструктур и показана возможность в таких гетероструктурах

управлять формированием In-обогащенных областей в КЯ InGaN и реализовывать излучение вплоть до красной области спектра.

5. Использование эффекта нестабильности GaN в атмосфере водорода позволило предложить новый метод формирования наноструктур InGaN/GaN, излучающих в длинноволновом спектральном диапазоне, основанный на *in situ* наномаскировании в GaN-AlN структурах.

# Глава 3. Светодиодные структуры с активной области на основе КЯ InGaN и короткопериодных сверхрешеток InGaN/GaN.

В данной главе приводятся результаты исследований применимости создания описанных выше подходов лля светодиодных структур. Комбинированное использование короткопериодных сверхрешеток InGaN/GaN, формирование которых было описано выше, и КЯ InGaN, трансформированных в массив островков, позволяет создавать новые конструкции активных областей светодиодных структур, расширить спектральный диапазон их излучения и создать монолитные светодиодные структуры С активной областью, содержащей несколько KЯ InGaN, излучающих при различных длинах волн.

#### 3.1. Светодиодные структуры синего диапазона.

Существует много факторов, влияющих на эффективность излучения светодиодов на основе нитрида галлия, таких как пьезоэлектрические поля в КЯ InGaN, плотности дислокаций, профили легирования атомами Mg и Si и т.д. Традиционно активная область синих светодиодов представляет собой последовательность нескольких КЯ InGaN толщиной 2-3 нм, разделенных барьерами GaN. Предлагались различные способы оптимизации дизайна активной области, которые заключалась в использовании InGaN барьеров между КЯ InGaN для улучшения вертикального транспорта носителей [84], использовании InGaAlN барьеров для подавления встроенного пьезоэлектрического поля [85], осаждение толстого слоя InGaN малого состава между КЯ InGaN и слоем n-GaN для оптимизации латерального растекания носителей [86], осаждение барьерного слоя InGaN между блокирующим рлегированным слоем AlGaN и ближайшей к нему КЯ InGaN [87]. В данном разделе исследован дизайн активной области на основе нескольких КЯ InGaN, трансформированных в массив островков с помощью прерываний роста, в матрице GaN, ограниченных с одной или обеих сторон КПСР InGaN/GaN, имеющими как постоянный, так и переменный (варизонные КПСР) состав [A26, A39, A50].

3.1.1. Транспорт носителей и эффективность излучения в светодиодных InGaN/GaN гетероструктурах с InGaN островками.

Рассмотренное в главе 1 влияние прерываний роста и давления при росте КЯ InGaN, приводящих к трансформации КЯ InGaN в массив островков, подавляет транспорт носителей в плоскости КЯ к дефектам, и, таким образом, обуславливает рост эффективности излучения светодиодов. Однако, кроме данного эффекта, существует еще одна особенность в транспорте носителей в таких «островковых» структурах. Известно, что в светодиодах на основе нескольких КЯ InGaN, рекомбинация носителей происходит в КЯ, ближайшей к р-легированному слою GaN [88, 89]. Это приводит к тому, что концентрация носителей в этой КЯ становится очень высокой, вызывая сильную Ожерекомбинацию, которая уменьшает ВКЭ при больших токах. Далее будет показано, что в случае активной области, состоящей из нескольких слоев изолированных островков InGaN, транспорт носителей осуществляется во все слои InGaN в активной области, что приводит к их меньшему заселению носителями и, таким образом, к уменьшению Оже потерь.

Для экспериментальных исследований и моделирования процессов транспорта носителей в структурах, содержащих островки InGaN, были выращены светодиодные структуры, содержащие в активной области 6 КЯ InGaN толщиной 3 нм, разделенных 7 нм барьерами GaN [A50]. Сравнивались структуры двух типов: с КЯ (для таких структур использовался рост при пониженном давлении) и с островками (такие структуры были выращены при относительно высоком давлении с применением прерываний роста). Исследования с помощью ПЭМ ВР показали, что КЯ InGaN, выращенные при давлении 100 мбар, представляют собой сплошные КЯ (Рис. 78 а) толщиной 3.5±0.5 нм со средним содержанием индия 17%. В структуре, выращенной при 450 мбар, наблюдалось формирование отдельных островков, имеющих латеральные размеры от 40 до 70 нм и высоту от 2 до 3 нм (Рис. 78 б). Среднее содержание индия в этой структуре также составляло 17%.



Рис. 78. GPA изображения КЯ InGaN/GaN, выращенных при давлении 100 (а) и 450 мбар (б) [A50].

Полученные ПЭМ ВР значения параметров КЯ и островков (толщины, латеральные размеры) были использованы содержание индия, ДЛЯ моделирования транспорта носителей с использованием диффузионнодрейфовой модели совместным решением уравнения непрерывности для электронов и дырок и уравнения Пуассона, которые были проведены в Университете Рима [А50]. Сравнение протекания электронов и дырок через такую «островковую» активную область с протеканием электронов через активную область, содержащую сплошные КЯ InGaN, показало, что в то время как в структуре с сплошными КЯ распределение тока латерально однородно, в структуре с островками InGaN ситуация другая. Рис. 79 показывает двумерное

изображение зоны проводимости и валентной зоны с траекториями протекания электронов и дырок.



Рис. 79. Двумерное изображение зоны проводимости и валентной зоны с траекториями протекания электронов и дырок [A50].

Видно, что траектории носителей огибают потенциальные барьеры на вершине и дне островка, что приводит к транспорту носителей между островками в GaN матрице, и инжекция носителей в островки происходит, в основном, через их края. Данный вывод был подтвержден исследованиями вольт-амперных характеристик выращенных структур [A50].

Для объяснения изменения характера токовой зависимости ВКЭ в структурах, в которых происходило формирование островков (рис. 4, 96), в Университете Рима с использованием АВС модели [А50] было проведено моделирование токовых зависимостей внутренней квантовой эффективности излучения (IQE) структур со сплошными КЯ (QW1 и QW2), и структур с островками (QD1 и QD2) (рис. 80). Положения максимумов линий излучения при токе 10 мА составляли: QW1- 457 нм, QW2- 442 нм, QD1- 449 нм, QD2- 453 нм и QD3- 446 нм. Ширины всех линий были сопоставимы и составляли 20- 22 нм при токе 10 мА. Экспериментальные значения IQE, были получены из измеренных значений ВКЭ с использованием АВС модели [90].



Рис. 80. Экспериментальные (символы) и расчетные (сплошные линии ) зависимости IQE от выходной оптической мощности [А50].

Из выполненных расчетов было установлено, что константы В и С, отвечающие, соответственно, за излучательную и Оже рекомбинацию, во всех исследованных структурах с КЯ и с островками практически одинаковы. Однако, константа A, ответственная за безылучательную рекомбинацию, значительно выше для структур QW1 и QW2, что свидетельствует о более низком структурном качестве активных областей на основе КЯ, по сравнению с активными областями на основе островков. Это может быть объяснено как уменьшением числа дефектов при прерываниях роста (например, из-за испарения избыточных атомов индия [22]), так и с подавлением транспорта носителей в плоскости КЯ InGaN при её трансформации в островки.

# 3.1.2. Влияние КПСР на эффективность излучения.

Рассмотрим светодиодные структуры, содержащие в активной области три КЯ InGaN толщиной 3 нм, трансформированные в островки с помощью прерываний роста, разделенные барьерами GaN толщиной ~8 нм и ограниченные с одной или с обеих сторон КПСР InGaN/GaN с толщинами слоев InGaN и GaN ~1 нм (рис. 81). Были исследованы КПСР с постоянным составом и варизонные КПСР.



Рис. 81. Схематическое изображение активной области исследованных структур [A26].

КПСР InGaN/GaN формировались путем циклических прерываний роста после осаждения в каждом цикле 2 нм In<sub>0.1</sub>Ga<sub>0.9</sub>N. Прерывания роста проводились в течение 20 сек в атмосфере N<sub>2</sub>:  $H_2 = 7:3$ . При них происходила конвертация поверхностного слоя InGaN и образование слоя GaN толщиной ~1 нм. Варизонные КПСР формировались путем линейного уменьшения/увеличения температуры во время роста нижней/верхней КПСР, что приводило к изменению содержания индия по толщине сверхрешетки. Выращенные структуры были исследованы рентгеноструктурным анализом, который подтвердил формирование короткопериодных решеток, имеющих период 2 нм и среднее содержание индия 5-6%. Исследования помощью ПЭМ ВР показали формирование островков в активной области и КПСР InGaN/GaN с изменением состава по In от нуля до 8-11% (рис. 82).



Рис. 82. GPA изображение InGaN/GaN активной области [А30].

Обычно, светодиодные структуры синего диапазона содержат специальные слои между активной областью и слоем n-GaN, в качестве которых могут выступать КЯ InGaN/GaN или толстый слой InGaN меньшего состава, низкотемпературный слой GaN. Использование таких слоев позволяет увеличить эффективность излучения, при этом в литературе приводится достаточно большое количество различных причин этого эффекта [91]. Для изучения влияния КПСР на свойства светодиодных структур было проведено сравнение со стандартной светодиодной структурой, содержащей набор КЯ InGaN, состоящий из базовых, выращенных после осаждения слоя n-GaN, КЯ InGaN, имеющих низкое содержание индия (в принципе этот набор КЯ может быть заменен на толстый слой InGaN низкого состава), и верхних, трансформированных в островки, КЯ InGaN, имеющих высокое содержание индия. Ожидалось, что использование нижней КПСР вместо таких базовых КЯ позволит оптимизировать латеральное растекание электронов при инжекции. Кроме того, замена, базовых КЯ InGaN на КПСР может привести к изменению формирования верхних КЯ InGaN, а именно к особенностям в образовании локальных In-обогащенных областей, которые определяют их оптические

свойства. Также, эффект диффузии Mg из p-легированной области в активную область, который будет обсуждаться ниже, может влиять на количество дефектов и свойства KЯ InGaN [92].

На рис. 83 показаны GPA изображения активной области светодиодных структур, содержащих две КЯ InGaN, выращенные на четырех базовых КЯ InGaN (Рис. 83 а) и на 12-периодной 1 нм InGaN / 1 нм GaN КПСР (Рис. 83 б). В обеих структурах КЯ InGaN были зарощены 12-периодной КПСР 1 нм InGaN / 1 нм GaN.





Рис. 83. GPA изображения КЯ, выращенных на 4-х базовых КЯ InGaN, (a) и на InGaN/GaN КПСР (б) [A26].

Сравнение структурных параметров КЯ InGaN, проведенное с помощью ПЭМ ВР, показывает следующее. В обеих структурах КЯ InGaN являются несплошным. Наблюдается образование изолированных островков, имеющих высоту ~2.5 нм и латеральные размеры ~40-50 нм. Средняя концентрация In в островках составляет ~25%, а максимальная концентрация доходит до 45%. Видно, что осаждение нижней КПСР не приводит к серьезной модификации структурных свойств слоев InGaN в активной области.

Спектральное положение линий ЭЛ образцов с КЯ InGaN, выращенными на КПСР и на базовых КЯ InGaN, совпадают (рис. 84 а). Некоторое увеличение

эффективности наблюдается для образца, содержащего КПСР, что может быть связано с лучшим растеканием носителей в активной области. Температурные исследования ФЛ (рис. 84 б) показывают, что ширины линий ФЛ обеих структур в низкотемпературной (<50К) и высокотемпературной (>250К) областях близки. В области температур 50-250К ширина спектра ФЛ образца с КЯ, выращенными на базовых КЯ InGaN, выше, чем ширина спектра ФЛ образца с активной областью, выращенной на КПСР.



Рис. 84. Спектры ЭЛ исследованных структур (а) и зависимость полуширины линии ФЛ от температуры (б). На вставке приведены зависимости внешней квантовой эффективности от тока [A26].

Сужение линий ФЛ в области температур 10-50К связано для обеих структур с термическим выбросом носителей из In-обогащенных островков в КЯ InGaN и их транспортом в состояния с большей энергией локализации. Последующее увеличение ширины линии ФЛ при температуре выше 50К вызвано неоднородностью в распределении атомов индия. Таким образом, меньшая ширина линии ФЛ в диапазоне температур 50-250 К в структуре, содержащей КПСР, свидетельствует о меньшей неоднородности в распределения индия в этой структуре.

Рассмотрим влияние верхней КПСР на свойства светодиодных структур. Использование верхней КПСР приводит к увеличению расстояния между

активной областью и областью р-легирования. Это уменьшает в ней концентрацию атомов Mg и, следовательно, снижает плотность глубоких дефектов, подавляющих эффективность излучения [93, 94, 95]. Кроме того, в работе [87] были исследованы структуры с GaN и InGaN барьерами между активной областью и слоем AlGaN и было показано, что InGaN барьер может приводить к подавлению диффузии Mg в активную область. Для изучения диффузии магния были проведены исследования с помощью вторично-ионной масс спектрометрии (ВИМС) светодиодных структур, в которых между КЯ InGaN и слоем p-AlGaN помещался или GaN барьер (исследовались структуры с барьерами толщиной 8 нм и 24 нм) или варизонная КПСР InGaN/GaN 24 нм. Ha приведены профили толщиной рис. 85 легирования Mg исследованных образцов.



Рис. 85. Профили легирования атомами Мд в исследованных образцах [А26].

Стрелками на рис. 85 показаны положения КЯ InGaN в активной области. Из приведенных профилей видно, что для всех структур профили Mg совпадают, что свидетельствует о том, что InGaN/GaN КПСР не блокирует диффузию атомов Mg. Однако, в случае роста толстого 24 нм барьера GaN или КПСР

аналогичной толщины активная область оказывается расположенной в области с меньшей концентрацией атомов Mg. Для структур с КПСР и толстым GaN барьером концентрация Mg в KЯ InGaN составляет  $9.5 \times 10^{16}$  см<sup>-3</sup>, в то время как для структуры с 8 нм GaN барьером концентрация Mg в активном слое InGaN увеличивается до  $3.7 \times 10^{18}$  см<sup>-3</sup>.

На рис. 86 приведены зависимости ВКЭ от тока, протекающего через структуру, для светодиодных структур с верхними барьерами GaN и КПСР InGaN/GaN между активной областью и слоем p-AlGaN. В исследованных структурах активная область осаждалась на 30 периодную сверхрешетку InGaN/GaN.



Рис. 86. Зависимости квантовой эффективности от тока для светодиодных структур с барьером GaN (а) и КПСР (б) [A26].

Видно принципиальное различие во влиянии увеличения толщины InGaN/GaN КПСР и GaN барьера на эффективность излучения. Увеличение толщины GaN барьера приводит к уменьшению ВКЭ, в то время как увеличение толщины InGaN/GaN КПСР приводит к ее увеличению. Падение интенсивности ЭЛ при увеличении толщины барьера GaN связано, по-видимому, с тем, что рост этого барьера осуществляется при достаточно низкой температуре (810 °C), что приводит к ухудшению качества GaN. Использование InGaN/GaN КПСР

позволяет улучшить качество барьерного слоя, и повысить эффективность излучения (рис. 86 б). Использование вместо КПСР постоянного состава варизонной КПСР приводит к дальнейшему увеличению ВКЭ. Это обусловлено тем, что в случае варизонной КПСР увеличение состава по In по направлению от p-AlGaN к КЯ InGaN приводит к улучшению сбора носителей в активную область. Из выращенных структур были изготовлены светодиоды, которые показали ВКЭ более 30% без использования каких-либо методов увеличения вывода света (использование профилирования подложки и p-слоя, отделение подложки. Из полученного значения ВКЭ были проведены оценки IQE по методике, описанной в работе [90], которые дали значение IQE ~70% [A48], что соответствует высокому мировому уровню для структур синего диапазона.

С целью детального изучения влияния КПСР на оптические свойства светодиодов была исследована серия структур с различным дизайном активной области на основе КПСР (рис. 87) [А30].



Рис. 87. Зонные диаграммы светодиодных структур A, B, C, D [A30]

На рис. 88 а представлены зависимости ВКЭ излучения от тока для исследованных структур. Образец с активной областью на основе двух КЯ,

осажденных на базовые КЯ (образец А), имеет наименьшую ВКЭ, которая достигает своего максимума при токах ~20 мА. Использование КПСР как снизу, так и сверху КЯ InGaN (структуры В и С) значительно увеличивает ВКЭ, причем при использовании КПСР под КЯ максимум достигается при токах, на порядок меньших, чем в стандартной структуре. Структура D, имеющая КПСР с обеих сторон КЯ, обладает наибольшей величиной ВКЭ с максимумом около 10 мА.



Рис. 88. Экспериментальные зависимости ВКЭ от тока (сплошные линии), и расчетные значения без учета дополнительных потерь (пунктирные) (а). Экспериментальные (точки) и расчетные (линии) зависимости интегральной интенсивности ФЛ от температуры для структур А и В (б) [А30].

Для анализа зависимостей ВКЭ от тока была использована ABC модель, описанная в работе [96]. Зависимость ВКЭ от концентрации носителей в активной области описывалась выражением  $\eta_{ext} = \eta_{extract} \times B \times n^2 / (B \times n^2 + A \times n + f(n))$ , где В и А - коэффициенты бимолекулярной и мономолекулярной рекомбинации, соответственно,  $\eta_{extract}$  - эффективность выхода света из структуры. Функция f(n) отвечает за утечки носителей, которые могут быть связаны с Оже-рекомбинацией, падением эффективности инжекции, разогревом и т. д. Результаты аппроксимации приведены на рис. 88 а. При малых токах наблюдается хорошее согласие эксперимента и расчета, откуда следует, что эффекты утечки носителей малы при низком уровне инжекции. Значения коэффициента A получились равными  $23 \times 10^7$ ,  $8 \times 10^7$ ,  $29 \times 10^7$ ,  $14 \times 10^7$  с<sup>-1</sup> для структур A, B, C, D соответственно. Видно, что осаждение КПСР под активной областью значительно уменьшает значение параметра А, то есть уменьшается темп безызлучательной рекомбинации, которая определяется концентрацией точечных дефектов и дислокаций, а также эффективностью транспорта к ним. Для исследования эффекта подавления безызлучательной рекомбинации осаждением КПРС были проанализированы температурные зависимости ФЛ стандартной светодиодной структуры и структуры, содержащей нижнюю КПСР в активной области. Результаты измерений представлены на рис. 88 б. Полученные зависимости были аппроксимированы с помощью выражения I(T) $= I(0)/(1+A_0 \times \exp(-E_{act}/kT))$ , где коэффициент  $A_0$  отражает количество центров безызлучательной рекомбинации, Т - температура, k - постоянная Больцмана. Аппроксимация дает хорошее согласие с экспериментом (рис. 88 б) при значениях энергий активации для структур А и В, которые и составляют 33 – 34 мэВ. Равенство энергий активации свидетельствует о том, что применение КПСР под активной областью не приводит к значительной модификации распределения индия в КЯ, что согласуется с полученными ранее результатами. Однако, значение коэффициента А<sub>0</sub> для структуры с КПСР оказалось в 2.5 раза меньше, чем для стандартной структуры. Это указывает на то, что подавление безызлучательной рекомбинации в структуре с КПРС под активной областью обусловлено уменьшением количества дефектов.

# 3.2. Светодиодные структуры желто-зеленого диапазона.

Увеличение содержания индия в КЯ InGaN в активной области светодиода, необходимое для сдвига излучения в длинноволновую сторону, осложнено, в первую очередь, большим рассогласованием параметров кристаллической решетки в системе GaN-InN, приводящим к возникновению значительных механических напряжений. С одной стороны, наличие напряжений в КЯ InGaN

смещает химическое равновесие в сторону усиления десорбции индия, снижая эффективность вхождения индия в растущий слой [97], а с другой стороны, большое содержание индия в КЯ InGaN приводит к образованию дислокаций несоответствия. В случае светодиодных структур зеленого диапазона, при увеличении содержания индия в КЯ InGaN, сдвиг спектра излучения в зеленую область приводит к сложной зависимости свойств многослойной AlInGaN гетероструктуры от ее дизайна [A23, A37]. В данном разделе приведены результаты исследований процессов формирования активных областей для светодиодов желто-зеленого диапазона на основе многослойных напряженных гетероструктур InGaN/GaN.

Сравним спектры светодиодных структур, излучающих в синей и желтозеленой областях спектра, содержащих различное число КЯ InGaN. Для светодиодов с длиной волны излучения менее 460 нм число КЯ в активной области оказывает некоторое влияние на эффективность излучения и ее зависимость от плотности тока, однако практически не влияет на спектр излучения (рис.89).



Рис. 89. Спектры ЭЛ светодиодных гетероструктур синего диапазона с различным дизайном активной области: #1 – структура с пятью одинаковыми КЯ, #2 – структура с верхней КЯ, излучающей на длине волны 455 нм и четырьмя нижележащими КЯ, излучающими на длине волны 410 нм. На вставке – спектр ЭЛ структуры #2 при большом токе инжекции [A23].

Это связано с тем, что сочетание малых толщин КЯ InGaN (1.5-2.5 нм) и умеренного содержания в них индия (<20%) не приводит к релаксации напряжений даже в структурах с большим числом КЯ. В результате, при сохранении неизменных условий роста InGaN, КЯ формируются с одинаковым содержанием индия. Кроме того, в таких структурах, вне зависимости от числа КЯ InGaN в активной области, при характерной для светодиодов плотности тока 10-50 А/см<sup>2</sup> практически вся рекомбинация протекает в ближайшей к робласти КЯ. Как следствие этих двух особенностей, спектр излучения светодиодов синего диапазона, для которых характерно небольшое содержание индия в активной области, определяется в основном режимами роста последней (верхней) КЯ и не зависит ни от полного числа КЯ в структуре, ни от содержания индия в нижележащих КЯ. Однако, при более высоких плотностях тока происходит инжекция дырок и в нижележащие КЯ, что хорошо видно в спектрах ЭЛ структур с активной областью, сформированной из сплошных КЯ InGaN с преднамеренно различным содержанием в них индия (вставка на рис. 89).

B отличие ОТ светодиодных структур синего диапазона, ДЛЯ светодиодных структур желто-зеленого диапазона, содержащих 1, 3 или 5 КЯ, выращенных в одинаковых технологических режимах (структуры G1, G3, G5), наблюдается сильная зависимость спектрального положения линий излучения от числа КЯ InGaN (рис. 90). Режимы роста исследованных структур желтозеленого диапазона отличались от аналогичных для светодиодов с длиной волны излучения 460 нм только пониженной на 50°C температурой роста активной области, что привело к увеличению эффективности вхождения индия. Светодиодная структура G1 с одной КЯ InGaN имеет длину волны излучения 500 нм, ЧТО соответствует ожидаемой при вышеуказанном снижении температуры. В то же время, светодиодная структура G3 с тремя КЯ InGaN имеет длину волны излучения 550 нм, а G5, содержащая пять КЯ, – уже 590 нм. Таким образом, несмотря на одинаковые условия в реакторе, содержание индия

в описываемых структурах нарастает по мере увеличения числа осаждаемых КЯ InGaN.



Рис. 90. Спектры ЭЛ светодиодных структур зеленого диапазона G1, G3 и G5 с различным числом КЯ InGaN в активной области при токе 10 мA (а) и 100 мA (б) [A23].

В спектрах ЭЛ структур с G3 и G5, особенно при больших плотностях тока, 90 б), отчетливо видны (рис. дополнительные коротковолновые ЛИНИИ люминесценции. Эти линии могут быть связаны с излучением из нижележащих КЯ InGaN с меньшим содержанием индия, что подкрепляет сделанное выше предположение. Так как описываемый эффект наблюдается только для структур с относительно высоким содержанием индия и нарастает с увеличением числа осаждаемых КЯ InGaN, можно предположить, что он связан с релаксацией упругих напряжений. Как уже отмечалось выше, эффективность вхождения индия в слои InGaN зависит от величины упругих напряжений. Более того, при одновременном пуске в реактор ТМИ и ТЕГ (или ТМГ) формируется КЯ InGaN с нарастающим по толщине содержанием индия. Это явление связано с сегрегацией индия на поверхности и характерно не только для InGaN, но и для InGaAs [98].

На рис. 91 показано изображение ПЭМ верхней части структуры G3 в поперечном сечении. В активной области структуры отчетливо видны дополнительные прорастающие дислокации (помеченные белыми стрелочками) с плотностью  $(3-5 \times 10^9 \text{ см}^{-2})$ , берущие начало на двух верхних КЯ InGaN и доходящие до поверхности структуры. Сравнение данного изображения с аналогичным, полученным с использованием дифракционного вектора g=0002, позволило однозначно определить краевой характер данных дислокаций, т.е. имеющих вектор смещения в плоскости роста. Таким образом, прорастающие дислокации являются частями дислокационных полупетель, локально зародившиеся изначально на поверхности второй-третьей КЯ InGaN вследствие частичной релаксации упругих напряжений в них.



Рис. 91. Темнопольное изображение верхней части структуры G3 в поперечном сечении (01-10), полученное в режиме слабого пучка с использованием g=2-1-10 [A23].

В аналогичных структурах с еще более высоким содержанием индия плотность дислокаций, возникающих в активной области, достигает 1×10<sup>10</sup> см<sup>-2</sup>, что на порядки превышает плотность прорастающих дислокаций в буферном слое

GaN. В то же время, в структурах синего диапазона генерации дислокаций в активной области не наблюдается.

Определение локального содержания индия в КЯ InGaN проводилось путем сравнения параметров решетки в КЯ InGaN, полученных методом GPA. На рис. 92 а представлена двумерная карта распределения локальных деформаций кристаллической решетки по отношению к ненапряженной матрице GaN в направлении [0001] в районе активной области для структуры G3.



Рис. 92. Карта распределения локальных деформаций кристаллической решетки по отношению к ненапряженной матрице GaN в направлении роста структуры [0001] (а) и профиль распределения деформации в направлении роста структуры (б) в районе активной области для структуры G3 [A23].

Более светлые участки соответствуют большему межплоскостному расстоянию, а значит – большему содержанию индия. Отчетливо видно увеличение содержания индия от ямы к яме, а также существенные флуктуации распределения индия в плоскости ямы, наблюдавшиеся выше и для структур синего диапазона. На рис. 92 б приведен профиль распределения деформации по отношению к ненапряженной матрице GaN в направлении роста структуры [0001], полученный путем усреднения результатов измерения в плоскости

структуры на интервале 100 нм. Содержание индия в КЯ InGaN приведено в табл. 9. Следует отметить, что в таблице указаны усредненные значения со стандартным математическим отклонением; реальная ошибка измерений намного ниже и соответствует примерно ± 1% по содержанию индия в InGaN. Из сопоставления данных ПЭМ ВР, приведенных в табл. 9 и на рис. 92, можно сделать вывод о частичной (в пределах десятков процентов) релаксации упругих напряжений в структуре G3, приводящей к увеличению вхождения индия в InGaN.

Номер КЯ InGaN от	Среднее содержание	Максимальное локальное
подложки	индия в InGaN	содержание индия в InGaN
1	(30±4)%	55 %
2	(32±6)%	61 %
3	(34±8)%	67 %

Таблица 9. Параметры КЯ InGaN в структуре G3 [A23].

Вышеописанная релаксация напряжений происходит с образованием дислокаций, снижающих эффективность люминесценции. Однако, локализация носителей в формирующихся в In-обогащенных областях КЯ позволяет достичь приемлемой эффективности излучения даже при высокой плотности дислокаций.

Для улучшения структурных свойств светодиодных структур желтозеленого диапазона было предложено использовать активную область на основе одной КЯ InGaN с высоким содержанием индия и нижележащей КПСР [A32, A37], которая, как было показано для светодиодных структур синего диапазона, увеличивает ВКЭ излучения. Для случая светодиодных структур желтозеленого диапазона были изучены различные дизайны активной области. Использование простейшего дизайна только с одной КЯ InGaN в матрице GaN

приводит к очень низкой эффективности излучения (кривая 1 на рис 93 а). Светодиодные структуры, имеющие дизайн с двумя КПСР над и под KЯ InGaN, для случая светодиодов желто-зеленого диапазона показывают низкую эффективность излучения из-за релаксации напряжений, обусловленных выращиванием КПСР над KЯ InGaN с большим содержанием индия.



Рис. 93. Зависимость ВКЭ от тока (а) и спектры ЭЛ (б) для структур различного дизайна, излучающих при 550 нм [A32, A37]. На рис 93 а - 1 – КЯ, выращенная на высокотемпературном буферном слое GaN (спектр КЯ на рис 93 б); 2 – КЯ, выращенная на низкотемпературном (LT-GaN) буферном слое GaN (спектр LT GaN + КЯ на рис 93 б); 3,4 – КЯ, выращенная на 12-периодной КПСР InGaN/GaN и зарощенная LT-GaN (спектр КПСР+LT GaN+КЯ на рис 93 б), 5 – КЯ, выращенная на 3-периодной КПСР InGaN/GaN и зарощенная LT-GaN. 1-3 – р-GaN выращен в азот-водородной атмосфере; 4,5 – р-GaN выращен в азотной атмосфере.

Использование в структуре только нижней 12-периодной InGaN/GaN КПСР толщиной 24 нм (Рис. 94) приводит к существенному увеличению

эффективности излучения (Рис. 93 а). Выращенная структура содержала 5 µм n-GaN, 12-периодов InGaN/GaN КПСР, 25 нм низкотемпературного (LT) GaN, 2.5 нм КЯ InGaN, 15 нм p-AlGaN, 120 нм p-GaN. Необходимо отметить, что существенный вклад в эффективность излучения такой структуры играет барьерный слой n-GaN, выращенный при пониженной температуре (LT GaN).



Рис. 94. GPA изображения (а) светодиодной структуры в целом и активной области, содержащей 12- (б) и 3- (в) периодную КПСР [А37].

Для разделения влияния оказываемого КПСР и низкотемпературным слоем GaN была выращена структура без КПСР, но содержащая слой LT GaN, лежащий непосредственно под KЯ InGaN. Эффективность излучения такой структуры была несколько выше (кривая 2 на рис. 93 а), чем эффективность излучения структуры простейшего дизайна с одной KЯ InGaN, но тем не менее существенно уступала эффективности излучения структур содержащих КПСР и слой LT GaN (кривые 3,4,5 на рис. 93 а). Эффективность излучения структуры, содержащей только InGaN/GaN КПСР без LT GaN, была также значительно меньше, чем у структур с оптимальным дизайном, а длина волны излучения была сдвинута в коротковолновую область спектра. Таким образом, увеличение эффективности излучения связано с комплексным влиянием КПСР InGaN/GaN и LT GaN. Максимальное значение ВКЭ (рис. 93а, кривая 5) было достигнуто при использовании 3-периодной КПСР (рис. 94 в). Спектр ЭЛ для структур с КПСР и LT GaN оказался уширенным и немного смещенным в длинноволновую область спектра (рис. 93 б), что наблюдалось ранее при использовании низкотемпературного слоя GaN в активной области светодиодов синего диапазона [99].

Была проведена оптимизация дизайна светодиодных структур, и было показано, что параметры КПСР InGaN/GaN и LT GaN должны быть оптимизированы совместно для обеспечения максимальной ВКЭ излучения [A37]. Зависимость ВКЭ от толщины LT-GaN очень сильная в области малых толщин и насыщается при толщине 10-15 нм с некоторым увеличением в области 20-25 нм. Роль этого слоя, по-видимому, состоит в том, чтобы предотвратить инжекцию дырок в КПСР InGaN/GaN из активной области [A26]. Полученная оптимальная толщина GaN барьера между КЯ InGaN и блокирующим слоем p-AlGaN составила ~5 нм. Увеличение толщины этого слоя вызывает ухудшение инжекции дырок, а уменьшение его толщины приводит к химической И термической декомпозиции КЯ InGaN, обусловленной высокой температуре роста слоя p-AlGaN. Все описанные выше структуры были выращены с использованием азот-водородной атмосферы при росте всех р-легированных слоев, что применяется для роста светодиодных структур синего диапазона. Использование азотной атмосферы при росте р-GaN позволяет дополнительно увеличить ВКЭ излучения (кривая 4 на рис 93 а).

Были проведены исследования влияния числа периодов КПСР на ВКЭ излучения. Для этого была выращена серия образцов, в которых общая толщина КПСР составляла 24 нм, но число периодов, определяемых количеством прерываний роста (GI), варьировалось от 1 до 24 (рис. 95). Как отмечалось выше, лучшие результаты для максимально длинноволнового излучения были получены для структуры с 3-периодной КПСР и p-GaN слоем, выращенным в безводородной атмосфере. Использование 24-периодной КПСР также дает лучшие результаты для длинноволнового излучения, по сравнению со структурами с 12-периодной КПСР. Рассмотрим возможные объяснения
улучшения ВКЭ, связанные с использованием КПСР и роста p-GaN в безводородной атмосфере. Во-первых, как было показано в [53], в безводородной атмосфере анизотропия скорости роста GaN:Mg менее выражена и, что более важно, p-тип проводимости нечувствителен к направлению роста.



Рис. 95. Зависимость ВКЭ от длины волны излучения для светодиодных структур с различным числом периодов КПСР и р-слоем GaN, выращенным в различных атмосферах [А37].

Эти причины следуют из меньшей равновесности условий роста GaN в отсутствие водорода. Светодиодные структуры желто-зеленого диапазона очень близки к порогу упругой релаксации и, следовательно, в них могут формироваться локальные дефектные области. Безводородная атмосфера приводит к подавлению неоднородности p-GaN, обусловленной такими локальными нарушениями свойств материала. Другая причина, это возможная декомпозиция KЯ InGaN, вызванная проникновением водорода через барьер AlGaN во время роста слоя p-GaN. Однако, исследования влияние температуры

и атмосферы при росте p-GaN на свойства желто-зеленых светодиодов показали, что данная причина маловероятна [АЗ7].

Рассмотрим влияние КПСР на структурные свойства гетероструктур желто-зеленых светодиодов. Оно может выражаться в уменьшении плотности дислокаций, релаксации напряжений, приводящей к метаморфному росту активной области, и изменению морфологии поверхности, на которую осаждается КЯ. Первые два предположения могут быть отвергнуты после анализа данных ПЭМ ВР и XRD. На рис. 96 приведены изображения АСМ трех структур с КПСР InGaN/GaN, зарощенной LT-GaN.



Рис. 96. Изображение ACM КПСР InGaN/GaN толщиной 24 нм, зарощенной LT-GaN, имеющей 3 периода, сформированной 80 сек прерываниями роста (а), 12 периодов, сформированной 20 сек прерываниями роста (б) и 24 периода, сформированной 10 сек прерываниями роста (в) [А37].

Видно, что морфология поверхности сильно зависит от числа периодов: для 12и 24-периодной КПСР наблюдается двумерный рост GaN, а для 3-периодной КПСР поверхность верхнего слоя GaN имеет трехмерные особенности. В то же время, однозначной взаимосвязи между морфологией поверхности и оптическими свойствами светодиодных структур не наблюдается.

Для светодиодных структур желто-зеленого диапазона 555-570 нм ВКЭ излучения структур с 3- и 24-периодной КПСР отличаются менее чем на 20%, в то время как ВКЭ излучения структуры с 12-и периодной КПСР значительно

ниже, несмотря на то, что морфологии поверхности 12- и 24-периодных КПСР практически одинаковы. С другой стороны, для диапазона 545-555 нм, светодиодные структуры с 12- и 24-периодными КПСР показывают одинаковую ВКЭ излучения, которая значительно ниже, чем ВКЭ излучения структуры с 3-периодной КПСР. Следовательно, морфология поверхности, повидимому, не играет определяющей роли в увеличении ВКЭ излучения. Возможной причиной влияния КПСР на ВКЭ излучения является изменение дефектной структуры формируемого материала в латеральном направлении [А37].

Таким образом, невозможно однозначно выделить причину, объясняющую сильное влияние КПСР на оптические свойства светодиодных структур желтозеленого диапазона и, возможно, наблюдаемое экспериментально увеличение ВКЭ обусловлено совместным действием указанных выше факторов.

На рис. 97 приведены зависимости ВКЭ светодиодов, собранных в стандартной флип-чип геометрии из кристаллов, изготовленных из эпитаксиальных пластин оптимизированного дизайна [АЗ7].



Рис. 97. Зависимость ВКЭ от длины волны для исследованных структур [АЗ7].

Площадь p-n перехода составляла 0.156 мм<sup>2</sup>. Никаких специальных мер для увеличения вывода света (отделение подложки, матирование поверхности) не применялось. Значения максимальной ВКЭ составляли (8-20)% для диапазона длин волн (560-530) нм. На момент публикации данных результатов эти значения соответствовали лучшим мировым значениям. Оценки IQE по методике, описанной в работе [90], дали значение IQE ~40% для длины волны 550-560 нм [A48].

# 3.3. Монолитные белые светодиоды с активной областью на основе квантовых ям InGaN и короткопериодных InGaN/GaN сверхрешеток.

В последнее время синие светодиоды практически достигли возможного максимума эффективности {100}, а необходимость использования светодиодов для высококачественного освещения предъявляет все более жесткие требования к качеству света. Оно характеризуется как в параметрах спектрального распределения (для общего освещения желателен сплошной спектр, близкий к излучению абсолютно черного тела – АЧТ с цветовой температурой Tc = 2700-5000К), так и в терминах индексов цветопередачи (CRI – Color Rendering Index): общего Ra и специальных R1-R14. Для правильного воспроизведения естественных цветов объектов необходимо иметь значения, как общего, так и всех специальных индексов цветопередачи >90 (в идеале – приближающиеся к 100). Последнее не реализуется в люминофорных белых светодиодах в связи с провалами спектральной характеристики в лазурно-голубой и красной областях спектра. Кроме того, повышение индекса цветопередачи за счет использования люминофорных покрытий комплексных приводит К уменьшению эффективности излучения за счет поглощения света в люминофорах.

Преодоление этой проблемы возможно в светодиодных источниках на основе принципа цветосмешения (RGB-подход), в котором белый свет получатся за счет суммирования излучения от светодиодов различных цветов [101, 102]. Однако, такие светодиоды достаточно дороги, поскольку требуют использования нескольких кристаллов и электронной системы управления,

обеспечивающей управление цветовыми параметрами. В случае получения эффективного излучения во всем видимом диапазоне на одной системе материалов AlInGaN, может быть создан дешевый монолитный полихромный светодиод, активная область которого содержит несколько линий, что позволит получить белый свет без использования люминофорного покрытия.

В настоящее время предложено несколько подходов к созданию монолитных источников белого света. Исторически первым и наиболее распространенным вариантом является использование активной области на основе нескольких КЯ InGaN, излучающих на различных длинах волн [103, 104, 105, 106, 107, 108, 109]. Данный подход, по сравнению с альтернативными подходами для светодиодов на основе InGaAlN, основанными, например, на легировании активной области [110, 111], использовании пассивной активной области, оптически накачиваемой излучением основной активной области [112, 113], или росте КЯ InGaN на различных фасетках профилированных темплат [114, 115], позволяет наиболее просто получить высокую эффективность излучения. Задачами создания таких светодиодов является обеспечение высокой эффективности, которая может уменьшаться из-за возникновения дефектов, обусловленных большим суммарным содержанием индия, или из-за неэффективной инжекции носителей во все КЯ в активной области. Кроме того, одной проблем монолитного ИЗ «МНОГОЯМНОГО» подхода является чувствительность оптических характеристик такого светодиода к дизайну гетероструктуры и току, протекающего через нее [108, 109].

В данном разделе будут рассмотрены два подхода к созданию монолитных белых светодиодов на основе КЯ InGaN и КПСР InGaN/GaN: безлюминофорные белые светодиоды с монолитной активной областью, излучающей в диапазоне 440-570 нм, и люминофорные белые светодиоды с монолитной активной областью, излучающей в диапазоне 440-530 нм.

3.3.1. Безлюминофорные светодиоды с монолитной активной областью на основе КЯ InGaN и КПСР InGaN/GaN.

3.3.1.1. Оптимизация дизайна гетероструктуры.

Для исследований были выращены светодиодные структуры, содержащие в активной области две КЯ InGaN толщиной 3 нм, излучающие в синем диапазоне 440-450 нм («синие» КЯ), разделенные барьером GaN толщиной ~10 нм, и КЯ InGaN толщиной ~3 нм, излучающую в желто-зеленом диапазоне 540-570 нм («зеленая» КЯ) (рис. 98) [A28, A33, A38, A46, A48].



Рис. 98. Изображение ПЭМ ВР монолитной светодиодной структуры, содержащей 12-периодную нижнюю КПСР и барьер между «синими» и «зеленой» КЯ на основе 12-периодной КПСР [А46].

«Синие» и «зеленая» КЯ были разделены барьером GaN, толщина которого изменялась в различных структурах от 8 до 24 нм, или КПСР InGaN/GaN с толщинами слоёв InGaN и GaN ~1 нм, содержащей в различных структурах 6 или 12 периодов.

Как видно из GPA изображений (рис.99 а), верхние интерфейсы «синих» КЯ являются не планарными, что связано с использованием при их росте прерываний, которые привели к вариациям в толщинах КЯ.



Рис. 99. Изображение ПЭМ ВР (a) [A38] и GPA изображения «синих» (б) и «зеленой»(в) КЯ [A48].

Плотность дислокаций в структурах составляет ~ $5 \times 10^{18}$  см<sup>-2</sup>, и образования новых дислокаций в активной области не наблюдалось. GPA изображения позволили количественно оценить толщины и составы КЯ. Толщина «синих» КЯ изменялась от 0 до 3 нм, содержание индия составило  $18\pm2\%$ . В «синих» КЯ наблюдалось формирование двумерных островков, имеющих латеральные размеры от 50 до 100 нм. Толщина «зелёной» КЯ составляла около 3 нм, среднее содержание индия в ней составило  $30\pm2\%$ .

Общие толщины КПСР составляли 27-28 нм, средняя концентрация индия в каждом слое КПСР составляла ~10-11%.

На рис. 100 приведены спектры излучения выращенных образцов (вставки) и зависимости отношения амплитуд «зелёной» и «синей» полос излучения в спектрах ЭЛ (R<sub>GB</sub>) от тока, которые определяют цветовые параметры излучения.



Рис. 100. Отношения амплитуд «зелёной» и «синей» полос ЭЛ от тока и (на вставках) спектры излучения светодиодных структур, содержащих две «синих» и одну «зелёную» КЯ InGaN, разделенных либо барьером GaN различной толщины (а), либо КПСР InGaN/GaN с различным числом периодов (б) [A46].

Для образцов с GaN барьером в области малых токов наблюдается рост который затем значения R<sub>GB</sub> с током, сменяется его падением при последующем увеличении тока. Данный эффект, как будет показано далее, приводит к сложной зависимости цветовых параметров излучения от тока. В области больших наблюдается токов уменьшение отношения  $R_{GB}$ с уменьшением толщины барьера от 24 до 12 и 8 нм (рис. 100 а).

Полученные экспериментальные результаты были качественно сопоставлены с результатами численного моделирования транспорта носителей заряда и излучения монолитной активной области, проведённого с использованием значений толщин слоёв и составов, полученных ПЭМ ВР

[A46]. Моделирование осуществлялось компанией «Софт-Импакт» с помощью коммерческого пакета SiLENSe. Было проанализировано влияние различных типов легирования (умеренное p- и п-легирование и слабое фоновое легирование п-типа) и толщин барьерного слоя GaN на отношение амплитуд зелёного и синего пиков в спектре ЭЛ. Моделирование показало высокую чувствительность отношения R<sub>GB</sub> к типу, уровню легирования и толщине барьерного GaN слоя (рис.101).



Рис. 101. Отношения амплитуд «зелёной» и «синей» полос в спектрах ЭЛ в зависимости от толщины GaN барьерного слоя при различных типах и уровнях его легирования (а). Кривые – результаты моделирования, символы – данные эксперимента для структур с GaN барьерным слоем. Концентрации доноров [D] и акцепторов [A] указаны у соответствующих кривых [A46].

При толщинах барьера менее ~10 нм отношение  $R_{GB}$  слабо зависит от легирования и определяется преимущественно заполнением неравновесными носителями заряда «синей» и «зелёной» КЯ при общем для них положении квазиуровней Ферми. Транспорт носителей заряда между КЯ играет здесь второстепенную роль. При толщинах GaN барьера более ~10 нм транспорт носителей заряда между КЯ становится преобладающим фактором, влияющим на отношение  $R_{GB}$ ; положение же квазиуровней Ферми при этом в отдельных ямах становится независимым друг от друга. В этом случае тип, уровень

легирования барьера и подвижность электронов и дырок в нём оказывает существенное влияние на общий спектр излучения монолитных светодиодных структур и, соответственно, на отношение R<sub>GB</sub>. К сожалению, прямое сопоставление результатов моделирования и полученных экспериментальных данных является не совсем корректным из-за того, что свойства барьерных слоёв GaN изучены не достаточно полно. Действительно, эти слои выращиваются при температурах, отличных от используемых для получения толстых контактных слоёв, измерения параметров которых позволяют оценить тип и уровень их легирования, также как и подвижность основных носителей заряда. Более того, подъём температуры в процессе выращивания барьерных слоёв, необходимый для получения материала высокого качества, вносит существенные различия в условия роста толстых и тонких барьеров. Тем не менее, качественно поведение измеренного отношения R<sub>GB</sub> с увеличением GaN барьера соответствует предсказанному для умеренного толщины легирования n-типа (рис. 101). Более детальное исследование качества барьеров на оптические свойства монолитных светодиодов будет рассмотрено ниже.

В случае барьера на основе КПСР R<sub>GB</sub><1 практически во всем диапазоне токов. В области больших токов наблюдается уменьшение интенсивности «зеленой» линии по отношению к интенсивности «синей» линии (рис. 100 б) при увеличении числа периодов сверхрешетки с 6 периодов (общая толщина 12нм) до 12 периодов (общая толщина 24нм). Таким образом, замена барьера GaN барьером на основе InGaN/GaN КПСР приводит к изменению характера инжекции носителей заряда.

На рис. 102 приведены зависимости ВКЭ от тока для монолитных светодиодных структур, имеющих различный дизайн [А46]. Видно, что светодиодные структуры с GaN барьером показывают более высокое значение ВКЭ по сравнению со структурами с барьерами на основе КПСР, что связано с меньшим общим содержанием индия в активной области и, соответственно, с меньшим числом дефектов, либо с особенностями инжекции носителей заряда в КЯ. Максимальную эффективность излучения из исследованных структур

имеет структура с барьером GaN толщиной 8 нм, что обусловлено тем, что в этой структуре эффективность «синей» полосы является определяющей.



Рис. 102. Зависимости ВКЭ от тока для монолитных светодиодных структур с различным типом барьеров [А46].

Светодиодные структуры с барьером GaN толщиной 12 нм и 24 нм, в которых интенсивность «зелёной» линии сравнима с интенсивностью «синей» линии, имеют более низкую эффективность излучения, которая незначительно, на 20-25%, превышает эффективность излучения структур с барьерами на основе КПСР. Для структуры с 24 нм GaN барьером в зависимости квантовой эффективности от тока в области малых токов (5-10 мА) наблюдается Nобразная особенность, которая сопровождается увеличением интенсивности «зелёной» свидетельствует существовании области линии, что 0 нестабильности в инжекции носителей заряда в случае широкого GaN барьера. ВКЭ излучения светодиодных структур с 6- и 12-периодными КПСР в качестве барьеров практически одинаковы, то есть увеличение числа периодов КПСР не приводит к значительному ухудшению структурного качества активной области.

Для реализации белого света с высоким CRI необходимо создать активную область, содержащую по меньшей мере три КЯ. Поскольку смещение излучения КЯ InGaN в красную область спектра приводит к значительному падению эффективности излучения [72, 116], были проведены исследования, позволяющие оценить инжекцию носителей и изменение ВКЭ при размещении в активной области КЯ, излучающих при трёх различных длинах волн в диапазоне 430-550 нм (рис. 103) [A46].



Рис. 103. Спектры ЭЛ и зависимости ВКЭ от тока (на вставке) для структуры, содержащей три КЯ InGaN [A46].

Активная область содержала две КЯ, излучающие при 430 нм, одну КЯ с длиной волны излучения ~485 нм и одну КЯ с длиной волны излучения ~550 нм, разделённых барьером GaN толщиной 8 нм. КЯ, излучающие при 430 нм 485 нм И выращивались с применением прерываний роста, трансформирующих КЯ в массив островков. Из приведённых спектров ЭЛ видно, что интенсивности всех линий излучения в структуре с тремя полосами излучения практически совпадают, что свидетельствует об эффективной носителей заряда во все КЯ, что может быть связано с инжекции формированием островков. Из сравнения зависимостей ВКЭ от тока для структур с двумя и тремя полосами излучения (вставка на рис. 103) видно, что

осаждение дополнительной КЯ не приводит к катастрофическому падению эффективности.

Рассмотрим далее более подробно основные факторы, определяющие эффективность излучения монолитных светодиодов, в зависимости от их дизайна [A48]. Полученные экспериментальные результаты были сопоставлены с результатами моделирования, проведенного компанией «Софт-Импакт» на основе ABC-модели, развитой в работах [117, A48, 90]. На рис. 104 представлены зависимости ВКЭ от относительного вклада «зеленой» линии в общий спектр излучения при токах 1, 10 и 100 мА.



Рис. 104. ВКЭ излучения монолитных структур с различными барьерными слоями в зависимости от относительного вклада «зеленой» линии в общий спектр излучения. Символы – экспериментальные точки [А48].

Крайние правая и левая точки на этих рисунках соответствуют IQE излучения светодиодных структур, содержащих только «зеленую» или «синие» КЯ, соответственно. Для данных стандартных светодиодных гетероструктур

значения ІОЕ составляют 43% и 71%, соответственно. Видно, что для монолитных светодиодных структур независимо от типа барьера наблюдается уменьшение значения IQE по сравнению со стандартными структурами. Причем данное различие максимально для малых токов и уменьшается с ростом тока через структуру. Расчетные зависимости, в которых в качестве исходных данных, описывающих рекомбинацию в «синей» и «зеленой» КЯ в монолитной структуре, использовались данные, полученные для стандартных структур, плохо согласуются с полученными экспериментальными результатами (пунктирные линии на рис. 104). Это расхождение может быть объяснено ухудшением структурного качества «зеленой» КЯ в активной области монолитной структуры. Данное ухудшение может быть учтено при расчетах увеличением коэффициента А в АВС модели, отвечающего за безызлучательную рекомбинацию [А48]. С учетом деградации свойств «зеленой» КЯ можно достичь хорошего согласия экспериментальных и расчетных зависимостей (сплошные линии на рис. 104).

Рассмотрим возможные причины ухудшения оптических свойств «зеленой» КЯ. Во-первых, в монолитной структуре наблюдается примерно 10-15 нм длинноволновый сдвиг линии излучения «зеленой» КЯ по отношению к соответствующей стандартной структуре. Это означает более эффективное вхождение индия, которое может стимулировать формирование дислокацией, увеличивающих безызлучательную рекомбинацию. Однако, исследования ПЭМ ВР не выявили формирование дополнительных дефектов в активной области. Другая причина ухудшения эффективности излучения обусловлена неоптимальным дизайном при осаждении «зеленой» КЯ, по сравнению со стандартной структурой. Неоптимальный дизайн обусловлен тем, что в стандартной структуре КЯ осаждается на специально спроектированную КПСР и LT-GaN слой, а в случае монолитной структуры «зеленая» КЯ осаждается на барьерный слой GaN или КПСР, имеющую другой дизайн. Как было отмечено выше, нельзя определенно назвать основную причину влияния нижней КПСР и LT-GaN слоя эффективность излучения на зеленых светодиодов И,

следовательно, однозначно выявить причину, ухудшающую IQE излучения «зеленой» КЯ в монолитной структуре. В случае GaN барьера, который растится при низкой температуре, большую роль могут играть точечные дефекты донорного или акцепторного характера, влияние которых было рассмотрено выше (рис. 101). К сожалению, детальное исследование влияния легирования барьера на свойства монолитных структур невозможно т.к. электрические свойства этого барьера неизвестны.

Зависимость ширин и интенсивностей «синей» и «зеленой» линий излучения от тока приводит к токовой зависимости цветовых характеристик излучения монолитного светодиода. На рис. 105 приведены цветовые координаты излучения исследованных монолитных светодиодных гетероструктур.



Рис. 105. Цветовые координаты излучения исследованных монолитных светодиодных гетероструктур в зависимости от тока [А48].

Видно, что увеличение тока от 5 до 20 мА вызывает для структур с любым типом барьеров смещение цветовых координат по линии, соединяющей монохроматические длины волн 470 и 553 нм. На рис. 106 приведена зависимость индекса цветопередачи (CRI) от световой эффективности

излучения (LER) для монолитных структур различного дизайна. CRI структур с 8 нм GaN барьером и 24-х периодной КПСР невозможно определить из-за того, что их цветовые координаты очень сильно сдвинуты в синюю область спектра. Интересно отметить, что значения CRI и LER для монолитного светодиода значительно превышают предсказанные соответствующие значения (максимальное значение CRI = 20 и максимальное значение LER = 430 лм/Bt) [100] оптимизированного дихромного белого для источника света с коррелированной цветовой температурой (ССТ) равной 4870 К.



Рис. 106. Цветовые координаты излучения исследованных монолитных светодиодных гетероструктур в зависимости от тока (а). СRI в зависимости от световой эффективности излучения [A48].

Основная причина этого обусловлена тем, что ССТ для исследованных монолитных структур составляет 5000-15000 К для структур с различным типом барьеров [A28, A48].

Зависимость цветовых характеристик от тока для структур с барьерами на основе GaN и КПСР сильно различаются (рис. 107). Для образца с барьером на основе 6-периодной (толщиной 12 нм) КПСР наблюдается монотонное смещение линии излучения в зеленую область спектра. Для образца с 12 нм GaN барьером наблюдается более сложная зависимость цветовых координат от

тока. Увеличение тока от 1 до 20 мА приводит к сдвигу цветовых координат в зеленую область спектра, а последующее увеличение тока до 100 мА сдвигает цветовые координаты обратно в синюю область спектра.



Рис. 107. Цветовые координаты излучения исследованных монолитных структур, разделённых либо КПСР InGaN/GaN, либо барьером GaN, при различных токах через структуру [A46].

С точки зрения практического применения, токовая зависимость цветовых координат является отрицательным эффектом, поскольку требуется точное поддержание тока, протекающего через светодиод. С другой стороны, открывается возможность управления цветовыми параметрами излучения монолитных светодиодов, используя, например, широтно-импульсную модуляцию протекающего через светодиод тока.

#### 3.3.1.2. Управление цветовыми параметрами монолитного светодиода.

В данном разделе рассмотрена возможность управления цветовыми параметрами излучения монолитного белого светодиода, используя зависимость его спектральных характеристик от тока [А43]. В случае монолитной светодиодной структуры для «синих» и «зеленой» КЯ характерен различный ход зависимости их ВКЭ от тока (рис. 108), что и позволяет интенсивностей изменять отношение И, следовательно, цветовые ИХ

координаты. Для проведения исследований из выращенных структур были изготовлены светодиоды, имеющие конструкцию, описанную в работе [118]. Изменение цветовых параметров осуществлялось в непрерывном и импульсном режиме, используя импульсы длительностью от 100 нс до 100 µs и коэффициентом заполнения от 1% до 95%. Диапазон токов через светодиод составлял от 100 мА до 2 А, обеспечивая световой поток до 3 лм.



Рис. 108. Зависимость ВКЭ «синей» и «зеленой» линий излучения от тока в монолитном светодиоде [А43].

Видно, что в области малых токов значения ВКЭ «синей» и «зеленой» линий излучения близки, а в области больших токов доминирующей в спектре становится «синяя» линия. В таком случае, при использовании импульсного питания, задавая амплитуду импульса, можно задавать плотность тока через светодиод и, следовательно, соотношение интенсивностей линий излучения, а изменяя коэффициент заполнения, можно поддерживать требуемый уровень светового потока. Чтобы предотвратить перегрев светодиода, исследования были проведены при коэффициенте заполнения 1%. Из рис. 109 а видно, что даже при таком коэффициенте заполнения можно обеспечить примерно трехкратное изменение отношения интенсивностей «зеленой» и «синей» линий излучения, изменяя одновременно амплитуду импульса и его ширину.



Рис. 109. Зависимость отношения интенсивностей «зеленой» и «синей» линий излучения от длительности импульса при различных токах (а) и зависимость ССТ от коэффициента заполнения импульса при длительности импульса 100 нс и 100 µс [A43].

Например, изменяя ток в диапазоне 0.1-1 А, одновременно уменьшая длительность импульса, чтобы сохранить постоянной среднюю электрическую мощность, можно изменить отношение интенсивностей «зеленой» и «синей» линий излучения от ~0.8 до ~0.2. Это также дает возможность сохранить выходную мощность и общий световой поток светодиода постоянными. На рис. 109 б приведены зависимости ССТ от коэффициента заполнения импульса при токе 300 мА. Видно, что применяя импульсное возбуждение можно изменять значение ССТ более, чем в три раза, переходя от «холодного» излучения к «нейтральному».

### 3.2. Монолитные белые светодиоды с люминофорным покрытием.

В предыдущем разделе были исследованы безлюминофорные монолитные белые светодиоды, ключевой проблемой которых является достаточно низкая эффективность излучения, связанная со сложностью создания активной области оптимального дизайна. Кроме того, полученные результаты показывают, что модельный дихромный монолитный источник

белого света (на основе излучения двух источников с длинами волн 430-440 и 550-560 нм и экспериментально определёнными ширинами линий) не позволяет получить высокий индекс цветопередачи, который требуется для источников высококачественного освещения. В данном разделе приведены результаты исследований светодиодных гетероструктур с монолитной полихромной активной областью, излучающей в диапазоне 430-530 нм, для получения белого света совместно с люминофорным покрытием [А49]. Такой подход позволяет, с одной стороны, сохранить высокую эффективность излучения, а с другой стороны, - реализовать высокий индекс цветопередачи.

Наибольшее значение CRI=99.1 было продемонстрировано в работе [119], в которой рассматривался источник белого света на основе светодиода с длиной волны 405 нм и трех люминофоров. Светоотдача такого источника составляла 59 лм/Вт, что, в принципе, достаточно для практических применений. Однако, использование нескольких люминофорных покрытий ограничивает эффективность излучения большими стоксовыми потерями. Альтернативный RGB подход к получению высокого CRI, основанный на использовании нескольких светодиодов с различной длиной волны, с одной стороны, не позволяет получить высокую эффективность из-за проблемы «зеленой долины» [120, 121], с другой стороны, CRI ограничен из-за узости линий излучения светодиодов. Компромиссным способом получения белого света с высоким CRI является концепция «Бриллиантовой Смеси» [122], основанная на использовании синего III-N светодиода с зеленым люминофором и красного AlInGaP светодиода. Данный подход позволяет получить CRI более 90 при светоотдаче более 100 лм/Вт.

В работе [123] было проведено теоретическое исследование возможности использования двухцветного светодиода с желтым YAG : Ce3+ люминофором и была показана возможность увеличения CRI от 78 (CCT = 4000 K при  $\lambda p$  = 475 нм) для белого светодиода на основе синего светодиода с люминофором до 91 (CCT = 5800 K при  $\lambda 1$  = 435 нм и  $\lambda 2$  = 490 нм) для дихромного светодиода. Однако, экспериментальных результатов в данной работе не было, а

использование только одного люминофорного покрытия не позволило получить белый свет с высоким CRI. Экспериментальное исследование двухцветных (435 нм и 460 нм) монолитных светодиодов было проведено в работе [124] компанией Osram и было показано увеличение CRI (Ra) от 67 до 76 при CCT=6500 К. Однако, в данной работе инжекция осуществлялась только в КЯ, излучающие при 435 нм, а КЯ, излучающие при 460 нм, возбуждались оптически через частичное поглощение коротковолнового излучения, что не позволяло достичь высокой эффективности.

В данном разделе экспериментально показано, что существует возможность реализовать высокий CRI в светодиоде с монолитной двухцветной активной областью, излучающей в диапазоне 430-490 нм, используя смесь двух люминофоров, излучающих в зеленой и красной областях спектра [A49].

Для исследований были выращены светодиодные структуры, содержащие в активной области КЯ, излучающую в синей области спектра («синяя» (blue) КЯ, 430-435 нм) и КЯ, излучающую в лазурной области спектра («лазурная» (cyan) КЯ, 460-490 нм). Обе КЯ имели толщину 3 нм и были осаждены на 12периодную КПСР InGaN/GaN, то есть в качестве стандартного был взят дизайн синей светодиодной структуры. При росте КЯ применялись прерывания роста в азот-водородной атмосфере. Были исследованы структуры с различной последовательностью КЯ - «синяя» - «лазурная» и «лазурная» - «синяя». Из сравнения спектров ЭЛ выращенных светодиодных структур (рис. 110а,б) можно сделать следующие выводы. Во-первых, последовательность КЯ «синяя» - «лазурная» (по аналогии с рассмотренными выше монолитными светодиодными структурами, содержащими «синие» «зеленую» КЯ) И характеризуется низкой интенсивностью «синей» линии, относительно «лазурной» (рис. 110 а). Последовательность КЯ «лазурная» - «голубая» обеспечивает практически одинаковые интенсивности соответствующих линий.



Рис. 110. Спектры ЭЛ (а,в,г) и ВКЭ (б) исследованных структур различного дизайна. Спектр ЭЛ (д) и ВКЭ, положение и ширина спектра (е) собранного светодиода при различных значениях тока (д) [А49].

Во-вторых, ВКЭ светодиодной структуры с последовательностью КЯ «лазурная» - «голубая» в активной области практически совпадает с ВКЭ синей светодиодной структуры (рис. 110 б), что свидетельствует о том, что такой дизайн не приводит к ухудшению ВКЭ в отличие от рассмотренных выше безлюминофорных монолитных светодиодов. Исследования спектров излучения от толщины барьера между КЯ и от его легирования (рис. 110 в,г) показали возможность управлять соотношением линий излучения изменяя дизайн структуры.

Из выращенных структур были изготовлены тестовые кристаллы, имеющие размеры мезы 240×320 µм<sup>2</sup> (рис. 111 а,б), спектральные параметры рис. 111 д,е. Никаких которых приведена на специальных методов, обеспечивающих эффективный вывод света (отделение подложки, профилированных подложек) не применялось. Ha использование изготовленных кристаллах с использованием методики, развитой в работе [90], проводились измерения IQE и ВКЭ в зависимости от тока. Были получены следующие значения: максимальная IQE=63% (что близко К лучшим значениям, полученным для синих светодиодов) и максимальная ВКЭ=9.3%. Низкое значение ВКЭ обусловлено очень низкой эффективностью вывода света из тестовых кристаллов, которая составила 14.8%. Для получения белого света была использована коммерческая люминофорная пластиковая панель (RF3000K-96) толщиной 1 мм, произведенная компанией Phosphortech Corporation. Она содержала смесь красного и зеленого люминофора. Данная смесь обеспечивала получение белого света с CRI=96 и CCT=3000 К при возбуждении синим светом с длиной волны 450 нм. Для изучения цветовых параметров был использован люминофорный конвертер, имеющий высоту 20 мм и диаметр 18 мм, с удаленным люминофором (рис. 111 в). Кристалл светодиода располагался на дне в центре цилиндра. Спектры излучения светодиода с люминофором приведены на рис. 111 г. Сравнение этих спектров со спектрами светодиодного кристалла (рис. 110 д) показало перераспределение

интенсивностей излучения «лазурной» и «голубой» линий излучения, обусловленной поглощением света в люминофоре.



Рис. 111. Схематическое изображение тестового светодиодного кристалла (а), его микрофотография (б), фотография люминофорного конвертора (в), спектры ЭЛ белого светодиода с нанесенным люминофором (г) и цветовые координаты излучения (д). Верхняя вставка на рис. (д) – цветовые координаты светодиодного кристалла с люминофором, нижняя вставка - цветовые координаты светодиодного кристалла без люминофора (цвета символов соответствуют цветам кривых на рис. 110 д и 111 г) [А49].

Видно, что результирующий спектр излучения близок к излучению абсолютно черного тела (пунктирная линия на рис. 111 г). Для обеспечения цветового баланса, «синяя» линия в спектре излучения должна иметь большую

интенсивность, что обусловлено ее большим поглощением люминофором. Обеспечить необходимое соотношение линий можно, как было показано выше, изменением толщины или легированием барьера между КЯ (рис. 110 в,г). Необходимо отметить, что для данных структур наблюдается относительная стабильность цветовых координат в диапазоне токов 30-190 мА (рис. 111 д).

Рис. 112 показывает изменение основных спектральных параметров светодиода с током.



Хроматическая координата х

Рис. 112. Зависимость цветовых координат от тока (размеры кружков показывают увеличение потока излучения) [А49].

Видно, что по сравнению с безлюминофорным белым светодиодом изменения положения излучения с током в пространстве цветовых координат невелико. ССТ достаточно стабильна с током, уменьшаясь от ~3500 К при 1 мА до ~3300 К при 200 мА (рис. 113 а). LER изменяется в диапазоне 262-282 лм/Вт и имет максимум при 10 мА. CRI был определен используя, 8 или 14 стандартных шаблонов. При малых токах, когда относительная интенсивность «синей» линии выше, Ra(8)=96, что совпадает с данными поставщика люминофора. При увеличении тока (увеличении относительного вклада «лазурной» линии) Ra(8) увеличивается до 98.6 при 80 мА. Дальнейшее увеличение тока приводит к падению Ra(8), что согласуется с коротковолновым сдвигом и уширением

линии излучения светодиода (рис. 110 е). Максимальное значение Ra(14) составляет 97.4.



Рис. 113. Цветовые характеристики излучения в зависимости от тока, через светодиод. СRI и ССТ определенные по 8 (Ra(8)) и по 14 (Ra(14)) шаблонам (a), светоотдача и LER светодиода (б).

Для того, чтобы оценить вклад «лазурной» линии в CRI были проведены измерения зависимости CRI от тока для белого светодиода на основе кристалла синего светодиода и используемого люминофора. Такой белый светодиод показал Ra(8)=84 при малых токах, с увеличением тока Ra(8) увеличился до 96, а затем уменьшился до 95. Таким образом, «лазурная» линия вносит существенный вклад в достижение предельных значений CRI.

Как уже отмечалось выше, тестовые кристаллы, которые были использованы для измерения цветовых параметров, обладали низкой эффективностью вывода света (LEE=14.8%), что привело к низкой светоотдаче,

которая составила 11 лм/Вт для белого и 4 лм/Вт для монолитного светодиодов (рис. 113 б). Оптимизированный flip-chip дизайн кристалла [117] обеспечил LEE=43% и позволил получить максимальную светоотдачу 33 лм/Вт без ухудшения Ra(8). Потенциально, используя современные подходы к конструкции кристалла светодиода и его сборке [125, 126], можно получить LEE до 90%. Это позволит реализовать светоотдачу в люминофорных белых светодиодах с монолитной активной областью до ~50-70 лм/Вт, что достаточно для практического применения.

# 3.4. Выводы.

Проведенные исследования инжекционных светоизлучающих структур различного типа на основе InGaAlN, содержащих в активной области КПСР InGaN/GaN и KЯ InGaN, позволяют сделать следующие выводы.

- 1. Использование КПСР InGaN/GaN в активной области светодиодных гетероструктур, излучающих в синей и желто-зеленой областях спектра, позволяет реализовать высокую эффективность излучения за счет улучшения структурного совершенства активной области и обеспечения эффективной инжекции носителей.
- 2. Использование КПСР InGaN/GaN в качестве барьеров между КЯ InGaN, излучающими при различных длинах волн, в монолитных светодиодных гетероструктурах, позволяющих без использования люминофора получить белый свет, обеспечивает эффективный транспорт носителей в КЯ, даже в случае больших толщин барьеров.
- Использование зависимости цветовых параметров излучения от тока в InGaAlN светодиодах с монолитной активной областью позволяет динамически управлять параметрами белого света.
- Использование InGaAlN монолитной светодиодной гетероструктуры совместно с люминофором позволяет получить высокие значения ВКЭ и предельные значения CRI.

## Заключение

В диссертационной работе приведены результаты исследований влияния условий роста методом ГФЭ МОС (температуры, потока индия, давления и газовой атмосферы в реакторе (росте и прерываниях роста InGaN в азотводородной атмосфере)) на формирование In-обогащенных областей в КЯ InGaN, обеспечивающих трехмерную локализацию носителей вплоть до комнатной температуры. Изучено влияние технологических условий на КЯ структурные И оптические свойства InGaN И на параметры светоизлучающих приборов с активной областью на основе таких КЯ.

В ходе диссертационной работы были получены следующие основные результаты:

- 1. Показано, применение прерываний роста в азот-водородной ЧТО атмосфере после осаждения КЯ InGaN позволяет трансформировать сплошную КЯ яму в массив изолированных островков с латеральными размерами от единиц до десятков нанометров. Увеличение давление при росте КЯ стимулирует данный процесс трансформации. Помимо образования островков, имеющих размеры в десятки нанометров, определенные технологические условия роста (такие как прерывания роста в азот-водородной атмосфере, рост КЯ InGaN/GaN методом термоциклирования) позволяют формировать выраженные Inобласти, обогащенные имеющие латеральные размеры единицы нанометров, т.е. квантовые точки, с плотностью до 3×10<sup>12</sup> см<sup>-2</sup>. Формирующиеся квантовые точки определяют оптические свойства гетероструктур InGaN/GaN вплоть до комнатной температуры и высоких плотностей возбуждения.
- Рост КЯ InGaN в азот-водородной атмосфере при низком давлении (до 200 мбар) позволяет получать однородные по распределению атомов индия квантовые ямы.
- 3. На основе разработанных методов роста КЯ InGaN были выращены новые типы III-N гетероструктур. Показано, что использование

циклических прерываний при росте InGaN в азот-водородной атмосфере позволяет формировать КПСР InGaN/GaN с толщинами слоев ~1 нм и большим количеством периодов (вплоть до 60-ти периодов). Показано, что для III-N гетероструктур применим метод субмонослойного роста КЯ InGaN, который позволяет стимулировать формирование в КЯ Inобогащенных областей. Исследованы структурные и оптические свойства гетероструктур In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/In<sub>y</sub>Ga<sub>1-y</sub>N и InGaN/AlGaN и показано увеличение энергии локализации носителей в таких структурах. Были выращены и InAlN/GaN/InGaN исследованы композитные гетероструктуры, позволяющие трансформировать КЯ InGaN в массив изолированных островков и обеспечивающие излучение вплоть до красной области Предложен новый формирования спектра. метод наноструктур InGaN/GaN, излучающих в длинноволновом спектральном диапазоне, основанный на *in-situ* наномаскировании.

4. Разработанные методы роста позволили создать светодиодные структуры синего и желто-зеленого диапазонов. Прерывания роста, также как увеличение давления, в случае эпитаксиального роста светодиодных структур синего диапазона, позволяют реализовать высокую эффективность излучения за счет трансформации сплошной КЯ в массив изолированных островков, которые подавляют транспорт носителей в плоскости КЯ к областям дефектов, высокая плотность которых характерна для III-N гетероструктур, выращенных на инородных подложках. Использование КПСР InGaN/GaN в активной области светодиодных структур позволяет улучшить структурное совершенство, свойства реализовать эффективность инжекшионные И высокую излучения. Разработан дизайн светодиодных структур желто-зеленого диапазона, основанный на использовании последовательности КПСР InGaN/GaN, низкотемпературного слоя LT-GaN и одиночной KЯ InGaN высокого состава.

5. Изучены гетероструктуры для источников белого света с монолитной активной областью на основе КЯ InGaN, излучающих в различных спектральных диапазонах. Показано, что использование в качестве барьеров, разделяющих КЯ, КПСР InGaN/GaN позволяет реализовать эффективную инжекцию во все КЯ в активной области. Изменяя параметры барьеров, разделяющих КЯ (толщины, состав, легирование), влиять на соотношение интенсивностей линий можно излучения отдельных КЯ и, следовательно, на цветовые параметры излучения. Зависимость спектральных параметров излучения от плотности тока дает возможность создавать белые светодиоды с монолитной активной областью с динамически изменяющимися цветовыми параметрами. Использование светодиодной гетероструктуры с монолитной активной областью совместно с люминофорным покрытием позволяет создавать светодиоды, имеющие высокие значения ВКЭ и предельные значения CRI.

Таким образом, в ходе работы проведено комплексное исследование технологических подходов к росту In-содержащих светоизлучающих III-N гетероструктур методом газофазной эпитаксии ИЗ металлорганических соединений, исследованы их структурные свойства В зависимости от технологических условий, вскрыта их взаимосвязь с оптическими свойствами, разработана воспроизводимая технология создания гетероструктур ДЛЯ высокоэффективных источников излучения видимого диапазона и источников белого света, пригодных для применения в системах высококачественного и интеллектуального освещения.

В заключение считаю своим приятным долгом поблагодарить за своих коллег, сотрудников лаборатории физики поддержку и помощь полупроводниковых гетероструктур Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе, других лабораторий Центра Физики наногетероструктур, Микроэлектроники РАН, чьи исследования сотрудников НТЦ внесли значительный вклад в эту работу. Выражаю искреннюю признательность к.ф.к.ф.-м.н. Е.Е. Заварину, М.Н. В.В. Лундину, к.ф.-м.н. А.В. Сахарову, А.Е. Николаеву, к.ф.-м.н. Н.А Черкашину, член-корр. РАН д.ф.-м.н. Н.Н. Леденцову, совместно с которыми был выполнен цикл работ по разработке технологии эпитаксиального роста III-N гетероструктур. Отдельную благодарность хочу выразить член-корр. РАН д.ф.-м.н. В.М. Устинову за постоянный интерес к работе и неоценимую поддержку. Я также благодарен к.ф.-м.н. С.О. Усову, к.ф.-м.н. И.Л. Крестникову, к.ф.-м.н. Д.С. Сизову, к.ф.-м.н. В.С. Сизову, к.ф.-м.н. Н.В. Крыжановкой, и многим другим сотрудникам ФТИ.

Работа посвящена памяти моей жены Юли.

## Публикации по теме диссертации

- [A1] Сахаров А.В., Лундин В.В., Семенов В.А., Усиков А.С., Леденцов Н.Н., Цацульников А.Ф., Байдакова М.В. Лазерная генерация в вертикальном направлении в многослойных квантово-размерных InGaN/GaN гетероструктурах. // Письма в ЖТФ. – 1999 – Т. 25 (12) - Стр. 1-9.
- [A2] Sakharov A.V., Lundin W.V., Krestnikov I.L., Semenov V.A., Usikov A.S., Tsatsul'nikov A.F., Musikhin Yu.G., Baidakova M.V., Alferov Zh.I., Ledentsov N.N., Hoffmann A., Bimberg D. Optical Properties of Structures with Single and Multiple InGaN Insertions in a GaN Matrix // Phys. Stat. Sol.(b) – 1999 – Vol. 216 - Pp.435-440.
- [A3] Krestnikov I.L., Lundin W.V., Sakharov A.V., Semenov V.A., Usikov A.S., Tsatsul'nikov A.F., Alferov Zh.I., Ledentsov N.N., Hoffmann A., Bimberg D. Photopumped InGaN/GaN/AlGaN Vertical Cavity Surface Emitting Laser Operating at Room Temperature. // Phys. Stat. Sol.(b) – 1999 – Vol. 216 -Pp.511-515.
- [A4] Sakharov A.V., Lundin W.V., Krestnikov I.L., Semenov V.A., Usikov A.S., Tsatsul'nikov A.F., Musikhin Yu.G., Baidakova M.V., Alferov Zh.I., Ledentsov N.N., Hoffmann A., Bimberg D. Surface-mode lasing from stacked InGaN insertions in a GaN matrix. // Appl. Phys. Lett. – 1999 – Vol. 74 (26) – Pp. 3921-3923.
- [A5] Krestnikov I.L., Lundin W.V., Sakharov A.V., Semenov V.A., Usikov A.S., Tsatsul'nikov A.F., Alferov Zh.I., Ledentsov N.N., Hoffmann A., Bimberg D. Room-temperature photopumped InGaN/GaN/AlGaN vertical-cavity surfaceemitting laser. // Appl. Phys. Lett. – 1999 – Vol. 75 (9) – PP.1192-1194.
- [А6] Крестников И.Л., Сахаров А.В., Лундин В.В., Мусихин Ю.Г., Карташова А.П., Усиков А.С., Цацульников А.Ф., Леденцов Н.Н., Алферов Ж.И., Сошников И.П., Hahn E., Neubauer B., Rosenauer A., Litvinov D., Gerthsen D., Plaut A.C., Hoffmann A., Bimberg D. Лазерная генерация в

вертикальном направлении в структурах InGaN/GaN/AlGaN с квантовыми точками InGaN. // ФТП – 2000 - Т. 34 (4) – стр. 496-503.

- [A7] Krestnikov I.L., Sakharov A.V., Lundin W.V., Usikov A.S., Tsatsul'nikov A.F., Ledentsov N.N., Alferov Zh.I., Soshnikov I.P., Gerthsen D., Plaut A.C., Holst J., Hoffmann A., Bimberg D. Lasing in Vertical Direction in Structures with InGaN Quantum Dots // Physica Status Solidi (a) – 2000 – Vol. 180 - Pp.91-96.
- [A8] Sakharov A.V., Usikov A.S., Lundin W.V., Tsatsulnikov A.F., Tu Ru Chin, Yin Sun Bin, Chi Jim Y. Comparative study of InGaN/GaN structures grown by MOCVD using various growth sequences // Phys Status Solidi b – 2001 – Vol. 228 (1) - Pp.95-98.
- [A9] Sakharov A.V., Usikov A.S., Lundin W.V., Bedarev D.A., Tsatsulnikov A.F., Zavarin E.E., Besulkin A.I., Ledentsov N.N., Bimberg D. Laser-like emission in the blue-green spectral range from InGaN/GaN/AlGaN structures under optical pumping // Phys Status Solidi (a) – 2001 - Vol. 188 (1) - Pp.91-94.
- [A10] Lundin W.V., Sakharov A.V., Usikov A.S., Bedarev D.A., Tsatsulnikov A.F., Tu Ru Chin, Yin Sun Bin, Chi Jim Y. Growth, optical and structural characterization of InGaN/GaN/AlGaN optically pumped lasers // Phys Status Solidi (a) – 2001 – Vol. 188 (1) - Pp.73-77.
- [A11] Musikhin Yu.G., Gerthsen D., Bedarev D.A., Bert N.A., Lundin W.V., Tsatsulnikov A.F., Sakharov A.V., Usikov A.S., Alferov Zh.I., Krestnikov I.L., Ledentsov N.N., Hoffmann A., Bimberg D. Influence of metalorganic chemical vapor deposition growth conditions on In-rich nanoislands formation in InGaN/GaN structures // Appl. Phys. Lett. – 2002 – Vol. 80 (12) - Pp. 2099-2101.
- Lundin [A12] Krestnikov I.L., Sakharov A.V., W.V., Usikov A.S., Yu.G., Tsatsulnikov A.F., Musikhin Gerthsen N.N.. D., Ledentsov Hoffmann A., Bimberg D. Time-resolved studies of InGaN/GaN quantum dots // Phys Status Solidi (a) – 2002 – Vol. 192 (1) - Pp.49–53.

- [A13] Krestnikov I.L., Ledentsov N.N., Hoffmann A., Bimberg D., Sakharov A.V., Lundin W.V., Tsatsul'nikov A.F., Usikov A.S., Alferov Zh.I., Musikhin Yu.G., Gerthsen D. Quantum dot origin of luminescence in InGaN-GaN structures. // Phys. Rev. B – 2002 – Vol. 66 - P. 155310.
- [A14] Сизов Д.С., Сизов В.С., Заварин Е.Е., Лундин В.В., Фомин А.В., Цацульников А.Ф., Леденцов Н.Н. Кинетика и неоднородная инжекция носителей в нанослоях InGaN // Физика и техника полупроводников – 2005 – Т. 39 (2) – Стр. 264-268.
- [A15] Сизов Д.С., Сизов В.С., Заварин Е.Е., Лундин В.В., Фомин А.В., Цацульников А.Ф., Леденцов Н.Н. Исследование статистики носителей в светодиодных структурах InGaN/GaN. // Физика и техника полупроводников – 2005 – Т. 39 (4) – Стр. 492-496.
- [A16] Сизов Д.С., Сизов В.С., Лундин В.В., Цацульников А.Ф., Заварин Е.Е., Леденцов Н.Н. Исследование электронного спектра структур с квантовыми точками InGaN с помощью спектроскопии фототока. // Физика и техника полупроводников – 2005 – Т. 39 (11) – Стр. 1350-1353.
- [A17] Sizov D.S., Sizov V.S., Lundin V.V., Zavarin E.E., Tsatsul`nikov A.F., Vlasov A.S., Musikhin Yu.G., Ledentsov N.N., Mintairov A.M., Sun K., Merz J. Localization of non-equilibrium carriers in deep InGaN quantum dots and its impact on the device performance // Phys Status Solidi (a) – 2006 – Vol. 3 (6) - Pp: 2043–2047.
- [А18] Сизов В.С., Сизов Д.С., Михайловский Г.А., Заварин Е.Е., Лундин В.В., Цацульников А.Ф., Леденцов Н.Н. Исследование латерального транспорта носителей в структурах с квантовыми точками InGaN в активной области // Физика и техника полупроводников – 2006 – Т. 40 (5) – Стр. 589-596.
- [А19] Сизов Д.С., Заварин Е.Е., Леденцов Н.Н., Лундин В.В., Мусихин Ю.Г., Сизов В.С., Сурис Р.А., Цацульников А.Ф. Неравновесная заселенность носителей в структурах с глубокими квантовыми точками InGaN // Физика и техника полупроводников – 2007 – Т. 41 (5) – Стр. 595-608.

- [A20] Usov S.O., Tsatsulnikov A.F., Lundin V.V., Sakharov A.V., Zavarin E.E., Sizov D.S., Musikhin Y.G., Bert N.A., Arakcheeva E.M., Ledentsov N.N. Analysis of the local indium composition in ultrathin InGaN layers. // Semicond. Sci. Technol. – 2007 – Vol.22 – Pp. 528-532.
- [A21] Сизов В.С., Цацульников А.Ф., Лундин В.В. Нановключения InGaN в матрице AlGaN. // Физика и техника полупроводников – 2008 – Т. 42 (7) – Стр. 804-809.
- [A22] Сизов В.С., Гуткин А. А., Сахаров А. В., Лундин В. В., Брунков П. Н., Цацульников А.Ф. Фазовый распад и безызлучательная рекомбинация носителей в активных областях светоизлучающих приборов на основе InGaN квантовых точек в матрице GaN или AlGaN. // Физика и техника полупроводников – 2009 – Т. 43 (6) - Стр.836-840.
- [A23] Сахаров А. В., Лундин В. В., Заварин Е. Е., Синицын М. А., Николаев А. Е., Усов С. О., Сизов В. С., Михайловский Г. А., Черкашин Н. А., Нуtch M., Hue F., Яковлев Е. В., Лобанова А.В.,.Цацульников А. Ф Влияние релаксации напряжений на формирование активной области InGaN/(Al)GaN гетероструктур для светодиодов зеленого диапазона // Физика и техника полупроводников – 2009 – Т. 43 (6) - Стр.841-846.
- [А24] Заварин Е.Е., Сахаров А.В., Лундин В.В., Давыдов Д.В., Сизов В.С., Цацульников А.Ф. Формирование индий-обогащенных островковых структур методом in-situ наномаскирования // Письма в Журнал технической физики – 2009 – Т. 35 (21) - Стр.88-95.
- [А25] Гончаров В.В., Корытов М.Н., Брунков П.Н., Лундин В.В., Заварин Е.Е., Цацульников А.Ф., Конников С.Г. Исследование формирования квантовых точек InGaN на поверхности GaN // Известия академии наук, серия физическая – 2009 – Т. 73 (1) - Стр. 40–42.
- [А26] Цацульников А.Ф., Лундин В.В, Сахаров А.В., Заварин Е.Е., Усов С.О., Николаев А.Е., Черкашин Н.А., Бер Б.Я., Казанцев Д.Ю., Мизеров М.Н., Park Hee Seok, Hytch M., Hue F. Варизонная активная область на основе короткопериодных InGaN/GaN сверхрешеток для мощных

светоизлучающих диодов диапазона 440-470 нм // Физика и техника полупроводников – 2010 – Т. 44 (1) - Стр. 96-100.

- [А27] Лундин В. В., Заварин Е. Е., Синицын М.А., Сахаров А. В., Усов С.О., Николаев А.Е., Давыдов Д.В., Черкашин Н.А., Цацульников А. Ф. Влияние давления в реакторе на свойства активной области InGaN/GaN светодиодов // Физика и техника полупроводников – 2010 – Т. 44 (1) -Стр. 126-129.
- [А28] Цацульников А.Ф., Лундин В.В, Сахаров А.В., Заварин Е.Е., Усов С.О., Николаев А.Е., Крыжановская Н.В., Синицын М.А., Сизов В.С., Закгейм А.Л., Мизеров М.Н. Монолитный белый светодиод с активной областью на основе квантовых ям InGaN, разделенных короткопериодными InGaN/GaN сверхрешетками // Физика и техника полупроводников – 2010 – Т. 44 (6) - Стр. 837-840.
- [А29] Крыжановская Н.В., Лундин В.В., Николаев А.Е., Цацульников А.Ф., Сахаров А.В., Павлов М.М., Черкашин Н.А., Вальковский Г.А., Яговкина М.А., Усов С.О. Исследования оптических и структурных свойств короткопериодных сверхрешеток InGaN/GaN для активной области светоизлучающих диодов // Физика и техника полупроводников – 2010 – Т. 44 (6) - Стр. 857-863.
- [АЗ0] Сизов В.С., Цацульников А.Ф., Сахаров А.В., Лундин В.В., Заварин Е.Е., Черкашин Н.А., Hytch M.J., Николаев А.Е., Минтаиров А.М., Не Yan, Merz J.L. Использование короткопериодных сверхрешеток InGaN/GaN в светодиодах синего диапазона // Физика и техника полупроводников – 2010 – Т. 44 (7) - Стр. 955-961.
- [А31] Цацульников А.Ф., Заварин Е.Е., Крыжановская Н.В., Лундин В.В., Сахаров А.В., Усов С.О., Брунков П.Н., Гончаров В.В., Черкашин Н.А., Hytch M. Формирование композитных квантовых точек InGaN/GaN/InAlN // Физика и техника полупроводников 2010 Т 44 (10) Стр. 1382-1386.
- [А32] Лундин В.В., Николаев А.Е., Сахаров А.В., Заварин Е.Е., Усов С.О., Сизов В.С., Закгейм А.Л., Черняков А.Е., Цацульников А.Ф. Высокоэффективные InGaN/GaN/AlGaN светодиоды с короткопериодной InGaN/GaN сверхрешеткой для диапазона 530-560 nm // Письма в Журнал технической физики 2010 Т. 36 (22) Стр. 89-95.
- [A33] Tsatsulnikov A. F., Lundin W. V., Sakharov A. V., Zavarin E .E., Usov S. O., Nikolaev A. E., Kryzhanovskaya N. V., Chernyakov A. E., Zakgeim A. L., Cherkashin N.A., Hytch M. Deep green and monolithic white LEDs based on combination of short-period InGaN/GaN superlattice and InGaN QWs // AIP Conf. Proc. – 2011 -Vol.1399 – Pp. 253-254.
- [A34] Tsatsulnikov A. F., Lundin W. V., Sakharov A. V., Zavarin E .E., Usov S. O., Nikolaev A. E., Kryzhanovskaya N. V., Sizov V.S., Chernyakov A. E., Zakgeim A. L., Cherkashin N.A., Hytch M. InGaN/GaN Short-Period Superlattices: Synthesis, Properties, Applications // Phys. Status Solidi C – 2011 – Vol. 8 (7–8) – Pp. 2308–2310.
- [A35] Lundin W.V., Sakharov A.V., Tsatsulnikov A.F., Ustinov V.M. MOVPE of device-oriented wide-band-gap III-N heterostructures // Semicond. Sci. Technol. – 2011 – Vol. 26 (1) – Pp. 014039.
- [АЗ6] Цацульников А.Ф., Лундин В.В., Заварин Е.Е., Николаев А.Е., Сахаров А.В., Сизов В.С., Усов С.О., Мусихин Ю.Г., Gerthsen D. Влияние водорода на локальную фазовую сепарацию в тонких слоях InGaN и свойства светодиодных структур на их основе // Физика и техника полупроводников – 2011 – Т. 45 (2) - Стр. 274-279.
- [A37] Single quantum well deep-green LEDs with buried InGaN/GaN short-period superlattice W.V. Lundina, A.E. Nikolaev, A.V. Sakharov, E.E. Zavarin, G.A. Valkovskiy, M.A. Yagovkina, S.O. Usov, N.V. Kryzhanovskaya, V.S. Sizov, P.N. Brunkov, A.L. Zakgeim, A.E. Cherniakov, N.A. Cherkashin, M.J. Hytch, E.V. Yakovlev, D.S. Bazarevskiy, M.M. Rozhavskaya, A.F. Tsatsulnikov // Journal of Crystal Growth 315 (2011) 267–271

- [АЗ8] Устинов В. М., Цацульников А. Ф., Лундин В. В., Сахаров А. В., Николаев А. Е., Заварин Е. Е., Закгейм А. Л., Черняков А. Е., Мизеров М. Н., Черкашин Н. А., Нуtch М. Монолитные белые светодиоды: подходы, технология, дизайн // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования – 2012 - № 6 – Стр. 1–4.
- [A39] Tsatsulnikov A. F., Lundin W. V., Sakharov A. V., Zavarin E. E., Usov S. O., Nikolaev A. E., Sizov V. S., Zakgeim A. L., Mizerov M. N., Cherkashin N.A., Hytch M. Effect of stimulated phase separation on properties of blue, green and monolithic white LEDs // Phys. Status Solidi C – 2012 – Vol. 9 (3–4) – Pp. 774–777.
- [А40] Цацульников А.Ф., Лундин В.В, Заварин Е.Е., Сахаров А.В., Мусихин Ю.Г., Усов С.О., Мизеров М.Н., Черкашин Н.А. Гетероструктуры InGaN/GaN, выращенные методом субмонослойного осаждения // Физика и техника полупроводников 2012 Т. 46 (10) Стр. 1357-1362.
- [А41] Цацульников А.Ф., Лундин В.В., Заварин Е.Е., Николаев А.Е., Сахаров А.В., Рожавская М.М., Усов С.О., Брунков П.Н., Синицын М.А., Дадыдов Д.В., Мизеров М.Н., Черкашин Н.А. Композитные InGaN/GaN/InAlN-гетероструктуры, излучающие в желто-красной области спектра // Физика и техника полупроводников 2012 Т. 46.(10) Стр. 1304-1308.
- [A42] Tsatsulnikov A.F., Lundin W.V. Stimulated Formation of InGaN Quantum Dots // "State-of-the-Art of Quantum Dot System Fabrications", 172 crp. Publisher: InTech, 2012, ISBN 978-953-51-0649-4, crp.142-160.
- [A43] Titkov I.E., Yadav A, Zerova V.L., Zulonas M, Tsatsulnikov A.F., Lundin W.V., Sakharov A.V., Rafailov E.U. Internal quantum efficiency and tunable colour temperature in monolithic white InGaN/GaN LED // Proceedings SPIE. Gallium Nitride Materials and Devices IX – 2014 – Vol. 8986 – P. 89862A.

- [А44] Лундин В.В., Николаев А.Е., Сахаров А.В., Яговкина М.А., Цацульников А.Ф. Свойства гетероструктур InGaN/GaN, сформированных с помощью прерываний роста в различных условиях // Письма в Журнал технической физики 2014 Т. 40 (9) Стр. 1-8.
- [A45] Bolshakov A.S., Chaldyshev V.V., Lundin W.V., Sakharov A.V., Tsatsulnikov A.F., Yagovkina M.A., Zavarin E.E. Resonant Bragg structures based on III-nitrides // Journal of materials research – 2015 – Vol. 30 (5) – Pp. 603-608.
- [А46] Цацульников А.Ф., Лундин В.В., Сахаров А.В., Заварин Е.Е., Усов С.О., Николаев А.Е., Синицын М.А., Черкашин Н.А., Карпов С.Ю. области Исследование влияния дизайна активной монолитных многоцветных светодиодных гетероструктур на спектры И эффективность их излучения // Физика и техника полупроводников – 2015 – Т. 49 (11) – Стр. 1563-1568.
- [A47] Tsatsulnikov A.F., Lundin W.V., Sakharov A.V., Nikolaev A.E., Zavarin E.E., Usov S.O., Yagovkina M.A., Hÿtch M.J., Korytov M., Cherkashin N. Formation of Three-Dimensional Islands in the Active Region of InGaN Based Light Emitting Diodes Using a Growth Interruption Approach // Science of Advanced Materials - 2015 - Vol. 7 - Pp. 1629–1635.
- [A48] Karpov S.Yu., Cherkashin N.A., Lundin W.V., Nikolaev A.E., Sakharov A.V., Sinitsin M.A., Usov S.O., Zavarin E.E., Tsatsulnikov A.F. Multi-color monolithic III-nitride light-emitting diodes: Factors controlling emission spectra and efficiency // Phys. Status Solidi A – 2016 – Vol. 213 (1) – Pp. 19-29.
- [A49] Titkov I.E., Yadav A., Karpov S.Yu., Sakharov A.V., Tsatsulnikov A.F., Slight T.J., Gorodetsky A., Rafailov E.U. Superior color rendering with a phosphor-converted blue-cyan monolithic light-emitting diode // Laser Photonics Rev. – 2016 – Vol. 10 (6) – Pp. 1031–1038.
- [A50] Barettin D., der Maur M. Auf, Carlo Aldo di, Pecchia A., Tsatsulnikov A.F., Lundin W.V., Sakharov A.V., Nikolaev A.E., Korytov M., Cherkashin N.,

Hÿtch M.J., Karpov S.Yu. Carrier transport and emission efficiency in InGaN quantum-dot based light-emitting diodes // Nanotechnology – 2017 – Vol. 28 (27) - article number 275201.

[A51] Barettin D., der Maur M. Auf, Pecchia A., Tsatsulnikov A.F., Sakharov A.V., Lundin W.V., Nikolaev A.E., Usov S.O., Cherkashin N., Hÿtch M., Carlo A. Di, Karpov S.Yu. Influence of electromechanical coupling on optical properties of InGaN quantum-dot based light-emitting diodes // Nanotechnology – 2017 – Vol. 28 (1) - article number 015701.

## Список цитированной литературы

1 Solid-State Lighting R&D Plan [Электронный ресурс] // [2015.] URL: http://energy.gov/sites/prod/files/2015/06/f22/ssl\_rd-plan\_may2015\_0.pdf (дата обращения 20.05.2016).

2 Ho I., Stringfellow G. B. Solid phase immiscibility in GaInN // Applied Physics Letters. - 1996. – V. 69(18). – Pp. 2701-2703.

3 Amano H., Sawaki N., Akasaki I., Toyoda Y. Metalorganic vapor phase epitaxial growth of a high quality GaN film using an AIN buffer layer // Applied Physics Letters. - 1986. - Vol. 48(5). – Pp. 353-355.

4 Nakamura S., Senoh M., Iwasa N., Nagahama S. High-brightness InGaN blue, green and yellow light-emitting diodes with quantum well structures // Japan Journal of Applied Physics. - 1995. - Vol. 34(7A). - Pp. L797 - L799.

5 Narukawa Y, Ichikawa M., Sanga D., Sano M, Mukai T. White light emitting diodes with super-high luminous efficacy // J. Phys. D: Appl. Phys. - 2010 – Vol. 43 – Pp. 354002 (6pp).

6 Мальцев П. П., Федоров Ю. В. Современное состояние и перспективы развития нитридных СВЧ приборов миллиметрового диапазона за рубежом и в России // «Интеграл»: Нанотехнологии и наноматериалы. - 2013. - Т. 3. №71. - Стр. 25-29.

7 Phillips J. M., Coltrin M. E., Crawford M. H., Fischer A. J., Krames M. R., Mueller-Mach R., Mueller G. O., Ohno Y., Rohwer L. E. S., Simmons J. A., Tsao J.
Y. Research challenges toultra-efficient inorganic solid-state lighting // Laser Photon. Rev. - 2007 – Vol. 1 – Pp. 307-333.

8 Tsao J. Y., Crawford M. H., Coltrin M. E., Fischer A. J., Koleske D. D., Subramania G. S., Wang G. T., Wierer J. J., Karlicek R. F. Toward smart and ultraefficient solid-state lighting // Adv. Opt. Mater. - 2014 – Vol. 2(9) - Pp. 809–836.

9 Chichibu S., Azuhata T., Sota T., Nakamura S. Spontaneous emission of localized excitons in InGaN single and multiquantum well structures // Appl. Phys. Lett. - 1996. – Vol. 69 (27) - Pp.4188-4190.

10 Jain S. C., Willander M., Narayana J., Overstraeten R. Van. III–nitrides: Growth, characterization, and properties. // J. Appl. Phys. – 2000 – Vol. 87, №3 – Pp. 965-1006.

11 Narukawa Y., Kawakami Y., Funato M., Fujita S., Fujita S., Nakamura S.. Role of self-formed InGaN quantum dots for exciton localization in the purple laser diode emitting at 420 nm // Appl. Phys. Lett. – 1997 – Vol. 70 (8) – Pp. 981-983.

12 Narukawa Y., Sawada K., Kawakami Y., Fujita S., Fujita S., Nakamura S. Emission mechanism of localized excitons in InxGa1~xN single quantum wells // J. Cryst. Growth – 1988 – Vol. 189/190 – Pp. 606-610.

13 Oliver R.A., Briggs G.A., Kappers M.J., Humphreys C.J., Yasin Sh., Rice J.H., Smith J.D., Taylor R.A. InGaN quantum dots grown by metalorganic vapor phase epitaxy employing a post-growth nitrogen anneal // Applied Physics Letters -2003 -Vol.83 (4) - Pp. 755-757.

14 Oliver R. A., Massabuau F. C.-P., Kappers M. J., Phillips W. A., Thrush E. J., Tartan C. C., Blenkhorn W. E., Badcock T. J., Dawson P., Hopkins M. A., Allsopp D. W. E., Humphreys C. J.. The impact of gross well width fluctuations on the efficiency of GaN-based light emitting diodes. // Applied Physics Letters – 2013 – Vol. 103 – P. 141114.

15 Wang Q., Wang T., Bai J., Cullis A., Parbrook P., Ranalli F. Growth and optical investigation of self-assembled InGaN quantum dots on a GaN surface using a high temperature AlN buffer // Journal of Applied Physics – 2008 - Vol.103 (12) - Pp.123522-123528.

16 Ji L., Su Y., Chang S., Tsai S., Hung S., Chuang R., Fang T., Tsai T. Growth of InGaN self-assembled quantum dots and their application to photodiodes // Journal of Vacuum Science & Technology – 2004 - V.A22 - Pp.792-795.

17 Choi S.-K., Jang J-M., Yi S.-H., Kim J.-A., Jung W.-G. Fabrication and characterization of self-assembled InGaN Quantum dots by periodic interrupted growth // Proceedings of SPIE. – 2007 - Vol.6479 - Pp.64791F.

18 Bai J., Wang Q., Wang T., Cullis A., Parbrook P. Optical and microstructural study of a single layer of InGaN quantum dots // Journal of Applied Physics – 2009 - Vol.105 (5) - Pp. 053505-053509.

19 Yoshimoto N., Matsuoka T., Sasaki T., Katsui A. Photoluminescence of lnGaN films grown at high temperature by metalorganic vapor phase epitaxy // Appl. Phys. Lett. - 1991. – V. 59 (18) – Pp. 2251-2253.

20 Lundin W.V., Sakharov A.V., Semenov V.A., Usikov A.S., Baidakova M.V., Krestnikov I.L., Ledentsov N.N. Growth and characterization of the InGaN/GaN nanoscale heterostructures // Proc. of 7th Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology", (St.Petersburg, Russia, 14-18 June, 1999) – St.Petersburg, 1999 - Pp. 485 - 488.

21 Piner E., Behbehani M., El-Masry N., McIntosh F., Roberts J., Boutros K., Bedair, S. (1997), Effect of hydrogen on the indium incorporation in InGaN epitaxial films. // Appl. Phys. Lett. – 1997 - Vol. 70 (4) - Pp. 461-463.

22 Sakharov A.V., Lundin W.V., Krestnikov I.L., Bedarev D.A., Tsatsul'nikov A.F., Usikov A.S., Alferov Zh.I., Ledentsov N.N., Hoffmann A., Bimberg D. Influence of Growth Interruptions and Gas Ambient on Optical and Structural Properties of InGaN/GaN Multilayer Structures // Proc. of International Workshop on Nitride Semiconductors IWN2000, (Nagoya, Japan, 24–27 September, 2000) IPAP Conf/ Series 1 – Nagoya, 2000. – P. 241 - 243.

23 Moon Y.-T., Kim D.-J., Song K.-M., Choi C.-J., Han S.-H., Seong T.-Y., Park S.-J. Effects of thermal and hydrogen treatment on indium segregation in InGaN/GaN multiple quantum wells // Journal of Applied Physics. 2001. – V. 89(11). – P. 6514-6518.

24 Liu W., Chua S. J., Zhang X. H., Zhang J. Effect of high temperature and interface treatments on photoluminescence from InGaN/GaN multiple quantum wells with green light emissions // Applied Physics Letters. 2003. - V. 83(5). - P.914 - 916.

25 Kuo T.-C., Chen W.-J., Ke C.-C., Hung C.-W., Shen H.-T., Wang J.-C., Wu Y.-F., Nee T.-E. Characterization of the carrier localization confinement for InGaN/GaN multiple quantum well heterostructures with hydrogen-flow treatments / Gallium

Nitride Materials and Devices II Edited by Hadis Morkoc, Cole W. Litton // Proceedings of SPIE - 2007. – V. 64730D. – P. 64730D/1-6.

26 Rosenauer A., Kaiser S., Reisinger T., Zweik J., Gebhard W., Gerthsen D. Digital analysis of high resolution transmission electron microscopy lattice images // Optik – 1996 – Vol.102 – Pp. 63-69.

27 Hytch M.J., Snoeck E., Kilaas R. Quantitative measurement of displacement and strain fields from HREM micrographs // Ultramicroscopy – 1998 – Vol. 74 Pp. 131-146.

28 HREM Research, http://www.hremresearch.com.

29 Chen G., Craven M., Kim A., Munkholm A., Watanabe S., Camras M., Gotz W., Steranka F. Performance of high-power III-nitride light emitting diodes // Physica Status Solidi (a). 2008. – V. 205(5). – P. 1086–1092.

30 Shen Y. C., Mueller G. O., Watanabe S., Gardner N. F., Munkholm A., Krames M. R. Auger recombination in InGaN measured by photoluminescence // Applied Physics Letters. 2007. – V. 91(14). – P. 141101/1-3.

31 Tokunaga H., Ubukata A., Yano Y., Yamaguchi A., Akutsu N., Yamasaki T., Matsumoto K. Effects of growth pressure on AlGaNand Mg-doped GaN grown using multiwafer metal organic vapor phase epitaxy system // J. Gryst. Growth -2004 - Vol. 272 (1-4) - Pp. 348-352.

32 Strittmatter A., Reissmann L., Seguin R., Rodt S., Brostowski A., Pohl U.W., Bimberg D., Hahn E., Gerthsen D. Influence of the reactor total pressure on optical properties of MOCVD grown InGaN layers // J. Gryst. Growth – 2004 – Vol. 272 (1-4) - Pp. 415-419.

33 Chung T., Limb J.-B., Chowdhury U., Li P., Ryou J.-H., Yoo D., Zakharov D., Liliental-Weber Z., Dupuis R.D. MOCVD growth of InGaN:Mg for GaN/InGaN HBTs // Phys. Status Solidi C - 2005 -Vol. **2** (7) - Pp. 2157-2160.

34 Yanashima K., Hashimoto S., Hino T., Funato K., Kobayashi T., Naganuma K., Tojyo T., Asano T., Asatsuma T., Miyajima T., Ikeda M. Room-Temperature Continuous-Wave Operation of GaN-Based Laser Diodes Grown by Raised-Pressure Metalorganic Chemical Vapor Deposition // J. Electron.Mater. – 1999 – Vol. 28 (3) – Pp. 287-289.

35 Martin, R.; Middleton, P.; O'Donnell, K. & Stricht, W. Exciton localization and the Stokes' shift in InGaN epilayers. // Applied Physics Letters – 1999 - V.74 (2) - Pp. 263-265.

36 Wen Tzu-Chi, Lee Shih-Chang, Lee Wei-I. Influence of barrier growth temperature on the properties of InGaN/GaN quantum wells // Light-Emitting Diodes: Research, Manufacturing, and Applications V, H. Walter Yao, E. Fred Schubert, Editors, Proceedings of SPIE – 2001 - Vol. 4278 - Pp. 141-149.

37 Yoshimoto N., Matsuoka T., Sasaki T., Katsui A. Photoluminescence of lnGaN films grown at high temperature by metalorganic vapor phase epitaxy // Appl. Phys. Lett. – 1991 Vol. 59 (18) – Pp. 2251-2253.

38 S. M. Bedair, F. G. McIntosh, J. C. Roberts, E. L. Piner, K. S. Boutros, N. A. El-Masry, Growth and characterization of In-based nitride compounds // J. Cryst. Growth – 1997 – Vol. 178 – Pp. 32-44.

39 Schenk H. P. D., de Mierry P., Laugt M., Omnes F., Leroux M., Beaumont B., Gibart P. Indium incorporation above 800°C during metalorganic vapor phase epitaxy of InGaN // Appl. Phys. Lett. – 1999 – Vol. 75 (17) – Pp. 2587-2589.

40 Scher H., Shlesinger M. F., Bender J. T. Time-Scale Invariance in Transport and Relaxation // Phys. Today – 1991 – Vol. 44 (1) – Pp. 26-34.

41 Pophristic M., Long F. H., Tran C., Ferguson I.T., Karlicek, Jr. R. F. Timeresolved photoluminescence measurements of InGaN light-emitting diodes // Appl. Phys. Lett. – 1998 – Vol. 73 (24) – Pp. 3550-3552.

42 Pophristic M., Long F. H., Tran C., Ferguson I.T., Karlicek, Jr. R. F. Timeresolved photoluminescence measurements of quantum dots in InGaN multiple quantum wells and light-emitting diodes – 1999 - J. Appl. Phys. – Vol. 86 (2) – Pp. 1114-1118.

43 Paillard M., Marie X., Vanelle E., Amand T., Kalevich V. K., Kovsh A. R., Zhukov A. E., Ustinov V. M. Time-resolved photoluminescence in self-assembled InAs/GaAs quantum dots under strictly resonant excitation // Appl. Phys. Lett. – 2000 – Vol. 76 (1) – Pp. 76-78.

44 Kayanuma Y. Quantum-size effects of interacting electrons and holes in semiconductor microcrystals with spherical shape // Phys. Rev. B – 1988 – Vol. 38 (4) – Pp. 9797-9805.

45 Cho Y., Gainer G.H., Fisher A.J., Song J.J., Keller S., Mishra U.K., DenBaars S.P. "S-shaped" temperature-dependent emission shift and carrier dynamics in InGaN/GaN multiple quantum wells // Appl. Phys. Lett. – 1998 – Vol. 73 (10) – Pp. 1370-1372.

46 Akasaki I., Amano H. Crystal Growth and Conductivity Control of Group III Nitride Semiconductors and Their Application to Short Wavelength Light Emitters // Jpn. J. Appl. Phys. Part 1 – 1997 – Vol. 36 – PP. 5393-5408.

47 Moon Yong-Tae, Kim Dong-Joon, Song Keun-Man, Choi Chel-Jong, Han Sang-Heon, Seong Tae-Yeon, Park Seong-Ju. Effects of thermal and hydrogen treatment on indium segregation in InGaN/GaN multiple quantum wells // Journal of Applied Physics – 2001 – Vol. 89(11) - Pp. 6514-6518.

48 Kuo Ta-Chuan, Chen Wei-Jen, Ke Chih-Chun, Hung Cheng-Wei, Shen Hui-Tang, Wang Jen-Cheng, Wu Ya-Fen, Nee Tzer-En. Characterization of the carrier localization confinement for InGaN/GaN multiple quantum well heterostructures with hydrogen-flow treatments // Proc. SPIE – 2007 – Vol. 6473- P. 64730D.

49 Чалдышев В.В., Большаков А.С., Заварин Е.Е., Сахаров А.В., Лундин В.В., Цацульников А.Ф., Яговкина М.А. Оптические решетки экситонов в системах квантовых ям InGaN/GaN. // Физика и техника полупроводников – 2015 - Т.49(1) - стр.6-10.

50 Большаков А.С., Чалдышев В.В., Заварин Е.Е., Сахаров А.В., Лундин В.В., Цацульников А.Ф. Оптическая спектроскопия резонансной брэгтовской структуры с квантовыми ямами InGaN/GaN. // Физика и техника полупроводников – 2016 – Т. 50 (11) - стр. 1451-1454.

51 Bolshakov A. S., Chaldyshev V. V., Zavarin E. E., Sakharov A. V., Lundin W. V., Tsatsulnikov A. F., Yagovkina M. A. Room temperature exciton-polariton resonant reflection and suppressed absorption in periodic systems of InGaN quantum wells // Journal of Applied Physics – 2017 – Vol. 121 (13) - Pp.133101.

52 Lundin W.V., Zavarin E.E., Sinitsyn M.A., Nikolaev A.E., Sakharov A.V., Tsatsulnikov A.F., Yakovlev E.V., Talalaev R.A., Lobanova A.V., Segal A.S. Optimization of III-N heterostructures growth by MOVPE via surface processes control // 13th European Workshop on Metalorganic Vapour Phase Epitaxy (Ulm, Germany, 7-10 June 2009) – Ulm, 2009 – Inv.2.

53 Yakovlev E.V., Talalaev R.A., Kondratyev A.V., Segal A.S., Lobanova A.V., Lundin W.V., Zavarin E.E., Sinitsyn M.A., Tsatsulnikov A.F., Nikolaev A.E. Hydrogen effects in III-nitride MOVPE // J. Cryst. Growth – 2008 - Vol. 310 - Pp. 4862-4866.

54 Sakharov A.V., Lundin W.V., Krestnikov I.L., Zavarin E.E., Usikov A.S., Tsatsul'nikov A.F., Ledentsov N.N., Hoffmann A., Bimberg D., Alferov Zh.I. // Proc. of 8th Int. Symp. Nanostructures: Physics and Technology (St. Petersburg, Russia, June 19–23 2000) – St.Petersburg, 2000 - Pp. 216–218.

55 Reshchikov M.A., Morkoc H. Luminescence from defects in GaN // Physica B – 2006 – Vol. 376–377 – Pp. 428-431.

56 Macht L., Weyher J. L., Grzegorczyk A., Larsen P. K., Statistical photoluminescence of dislocations and associated defects in heteroepitaxial GaN grown by metal organic chemical vapor deposition // Phys. Rev. B - 2005 - Vol. 71 - Pp. 073309.

57 Алферов Ж.И., Бимберг Д., Егоров А.Ю., Жуков А.Е., Копьев П.С., Леденцов Н.Н., Рувимов С.С., Устинов В.М., Хейденрайх И. Напряженные субмонослойные гетероструктуры и гетероструктуры с квантовыми точками // - 1995 - Успехи физических наук – Т. 165 (2) – Стр. 224-225.

58 Tsatsul'nikov A.F., Volovik B.V., Ledentsov N.N., Maximov M.V., Egorov A.Yu., Kovsh A.R., Ustinov V. M., Zhukov, Kop'ev P. S., Alferov Zh. I., Kozin I. A., Belousov M. V., Soshnikov I. P., Werner P., Litvinov D., Fischer U., Rosenauer A., Gerthsen D. Lasing in structures with InAs quantum dots in an (Al, Ga)As matrix

grown by submonolayer deposition // Journal of Electronic Materials - 1999 – Vol. 28, Pp. 537-541.

59 Цацульников А.Ф., Воловик Б.В., Леденцов Н.Н., Максимов М.В., Егоров А.Ю., Ковш А.Р., Устинов В.М., Жуков А.Е., Копьев П.С., Алферов Ж.И., Козин И.Э., Белоусов М.В., Бимберг Д. Экситонный волновод и лазерная генерация в структурах со сверхтонкими GaAs квантовыми ямами и InAs субмонослойными внедрениями в AlGaAs-матрице. // Физика и техника полупроводников – 1999 – Т. 33 (4) – Стр. 488-491.

60 Ledentsov N.N., Tsatsul'nikov A.F., Egorov A.Yu., Kop'ev P.S., Kovsh A.R., Maximov M.V., Ustinov V.M., Volovik B.V., Zhukov A.E., Alferov Zh.I., Krestnikov I.L., Bimberg D., Hoffmann A. Intrinsic optical confinement and lasing in InAs–AlGaAs submonolayer superlattices // Appl. Phys. Lett. – 1999 – Vol. 74 (2) – Pp. 161-163.

61 Ledentsov N. N., Krestnikov I. L., Maximov M. V., Ivanov S. V., Sotomayor Torres C. M. Ground state exciton lasing in CdSe submonolayers inserted in a ZnSe matrix // Appl. Phys. Lett. – 1996 – Vol. 69 (10) – Pp. 1343-1345.

62 Zhukov A.E., Kovsh A.R., Mikhrin S.S., Maleev N.A., Ustinov V.M., Livshits D.A., Tarasov I.S., Bedarev D.A., Maximov M.V., Tsatsul'nikov A.F., Soshnikov I.P., Kop'ev P.S., Alferov Zh.I., Ledentsov N.N., Bimberg D. 3.9W CW power from sub-monolayer quantum dot diode laser // Electronics Letters – 1999 – Vol. 35 (21) – Pp. 1845-1847.

63 Mikhrin S. S., Zhukov A. E., Kovsh A. R., Maleev N. A., Ustinov V. M., Shernyakov Yu. M., Soshnikov I. P., Livshits D. A., Tarasov I. S., Bedarev D.A., Volovik B. V., Maximov M. V., Tsatsul'nikov A. F., Ledentsov N.N., Kop'ev P. S., Bimberg D., Alferov Zh. I. 0.94  $\mu$ m diode lasers based on Stranski-Krastanow and sub-monolayer quantum dots. // Semicond. Sci. Technol. – 2000 – Vol. 15 (11) – Pp. 1061-1064.

64 Karam N. H., Parodos T., Colter P., McNulty D., Rowland W., Schetzina J., El-Masry N., Bedair Salah M. Growth of device quality GaN at 550 °C by atomic layer epitaxy // Appl. Phys. Lett. 1995 – Vol 67 (1) – Pp. 94-96. 65 Keller S., Mishra U.K., Denbaars S.P. Flow modulation epitaxy of indium gallium nitride // Journal of Electronic Materials – 1997 – Vol. 26 (10) - Pp. 1118-1122.

66 Zhukov A. E., Ustinov V. M., Kovsh A. R., Egorov A. Yu., Maleev N. A., Ledentsov N. N., Tsatsul'nikov A. F., Maximov M. V., Musikhin Yu. G., Bert N. A., Kop'ev P. S., Bimberg D., Alferov Zh. I. Control of the emission wavelength of selforganized InGaAs quantum dots: main achievements and present status // Semicond. Sci. Technol. 14, 575–581 (1999).

67 Casey H.C., Panish M.B. Heterostructure lasers // New York : Academic Press, 1978.

68 Mintairov A.M., Merz J.L., Sizov D.S., Sizov V.S., Lundin W.V., Zavarin E.E., Tsatsulnikov A.F., Vlasov A.S., Ledentsov N.N. Single versus ensemble quantum dot emission in near-field spectra of InGaN QWs // Proc. of the 14th Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology" (St. Petersburg, Russia, June 26-30, 2006) – St. Petersburg, 2006 - Pp. 123-124.

69 Moriwaki O., Someya T., Tachibana K., Ishida S., Arakawa Y. Narrow photoluminescence peaks from localized states in InGaN quantum dot structures // Appl. Phys. Lett. -2000 - Vol. 76 (17) - Pp.2361-2363.

70 Kops U., Blome P., Gregor M., Heinrich A., Wenderoth M., Ulbrich R.G., Burkrad M., Geng C., Scholtz F., Schweizer H. // 7th European Workshop on Metal-Organic Vapour Phase Epitaxy (Berlin, June 8-11, 1997) – Berlin, 1997 - G0.

71 Lin Y.-D., Yamamoto S., Huang C.-Y., Hsiung C.-L., Wu F., Fujito K., Ohta H., Speck J. S., DenBaars S. P., Nakamura S. High quality InGaN/AlGaN multiple quantum wells for semipolar InGaN green laser diodes // Appl. Phys. Express -2010 – Vol. 3(8) – Pp. 82001-1 – 82001-3.

72 Saito S., Hashimoto R., Hwang J., Nunoue S. InGaN Light-Emitting Diodes on c Face Sapphire Substrates in Green Gap Spectral Range // Appl. Phys. Express – 2013
- Vol. 6(11) - Pp.111004-1 - 111004-3.

73 Shioda T., Yoshida H., Tachibana K., Sugiyama N., Nunoue S. Enhanced light output power of green LEDs employing AlGaN interlayer in InGaN/GaN MQW

structure on sapphire (0001) substrate // Phys. Status Solidi – 2012 – Vol.209(3) – Pp. 473–476.

74 Alhassan A. I., Farrell R. M., Saifaddin B., Mughal A., Wu F., DenBaars S. P., Nakamura S., Speck J. S. High luminous efficacy green light-emitting diodes with AlGaN cap layer // Opt. Express – 2016 – Vol. 24(16) – Pp. 17868–17873.

75 Alhassan A.I., Young N.G., Farrell R.M., Pynn C., Wu F., Alyamani A.Y., Nakamura S., DenBaars S.P., Speck J.S. Development of high performance green cplane III-nitride light-emitting diodes // Optics Express – 2018 – Vol. 26 (5) - Pp. 5591-5601.

76 Tsatsul'nikov A. F., Kovsh A. R., Zhukov A. E., Shernyakov Yu. M., Musikhin Yu. G., Ustinov V. M., Bert N. A., Kop'ev P. S., Alferov Zh. I. Volmer–Weber and Stranski–Krastanov InAs-(Al,Ga)As quantum dots emitting at 1.3  $\mu$ m // Journal of Applied Physics – 2000 – Vol. 88 (11) - Pp.6272-6275.

77 Цацульников А.Ф., Егоров А.Ю., Жуков А.Е., Ковш А.Р., Устинов В.М., Леденцов Н.Н., Максимов М.В., Сахаров А.В., Суворова А.А., Копьев П.С., Алферов Ж. И., Бимберг Д. Модуляция потенциала квантовой ямы с помощью массива квантовых точек // Физика и техника полупроводников – 1997 – Т. 31 (1) – Стр. 109-113.

78 Цацульников А.Ф., Егоров А.Ю., Жуков А.Е., Ковш А.Р., Устинов В.М., Леденцов Н.Н., Максимов М.В., Воловик Б.В., Суворова А.А., Берт Н.А., Копьев П.С. Латеральное объединение вертикально связанных квантовых точек // Физика и техника полупроводников – 1997 – Т. 31(7) – Стр. 851-854.

79 Cherkashin N., Hÿtch M.J., Snoeck E., Hüe F., Hartmann J.M., Bogumilowicz Y., Claverie A. Quantitative local strain measurements in compressive strained Ge/tensile strained Si bi-layers grown on top of relaxed  $Si_{0.5}Ge_{0.5}$  virtual substrates // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B – 2006 - Vol. 253 (1-2) – Pp. 145-148.

80 Hirth J. P., Lothe J. Theory of Dislocations // MacFraw-Hill, New York – 1968.

81 Klochikhin A., Reznitsky A., Tenishev L., Permogorov S., Lundin W., Usikov A., Sorokin S., Ivanov S., Schmidt M., Kalt H., Klingshirn C. // Proc. of 9 th Int. Symp.

"Nanostructures: Physics and Technology" (St. Petersburg, Russia, June 18–22, 2001) – St.Petersburg, 2001 - Pp. 554–557.

82 Лундин В.В., Заварин Е.Е., Сизов Д.С. Влияние газа-носителя на процесс газотранспортной эпитаксии нитрида галлия из металлорганических соединений // Письма в ЖТФ - 2005 - Т. 31 (7) - Стр. 52–56.

83 Сахаров А.В., Лундин В.В., Заварин Е.Е., Синицын М.А., Цацульников А.Ф. // Тезисы докладов 5-й Всероссийской конференции «Нитриды галлия, индия и алюминия — структуры и приборы» (Москва, 31 января–2 февраля 2007 г.) – Москва, 2007 - С. 46.

84 Xie J., Ni X., Fan Q., Shimada R, Özgür Ü., Morkoç H. On the efficiency droop in InGaN multiple quantum well blue light emitting diodes and its reduction with p-doped quantum well barriers // Appl. Phys. Lett. – 2008 – Vol. 93 – Pp. 121107-1 – 121107-3.

85 Schubert M.F., Xu J., Kim J.K., Schubert E.F., Kim M.H., Yoon S., Lee S.M., Sone C., Sakong T., Park Y. Polarization-matched multi-quantum-well light-emitting diodes with reduced efficiency droop // Appl. Phys. Lett. – 2008 – Vol. 93 – Pp. 041102-1 – 041102-3.

86 Sheu J.K., Chi G.C., Jou M.J. Enhanced Output Power in an InGaN–GaN Multiquantum-Well Light-Emitting Diode With an InGaN Current-Spreading Layer // Photonics Technology Letters – 2001 – Vol. 13 (11) – Pp. 1164 – 1166.

87 Park E.H., Jang J., Gupta S., Ferguson I., Jeon S.-K., Lim J.-G., Lee J.-S., Kim C.-H., Park J.-S. The effect of the last quantum barrier on the internal quantum efficiency of InGaNlight emitting diode // Appl. Phys. Lett. – 2008 – Vol. 93 – Pp. 101112-1 – 101112-3.

88 David A., Grundmann M. J., Kaeding J. F., Gardner N. F., Mihopoulos T. G., Krames M. R. Carrier distribution in (0001) InGaN/GaN multiple quantum well lightemitting diodes // Appl. Phys. Lett. – 2008 – Vol. 92 – Pp. 053502-1 – 053503.

89 Galler B., Laubsch A., Wojcik A., Lugaue H., Gomez-Iglesias A., Sabathil M., Hahn B. Investigation of the carrier distribution in InGaN-based multi-quantumwell structures // Phys. Status Solidi c - 2011 - Vol. 8 (7-8) - Pp. 2372-2374. 90 Titkov I E, Karpov S Y, Yadav A, Zerova V L, Zulonas M, Galler B, Strassburg M, Pietzonka I, Lugauer H-J and Rafailov Temperature-dependent internal quantum efficiency of blue high-brightness light-emitting diodes. // IEEE J. Quantum Electron. – 2014 - Vol. 50 (11) – Pp. 911-920.

91 V. Sheremet, N. Gheshlaghi, M. Sozen, M. Elci, N. Sheremet, A. Aydınlı, I. Altuntas, K. Ding, V. Avrutin, Ü. Ozgür, H. Morkoç. InGaN stress compensation layers in InGaN/GaN blue LEDs with step graded electron injectors // Superlattices and Microstructures – 2018 – Vol. 116 – Pp. 253-26.1

92 McCluskey M. D., Romano L. T., Krusor B. S., Johnson N. M., Suski T., Jun J. Interdiffusion of In and Ga in InGaN quantum wells // Appl. Phys. Lett. – 1998 – Vol. 73 (9) – Pp. 1281-1283.

93 Lee S.-N., Paek H. S., Son J. K., Kim H., Kim K. K., Ha K. H., Nam O. H., Park Y. Effects of Mg dopant on the degradation of InGaN multiple quantum wells in AlInGaN-based light emitting devices // J Electroceram – 2009 – Vol. 23 – Pp. 406-409.

94 Takeya M., Mizuno T., Sasaki T., Ikeda S., Fugimoto T., Ohfuji Y., Oikawa K., Yabuki Y., Uchida S., Ikeda M. Degradation in AlGaInN lasers // Phys. Stat. Sol (c) – 2003 – Vol. 0 (7) – Pp. 2292-2295.

95 Nam O.H., Ha K.H., Kwak J.S., Lee S.N., Choi K.K., Chang T.H., Chae S.H., Lee W.S., Sung Y.J., Paek H.S., Chae J.H., Sakong T., Park Y. Recent progress of high power GaN-based violet laser diodes // Phys. Stat. Sol. (c) – 2003 – Vol 0 (7) – Pp. 2278-2282.

96 Schubert M.F., Chhajed S., Kim J.K., Schuberta E.F., Koleske D.D., Crawford M.H., Lee S.R., Fischer A.J., Thaler G., Banas M.A. Effect of dislocation density on efficiency droop in GaInN/GaN light-emitting diodes // Appl. Phys. Lett. -2007 - Vol 91 - Pp. 231114-1 - 231114-3.

97 Karpov S.Yu., Talalaev R.A., Yakovlev E.V., Makarov Yu.N. Surface Segregation and Composition Fluctuations in ammonia MBE and MOVPE of InGaN // Mat. Res. Soc. Symp. Proc. – 2001 – Vol. 639 – Pp. G3.18.1- G3.186.

98 Karpov S.Yu., Makarov Yu.N. Indium segregation hnetics in InGaAs ternary compounds // Thin Solid Films – 2000 - Vol. 380 (1-2) – Pp.71-74.

99 Tao Y. B., Chen Z. Z., Zhang F. F., Jia C. Y., Qi S. L., Yu T. J., Kang X. N., Yang Z. J., You L. P., Yu D. P., Zhang G. Y. Polarization modification in InGaN/GaN multiple quantum wells by symmetrical thin low temperature-GaN layers // J. Appl. Phys. – 2010 – Vol. 107 – Pp. 103529-1 – 103529-5.

100 Narukawa Y., Ichikawa M., Sanga D., Sano M., Mukai T. White light emitting diodes with super-high luminous efficacy // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2010 – Vol. 43 – Pp. 354002 (6pp).

101 Zukauskas A., Vaicekauskas R., Ivanauskas F., Gaska R., Shur M. S. Optimization of white polychromatic semiconductor lamps // Appl. Phys. Lett. – 2002 – Vol. 80(2) – Pp. 234–237.

102 Chhajed S., Xi Y., Li Y.-L. Gessmann Th., Schubert E. F. Influence of junction temperature on chromaticity and color-rendering properties of trichromatic white-light sources based on light-emitting diodes // J. Appl. Phys. - 2005 - Vol. 97(5) - Pp. 054506-1 - 054506-8.

103 Yamada M., Narukawa Y., Mukai T. Phosphor Free High-Luminous-Efficiency White Light-Emitting Diodes Composed of InGaN Multi-Quantum Well // Jpn. J. Appl. Phys. – 2002 – Vol. 41 – Pp. L246-L248.

104 Li Y. L., Gessmann T., Schubert E. F., Sheu J. K. "Carrier dynamics in nitridebased light-emitting p-n junction diodes with two active regions emitting at different wavelengths // J. Appl. Phys. – 2003 – Vol. 94 (4) Pp. 2167-2172.

105 Shei S. C., Sheu J. K., Tsai C. M., Lai W. C., Lee M. L., Kuo C. H. Emission Mechanism of Mixed-Color InGaN/GaN Multi-Quantum-Well Light-Emitting Diodes // Jpn. J. Appl. Phys., Part 1 – 2006 – Vol. 45 (4A) – Pp. 2463-2466.

106 Shi J. W., Huang H. Y., Wang C. K., Sheu J. K., Lai W. C., Wu Y. S., Chen C. H., Chu J. T., Kuo H. C., Lin W. P., Yang T. H., Chyi J. I. Phosphor-Free GaN-Based Transverse Junction Light Emitting Diodes for the Generation of White Ligh // IEEE Photonics Technol. Lett. – 2006 – Vol. 18 (24) – Pp. 2593-2595.

107 Huang C. F., Lu C. F., Tang T. Y., Huang J. J., Yang C. C. Phosphor-free whitelight light-emitting diode of weakly carrier-density-dependent spectrum with prestrained growth of InGaN/GaN quantum wells // Appl. Phys. Lett. – 2007 – Vol. 90 - Pp. 151122-1 – 151122-3.

108 Lu C.-F., Huang C.-F., Chen Y.-S., Shiao W.-Y., Chen C.-Y., Lu Y.-C., Yang C.-C. Phosphor-Free Monolithic White-Light LED // IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. – 2009 – Vol. 15 (4) – Pp. 1210-1217.

109 Matsui K., Yamashita K., Kaga M., Morita T., Suzuki T., Takeuchi T., Kamiyama S., Iwaya M., Akasaki I. Carrier Injections in Nitride-Based Light Emitting Diodes Including Two Active Regions with Mg-Doped Intermediate Layers // Jpn. J. Appl. Phys. – 2013 – Vol. 52 – Pp. 08JG02-1 - 08JG02-4.

110 Lee C.-T., Yang U.-Z., Lee C.-S., Chen P.-S. White light emission of monolithic carbon-implanted InGaN–GaN light-emitting diodes // IEEE Photon. Technol. Lett. – 2006 – Vol. 18 (19) – Pp. 2029-2031.

111 Nishikawa A., Kawasaki T., Furukawa N., Terai Y., Fujiwara Y. Room-Temperature Red Emission from a p-Type/Europium-Doped/n-Type Gallium Nitride Light-Emitting Diode under Current Injection // Appl. Phys. Express – 2009 – Vol. 2 – Pp. 071004-1 - 071004-3.

112 Damilano B., Dussaigne A., Brault J., Huault T., Natali F., Demolon P., De Mierry P., Chenot S., Massies J. Monolithic white light emitting diodes using a (Ga,In)N/GaN multiple quantum well light converter // Appl. Phys. Lett. – 2008 – Vol. 93 (10) Pp. 101117-1 - 101117-3.

113 Galler B., Sabathil M., Laubsch A., Meyer T., Hoeppel L., Kraeuter G., Lugauer H., Strassburg M., Peter M., Biebersdorf A., Steegmueller U., Hahn B. Green high-power light sources using InGaN multi-quantum-well structures for full conversion // Phys. Status Solidi C – 2001 – Vol. 8 (7-8) – Pp. 2369-2371.

114 Srinivasan S., Stevens M., Ponce F. A., Mukai T. Polychromatic light emission from single InGaN quantum wells grown on pyramidal GaN facets // Appl. Phys. Lett. – 2005 – Vol. 87 – Pp. 131911-1 - 131911-3.

115 Funato M., Kawakami Y., Narukawa Y., Mukai T. Multi-color light-emitting diodes based on GaN microstructures // Proc. SPIE – 2009 – Vol. 7216 – Pp. 721624-1 - 721624-12.

116 Hwang J.-I., Hashimoto R., Saito S., Nunoue S. Development of InGaN-based red LED grown on (0001) polar surface // Appl. Phys. Express – 2014 – Vol. 7 – Pp. 071003-1 - 071003-4.

117 Karpov S. Yu. ABC-Model for Interpretation of Internal Quantum Efficiency and Its Droop in III-Nitride LEDs: A Review // Opt. Quantum Electron. – 2015 – Vol. 47
(6) – Pp. 1293-1303.

118 Chernyakov A. E., Bulashevich K. A., Karpov S. Yu., Zakgeim A. L. Experimental and theoretical study of electrical, thermal, and optical characteristics of InGaN/GaN high-power flip-chip LEDs // Phys. Status Solidi A - 2013 - Vol. 210(3) – Pp. 466–469.

119 Fukui T., Kamon K., Takeshita J., Hayashi H., Miyachi T., Uchida Y., Kurai S., Taguchi T. Superior Illuminant Characteristics of Color Rendering and Luminous Efficacy in Multilayered Phosphor Conversion White Light Sources Excited by Near-Ultraviolet Light-Emitting Diodes // Jpn. J. Appl. Phys. – 2009 – Vol. 48(11) – Pp. 112101-1 - 112101-6.

120 Weisbuch C., Piccardo M., Martinelli L., Iveland J., Peretti J., Speck J. S. The efficiency challenge of nitride light-emitting diodes for lighting. // Phys. status solidi – 2015 – Vol. 212(5) – Pp. 899–913.

121 Auf der Maur M., Pecchia A., Penazzi G., Rodrigues W., Di Carlo A. Efficiency Drop in Green InGaN/GaN Light Emitting Diodes: The Role of Random Alloy Fluctuations. // Phys. Rev. Lett. – 2016 – Vol. 116 (2) – Pp. 027401-1 - 027401-5.

122 OSRAM Opto Semiconductors, Brilliant Mix from OSRAM Opto Semiconductors, 2012, <u>http://ledlight.osramos</u>.com/technology/brilliant-mix/.

123 Mirhosseini R., Schubert M. F., Chhajed S., Cho J., Kim J. K., Schubert E. F. Improved color rendering and luminous efficacy in phosphor-converted white lightemitting diodes by use of dual-blue emitting active regions // Opt. Express – 2009 – Vol. 17(13) – Pp. 10806-10813 (2009). 124 Stauss P., Mandl M., Rode P., Laubsch A., Biebersdorf A., Windisch R., Galler B., Drechsel P., Steegm<sup>"</sup>uller U. Monolitically grown dual wavelength InGaN LEDs for improved CRI // Phys. status solidi – 2011 – Vol. 8(7-8) – Pp. 2396–2398.

125 Karpov S. Y., Binder M., Galler B., Schiavon D. Spectral dependence of light extraction efficiency of high-power III-nitride light-emitting diodes // Phys. status solidi - Rapid Res. Lett. – 2015 – Vol. 9(5) Pp. 312–316.

126 Karpov S. Yu. Light-emitting diodes for solid-state lighting: searching room for improvements, // Proc. SPIE 9768, Light-Emitting Diodes: Materials, Devices, and Applications for Solid State Lighting XX - 2016 - Vol. 9768 - Pp. 97680C-1 - 97680C-17.