Стимулированное излучение на длине волны 2.86 мкм из метаморфных In(Sb,As)/In(Ga,Al)As/GaAs квантовых ям в условиях оптической накачки

В. А. Соловьев⁺¹⁾, М. Ю. Чернов⁺, С. В. Морозов^{*}, К. Е. Кудрявцев^{*}, А. А. Ситникова⁺, С. В. Иванов⁺

⁺ Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 С.-Петербург, Россия

*Институт физики микроструктур РАН, 603087 Н. Новгород, Россия

Поступила в редакцию 2 августа 2019 г. После переработки 2 августа 2019 г. Принята к публикации 5 августа 2019 г.

Метаморфные лазерные гетероструктуры In(Sb,As)/In_{0.81}Ga_{0.19}As/In_{0.75}Al_{0.25}As с составными квантовыми ямами InSb/InAs/InGaAs на основе субмонослойных вставок InSb в 10 нм-InAs были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках GaAs (001). В таких структурах без оптического резонатора продемонстрировано стимулированное излучение на длине волны $\lambda \sim 2.86$ мкм при температурах 10–60 К в условиях оптической накачки. Пороговая плотность мощности накачки составила ~ 5 кBT/см² при температуре 10 К.

DOI: 10.1134/S0370274X19170028

Одним из подходов к созданию лазеров среднего инфракрасного (ИК) диапазона с длиной волны $\lambda = 2-5$ мкм, обладающих широким спектром коммерческих применений в различных областях (ИК спектроскопия, химическая промышленность, экология, медицина и др.), является рост лазерных структур на рассогласованных подложках GaAs с использованием метаморфного буферного слоя (МБС) переменного состава, что позволяет за счет лучшей теплопроводности широкозонных подложек по сравнению с узкозонными (InAs, GaSb) повысить мощность оптического излучения и характеристическую температуру (T_0) [1–3]. Еще одним достоинством такого подхода является относительно низкая стоимость и высокая технологичность подложек GaAs. Недавно нами были предложены гетероструктуры InSb/InAs/InGaAs/InAlAs, полученные методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) на подложках GaAs с использованием MEC InAlAs с корневым профилем изменения содержания In по толщине [4]. В качестве активного слоя в них использовались уникальные составные квантовые ямы (КЯ) W-типа InSb/InAs/InGaAs на основе субмонослойных вставок InSb в InAs (КЯ типа II) [5], расположенных внутри КЯ типа I InAs/InGaAs. Оптимизация конструкции и условий роста МБС, а также определение оптимальной величины так на-

Данная работа посвящена первым попыткам получения стимулированного излучения при оптической накачке метаморфных гетероструктур $InSb/InAs/In_{0.81}Ga_{0.19}As/In_{0.75}Al_{0.25}As$ с расширенным волноводом и активной областью на основе составных KЯ InSb/InAs/InGaAs.

Экспериментальные образцы были выращены методом МПЭ на нелегированных подложках GaAs (001) с использованием установки RIBER 32P и содержали последовательно, начиная от подложки, буферный слой GaAs толщиной 200 нм, МБС $\ln_x Al_{1-x}$ As толщиной 1.3 мкм с корневым профилем изменения содержания In (x = 0.05-0.87) по толщине структуры [6] и активную область, конструк-

зываемой обратной ступени с целью достижения баланса упругих напряжений в данных структурах, в которых отдельные слои содержат напряжения разного знака (растяжения или сжатия), позволили существенно улучшить интенсивность фотолюминесценции (ФЛ) метаморфных гетероструктур InSb/InAs/In_{0.63}Ga_{0.37}As/In_{0.75}Al_{0.25}As с $\lambda = 3.5$ мкм при комнатной температуре [6]. Следует отметить, что эксперименты по выращиванию 10-периодных структур с субмонослойными вставками InSb в "объемном" InAs на подложках GaAs с использованием в качестве MBC толстых слоев InAs позволили наблюдать сигналы как фото-, так и электролюминесценции с $\lambda \sim 3.6$ мкм, правда, при относительно низких температурах, не превышающих 180 K [3].

¹⁾e-mail: vasol@beam.ioffe.ru



Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематическое изображение зонной диаграммы образца A

ция которой представляла собой модификацию традиционной лазерной гетероструктуры с раздельным оптическим и электронным ограничением (рис. 1). Активная область включала в себя нижний и верхний широкозонные ограничительные слои 200 нм – $In_{0.75}Al_{0.25}As$, между которыми размещался волноводный слой InGaAs толщиной 600 нм с расположенной в середине него составной КЯ InSb/InAs. Формирование ультратонкой (~1 монослоя) вставки InSb в слое InAs, суммарной толщиной 10 нм, осуществлялось путем выдержки поверхности InAs под потоком сурьмы при температуре 400 °C [5], в то время как остальные слои активной области выращивались при 490 °C. В остальном условия МПЭ роста структур были аналогичны приведенным в работах [4, 6].

Состав ограничительных слоев InAlAs выбирался исходя из ранее полученных результатов оптимизации высоты обратной ступени с целью улучшения люминесцентных свойств подобных гетероструктур, но с тонкими (8 нм) слоями InGaAs [6], а толщина волноводного слоя - из условия необходимости обеспечения приемлемого оптического ограничения волноводной моды для $\lambda \sim 3-3.5$ мкм. Предварительные эксперименты по выращиванию методом МПЭ структур, содержащих слои InGaAs столь большой толщины, при указанной выше температуре, оптимальной с точки зрения минимизации плотности точечных дефектов в активной области, показали, что в результате происходит резкое ухудшение морфологии поверхности и возрастание величины шероховатости RMS от ~ 2 до ~ 7 нм (10×10 мкм²) по данным атомно-силовой микроскопии. Это обусловлено, по-видимому, повышенной подвижностью адатомов In по сравнению с адатомами Ga при используемой температуре в условиях поперечно-полосатого (англ. cross-hatch) рельефа поверхности, наследуемого от МБС. Было также установлено, что использование тонких (2 нм) вставок InAlAs в волноводном слое позволяет сохранить шероховатость поверхности на приемлемом уровне. В данной работе волноводный слой в лазерных структурах представлял собой 50периодные сверхрешетки (СР) 10 нм-InGaAs/2 нм-In_{0.75}Al_{0.25}As, с очевидностью не препятствующие транспорту неравновесных носителей в КЯ. Состав волноводного слоя выбирался с целью минимизации в нем упругих напряжений относительно равновесного параметра решетки МБС In_xAl_{1-x}As, что, как ранее нами было показано, соответствует величине обратной ступени ~ 6 мол. % [6]. В нашем случае, этому условию отвечает содержание In в волноводном слое ~ 81 мол. %.

Была получена серия структур In(Sb,As)/In(Ga,Al)As/GaAs, отличающихся между собой только конструкцией волноводного слоя и области в непосредственной близости к КЯ. Короткопериодные СР 10 нм-In_{0.81}Ga_{0.19}As/2 нм-In_{0.75}Al_{0.25}As И 10 нм- $In_{0.82}Ga_{0.18}As/2$ нм-In_{0.75}Al_{0.25}As были использованы для формирования волноводной области в образце А и образцах В и С, соответственно. Таким образом, в образцах В и С условие ненапряженного слоя выполнялось по отношению ко всей волноводной области в целом, среднее содержание In в которой с учетом 2 нм-In_{0.75}Al_{0.25}As вставок составляло ~ 81 мол. %, в отличие от образца А, где это условие соблюдалось только для слоев InGaAs. Кроме того, в образцах Aи В составная КЯ InSb/InAs была дополнительно ограничена с обеих сторон тонкими барьерными слоями 3 нм-In_{0.68}Ga_{0.32}As с целью более аккуратной компенсации напряжений сжатия, вводимых в структуру сильно рассогласованными по параметру решетки слоями InAs и InSb. При этом состав и толщина компенсирующих слоев InGaAs выбиралась таким образом, чтобы, с одной стороны, внести необ-





Рис. 2. Светлопольные ПЭМ-изображения активной области в геометрии поперечного сечения структуры (a), (b) и изображения поверхности в оптическом микроскопе (c), (d) образцов A (a), (c), B (b) и C (d)

ходимые по величине напряжения растяжения, а с другой стороны, не препятствовать эффективному сбору неравновесных носителей в КЯ. В образце *С* такие компенсирующие слои отсутствовали.

Структурные исследования проводились методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) с использованием микроскопа Philips EM-420. Спектры спонтанной ФЛ с поверхности были измерены при накачке структур диодным лазером ($\lambda=809\,\mathrm{mm})$ с мощностью 100 мВт. В качестве детектора был использован охлаждаемый жидким азотом InSb фотодиод (Hamamatsu). Измерения стимулированного излучения проводились с торца и поверхности структуры на Фурье-спектрометре Vertex80v (Bruker) в режиме пошагового сканирования. Образцы размещались в гелиевом криостате замкнутого цикла (минимальная температура $\sim 10 \, \text{K}$). Для накачки образцов применялся импульсный лазер Nd:YAG (λ = = 1.064 мкм, длительность импульса ~ 10 нс), либо параметрический генератор света видимого и ближнего ИК диапазонов LP601 (Solar Laser Systems, Минск, диапазон перестройки $\lambda = 0.42 - 2.1$ мкм, длительность импульса ~ 10 нс). Накачка и сбор излучения осуществлялись через ZnSe окно. Излучение лазера накачки отсекалось на входе спектрометра Ge фильтром. Для детектирования сигнала использовались фотоприемник HgCdTe (MCT) и светоделитель KBr.

Хорошее кристаллографическое качество гетероструктур, планарность отдельных слоев, низкая плотность прорастающих дислокаций в области составных КЯ, а также полное соответствие внутренней геометрии исследованных образцов заданным параметрам было продемонстрировано при изучении их методом ПЭМ (рис. 2a, b). Однако при исследовании поверхности образцов в оптическом микроскопе, на полученных изображениях помимо характерного для структур с МБС слабо контрастного cross-hatch рельефа поверхности, ориентированного в двух взаимно перпендикулярных направлениях [011] и [01-1], наблюдались протяженные дефекты в форме канавок глубиной более 100 нм и длиной 1-50 мкм, вытянутые вдоль направления [01-1] (рис. 2с, d). Их плотность достаточно сильно различалась в исследованных образцах. При этом их наименьшая $\sim 5\cdot 10^5\,{\rm cm}^{-2}$ и наибольшая $\sim 3 \cdot 10^6\,{\rm cm}^{-2}$ плотность была обнаружена в образцах A (рис. 2с) и C (рис. 2d), соответственно. Похожие дефекты на поверхности (*deep* grooves), также вытянутые вдоль направления [01-1], наблюдались в метаморфных гетероструктурах с КЯ In_{0.72}Ga_{0.28}As/In_{0.72}Al_{0.28}As, но только при наличии упругих напряжений растяжения в области КЯ [7]. Соответствующее в этом случае резкое ухудшение транспортных свойств данных КЯ при низких температурах связывалось с присутствием упомянутых выше дефектов. Следует отметить, что в структурах, выращенных по аналогии с образцом C, но не содержащих составную KЯ InSb/InAs, эти дефекты полностью отсутствовали. Это свидетельствует о том, что конструкция исследованных структур с расширенной волноводной областью не является оптимальной с точки зрения компенсации разнонаправленных упругих напряжений.

На рисунке 3 представлены спектры $\Phi \Pi$ исследованных структур, измеренные при температуре 80 К



Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры ФЛ исследованных структур, измеренные при температуре 80 K

в условиях слабой непрерывной накачки. Во всех образцах наблюдается линия спонтанного излучения с максимумом на длине волны ~ 3.26 мкм, которая, как было показано нами ранее [4–6], соответствует пространственно непрямым излучательным переходам с электронных уровней размерного квантования в KЯ InAs/InGaAs на дырочные уровни в субмонослойной вставке InSb. Небольшое снижение интенсивности линии ФЛ в образце *В* по сравнению с образцом *А* обусловлено, по-видимому, большей относительной высотой барьеров 3 нм-In_{0.68}Ga_{0.32}As, препятствующих сбору неравновесных носителей в составную КЯ. Следует отметить, что в образце C, где эти барьеры отсутствовали, интенсивность линии $\Phi \Pi$ была в ~ 2.5 раза большей по сравнению с образцом A. Как видно из рис. 3, форма линий $\Phi \Pi$ для образцов A и B сильно неоднородна и свидетельствует о наличии в ней нескольких близко расположенных пиков $\Phi \Pi$.

Для оценки положения этих пиков, была проведена подгонка спектров ФЛ с использованием двух пиков, форма которых задавалась функцией Гаусса. Энергии максимумов этих пиков для каждого образца приведены в табл. 1. Отметим, что наиболее длинноволновый пик с E_1 наблюдается во всех образцах, в то время как пик с E_2 – только в образцах A и B. Следует также отметить, что вклад коротковолнового пика в ФЛ заметно меньше в образце B с более высокими барьерами 3 нм-In_{0.68}Ga_{0.32}As по сравнению с образцом A.

Для объяснения наблюдаемых особенностей в спектрах ФЛ была проведена теоретическая оценка положения уровней в составной КЯ исследуемых метаморфных гетероструктур. Сдвиги дна зоны проводимости, а также положения подзон тяжелых и легких дырок, обусловленные напряжениями растяжения в слоях In_{0.68}Ga_{0.32}As и напряжениями сжатия в InSb и InAs, рассчитывались по модели [8], учитывая, что величина обратной ступени ~6 мол. % соответствует полностью ненапряженной виртуальной подложке. Расчет уровней размерного квантования в ультратонкой вставке InSb и KЯ InAs/InGaAs производился путем численного решения уравнения Шредингера. Проведенные расчеты показали, что для образцов А и В в КЯ существует 2 электронных уровня $(e_1 \, {\rm u} \, e_2) \, {\rm u} \, 2$ дырочных уровня: hh_1 – уровень тяжелой дырки, локализованной в InSb вставке и hh_2 – дырочный уровень, расположенный в валентной зоне InAs (вставка рис. 1). В отличие от этого, в КЯ образца C есть только один электронный уровень (e_1) . Сопоставляя данные расчета с экспериментом (табл. 1), мы полагаем, что наблюдаемый в спектрах ФЛ пик с максимумом E_1 соответствует переходам $e_1 - hh_1$, а пик с максимумом E_2 в образцах А и В обусловлен переходами $e_2 - hh_1$, которые становятся разрешенными в данных структурах вследствие нарушения правил отбора в ассиметричной КЯ InAs(Sb) (см. ниже).

Использование мощной импульсной накачки при исследовании образцов A и B привело к существенной трансформации их спектров $\Phi \Pi$, в которых наблюдалась всего одна узкая линия в интересуемой области спектра с энергией 433 мэВ в случае образца A (рис. 4) и 438 мэВ (образец B). Отметим, что

Таблица 1. Параметры энергетического спектра образцов (E_i) , полученные подгонкой спектров ФЛ (80 K) на рис. 3 несколькими пиками в виде $I_i \times \exp(-(E - E_i)^2/2\sigma^2)$, и расчетные значения энергий оптических переходов $e_1 - hh_1$ (E_{c1}) и $e_2 - hh_1$ (E_{c2})

Образец	E_1 , мэВ	E_{c1} , мэВ	E_2 , мэВ	E_{c2} , мэВ
A	380	384	390	406
В	379	384	388	405
C	380	384	_	-



Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры стимулированного излучения образца A, измеренные при импульсной накачке лазером с $\lambda = 1.064$ мкм: (a) – при разных плотностях мощности накачки и температуре 10 K; (b) – при разных температурах и плотности мощности накачки 70 кВт/см⁻². На вставке приведены зависимости интегральной интенсивности полосы излучения с энергией 0.428–0.438 эВ от плотности мощности накачки, полученные при накачке структуры лазером с разной длиной волны 1.064 и 1.5 мкм

интенсивность этого излучения в образце В была заметно ниже по сравнению с образцом A при равной мощности накачки. Ряд признаков: резкий рост ин-

Письма в ЖЭТФ том 110 вып. 5-6 2019

тенсивности излучения с накачкой, ярко выраженный пороговый характер зависимости интегральной ФЛ от плотности мощности возбуждения (вставка на рис. 4а), а также резкое сужение спектра излучения по сравнению со случаем слабой накачки, позволяют утверждать о реализации стимулированного излучения в данных структурах в условиях импульсной накачки. Несмотря на то, что наибольшая интенсивность спонтанной ФЛ при слабом уровне возбуждения была получена в образце C (рис. 3), нам не удалось получить стимулированное излучение из этой структуры. При использованных значениях мощности импульсной засветки происходило лишь уширение спектра ФЛ с увеличением накачки, возможно, из-за очень большой плотности протяженных дефектов (рис. 2d).

Следует отметить, что спектры стимулированного излучения регистрировались при сборе излучения как с торца структур, так и с поверхности. При этом, в геометрии сбора ФЛ с торца была обнаружена сильная неоднородность сигнала, препятствующая получению надежных данных и обусловленная, по-видимому, присутствием протяженных дефектов в исследованных структурах, наблюдаемых в оптическом микроскопе (рис. 2с, d). В пользу данного предположения свидетельствует и тот факт, что спонтанная ФЛ (как интенсивность, так и вид спектров излучения) с хорошей точностью была неизменна при сканировании по поверхности образцов. Поэтому на рис. 4 приведены спектры стимулированного излучения, полученные в геометрии сбора излучения с поверхности образца. Поскольку никакого структурирования эпитаксиальных структур с целью изготовления лазерных резонаторов не проводилось, строго говоря, нами наблюдалась суперлюминесценция из области засветки ($\sim 10 \text{ мм}^2$) на образце. С повышением температуры стимулированное излучение сохранялось вплоть до 60К при мощности накачки 75 кВт/см² (рис. 4b). Помимо линии, соответствующей излучению из составной КЯ, в спектрах присутствовала более интенсивная коротковолновая линия ($\lambda \sim 1.95\,\mathrm{мкм}$) с энергией $\sim 635\,\mathrm{мэB}$ (не показанная на рис. 4), которая обусловлена излучением из волноводного слоя. Это свидетельствует о недостаточной эффективности сбора неравновесных носителей из волноводного слоя в КЯ в исследованных структурах. Величина пороговой плотности мощности при накачке структуры светом с длиной волны 1.064 мкм, который поглощается в основном в верхнем широкозонном слое In_{0.75}Al_{0.25}As, составляла величину $\sim 20 \, \mathrm{kBt}/\mathrm{cm}^2$ и уменьшалась до значений $\sim 5\,{\rm \kappa Br/cm^2}$ при использовании накачки с

 $\lambda = 1.5$ мкм, т.е. в случае прямой накачки волноводного слоя (вставка на рис. 4а).

Сравнение спектров спонтанной ФЛ и стимулированного излучения показывает, что последнее происходит при энергиях, существенно превышающих энергии пиков E₁ и E₂. В рассматриваемой системе ответственными за стимулированное излучение могли бы быть переходы $e_2 - hh_2$ в КЯ InAs. Однако расчеты показывают, что энергия таких переходов в зависимости от состава волноводных слоев составляет величину 520-525 мэВ, значительно превосходящую экспериментальные данные. Кроме того, близкие значения энергии $\sim 500-510$ мэВ были экспериментально измерены для наблюдаемого одиночного пика ФЛ в полобных метаморфных гетероструктурах с КЯ 10 нм-InAs без вставки InSb. Ранее нами было показано, что эффект сегрегации Sb приводит к образованию слоя тройного твердого раствора вблизи InSb вставки [9], толщина которого при используемой температуре формирования InSb вставки ~400 °C составляет 4-5 нм. Наличие этого слоя приводило к появлению пика ФЛ (пик В₂ в работе [10]) в структурах InSb/InAs на подложках InAs, располагающегося выше по энергии на 30-35 мэВ от пика излучения B_1 , обусловленного переходами между электронами в InAs и дырками, локализованными в InSb вставке. Учитывая эти данные, мы полагаем, что в нашем случае стимулированное излучение обусловлено переходами $e_2 - hh_2$ в ассиметричной КЯ InAs(Sb), формирующейся вместо КЯ InAs вследствие сегрегации Sb из InSb вставки.

Таким образом, в данной работе продемонстрировано стимулированное излучение с энергией фотонов 433–438 мэВ ($\lambda \sim 2.86$ мкм) при низких температурах вплоть до 60 К в условиях оптической накачки метаморфных лазерных гетероструктур In(Sb,As)/In_{0.81}Ga_{0.19}As/In_{0.75}Al_{0.25}As с составными КЯ InSb/InAs/InGaAs на основе субмонослойных вставок InSb в 10 нм-InAs, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках GaAs (001). Проведенные исследования показали, что необходима дальнейшая оптимизация конструкции данных структур для решения следующих задач: 1) более тщательной компенсации упругих напряжений разного знака с целью полного исключения в них протяженных дефектов (канавок), препятствующих эффективной лазерной генерации с торца лазерной структуры; 2) улучшения сбора неравновесных носителей из области волноводных слоев в составную КЯ (например, за счет использования волноводных слоев с градиентом ширины запрещенной зоны по аналогии с традиционными лазерами на KЯ GaAs/AlGaAs); 3) сдвига длины волны в область более 3 мкм и получения стимулированного излучения из InSb вставок, а не из ассиметричной InAs(Sb) КЯ (за счет увеличения количества InSb во вставке, применения большего числа вставок InSb в InAs, а также подавления в них эффекта сегрегации Sb). Ожидается, что реализация перечисленных подходов позволит значительно снизить пороговую плотность мощности накачки, увеличить выходную мощность и достичь в метаморфных структурах In(Sb,As)/In(Ga,Al)As/GaAs лазерной генерации с $\lambda > 3$ мкм при более высоких температурах, вплоть до комнатной.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект #18-02-00950) с использованием оборудования ЦКП "Материаловедение и диагностика в передовых технологиях", поддержанного Министерством образования и науки РФ (Соглашение о предоставлении субсидии #14.621.21.0007 id RFMEFI62114X0007).

- C. J. K. Richardson, L. He, P. Apiratikul, N. P. Siwak, and R. P. Leavitt, Appl. Phys. Lett. 106, 101108 (2015).
- P. Apiratikul, L. He, and C. J.K. Richardson, Appl. Phys. Lett. **102**, 231101 (2013).
- Q. Lu, Q. Zhuang, A. Marshall, M. Kesaria, R. Beanland, and A. Krier, Semicond. Sci. Technol. 29, 075011 (2014).
- В. А. Соловьев, М. Ю. Чернов, Б. Я. Мельцер, А. Н. Семенов, Я. В. Терентьев, Д. Д. Фирсов, О. С. Комков, С. В. Иванов, Письма в ЖТФ 42(20), 33 (2016).
- V. A. Solov'ev, O. G. Lyublinskaya, A. N. Semenov, B. Ya. Meltser, D. D. Solnyshkov, Ya. V. Terent'ev, L. A. Prokopova, A. A. Toropov, S. V. Ivanov, and P. S. Kop'ev, Appl. Phys. Lett. 86, 011109 (2005).
- M. Yu. Chernov, V. A. Solov'ev, O. S. Komkov, D. D. Firsov, B. Ya. Meltser, M. A. Yagovkina, M. V. Baidakova, P. S. Kop'ev, and S. V. Ivanov, Appl. Phys. Express 10, 121201 (2017).
- F. Capotondi, G. Biasiol, D. Ercolani, V. Grillo, E. Carlino, F. Romanato, and L. Sorba, Thin Solid Films 484, 400 (2005).
- 8. C. G. Van de Walle, Phys. Rev. B **39**(3), 1871 (1989).
- A.N. Semenov, O.G. Lyublinskaya, V.A. Solov'ev, B.Ya. Meltser, and S.V. Ivanov, J. Crystal Growth 301–302, 58 (2007).
- O. G. Lyublinskaya, V.A. Solov'ev, A.N. Semenov, B. Ya. Meltser, Ya. V. Terent'ev, L. A. Prokopova, A. A. Toropov, A. A. Sitnikova, O. V. Rykhova, S. V. Ivanov, K. Thonke, and R. Sauer, J. Appl. Phys. 99, 093517 (2006).