Письма в ЖЭТФ, том 99, вып. 4, с. 207 – 212 © 2014 г. 25 февраля

Кинетика фотолюминесценции многопериодных структур GaAs/AlGaAs с асимметричными барьерами, перспективных для создания униполярных лазеров

Ю. А. Алещенко[+*1)], *В. В. Капаев*[+], *М. В. Кочиев*[+], *Ю. Г. Садофьев*[+], *В. А. Цветков*[+]

[+]*Физический институт им. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия*

[*]*Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", 115409 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 29 января 2014 г.

Исследована кинетика фотолюминесценции в многопериодных структурах квантовых ям GaAs/AlGaAs с асимметричными по высоте барьерами. За счет асимметрии барьеров достигнуто рекордно большое для униполярных лазеров время безызлучательной рекомбинации между лазерными подзонами (9 пс), которое превышает время безызлучательной релаксации с нижней лазерной подзоны. Это обеспечивает инверсную населенность в такой системе. Продемонстрировано эффективное подавление паразитного каскадного перехода между лазерными подзонами через состояния квазинепрерывного спектра.

DOI: 10.7868/S0370274X1404002X

Возможность получения вынужденного излучения между подзонами полупроводниковых квантовых ям (КЯ) была предсказана Р.Ф. Казариновым и Р.А. Сурисом еще в 1971 г. [1]. Потребовалось более 20 лет для реализации этих идей коллективом специалистов Bell Laboratories во главе с Ф. Капассо [2]. Созданный ими инжекционный полупроводниковый квантовый каскадный лазер (ККЛ) представляет собой униполярный прибор, основанный на межподзонных электронных переходах в зоне проводимости туннельно связанных КЯ. Такая конструкция ККЛ имеет ряд преимуществ перед традиционными диодными лазерами, в которых излучательная рекомбинация осуществляется между электронными и дырочными состояниями. В отличие от диодных лазеров длина волны униполярного лазера определяется квантовым ограничением, т.е. толщиной слоев в активной области, а не шириной запрещенной зоны материала. Это позволяет создать активный элемент на основе широкого ряда полупроводниковых соединений и перекрыть диапазон длин волн 2.6–250 мкм [3, 4]. К достоинствам униполярных лазеров относятся также высокая температурная стабильность и возможность работы при комнатной температуре вследствие подавления процессов оже-рекомбинации. Оба указанных фактора связаны с одинаковой кривизной рабочих подзон (параллельные подзоны) униполярного лазера. Важным преимуществом ККЛ является гораздо более эффективное использование инжектированных носителей заряда. Действительно, в диодном лазере каждая электронно-дырочная пара, инжектированная в активную область, создает только один фотон. В ККЛ каждый электрон, дающий вклад в ток, при токах, превышающих пороговое значение, испускает N лазерных фотонов (N – число периодов или "каскадов") и мощность лазерного излучения возрастает в N раз.

Использование параллельных рабочих подзон в униполярном лазере имеет и серьезный недостаток, затрудняющий достижение значительной инверсной населенности. Сходство начальных и конечных электронных состояний в униполярном лазере приводит к тому, что фактически одного оптического (LO) фонона с отличным от нуля импульсом оказывается достаточно для электронной релаксации между параллельными подзонами при расстояниях между ними, превышающих энергию оптического фонона. Поэтому времена жизни электронов для межподзонных переходов в структурах униполярных лазеров находятся в пикосекундном диапазоне. Время жизни электронов можно повысить лишь путем уменьшения перекрытия волновых функций (ВФ) соответствующих состояний. Однако это приводит к уменьшению оптической эффективности лазера. В таких условиях для получения значительного усиления структура униполярного лазера включает 25–100 периодов активного элемента. В результате, несмотря на значитель-

1) e-mail: yuriale@sci.lebedev.ru

ные достижения последних лет [5, 6], структура ККЛ остается чрезвычайно сложной.

Конструкция ККЛ может быть существенно упрощена при отказе от инжекторов и использовании межподзонной или межзонной оптической накачки [7, 8]. Униполярный лазер с оптической накачкой был назван его создателями фонтанным лазером. Он может генерировать излучение в среднем [9] и дальнем [10] инфракрасных (ИК) диапазонах. При отсутствии тока накачки в структуре отпадает необходимость в переносе и охлаждении носителей заряда в области инжектора, не требуется "тонкой настройки" энергетических уровней для обеспечения беспрепятственного туннелирования электронов от каскада к каскаду, не стоит остро проблема деградации материала, актуальная для сильноточных приборов. В результате конструкция фонтанного лазера оказывается более простой. При этом к материалам, составляющим структуру, предъявляются менее жесткие требования. Отсутствие металлических контактов и использование нелегированных обкладочных слоев в таких структурах обусловливают малые внутренние потери, связанные с поглощением на свободных носителях заряда. Еще одним важным преимуществом оптической накачки является то обстоятельство, что фонтанный лазер может работать без значительного разогрева при мощностях накачки гораздо выше пороговых. Основные недостатки фонтанного лазера заключаются в необходимости внешнего источника оптической накачки и опять же малых (менее 2 пс [11]) временах жизни электронов на верхнем лазерном уровне, требующих многократного повторения активного элемента для получения значительной эффективности. Поэтому высокие характеристики были продемонстрированы для довольно сложных структур фонтанного лазера, включающих 150 периодов КЯ [12, 13].

Для повышения эффективности униполярного лазера нами предложена конструкция активного элемента на основе квантовых ям GaAs/AlGaAs с сильно асимметричными по высоте барьерами [14]. Эта конструкция основывается на физической идее о подавлении межподзонной безызлучательной релаксации с использованием зависимости ВФ в структурах КЯ с асимметричными барьерами от квазиимпульса [15]. В таких структурах локализованное электронное состояние существует только в ограниченной области волновых векторов **k** в плоскости слоев. При волновых векторах, превышающих критическое значение, происходит 2D–3D-трансформация размерности электронных состояний. Этот эффект может быть применен для резкого повышения времени безызлучательной релаксации с верхней лазерной подзоны в активном элементе униполярного лазера с нижней лазерной подзоной, обладающей свойством подобной трансформации. Так могут быть исключены безызлучательные однофононные переходы между лазерными подзонами. Выполненные нами теоретические расчеты и предварительные экспериментальные исследования одно-, двух- и трехъямных структур GaAs/AlGaAs с асимметричными барьерами подтверждают эффективность данного подхода для создания активного элемента униполярного лазера с высокими характеристиками [16].

С целью изучения времен жизни электронных состояний, определяющих характеристики униполярного лазера, в данной работе исследована кинетика фотолюминесценции (ФЛ) многопериодной трехъямной структуры GaAs/AlGaAs с асимметричными барьерами, являющейся прототипом активного элемента такого лазера.

Предложенная нами конструкция активного элемента была оптимизирована на основе расчетов времен межподзонной релаксации с участием оптических фононов и дипольных матричных элементов. Расчеты выполнялись для многопериодной структуры $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$. Для моделирования была выбрана структура активного элемента, предназначенная для межподзонной оптической накачки излучением CO_2 лазера ("фонтанный" режим), в силу ее относительной простоты благодаря отсутствию инжекторов. Следует, однако, подчеркнуть, что предложенный нами способ подавления безызлучательной релаксации между лазерными подзонами пригоден и для инжекционного униполярного лазера. Потенциальный профиль многопериодной структуры униполярного лазера с асимметричными барьерами моделировался на основе совместного решения уравнений Шредингера и Пуассона. Целью моделирования являлся подбор параметров, при которых проявляется эффект трансформации размерности в легированной структуре, предназначенной для межподзонного возбуждения. Для решения уравнения Шредингера потенциал в квантовой области аппроксимировался кусочно-постоянной функцией. Использовался метод матрицы переноса. Уравнение Пуассона решалось методом конечных разностей. Процедура расчета подробно описана в [17].

Структура одного периода оптимизированного активного элемента в направлении подложки выражается соотношением $5.0/\mathbf{8.2}(\text{КЯ1})/1.4/\mathbf{4.9}(\text{КЯ2})/3.0/\mathbf{2.5}(\text{КЯ3})/\mathit{36.0}/15.0$, в котором величины (в нм), набранные обычным шрифтом, показывают толщины барьеров $Al_{0.35}Ga_{0.65}As$, полужирным – ширины КЯ, а курсивом – толщину низкого барьера $Al_{0.095}Ga_{0.905}As$. Во избежание значительного перекрытия электронных ВФ верхней и нижней лазерных подзон и, соответственно, уменьшения времени безызлучательной релаксации между ними структура сконструирована таким образом, что ВФ нижней электронной подзоны E_1 и верхней лазерной подзоны E_3 локализованы преимущественно в широкой КЯ1, а ВФ нижней лазерной подзоны E_2 в значительной степени локализована в средней КЯ2. Дополнительная узкая КЯ3 введена для предотвращения каскадного перехода между лазерными подзонами через состояния квазинепрерывного спектра над низким барьером $Al_{0.095}Ga_{0.905}As$ и повышения степени локализации при $k = 0$ нижней лазерной подзоны E_2, обладающей свойством 2D–3D-трансформации размерности. Рассчитанные профиль потенциала, положение уровней и распределение ВФ для зоны проводимости оптимизированного активного элемента показаны на рис. 1a. Обсуждавшимся выше состояниям E_1, E_2 и E_3 соответствуют первое, второе и восьмое состояния размерного квантования зоны проводимости. В дальнейшем они будут обозначаться как c1, c2 и c8. Состояния в валентной зоне будут иметь нумерацию с буквой h. Для обеспечения условия плоских зон и концентрации носителей $1.0\cdot10^{11}\,см^{-2}$ в нижней подзоне E_1 (необходимых для оптической накачки) КЯ2 и верхний барьер $Al_{0.35}Ga_{0.65}As$ шириной 5.0 нм легировались донорной примесью Si до уровней $N_D = 1.0\cdot10^{17}$ и $1.1\cdot10^{17}\,см^{-3}$ соответственно.

Ширины КЯ оптимизированного активного элемента были выбраны таким образом, чтобы обеспечить накачку излучением CO_2 лазера между подзонами E_1 и E_3 ($E_3 - E_1 = 121$ мэВ) и расстояние между самыми нижними подзонами E_2 и E_1 в 38.4 эВ, близкое к энергии LO-фонона. В этом случае время релаксации между низшими подзонами минимально и составляет 0.5 пс. Для данной структуры расчетное время безызлучательной релаксации между лазерными подзонами превышает 6 пс, т.е. оно в 4 раза больше соответствующего параметра для фонтанного лазера с симметричными барьерами [11]. Указанные параметры способствуют более легкой реализации инверсной населенности по сравнению со стандартной конструкцией активного элемента с одинаковыми по высоте барьерами.

Насчитывающие 70 периодов активного элемента структуры выращивались на установке EPENEAT фирмы Riber методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) на подложках (100) GaAs. Сверху структура закрывалась барьерным слоем n^+-$Al_{0.35}Ga_{0.65}As$ ($N_D = 3.2\cdot10^{17}\,см^{-3}$) толщиной 30 нм и верхним защитным легированным Si слоем n^+-GaAs ($N_D = 10^{18}\,см^{-3}$) толщиной 20 нм. Тонкие верхние слои позволяли зондировать структуру оптическими методами. Установка МЛЭ включала по два молекулярных источника галлия и алюминия. Для испарения мышьяка применялась молекулярная ячейка фирмы Veeco с крекинг-зоной и вентилем, управляемым от компьютера и позволяющим быстро изменять плотность молекулярного пучка мышьяка. Температура крекинг-зоны составляла 980 °C. Большое внимание было уделено точности калибровок скоростей роста и состава выращиваемых слоев AlGaAs, а также подтверждению близости параметров исследуемых структур к номинальным значениям. Эти аспекты отражены в [17].

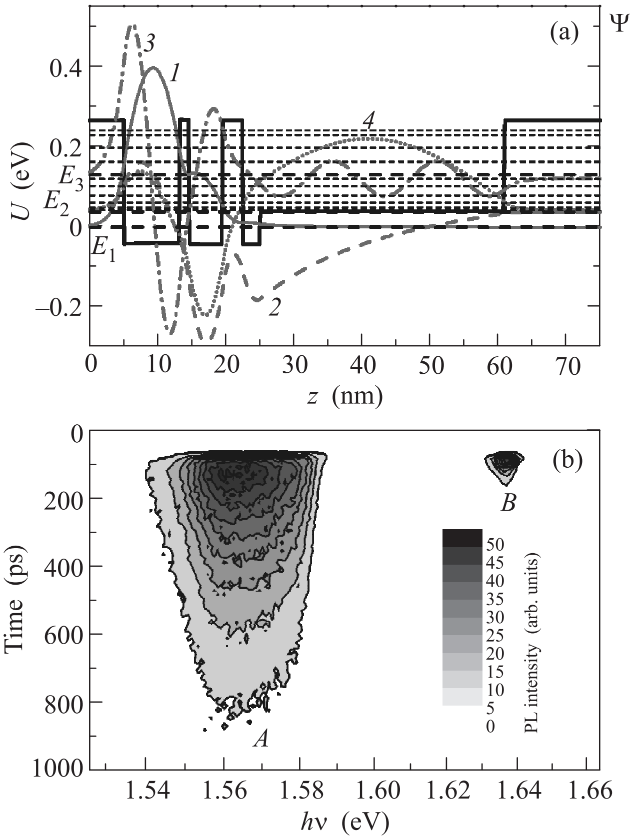

Рис. 1. (a) – Рассчитанные профиль потенциала, положение уровней и распределение ВФ для оптимизированного активного элемента униполярного лазера с асимметричными барьерами. Цифрами *1*, *2* и *3* обозначены ВФ для подзон E_1, E_2 и E_3 соответственно, *4* – ВФ для первого состояния квазинепрерывного спектра. (b) – Спектрально-временное топографическое изображение интенсивности ФЛ исследуемой структуры при $h\nu_{exc} = 1.6757$ эВ

Для исследования спектрально-кинетических зависимостей ФЛ изучаемых структур была использована стрик-камера Hamamatsu C5680, сопряженная с 0.5-метровым одинарным дифракционным спектрометром. Временное разрешение установки было лучше 8 пс, спектральное – 0.6 мэВ (с решеткой 300 штрихов/мм) или 1.5 мэВ (с решеткой 150 штрихов/мм). Источником коротких импульсов ИК-излучения, использовавшихся для возбуждения ФЛ структуры, служил перестраиваемый по длине волны Ti-сапфировый лазер Mira 900P с синхронизацией мод, генерировавший последовательность импульсов длительностью 2.5 пс (спектральная ширина ≈ 1 мэВ) с частотой повторения ≈ 76 МГц. Средняя мощность накачки образца составляла 2.5 мкВт. Возбуждающее излучение фокусировалось на образец в пятно диаметром ~ 0.5 мм под углом примерно 60° к нормали к плоскости структуры. Люминесцентное излучение структуры собиралось в направлении нормали к поверхности с освещенной стороны и фокусировалось на входную щель спектрометра. Образец был помещен в оптический криостат со стабилизацией температуры. Исследования кинетики ФЛ проводились при температуре 10 К.

На рис. 1b представлено одно из спектрально-временных изображений интенсивности ФЛ исследуемой структуры, полученное с помощью стрик-камеры при энергии квантов возбуждения $h\nu_{\mathrm{exc}} = 1.6757$ эВ. На нем показаны две полосы ФЛ (A и B). Интенсивность отражена степенью почернения рисунка. Горизонтальная шкала соответствует разложению в спектр по энергии, вертикальная – временной развертке (положение нулевой задержки выбрано произвольно). Анализ на основе совместного решения уравнений Шредингера и Пуассона показал, что наибольший вклад в полосу A дает переход между первыми состояниями электрона и тяжелой дырки (c1–h1), локализованными в КЯ1 (пик при 1.5586 эВ) [17]. Узкий пик B в области 1.6354 эВ обусловлен переходами c4–h4 (энергия без учета энергии связи экситона 1.6480 эВ, интеграл перекрытия $I_{44} = 0.19$). При этом электронный уровень c4 в основном локализован в области низкого барьера (с вероятностью $w = 0.8$), а дырочный уровень h4 – в КЯ3 ($w = 0.72$) и в области низкого барьера ($w = 0.24$). Для получения кинетических зависимостей интенсивности ФЛ спектрально-временное изображение интегрировалось по спектральным полосам шириной 5 мэВ в диапазоне от 1.540 до 1.648 эВ. Будем называть центральную энергию спектральной полосы интегрирования энергией регистрации.

В первой конфигурации эксперимента возбуждение осуществлялось с энергией квантов 1.6816 эВ, на 2.2 мэВ большей расстояния между первым дырочным уровнем и верхним лазерным состоянием E_3 (c8) с учетом энергии связи экситона. В интервал энергий регистрации попадают интересующие нас переходы (с учетом энергии связи экситона) между первыми электронным и дырочным уровнями, c1–h1 (1.5586 эВ), между вторым электронным и первым дырочным уровнями, c2–h1 (1.5966 эВ), и, наконец, между четвертыми электронным и дырочным уровнями, c4–h4 (1.6380 эВ). Последнему соответствует узкий пик в области 1.6354 эВ (рис. 1b). В большинстве случаев экспериментально измеренная временная эволюция интенсивности ФЛ в области спада хорошо аппроксимировалась простейшей моноэкспоненциальной зависимостью $I_{\mathrm{PL}}(t) = I_{\mathrm{PL}}(0)\exp(-t/\tau)$, где τ – постоянная времени, связанная с временем жизни на возбужденном электронном уровне. Такая зависимость свидетельствует о том, что безызлучательные процессы являются доминирующим механизмом рекомбинации [18].

На рис. 2a показаны спектрально-кинетические зависимости интенсивности ФЛ, измеренные при энергиях регистрации 1.5557 эВ (кривая *1*) и 1.5854 эВ (кривая *2*). Пунктирными линиями изображены результаты подгонки экспериментальных кривых к экспоненциальным зависимостям. При первой энергии регистрации, близкой к энергии перехода c1–h1 (1.5586 эВ), определялось время безызлучательной релаксации с верхней лазерной подзоны E_3 в нижнее электронное состояние. Установлено, что после импульса возбуждения интенсивность ФЛ затухает по экспоненциальному закону с постоянной времени 288 пс (кривая *1*). Это значение соответствует типичному времени жизни экситонов в КЯ GaAs [18]. При энергии регистрации 1.5854 эВ, т.е. вблизи перехода c2–h1 (1.5966 эВ), время безызлучательной релаксации между лазерными подзонами E_3 и E_2 будет соответствовать времени жизни верхнего лазерного состояния. Установлено, что при приближении энергии регистрации к переходу c2–h1 кинетика спада ФЛ описывается биэкспоненциальным законом (кривая *2* на рис. 2a)

$$I = 3195.9\exp\left(-\frac{t-132.97}{\tau_1}\right) + 171.99\exp\left(-\frac{t-244.75}{\tau_2}\right) + 13.91, \qquad (1)$$

где $\tau_1 \approx 9$ пс, $\tau_2 \approx 232.7$ пс. В (1) доминирует быстрая составляющая с постоянной времени, достигающей 9 пс. Это иллюстрирует правая вставка к рис. 1a,

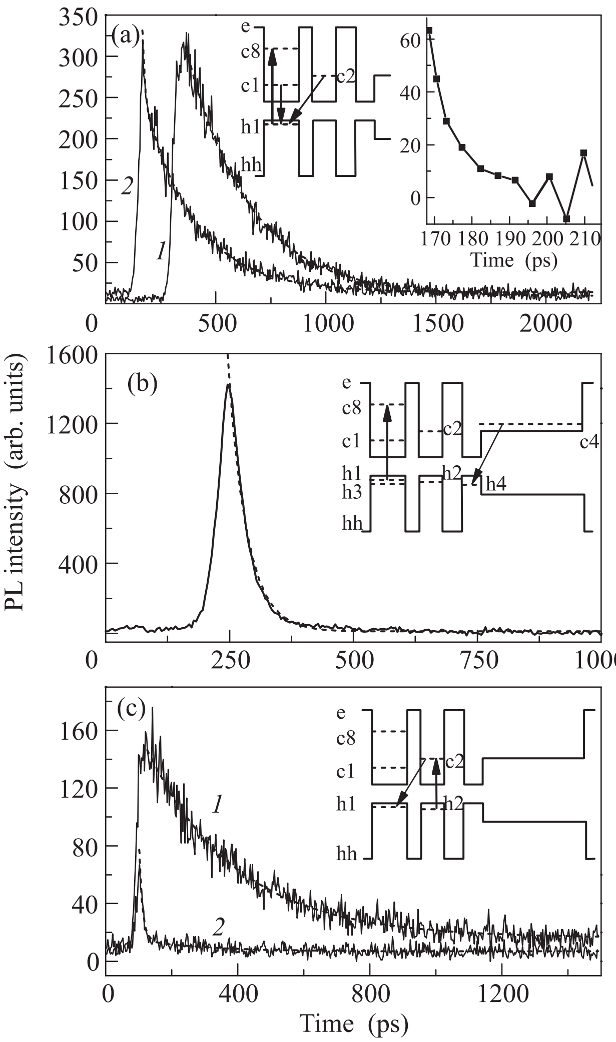

Рис. 2. Измеренные кинетики интегральной интенсивности экситонной ФЛ многопериодной структуры GaAs/AlGaAs с асимметричными барьерами. (a) – При возбуждении с энергией квантов 1.6816 эВ и энергиях регистрации 1.5557 эВ (кривая *1*) и 1.5854 эВ (кривая *2*). (b) – При возбуждении с энергией квантов 1.6816 эВ и энергии регистрации 1.6313 эВ. (c) – При возбуждении с энергией квантов 1.6222 эВ и энергиях регистрации 1.540 эВ (кривая *1*) и 1.590 эВ (кривая *2*). Пунктир – экспоненциальная аппроксимация кинетик затухания ФЛ. На вставках приведены схемы переходов

где показана разность между функцией (1) и медленной экспонентой. С ростом энергии регистрации до значений, отвечающих положению полосы B в спектре ФЛ (1.6354 эВ), время релаксации с верхней лазерной подзоны возрастает до ≈ 38.3 пс (см. рис. 2b). Следует напомнить, что полоса B в спектре ФЛ на рис. 1b была отнесена к переходу между четвертым уровнем размерного квантования электронов, локализованным преимущественно в низком барьере, и четвертым дырочным уровнем. Значительное время безызлучательной релаксации в этом случае свидетельствует о том, что дополнительный барьер шириной 3.0 нм, отделяющий КЯ1 и КЯ2 с локализованными в них лазерными подзонами от КЯ3 с асимметричными барьерами, действительно препятствует паразитному каскадному переходу между лазерными подзонами через состояния квазинепрерывного спектра.

Во второй конфигурации эксперимента энергия квантов возбуждения составляла 1.6222 эВ. Это значение немного превышает расстояние по энергии между вторым дырочным уровнем и нижним лазерным состоянием, c2–h2 (1.6104 эВ с учетом энергии связи экситона). Энергия регистрации варьировалась от 1.535 до 1.590 эВ с шагом ≈ 5 мэВ. Как видно из рис. 2c (кривая *2*), при приближении энергии регистрации к расстоянию между первым дырочным уровнем и нижним лазерным состоянием, c2–h1 (~ 1.59 эВ), время рекомбинации уменьшается до значений, меньших используемого временного разрешения (< 8 пс). Таким образом, время жизни на верхнем лазерном уровне оказывается выше, чем на нижнем лазерном уровне. Тем самым обеспечивается инверсия населенностей и выполняется одно из условий лазерной генерации (первое лазерное условие).

Итак, в настоящей работе исследована кинетика ФЛ с различных подзон многопериодных структур $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ с асимметричными барьерами, предложенных нами в качестве активного элемента униполярного лазера. Экспериментально показано, что при низких температурах время жизни в верхнем лазерном состоянии достигает 9 пс. Это значение более чем в 5 раз превышает соответствующий параметр, типичный для структур униполярного лазера с симметричными барьерами. Введение дополнительной квантовой ямы со стороны низкого барьера в такие структуры позволяет подавить паразитный процесс безызлучательного каскадного перехода между лазерными состояниями через состояния квазинепрерывного спектра.

Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований и программами Президиума Российской академии наук. Авторы благодарят В.М. Пудалова за обсуждение результатов.

1. Р. Ф. Казаринов, Р. А. Сурис, ФТП **5**, 797 (1971).
2. J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, S. N. G. Chu, and A. Y. Cho, Science **264**, 553 (1994).
3. O. Cathabard, R. Teissier, J. Devenson, J. C. Moreno, and A. N. Baranov, Appl. Phys. Lett. **96**, 141110 (2010).

4. G. Scalari, C. Walther, M. Fischer, R. Terazzi, H. Beere, D. Ritchie, and J. Faist, J. Laser Photonics Rev. **3**, 45 (2009).
5. D. Hofstetter, M. Beck, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Ilegems, E. Gini, and H. Melchior, Appl. Phys. Lett. **78**, 1964 (2001).
6. A. Lyakh, R. Maulini, A. Tsekoun, R. Go, C. Pflügl, L. Diehl, Q. J. Wang, F. Capasso, and C. K. N. Patel, Appl. Phys. Lett. **95**, 141113 (2009).
7. Z. Moussa, P. Boucaud, F. H. Julien, Y. Lavon, A. Sa'ar, V. Berger, J. Nagle, and N. Coron, Electron. Lett. **31**, 912 (1995).
8. Y. Lavon, A. Sa'ar, Z. Moussa, F. H. Julien, and R. Planel, Appl. Phys. Lett. **67**, 1984 (1995).
9. F. H. Julien, A. Sa'ar, J. Wang, and J.-P. Leburton, Electron. Lett. **31**, 838 (1995).
10. G. Sun and J. B. Khurgin, IEEE J. Quantum Electronics **29**, 1104 (1993).
11. O. Gauthier-Lafaye, S. Sauvage, P. Boucaud, F. H. Julien, F. Glotin, R. Prazeres, J.-M. Ortega, V. Thierry-Mieg, and R. Planel, J. Appl. Phys. **83**, 2920 (1998).
12. O. Gauthier-Lafaye, F. H. Julien, S. Cabaret, S. Cabaret, J.-M. Lourtioz, G. Strasser, E. Gornik, M. Helm, and P. Bois, Appl. Phys. Lett. **74**, 1537 (1999).
13. O. Gauthier-Lafaye, B. Seguin-Roa, F. H. Julien, P. Collot, C. Sirtori, J. Y. Duboz, and G. Strasser, Physica E **7**, 12 (2000).
14. Yu. A. Aleshchenko, V. V. Kapaev, Yu. V. Kopaev, and N. V. Kornyakov, Nanotechnology **11**, 206 (2000).
15. В. В. Капаев, Ю. В. Копаев, Письма в ЖЭТФ **65**, 188 (1997).
16. Yu. A. Aleshchenko, V. V. Kapaev, and Yu. V. Kopaev, Semicond. Sci. Technol. **26**, 014021 (2011).
17. Ю. А. Алещенко, В. В. Капаев, Ю. В. Копаев, Ю. Г. Садофьев, М. Л. Скориков, Квантовая электроника **40**, 685 (2010).
18. M. Gurioli, A. Vinattieri, M. Colocci, C. Deparis, J. Massies, G. Neu, A. Bosacchi, and S. Franchi, Phys. Rev. B **44**, 3115 (1991).