Письма в ЖЭТФ, том 110, вып. 5, с. 297 – 302

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 K в условиях оптической накачки. Пороговая плотность мощности накачки составила ~ 5 кВт/см^2 при температуре 10 K.

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 МБС 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 называемой 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 МБС 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].

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 КЯ 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 $In_xAl_{1-x}As$ толщиной 1.3 мкм с корневым профилем изменения содержания In ($x = 0.05{-}0.87$) по толщине структуры [6] и активную область, конструк-

1)e-mail: vasol@beam.ioffe.ru

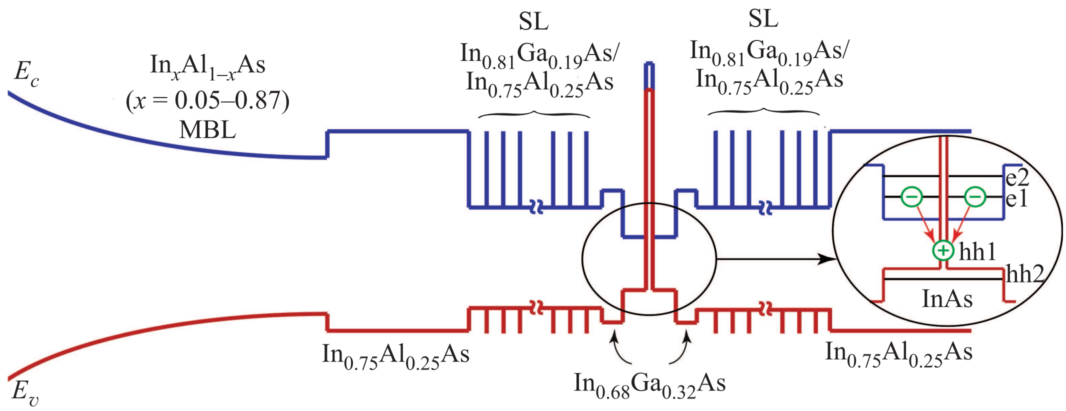

Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематическое изображение зонной диаграммы образца A

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 мкм^2) 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 50-периодные 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 A и образцах B и C, соответственно. Таким образом, в образцах B и C 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 A, где это условие соблюдалось только для слоев InGaAs. Кроме того, в образцах A и B 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-

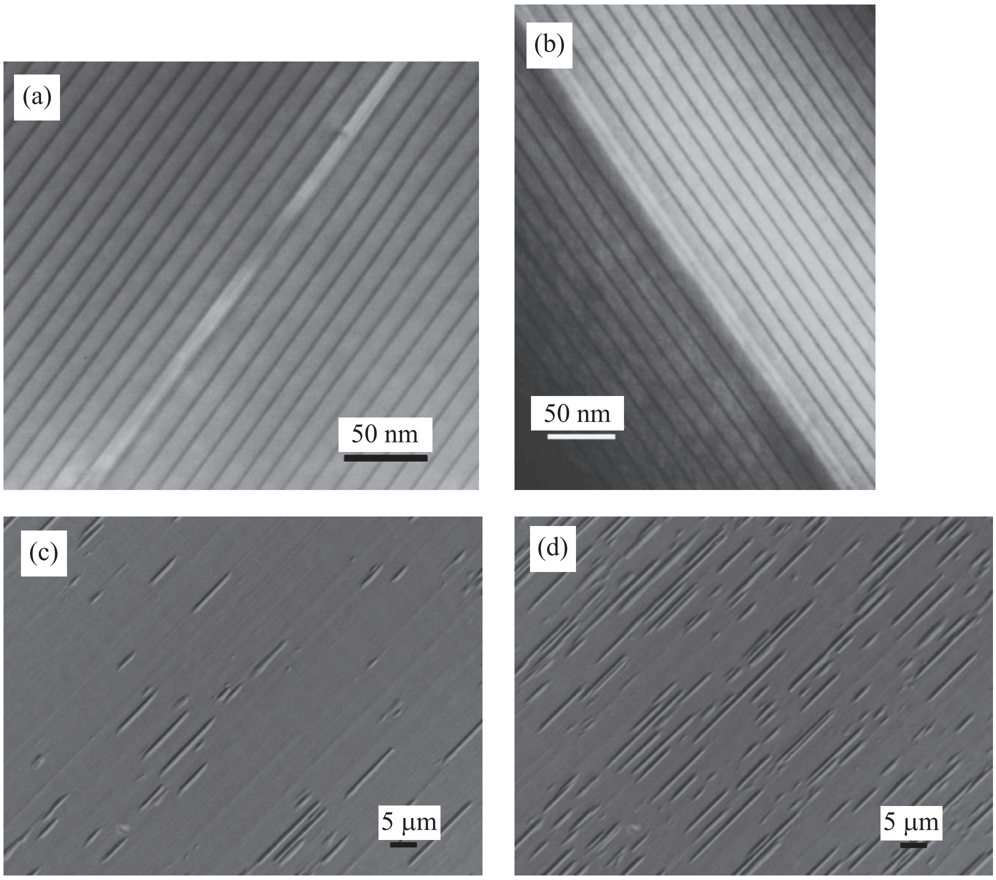

Рис. 2. Светлопольные ПЭМ-изображения активной области в геометрии поперечного сечения структуры (a), (b) и изображения поверхности в оптическом микроскопе (c), (d) образцов A (a), (c), B (b) и C (d)

ходимые по величине напряжения растяжения, а с другой стороны, не препятствовать эффективному сбору неравновесных носителей в КЯ. В образце C 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 ($\lambda = 809$ нм) 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 ~ 10 K). Для накачки образцов применялся импульсный лазер Nd:YAG ($\lambda = 1.064$ 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. 2c, d). Их плотность достаточно сильно различалась в исследованных образцах. При этом их наименьшая $\sim 5\cdot 10^5$ см$^{-2}$ и наибольшая $\sim 3\cdot 10^6$ см$^{-2}$ плотность была обнаружена в образцах A (рис. 2c) 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 КЯ 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 ФЛ исследованных структур, измеренные при температуре 80 К

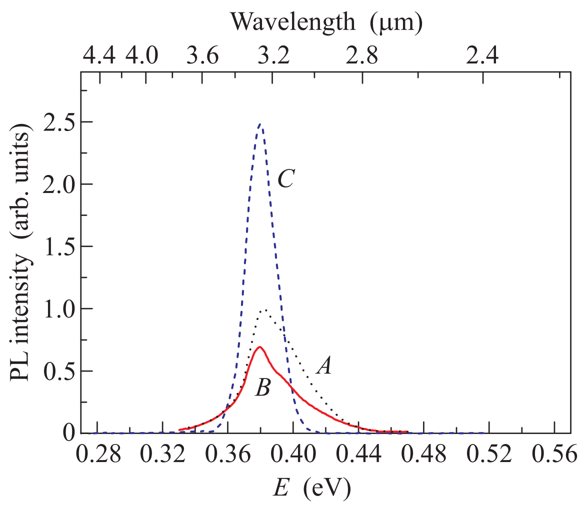

Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры ФЛ исследованных структур, измеренные при температуре 80 К

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 КЯ InAs/InGaAs на дырочные уровни в субмонослойной вставке InSb. Небольшое снижение интенсивности линии ФЛ в образце B по сравнению с образцом A 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 ФЛ была в ~ 2.5 раза большей по сравнению с образцом A. Как видно из рис. 3, форма линий ФЛ для образцов A и B сильно неоднородна и свидетельствует о наличии в ней нескольких близко расположенных пиков ФЛ.

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 КЯ InAs/InGaAs производился путем численного решения уравнения Шредингера. Проведенные расчеты показали, что для образцов A и B в КЯ существует 2 электронных уровня (e_1 и e_2) и 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 A и B 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 ФЛ, 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 К) 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
B	379	384	388	405
C	380	384	–	–

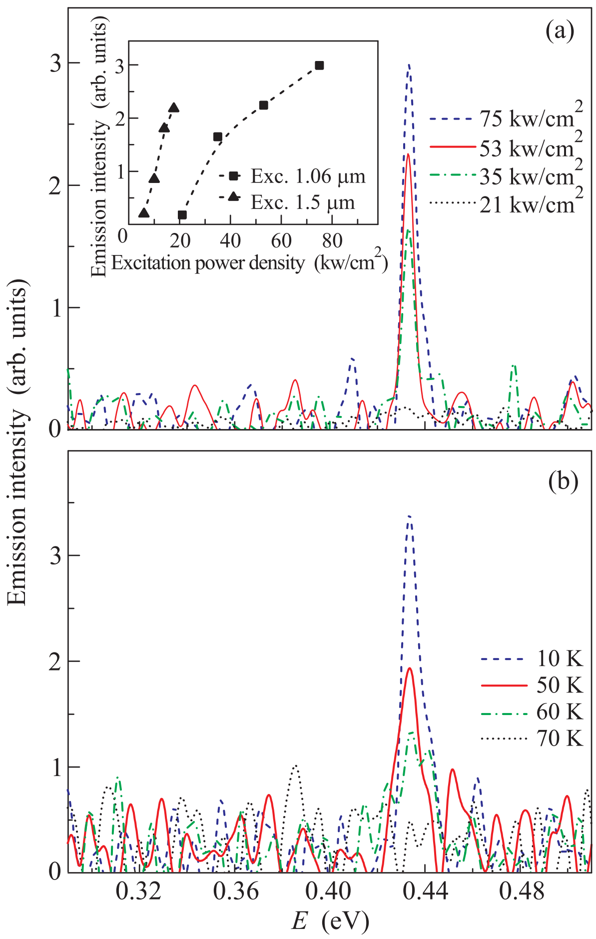

Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры стимулированного излучения образца A, измеренные при импульсной накачке лазером с $\lambda = 1.064$ мкм: (a) – при разных плотностях мощности накачки и температуре 10 К; (b) – при разных температурах и плотности мощности накачки 70 кВт/см$^{-2}$. На вставке приведены 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 интенсивности излучения с накачкой, ярко выраженный пороговый характер зависимости интегральной ФЛ от плотности мощности возбуждения (вставка на рис. 4a), 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. 2c, 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 (~ 10 мм^2) на образце. С повышением температуры стимулированное излучение сохранялось вплоть до 60 К при мощности накачки 75 кВт/см^2 (рис. 4b). Помимо линии, соответствующей излучению из составной КЯ, в спектрах присутствовала более интенсивная коротковолновая линия ($\lambda \sim 1.95$ мкм) с энергией ~ 635 мэВ (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 ~ 20 кВт/см^2 и уменьшалась до значений ~ 5 кВт/см^2 при использовании накачки с

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

Сравнение спектров спонтанной ФЛ и стимулированного излучения показывает, что последнее происходит при энергиях, существенно превышающих энергии пиков E_1 и E_2. 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 ~500–510 мэВ были экспериментально измерены для наблюдаемого одиночного пика ФЛ в подобных 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 B_2 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 K 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 КЯ 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).

1. C. J. K. Richardson, L. He, P. Apiratikul, N. P. Siwak, and R. P. Leavitt, Appl. Phys. Lett. **106**, 101108 (2015).
2. P. Apiratikul, L. He, and C. J. K. Richardson, Appl. Phys. Lett. **102**, 231101 (2013).
3. Q. Lu, Q. Zhuang, A. Marshall, M. Kesaria, R. Beanland, and A. Krier, Semicond. Sci. Technol. **29**, 075011 (2014).
4. 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).
5. 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).
6. 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).
7. 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).
9. A. N. Semenov, O. G. Lyublinskaya, V. A. Solov'ev, B. Ya. Meltser, and S. V. Ivanov, J. Crystal Growth **301–302**, 58 (2007).
10. 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).