

Лазерная генерация в микродисках с активной областью на основе решеточно-согласованных InP/AlInAs наноструктур

© Д.В. Лебедев,¹ А.М. Минтаиров,^{1,2} А.С. Власов,¹ В.Ю. Давыдов,¹ М.М. Кулагина,¹ С.И. Трошков,¹ А.А. Богданов,^{1,3} А.Н. Смирнов,¹ А. Gocalinska,⁴ G. Juska,⁴ E. Pelucchi,⁴ J. Kapaldo,² S. Rouvimon,² J.L. Merz²

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия

² University of Notre Dame,
46556 Notre Dame, USA

³ Университет ИТМО,
197101 Санкт-Петербург, Россия

⁴ Tyndall National Institute,
Cork, Ireland

e-mail: lebedev.dmitri@mail.ioffe.ru

(Поступило в Редакцию 10 мая 2016 г.)

Исследованы излучающие свойства ненапряженных квантово-размерных наноструктур InP/AlInAs и лазерная генерация этих наноструктур в микродисковых резонаторах, сформированных мокрым травлением. Для исходных структур было обнаружено, что их излучение обусловлено квантово-размерными InP-островками с диаметром 50–300 nm. Для микродисков мы наблюдали моды шепчущей галереи при температурах ниже 160 К. Эксперименты по измерению зависимости интенсивности фотолюминесценции мод микрорезонатора от мощности накачки, проведенные при температуре жидкого гелия, позволили установить величину порога лазерной генерации, который составил 50 W/cm². Полуширина лазерной линии при мощностях, превышающих пороговые, составляла 0.06 nm, что соответствует добротности 15000.

DOI: 10.21883/JTF.2017.07.44680.1881

Введение

В работе [1] было обнаружено, что при определенных условиях роста осаждение 1–8 nm InP на слой AlInAs толщиной ~ 100 nm, выращенный на (100) грани ориентированной InP-подложки, при помощи металлоорганической эпитаксии из газовой фазы не приводит к послойному росту InP, а приводит к собиранию осажденного материала в островки и нити. Отработка воспроизводимости режимов роста позволила получать новый тип низкоразмерных наноструктур с низкой плотностью ~ 10⁸ cm⁻², называемый также агрегационными квантовыми точками, несмотря на их широкое распределение по латеральному размеру ~ 20–250 nm. Образование таких наноструктур предположительно обусловлено локальными напряжениями, возникающими вследствие неравномерного распределения атомов твердого раствора AlInAs. При этом было установлено, что критическое влияние на морфологию поверхности и вид наноструктур оказывает грань роста и разориентация подложки [1,2]. Также следует особо отметить, что образование именно островков происходит в диапазоне температур 565–630°C, причем было обнаружено влияние температуры роста на плотность и высоту получаемых наноструктур. Особенностью полученной наноструктуры является согласованность параметров кристаллической решетки материала точки и подложки. При этом, несмотря на то что образование каждой отдельной точ-

ки обусловлено локальными напряжениями, в среднем сама наноструктура является ненапряженной. Поскольку гетеропереход InP/AlInAs относится ко второму типу [3], то использование таких наноструктур позволяет создавать ограничивающий потенциал для электронов в области точки, при этом рекомбинация сопровождается излучением в области ближнего ИК диапазона.

В силу большого латерального размера такие квантовые островки представляют определенный интерес при использовании их в качестве активной области лазеров на основе микродисковых резонаторов. Преимущества использования таких резонаторов в лазерах обусловлены их малым размером, высокой добротностью, а также возможностью достижения низкопороговой генерации [4,5], что является следствием существования в них собственных мод шепчущей галереи (МШГ).

Известно, что порог лазерной генерации для микрорезонаторов [6] определяется такими факторами, как добротность и вклад спонтанного излучения в лазерную моду, при этом в случае использования в качестве активной среды массива квантовых точек важную роль играет геометрия их расположения [7, 8]. Модификация спонтанного излучения в резонаторе характеризуется величиной коэффициента Парселла, а его максимальные значения достигаются помещением точечного излучателя в положение максимума поля резонансной моды. Так, можно ожидать, что для резонаторов, активная область которых содержит квантовые точки большого

размера, будет наблюдаться низкий порог генерации в силу большего перекрытия с полем лазерной МШГ. Проведенные эксперименты по исследованию микродисков с самоорганизованными InP/GaInP квантовыми точками, имеющими большой размер (~ 100 nm) и малую плотность ($\sim 10^9$ cm $^{-2}$), подтверждают данную гипотезу [9], порог лазерной генерации, достигнутый на этом объекте, является наименьшим, и по абсолютной величине составляет ~ 1 nW (при температуре 15 K).

В настоящей работе мы впервые исследовали излучающие свойства квантово-размерных InP/AlInAs-структур, подобных полученным в работе [1], характеризующимся большим латеральным размером и малой плотностью. А также исследовали их использование в качестве активной области микродисковых резонаторов.

1. Экспериментальная часть

Образцы с квантовыми наноструктурами были выращены на InP (100) полуизолирующей подложке при помощи металлоорганической газофазной эпитаксии. Для образца I на подложку осаждали 100 nm буферного слоя InP, за которым следовал 140 nm слой Al $_{0.48}$ In $_{0.52}$ As, затем осаждали 0.75–1 nm InP-слой, который был закрыт также слоем 140 nm Al $_{0.48}$ In $_{0.52}$ As. Слои AlInAs служили волноводом. Образец II отличается тем, что нижний слой AlInAs был легирован *n*-типом примеси на расстоянии 20 nm от слоя наноструктур. Толщина области ввода примеси составляла также 20 nm. Детальное описание процесса роста описано в работе [1]. Температура роста для AlInAs-слоев составляла 600°C, а для InP-наноструктур 630°C. Соотношение V/III — 110 и 180 соответственно. Согласно данным просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) (рис. 1), осажденный InP не образует ровный слой, а собирается в островки с широким распределением по диаметру (50–300 nm), с высотой таких островков 2.3 nm. Данные ПЭМ были получены с использованием микроскопа FEI Titan 80-300, ускоряющее напряжение составляло 300 kV, срезы образцов готовили с использованием установки FEI Helios Dual Beam.

Из полученных структур были сформированы микродиски с диаметрами 3–3.5 μ m при помощи оптической фотолитографии и химического травления с использованием HCl, H $_3$ PO $_4$ и CH $_3$ COOH. Изображение микродиска с диаметром 3.2 μ m, полученное с использованием сканирующего электронного микроскопа (СЭМ), представлено на рис. 2.

Спектры фотолюминесценции (ФЛ) были измерены при помощи монохроматора МДР-23, в качестве детектора использовали ФЭУ-62, возбуждение проводили твердотельным лазером ($\lambda = 532$ nm). Эксперименты по определению порога лазерной генерации и эксперименты с временным разрешением проводились с помощью стандартной системы микрофотолюминесценции, описанной в [10], при импульсном возбуждении лазером

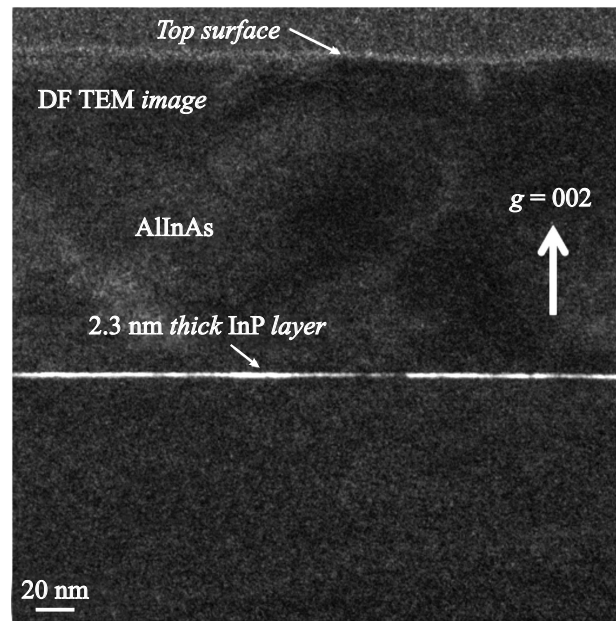


Рис. 1. Темнопольное ПЭМ изображение исследуемой структуры (образец II). Светлые участки соответствуют InP.

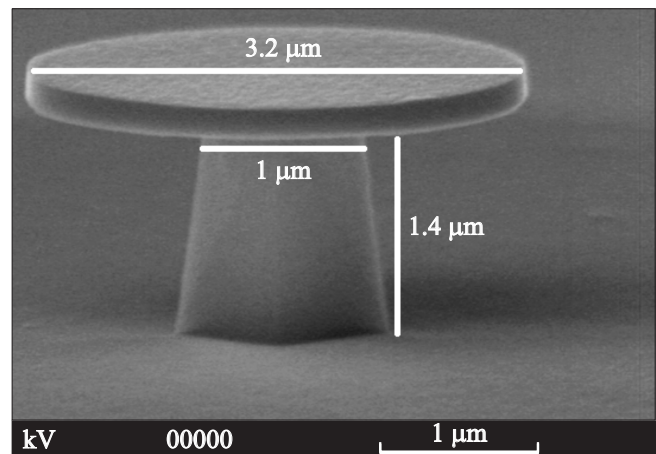


Рис. 2. СЭМ изображение микродиска, полученного мокрым травлением.

с длиной волны 635 nm и частотой 10 MHz. Мощность излучения на образце контролировалась путем использования нейтральных фильтров.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

2.1. ФЛ исходной структуры

Спектр ФЛ исходной структуры (образец I) при плотности мощности накачки 10 W/cm 2 при 77 K приведен на рис. 3. Наблюдали две спектральные полосы, соответствующие рекомбинации на гетеропереходе AlInAs/InP-буферный слой (~ 1 μ m, 1.24 eV) и рекомбинации в

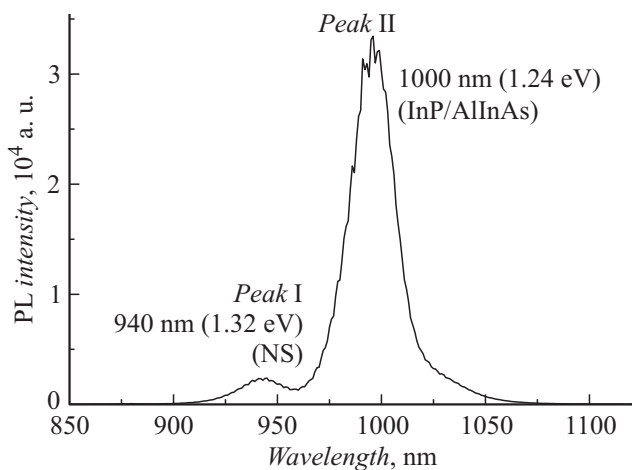


Рис. 3. ФЛ исходной структуры при плотности мощности $\sim 10 \text{ W/cm}^2$.

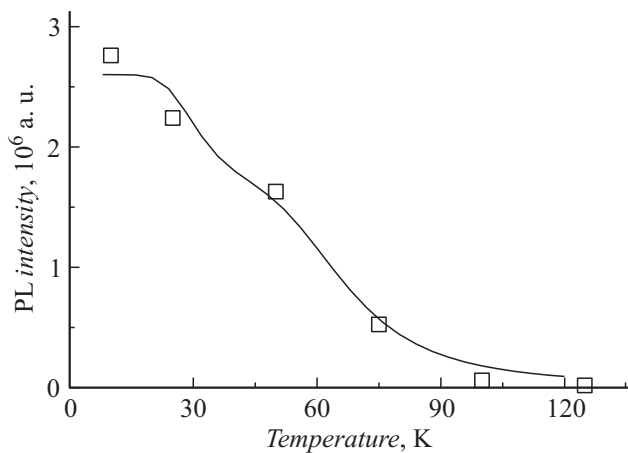


Рис. 4. Зависимость интегральной интенсивности ФЛ полосы наноструктур от температуры. Приведена аппроксимация этой зависимости с использованием выражения (1) с учетом двух центров безызлучательной рекомбинации.

области наноструктур ($\sim 940 \text{ nm}$, 1.32 eV). Из литературных данных известно, что технология осаждения InP на AlInAs (и наоборот) существенно влияет на положение полос ФЛ — положение полосы от гетероперехода варьирует в диапазоне $1.1\text{--}1.3 \text{ eV}$ [3,11,12]. В большинстве случаев такое поведение определяется неоднородностью приграничного слоя по составу, приводящее к образованию InAs-квантовой ямы на границе, при этом рекомбинацию на таком гетеропереходе относят к смешанному типу I–II. Поскольку для наших образцов увеличение мощности накачки приводит к смещению полосы при $1 \mu\text{m}$ в сторону более коротких длин волн, то это подтверждает наше предположение о том, что данная полоса относится к рекомбинации на гетеропереходе II типа, а не в наноструктурах. Соавторами работы при помощи экспериментов по селективному химическому травлению [1] была определена неоднород-

ность отдельных островков по составу. Было выявлено, что середина InP-островков включает в себя примесь мышьяка. Различие в положении обеих полос составляет примерно 80 meV , что вероятней всего отражает величину размерного квантования в наноструктурах.

Увеличение температуры до 160 K приводит к резкому уменьшению интенсивности ФЛ полосы, соответствующей наноструктурам, тогда как другие полосы сохраняются. Зависимость интегральной интенсивности ФЛ полосы наноструктур от температуры, измеренная для диапазона $10\text{--}160 \text{ K}$, приведена на рис. 4. Для гетероструктур с низкой плотностью дефектов такая зависимость описывается феноменологическим выражением [13]:

$$I_{PL} = \frac{I_0}{1 + \sum \frac{\tau_0}{\tau_i} \exp\left(\frac{-E_{ai}}{kT}\right)}, \quad (1)$$

где I_0 — это интенсивность ФЛ при $T = 0 \text{ K}$, τ_i — время выхода экситона на i -й безызлучательный центр, τ_0 — излучательное время жизни экситона, E_{ai} — энергия активации перехода носителя на i -й безызлучательный центр и k — постоянная Больцмана. Нами было определено два центра безызлучательной рекомбинации с энергиями активации 0.01 и 0.08 eV . Природа центров не ясна, но мы предполагаем, что первый центр может быть связан с дефектами слоя AlInAs, тогда как второй, по-видимому, обусловлен уходом дырок из области наноструктур.

2.2. Микрофотолюминесценция микродисков

При низкой ($10\text{--}160 \text{ K}$) температуре мы наблюдали интенсивные (соотношение интенсивностей ФЛ $I_{WGM}/I_{nano} \sim 2\text{--}3$) спектральные линии, соответствующие МШГ резонатора, которые образуются за счет распространения электромагнитной волны вдоль стенки резонатора. Расстояние между соседними максимумами мод определяется частотой поля, размерами и материалами резонатора. Однако все эти параметры можно заменить эффективным показателем преломления [14].

Для полученных дисков с использованием программного пакета COMSOL Multiphysics были определены азимутальный и радиальный индексы мод шепчущей галереи. Анализ модового состава проводился с помощью метода конечных элементов путем решения двумерного уравнения Гельмгольца в цилиндрических координатах (осевая симметрия задачи позволяет выбрать для мод угловую зависимость в форме $\exp(im\varphi)$, где m — это радиальное число, благодаря чему можно свести трехмерную задачу к двумерной [15,16]). Сопоставление результатов компьютерного моделирования спектров микродисков диаметром $3\text{--}3.5 \mu\text{m}$ с экспериментальными спектрами показало, что лазерная генерация осуществляется на квази-ТЕ модах первого и второго радиального порядков.

Для полученных микродисков в температурном интервале $10\text{--}90 \text{ K}$ было обнаружено, что при увеличении мощности накачки от 10 до 400 W/cm^2 происходит

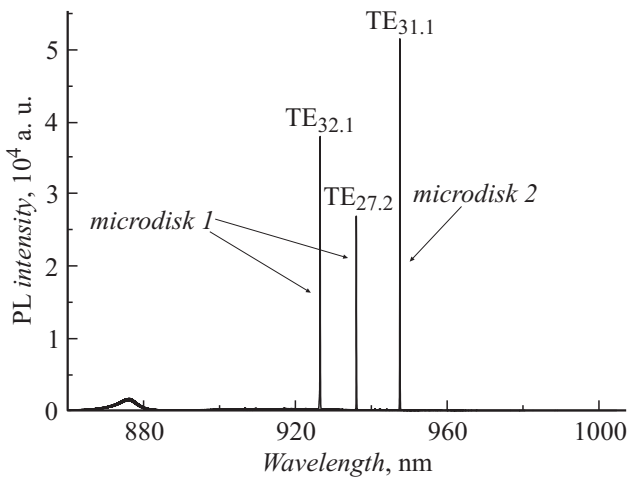


Рис. 5. Спектр микрофотолюминесценции двух микродисков в режиме лазерной генерации.

резкое возрастание интенсивности отдельной моды или мод, указывающее на возникновение лазерной генерации. Спектры излучения в режиме генерации при 10 К для двух микродисков (образец II), имеющих диаметр $3.5 \mu\text{m}$, показаны на рис. 5, из которого видно, что на исследуемых микродисках возможно получение как одномодовой, так и двумодовой генерации. Полуширина мод в режиме генерации составила 0.06 nm , что соответствует добротности $Q \sim E/\Delta E \approx 15000$. Из зависимостей интенсивности фотолюминесценции от мощности накачки был определен порог лазерной генерации, который составил 50 W/cm^2 . Известно, что в случае микрорезонаторов такая зависимость описывается следующим выражением [8,17], связывающим число фотонов p с током накачки I :

$$I(p) = A \left[\frac{p}{1+p} (1 + \xi)(1 + \beta p) - \xi \beta p \right]. \quad (2)$$

Здесь параметр $A = \hbar\omega\gamma/\delta\beta$, где ω — частота моды, γ — скорость ухода фотонов из резонатора, а δ — эффективность преобразования фотонов. В случае оптической накачки I соответствует мощности накачки, а интенсивность ФЛ пропорциональна p . Безразмерный параметр $\xi = N_0\beta V/\gamma\tau_{sp}$, где N_0 — концентрация носителей при просветлении активной области, V — объем активной области, а τ_{sp} — время жизни спонтанного излучения. Поскольку для микрорезонаторов характерен высокий вклад спонтанного излучения в лазерную моду β , то данная зависимость носит сглаженный характер [6], что было подробно исследовано и промоделировано в работе [18].

Аппроксимация экспериментальной зависимости с использованием выражения (2) позволяет определить параметр β . Однако оценка данного вклада исходя только из формы зависимости выходной мощности от входной является неточной, поскольку на ее форму также оказывает существенное влияние величина N_0 .

Согласно теоретическим расчетам скорости излучения в моду микродискового резонатора, величина вклада спонтанного излучения для микродисков приближается к 30% при условии близости радиуса диска к длине волны [14]. В то же время, согласно анализу экспериментальных зависимостей, рядом авторов были получены следующие значения β для МШГ: 0.02–0.85 в ZnSe микродисках с CdSe квантовыми точками (КТ) [19]; 0.61 в GaAsAlGaAs микропилларах с InAs КТ [20]; 0.14 в GaN микродисках с InGaN квантовой ямой (КЯ) [21]; 0.1 в GaInAsP микродисках [22]; 0.09 в (Al,Ga)As/GaAs микродисках с InAs КТ [17]. Наилучшая аппроксимация экспериментальной зависимости (рис. 6) была получена при значениях $\beta = 0.23$ и $\xi = 8$.

Также нами были проведены эксперименты по ФЛ с временным разрешением, позволившие установить, что время жизни спонтанного излучения в моду резонатора в 1.4 раза меньше времени жизни излучения в свободное пространство. Согласно работе [23], вклад спонтанного излучения может быть оценен из выражения $\beta = 1 - \tau_{\text{cav}}/\tau_{\text{free}}$, где τ_{cav} и τ_{free} — время жизни излучения в моду резонатора и свободное пространство соответственно. Исходя из этого величина β была также оценена, она составила 0.29, что находится в согласии со значением β , полученного из аппроксимации зависимости интенсивности от мощности накачки.

Сравним полученные результаты с результатами работы [24]. Сравнимые структуры представлены разными материалами и различной технологией получения квантовых точек. В случае работы [24] использовали GaInP-микродиски с введенными InP КТ, имеющими размер 4–5 nm и плотностью $1.5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Тогда как условия получения микродисковых резонаторов являются идентичными (мокрое травление, оптическая литография). Также близкими являются условия накачки. Из сравнения экспериментальных данных видно, что пороговая плотность мощности ($100\text{--}200 \text{ W/cm}^2$), определенная в

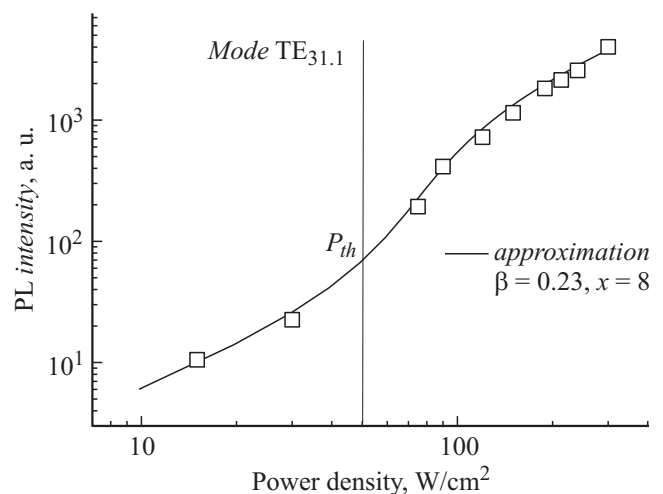


Рис. 6. Зависимость интенсивности ФЛ от мощности оптической накачки. Приведена аппроксимация этой зависимости с использованием выражения (2).

работе [24] немного выше, тогда как вклад спонтанного излучения ($\beta = 0.195$) немного меньше, чем в нашей, однако добротность мод ($Q = 35\,800$) существенно выше.

3. Заключение

Показано, что спектр ФЛ исследуемых InP/AlInAs наноструктур лежит в области ближнего ИК-диапазона (900–1000 nm), что позволяет их использовать в качестве активной области микродисковых резонаторов с диаметром $\sim 3\ \mu\text{m}$. Исследуемые микродиски демонстрируют низкий порог лазерной генерации ($\sim 50\ \text{W}/\text{cm}^2$) при температуре 10 К, которая наблюдается на одной или двух модах шепчущей галереи с добротностью $\sim 15\,000$. При этом оцененный вклад спонтанного излучения в лазерную моду β составляет 0.23.

Д.В. Лебедев и А.М. Минтаиров благодарит Министерство образования и науки Российской Федерации (контракт № 14.Z50.31.0021 от 7 апреля 2014 г.). А.А. Богданов благодарит за поддержку фонд РФФИ (16-37-600-64) и грант президента РФ (МК-6462.2016.2). Е. Pelucchi, А. Gocalinska и G. Juska благодарят Science Foundation Ireland (Grant Nos. 12/RC/2276 и 10/IN.1/I3000).

Список литературы

- [1] Gocalinska A., Manganaro M., Juska G., Dimastrodonato V., Thomas K., Joyce B.A., Zhang J., Vvedensky D.D., Pelucchi E. // Appl. Phys. Lett. 2014. Vol. 104. N 14. P. 141606.
- [2] Gocalinska A., Manganaro M., Pelucchi E., Vvedensky D.D. // Phys. Rev. B. 2012. Vol. 86. N 16. P. 165307.
- [3] Abraham P., Garcia Perez M.A., Benyattou T., Guillot G., Sacilotti M., Letartre X. // Semicond. Sci. Technol. 1995. Vol. 10. N 12. P. 1585–1594.
- [4] Крыжановская Н.В., Жуков А.Е., Надточий А.М., Словинский И.А., Максимов М.В., Кулагина М.М., Савельев А.В., Аракчеева Е.М., Задиранов Ю.М., Трошков С.И., Липовский А.А. // ФТП. 2012. Т. 46. Вып. 8. С. 1063–1066.
- [5] Жуков А.Е., Крыжановская Н.В., Максимов М.В., Липовский А.А., Савельев А.В., Богданов А.А., Шостак И.И., Мусеев Э.И., Карпов Д.В., Laukkanen J., Tommila J. // ФТП. 2014. Т. 48. Вып. 12. С. 1666–1670.
- [6] Yamamoto Y., Machida S., Bjork G. // Phys. Rev. A. 1991. Vol. 44. N 1. P. 657–668.
- [7] Reitzenstein S., Bockler C., Bazhenov A., Gorbunov A., Löffler A., Kamp M., Kulakovskii V.D., Forchel A. // Opt. expres. 2008. Vol. 16. N 7. P. 4849–4857.
- [8] Reitzenstein S., Bazhenov A., Gorbunov A., Hofmann C., Munch S., Löffler A., Kamp M., Reithmaier J.P., Kulakovskii V.D., Forchel A. // Appl. Phys. Lett. 2006. Vol. 89. N 5. P. 051107.
- [9] Chu Y., Mintairov A.M., He Y., Merz J.L., Kalugnyu N.A., Lantratov V.M., Mintairov S.A. // Phys. Status Solidi C. 2011. Vol. 8. N 2. P. 325–327.
- [10] Juska G., Murray E., Dimastrodonato V., Chung T.H., Moroni S.T., Gocalinska A., Pelucchi E. // J. Appl. Phys. 2015. Vol. 117. N 13. P. 134302.
- [11] V. Duez V., Vanbesien O., Lippens D., Vignaud D., Wallart X., Mollot F. // J. Appl. Phys. 1999. Vol. 85. N 4. P. 2202–2206.
- [12] Pocas L.C., Duarte J.L., Dias I.F.L., Laureto E., Lourenco S.A., Toginho Filho D.O., Meneses E.A., Mazzaro I., Harmand J.C. // J. Appl. Phys. 2002. Vol. 91. N 11. P. 8999–9004.
- [13] Lourenco S.A., Dias I.F.L., Pocas L.C., Duarte J.L., De Oliveira J.B.B., Harmand J.C. // J. Appl. Phys. 2003. Vol. 93. N 8. P. 4475–4479.
- [14] Chin M.K., Chu D.Y., Ho S.T. // J. Appl. Phys. 1993. Vol. 75. N 7. P. 3302–3307.
- [15] Городецкий М. Оптические микрорезонаторы с гигантской добротностью. М.: Физматлит, 2011. 416 с.
- [16] Oxborrow M. // IEEE Trans. Microw. Theor. 2007. Vol. 55. N 6. P. 1209–1218.
- [17] Wang W.H., Ghosh S., Mendoza F.M., Li X., Awschalom D.D., Samarth N. // Phys. Rev. B. 2005. Vol. 71. N 15. P. 155306.
- [18] Bjork G., Yamamoto Y. // IEEE J. Quant. Elect. 1991. Vol. 27. N 11. P. 2386–2396.
- [19] Renner J., Worschech L., Forchel A., Mahapatra S., Brunner K. // Appl. Phys. Lett. 2006. Vol. 89. N 23. P. 231104.
- [20] Jones B.D., Oxborrow M., Astratov V.N., Hopkinson M., Tahraoui A., Skolnick M.S., Fox A.M. // Opt. Expres. 2010. Vol. 18. N 21. P. 22578–22592.
- [21] Zhang Y., Ma Z., Zhang X., Wang T., Choi Y.W. // Appl. Phys. Lett. 2014. Vol. 104. N 22. P. 221106.
- [22] Fujita M., Ushigome R., Baba T. // IEEE Photonic. Tech. Lett. 2001. Vol. 13. N 5. P. 403–405.
- [23] Solomon C.S., Pelton M., Yamamoto Y. // Phys. Rev. Lett. A. 2001. Vol. 86. N 13. P. 3903–3906.
- [24] Witzany M., Rossbach R., Shulz W.-M., Jetter M., Michler P. // Phys. Rev. B. 2011. Vol. 83. N 20. P. 205305.