

07

## Гетероструктуры квантово-каскадных лазеров спектрального диапазона 7–8 $\mu\text{m}$

© А.В. Бабичев<sup>1,2</sup>, А.Г. Гладышев<sup>2</sup>, А.В. Филимонов<sup>2</sup>,  
В.Н. Неведомский<sup>3</sup>, А.С. Курочкин<sup>1</sup>, Е.С. Колодезный<sup>1</sup>,  
Г.С. Соколовский<sup>3</sup>, В.Е. Бугров<sup>1</sup>, Л.Я. Карачинский<sup>1,2,3</sup>,  
И.И. Новиков<sup>1,2,3</sup>, А. Bousseksou<sup>4</sup>, А.Ю. Егоров<sup>1,2,¶</sup>

<sup>1</sup> Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> ООО „Коннектор Оптик“, Санкт-Петербург, Россия

<sup>3</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

<sup>4</sup> Centre for Nanoscience and Nanotechnology, CNRS UMR9001, Univ. Paris Sud, Univ. Paris Saclay, Orsay, France

¶ E-mail: anton.egorov@connector-optics.com

Поступило в Редакцию 17 марта 2017 г.

Методом молекулярно-пучковой эпитаксии продемонстрирована возможность изготовления гетероструктур квантово-каскадных лазеров спектрального диапазона 7–8  $\mu\text{m}$ , содержащих в активной области 50 квантовых каскадов на основе гетеропары твердых растворов  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{Al}_{0.48}\text{In}_{0.52}\text{As}$ . Для получения оптического излучения использована конструкция квантового каскада, основанная на принципе двухфононного резонансного рассеяния. Методами рентгеновской дифракции и просвечивающей электронной микроскопии исследованы структурные свойства созданных гетероструктур и подтверждено их высокое структурное совершенство — идентичность состава и толщин эпитаксиальных слоев во всех 50 каскадах. Полосковые лазеры, изготовленные из гетероструктуры, демонстрируют лазерную генерацию с пороговой плотностью тока менее 1.6  $\text{kA}/\text{cm}^2$  при температуре 78 К.

DOI: 10.21883/PJTF.2017.14.44833.16776

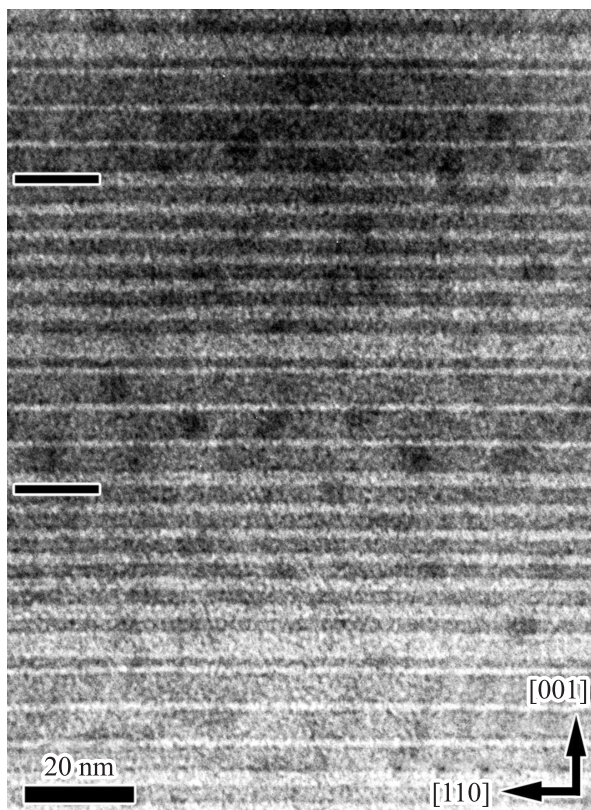
Квантово-каскадные лазеры (ККЛ), излучающие в спектральном диапазоне 7–8  $\mu\text{m}$ , могут эффективно применяться для проведения дистанционного газоанализа и при решении различных медицинских задач, в частности лазеры с длиной волны 7.3  $\mu\text{m}$  используются для детектирова-

ния  $\text{SO}_x$  [1] и тринитротолуола [2]. Использование лазерного излучения с длиной волны вблизи  $7.8 \mu\text{m}$  позволяет детектировать концентрацию метана [3] и может быть применено для удаленного контроля утечек на газопроводах и химических производствах. При реализации ККЛ используются различные принципиальные схемы. К настоящему моменту опубликованы результаты исследования ККЛ диапазона  $7-8 \mu\text{m}$ , основанные на следующих конструкциях: на основе двух- [4], трехфоновонного резонансного рассеяния [5], на основе конструкций со сверхрешетками [6], с переходами „связанное состояние–непрерывный спектр“ [7], с нерезонансным выбросом носителей заряда [8]. Для построения данных конструкций использованы ненапряженные гетеропары на основе твердых растворов  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{Al}_{0.48}\text{In}_{0.52}\text{As}$  [4,6], а также напряженные гетеропары химического состава  $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{Al}_{0.56}\text{In}_{0.44}\text{As}$  [5],  $\text{In}_{0.57}\text{Ga}_{0.43}\text{As}/\text{Al}_{0.55}\text{In}_{0.45}\text{As}$  [7],  $\text{In}_{0.58}\text{Ga}_{0.42}\text{As}/\text{Al}_{0.64}\text{In}_{0.36}\text{As}$  [8]. Основными технологиями выращивания гетероструктур ККЛ являются металлоорганическая газофазная эпитаксия (МОГФЭ) и молекулярно-пучковая эпитаксия (МПЭ), однако МПЭ позволяет реализовать лазеры с более высокой квантовой эффективностью [9]. Дополнительное повышение квантовой эффективности возможно за счет реализации многопериодных гетероструктур ККЛ, содержащих до 100 каскадов [10]. Изготовление таких многопериодных гетероструктур ККЛ требует поддержания высокой идентичности химического состава и толщин слоев, формирующих каскады, на протяжении всего длительного эпитаксиального процесса [11]. Использование промышленных установок МПЭ удовлетворяет этим требованиям [12,13] и существенно повышает качество роста. В настоящей работе представлены результаты исследования свойств многопериодных гетероструктур ККЛ, излучающих на длине волны  $7.6 \mu\text{m}$  при температуре жидкого азота, содержащих 50 каскадов, выращенных методом МПЭ.

Гетероструктуры ККЛ были изготовлены в ООО „Коннектор Оптик“ на промышленной установке Riber 49, оснащенной твердотельным источником мышьяка кречерного типа и источниками марки АВІ 1000 для создания потоков галлия и индия. Источник АВІ 1000, имеющий цилиндрический тигель и двухзонный нагреватель, специально спроектирован для обеспечения высокой стабильности потока металла в течение длительного эпитаксиального процесса и не требует коррекции температуры по мере уменьшения количества металла, загруженного в источник. Для создания гетероструктуры ККЛ, на

легированной серой до уровня  $3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  подложке InP с ориентацией (001) был выращен буферный слой InP толщиной  $2 \mu\text{m}$ , с уровнем легирования кремнием  $1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Следующий слой  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  толщиной  $0.5 \mu\text{m}$  был легирован до уровня  $5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Далее выращивалась активная область гетероструктуры ККЛ. Конструкция квантового каскада представляла собой сверхрешетку из слоев  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  и  $\text{Al}_{0.48}\text{In}_{0.52}\text{As}$ , согласованных по параметру кристаллической решетки с подложкой InP, с толщинами  $\underline{2.4/2.4/2.6/2.1/2.6/1.8/2.7/1.6/2.9/1.7/3.1/2.5/4.4/1.2/5.2/1.2/5.3/1.0/1.7/4.3}$  (толщины в нанометрах). Для получения фотонов с энергией  $0.163 \pm 0.001 \text{ eV}$  была реализована конструкция, обеспечивающая переход с верхнего уровня квантовой ямы (толщиной  $5.3 \text{ nm}$ ) на нижний уровень и дальнейшее быстрое опустошение нижнего уровня за счет двухфононного резонансного рассеяния с испусканием двух продольных оптических (ЛО) фононов [4]. При этом электрон с нижнего уровня первой квантовой ямы (слой толщиной  $5.3 \text{ nm}$ ) рассеивается с испусканием ЛО-фонона на другой, расположенный ниже, дискретный уровень в соседней квантовой яме (слой толщиной  $5.2 \text{ nm}$ ), с которого он опять рассеивается с испусканием ЛО-фонона на другой, расположенный ниже, дискретный уровень в следующей квантовой яме (слой толщиной  $4.4 \text{ nm}$ ) и затем выбрасывается в инжектор. Чтобы обеспечить рассеивание с испусканием ЛО-фонона, энергетический зазор между уровнями в соседних квантовых ямах должен быть близок к энергии ЛО-фонона, которая составляет  $0.035 \text{ eV}$  для данного случая. Итоговая гетероструктура ККЛ включала в себя 50 таких квантовых каскадов (КК).

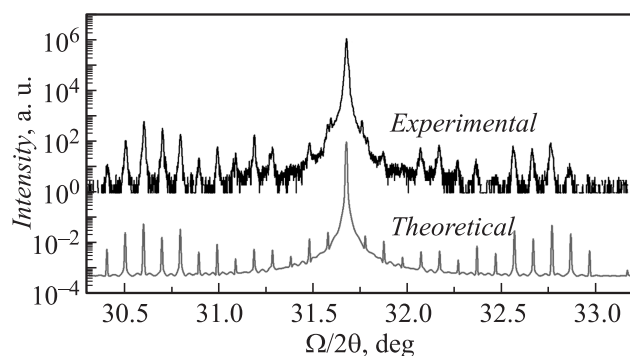
После выращивания 50 КК последовательно формировались слои  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  с уровнем легирования  $1 \cdot 10^{17}$  и  $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , толщинами  $0.1$  и  $0.02 \mu\text{m}$  соответственно. Прецизионная калибровка химического состава эпитаксиальных слоев и скоростей выращивания твердых растворов  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  и  $\text{Al}_{0.48}\text{In}_{0.52}\text{As}$  проводилась посредством выращивания специальной тестовой гетероструктуры на основе 10 пар чередующихся слоев  $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}/\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  толщиной по  $10 \text{ nm}$  каждый [14]. Все образцы выращивались при одинаковом эквивалентном давлении потока мышьяка ( $\text{As}_4$ ), равном  $1 \cdot 10^{-5} \text{ Torr}$ , и одинаковой скорости роста  $0.2 \text{ nm/s}$ . Квантовые каскады выращивались при температуре подложки  $480^\circ\text{C}$ . При выращивании легированных слоев температура эпитаксии понижалась до  $450\text{--}460^\circ\text{C}$ . Для обеспечения улучшения однородности толщин эпитаксиальных слоев во всех



**Рис. 1.** ПЭМ-изображение участка поперечного сечения квантово-каскадного лазера. Более светлые слои соответствуют слоям InAlAs, более темные — InGaAs. Между двумя горизонтальными маркерами показан полный период структуры, состоящий из 20 слоев.

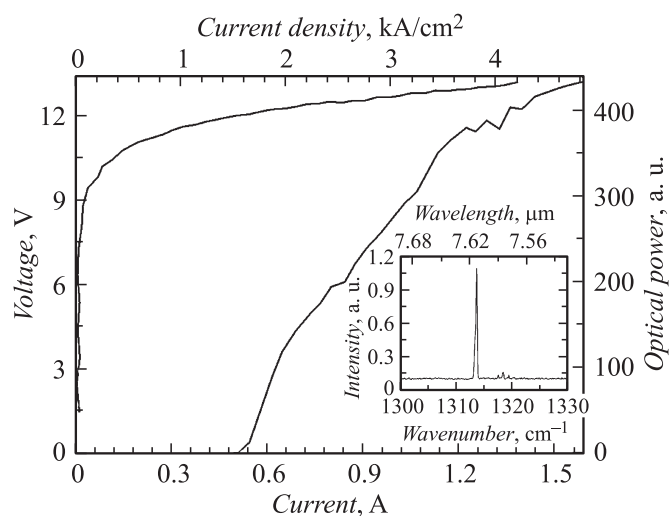
квантовых каскадах во время их эпитаксии устанавливалась повышенная скорость вращения держателя подложки 24 rpm. Скорость вращения выбиралась таким образом, чтобы за время эпитаксии самого тонкого слоя квантового каскада (слоя  $\text{Al}_{0.48}\text{In}_{0.52}\text{As}$  толщиной 1 nm) держатель подложки совершал два оборота вокруг своей оси.

5\* Письма в ЖТФ, 2017, том 43, вып. 14



**Рис. 2.** Рентгеновские дифракционные кривые гетероструктуры ККЛ. Экспериментальная кривая (вверху), расчетная кривая (внизу).

Определение толщин слоев гетероструктуры ККЛ проводилось методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) и рентгеновской дифракции. ПЭМ-исследования проводились на просвечивающем электронном микроскопе JEM2100F. Образцы в геометрии поперечного сечения были подготовлены по стандартной методике путем скола структур по плоскостям (1–10) и дальнейшей их шлифовки [15]. На конечном этапе пробы утонялись путем распыления ионами  $\text{Ar}^+$  при энергиях 3–4 keV. Съемка проводилась при ускоряющем напряжении 200 kV. Для определения границ между слоями был построен профиль интенсивности изображения, ортогональный границам слоев. Ширина усреднения составляла 20 nm. Положение границ между слоями принималось на полувысоте переходного контраста от одного слоя к другому. Изображение поперечного сечения гетероструктуры ККЛ, полученное методом ПЭМ, показано на рис. 1. Толщина каскада с учетом приборной погрешности измерений  $54.3 \pm 5$  nm. Рис. 2 демонстрирует расчетную (согласно спецификации) и экспериментальную рентгеновские дифракционные кривые гетероструктуры ККЛ. Измерения рентгеновской дифракции с высоким разрешением проводились вблизи симметричного рефлекса (004) InP на дифрактометре PANalytical X'PertPro в параллельной геометрии пучка рентгеновского излучения. Источником рентгеновского излучения мощностью 6 kW является трубка с вращающимся медным анодом ( $\lambda = 0.15406$  nm).



**Рис. 3.** Вольт-амперная и ватт-амперная характеристики образца ККЛ, измеренные при температуре 78 К. Вставка демонстрирует спектр генерации.

Полуширина первичного пучка не превышала  $12''$ , что обеспечивалось использованием четырехкратного Ge (220) прорезного кристалла-монокроматора. Рис. 2 демонстрирует характерные пики рентгеновской дифракции от подложки InP и периодической гетероструктуры ККЛ. Наблюдается полное совпадение нулевого пика сателлитной структуры с положением пика от подложки InP. Данный факт свидетельствует о точном соответствии химического состава эпитаксиальных слоев заданным значениям, приведенным в ростовой спецификации. Также на рисунке наблюдается 13 сателлитов, обусловленных периодической структурой квантовых каскадов. Сателлиты, расположенные слева от пика подложки, имеют полуширину на полувывоте  $29 \pm 2''$ , а расположенные справа — незначительно уширены и имеют полуширину на полувывоте  $41 \pm 2''$ . При расчете суммарной толщины квантового каскада гетероструктуры учитывалось угловое положение пиков с четко выраженными максимумами. Расчетная толщина квантового каскада для экспериментальной кривой составила  $52.70 \pm 0.05$  nm. Таким образом, наблюдается точное совпадение толщины квантового каскада,

определенной экспериментально, с толщиной каскада по спецификации. Важно отметить, что сателлиты имеют четко выраженную форму с одним максимумом. В случае неоптимизированных параметров эпитаксиального процесса возможно проявление расщепления сателлитных пиков и нескольких максимумов, связанное с флуктуациями состава и толщин эпитаксиальных слоев в различных каскадах гетероструктуры [15].

Из выращенной гетероструктуры ККЛ были изготовлены кристаллы лазеров полосковой конструкции с шириной полоска  $20\ \mu\text{m}$ . Вольт- и ватт-амперные характеристики кристалла ККЛ, измеренные при температуре 78 К, представлены на рис. 3. Пороговый ток генерации составил 0.5 А (соответствует плотности порогового тока  $1.5\ \text{kA/cm}^2$ ). Наблюдается диодный тип зависимости тока от напряжения, при этом не наблюдается паразитного канала протекания тока. Как видно на вставке на рис. 3, длина волны лазерной генерации составила  $7.6\ \mu\text{m}$  при ширине лазерного спектра, измеренной на полувысоте,  $1.74\ \text{nm}$ .

Таким образом, в ходе выполнения работы на промышленной установке МПЭ Ribet 49, оснащенной источниками АВИ 1000, проведена отработка условий эпитаксии гетероструктур многопериодных ККЛ спектрального диапазона  $7\text{--}8\ \mu\text{m}$ . Была использована конструкция каскада, основанная на принципе двухфононного резонансного рассеяния. Методами рентгеновской дифракции и просвечивающей электронной микроскопии исследованы структурные свойства гетероструктур ККЛ и подтверждено их высокое структурное совершенство — идентичность состава и толщин эпитаксиальных слоев во всех 50 каскадах и полное соответствие расчетной спецификации. Из гетероструктуры были изготовлены лазеры полосковой конструкции с шириной полоска  $20\ \mu\text{m}$  и продемонстрирована генерация с длиной волны излучения  $7.6\ \mu\text{m}$  и пороговой плотностью менее  $1.6\ \text{kA/cm}^2$  при температуре 78 К.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках Федеральной целевой программы „Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития научно-технологического комплекса России на 2014–2020 годы“, шифр 2016-14-579-0009, соглашение № 14.578.21.0204 от 3 октября 2016 г., уникальный идентификатор RFMEFI57816X0204.

**Список литературы**

- [1] Yu J.S., Slivken S., Razeghi M. // *Semicond. Sci. Technol.* 2010. V. 25. P. 125015.
- [2] Pushkarsky M.B., Dunayevskiy I.G., Prasanna M. et al. // *Proc. Nat. Acad. Sci.* 2006. V. 103. P. 19630.
- [3] Darvish S.R., Zhang W., Evans A. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2006. V. 89. P. 251119.
- [4] Xu G., Moreau V., Chassagneux Y. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2009. V. 94. P. 221101.
- [5] Maulini R., Lyakh A., Tsekoun A., Patel C.K.N. // *Opt. Express.* 2011. V. 19. P. 17203.
- [6] Gmachl C., Tredicucci A., Capasso F. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1998. V. 72. P. 3130.
- [7] Leavitt R.P., Bradshaw J.L., Lascola K.M. et al. // *Opt. Eng.* 2010. V. 49. P. 111109.
- [8] Troccoli M., Lyakh A., Fan J. et al. // *Opt. Mater. Express.* 2013. V. 3. P. 1546.
- [9] Troccoli M. // *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* 2015. V. 21. P. 61.
- [10] Gmachl C., Capasso F., Tredicucci A. et al. // *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* 1999. V. 5. P. 808.
- [11] Fedosenko O., Chashnikova M., Machulik S. et al. // *J. Cryst. Growth.* 2011. V. 323. P. 484.
- [12] Babichev A.V., Bousseksou A., Pikhtin N.A. et al. // *Semiconductors.* 2016. V. 50. P. 1299.
- [13] Garcia M., Vermersch F.J., Marcadet X. et al. // *Proc. SPIE.* 2006. V. 6133. P. 613304.
- [14] Lazarenko A.A., Nikitina E.V., Pirogov E.V. et al. // *Tech. Phys. Lett.* 2016. V. 42. P. 284.
- [15] Egorov A.Y., Brunkov P.N., Nikitina E.V. et al. // *Semiconductors.* 2014. V. 48. P. 1600.