от Усиление излучения в легированных AlGaN-структурах при оптической накачке

© П.А. Бохан¹, К.С. Журавлёв², Дм.Э. Закревский^{1,¶}, Т.В. Малин¹, И.В. Осинных¹, Н.В. Фатеев¹

¹ Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, Новосибирск

² Новосибирский государственный университет

[¶] E-mail: zakrdm@isp.nsc.ru

Поступило в Редакцию 17 июля 2016 г.

При оптической накачке импульсным лазерным излучением с $\lambda = 266$ nm твердых растворов Al_xGa_{1-x}N/ AlN с x = 0.5 и 0.74, синтезированных методом молекулярно-лучевой эпитаксии, исследованы спектральные характеристики спонтанной и стимулированной люминесценции. Получены широкополосные спектры излучения с шириной ~ 260 THz для Al_{0.5}Ga_{0.5}N и ~ 360 THz для Al_{0.74}Ga_{0.26}N. Измеренные коэффициенты усиления на $\lambda \approx 528$ nm для Al_{0.5}Ga_{0.5}N равны $g \approx 70$ cm⁻¹, а для Al_{0.74}Ga_{0.26}N на $\lambda \approx 468$ nm $g \approx 20$ cm⁻¹.

DOI: 10.21883/PJTF.2017.01.44083.16442

Полупроводниковые лазеры сине-зеленого и ближнего УФ диапазонов спектра активно используются во многих областях науки и техники вследствие широкого набора доступных длин волн, компактности, эффективности, надежности, малой стоимости и простоты эксплуатации. Перспективной лазерной средой является твердый раствор $Al_xGa_{1-x}N$ с регулируемой шириной запрещенной зоны в диапазоне 3.5-6.2 eV [1]. В работе [2] была исследована люминесценция сильно легирован-

5

ных кремнием соединений $Al_xGa_{1-x}N$ различного компонентного состава при возбуждении низкоэнергетическими (до 20 keV) электронными пучками. Для структур с x > 0.42 получена широкополосная люминесценция, охватывающая диапазон спектра от 1.72 до 2.7 eV (460–720 nm), причем краевая люминесценция не наблюдалась. При импульсной мощности электронного пучка более 200 kW в этом спектральном диапазоне была получена стимулированная люминесценция [2]. Ранее подобное широкополосное излучение наблюдалось в спектрах катодолюминесценции пленки $Al_{0.37}Ga_{0.63}N$ при 77 K [3], причем ее интенсивность была на порядок слабее, чем интенсивность краевой люминесценции. В настоящее время предполагается, что подобная люминесценция связана с оптическими переходами через уровни дефектов [4], состоящих из атома примеси и точечного дефекта кристаллической решетки [5].

Целью данной работы являлось исследование спектральных характеристик спонтанной и стимулированной люминесценции твердых растворов Al_xGA_{1-x}N при комнатной температуре и измерение коэффициента усиления активной среды при оптической накачке.

Исследуемые слои $Al_x Ga_{1-x} N c x = 0.5$ и x = 0.74 толщиной $h_0 \approx \approx 1.2 \,\mu\text{m}$ выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии в модифицированной установке CBE-32 фирмы Riber с использованием аммиака в качестве источника активного азота на буферном слое AlN толщиной $h_p \approx 320 \,\text{nm}$ на (0001) ориентированных сапфировых подложках толщиной 400 μ m при температуре подложки 860°C и потоке аммиака 130 sccm [6]. Слои $Al_x Ga_{1-x} N$ были легированы кремнием. В качестве источника легирования использовался газовый источник моносилана SiH₄. Концентрация свободных электронов в $Al_{0.5}Ga_{0.5}N$ составляла $n_e \approx 1.4 \cdot 10^{18} \,\text{cm}^{-3}$, а $Al_{0.74}Ga_{0.26}N - n_e \approx 0$. Геометрические размеры образцов составляли $15 \times 10 \,\text{mm}$. Грани образцов подготавливались для вывода излучения люминесценции методом скалывания, отражающие покрытия не наносились.

Накачка исследуемых образцов осуществлялась со стороны пленки твердого раствора $Al_xGa_{1-x}N$ импульсным излучением четвертой гармоники Nd: YAG-лазера с $\lambda = 266$ nm, длительностью импульса на полувысоте ~ 8 ns и частотой повторения до 10 Hz. На поверхности пленки $Al_xGa_{1-x}N$ формировался световой пучок с однородным близким к гауссовому распределением с шириной $370\,\mu$ m и длиной 1 cm. Длина возбуждаемой области *L* могла меняться в диапазоне от 0 до 1 cm

с шагом 10 μ m. Максимальная импульсная плотность мощности на поверхности образца составляла $\sim 2.2 \cdot 10^5 \,\text{W/cm}^2$ с неоднородностью ее интенсивности вдоль длины, не превышающей 10%.

Спектры люминесценции регистрировались с помощью оптического спектрометра, оснащенного ПЗС-линейкой в диапазоне 200-750 nm, и одновременно измерялась интенсивность излучения на фиксированной длине волны с помощью фотоэлектронного умножителя. Спонтанное излучение регистрировалось в направлении, перпендикулярном поверхности образцов. Стимулированная фотолюминесценция изучалась при регистрации излучения с торца исследуемого образца, а ее наличие идентифицировалось по поведению интенсивности выходного излучения I(L) при увеличении L.

Для измерения оптического усиления использовалась методика измерения однопроходного усиления света [7]. Прямым свидетельством наличия усиления является экспоненциальный рост интенсивности излучения из возбужденной области структуры при изменении ее длины. Интенсивность выходного излучения I(L) из торца образца при увеличении L определяется согласно выражению [7]:

$$I(L) = (I_s A/g) (\exp(gL) - 1),$$
(1)

где I_s — мощность спонтанного излучения из единицы объема, A — площадь поперечного сечения возбужденной области, $g = (g_1 - a)$ — экспериментально наблюдаемый коэффициент усиления, g_1 — усиление за счет процесса стимулированного излучения, a — оптические потери.

На рис. 1 представлены характерные спектры спонтанной *1* и стимулированной *2*, *3* люминесценции при воздействии возбуждающего излучения полоской длиной 1 ст. Для Al_{0.5}Ga_{0.5}N ширина спектра составила ~ 260 THz, а Al_{0.74}Ga_{0.26}N ~ 360 THz. В спектрах, регистрируемых с торца структуры, при накачке, имеющей преимущественное направление возбуждения, наблюдается расщепление "гладких" полос спонтанного излучения на практически равноудаленные компоненты с $\lambda \approx 477$, 528, 595 и 680 nm для Al_{0.5}Ga_{0.5}N и с $\lambda \approx 400$, 428, 462, 508, 560 и 640 nm для Al_{0.74}Ga_{0.26}N.

На рис. 2, *а* представлены спектры стимулированной люминесценции при трех значениях плотности мощности накачки W = 6, 115 и 220 kW/cm². Интенсивность полосы излучения вначале быстро возрастает с увеличением плотности мощности накачки, а затем имеет



Рис. 1. Спектры фотолюминесценции структур $Al_x Ga_{1-x}N$. x = 0.74(1,2), x = 0.5(3). Спонтанная люминесценция (1); стимулированная люминесценция (2,3).

тенденцию к насыщению (рис. 2, *b*, зависимости 1, 2). Зависимость интенсивности спонтанного излучения (зависимость 3) близка к линейной.

На рис. З представлены результаты измерений интенсивности выходного излучения I(L) из торца исследуемых образцов. Полученные зависимости I при увеличении L характеризуются быстрым ростом с последующим постепенным насыщением сигнала люминесценции. Здесь же для быстрой части приведены аппроксимации экспериментальных значений I(L) методом наименьших квадратов по формуле (1) в диапазоне L = 0-0.13 сm, из которых определялись величины g.

Исследуемые образцы Al_{0.5}Ga_{0.5}N/AlN и Al_{0.74}Ga_{0.26}N/AlN на сапфире представляют собой волноводную структуру, состоящую из пленки AlGaN с показателем преломления n_1 , из буферного слоя AlN с n_2 и сапфировой подложки Al₂O₃ с n_3 . Например, для Al_{0.5}Ga_{0.5}N/AlN $n_1 \approx 2.224$ [8], $n_2 \approx 2.085$ [9] и $n_3 \approx 1.77$ (коэффициенты преломления приведены для $\lambda = 530$ nm). Внешние поверхности волноводной структуры граничат с воздухом с $n_0 \approx 1$. В этом случае справедливо



Рис. 2. *а* — спектры люминесценции структуры $Al_{0.5}Ga_{0.5}N$ при различных значениях плотности мощности накачки импульсного излучения: $\lambda = 528$ nm, $W = 6(I), 115(2), 220(3) \text{ kW/cm}^2$. *b* — зависимость интенсивности люминесценции структуры $Al_{0.5}Ga_{0.5}N$: I, 2 — стимулированная люминесценция с $\lambda = 598(I), 528(2)$ nm, 3 — спонтанное излучение.



Рис. 3. Зависимости интенсивности люминесценции от длины области возбуждения структур $Al_xGa_{1-x}N$. x = 0.74(1), x = 0.5(2).

неравенство $n_1 > n_2 > n_3 > n_0$, и поэтому существуют несколько критических углов $\operatorname{arcsin} \Theta_{01} = n_1/n_0$ на границах $\operatorname{Al}_{0.5}\operatorname{Ga}_{0.5}\operatorname{N}$ — воздух ($\Theta_{01} \approx 26.46^\circ$), $\operatorname{arcsin} \Theta_{12} = n_1/n_2 \approx 68^\circ$ на границе $\operatorname{Al}_{0.5}\operatorname{Ga}_{0.5}\operatorname{N}$ —AlN и $\operatorname{arcsin} \Theta_{23} = n_3/n_2$ на границе $\operatorname{AlN} - \operatorname{Al}_2\operatorname{O}_3$ ($\Theta_{23} \approx 58.1^\circ$). Лучи, идущие из любой точки внутри пленки AlGaN, под углами бо́льшими этих значений испытывают полное внутреннее отражение. Расчеты по формулам Френеля показывают, что коэффициент отражения излучения от границы структуры $\operatorname{Al}_{0.5}\operatorname{Ga}_{0.5}\operatorname{N}$ —AlN незначителен ($\sim 0.14\%$) изза малых различий в коэффициентах преломления контактирующих сред и малой толщины буферного слоя ($h_p < \lambda$). Вследствие этого излучение из $\operatorname{Al}_{0.5}\operatorname{Ga}_{0.5}\operatorname{N}$ эффективно проникает в AlN и испытывает полное внутреннее отражения бо́льших, чем угол $\Theta_{23} \approx 58.1^\circ$. Таким образом, в первом приближении в пределах угла $68^\circ > \Theta > 58.1^\circ$ структуру $\operatorname{Al}_{0.5}\operatorname{Ga}_{0.5}\operatorname{N}$ —AlN можно рассматривать как

единый волновод с локализацией световой энергии, через который и распространяется излучение.

Световое поле в волноводном слое можно представить в виде двух плоских ТЕ- и ТМ-волн, наблюдаемых на рис. 1 (кривая 2). Эти моды, которые распространяются в волноводе по зигзагообразному пути, испытывая на границах слоев полное внутреннее отражение, имеют взаимно перпендикулярную поляризацию. Для получения самосогласованной картины распределения поля необходимо, чтобы суммарный фазовый сдвиг при распространении Θ_m удовлетворяет условию [10]

$$2kn_1h\cos\Theta_m + \delta_1 + \delta_2 = 2\pi m,\tag{2}$$

где $k = 2\pi/\lambda$ — волновое число, $h = h_0 + h_p$ — толщина волновода, m — целое число, δ_1 и δ_2 — фазовые сдвиги при полном внутреннем отражении от подложки и воздушного слоя соответственно. Это уравнение позволяет рассчитать межмодовые интервалы и длины волн выходного излучения.

Для вывода излучения для моды, распространяющейся под углом падения $\Theta_m \approx 52.1^{\circ}$ (sin $\Theta_m = n_1/n_3$ при условии, что $h_p < \lambda$) из волноводной структуры, использовался неконтролируемый скол торца образца. При меньших углах падения ($52.1^{\circ} > \Theta_m > 26.46^{\circ}$) возможен эффективный вывод излучения посредством вытекающих мод.

Полученные экспериментальные данные согласуются с рассматриваемой волноводной моделью [10]. Так для $Al_{0.5}Ga_{0.5}N$ для $\lambda \approx 528$ nm, $\Theta_m \approx 52.1^{\circ}$ и $h \approx 1.52 \,\mu$ m расчет из (2) дает $m \approx 8$ (фазовые сдвиги δ_1 и δ_2 при полном внутреннем отражении определялись из формул Френеля). Спектральное положение пиков в спектре излучения $\lambda \approx 477$ и 598 nm на рис. 1 (кривая 3) согласуется с этой моделью для $m \approx 9$ и 7 соответственно. Для $Al_{0.74}Ga_{0.26}N$ пики в спектре излучения соответствуют $m \approx 7-11$.

Определенная из формулы (1) величина коэффициента усиления излучения в структуре для $Al_{0.5}Ga_{0.5}N c \lambda \approx 528 nm$ равна $g \approx 14.5 cm^{-1}$, а для $Al_{0.74}Ga_{0.36}N c \lambda \approx 468 nm$ равна $g \approx 25.2 cm^{-1}$ при плотности мощности накачки $\sim 2.2 \cdot 10^5 \text{ W/cm}^2$. С учетом зигзагообразного распространения излучения в волноводе (действительный путь распространения больше) величину коэффициента усиления надо считать меньшей $g^* = g \sin \Theta_m \approx 11.4 \text{ и } 20 \text{ cm}^{-1}$ соответственно.

Глубина возбужденной области образца определяется степенью проникновения излучения накачки в поглощающий слой и диффузи-

ей носителей заряда. Для структуры Al_{0.5}Ga_{0.5}N излучение накачки (4.66 eV) попадает в область межзонных переходов и полностью поглощается с коэффициентом поглощения $k \approx (1.5-2.0) \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$ [11]. Это соответствует толщине области возбуждения менее 100 nm. Расширение области активного слоя в поперечном направлении также происходит за счет диффузии электронно-дырочных пар из области оптического возбуждения. Длина диффузии в слоях AlGaN не превышает 150 nm [12]. Таким образом, можно считать, что активная область занимает в поперечном направлении менее $0.25 \,\mu$ m. Учитывая это, реальный коэффициент усиления будет равен $g \approx 70 \text{ cm}^{-1}$. Для Al_{0.74}Ga_{0.26}N измеренный $k \approx (1.8-2.1) \cdot 10^3 \text{ cm}^{-1}$, что соответствует только ~ 23% поглощения мощности накачки, поэтому $g \approx 20 \text{ cm}^{-1}$.

В результате проведенных исследований получена сверхширокополосная люминесценция при оптическом возбуждении твердых растворов Al_xGa_{1-x}N/AlN на сапфире с x = 0.5 и 0.74 импульсным излучением с $\lambda = 266$ nm. Исследование спектральных характеристик излучения продемонстрировало расщепление полосы спонтанного излучения на равноудаленные компоненты. Это явление характерно для сверхсветимости в планарном волноводе при распространении света под углом, близким к углу полного внутреннего отражения. Измеренные коэффициенты усиления на $\lambda \approx 528$ nm для Al_{0.5}Ga_{0.5}N равны $g \approx 70$ cm⁻¹, а для Al_{0.74}Ga_{0.26}N на $\lambda \approx 468$ nm $g \approx 20$ cm⁻¹.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (соглашение о субсидии № 14.613.21.0039 от 11.11.2015 (уникальный идентификатор проекта RFMEFI61315X0039).

Список литературы

- [1] Nakamura S., Pearton S., Fasol G. The Blue Laser Diode. Springer, 2000.
- [2] Bokhan P.A., Gugin P.P., Zakrevsky Dm.E. et al. // J. Appl. Phys. 2014. V. 116. P. 113103.
- [3] Yoshida S., Misawa S., Gonda S. // J. Appl. Phys. 1982. V. 53. P. 6844-6848.
- [4] Zhao D.G., Jiang D.S., Zhu J.J. et al. // Appl. Phys. Lett. 2009. V. 95. P. 041901.
- [5] Osinnykh I.V., Malin T.V., Plyusnin V.F. et al. // Jpn. J. Appl. Phys. 2016. V. 55. P. 05FG09.
- [6] Zhuravlev K.S., Osinnykh I.V., Protasov D.Yu. et al. // Phys. Status Solidi C. 2013. V. 10. P. 315–318.

- [7] Shaklee K.L., Leheny R.F. // Appl. Phys. Lett. 1971. V. 18. P. 475–477.
- [8] Sanford N.A., Robins L.H., Davydov A.V. et al. // J. Appl. Phys. 2003. V. 94.
 P. 2980–2991.
- [9] Antoine-Vincent N., Natali F., Mihailovic M. et al. // J. Appl. Phys. 2003. V. 93.
 P. 5222–5226.
- [10] Kogelnik H. // IEEE Trans. Microwave Theory Techn. 1975. V. 23. P. 2-16.
- [11] Muth J.F., Brown J.D., Johnson M.A.L. et al. // MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. 1999. V. 4S1. P. G5.2.
- [12] Малин Т.В., Гилинский А.М., Мансуров В.Г. и др. // ФТП. 2015.
 Т. 49. С. 1329–1333. (Malin T.V., Gilinsky A.M., Mansurov V.G. et al. // Semiconductors. 2015. V. 49. P. 1285–1289).