Электролюминесценция светодиодных гетероструктур InAs/InAs(Sb)/InAsSbP в диапазоне температур 4.2–300 К

© К.Д. Мынбаев^{1,2}, Н.Л. Баженов¹, А.А. Семакова^{1,2}, М.П. Михайлова¹, Н.Д. Стоянов³, С.С. Кижаев³, С.С. Молчанов³, А.П. Астахова³, А.В. Черняев^{1,3}, Н. Lipsanen^{2,4}, В.Е. Бугров²

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия ² Университет ИТМО, 197101 Санкт-Петербург, Россия ³ Микросенсор Технолоджи, 194223 Санкт-Петербург, Россия ⁴ Aalto University, 02150 Aalto, Finland E-mail: mynkad@mail.ioffe.ru

(Получена 27 апреля 2016 г. Принята к печати 8 июня 2016 г.)

Исследована электролюминесценция светодиодных гетероструктур InAs/InAsSbP и InAsSb/InAsSbP, выращенных на подложках InAs, в диапазоне температур T = 4.2-300 К. При низких температурах (T = 4.2-100 K) обнаружен эффект возникновения стимулированного излучения на длинах волн 3.03 и 3.55 мкм для структур InAs/InAsSbP и InAsSb/InAsSbP соответственно, с резонатором, сформированным перпендикулярно плоскости роста. Излучение становилось спонтанным при T > 70 К из-за резонансного "включения" оже-процесса CHHS, при котором энергия рекомбинирующей электронно-дырочной пары передается дырке с переходом последней в спин-орбитально отщепленную зону, и оставалось таковым с увеличением температуры из-за усиления влияния других оже-процессов. Полученные результаты показывают перспективность использования структур на основе InAs/InAs(Sb)/InAsSbP для создания вертикально-излучающих лазеров среднего инфракрасного диапазона.

DOI: 10.21883/FTP.2017.02.44113.8305

1. Введение

Известно, что в средней инфракрасной (ИК) области спектра (диапазон длин волн 2-6 мкм) лежат характеристические полосы поглощения многих химических соединений (CH₄, CO₂, NO₂, H₂S, CO и др.). Датчики этих веществ востребованы как для контроля состояния атмосферы, так и в промышленном производстве. Наиболее перспективными являются оптические ИК датчики на основе светодиодов. По сравнению с тепловыми источниками излучения светодиоды обладают более высоким быстродействием, меньшими размерами, меньшей потребляемой электрической мощностью, более длительным сроком службы, и при массовом производстве меньшей себестоимостью. Светодиоды среднего ИК диапазона обычно изготавливаются на основе узкозонных полупроводниковых соединений и твердых растворов А^{III}В^V [1].

Для повышения эффективности работы оптоэлектронных приборов необходимо досконально понимать и контролировать процессы, происходящие в них при генерации или поглощении света. Для этого полезно исследовать работу приборных структур не только при рабочей температуре, которая обычно равна комнатной, но и при более низких температурах. В этом случае оказывается возможным наблюдать эффекты, позволяющие более точно установить механизмы происходящих в структурах процессов. Так, например, во флип-чип светодиодах на основе двойных гетероструктур InAsGaP/InAs/InAsGaP, выращенных на подложках из InAs и излучавших при рабочей температуре $T = 300 \,\text{K}$ на длине волны $\lambda = 3.4 \,\text{мкм}$, при охлаждении до $T = 77 \, \text{K}$ ранее наблюдался эффект возникновения стимулированного излучения с пиком при $\lambda = 3.0$ мкм [2]. Такой же эффект при T = 77 К недавно наблюдался нами для более узкозонных структур с активной областью из InAsSb, также выращенных на подложке из InAs. При этом в наших структурах активная область была ограничена барьерным слоем InAsSbP только с одной стороны (т.е. структура имела вид InAs/InAsSb/InAsSbP) [3]. В аналогичных структурах с активной областью из InAs, где можно было бы ожидать более высокую квантовую эффективность, эффект стимулированного излучения при $T = 77 \,\mathrm{K}$ отсутствовал. Исследование данного явления представляется актуальным как с точки зрения повышения эффективности светодиодных структур, так и для создания полупроводниковых лазеров среднего ИК диапазона. В связи с этим мы изучили электролюминесценцию (ЭЛ) подобных структур в широком диапазоне температур, от температуры жидкого гелия (T = 4.2 K) до комнатной, и о результатах этого исследования сообщаем в настоящей работе.

2. Методика экспериментов

Гетероструктуры были выращены методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений в российской компании Микросенсор Технолоджи по методике, аналогичной изложенной в работе [4]. Для создания гетероструктур на подложке InAs (легированной S) *п*-типа проводимости (концентрация электронов $n \approx 2 \cdot 10^{18}$ см⁻³) выращивался активный слой из InAs (структуры типа A) или InAs_{0.93}Sb_{0.07} (структуры типа B) толщиной 6–8 мкм. Этот слой имел *n*-тип проводимости с концентрацией электронов $2 \cdot 10^{16}$ см⁻³. Выращивание гетероструктур завершалось созданием широкозонного барьерного слоя: InAs_{0.15}Sb_{0.31}P_{0.54} для структур типа A и InAs_{0.70}Sb_{0.10}P_{0.20} для структур типа B. Барьерный слой был легирован акцепторной примесью (Zn) до концентрации дырок $2 \cdot 10^{18}$ см⁻³.

Светоизлучающие чипы размером 0.38×0.38 мм создавались методом стандартной фотолитографии и жидкостного химического травления. Применялась контактная система на основе многослойной композиции Cr-Au-Ni-Au. На эпитаксиальной стороне структуры формировался сплошной контакт, а на подложке InAs размещался кольцевой контакт шириной 35 мкм и с внутренним диаметром 200 мкм. Таким образом, излучение выводилось из гетероструктуры через сильно легированную (и поэтому прозрачную для него) подложку InAs. Образцы монтировались на корпуса TO-18.

Исследовались спектры электролюминесценции (ЭЛ) структур при импульсном возбуждении с током накачки до 4 А, частотой следования импульсов 1 кГц и длительностью импульса 1 мкс. Сигнал регистрировался синхронным детектором BCI280 с помощью охлаждаемого фотодиода на основе InSb. Во время измерений образцы находились в гелиевом криостате. Для контроля температуры в криостате использовались германиевый терморезистор и термопара медь-константан. Запись спектров проводилась с помощью монохроматора MДР-23.

3. Экспериментальные результаты

На рис. 1, *а* представлены нормированные спектры ЭЛ структур обоих типов при рабочей температуре светодиодов T = 300 К. Спектры были записаны при токе накачки 1 А и имели вид, характерный для светодиодов с активной областью из InAs(Sb). Типичные полуширины линий излучения при T = 300 К составили 280 нм для структур типа А и 430 нм для структур типа В. На рис. 1, *b* представлена зонная диаграмма структуры типа В при T = 300 К, построенная согласно принципам, изложенным в монографии [5], и параметрам (ширина запрещенной зоны материалов E_g , энергия электронного сродства и т.п.), взятым из работы [6]. Как видно из диаграммы, материал подложки является сильно вырожденным, активная область *n*-типа проводимости



Рис. 1. Спектры электролюминесценции (EL) гетероструктур типов А, В при T = 300 K(a) и зонная диаграмма гетероструктуры типа В при T = 300 K(b). Штрихпунктирная линия — уровень Ферми в равновесии (при отсутствии смещения).

обладает относительно низкой концентрацией электронов, а барьерный слой *p*-типа — высокой концентрацией дырок. Можно ожидать, что оптические переходы при T = 300 К в такой структуре будут происходить с энергией, соответствующей ширине запрещенной зоны InAs_{0.93}Sb_{0.07}, 0.303 эВ, что соответствует $\lambda = 4.09$ мкм. В эксперименте (рис. 1, *a*) максимум ЭЛ структуры типа В соответствует $\lambda = 3.83$ мкм из-за подъема квазиуровня Ферми для электронов вследствие заполнения зоны проводимости в результате инжекции. В структурах типа А из-за большей ширины запрещенной зоны и большей эффективной массы электронов этот эффект был выражен гораздо слабее, и энергия излучаемого кванта (355 мэВ) была близка к расчетному значению E_g активной области (354 мэВ).

На рис. 2, *а* представлены спектры ЭЛ структуры типа А при T = 4.2 К и различных токах накачки. Здесь видно, как на коротковолновом крае широкой полосы излучения I_1 (полуширина ~ 200 нм, в единицах энергии ~ 20 мэВ) при увеличении тока появляется вторая, узкая линия I_2 с полушириной 12 нм (~ 2 мэВ), которую можно было рассматривать как линию сти-



Рис. 2. Спектры электролюминесценции (EL) гетероструктуры типа A при T = 4.2 K, токах накачки 0.1 (1), 0.2 (2), 0.4 (3) и 0.6 A (4) (a) и зависимости интенсивности линий I_1 и I_2 от тока (b).

мулированного излучения. Исследование зависимостей интенсивностей линий от тока при T = 4.2 К показало, что с его увеличением от 0.1 до 0.6 А интенсивность полосы I_1 увеличивалась очень слабо, а линии I_2 значительно (см. рис. 2, *b*). При увеличении температуры от 4.2 до 70 К при постоянном токе накачки 0.6 А интенсивность линии I_2 уменьшилась приблизительно в 3 раза, а линий I_1 возросла в 1.5 раза. При температуре ~ 70 К в спектре оставалась одна полоса I_1 с максимумом при $\lambda = 3.05$ мкм, причем ее интенсивность была больше, чем интегральная интенсивность ЭЛ при температуре 55 К. В диапазоне температур 70–85 К интенсивность ЭЛ слегка возрастала, а после 85 и до 300 К уменьшалась, при этом спектр сохранял свою форму.

На рис. 3 представлены зависимости энергетического положения пиков ЭЛ структуры типа А от температуры. Записи спектров осуществлялись при одном и том же токе накачки I = 0.6 А. Видно, что при T > 70 К энергия излучения соответствует величине E_g активной области, рассчитанной согласно данным [6]. При более низких



Рис. 3. Зависимости энергетического положения пиков ЭЛ от температуры для структуры типа А при токе 0.6 А (точки) и расчетная зависимость $E_g(T)$ активной области из InAs (сплошная линия).



Рис. 4. Спектры электролюминесценции (EL) гетероструктуры типа В при T = 4.2 К, токах накачки 0.02 (1), 0.08 (2), 0.10 (3), 0.28 (4), 0.30 (5), 0.35 (6), 0.40 A (7) (a) и спектр при T = 77 К, токе 0.2 A, в котором видна модовая структура (b). b: тонкими линиями показаны подгонка спектра и разложение на отдельные линии для трех левых мод, расстояние между модами 6 нм, полуширина линий ~ 2 нм.



Рис. 5. Зависимость положения пика ЭЛ от температуры для структуры типа В (точки) и расчетная зависимость E_g активной области InAs_{0.93}Sb_{0.07} от температуры (сплошная линия).

температурах, когда в спектре присутствуют два пика, их энергии лежат ниже значения E_g .

Для структур типа В (InAs/InAsSb/InAsSbP) при температурах, близких к гелиевой, наблюдались только узкие пики стимулированного излучения с полуширинами в единицы нанометров (рис. 4, а). С увеличением тока интегральная интенсивность сигнала ЭЛ возрастала линейно, а максимум пика сдвигался в сторону более коротких волн ("голубое смещение"), отражая, очевидно, подъем квазиуровня Ферми для электронов. В спектре стимулированного излучения наблюдалась четко выраженная модовая структура, она представлена на рис. 4, b для спектра, записанного при T = 77 К. На рис. 5 представлены энергетические положения пиков ЭЛ в зависимости от температуры для одной из исследованных структур типа В. Запись спектров осуществлялась при одном и том же токе накачки I = 0.2 A. При *T* > 100 К энергия излучения кванта для этой структуры была на ~ 20 мэВ больше расчетного значения E_g в активной области. Как упоминалось выше, это можно объяснить сдвигом квазиуровня Ферми для электронов в зону проводимости и эффектом Мосса-Бурштейна [3]. При T < 100 К энергии пиков излучения были близки к Е_g или лежали несколько ниже этого значения.

4. Обсуждение результатов

Анализ полученных результатов показывает, что при низких температурах (4.2–100 K) в исследованных гетероструктурах создавались условия для возникновения стимулированного излучения. Если говорить о структурах с активной областью из InAs, то, как уже отмечено выше, об аналогичном эффекте впервые сообщалось в [2]. Стимулированное излучение из более узкозонных по сравнению с InAs твердых растворов InAsSb до сих пор наблюдалось только в специально изготовленных лазерных структурах, в частности в структурах с полосковым резонатором и электронным ограничением за счет создания двойной гетероструктуры с симметричными высокими барьерами (см., например, [7–9]). В нашем случае, однако, резонаторы специально не формировались, а сколы чипов не были зеркальными. По данным рис. 4, b было определено расстояние между отдельными модами в спектре ЭЛ. Оно составило 6 нм, что по методике, описанной в работе [9], позволило оценить длину резонатора как 280 мкм. Это значение гораздо ближе к толщине чипа (~ 300 мкм), чем к расстоянию между его сколами (380 мкм). Кроме того, было установлено, что для структур типа В при T = 77 K, когда наблюдалось стимулированное излучение, сигнал ЭЛ, собираемый с поверхности чипа (подложки InAs), на несколько порядков превышал сигнал, который регистрировался при измерении со сколов. Отсюда можно было сделать однозначный вывод о том, что оптический резонатор формировался перпендикулярно слоям гетероструктуры — вероятнее всего, между хорошо отшлифованной нижней гранью кристалла со сплошным золотым контактом и верхней гранью, отполированной химически и образовывавшей границу раздела полупроводник/воздух, аналогично случаю, описанному в [2]. В этом случае для структур типа А плотность порогового тока при $T = 4.2 \,\text{K}$ можно было оценить как $j_{\text{th}} \sim 140 \,\text{A/cm}^2$.

Обращает на себя внимание факт совпадения энергии излучаемого кванта, при которой наступает эффект перехода стимулированного излучения в спонтанное по мере увеличения температуры, с величиной спин-орбитального отщепления Δ_{SO} в исследуемых гетероструктурах. Так, для структуры типа А энергия излучаемого кванта hv, соответствовавшая переходу к спонтанному излучению, составила ~ 0.41 эВ при величине $\Delta_{SO} = 0.39$ эВ (по данным работы [6], где для данной величины, вообще говоря, приводится интервал 0.37-0.41 эВ). Равенство $h\nu \approx \Delta_{SO}$ соответствовало температуре $\sim 75\,\mathrm{K},$ что объясняет, почему мы не наблюдали стимулированное излучение из структур типа A при T = 77 K [3]. В свою очередь, для структур типа В переход к спонтанному излучению происходил при $hv \approx 0.36$ эВ при интервале расчетных значений Δ_{SO} от 0.33 до 0.37 эВ. Таким образом, по мере увеличения температуры и уменьшения Eg активной области происходило резонансное "включение" оже-процесса CHHS, при котором энергия рекомбинирующей электронно-дырочной пары передается дырке с переходом последней в спин-орбитально отщепленную зону. Этот эффект хорошо известен для узкозонных полупроводников А^{III}В^V (см., например, [10-12]). По мере дальнейшего уменьшения величины Eg с ростом температуры резонанс $E_g = \Delta_{SO}$ исчезал, и мы наблюдали некоторое увеличение интенсивности ЭЛ, которая, однако, представляла собой уже спонтанное излучение из-за влияния других оже-процессов, подавлявших усиление. Далее с увеличением скорости этих процессов с ростом температуры сигнал ЭЛ снова постепенно



Рис. 6. Зависимость порогового тока возникновения стимулированного излучения *I*_{th} от температуры для структуры типа В. Прямая линия — подгонка экспоненциального участка зависимости, использованная для определения характеристической температуры.

спадал. При этом влияние оже-процессов проявлялось и при низких температурах. Так, для структур типа В при температурах, когда еще наблюдалось стимулированное излучение, мы провели измерения ватт-амперных характеристик. При наличии выраженного "излома" на кривой по отсечке такой характеристики на оси абсцисс определяется величина j_{th} [13]. На рис. 6 приведен пример полученной зависимости. Для исследованного образца выраженную зависимость $j_{\rm th}(T)$ удалось получить в диапазоне температур 50-130 К. Как видно, на участке от 70 до 130 К она носила экспоненциальный характер (линейный в выбранных для рисунка координатах). Согласно известным представлениям о зависимости порогового тока полупроводникового лазера от температуры, это свидетельствует о доминировании безызлучательной (оже-) рекомбинации [14] (еще раз подчеркнем, что в данном случае речь идет не о процессе CHHS, а о других формах оже-процессов, в частности с участием двух электронов и тяжелой дырки и возбуждением электрона в более высокоэнергетическое состояние, СНСС, и с участием двух тяжелых дырок и электрона с переходом тяжелой дырки в легкую, CHHL). Определенная на участке 50-130 К характеристическая температура порогового тока составила 30 К. На участке 50-70 К выраженной зависимости $j_{th}(T)$ не наблюдалось, что могло свидетельствовать о доминировании рекомбинации Шокли-Рида.

5. Заключение

Таким образом, при исследовании электролюминесценции светодиодных гетероструктур InAs/InAs(Sb)/ InAsSbP при низких температурах (T = 4.2-100 K) нами был обнаружен эффект возникновения стимули-

8* Физика и техника полупроводников, 2017, том 51, вып. 2

рованного излучения. Этот эффект, однако, исчезал по мере увеличения температуры из-за резонансного "включения" оже-процесса CHHS, и при $T > 70 \,\mathrm{K}$ для структур InAs/InAs/InAsSbP, при T > 100 K для структур InAs/InAsSb/InAsSbP из-за влияния других ожепроцессов (СННС, СННL) излучение было спонтанным. Влияние последних оже-процессов на рекомбинацию было установлено и для низких температур. Полученные результаты, во-первых, показывают перспективность изученных гетероструктур для создания вертикальноизлучающих лазеров среднего ИК диапазона, востребованных в газовых сенсорах, работающих в этой спектральной области [15], и, во-вторых, подтверждают актуальность проблемы подавления оже-рекомбинации в излучательных гетероструктурах на основе узкозонных полупроводников А^ШВ^V. Важный вывод заключается в том, что даже при ограничении скорости рекомбинации безызлучательными процессами в простых по конструкции гетероструктурах на основе InAs/InAs(Sb)/InAsSbP оказывается возможным наблюдать стимулированное излучение при минимальных требованиях к резонатору.

Работа в Университете ИТМО выполнена при государственной финансовой поддержке, выделяемой на реализацию Программы повышения конкурентоспособности Университета ИТМО среди ведущих мировых научнообразовательных центров на 2013–2020 гг.

Список литературы

- [1] *Mid-Infrared Semiconductor Optoelectronics*, ed. by A. Krier. [Springer Ser. in Optical Sciences (Berlin, Springer) v. 118].
- [2] B. Matveev, N. Zotova, N. Il'inskaya, S. Karandashev, M. Remennyi, N. Stus'. Phys. Status Solidi C, 2, 927 (2005).
- [3] Н.К. Жумашев, К.Д. Мынбаев, Н.Л. Баженов, Н.Д. Стоянов, С.С. Кижаев, Т.И. Гурина, А.П. Астахова, А.В. Черняев, С.С. Молчанов, Х. Липсанен, Х.М. Салихов, В.Е. Бугров. Вестн. ИТМО, 16 (1), 57 (2016).
- [4] M. Sopanen, T. Koljonen, H. Lipsanen, T. Tuomi. J. Cryst. Growth, 145, 492 (1994).
- [5] А. Милнс, Д. Фойхт. Гетеропереходы и переходы металл-полупроводник, пер. с англ. под ред. В.С. Вавилова (М., Мир, 1975).
- [6] I. Vurgaftman, J.R. Meyer, L.R. Ram-Mohan. J. Appl. Phys., 89, 5815 (2001).
- [7] B. Lane, M. Razeghi. J. Cryst. Growth, 221, 679 (2000).
- [8] А.П. Астахова, Т.В. Безъязычная, Л.И. Буров, А.С. Горбацевич, А.Г. Рябцев, Г.И. Рябцев, М.И. Щемелев, Ю.П. Яковлев. ФТП, 42, 228 (2008).
- [9] Е.А. Гребенщикова, Н.В. Зотова, С.С. Кижаев, С.С. Молчанов, Ю.П. Яковлев. ЖТФ, 71 (9), 58 (2001).
- [10] J.R. Lindle, J.R. Meyer, C.A. Hoffman, F.J. Bartoli, G.W. Turner, H.K. Choi. Appl. Phys. Lett., 67, 3153 (1995).
- [11] P. Adamiec, R. Bohdan, A. Bercha, F. Dybala, W. Trzeciakowski, Y. Rouillard, A. Joullié. Phys. Status Solidi B, 244, 187 (2007).
- [12] K.J. Cheetham, A. Krier, I.P. Marko, A. Aldukhayel, S.J. Sweeney. Appl. Phys. Lett., **99**, 141110 (2011).

- [13] Н.Л. Баженов, К.Д. Мынбаев, В.И. Иванов-Омский, В.А. Смирнов, В.П. Евтихиев, Н.А. Пихтин, М.Г. Растегаева, А.Л. Станкевич, И.С. Тарасов, А.С. Школьник, Г.Г. Зегря. ФТП, **39**, 1252 (2005).
- [14] В.Н. Абакумов, В.И. Перель, И.Н. Яссиевич. Безызлучательная рекомбинация в полупроводниках (СПб., Изд-во ПИЯФ РАН, 1997).
- [15] A.B. Ikyo, I.P. Marko, K. Hild, A.R. Adams, S. Arafin, M.C. Amann, S.J. Sweeney. Sci. Reports, 6, 19 595 (2016).

Редактор Л.В. Шаронова

Electroluminescence of InAs/InAs(Sb)/InAsSbP LED heterostructures in 4.2–300 K temperature range

K.D. Mynbaev^{1,2}, N.L. Bazhenov¹, A.A. Semakova^{1,2}, M.P. Mikhailova¹, N.D. Stoyanov³, S.S. Kizhaev³, S.S. Molchanov³, A.P. Astakhova³, A.V. Chernyaev^{1,3}, H. Lipsanen^{2,4}, V.E. Bougrov²

¹ Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia
² ITMO University,
197101 St. Petersburg, Russia
³ Microsensor Technolodgy,
194223 St. Petersburg, Russia
⁴ Aalto University,
02150 Aalto, Finland

Abstract Electroluminescence of InAs/InAsSbP and InAsSb/ InAsSbP LED heterostructures grown on InAs substrates was studied in the temperature range T = 4.2 - 300 K. At low temperatures (T = 4.2 - 100 K), stimulated emission was observed at the wavelengths 3.03 and $3.55\,\mu m$ for InAs/InAsSbP and InAsSb/InAsSbP heterostructures, respectively, with optical resonator formed normal to the growth plane. The emission became spontaneous at $T > 70 \,\text{K}$ due to the resonant "switch-on" of CHHS Auger recombination process, when the energy of recombining electron-hole pair was transferred to a hole with hole transition into the spin-orbit-splitted band, and remained such up to the room temperature because of the influence of other Auger processes. The obtained results show that using structures based on InAs(Sb)/InAsSbP is promising for fabrication of verticalemitting mid-infrared lasers.