

Исследования волноводных структур с квантовыми ямами на основе HgCdTe для получения длинноволнового стимулированного излучения

© В.В. Румянцев^{1,2}, А.М. Кадыков¹, М.А. Фадеев¹, А.А. Дубинов^{1,2}, В.В. Уточкин^{1,2},
Н.Н. Михайлов^{3,4}, С.А. Дворецкий³, С.В. Морозов^{1,2}, В.И. Гавриленко^{1,2}

¹ Институт физики микроструктур Российской академии наук,
603950 Нижний Новгород, Россия.

² Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
603950 Нижний Новгород, Россия

³ Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук,
630090 Новосибирск, Россия

⁴ Новосибирский государственный университет,
630090 Новосибирск, Россия

E-mail: rumyantsev@ipm.sci-nnov.ru

(Получена 5 июня 2017 г. Принята к печати 15 июня 2017 г.)

Исследуются фотолюминесценция и стимулированное излучение на межзонных переходах в квантовых ямах на основе HgCdTe, помещенных в диэлектрический волновод из широкозонного твердого раствора CdHgTe. Гетероструктуры с квантовыми ямами на основе HgCdTe представляют интерес для создания длинноволновых лазеров на диапазон 25–60 мкм, к настоящему времени недоступный для квантово-каскадных лазеров. В работе обсуждаются оптимальные дизайны квантовых ям для достижения длинноволнового стимулированного излучения при оптической накачке. Показано, что узкие квантовые ямы из чистого HgTe оказываются перспективнее для длинноволновых лазеров по сравнению с широкими (потенциальными) ямами из твердого раствора за счет подавления оже-рекомбинации. Продемонстрировано, что технология молекулярно-лучевой эпитаксии позволяет получать структуры для локализации излучения с длиной волны вплоть до 25 мкм при высокой скорости роста. Получено стимулированное излучение на длинах волн 14–6 мкм с пороговой интенсивностью накачки в диапазоне 100–500 Вт/см² при 20 К.

DOI: 10.21883/FTP.2017.12.45174.37

1. Введение

В настоящее время разработка компактных полупроводниковых лазеров для спектроскопии в дальнем инфракрасном (ИК) и терагерцовом диапазонах остается актуальной задачей. В среднем ИК диапазоне наилучшие характеристики демонстрируют униполярные квантово-каскадные лазеры (ККЛ): в диапазоне длин волн 5–16 мкм данные приборы способны обеспечивать генерацию в непрерывном режиме даже при комнатной температуре [1]. Активно развиваются и терагерцовые ККЛ [2]. Тем не менее существует достаточно широкий спектральный диапазон (длины волн 20–60 мкм, частоты 5–15 ТГц), который до сих пор остается недоступным для ККЛ ввиду сильного решеточного поглощения в материалах GaAs и InP, которые обычно используются для изготовления ККЛ, в этом диапазоне. Использование ККЛ на основе InAs [3,4] позволило достичь длин волн ~ 20 мкм при комнатной температуре, однако в более длинноволновой области 20–25 мкм на данный момент существуют ККЛ лишь для отдельных частот, отвечающих минимумам фононного поглощения в соответствующих материалах [5–7]. Таким образом, спектральный диапазон 25–60 мкм в настоящее время перекрыт только инжекционными лазерами на основе халькогенидов свинца PbSnSe(Te), которые обеспечивают генерацию на

длинах волн до 46.5 мкм [8,9], однако характеризуются низкой выходной мощностью и рабочей температурой ниже температуры жидкого азота.

Как и твердые растворы на основе халькогенидов свинца и олова, твердый раствор HgCdTe (кадмий–ртуть–теллур, КРТ) обладает возможностью изменения ширины запрещенной зоны и достаточно низкими частотами оптических фононов для создания длинноволновых лазеров (энергия CdTe-подобных оптических фононов в узкозонных составах КРТ лежит вблизи 20 мэВ, а HgTe-подобных — около 15 мэВ [10]). Преимуществом материалов на основе HgCdTe по сравнению со структурами на основе PbSnSe(Te) является более развитая технология роста. На настоящий момент молекулярно-лучевая эпитаксия (МЛЭ) позволяет получать высококачественные эпитаксиальные пленки не только на подложках CdZnTe, которые обычно используются для роста HgCdTe, но и на альтернативных подложках GaAs [11]. Высокое оптическое качество эпитаксиальных структур на подложках GaAs (013) подтверждено исследованиями фотопроводимости (ФП) и фотолюминесценции (ФЛ) в среднем и дальнем ИК диапазонах [12,13]. Помимо объемных слоев с низкой темновой концентрацией носителей (~ 10¹⁴ см⁻³), МЛЭ может использоваться для получения гетероструктур с квантовыми ямами (КЯ) на основе HgCdTe с *in situ* эллипсомет-

рическим контролем состава и толщины слоев [14,15]. Как показано в работах [14,15], данный подход, развитый лишь относительно недавно, позволяет контролировать толщину КЯ вплоть до одного монослоя.

Квантовые ямы $\text{HgTe}/\text{CdHgTe}$ обладают рядом уникальных свойств, обусловленных, в частности, тем, что при уменьшении ширины КЯ можно осуществить переход от инвертированной зонной структуры (наследуемой в широких КЯ от объемного HgTe), к нормальной через возникающий при некоторой критической толщине КЯ „графеноподобный“ закон дисперсии [16]. Преимущества графена для создания лазера терагерцового диапазона активно обсуждаются в литературе, и уже получены первые экспериментальные результаты в этом направлении [17–19]. Даже в материале с очень малой щелью определенная симметрия законов дисперсии носителей позволяет подавить оже-рекомбинацию, которая является одним из важнейших факторов, ограничивающих возможность получения инверсии населенностей. Так, при симметричном дираковском законе дисперсии (с ненулевой массой носителей) оже-рекомбинация полностью запрещена в силу невозможности выполнения законов сохранения энергии и импульса при оже-процессе. Подобного рода симметрия имеет место и в вышеупомянутых твердых растворах PbSnSe , что приводит к подавлению оже-рекомбинации в данных материалах, несмотря на высокую остаточную концентрацию носителей [20].

В КЯ $\text{HgTe}/\text{CdHgTe}$ можно обеспечить аналогичную симметрию, причем подбор ширины КЯ позволяет добиться конечной энергетической щели, но в то же время сохранить симметричный закон дисперсии. Тем не менее все работы по исследованию стимулированного излучения и созданию лазеров в КРТ структурах ограничивались гораздо более коротковолновой областью [21–26], при этом в качестве активной среды использовались фактически объемные слои HgCdTe . Так, в среднем ИК диапазоне наиболее длинноволновая генерация на длине волны 5.3 мкм при 45 К была получена в работе [23] еще в 1993 г. Лазеры с КЯ на основе HgCdTe были реализованы в работе [24], однако только для длин волн генерации вблизи 2 и 3 мкм.

В данной работе исследуются HgCdTe структуры с КЯ различного дизайна, „сконструированные“ для получения длинноволнового ($\lambda > 5$ мкм) стимулированного излучения (СИ). На основе исследований ФЛ и СИ, а также анализа зонных спектров структур с широкими и узкими КЯ можно заключить, что в структурах с узкими КЯ из чистого HgTe могут быть получены наилучшие результаты. В таких структурах получено СИ на длинах волн вплоть до 14 мкм.

2. Методика эксперимента

Все исследуемые в данной работе структуры были выращены методом МЛЭ на полуизолирующих GaAs (013) подложках с ZnTe и CdTe буферами [27]. Характерная

плотность дислокаций в структурах составляла 10^6 см^{-2} . Структуры намеренно не легировались.

Исследования спектров фотолюминесценции проводились в криостате замкнутого цикла, оптически сопряженном с фурье-спектрометром Bruker Vertex 80v, работающим в режиме пошагового сканирования. За деталями эксперимента можно обратиться к работам [28,29]. Для накачки использовался $\text{Nd} : \text{YAG}$ лазер, сопряженный с параметрическим генератором света фирмы Solar (Минск, Беларусь). Этот источник обеспечивает генерацию узкополосных импульсов длительностью 10 нс с перестраиваемой длиной волны в диапазоне 1–2.3 мкм. Диаметр пучка излучения накачки составлял ~ 1 см, в то время как типичный размер образцов был 4×8 мм. Таким образом, возбуждающее излучение полностью покрывало поверхность образца. В зависимости от длины волны возбуждения рассеянное излучение накачки отрезалось с помощью трехмиллиметрового германиевого фильтра, фильтра из арсенида индия или комбинации дихроичных фильтров. Как правило, излучение собиралось с торца образца, поскольку такая геометрия эксперимента оптимальна для наблюдения стимулированного излучения, распространяющегося преимущественно вдоль плоскости КЯ. В некоторых случаях ФЛ собиралась с поверхности образца под углом. Такая геометрия позволяет наблюдать и спонтанное, и стимулированное излучение с хорошим отношением сигнал–шум.

3. Результаты и обсуждение

Как известно, изменять энергию межзонных переходов в структурах с КЯ на основе HgCdTe можно как варьируя толщину ямы, так и изменяя долю Cd в ней [30,31]. Для получения СИ в области 6–14 мкм толщина КЯ из чистого HgTe должна составлять несколько нм. Для таких узких КЯ флуктуации толщины ямы и состава твердого раствора в барьерах могут сильно сказываться на длине волны генерации. Использование широких КЯ или потенциальных ям позволило бы снизить влияние флуктуаций толщины ямы на ширину запрещенной зоны в структуре, а также уменьшить роль интерфейсов в безызлучательных механизмах рекомбинации. Ранее при исследованиях кинетики релаксации фотопроводимости нами было установлено, что при одинаковой ширине запрещенной зоны (лежащей в диапазоне 30–80 мэВ) времена жизни носителей в КЯ меньше, чем в объемных слоях [32]. Тем не менее следует отметить, что это относится к режиму слабого оптического возбуждения, когда концентрация носителей близка к равновесной и основную роль играют процессы рекомбинации Шокли–Рида–Холла. С увеличением интенсивности возбуждения и неравновесной концентрации носителей данный канал рекомбинации насыщается, и основную роль начинает играть излучательная и оже-рекомбинация.

Для оценки перспективности широких и узких КЯ для длинноволновых лазеров на основе HgCdTe была выращена серия волноводных структур для получения стимулированного излучения в диапазоне длин волн 6–14 мкм. Дизайн волноводных структур ориентирован на эффективную локализацию излучения с длиной волны, соответствующей энергии межзонных переходов. На рис. 1, *a, b* представлены распределение показателя преломления вдоль оси роста образца (отражающее толщину и состав слоев структуры) и расчетная локализация ТЕ моды для двух структур. Как видно из рис. 1, *a, b*, дизайны диэлектрических волноводов для этих структур практически совпадают. В структуре 161111 в пучность поля помещена одна широкая (100 нм), фактически потенциальная, яма с составом твердого раствора $x = 0.265$, а в структуре 161103 — 5 HgTe КЯ толщиной 2.8 нм. На рис. 2, *a, b* приведены результаты расчета зонной структуры для этих ям, выполненного в рамках аксиального приближения с помощью гамильтониана

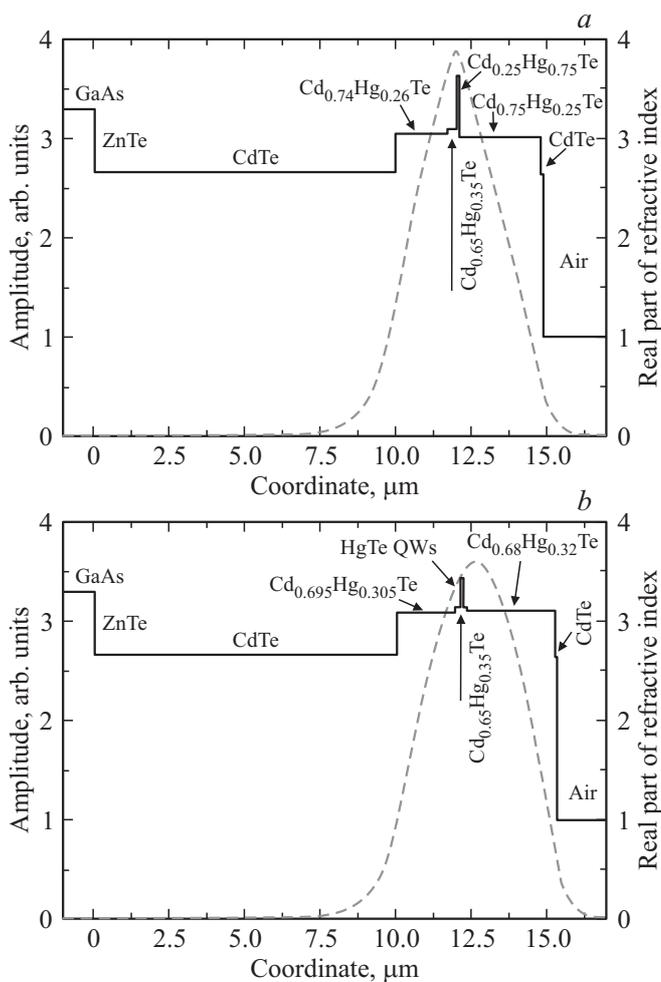


Рис. 1. *a* — распределение показателя преломления и электрического поля ТЕ моды с длиной волны 6.6 мкм для структуры 161111. *b* — распределение показателя преломления и электрического поля ТЕ моды с длиной волны 6.6 мкм для структуры 161103.

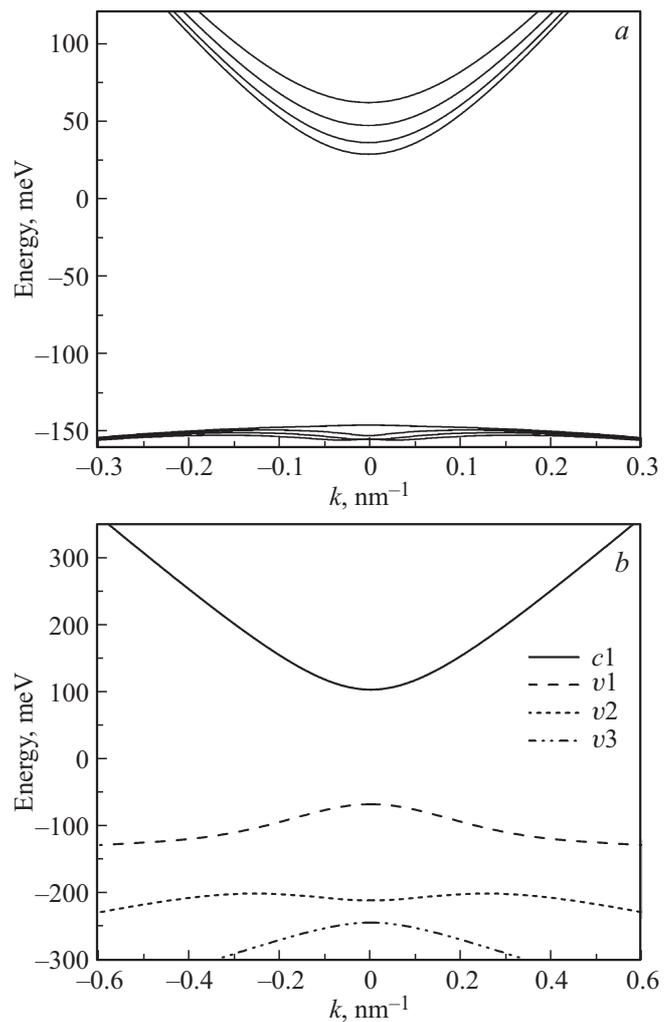


Рис. 2. *a* — результаты расчета энергетического спектра структуры 161111 (первые 4 подзоны в валентной зоне и зоне проводимости). *b* — результаты расчета энергетического спектра структуры 161103.

Кейна 8×8 . Видно, что значения ширины запрещенной зоны в двух представленных структурах близки и составляют ~ 170 мэВ.

Результаты исследований ФЛ в данных структурах, представленные на рис. 3, согласуются с расчетом. Как видно из рис. 3, для обеих структур длинноволновая граница в спектрах излучения находится вблизи 170 мэВ, что соответствует „красной“ границе межзонных переходов, однако в структуре с узкими КЯ уже при интенсивности накачки 200 Вт/см^2 возникает узкая линия СИ, в то время как в структуре с широкой ямой вплоть до максимальной интенсивности накачки $\sim 100 \text{ кВт/см}^2$ (рис. 3) наблюдается только гораздо более широкий спектр ФЛ и получить СИ не удается. Следует отметить, что образцы были выращены в рамках одной технологической серии и времени жизни, измеренные по релаксации фотопроводимости (при слабом возбуждении), составляют ~ 10 мкс в обеих структурах. Наиболее вероятно

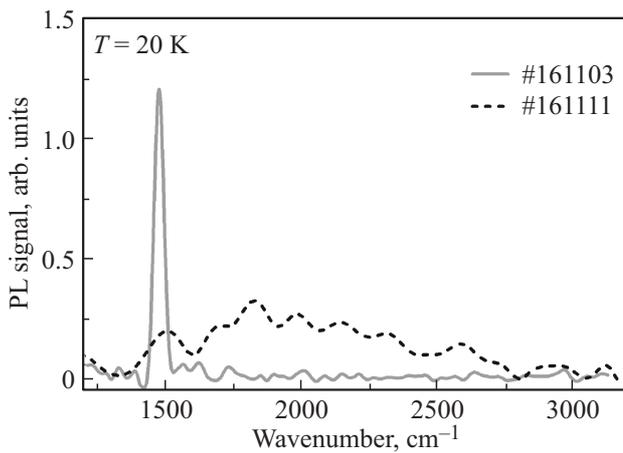


Рис. 3. Спектры ФЛ и СИ исследуемых структур при 20 К. Интенсивность накачки 2 кВт/см^2 для структуры 161122 и 100 кВт/см^2 для структуры 161111.

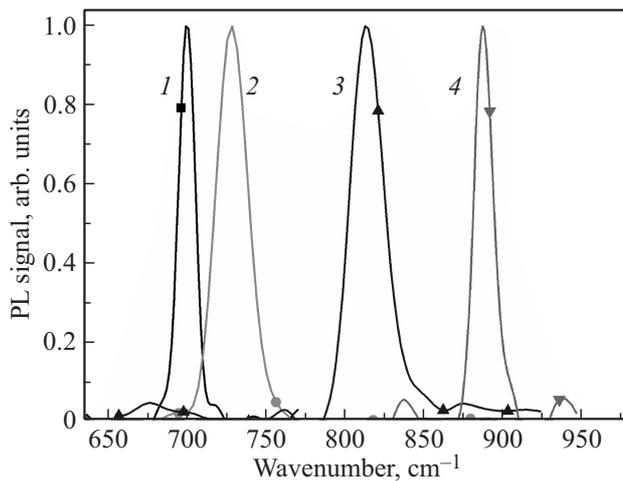


Рис. 4. Спектры СИ исследуемых структур при 20 К. Кривые 1, 4 — структура 170127. Т, К: 1 — 20, 4 — 80. 2, 3 — структура 170202. Т, К: 2 — 20, 3 — 40 К.

ной причиной отсутствия СИ в структуре с широкой КЯ являются отличия в зонном спектре, которые становятся важными при высокой концентрации носителей, когда сильную роль играет оже-рекомбинация.

В силу наличия интерфейсов в КЯ, помимо порогового оже-процесса, о котором упоминалось во введении, возможны и беспороговые процессы оже-рекомбинации. Такие процессы были подробно изучены в работе [33]. Как отмечают авторы, для подавления беспороговых процессов рекомбинации требуется выполнение следующих условий: (i) $E_g < E_c$, $E_g < E_v$, где E_c , E_v — величина энергетического барьера для выхода в континуум для электронов и дырок соответственно; (ii) $E_g < E_2 - E_1$, где E_2 , E_1 — энергии уровней размерного квантования. Расчеты показывают, что первому условию удовлетворяют обе структуры: энергия, уносимая третьим носителем при оже-рекомбинации, близка к E_g и недостаточна для

„выброса“ носителя в делокализованные состояния в барьерах. Очевидно, что это условие будет выполняться и для более узкозонных структур, и тем лучше, чем меньше ширина запрещенной зоны в КЯ. Тем не менее из рис. 2 видно, что в широкой КЯ второе условие вряд ли может быть выполнено даже в очень узкозонных структурах: энергетический зазор между электронными подзонами не превышает 10 мэВ, а спектр дырок практически не квантуется. В то же время в узкой КЯ второе условие для электронов заведомо выполняется (согласно расчету, в данной КЯ вообще не существует локализованных в КЯ состояний в электронных подзонах, начиная со второй), а для дырок энергии порядка E_g достаточно только для перехода во вторую подзону. Наконец, пороговый оже-процесс, аналогичный таковому в объемном материале, также подавлен в более узкой КЯ, так как эффективные массы электронов и дырок в основных подзонах отличаются меньше, чем в широкой КЯ. (Как известно, пороговая энергия для такого оже-процесса с участием двух электронов и дырки равна μE_g , где μ — отношение масс электрона и дырки). Таким образом, узкие КЯ оказываются перспективнее для продвижения в длинноволновую область.

4. Заключение

В данной работе на основе узких КЯ из чистого HgTe были сконструированы волноводные структуры для длин волн генерации 12–14 мкм. Все такие структуры позволили получить СИ на расчетных длинах волн (рис. 4). В наиболее длинноволновой структуре СИ наблюдается вплоть до температуры 80 К. При этом пороговая интенсивность накачки для разных структур (при 20 К) варьируется в диапазоне $0.1\text{--}0.5 \text{ кВт/см}^2$. Пороговая интенсивность накачки не демонстрирует отчетливой зависимости от длины волны СИ, однако, экстраполируя в качестве оценки пятикратный рост пороговой интенсивности для СИ с увеличением длины волны от 7 до 14 мкм, для длины волны 60 мкм получим интенсивность $\sim 12 \text{ кВт/см}^2$, что хорошо соответствует оценкам, приведенным в работе [34].

Важно отметить, что дальнейшее продвижение в длинноволновый диапазон требует роста толстых слоев (общей толщиной до 20 мкм) для реализации диэлектрического волновода. При этом в рамках одного технологического цикла необходимо выполнить рост и толстых волноводных слоев, и массива узких КЯ с контролем толщины ям до $\sim 0.1 \text{ нм}$. В рамках данной работы была отработана технология „быстрого“ роста волноводных структур с КЯ со средней скоростью, соответствующей темпу роста объемных пленок HgCdTe ($2\text{--}3 \text{ мкм/час}$). Исследования ФЛ и СИ показали, что качество таких структур не уступает остальным структурам серии. Так, на рис. 4 также продемонстрированы спектры СИ для структуры 170202, полученной при „быстром“ росте.

В работе использовано оборудование ЦКП „Физика и технология микро- и наноструктур“. Проект выполнен при поддержке Министерства образования и науки РФ (грант президента РФ МК-6923.2016.2). Рост структур и исследования фотолюминесценции и стимулированного излучения в структурах, полученных с высокой скоростью роста, выполнены при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда (проект № 17-12-01360).

Список литературы

- [1] M.S. Vitiello et al. *Opt. Express*, **23** (4), 5167 (2015).
- [2] B.S. Williams. *Nature Photonics*, **1** (9), 517 (2007).
- [3] M. Bahriz et al. *Opt. Express*, **23** (2), 1523 (2015).
- [4] A.N. Baranov, M. Bahriz, R. Teissier. *Opt. Express*, **24** (16), 18799 (2016).
- [5] R. Colombelli et al. *Appl. Phys. Lett.*, **78** (18), 2620 (2001).
- [6] K. Ohtani, M. Beck, J. Faist. *Appl. Phys. Lett.*, **105** (12), 121115 (2014).
- [7] J. Ulrich et al. *Appl. Phys. Lett.*, **80** (20), 3691 (2002).
- [8] L.N. Kurbatov et al. *JETP Lett.*, **37** (9), 499 (1983).
- [9] K.V. Maremyanin et al. *Semiconductors*, **50** (12), 1669 (2016).
- [10] D.N. Talwar, M. Vandevyver. *J. Appl. Phys.*, **56** (6), 1601 (1984).
- [11] V.S. Varavin, V.V.V., S.A. Dvoretzky, N.N. Mikhailov, V.N. Ovsyuk, Yu.G. Sidorov, M.V.Y. A.O. Suslyakov, A.L. Aseev. *Opto-Electronics Rev.*, **11** (2), 99 (2003).
- [12] S.V. Morozov et al. *Appl. Phys. Lett.*, **104** (7), 072102 (2014).
- [13] V.V. Romyantsev et al. *Semicond. Sci. Techn.*, **28** (12), 125007 (2013).
- [14] S. Dvoretzky et al. *J. Electron. Mater.*, **39** (7), 918 (2010).
- [15] N.N. Mikhailov et al. *Intern. J. Nanotechnology*, **3** (1), 120 (2006).
- [16] B.A. Bernevig, T.L. Hughes, S.C. Zhang. *Science*, **314** (5806), 1757 (2006).
- [17] V.Y. Aleshkin, A.A. Dubinov, V. Ryzhii. *JETP Lett.*, **89** (2), 63 (2009).
- [18] S. Boubanga-Tombet et al. *Phys. Rev. B*, **85** (3), 035443 (2012).
- [19] T. Watanabe et al. *New J. Phys.*, **15** (7), 075003 (2013).
- [20] J. Dimmock, I. Melngailis, A. Strauss. *Phys. Rev. Lett.*, **16** (26), 1193 (1966).
- [21] A.A. Andronov et al. *Semiconductors*, **42** (2), 179 (2008).
- [22] A.A. Andronov et al. *Semiconductors*, **40** (11), 1266 (2006).
- [23] J.M. Arias et al. *Semicond. Sci. Techn.*, **8** (1S), S255 (1993).
- [24] J. Bleuse et al. *J. Cryst. Growth*, **197** (3), 529 (1999).
- [25] J. Bonnet-Gamard et al. *J. Appl. Phys.*, **78** (12), 6908 (1995).
- [26] E. Hadji et al. *Appl. Phys. Lett.*, **68** (18), 2480 (1996).
- [27] V.S. Varavin et al. *Proc. SPIE*, **5136**, 381 (2003).
- [28] S.V. Morozov et al. *Appl. Phys. Lett.*, **108** (9), 092104 (2016).
- [29] V.V. Romyantsev et al. *Semiconductors*, **50** (12), 1654 (2016).
- [30] M.S. Zholudev et al. *Nanoscale Res. Lett.*, **7** (1), 534 (2012).
- [31] A.V. Ikonnikov et al. *JETP Lett.*, **92** (11), 756 (2010).
- [32] V.V. Romyantsev et al. *Semiconductors*, **47** (11), 1438 (2013).
- [33] A.S. Polkovnikov, G.G. Zegrya. *Phys. Rev. B*, **58** (7), 4039 (1998).
- [34] S. Ruffenach et al. *APL Materials*, **5** (3), 035503 (2017).

Редактор А.Н. Смирнов

Studies of HgCdTe waveguide structures with quantum wells for long-wavelength stimulated emission

V.V. Romyantsev^{1,2}, A.M. Kadykov¹, M.A. Fadeev¹, A.A. Dubinov^{1,2}, V.V. Utochkin², N.N. Mikhailov^{3,4}, S.A. Dvoretzky³, S.V. Morozov^{1,2}, V.I. Gavrilenko^{1,2}

¹ Institute for Physics of Microstructures
Russian Academy of Sciences,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

² Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

³ Institute for Semiconductor Physics,
Siberian Branch of Russian Academy of Sciences,
630090 Novosibirsk, Russia

⁴ Novosibirsk State University,
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract We present investigation into interband photoluminescence (PL) and stimulated emission (SE) in HgCdTe based waveguide structures with narrow gap quantum wells (QWs). Such HgCdTe structures can be implemented for developing the lasers in the wavelength range of 25–60 micron, which is not covered by quantum cascade lasers. We discuss the optimal designs of HgCdTe QWs for obtaining the long-wavelength SE under optical pumping. Narrow HgTe QWs are shown to be more promising than thick (potential) wells because of suppression of the Auger recombination. It is demonstrated that the molecular beam epitaxy can produce waveguide structures for emission wavelengths as long as 25 micron at a high growth rate. SE wavelength up to 14 microns is demonstrated with a threshold excitation intensity in the range 100–500 W/cm² at 20 K.