Стимулированное излучение в гетероструктурах InAs/InAsSb/InAsSbP с асимметричным электронным ограничением

© А.А. Семакова¹, М.С. Ружевич², В.В. Романов¹, Н.Л. Баженов¹, К.Д. Мынбаев^{1,2}, К.Д. Моисеев¹

 ¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия
² Университет ИТМО, 197101 Санкт-Петербург, Россия
E-mail: antonina.semakova@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 29 июня 2022 г. В окончательной редакции 6 июля 2022 г.

Принята к публикации 4 августа 2022 г.

Исследованы электролюминесцентные характеристики асимметричных светодиодных гетероструктур InAs/InAs_{1-y}Sb_y/InAsSbP с высокой мольной долей InSb в активной области (y > 0.09) в диапазоне температур 4.2–300 К. При низких температурах (T < 30 К) было достигнуто стимулированное излучение в диапазоне длин волн 4.1–4.2 мкм. Было установлено, что спектры электролюминесценции формировались в результате суперпозиции вкладов различных каналов излучательной рекомбинации носителей заряда вблизи гетерограницы II типа. Рассмотрено влияние качества гетероперехода II типа InAsSb/InAsSbP при увеличении содержания InSb в тройном твердом растворе на излучательные интерфейсные переходы.

Ключевые слова: гетеропереходы, InAs, антимониды, электролюминесценция, светодиоды.

DOI: 10.21883/FTP.2022.09.53408.9925

1. Введение

Неослабевающий интерес к гетероструктурам на основе узкозонных соединений твердых растворов А^{ШВV} обусловлен не только их физическими свойствами [1], но и широкой областью практического использования для целого ряда оптоэлектронных приборов, работающих в среднем инфракрасном (ИК) спектральном диапазоне 2-6 мкм [2,3]. Светодиодные гетероструктуры на основе твердых растворов InAs(Sb, P) являются перспективными источниками излучения для систем экологического мониторинга и медицинской диагностики [4,5]. При этом остается актуальной проблема повышения эффективности работы светодиодов среднего ИК диапазона. Имеющиеся на данный момент практические решения улучшения выходных характеристик светодиодов зачастую связаны с усложнением конструкции приборных структур [6,7]. В то же время детальное рассмотрение рекомбинационных процессов, происходящих в узкозонных гетероструктурах, в частности при низких температурах, может послужить обнаружению новых возможностей для улучшения характеристик оптоэлектронных приборов. В работе [8] показано, что в симметричных гетероструктурах с высокими энергетическими барьерами и узкозонной активной областью InAs_{1-v}Sb_v (y = 0.12) при температурах T = 10-35 К наблюдалась суперлюминесценция с шириной на половине высоты интенсивности (FWHM) полосы излучения ~ 50 нм. В данном температурном интервале подобный эффект также наблюдался в асимметричных узкозонных гетероструктурах с активной областью на основе твердых растворов $InAs_{1-y}Sb_y$ с составами y < 0.09 в спектральной области 3.4-3.6 мкм [9].

В настоящей работе сообщается о наблюдении вынужденного излучения в спектрах электролюминесценции (ЭЛ) асимметричных светодиодных гетероструктур *n*-InAs/InAs $_{1-v}$ Sb_v/*p*-InAsSbP с составами узкозонного слоя у > 0.09. Основная особенность конструкции данных образцов выражается в асимметричности энергетических скачков на границах раздела полупроводниковых соединений, образующих эпитаксиальную гетероструктуру. Следовательно, возможно формирование потенциальных барьеров для встречных потоков носителей заряда, инжектируемых в активную область гетероструктуры, таким образом, что скачок в валентной зоне на одной гетерогранице будет удерживать дырки в активной области, в то время как скачок в зоне проводимости на другой гетерогранице активной области будет препятствовать движению электронов. Как известно, увеличение мольной доли InSb в тройном твердом растворе ведет к росту несоответствия по параметру решетки эпитаксиального слоя InAsSb и подложки InAs, что оказывает существенное влияние на формирование гетерограницы между активным слоем InAsSb и барьерным слоем InAsSbP, согласованным по параметру решетки с подложкой InAs [10]. В результате при номинально относительно небольшом разрыве зон на гетерогранице возможно появление особенностей, приводящих к возникновению дополнительных каналов рекомбинации [11]. В настоящей работе сообщается о вынужденном излучении, связанном с непрямыми рекомбинационными переходами на гетерогранице II типа.

2. Эксперимент

Для проведения экспериментальных исследований были выращены асимметричные гетероструктуры InAs_{1-v}Sb_v/p-InAsSbP на нелегированных подложках *n*-InAs(001) методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений. Эпитаксиальное наращивание слоев InAsSb и InAsSbP проводилось при атмосферном давлении в горизонтальном реакторе с резистивным типом нагрева. Твердый раствор активной области *n*-InAsSb преднамеренно не легировался, концентрация электронов в нем, обусловленная наличием остаточных примесей, не превышала $n = 3 \cdot 10^{16} \, \text{см}^{-3}$. Поверх активной области наращивался барьерный слой p-InAsSbP, легированный цинком. Были получены гетероструктуры с мольной долей InSb в твердом растворе $InAs_{1-v}Sb_v$ активной области y = 0.095 (структура A) и *у* = 0.110 (структура *B*). Светодиодные чипы с круглой мезой диаметром d = 300 мкм были сформированы с использованием методов стандартной фотолитографии и влажного химического травления. Об особенностях технологии выращивания и некоторых оптических и электрических свойствах подобных гетероструктур, полученных при определенных температурах (77 и 300 К), сообщалось ранее в работах [12,13]. В ходе настоящей работы были проведены исследования ЭЛ в широком диапазоне температур (T = 4.2 - 300 K) при импульсном возбуждении с частотой $f = 1 \, \mathrm{k} \Gamma \mathrm{u}$ и длительностью импульса накачки $\tau = 2$ мкс.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены температурные зависимости положения спектральных максимумов полос ЭЛ исследуемых гетероструктур и расчетной величины ширины запрещенной зоны (E_g) твердых растворов $InAs_{1-y}Sb_y$ активной области для составов y = 0.095 и y = 0.110. Зависимость $E_g(T)$ рассчитывалась согласно соотношению Варшни [14]:

$$E_g = E_0 - \alpha \cdot T^2 \cdot (T + \beta)^{-1}, \qquad (1)$$

где коэффициенты $\alpha = 2.76 \cdot 10^{-4}$ эВ/К и $\beta = 93$ К были близки к соответствующим параметрам для бинарного соединения InAs. Величина E_0 для твердого раствора InAs_{1-y}Sb_y вычислялась как интерполяция долей соединений InAs и InSb согласно следующему выражению [15]:

$$E_0 = E_{g_{\text{InAs}}}(1-y) + E_{g_{\text{InSb}}} \cdot y - C_{\text{InAsSb}} \cdot y(1-y), \quad (2)$$

где $E_{g_{\text{InAs}}} = 0.417$ эВ, $E_{g_{\text{InSb}}} = 0.235$ эВ и $C_{\text{InAsSb}} = 0.61$ эВ при T = 0 К, согласно работе [16].

Из рис. 1 видно, что для исследуемых образцов наблюдалась специфическая зависимость энергии фотона в максимуме полосы ЭЛ от температуры. При низких температурах (T < 50 K) имела место существенная



Рис. 1. Расчетные температурные зависимости ширины запрещенной зоны (E_g) активной области для гетероструктур A (кривая 1) и B (кривая 2) и экспериментальные значения энергии фотона в максимуме полос вынужденного (пустые символы) и спонтанного (сплошные символы) излучения.

разница в энергии между экспериментальными данными и расчетной кривой. Следует отметить, что при $T = 4.2 \,\mathrm{K}$ данное расхождение составило $\sim 40 \,\mathrm{MisB}$ для структуры А и ~ 38 мэВ для структуры В. Кроме того, в интервале температур $30 < T < 100 \, \text{K}$ с увеличением температуры наблюдалось смещение положения спектрального максимума полос ЭЛ в сторону больших энергий фотона. "Голубой" сдвиг спектров ЭЛ здесь составил $\sim 1.3\cdot 10^{-4}\, \text{эВ/K.}$ В интервале температур 100 < T < 200 К изменение положения пиков ЭЛ следовало температурному сужению запрещенной зоны InAs_{1-v}Sb_v с некоторым отклонением в сторону меньших энергий относительно расчетной зависимости $E_{g}(T)$. Величина энергетического отклонения составляла 15 мэВ при T = 100 К и приближалась к нулю при T > 200 К. Значение в 15 мэВ близко к энергии активации мелкого акцептора Zn в арсениде индия и родственных ему твердых растворах [16]. Таким образом, можно предположить, что спонтанная люминесценция в данном диапазоне температур была обусловлена излучательной рекомбинацией с участием акцепторных состояний Zn в объеме активной области гетероструктур, образовавшихся вследствие диффузии цинка из барьерного слоя InAsSbP в эпитаксиальный слой InAsSb. В диапазоне высоких температур 200 < T < 300 K энергия фотона в максимуме полосы излучения совпадала с величиной запрещенной зоны тройного твердого раствора, что указывало на доминирующий вклад в спектрах ЭЛ межзонной излучательной рекомбинации в активной области гетероструктур. В связи с этим, можно сделать предположение о существовании нескольких каналов излучательной рекомбинации в исследуемых гетероструктурах: 1) межзонные переходы в активной области при температурах, близких к комнатной $(T \sim 300 \, \text{K})$,



Рис. 2. Схематическое изображение зонных энергетических диаграмм асимметричной гетероструктуры InAs/InAsSb/InAsSbP в общем виде (a) и ступенчатого гетероперехода II типа *n*-InAsSb/*p*-InAsSbP при приложении прямого смещения к гетероструктуре (b).

2) излучательные переходы на примесные состояния в запрещенной зоне тройного твердого раствора при понижении температуры до 100 K, а также 3) излучательные рекомбинационные переходы, имеющие очень слабую температурную зависимость в интервале низких температур (T < 35 K). Таким образом, температурный диапазон 35 < T < 100 K можно определить как переходную область, в которой реализуется суперпозиция вкладов двух последних каналов рекомбинации, что выражается в проявлении "голубого" сдвига в спектрах ЭЛ при повышении температуры (см. рис. 1).

На рис. 2, а схематически изображена зонная энергетическая диаграмма асимметричной гетероструктуры InAs/InAsSb/InAsSbP. Видно, что ограничение для дырок создается за счет доминирующего энергетического скачка в валентной зоне на гетерогранице InAs/InAsSb по отношению к зоне проводимости. Ограничение для электронов обеспечивается потенциальным барьером в зоне проводимости на гетерогранице InAsSb/InAsSbP, создаваемым слоем четверного твердого раствора InAsSbP. Таким образом, в представленной конструкции создано асимметричное электронное ограничение для носителей заряда в активной области InAsSb. Ранее в работе [10] было показано, что для составов у > 0.09 узкозонного твердого раствора InAs1-vSbv может быть сформирован гетеропереход II типа InAsSb/InAsSbP. Увеличение мольной доли антимонида индия в InAs_{1-y}Sb_y приводило к возрастанию разрыва в валентной зоне (ΔE_V) на гетерогранице InAsSb/InAsSbP. За счет ступенчатой формы разрывов энергетических зон на гетерогранице II типа при подаче прямого смещения на границе раздела InAsSb/InAsSbP образуются потенциальные ямы для электронов и дырок по разные стороны интерфейса (рис. 2, b). При этом энергетическое расстояние между электронами и дырками (E_{S2}), участвующими в рекомбинации, может быть меньше величины Eg наиболее узкозонного из твердых растворов, образующих данный гетеропереход, и может уменьшаться с увеличением мольной доли InSb в твердом растворе InAsSb [17].

Таким образом, экспериментально наблюдаемые при T = 4.2 K излучательные переходы с энергией фотона, существенно меньшей величины E_g активной области,

могут быть обусловлены рекомбинацией носителей заряда вблизи гетерограницы InAsSb/InAsSbP. Как было показано ранее для одиночной гетероструктуры II типа *n*-InGaAsSb/*p*-GaInAsSb, локализация электронов и дырок в потенциальных ямах на гетерогранице II типа вполне может обеспечить получение режима лазерной генерации на основе квази-непрямых (туннельных) излучательных переходов через интерфейс [18], при этом в результате такой локализации носителей заряда температурная зависимость энергетического положения спектров ЭЛ практически отсутствует.

Исследованные гетероструктуры демонстрировали стимулированное излучение в диапазоне температур T = 4.2 - 30 К. На рис. 3 представлены спектры ЭЛ, полученные при $T = 4.2 \, \text{K}$ и разных токах накачки. При начальных уровнях возбуждения (*i* < 0.2 A) спектры ЭЛ содержали одну ярко выраженную полосу спонтанной люминесценции с FWHM ~ 20-23 мэВ. Наблюдаемый резкий низкоэнергетический спад в спектрах спонтанной ЭЛ вблизи энергии фотона $hv \sim 0.29$ эВ обусловлен поглощением генерируемого излучения молекулами углекислого газа (СО₂), присутствующими в атмосфере (рис. 3, b). Дальнейшее увеличение тока накачки приводило к образованию узкой полосы стимулированного излучения с FWHM ~ 2 мэВ (~ 30 нм). Генерация одиночной моды наблюдалась при hv = 0.304 эВ (структура A) и $hv = 0.297 \, \text{эВ}$ (структура *B*), что соответствовало спектральному положению максимума спонтанной люминесценции исследуемых гетероструктур при данной температуре. При высоких уровнях накачки (в интервале токов 0.8-2.4 А) проявлялась многомодовость структуры спектра ЭЛ, при этом спектр сдвигался в сторону бо́льших энергий фотона (см. рис. 3, а и b). Также можно отметить, что с увеличением уровня возбуждения имеет место перераспределение интенсивности между модами. При этом среднее межмодовое расстояние порядка $\Delta \lambda \sim 1.2$ нм соответствовало длине резонатора L = 170 мкм, которая определялась главным образом толщиной подложки InAs.

На рис. 4, *а* представлена типичная многомодовая структура спектра стимулированного излучения. Аппроксимируя данный спектр с помощью набора кривых, на основе распределения Лоренца можно выделить



Рис. 3. Спектры ЭЛ для гетероструктур A(a, c) и B(b, d), полученные при T = 4.2 К и разных токах накачки.



Рис. 4. Спектр ЭЛ для гетероструктуры A при i = 2.4 A и T = 4.2 K (a); зависимость спектрального положения мод спектра стимулированного излучения от тока накачки для данной гетероструктуры (b).

четыре моды. Суммируя спектры ЭЛ, полученные при различных уровнях накачки (см. рис. 3), были построены зависимости спектрального положения для каждой моды при увеличении тока накачки (рис. 4, b). Помимо общего сдвига спектра стимулированного излучения в область больших энергий фотона наблюдалось также увеличение межмодового расстояния, что может быть вызвано изменением формы потенциальных ям на гетерогранице II типа InAsSb/InAsSbP при увеличении приложенного внешнего смещения. Таким образом, можно утверждать, что наблюдаемое в настоящей работе вынужденное излучение при низких температурах было обусловлено интерфейсной излучательной рекомбинацией дырок вблизи уровня Ферми с электронами, локализованными в потенциальной яме. Наблюдаемый сдвиг спектров ЭЛ в сторону больших энергий фотона с увеличением уровня инжекции связан со сдвигом уровня локализации для электронов (рис. 4, b).

Как было показано выше, температура перехода от вынужденного излучения к спонтанному составила ~ 30 K. Данная величина оказалась меньше, чем сообщавшаяся в работе [9] для аналогичной гетероструктуры с активной областью из InAsSb с меньшей мольной долей InSb. Кристаллическое совершенство структуры, как известно, тесно связано с рассогласованием по параметру решетки твердых растворов InAsSb и используемых для их выращивания подложек бинарного соединения InAs. Для рассматриваемых в настоящей работе составов эпитаксиального слоя $InAs_{1-y}Sb_y$ (y = 0.095 и y = 0.110) данное рассогласование не превышает критической для тонких слоев величины, равной 1%. При увеличении степени рассогласования между слоем InAsSb и подложкой InAs возможна генерация дислокаций несоответствия, сопровождающаяся увеличением концентрации протяженных и точечных дефектов. Экспериментальные данные по ЭЛ, полученные для аналогичных узкозонных асимметричных гетероструктур, показали отсутствие вынужденного излучения в образцах с повышенным содержанием InSb в активной области из InAsSb [11].

4. Заключение

В работе представлены результаты исследования электролюминесценции асимметричных светодиодных гетероструктур *n*-InAs/InAs_{1-y}Sb_y/*p*-InAsSbP с мольной долей InSb в активном слое y = 0.095 и 0.110 в интервале температур T = 4.2-300 К. При низких температурах, в диапазоне 4.2-30 К, в спектрах люминесценции наблюдалось вынужденное излучение; показана перестройка интенсивности спектральных мод с увеличением тока инжекции при T = 4.2 К. Установлен вклад трех различных каналов в излучательную рекомбинацию, доминирующих в зависимости от температуры. При низких температурах (T < 100 К) формирование спектров спонтанного и вынужденного излучения было обусловлено интерфейсными переходами на гетерогранице II типа InAsSb/InAsSbP. С увеличением температуры (T > 100 K) наблюдалась только спонтанная люминесценция, при этом доминирующим каналом рекомбинации становились переходы на акцепторные уровни цинка в активной области. При высоких температурах (T > 200 K) ЭЛ определялась межзонными излучательными рекомбинационными переходами носителей заряда в объеме активного слоя InAsSb. Наблюдаемая интенсивная интерфейсная ЭЛ на гетерогранице InAsSb/InAsSbP показывает потенциал для применения данных гетероструктур в ИК излучателях с $\lambda > 4$ мкм.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- S. Adachi. Properties of Semiconductor Alloys: Group-IV, III-V, and II-VI Semiconductors (John Wiley & Sons, Ltd., Chichester West Sussex, 2009).
- [2] A. Rogalski, P. Martyniuk, M. Kopytko, P. Madejczyk, S. Krishna. Sensors, 20, 7047 (2020).
- [3] A.P. Ongstad, R. Kaspi, G.C. Dente, M.L. Tilton, R. Barresi, J.R. Chavez. Appl. Phys. Lett., 92, 141106 (2008).
- [4] D. Ting, A. Soibel, A. Khoshakhlagh, S. Keo, B. Rafol, A. Fisher, B. Pepper, E. Luong, C. Hill, S. Guhapala. Infr. Phys. Technol., 97, 210 (2019).
- [5] D. Jung, S. Bank, M.L. Lee, D. Wasserman. J. Opt., 19, 123001 (2017).
- [6] Q. Lu, Y. Zhou, J. Chen, L. He, A. Krier. Proc. SPIE, Smart Photonic and Optoelectronic Integrated Circuits XXII, 11284, 39 (2020).
- [7] F.A. Al-Saymari, A.P. Craig, Q. Lu, A.R.J. Marshall, P.J. Carrington, A. Krier. Opt. Express, 28, 23338 (2020).
- [8] Д.М. Кабанов, Е.В. Лебедок, Ю.П. Яковлев. ЖПС, 84, 786 (2017).
- [9] K.D. Mynbaev, N.L. Bazhenov, A.A. Semakova, A.V. Chernyaev, S.S. Kizhaev, N.D. Stoyanov, V.E. Bougrov, H. Lipsanen, Kh.M. Salikhov. Inf. Phys. Technol., 85, 246 (2017).
- [10] К.Д. Моисеев, В.В. Романов. ФТТ, 63, 475 (2021).
- [11] А.А. Семакова, В.В. Романов, Н.Л. Баженов, К.Д. Мынбаев, К.Д. Моисеев. ФТП, 55, 277 (2021).
- [12] В.В. Романов, Э.В. Иванов, К.Д. Моисеев. ФТТ, **61**, 1746 (2019).
- [13] В.В. Романов, Э.В. Иванов, А.А. Пивоварова, К.Д. Моисеев, Ю.П. Яковлев. ФТП, 54, 202 (2020).
- [14] Y.P. Varshni. Physica, 4, 149 (1967).
- [15] J.A. Van Vechten, T.K. Bergstresser. Phys. Rev. B, 1, 3351 (1970).
- [16] Landolt-Börnstein. Handbook, Numerical Data, Ser. III, v. 17a [ed. by O. Madelung (Springer, Berlin-Heidelberg, 1982)].
- [17] В.В. Романов, Э.В. Иванов, К.Д. Моисеев. ФТТ, 62, 1822 (2020).
- [18] К.Д. Моисеев, М.П. Михайлова, Ю.П. Яковлев. ФТП, 37, 1010 (2003).

Редактор Г.А. Оганесян

Stimulated emission in the InAs/InAsSb/InAsSbP heterostructures with asymmetric electronic confinement

A.A. Semakova¹, M.S. Ruzhevich², V.V. Romanov¹, N.L. Bazhenov¹, K.D. Mynbaev^{1,2}, K.D. Moiseev¹

¹ Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia
² ITMO University,
197101 St. Petersburg, Russia

Abstract The electroluminescent characteristics of the InAs/InAs_{1-y}Sb_y/InAsSbP asymmetric light-emitting diode heterostructures with high InSb mole fraction in the active region (y > 0.09) in the temperature range 4.2-300 K have been studied. Stimulated emission was achieved in the wavelength range $4.1-4.2\,\mu$ m at low temperatures (T < 30 K). It was found that the electroluminescence spectra were formed as a result of the superposition of contributions from different channels of radiative recombination of charge carriers near the type II heterointerface. The effect of the quality of the type II InAsSb/InAsSbP heterojunction on the radiative interface transitions with an increase in the content of InSb in the ternary solid solution is considered.