

Стимулированное излучение, фотолюминесценция и локализация неравновесных носителей заряда в сверхтонких (монослойных) квантовых ямах GaN/AlN

Е.В.Луценко, Н.В.Ржеуцкий, А.В.Нагорный, А.В.Данильчик,
Д.В.Нечаев, В.Н.Жмерик, С.В.Иванов

Исследованы стимулированное излучение и фотолюминесценция сверхтонких квантовых ям GaN с номинальной толщиной 1.5–2 монослоя (МС) и барьерными слоями AlN толщиной 4–6.66 МС, полученных с помощью плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии на подложках с-сапфира. Получено стимулированное излучение ТЕ поляризации в сверхтонких квантовых ямах GaN/AlN при накачке непосредственно в квантовые ямы. Длина волны стимулированного излучения варьировалась от 262 до 290 нм в зависимости от толщины ям и барьеров. Показано, что стимулированное излучение развивалось на локализованных состояниях GaN толщиной 2 и 3 МС в сверхтонких квантовых ямах с номинальной толщиной 1.5 и 2 МС соответственно. Минимальный порог возбуждения стимулированного излучения составил 700 кВт/см² на $\lambda = 270$ нм.

Ключевые слова: оптическая накачка, ультрафиолетовое стимулированное излучение, сверхтонкие квантовые ямы GaN/AlN, молекулярно-пучковая эпитаксия.

1. Введение

Активные исследования широкозонных нитридных соединений A³N и бурное развитие приборных технологий на их основе привело за последние годы к массовому внедрению высокоэффективного светодиодного освещения и к промышленному производству мощных инжекционных лазеров, излучающих в фиолетовой–зеленой области спектра.

Использование таких инжекционных лазеров для накачки активных лазерных сред позволило создать не только твердотельные [1, 2], но и полупроводниковые лазеры [3–5] с диодной накачкой, в которых отсутствует необходимость в удвоении частоты излучения возбуждения. Кроме того, технологический прогресс в выращивании соединений на основе GaN дал старт новому этапу развития СВЧ электроники. В настоящее время более половины продукции твердотельной СВЧ электроники выпускается на основе гетероструктур этих соединений. Также в ближайшее время ожидается массовый переход от традиционных приборов на основе Si и SiC к новым более эффективным приборам на основе A³N-соединений для силовой электроники.

Дальнейшее развитие оптоэлектроники, СВЧ и силовой электроники связано с AlN. Использование гетероструктур на основе AlN в оптоэлектронике приводит к созданию ультрафиолетовых светодиодов и лазеров, в СВЧ и силовой электронике – к существенному увеличе-

нию частот, напряжений пробоя, рабочих токов и мощности. В активных областях большинства таких приборов ключевую роль играют слои твердых растворов AlGa_xN, для формирования которых используется одновременная подача ростовых потоков всех трех элементов. При этом, как правило, наблюдаются существенные флуктуации состава тройного соединения. В оптоэлектронных приборах это приводит к уширению спектральных полос излучения, а в СВЧ приборах происходит уменьшение подвижности носителей заряда и существенное, на порядок, уменьшение теплопроводности. Среди различных методов уменьшения флуктуаций состава в соединениях AlGa_xN перспективным направлением считается развитие технологий роста короткопериодных сверхрешеток AlN/GaN, которые при монослойных толщинах периодов называются цифровыми, или дискретными твердыми растворами [6–8]. Использование сверхтонких квантовых ям (КЯ) GaN обуславливает их псевдоморфный рост на барьерных AlN-слоях (при кристаллографическом рассогласовании этих слоев – 2.4%), а пространственная локализация электронов и дырок в сверхтонких КЯ не приводит к существенному разделению положений максимумов волновых функций этих частиц, которое возникает в результате действия внутренних электрических полей (квантоворазмерный эффект Штарка) и может быть весьма существенным при больших толщинах КЯ. Это обеспечивает высокую эффективность излучательной рекомбинации носителей и отсутствие «красного» сдвига длины волны выходного излучения. Как теоретически показано в [9], при изменении толщины сверхтонкой КЯ GaN от 1 до 4 монослоев (МС) эффективная ширина запрещенной зоны может варьироваться от ~5.51 до ~3.81 эВ, что соответствует длинам волн от ~225 до ~325 нм.

В настоящей работе исследуются фотолюминесценция (ФЛ), стимулированное излучение (СИ) и локализация неравновесных носителей заряда в гетероструктурах

Е.В.Луценко, Н.В.Ржеуцкий, А.В.Нагорный, А.В.Данильчик. Институт физики НАН Беларуси, Беларусь, 220072 Минск, просп. Независимости, 68/2

Д.В.Нечаев, В.Н.Жмерик, С.В.Иванов. Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе, Россия, 194021 С.-Петербург, Политехническая ул., 26; e-mail: jmerik@pls.ioffe.ru

Поступила в редакцию 4 апреля 2019 г.

с множественными сверхтонкими КЯ GaN/AlN, перспективных для создания активных областей оптоэлектронных приборов и лазеров УФ диапазона.

2. Эксперимент

Гетероструктуры были выращены на установке плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии Comcraft21T на отожженных и нитризованных подложках с-Al₂O₃, на которых с помощью эпитаксии с повышенной миграцией выращивались зародышевые слои AlN толщиной 65 нм [10], а затем методом металлодулированной эпитаксии проводился рост буферных слоев AlN толщиной до 2 мкм [11] при температуре 780 °С в металлообогащенных условиях с отношением потоков металла (Al) и азота, равным 1.2. Для фильтрации прорастающих дислокаций в буферный слой вводились ультратонкие (толщиной 3 нм) вставки GaN [12]. Верхняя часть буферного слоя AlN толщиной 250 нм выращивалась при непрерывной подаче ростовых потоков. При этом накопившийся на поверхности слой избыточного металла (Al) с номинальной толщиной не более ~50 МС реагировал с потоком азота после роста слоя, образуя AlN. Дальнейший рост множественных КЯ GaN/AlN проводился при постоянной температуре подложки 700 °С. Главной особенностью роста гетероструктур GaN/AlN являлось использование непрерывного потока Ga ($F_{Ga} = 1$ МС/с) при импульсном потоке Al $F_{Al} = 0.48$ МС/с. Поскольку поток Al был немного больше потока азота ($F_N = 0.47$ МС/с), это обеспечивало отсутствие встраивания Ga при росте барьерных слоев AlN [13]. Кроме того, использование металлообогащенных условий для роста как КЯ GaN, так и барьерных слоев AlN позволяло рассчитывать их номинальные толщины исходя только из потока азота. На рис.1 приведены схематичные изображения трех исследованных гетероструктур А, В, С, которые состояли из шестидесяти КЯ GaN толщиной 1.5 или 2 МС при толщинах барьерных слоев, варьировавшихся от 4 до 6.66 МС.

Скорости роста слоев и морфология их поверхности контролировались *in situ* с помощью лазерной интерферометрии и дифракции отраженных быстрых электронов (ДОБЭ) соответственно. Для характеристики структурного качества выращенных структур использовались рентгенодифракционный анализ и атомно-силовая микроскопия.

Фотолюминесценции и стимулированное излучение сверхтонких квантовых ям GaN/AlN исследовались при их возбуждении излучением 5-й гармоники Nd:YAG-лазера ($\lambda_{exc} = 213$ нм, $I_{exc} \approx 0.1$ (ФЛ) и $\sim 0.1-10$ МВт/см² (СИ)). Стимулированное излучение было получено в поперечной геометрии измерений, при которой излучение возбуждающего лазера фокусировалось на поверхности гетероструктуры в полосу с размерами 100 мкм × 2 мм, ориентированную перпендикулярно торцу скола. Измерения параметров СИ специально проводились без создания резонатора Фабри–Перо, чтобы исключить случайное влияние качества зеркал резонатора, образованного сколами, на пороговую интенсивность возбуждающего излучения. При измерении спектров с помощью спектрометра MayaPro (Ocean Optics) регистрация ФЛ и СИ осуществлялась с поверхности и торца гетероструктуры соответственно.

3. Результаты и их обсуждение

По значениям полуширин симметричного и косимметричного рефлексов, полученным из рентгенодифракционных измерений, плотность прорастающих винтовых и краевых дислокаций в буферных слоях AlN оценена в $\sim 4 \times 10^8$ и $\sim 5 \times 10^9$ см⁻² соответственно. Двумерный рост гетероструктур GaN/AlN был установлен из наблюдения во время всего их роста линейчатых картин ДОБЭ и был подтвержден исследованиями с помощью атомно-силовой микроскопии, которые показали характерную для спирального ступенчатого роста атомарно-гладкую морфологию поверхности с высотой ступеней 1–2 МС и среднеквадратичной шероховатостью 0.8 нм на площади 5 × 5 мкм (подробности роста этих структур будут рассмотрены в отдельной статье).

Спектры фотолюминесценции всех трех исследованных гетероструктур с множественными КЯ представлены на рис.2. Видно, что спектры ФЛ сверхтонких КЯ состоят из нескольких полос, в отличие от описанных в [6–8], где в спектрах сверхтонких КЯ GaN/AlN толщиной 1.5 МС наблюдался только один максимум. Это, по-видимому, обусловлено различными режимами роста КЯ. Спектр излучения гетероструктуры А содержит две полосы с максимумами на $\lambda = 239$ и 259 нм, причем длинноволновая полоса более интенсивна. В спектре гетероструктуры В наблюдаются три выраженных максимума: на $\lambda =$

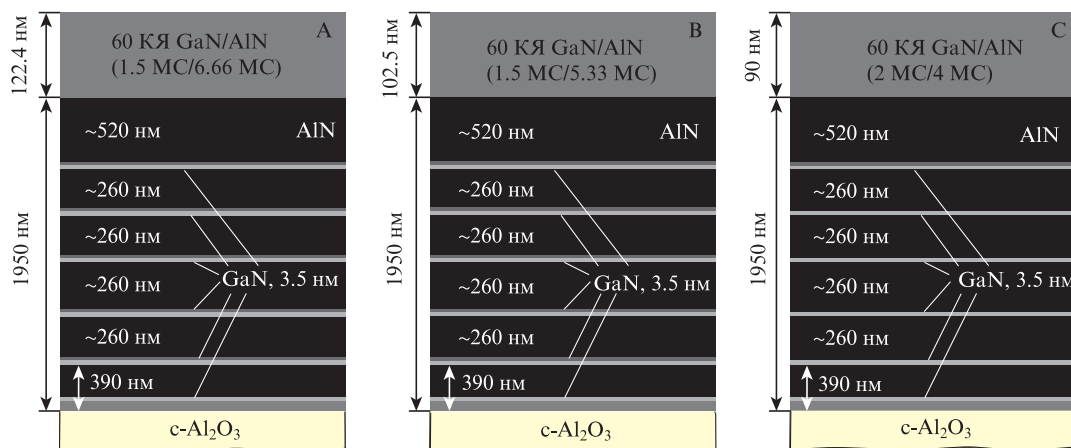


Рис.1. Схема гетероструктур А, В и С с множественными сверхтонкими КЯ GaN/AlN.

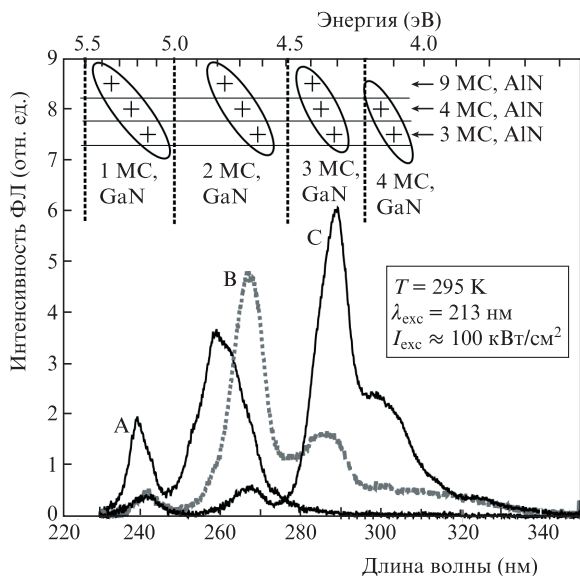


Рис.2. Спектры ФЛ гетероструктур А, В и С, содержащих 60 сверхтонких КЯ (рис.1). Вверху приведены эффективные ширины запрещенной зоны (+) для сверхрешеток с варьируемыми ширинами КЯ GaN(1–4 МС) и барьерных слоев AlN (3–9 МС), рассчитанные в [9].

242, 267 и 286 нм. Причем вторая, наиболее интенсивная полоса гетероструктуры В, существенно смещена (на ~8 нм или ~140 мэВ) относительно соответствующей полосы гетероструктуры А. На длинноволновом краю третьей полосы наблюдается пологий хвост до $\lambda \approx 350$ нм. Две коротковолновые полосы гетероструктуры С малоинтенсивны, а третья, наиболее интенсивная полоса излучения, имеет максимум на $\lambda = 289$ нм. На ее длинноволновом краю существует перегиб, свидетельствующий о наличии еще одной полосы излучения. Необходимо отметить, что авторы работы [14] также наблюдали многокомпонентные спектры ФЛ в сверхтонких КЯ GaN/AlN, но при большей толщине GaN (4–10 МС), отдельные полосы которых были приписаны излучению из участков ям с различной толщиной (числом слоев).

Полученные результаты интересно сравнить с результатами расчетов из работы [9] эффективной ширины запрещенной зоны сверхрешеток GaN/AlN с различными толщинами слоев. На рис.2, кроме экспериментальных спектров ФЛ, приведены также результаты этих расчетов для толщин КЯ GaN и барьерных слоев AlN, варьирующихся от 1 до 3 МС и от 3 до 9 МС соответственно. Их сравнение с положением полос ФЛ позволяет интерпретировать природу этих полос. Так, коротковолновые полосы ФЛ во всех гетероструктурах можно интерпретировать как излучение из наиболее широкозонных областей КЯ с минимальной толщиной 1 МС. Относительно слабая интенсивность этих полос объясняется сравнительно небольшим процентным содержанием участков толщиной 1 МС в ямах с номинальной толщиной 1.5–2 МС, а также эффективной диффузией неравновесных носителей заряда в области ям большей толщины. Так, в структурах А, В с номинальной толщиной КЯ 1.5 МС максимальную интенсивность демонстрируют полосы, относящиеся к излучению из областей КЯ с толщиной 2 МС. Доминирование в спектрах ФЛ этих гетероструктур излучения из слоев толщиной 2 МС свидетельствует о том, что эти утолщения КЯ не являются крупными и находятся друг

от друга на расстоянии, сравнимом с длиной диффузии неравновесных носителей заряда. Длинноволновой (на 140 мэВ) сдвиг максимума этой полосы для гетероструктуры В относительно максимума для структуры А обусловлен уменьшением толщины барьера.

Для гетероструктуры С с номинальной толщиной КЯ 2 МС максимальную интенсивность имеет полоса, положение которой соответствует излучению из областей с толщиной КЯ 3 МС, а особенность на длинноволновом краю этой полосы – излучению из области ямы с толщиной 4 МС.

Некоторое различие между эффективной шириной запрещенной зоны и положением максимумов полос ФЛ объясняется энергией связи экситона, квантоворазмерными эффектами, связанными с ограничением размеров областей разной толщины [6–8], и флуктуациями расстояния между этими участками ям, что проявляется в перегибах на спектрах излучения (особенно хорошо это видно на спектрах ФЛ гетероструктуры А).

Таким образом, доминирующая полоса в спектре ФЛ гетероструктур с КЯ с номинальной толщиной 1.5 МС обусловлена рекомбинацией неравновесных носителей заряда в локализованных состояниях, создаваемых утолщениями КЯ до 2 МС, а для КЯ с номинальной толщиной 2 МС – утолщениями до 3 МС.

Обнаружение локализованных состояний в КЯ позволило предположить возможность получения в них оптического усиления и генерации излучения со сравнительно низким порогом даже при использовании оптической накачки с $\lambda = 213$ нм, для которой барьерный слой прозрачен и излучение поглощается непосредственно в КЯ. В гетероструктурах GaN/AlN, выращенных на темплейтах AlN/c-Al₂O₃, зеркала резонатора, создаваемые сколом, имеют плохое качество, и поэтому эксперименты проводились без второй грани резонатора, чтобы минимизировать влияние качества зеркал резонатора на пороговую интенсивность.

Наименьший порог стимулированного излучения показала гетероструктура В, для которой (см. рис.3) при повышении мощности накачки наблюдалось нелинейное возрастание интенсивности ФЛ, обусловленное локализованными состояниями толщиной 2 МС, и появление узкого пика излучения на $\lambda = 270$ нм на длинноволновом крыле полосы вблизи максимума интенсивности спонтанного излучения. Из зависимости интегральной интенсивности ФЛ от интенсивности возбуждения и наличия на ней узкого пика порог СИ был оценен в ~700 кВт/см² при комнатной температуре. Дальнейшее повышение интенсивности излучения накачки приводило к резкому увеличению интенсивности пика СИ, а затем к его уширению и длинноволновому сдвигу. СИ имело ТЕ поляризацию. Поскольку накачка гетероструктур происходила не через обкладочные и барьерные слои, а непосредственно в КЯ, порог возбуждения стимулированного излучения был относительно высоким и соответствовал порогу для лучших эпитаксиальных слоев AlGaIn [15].

Можно предположить, что при накачке в обкладочные и барьерные слои пороговая мощность накачки может быть существенно снижена – до значений, соответствующих лучшим мировым результатам [16]. Интересно отметить, что впервые низкороговая генерация излучения в спектральной области UVB (диапазон 315–280 нм по классификации международной комиссии по освещению (СIE)) была достигнута в КЯ AlGaIn, сформирован-

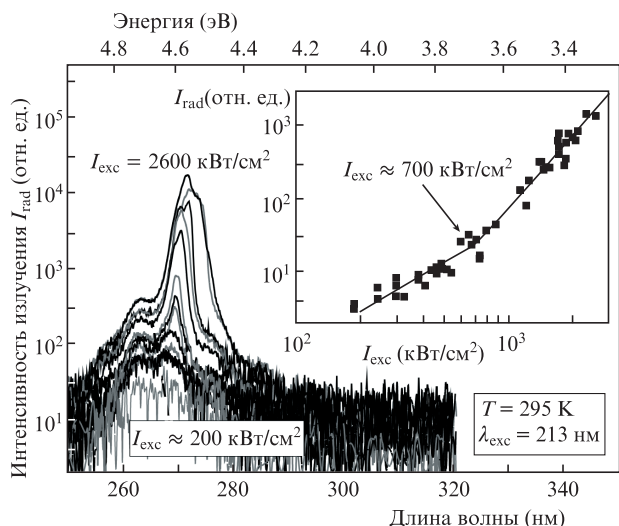


Рис.3. Спектры излучения, зарегистрированного с торца гетероструктуры В, при различных интенсивностях излучения поперечной накачки. На вставке интегральная интенсивность излучения с торца гетероструктуры в зависимости от интенсивности возбуждения.

ных именно вставками сверхтонких слоев GaN в AlGaN-матрице [17] (использовались вставки толщиной 0.8 МС).

Исследования гетероструктуры А показали, что характеристики СИ в ней аналогичны, но его длина волны, как и длина волны спонтанного излучения, была несколько меньше, чем для структуры В, и составляла 262 нм (рис.4). СИ также развивалось на длинноволновом крыле доминирующей полосы ФЛ вблизи ее максимума. Пороговая интенсивность возбуждения СИ составила 2500 кВт/см^2 . Как и в случае структуры В, СИ развивалось на локализованных состояниях в области КЯ толщиной 2 МС. Таким образом, уменьшение толщины барьерного слоя AlN с 6.66 до 5.33 МС привело к длинноволновому смещению пика СИ на 12 нм. Следовательно, варьируя толщину барьерного слоя, можно эффективно управлять (в небольших пределах) длиной волны гене-

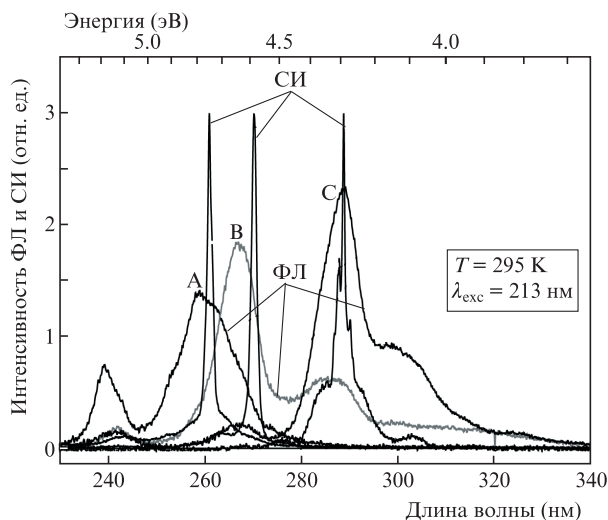


Рис.4. Спектры стимулированного излучения (при интенсивностях возбуждения, близких к пороговым) и спектры фотолюминесценции, зарегистрированные соответственно с торцов и с поверхностей гетероструктур А, В (2 МС GaN) и С (3 тМС GaN).

рации лазеров с активной областью из таких сверхтонких КЯ.

Стимулированное излучение в гетероструктуре С наблюдалось на еще большей длине волны, $\sim 290 \text{ нм}$ (рис.4). В этом образце СИ развивалось на локализованных состояниях, образованных утолщениями сверхтонких КЯ, составляющими 3 МС. Таким образом, максимальный сдвиг спектра СИ для локализованных состояний толщиной 3 МС относительно локализованных состояний толщиной 2 МС составил 28 нм (или 450 мэВ). Как и в предыдущих случаях, стимулированное излучение имело ТЕ поляризацию, а пороговая интенсивность возбуждения была равна 1000 кВт/см^2 , что немного превышает минимальный порог для локализованных состояний толщиной 2 МС.

По-видимому, повышенное значение порога возбуждения СИ для гетероструктуры А по сравнению с гетероструктурами В и С обусловлено, в первую очередь, худшим транспортом неравновесных носителей зарядов в локализованные состояния толщиной 2 МС, что проявляется в достаточно интенсивном излучении из областей толщиной 1 МС сверхтонкой КЯ.

4. Заключение

Таким образом, в работе с помощью плазменно-активированной молекулярно-пучковой эпитаксии продемонстрировано получение сверхтонких (монослойных) квантовых ям GaN в матрице AlN с локализованными состояниями, обусловленными флуктуациями толщины ям. Получено стимулированное излучение с $\lambda = 262 - 290 \text{ нм}$ и минимальной пороговой интенсивностью возбуждения 700 кВт/см^2 ($\lambda = 270 \text{ нм}$) в сверхтонких КЯ GaN/AlN, выращенных на подложках сапфира. Показано, что стимулированное излучение развивается на локализованных состояниях, обусловленных флуктуациями толщины сверхтонких квантовых ям GaN. Низкий (700 кВт/см^2) порог стимулированного излучения при накачке непосредственно в КЯ обусловлен эффективной диффузией неравновесных носителей заряда на локализованные состояния из областей ям меньшей толщины. Показано, что изменение толщин барьеров и КЯ позволяет варьировать длину волны стимулированного излучения и фотолюминесценции в широких пределах.

Работа в Институте физики им. Б.И.Степанова НАН Беларуси выполнялась при частичной поддержке заданий 2.1.01 и 2.1.04 ГКПНИ «Фотоника, опто- и микроэлектроника». Исследования в ФТИ им. А.Ф.Иоффе частично поддержаны РФФИ – БРИКС (№ 17-52- 27980089).

1. Kränkel C., Marzahl D.-T., Moglia F., Huber G., Metz P.W. *Las. Photon. Rev.*, **10**, 548 (2016).
2. Sawai S., Hosaka A., Kawauchi H., Hirokawa K., Kannari F. *Appl. Phys. Express*, **7**, 022702 (2014).
3. Луценко Е.В., Войнилович А.Г., Ржеуцкий В.Н., Павловский Н.В., Яблонский Г.П., Сорокин С.В., Гронин С.В., Седова И.В., Копьев П.С., Иванов С.В., Аланзи М., Хамидалдин А., Альямани А. *Квантовая электроника*, **43**, 418 (2013) [*Quantum Electron.*, **43**, 418 (2013)].
4. Sorokin S.V., Gronin S.V., Sedova I.V., Rakhlin M.V., Baidakova M.V., Kop'ev P.S., Vainilovich A.G., Lutsenko E.V., Yablonskii G.P., Gamov N.A., Zhdanova E.V., Zverev M.M., Ruvimov S.S., Ivanov S.V. *Semiconductors*, **49**, 331 (2015).
5. Alyamani A., Lutsenko E.V., Gronin S.V., Vainilovich A.G., Pavlovskii V.N., Yablonskii G.P., Tarasuk N.P., Aljohani M.,

- Aljariwi A., Sorokin S.V., Sedova I.V., Ivanov S.V. *Phys. Stat. Sol.*, **253**, 1490 (2016).
6. Islam S.M., Lee K., Verma J., Protasenko V., Rouvimov S., Bharadwaj S., Xing H., Jena D. *Appl. Phys. Lett.*, **110**, 041108 (2017).
7. Islam S.M., Protasenko V., Lee K., Rouvimov S., Verma J., Xing H., Jena D. *Appl. Phys. Lett.*, **111**, 091104 (2017).
8. Bayer D., Islam S.M., Jones C.M., Protasenko V., Jena D., Kioupakis E. *Appl. Phys. Lett.*, **109**, 241102 (2016).
9. Sun W., Tan C.-K., Tansu N. *Sci. Reports*, **7**, 11826 (2017).
10. Nechaev D.V., Aseev P.A., Jmerik V.N., Brunkov P.N., Kuznetsova Y.V., Sitnikova A.A., Ratnikov V.V., Ivanov S.V. *J. Cryst. Growth*, **378**, 319 (2013).
11. Jmerik V.N., Mizerov A.M., Nechaev D.V., Aseev P.A., Sitnikova A.A., Troshkov S.I., Kop'ev P.S., Ivanov S.V. *J. Cryst. Growth*, **354**, 188 (2012).
12. Jmerik V.N., Lutsenko E.V., Ivanov S.V. *Phys. Stat. Sol. A*, **210**, 439 (2013).
13. Jmerik V.N., Nechaev D.V., Ivanov S.V., in *Molecular Beam Epitaxy (MBE): From Research to Mass Production*, Ed. by M. Henini (Elsevier, 2018, ch. 8).
14. Kandaswamy P.K., Guillot F., Bellet-Amalric E., Monroy E., Nevou L., Tchernycheva M., Michon A., Julien F.H., Baumann E., Giorgetta F.R., Hofstetter D., Remmele T., Albrecht M., Birner S., Dang L.S. *J. Appl. Phys.*, **104**, 093501 (2008).
15. Li X.-H., Detchprohm T., Kao T.-T., Satter Md.M., Shen S.-C., Yoder P.D., Dupuis R.D., Wang S., Wei Y.O., Xie H., Fischer A.M., Ponce F.A., et al. *Appl. Phys. Lett.*, **105**, 141106 (2014).
16. Луценко Е.В., Ржеуцкий Н.В., Войнилович А.Г., Свитенков И.Е., Нагорный А.В., Шуленкова В.А., Яблонский Г.П., Алексеев А.Н., Петров С.И., Соловьёв Я.А., Петлицкий А.Н., Жигулин Д.В., Солодуха В.А. *Квантовая электроника*, **49**, 540 (2019) [*Quantum Electron.*, **49**, 540 (2019)].
17. Jmerik V.N., Mizerov A.M., Sitnikova A.A., Kop'ev P.S., Ivanov S.V., Lutsenko E.V., Tarasuk N.P., Rzhetskii N.V., Yablonskii G.P. *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 141112 (2010).