

Диагностика квантовых каскадных структур оптическими методами в ближнем инфракрасном диапазоне

© Д.И. Крыжков, С.В. Морозов, Д.М. Гапонова, С.М. Сергеев, Д.И. Курицын, К.В. Маремьянин[¶],
В.И. Гавриленко, Ю.Г. Садофьев*

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

* Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук,
119991, Москва, Россия

(Получена 25 апреля 2012 г. Принята к печати 25 апреля 2012 г.)

Выполнено исследование спектров и кинетики низкотемпературной межзонной фотолюминесценции эпитаксиальных структур квантовых каскадных лазеров терагерцового диапазона в условиях мощного импульсного возбуждения. При высоких уровнях возбуждения (600 мВт, диаметр пятна ~ 200 мкм) наблюдалась фотолюминесценция, отвечающая переходам как между основными, так и между возбужденными состояниями двух туннельно-связанных ям. Кинетические измерения показали, что при уменьшении длины волны наблюдения фотолюминесценции времена нарастания и спада сильно уменьшаются, и при длинах волн < 770 нм снижаются вплоть до временного разрешения измерительной системы.

1. Введение

Исследованию межзонной фотолюминесценции (ФЛ) и кинетики ее релаксации в гетеросистеме GaAs/AlGaAs посвящено большое количество работ (см., например, [1,2]). Как правило, исследовались гетероструктуры с одиночными квантовыми ямами (КЯ) или массивом КЯ GaAs/AlGaAs, разделенных туннельно-непрозрачными барьерами [3,4]. В настоящее время ведутся активные исследования по созданию и исследованию квантовых каскадных лазеров (ККЛ) терагерцового диапазона (60–250 мкм) на основе гетероструктур GaAs/AlGaAs. Хорошо известно, что в таких структурах наличие туннельной прозрачности между квантовыми ямами инжекционной и активной областей одного каскада при соответствующей энергетической диаграмме зонной структуры — одно из необходимых условий создания инверсии и лазерной генерации. В этом случае эффекты туннелирования между соседними ямами одного каскада могут существенно влиять на времена жизни носителей на уровнях размерного квантования в КЯ, что важно учитывать при последующем изготовлении терагерцовых ККЛ на основе таких структур. Время-разрешенные исследования ФЛ позволяют определять времена жизни носителей на основных и возбужденных состояниях в КЯ и могут быть полезны для предварительной диагностики соответствия выращенных структур расчетной энергетической диаграмме. Следует отметить, что за два с лишним десятилетия работ по созданию ККЛ вопросам межзонной люминесценции структур уделялось очень мало внимания. Отчасти это обусловлено тем, что принцип работы ККЛ основан на использовании межподзонных переходов. Авторам статьи известна лишь одна работа [5] по исследованию межзонной ФЛ в работающем ККЛ. В работе оптическими методами исследовалась зависимость электронной температуры на основных состояниях квантовых ям каскадов в зависимости от

мощности оптической накачки и токовой инжекции. В работе [6] при температуре $T = 20$ К в непрерывном режиме исследовалась межзонная катодолюминесценция структур GaAs/AlGaAs ККЛ терагерцового диапазона в отсутствие электрического смещения. Определенные значения наблюдаемых энергий оптических переходов в 2 (из 4) КЯ каскада использовались для оценки точности изготовления лазерной структуры.

Современные методы время-разрешенной спектроскопии позволяют изучать многие явления, такие как „экситонный“ переход Мотта, т. е. переход от экситонного механизма излучательной рекомбинации к рекомбинации электронно-дырочной плазмы при повышении уровня возбуждения [7], или зависимость времен нарастания и спада фотолюминесценции в δ -легированной КЯ от положения легирующего слоя [8].

В большинстве известных нам работ, выполненных в 1990-х годах, временное разрешение составляло несколько пикосекунд, что не позволяло разрешать малые времена и, например, определить напрямую время испускания оптического фона. Несмотря на то что лазерные гетероструктуры, в том числе квантово-каскадные структуры (ККС), интенсивно изучаются уже достаточно давно, для получения скоростей рекомбинации и термализации носителей часто используются объемные значения коэффициентов излучательной и оже-рекомбинации, а также время испускания оптических фононов. В работах [9,10] обсуждается неприемлемость такого подхода и предлагаются корректные способы определения коэффициентов рекомбинации в низкоразмерных гетероструктурах. К сожалению, аналитические выражения, полученные в работе [10], не сопоставляются с экспериментальными данными. В объемных полупроводниках процессы оже-рекомбинации имеют пороговый характер: ограничения накладываются законами сохранения энергии и импульса носителей [11]. Однако в гетероструктурах эти ограничения частично снимаются. Вследствие этого в низкоразмерных си-

[¶] E-mail: kirillm@ipm.sci-nnov.ru

стемах должны появляться беспороговые каналы оже-рекомбинации. Кроме того, в гетероструктурах вероятность оже-рекомбинации выше, чем в однородном полупроводнике, за счет большей локализации носителей [12]. По нашему мнению, определение коэффициентов рекомбинации в КЯ является не только прикладной задачей, но и имеет важное значение для дальнейшего исследования кинетики фотолуминесценции в низкоразмерных полупроводниках.

2. Методика эксперимента

В данной работе представлены результаты цикла исследований спектров и кинетики релаксации межзонной ФЛ в ближнем инфракрасном диапазоне гетероструктур GaAs/AlGaAs ККЛ терагерцового диапазона. Были исследованы две структуры #750 и #751, „сконструированные“ для генерации в области 4.4 и 5.2 ТГц соответственно. Структуры содержали 200 каскадов, каждый из

которых состоял из 2 туннельно-связанных КЯ (рис. 1). В этом случае одна КЯ — инжектор, вторая, в которой и возникает фотон при межподзонном переходе между электронными уровнями, — активная область. Для структуры #750 период составляет 40 нм, для #751 — 60 нм, общая толщина структур: #750 — 8 мкм, #751 — 12 мкм (рис. 1).

Исследования спектров и кинетики межзонной ФЛ проводились при температуре $T = 4.2$ К и при возбуждении мощным импульсным фемтосекундным перестраиваемым лазером с диапазоном перестройки длин волн 720–950 нм, частотой повторения импульсов 80 МГц, длительностью импульса 120 фс и средней мощностью до 900 мВт. Мощность оптической накачки варьировалась в диапазоне от 5 мкВт до 675 мВт (диаметр пятна ~ 200 мкм). Кинетика ФЛ измерялась с помощью стрик-камеры с временным разрешением ~ 15 пс (при этом длина волны возбуждающего надбарьерного излучения составляла 730 нм). Для измерения спектров использовался решеточный монохроматор с разрешением до 0.5 нм, оснащенный высокочувствительной ССД-камерой, которая регистрировала сигнал без временного разрешения.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 2 представлены результаты измерения спектров ФЛ структур #750 и #751. При малых мощностях оптического возбуждения (5 мкВт) основной пик люминесценции расщеплен в дублет узких линий (длины волн $\lambda = 806$ и 805 нм для #750, $\lambda = 813$ и 812 нм для #751). Энергетический зазор между линиями дублета составляет 2 мэВ. Расчет энергетического положения уровней размерного квантования электронов и дырок в каскаде терагерцового ККЛ в отсутствие электрического смещения показывает, что энергетический зазор между основными состояниями тяжелых и легких дырок в наиболее широкой квантовой яме инжектора близок к 7 мэВ. Отсутствуют квантовые уровни, способные привести к наблюдаемому расщеплению главного пика величиной 2 мэВ. В работе [6] авторы связывают наблюдаемое расщепление с сосуществованием экситонов двух типов, один из которых является свободным, а второй — связанным на донорной примеси.

При увеличении мощности возбуждения происходила „заливка“ первого уровня размерного квантования в КЯ, что приводило к некоторому уширению ФЛ и возникновению линий в спектре, отвечающих переходам между следующими уровнями размерного квантования электронов и дырок. Для структуры #750 при максимальной мощности накачки наблюдались два возбужденных уровня размерного квантования (802.5, 788.7 нм), для структуры #751 — тоже два (804, 795.6 нм) (рис. 2). Пик, наблюдаемый для структуры #750 вблизи 802.5 нм (1.545 эВ), связан с переходом с уровня 1-й подзоны размерного квантования электронов на уровень 1-й подзоны размерного квантования легких дырок во второй

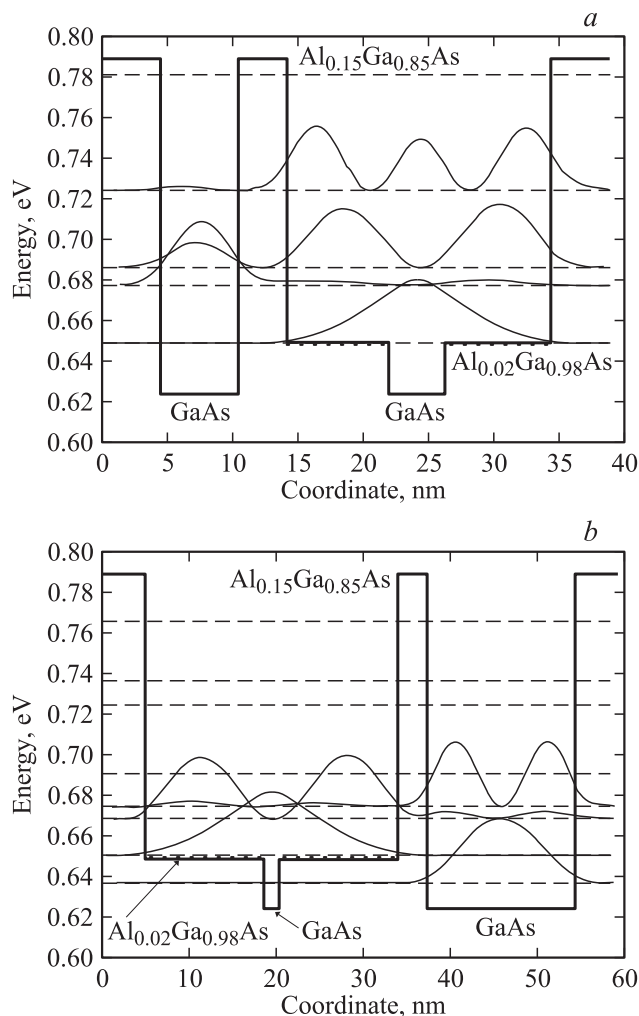


Рис. 1. Расчетная энергетическая диаграмма зоны проводимости одного периода квантовых каскадных структур: #750 (а), #751 (б). Штриховыми горизонтальными линиями показаны края подзон размерного квантования, сплошные кривые — квадраты волновых функций электронов.

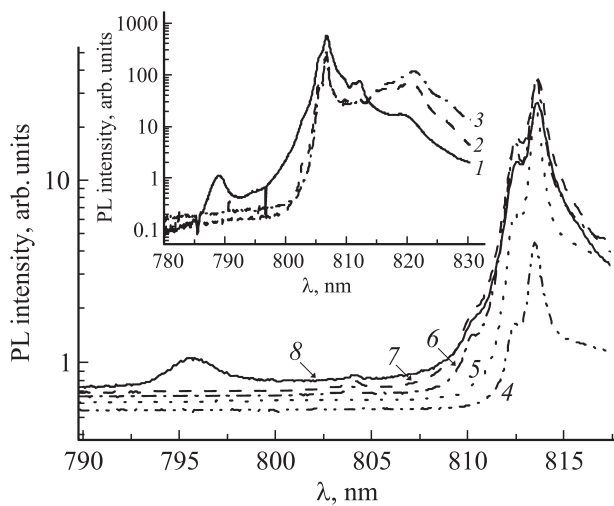


Рис. 2. Спектры фотолуминесценции (PL) квантово-каскадных структур #750 (1–3) и #751 (4–8) при мощностях возбуждения: 1 — 676 мВт, 2 — 0.4 мВт, 3 — 5 мкВт, 4 — 676 мВт, 5 — 151 мВт, 6 — 4.2 мкВт, 7 — 180 мкВт, 8 — 5 мкВт.

квантовой яме. Пик, наблюдаемый для структуры #750 вблизи 788.7 нм (1.572 эВ), и пик, наблюдаемый для структуры #751 вблизи 804 нм (1.5421 эВ), связаны с переходом с уровня 2-й подзоны размерного квантования электронов на уровень 2-й подзоны размерного квантования тяжелых дырок во второй квантовой яме. Для структуры #751 пик, наблюдаемый вблизи 795.6 нм (1.5584 эВ), связан с переходом с уровня 4-й подзоны размерного квантования электронов на уровень 3-й подзоны размерного квантования тяжелых дырок во второй квантовой яме.

Было проведено измерение кинетики ФЛ, соответствующей переходам как с основного, так и с возбужденных электронных уровней (кинетика ФЛ исследовалась при надбарьерном возбуждении, длина волны возбуждающего излучения составляла 730 нм). При малых мощностях возбуждения времена нарастания ФЛ составляли 65 и 25 пс, времена спада — 200 и 50 пс для структур #750 и #751 соответственно. При увеличении мощности накачки выше ~ 9 мВт происходило резкое изменение формы кинетических кривых: наблюдалось сильное увеличение времени нарастания вплоть до 500 пс и времени спада до значений, сильно больших 1 нс (рис. 3, приведены кривые только для структуры #750). Интересно, что обычно при увеличении мощности возбуждения в КЯ наблюдается уменьшение времени нарастания ФЛ, в то время как мы наблюдали обратную зависимость. Отметим также, что мощность, при которой происходит резкое изменение времени нарастания ФЛ (~ 9 мВт), значительно меньше мощности, при которой происходит изменение вида спектра ФЛ (~ 600 мВт). Увеличение времени нарастания сигнала ФЛ при надбарьерном возбуждении с увеличением мощности накачки мы связываем с подключением процесса диффузии носителей при заполнении КЯ, расположенных ближе к поверхности.

В этом случае КЯ, расположенные вблизи поверхности, полностью „заливаются“ носителями, и при дальнейшем увеличении мощности носители начинают диффундировать в глубь структуры и захватываются „удаленными“ квантовыми ямами. Таким образом, именно диффузия, процесс гораздо более длительный, чем межуровневая релаксация, определяет наблюдаемое время нарастания сигнала ФЛ.

Также при больших мощностях возбуждения (600 мВт) была измерена кинетика ФЛ, обусловленной переходами с возбужденных электронных состояний (надбарьерное возбуждение производилось также на длине волны 730 нм). Обнаружено, что при уменьшении длины волны наблюдения ФЛ от 806 нм для структуры #750 и 813 нм для #751 (длина волны основного перехода) наблюдается значительное уменьшение

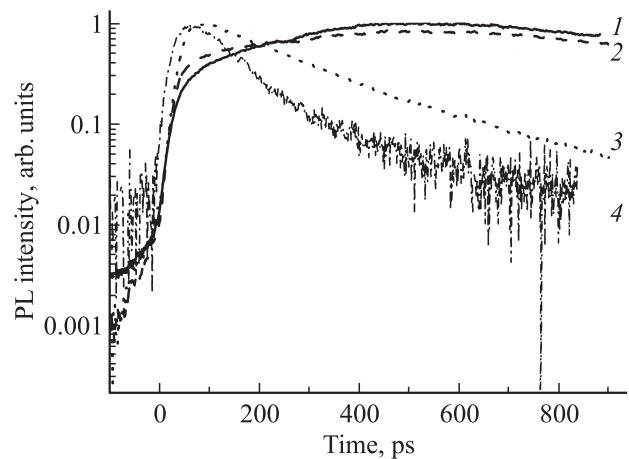


Рис. 3. Кинетики фотолуминесценции (PL) квантово-каскадной структуры #750 на длине волны 806 нм (соответствует энергии перехода с нижнего электронного уровня на верхний уровень тяжелых дырок) при мощностях возбуждения 676 (1), 9.3 (2), 0.4 мВт (3), 5 мкВт (4). Длина волны возбуждающего излучения 730 нм.

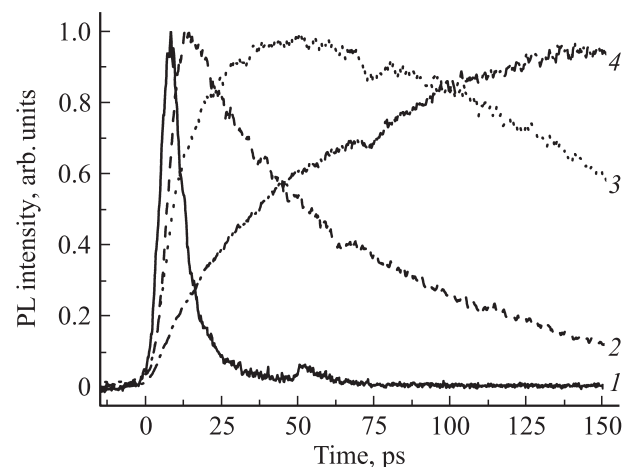


Рис. 4. Кинетики фотолуминесценции (PL) квантово-каскадной структуры #750 на длинах волн 770 (1), 790 (2), 798 (3), 806 нм (4). Мощность оптической накачки на длине волны 730 нм — 600 мВт.

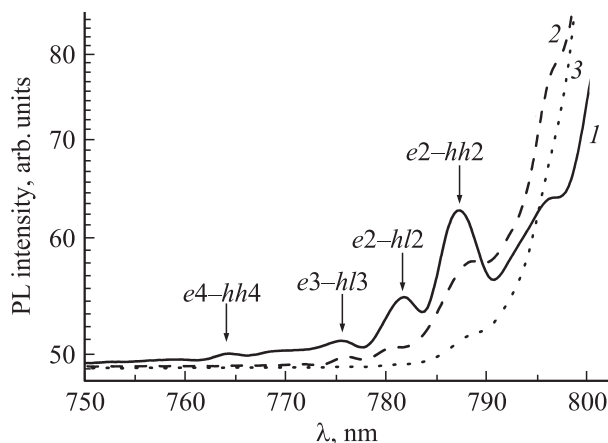


Рис. 5. Спектры фотолюминесценции (PL) квантово-каскадной структуры #750 в различные моменты времени от начала импульса накачки, пс: 1 — 7.4, 2 — 30, 3 — 100. Мощность оптической накачки на длине волны 730 нм — 600 мВт.

времен нарастания и спада ФЛ, которые при длине волны наблюдения менее 770 нм становятся меньше временного разрешения стрик-камеры (5 пс) (рис. 4, приведены кривые только для структуры #750).

Исследования кинетики время-разрешенной фотолюминесценции дают возможность наблюдать особенности на кривых сигнала ФЛ, связанные с люминесценцией при переходах между подзонами, отвечающими различным уровням размерного квантования в паре КЯ, которые не видны при интегральных измерениях спектров ФЛ. На рис. 5 представлены спектры ФЛ структуры #750, измеренные в различные моменты времени с начала импульса возбуждающего излучения. Из рисунка видно, что в момент времени 7.4 пс в спектре ФЛ присутствуют особенности, связанные с переходами, отмеченными на рисунке согласно расчетам энергий и волновых функций квантовых состояний электронов и дырок в паре квантовых ям. При этом в интегральном спектре ФЛ наблюдался только пик вблизи 788.7 нм, связанный с переходом $e2-hh2$, и пик вблизи 802.5 нм, связанный с переходом $e1-hl1$ (1.545 эВ) (рис. 2). В момент времени 30 пс пики ФЛ, отвечающие переходам между возбужденными состояниями двух туннельно-связанных ям, начинают „затухать“, а в момент времени 100 пс исчезают все особенности, кроме слегка заметного перехода $e2-hh2$.

4. Заключение

Таким образом, в работе было выполнено исследование спектров и кинетики низкотемпературной (4.2 К) межзонной ФЛ квантово-каскадных структур в условиях мощного импульсного возбуждения. При высоких уровнях возбуждения (600 мВт) наблюдалась ФЛ, отвечающая переходам как между основными, так и между возбужденными состояниями двух туннельно-связанных ям. Кинетические измерения показали, что при уменьшении длины волны наблюдения ФЛ времена

нарастания и спада сильно уменьшаются и при длинах волн < 770 нм снижаются вплоть до временного разрешения измерительной системы (~ 5 пс).

Работа проводилась при финансовой поддержке РФФИ (грант № 12-02-00783), Министерства образования и науки РФ (ГК № 16.518.11.7018, грант НШ-4756.2012.2) и Российской академии наук.

Список литературы

- [1] S. Adachi. J. Appl. Phys., **58**, R1 (1985).
- [2] L. Kappei, J. Szczytko, F. Morier-Genoud, B. Deveaud. Phys. Rev. Lett., **94**, 147 403 (2005).
- [3] K.W. Sun, T.S. Song, C.-K. Sun, J.C. Wang, S.Y. Wang, C.P. Lee. Physica B, **272**, 387 (1999).
- [4] W.H. Knox, C. Hirliman, D.A.B. Miller, Jagdeep Shah, D.S. Chemla, C.V. Shank. Phys. Rev. Lett., **56**, 1191 (1986).
- [5] M.S. Vitiello, G. Scamarcio, V. Spagnolo, B.S. Williams, S. Kumar, Q. Hu, J.L. Reno. Appl. Phys. Lett., **86**, 111 115 (2005).
- [6] Ю.Г. Садофьев, N. Samal, В.И. Козловский. *Тр. XV Международной симп. Нанотехника и нанотехнологии* (Н. Новгород, Россия, 2011) т. 2, с. 522.
- [7] L. Kappei, J. Szczytko, F. Morier-Genoud, B. Deveaud. Phys. Rev. Lett., **94**, 147 403 (2005).
- [8] L.V. Dao, M. Gal, G. Li, C. Jagadish. J. Appl. Phys., **87**, 3896 (2000).
- [9] P. Blood. IEEE J. Quant. Electron., **36**, 354 (2000).
- [10] Л.В. Асрян. Квантовая электроника, **35**, 117 (2005).
- [11] В.Н. Абакумов, И.В. Перель, И.Н. Ясевич. *Безызлучательная рекомбинация в полупроводниках* (СПб., Изд-во ПИЯФ РАН, 1997).
- [12] Л.В. Данилов, Г.Г. Зегря. ФТП, **42** (5), 566 (2008).

Редактор Л.В. Шаронова

Diagnostics of quantum cascade structures by optical methods in the near infrared range

D.I. Kryzhkov, S.V. Morozov, D.M. Gaponova, S.M. Sergeev, K.I. Kuritsyn, K.V. Maremyanin, V.I. Gavrilenko, Yu.G. Sadof'ev*

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

* P.N. Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Sciences, 119991, Moscow, Russia

Abstract Spectra and kinetics of a low-temperature interband photoluminescence of epitaxial structures of quantum cascade lasers has been investigated in the conditions of powerful pulse excitation. At high levels of excitation (600 mW, diameter of spot ~ 200 μm) the photoluminescence conforming to transitions as between ground, so between the excited states of two tunnel-coupled quantum wells was observed. Studies of photoluminescence kinetics showed that as the wavelength of observation becomes shorter both rise and decay times heavily decreased approaching the time resolution of the measuring system at wavelengths < 770 nm.