

# Многослойные гетероструктуры для квантово-каскадных лазеров терагерцового диапазона

© А.Е. Жуков<sup>+×</sup>, Г.Э. Цырлин<sup>+\*×</sup>, Р.Р. Резник<sup>+‡</sup>, Ю.Б. Самсоненко<sup>+\*</sup>, А.И. Хребтов<sup>+</sup>,  
М.А. Калитеевский<sup>+•</sup>, К.А. Иванов<sup>+•</sup>, Н.В. Крыжановская<sup>+</sup>, М.В. Максимов<sup>+</sup>, Ж.И. Алфёров<sup>+×</sup>

<sup>+</sup> Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>×</sup> Санкт-Петербургский научный центр Российской академии наук, 199034 Санкт-Петербург, Россия

<sup>\*</sup> Институт аналитического приборостроения Российской академии наук, 190103 Санкт-Петербург, Россия

<sup>‡</sup> Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, 195251 Санкт-Петербург, Россия

<sup>•</sup> Университет ИТМО, 197101 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Zhukale@gmail.com

(Получена 27 октября 2015 г. Принята к печати 2 ноября 2015 г.)

Приведены результаты исследования структурных и оптических свойств гетероструктур GaAs/AlGaAs, содержащих 228 каскадов, синтезированных методом молекулярно-пучковой эпитаксии, а также результаты моделирования межзонных оптических переходов и переходов между уровнями каскада.

## 1. Введение

Источники терагерцового (ТГц) диапазона частот востребованы для различных применений как гражданского, так и специального назначения, включая спектроскопию, в том числе определение следовых количеств различных веществ, создание систем формирования изображений объектов, скрытых для обычных оптических систем, широкополосные системы связи и т.д. Одной из основных проблем является отсутствие компактных достаточно мощных хроматических источников излучения этого спектрального диапазона. Наиболее перспективным кандидатом для реализации ТГц-систем различного назначения в настоящее время считается квантово-каскадный лазер (ККЛ) [1,2]. Первые ККЛ ТГц диапазона были реализованы в начале 2000-х гг. [3,4]. К настоящему времени созданы подобные ТГц ККЛ, работающие вплоть до 200 К [5], обладающие при температуре жидкого азота мощностью излучения несколько десятков мВт. Также были реализованы работающие при комнатной температуре лазерные источники терагерцового излучения [6], основанные на внутризонном усилении разностной частоты двух ККЛ среднего инфракрасного (ИК) диапазона [7].

Несмотря на очевидную научную и практическую значимость ККЛ, в нашей стране эта технология начала развиваться лишь несколько лет назад, когда были продемонстрированы ККЛ, синтезированные методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ), излучающие на длине волны около 5–6 мкм [8–10], а также синтезированные методом эпитаксии из металлоорганических соединений на длину волны ~ 10 мкм [11]. В то же время о создании в России ТГц ККЛ до сих пор не сообщалось.

В настоящей работе нами исследована возможность синтеза методом МПЭ многопериодных многослойных

гетероструктур, предназначенных для создания ККЛ частотного диапазона около 3 ТГц. Нами осуществлена эпитаксия двух многослойных гетероструктур GaAs/AlGaAs, различающихся толщинами слоев GaAs, исследованы их структурные и оптические свойства методами рентгеновской дифракции и спектроскопии фотолюминесценции соответственно, проведен расчет межзонных оптических переходов в несмещенной структуре и внутризонных переходов при приложении прямого смещения.

## 2. Эпитаксиальный синтез

В качестве базовой конструкции квантово-каскадного лазера ТГц диапазона в настоящей работе была выбрана многослойная гетероструктура с туннельно-прозрачными барьерами, в которой ТГц излучение возникает в результате переходов электронов между уровнями с соответствующей энергией перехода. Достоинством таких ТГц ККЛ, использующих принцип прямой генерации, является то, что они могут быть реализованы в системе материалов AlGaAs/GaAs на подложках GaAs, что, с одной стороны, позволяет избежать проблем, связанных с рассогласованием постоянных кристаллических решеток эпитаксиальных слоев и подложки, а с другой — обеспечивает более высокую механическую прочность и меньшую цену подложек по сравнению с гетероструктурами для ККЛ в системе материалов InGaAs/InAlAs на подложках InP. За основу была взята конструкция многопериодной гетероструктуры, описанная в [5], на которой была получена лазерная генерация в температурном диапазоне 8–200 К на частоте 2.75–3.22 ТГц.

Эпитаксиальные структуры, обозначенные нами ККЛ-1 и ККЛ-2, были синтезированы методом молеку-

лярно-пучковой эпитаксии в установке МПЭ Riber 21 с использованием твердотельного источника мышьяка. Рост осуществлялся на полуизолирующих подложках GaAs(100) в мышьяк-стабилизированных условиях. Особое внимание уделялось точности установки скоростей роста и поддержанию их стабильности во время формирования активной области. Калибровка скоростей роста проводилась на отдельном образце непосредственно перед ростом лазерных структур. Скорости роста по GaAs и AlAs были установлены для структуры ККЛ-1 равными 0.85 и 0.15 монослоя в секунду (МС/с) соответственно, для ККЛ-2 равными 0.7 и 0.105 МС/с. Для уменьшения толщины переходных слоев использовались специальные высокоскоростные заслонки. В нашем случае время срабатывания заслонок алюминиевого и галлиевого источников не превышало 0.15 с.

На буферном слое GaAs был осажден стоп-слой  $Al_{0.8}Ga_{0.2}As$  толщиной 200 нм. Активная область содержала 228 периодов, каждый из которых имел структуру, описанную в табл. 1. Каждый каскад содержит двойную квантовую яму GaAs/AlGaAs, между уровнями которой происходит лазерный переход, и более широкую квантовую яму, служащую инжектором/экстрактором электронов. Снизу и сверху активная область была ограничена контактными слоями GaAs:Si ( $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) толщиной 75 и 50 нм соответственно. Средняя часть слоев инжектора/экстрактора также имела легирование n-типа с концентрацией  $\sim 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ .

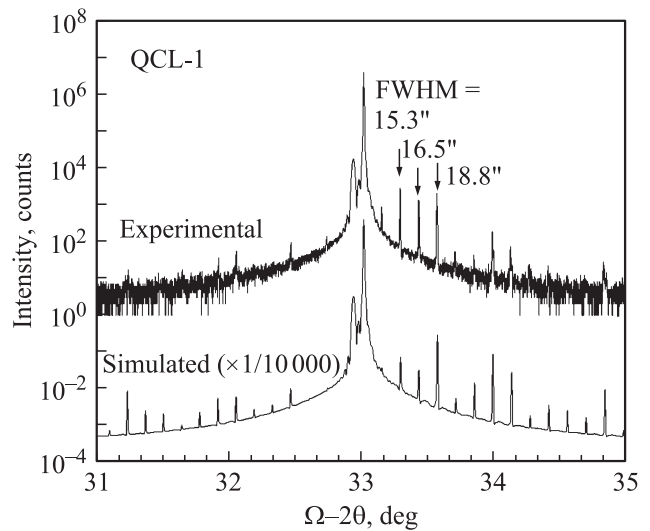
При синтезе методом МПЭ гетероструктур, предназначенных для генерации излучения ТГц диапазона, толщина которых составляет  $\sim 10$  мкм, может тем не менее уменьшаться скорость роста GaAs вследствие истощения источника галлия в процессе длительного осаждения. По этой же причине может иметь место невозпроизводимость толщин слоев от структур к структуре. Чтобы прояснить, насколько велико влияние точного поддержания скорости осаждения арсенида галлия, нами были синтезированы и исследованы две структуры, ККЛ-1 и ККЛ-2, сконструированные таким образом, что толщины всех слоев GaAs в ККЛ-1 на 15% меньше толщин соответствующих слоев в ККЛ-2 (табл. 1).

### 3. Структурные свойства

Структурные свойства эпитаксиальных образцов исследовались с помощью рентгеновской дифракции высокого разрешения (XRD). Использовался дифракто-

**Таблица 1.** Структурные параметры многослойных гетероструктур

Структура	Каскад ( $Al_{0.15}Ga_{0.85}As/GaAs$ ), толщины слоев, Å	Толщина каскада, Å	
		номинальная	XRD
ККЛ-1	43/75.6/24.6/69.3/41/136	389.5	383
ККЛ-2	43/89/24.6/81.5/41/160	439.1	436



**Рис. 1.** Рентгеновская кривая качания структуры ККЛ-1 вблизи рефлекса GaAs (004), а также модельная кривая.

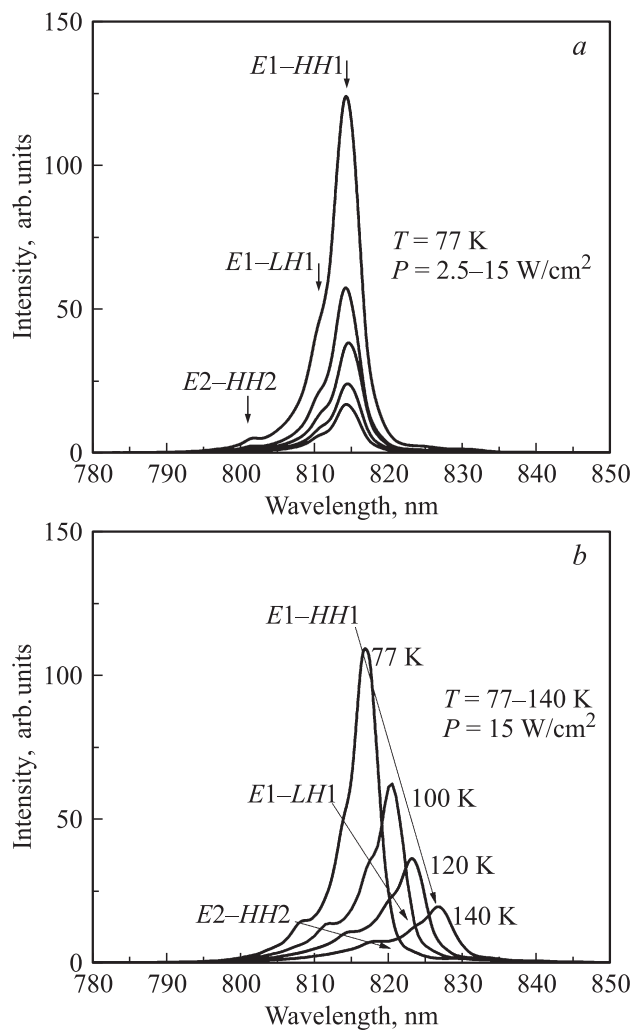
метр D8 DISCOVER Bruker AXS (длина волны излучения  $\lambda = 0.15406$  нм) с полушириной первичного пучка  $< 12$  угл. сек. в режиме  $\Omega-2\theta$ -сканирования.

На рис. 1 показана кривая качания вблизи симметричного рефлекса (004) GaAs, измеренная на структуре ККЛ-1. Ширина на половине высоты сателлитных пиков (FWHM), обусловленных периодическим повторением каскадов ККЛ, составляет 15–19 угл. сек. Отметим, что полная ширина сверхструктурных пиков в модельном спектре с учетом изгиба структуры под действием упругих напряжений составляет 22.4 угл. сек. Это означает, что в исследуемых структурах можно пренебречь как возможным влиянием неточности поддержания толщины каскада в пределах всей структуры, так и шероховатостью гетероинтерфейсов, подтверждая правильность выбора технологических параметров при синтезе активной области.

Расчетная кривая качания для модельной структуры, обеспечивающей наилучшее согласие с экспериментальными данными, также показана на рис. 1. Толщина одного каскада, определенная с помощью моделирования рентгеновских кривых качания, составила 38.3 и 43.6 нм для структур ККЛ-1 и ККЛ-2 соответственно, вместо ожидаемых значений 38.95 и 43.91 нм (табл. 1). Таким образом, расхождение ожидаемых и экспериментально измеренных значений периода составило 1.7 и 0.7% в структурах ККЛ-1 и ККЛ-2 соответственно.

### 4. Оптические свойства

В лазерах ближнего и среднего ИК диапазонов, работающих на межзонных оптических переходах, длина волны лазерной генерации оказывается близкой к длине волны фотолюминесценции активной области. Использование средств люминесцентной экспресс-диагностики,



**Рис. 2.** Спектры фотолюминесценции структуры ККЛ-1 при 77 К и варьируемой мощности возбуждения (а), ККЛ-2 при фиксированной мощности и различных температурах измерения (б).

которые могут быть применены в отношении эпитаксиальных структур до проведения процессов, связанных с изготовлением прибора, существенно упрощает обработку технологии таких лазеров, позволяя в случае необходимости внести коррективы в конструкцию лазерной структуры.

В случае же ТГц ККЛ подобные прямые методы экспресс-определения ожидаемой длины волны генерации отсутствуют. В связи с этим представляется эффективным сопоставление результатов измерения энергий электронно-дырочных оптических переходов и их сопоставление с результатами расчета. В случае их хорошего согласия можно полагать, что и энергии внутризонных переходов между электронными уровнями каскадов также будут совпадать с предсказанными по результатам моделирования.

Оптические свойства исследовались методом спектроскопии фотолюминесценции (ФЛ). Измерения проводи-

лись в температурном диапазоне  $T = 77\text{--}300\text{ К}$ . Оптическая накачка осуществлялась с помощью YAG:Nd-лазера, работающего на второй гармонике в непрерывном режиме (длина волны  $\lambda = 527\text{ нм}$ ), плотность мощности накачки варьировалась от 2.5 до 15 Вт/см<sup>2</sup>. Сигнал ФЛ детектировался с помощью монохроматора FHR 1000 и одноканального охлаждаемого Si-фотодетектора.

На рис. 2,а представлены спектры ФЛ структуры ККЛ-1, измеренные при 77 К и различной мощности возбуждения в диапазоне  $P = 2.5\text{--}15\text{ Вт/см}^2$ , а на рис. 2,б — спектры структуры ККЛ-2, измеренные при фиксированной плотности мощности (15 Вт/см<sup>2</sup>) и различных температурах в диапазоне  $T = 77\text{--}140\text{ К}$ . В спектрах обеих структур можно различить три пика излучения, которые были идентифицированы как переходы между первым электронным уровнем и первым уровнем тяжелых дырок ( $E1\text{--}HH1$ ), первым электронным уровнем и первым уровнем легких дырок ( $E1\text{--}LH1$ ), вторым электронным уровнем и вторым уровнем тяжелых дырок ( $E2\text{--}HH2$ ). Такая интерпретация наблюдаемых пиков находится в согласии с тем, что с ростом уровня возбуждения относительная интенсивность более коротковолновых пиков растет, а при изменении температуры спектральное положение пиков сдвигается в соответствии с температурным ходом ширины запрещенной зоны GaAs. Отметим, что интенсивная люминесценция на длине волны основного оптического перехода  $E1\text{--}HH1$  наблюдалась в обеих структурах вплоть до комнатной температуры.

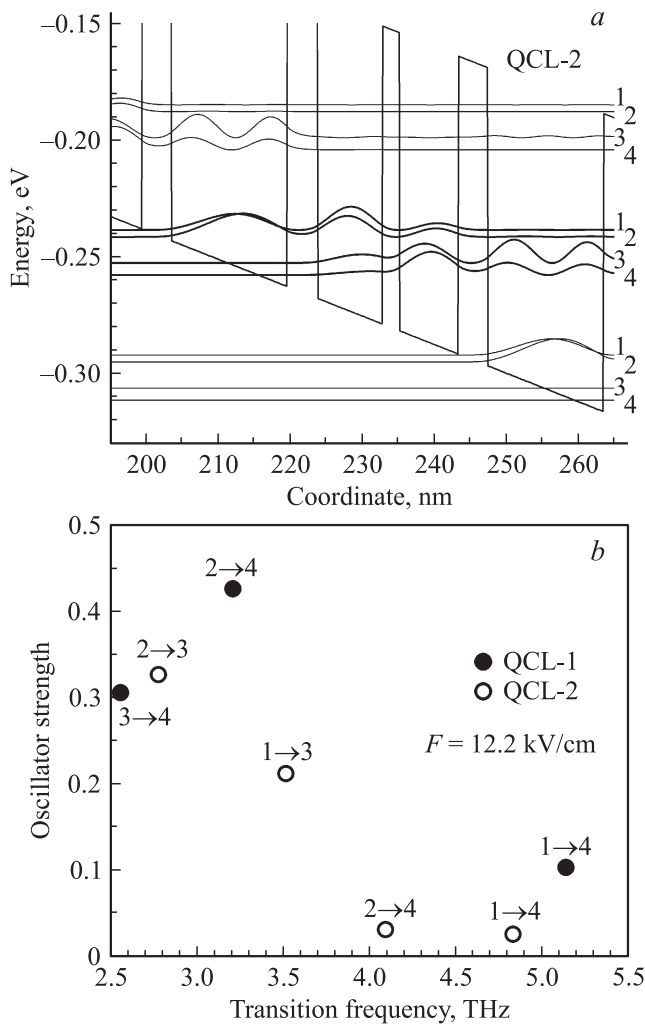
## 5. Расчет уровней энергии

Нами был выполнен расчет уровней размерного квантования. Моделирование проводилось методом матрицы переноса. Моделирование выполнялось для структуры, содержащей 10 периодов, каждый из которых соответствовал описанию, приведенному в табл. 1. На обоих концах модельной структуры мы полагали бесконечные потенциальные барьеры. Ширина запрещенной зоны GaAs при 77 К полагалась равной 1508 мэВ. Вычисленная энергия оптических переходов была затем уменьшена на 6 мэВ, чтобы учесть энергию донорного уровня в GaAs.

В табл. 2 сведены экспериментальные и расчетные значения энергий межзонных оптических переходов для температуры 77 К. Как видно, для большинства переходов расхождение результатов вычислений с данными эксперимента не превосходит 1 мэВ.

**Таблица 2.** Энергии межзонных оптических переходов при 77 К

Структура	Энергия перехода, мэВ (расчет/эксперимент)		
	$E1\text{--}HH1$	$E1\text{--}LH1$	$E2\text{--}HH2$
ККЛ-1	1522.2/1522.8	1529.2/1529.1	1546.8/1546.1
ККЛ-2	1517.7/1517.9	1523.1/1522.8	1535.5/1533.7



**Рис. 3.** Зонная диаграмма смещенной структуры ККЛ-2 (QCL-2) (a) и соотношение между силой осциллятора и частотой переходов для ККЛ-1 (QCL-1) и ККЛ-2 (QCL-2) (b).

С использованием метода матрицы переноса нами также был выполнен расчет электронных уровней и соответствующих им волновых функций. С помощью золотого правила Ферми был выполнен расчет силы осциллятора для переходов между уровнями, возникающих в прямосмещенных многопериодных гетероструктурах [12]. На рис. 3, a приведен профиль потенциала для ККЛ-2 при приложении электрического поля напряженностью  $F = 12.2 \text{ кВ/см}$ . Также на рисунке показаны квадраты волновых функций и уровни размерного квантования (1–4), которые участвуют в процессе генерации излучения ТГц диапазона.

Полученные нами расчетные значения энергий лазерных переходов  $E_{13}$  и  $E_{23}$ , усредненные для 8 средних каскадов, составляют 14.54 и 11.49 мэВ (3.52 и 2.78 ТГц соответственно), разница уровней энергии в экстракторе  $E_{41}$  равна 34.3 мэВ. Эти значения находятся в хорошем согласии с данными, приведенными для аналогичной структуры в работе [5]:  $E_{13} = 14.2$ ,  $E_{23} = 11.5$ ,  $E_{41} = 34.6$  мэВ.

На рис. 3, b обобщены расчетные данные по частоте перехода и силе осциллятора для различных оптических переходов, рассчитанных для структур ККЛ-1 и ККЛ-2. Как видно, в структуре ККЛ-1 наиболее вероятным является переход  $2 \rightarrow 4$  с частотой 3.21 ТГц. При этом сила осциллятора для такого перехода, равная согласно расчетам 0.425, оказывается в  $\sim 2$  раза выше силы осциллятора (0.211) для перехода  $1 \rightarrow 3$  в структуре ККЛ-2, обладающего близкой частотой 3.52 ТГц. Переходы, имеющие частоту  $\sim (2.6\text{--}2.8)$  ТГц, обладают в обеих структурах схожей силой осциллятора  $\sim 0.3$ .

## 6. Заключение

Таким образом, методом молекулярно-пучковой эпитаксии синтезированы многопериодные (228 каскадов,  $\sim 10 \text{ мкм}$ ) эпитаксиальные структуры GaAs/AlGaAs, предназначенные для создания квантово-каскадных лазеров терагерцового диапазона. Экспериментальное значение толщины каскада соответствует ожидаемому с точностью лучше, чем 2%. При этом угловая ширина сверхструктурных пиков на рентгеновской кривой качания не превосходит 20 угл. сек. Исследования спектров фотолюминесценции показали хорошее согласие (в пределах 1 мэВ) энергий межзонных оптических переходов с расчетными значениями. При этом изменение толщины GaAs-слоев на 15% приводит к надежно детектируемому сдвигу положений оптических переходов. Это означает, что для оценки положения уровней энергии в таких сложных структурах могут быть использованы различные оптические методики экспресс-диагностики, работающие в ближнем ИК диапазоне. Расчет ТГц переходов в прямосмещенных структурах показал возможность сдвига частоты излучения в диапазоне вблизи 3 ТГц при сохранении высокой вероятности переходов с помощью масштабирования толщины квантовых ям в каскаде.

В настоящее время осуществляется отработка технологии формирования волноводов типа металл-полупроводник-металл с целью создания лазерных диодов из исследованных в настоящей работе структур.

Работа выполнена при поддержке Программы фундаментальных исследований Президиума РАН „Наноструктуры: физика, химия, биология, основы технологий“.

Авторы выражают благодарность ООО „Коннектор-Оптикс“ за помощь в проведении рентгеновских измерений. М. Калитеевский выражает благодарность проекту FP7 ITN NOTEDEV.

## Список литературы

- [1] Р.Ф. Казаринов, Р.А. Сурис. ФТП, **5** (4), 797 (1971).
- [2] J. Faist, F. Capasso, D.L. Sivco, A.L. Hutchinson, A.Y. Cho. Science, **264**, 553 (1994).
- [3] R. Koehler, A. Tredicucci, F. Beltram, H.E. Beere, E.H. Linfield, A.G. Davies, D.A. Ritchie, R.C. Iotti, F. Rossi. Nature, **417**, 156 (2002).

- [4] M. Rochat, L. Ajili, H. Willenberg, J. Faist, H. Beere, G. Davies, E. Linfield, D. Ritchie. *Appl. Phys. Lett.*, **81** (8), 1381 (2002).
- [5] S. Fatholouloumi, E. Dupont, C.W.I. Chan, Z.R. Wasilewski, S.R. Laframboise, D. Ban, A. Matyas, C. Jirauschek, Q. Hu, H.C. Liu. *Opt. Express*, **20** (4), 3866 (2012).
- [6] Q.Y. Lu, N. Bandyopadhyay, S. Slivken, Y. Bai, M. Razeghi. *Appl. Phys. Lett.*, **104**, 22 1105 (2014).
- [7] M.A. Belkin, Q.J. Wang, C. Pflugl, A. Belyanin, S.P. Khanna, A.G. Davies, E.H. Linfield, F. Capasso. *IEEE J. Select. Topics Quant. Electron.*, **15** (3), 952 (2009).
- [8] В.В. Мамутин, В.М. Устинов, J. Boettcher, H. Kuenzel. *ФТП*, **44** (7), 995 (2010).
- [9] А.Ю. Егоров, П.Н. Брунков, Е.В. Никитина, Е.В. Пирогов, М.С. Соболев, А.А. Лазаренко, М.В. Байдакова, Д.А. Кириленко, С.Г. Конников. *ФТП*, **48** (12), 1640 (2014).
- [10] А.Ю. Егоров, А.В. Бабичев, Л.Я. Карачинский, И.И. Новиков, Е.В. Никитина, М. Tchernycheva, А.Н. Софронов, Д.А. Фирсов, Л.Е. Воробьев, Н.А. Пихтин, И.С. Тарасов. *ФТП*, **49** (11), 1574 (2015).
- [11] И.И. Засавицкий, М.Д. Кузьмичев, А.Н. Зубов, А.А. Мармалок, М.А. Ладугин, А.А. Падалица, А.В. Лобинцов, Ю.В. Курнявко, С.М. Сапожников, Т.А. Багаев, А.Ю. Андреев, В.А. Симаков, С.С. Зарубин. *XII Росс. конф. по физике полупроводников* (Звенигород, 2015) доклад ЧТ Б2-1у.
- [12] M.A. Kaliteevski, K.A. Ivanov, G. Pozina, A.J. Gallant. *Sci. Rept.*, **4**, 5444 (2014).

Редактор Л.В. Шаронова

## Multilayer heterostructures for quantum-cascade lasers of terahertz frequency range

A.E. Zhukov<sup>+×</sup>, G.E. Cirlin<sup>+\*×</sup>, R.R. Reznik<sup>+‡</sup>,  
Yu.B. Samsonenko<sup>+\*</sup>, A.I. Khrebtov<sup>+</sup>,  
M.A. Kaliteevski<sup>+•</sup>, K.A. Ivanov<sup>+•</sup>,  
N.V. Kryzhanovskaya<sup>+</sup>, M.V. Maximov<sup>+</sup>,  
Zh.I. Alferov<sup>+×</sup>

<sup>+</sup> St. Petersburg National Research Academic University,

Russian Academy of Sciences,  
194021 St. Petersburg, Russia

<sup>×</sup> St. Petersburg Scientific Center of RAS,  
199034 St. Petersburg, Russia

<sup>\*</sup> Institute for Analytical Instrumentation,  
Russian Academy of Sciences,

190103 St. Petersburg, Russia

<sup>‡</sup> Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University,  
195251 St. Petersburg, Russia

<sup>•</sup> ITMO University,

197101 St. Petersburg, Russia

**Abstract** Results are presented on structural and optical properties of GaAs/AlGaAs heterostructures comprising 228 quantum cascades grown by molecular-beam epitaxy as well as on simulation of interband optical transitions and terahertz transitions between cascade energy levels.