

УДК 538.971+537.86.029.65/79

*И.А. ПРУДАЕВ**, *С.Ю. САРКИСОВ**, *О.П. ТОЛБАНОВ**, *А.В. КОСОБУЦКИЙ**,**

ГЕНЕРАЦИЯ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В СВЕТОДИОДНЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУРАХ СО МНОЖЕСТВЕННЫМИ КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ InGaN/GaN ПРИ ДВУХФОТОННОМ ВОЗБУЖДЕНИИ ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ¹

Представлены результаты экспериментов по генерации терагерцового излучения в нитридных светодиодных структурах при оптическом возбуждении ультракороткими лазерными импульсами. Исследованы зависимости эмиссионных спектров от структурных параметров образцов и интенсивности лазерных импульсов. Установлено увеличение амплитуды и смещение частотных спектров терагерцовых импульсов в область более высоких частот с ростом числа квантовых ям в гетероструктуре.

Ключевые слова: эмиссионная терагерцовая спектроскопия, светодиодная гетероструктура, нитрид галлия, квантовые ямы.

Введение

Исследованиям в области генерации, детектирования и применений терагерцового излучения в настоящее время посвящено большое количество работ. В то время как возможности дистанционных приложений, использующих излучение в области частот 0.2–5 ТГц, из-за сильного ослабления в атмосфере представляются неочевидными, имеется множество лабораторных применений. В частности, применение методов импульсной терагерцовой спектроскопии во временном представлении (THz-TDS) и эмиссионной терагерцовой спектроскопии позволяет исследовать процессы в полупроводниковых структурах, связанные с динамикой носителей заряда и решеточных колебаний.

В случае эмиссионной терагерцовой спектроскопии анализируются спектры генерируемого исследуемым веществом терагерцового излучения при возбуждении лазерными импульсами. Механизмы генерации терагерцовых импульсов от поверхностей объемных полупроводников установлены и достаточно хорошо описываются имеющимися моделями. В гетероструктурах механизмы могут быть более сложными [1–5] и представляют большой интерес, так как связаны с фундаментальными свойствами структур, многие из которых могут быть рассчитаны с применением современных квантово-механических методов. В работах [2, 3] в качестве основной причины возникновения генерации электромагнитного излучения в терагерцовом диапазоне частот при возбуждении гетероструктур InGaN/GaN оптическими импульсами фемтосекундной длительности предположено динамическое экранирование встроенных пьезополей фотовозбужденными носителями заряда. Амплитуда генерируемого терагерцового импульса в значительной степени определяется напряженностью пьезоэлектрического поля в структуре. По данным авторов [4] в гетероструктурах InGaN/GaN сильные встроенные поля и высокая концентрация носителей заряда в квантовых ямах могут приводить к более эффективной генерации терагерцового излучения по сравнению с генерацией от поверхности объемных полупроводников. При этом в литературе нет однозначного мнения относительно решающего значения динамической экранировки пьезополей [5]. Эмиссия терагерцового излучения возможна непосредственно за счет быстрого возникновения и релаксации неравновесной поляризации в квантовых ямах. Вероятно, параметры структур и условия возбуждения определяют режим протекания процессов терагерцовой эмиссии.

В настоящей работе исследуется генерация терагерцового излучения при лазерном возбуждении нитридных светодиодных гетероструктур с параметрами и при условиях возбуждения, отличающимися от описанных в [2–5]. При этом исследуемые структуры являются перспективными материалами современной оптоэлектроники, позволяющими создавать мощные светодиоды с широким спектром применения. Сильные встроенные поля (до 3 МВ/см), характерные для нитридных

¹ Работа выполнена при поддержке госзадания Минобрнауки РФ (проект № 3.1206.2014).

ных гетероструктур, являются одной из основных причин снижения коэффициента полезного действия светоизлучающих диодов на их основе. В этой связи исследования новых возможностей характеристики встроенных пьезополей также представляют интерес.

Схема эксперимента и исследованные образцы

Состав исследованных в настоящей работе образцов светодиодных гетероструктур показан на рис. 1. Образцы № 1–3 содержали соответственно 1, 5 и 10 квантовых ям и были специально выращены методами химического осаждения из газовой фазы (MOCVD) на (0001) поверхности сапфировой подложки. Содержание In в квантовых ямах InGaN было на уровне 12 %.

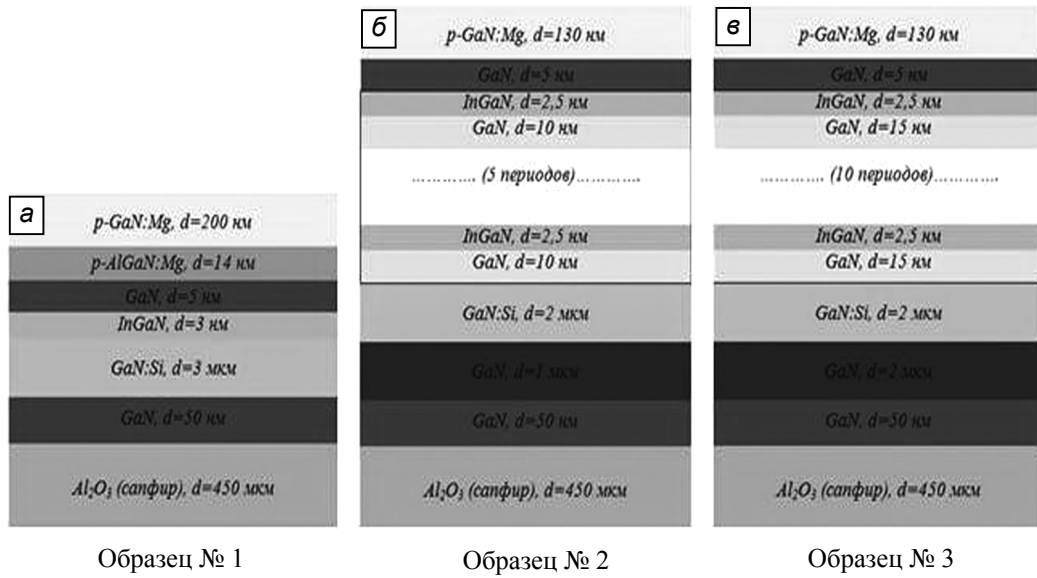


Рис. 1. Исследованные образцы светодиодных гетероструктур: с одной (а), пятью (б) и десятью (в) квантовыми ямами

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 2 и в основном представляет собой стандартную схему THz-TDS-спектрометра. Для возбуждения структур использовался фемтосекундный лазерный импульс ($\tau = 35$ фс, $\lambda = 800$ нм, энергия в импульсе – 3.5 мДж, частота повторения импульсов – 1 кГц) от регенеративного усилителя Spitfire Pro XP (Spectra Physics, США). Лазерный импульс направлялся на исследуемый образец, установленный в геометрии «на отражение», диаметр лазерного пятна на поверхности образца был около 4 мм. В образце происходило двухфотонное поглощение с последующей эмиссией терагерцового импульса. Этот терагерцовый импульс с помощью параболических зеркал собирался и фокусировался на кристалл-детектор GaSe ($d = 1.5$ мм), обладающий электрооптическим эффектом. Регистрация сигнала с балансных фотодиодов осуществлялась с помощью синхронного детектора (SR-830, Stanford Reseach,

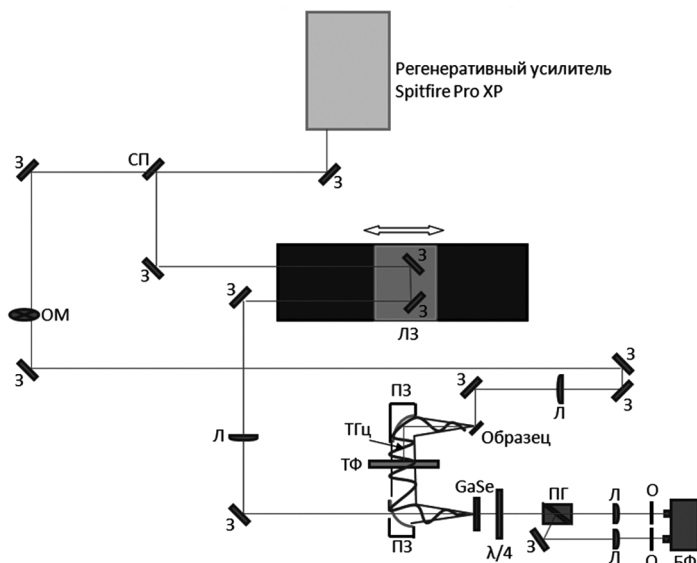


Рис. 2. Схема экспериментальной установки: ЛЗ – линия задержки; З – зеркало; Л – линза; ПЗ – параболическое зеркало; ПГ – призма Глана; О – ослабитель; ТФ – тефлоновый фильтр; λ/4 – четвертьволновая пластинка; БФ – балансные фотодиоды; ОМ – модулятор; СП – светоделительная пластина

США). В плече возбуждающего импульса стоял оптический прерыватель, работавший на частоте 500 Гц. Сканирование временных форм терагерцовых импульсов производилось с помощью механической линии задержки, перемещавшейся с шагом 10 мкм. Спектры пропускания образцов в терагерцовом диапазоне частот записывались с помощью стандартного THz-TDS-спектрометра с кристаллом-генератором GaSe ($d = 1$ мм) [6].

Результаты и их обсуждение

Измеренные спектры пропускания образцов и их некоторых структурных компонентов в терагерцовом диапазоне частот приведены на рис. 3. Видно, что поглощение растет с ростом числа квантовых ям в образцах гетероструктур. Возможным механизмом поглощения является поглощение терагерцового излучения на свободных носителях заряда, локализованных в квантовых ямах. Поглощение на свободных носителях заряда в GaN, как предположено в [5], не представляется определяющим, так как все образцы (№ 1–3) содержали примерно одинаковые по толщине слои GaN. Кроме того, объемный GaN, как легированный, так и нелегированный, а также сапфировая подложка обладают значительно меньшим поглощением (рис. 3).

Спектры эмиссии терагерцового излучения в образцах гетероструктур № 1–3 записывались при возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами на центральной длине волны 800 нм (т.е. при двухфотонной генерации электрон-дырочных пар в квантовых ямах). В результате исследования зависимостей временных и спектральных форм терагерцового излучения, генерируемого от образцов № 1–3, от пиковой плотности мощности возбуждающего излучения можно отметить следующее. Максимум амплитуды терагерцовых импульсов для образца № 3 наблюдался при пиковой плотности мощности 137.8 ГВт/см², для образца № 2 – 127.3 ГВт/см², для образца № 1 – 60 ГВт/см². То есть с ростом количества квантовых ям в образцах увеличивались как интенсивность генерации, так и плотность мощности накачки, до которой наблюдался рост этой интенсивности (рис. 4). Как видно при сравнении спектральных распределений мощности терагерцовых импульсов, генерированных от образцов № 1–3 (рис. 4), для образцов с большим количеством квантовых ям происходит смещение максимума генерации в более высокочастотную область. Спектр генерации превышает уровень шумов примерно до частоты 0.9 ТГц для образца № 1, 1.5 ТГц – для образца № 2 и 2.2 ТГц – для образца № 3. Данная интересная закономерность должна быть связана с электронными и фононными свойствами структур и требует дополнительного исследования. Более резкая динамика изменения тока носителей заряда после возбуждения ультракоротким лазерным импульсом может быть обусловлена уменьшением времени рекомбинации электрон-дырочных пар в квантовых ямах InGaN.

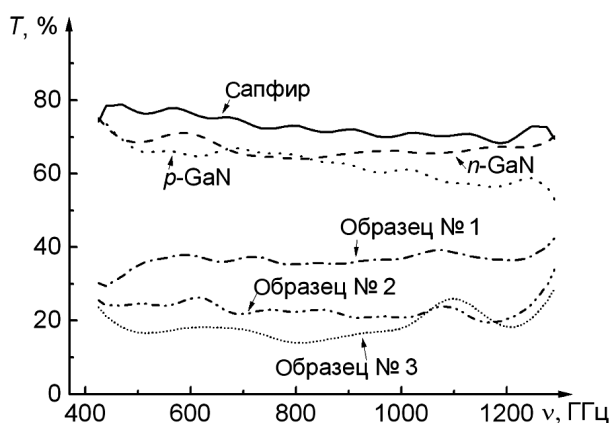


Рис. 3. Спектры пропускания в терагерцовом диапазоне частот исследованных образцов светодиодных гетероструктур, а также сапфира (подложка) и GaN (зародышевый, буферный и барьерный слои). Толщина всех образцов составляла 440–464 мкм

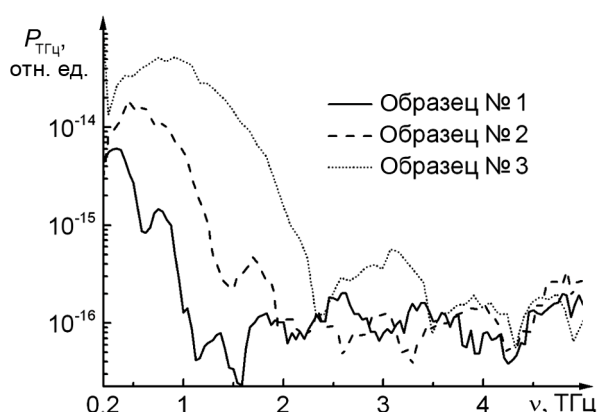


Рис. 4. Спектры генерированных в образцах № 1–3 терагерцовых импульсов при пиковых плотностях мощности возбуждающего лазерного излучения, обеспечивающих максимальный уровень сигнала

Следует отметить, что при увеличении плотности мощности возбуждающего импульса выше указанных ранее значений для каждого из образцов наблюдалось уменьшение уровня сигнала. На рис. 5 приведены временные формы терагерцовых импульсов для образца № 2 в области глав-

ного максимума в зависимости от пиковой плотности мощности лазерного излучения. В отличие от результатов [2–4] наблюдается не насыщение, а уменьшение сигнала с ростом плотности возбуждающего импульса. В [2–4] насыщение объясняется полной экранировкой встроенных пьезополей при определенных уровнях плотности мощности накачки и исчезновением поля, разделяющего носители в квантовой яме. Уменьшение амплитуды терагерцового сигнала с ростом

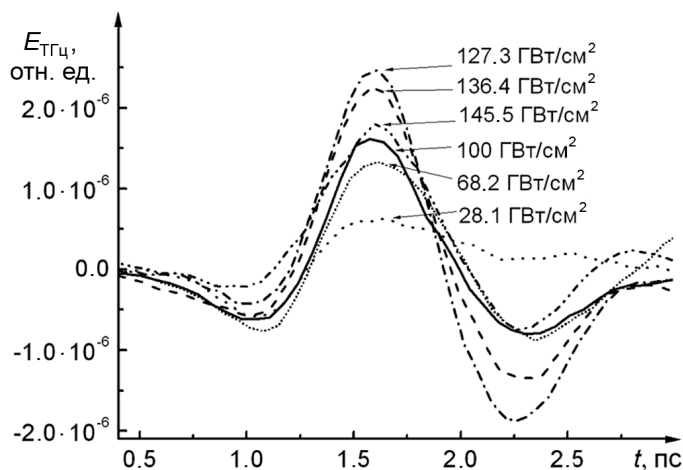


Рис. 5. Зависимость главного максимума временной формы терагерцовых импульсов, генерированных в образце № 2, от пиковой плотности мощности возбуждающего лазерного излучения

плотности мощности накачки можно связать, например, с ростом концентрации свободных носителей заряда в квантовых ямах и поглощением на них генерируемого терагерцового излучения. Также в некоторых случаях возможно влияние оптического пробоя структур, который визуально наблюдался при плотности мощности около 150 ГВт/см^2 для образцов № 2 и 3. Для образца № 1 пробой наблюдался уже при плотности мощности лазерного импульса 75 ГВт/см^2 .

При сравнении наших экспериментальных результатов с ранее полученными следует учитывать, что в работах [2–5] для возбуждения генерации использовалось лазерное излучение на длине волны 400 нм (энергии фотона достаточно для межзонных переходов в квантовых ямах). Это излучение получалось за счет генерации второй гармоники излучения титансапфирового лазера в кристалле ВВО. Кроме того, в работах [2–5] исследовались структуры с содержанием In в InGaN на уровне 25% и более сильными встроенными пьезополями (как следует из расчетов, например, [7]). По этим причинам уровень сигналов терагерцовой эмиссии, наблюдаемых в настоящей работе, был существенно ниже, чем в [2–5]. Также отличительной чертой наших образцов было то, что они представляли собой готовые светодиодные структуры [8–10] и содержали ряд компонентов помимо слоев InGaN/GaN . В этой связи в нашей работе дополнительно проверялось отсутствие терагерцового сигнала (например, за счет оптического выпрямления в GaN) в отдельных тонких пластинах n - и p - GaN , а также сапфира. Проверялось также возможное наличие и влияние многофотонных процессов поглощения в сапфировой подложке или GaN . В этих материалах, в отличие от гетероструктур с квантовыми ямами, не наблюдалось люминесценции при помещении в лазерный луч.

Для интерпретации полученных экспериментальных данных необходимо, помимо построения модели генерации, получение дополнительной информации о полупроводниковых свойствах исследуемых систем. В последние годы выполнен большой объем теоретических исследований нитридных материалов III-N и их твердых растворов [11–13]. Для настоящих исследований особый интерес представляет возможность вычисления электрической поляризации исследуемых соединений. Первые оценки пьезоэлектрической поляризации AlN , GaN , InN были выполнены в [14] с использованием метода фазы Берри в рамках современной теории поляризации. В [14] и более поздних работах показано, что вследствие рассогласования постоянных решетки различных компонентов гетероструктур пьезополяризация эпитаксиальных слоев нитридных полупроводников может принимать значения, на порядок большие, чем спонтанная поляризация. Кроме того, установлено, что композиционная зависимость пьезоэлектрической поляризации твердых растворов III-N имеет явно выраженный нелинейный характер [14, 15]. В то же время расчетам спонтанной поляризации твердых растворов III-N в настоящее время уделяется значительно меньше внимания. Между тем спонтанная поляризация слоев InGaN/GaN в активной области светоизлучающих структур при типичном содержании индия $12\text{--}13\%$ сопоставима с пьезополяризацией [14]. К настоящему времени нами проведен ряд расчетов из первых принципов структурных и электронных свойств твердых растворов InGaN при различных профилях распределения индия – равномерном распределении, отвечающем случаю разупорядоченного твердого раствора, и при кластеризации атомов индия. Общая методология расчетов в рамках теории функционала плотности описана в

работах [16, 17]. В рамках теории возмущения функционала плотности и приближения виртуального кристалла рассчитаны упругие и пьезоэлектрические характеристики $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ во всем диапазоне изменения x . Полученные оценки напряженности встроенных электрических полей в слоях InGaN/GaN при содержании индия на уровне 11–12 % согласуются с литературными данными, которые находятся в диапазоне 0.5–1.7 МВ/см [7, 15].

В заключение стоит отметить, что в результате проделанной работы получен ряд экспериментальных данных о диэлектрических свойствах светодиодных гетероструктур на основе InGaN/GaN в терагерцовой области спектра, а также терагерцовой эмиссии этими структурами при их двухфотонном возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами. Экспериментально обнаружен ряд зависимостей, не наблюдавшихся ранее в аналогичных исследованиях: генерация терагерцового излучения при возбуждении гетероструктур импульсом на основной частоте титан-сапфирового лазера (двухфотонное возбуждение); спад интенсивности терагерцовой генерации при увеличении мощности лазерного излучения выше порогового значения; смещение максимума генерации в более высокочастотную область для образцов InGaN/GaN с большим количеством квантовых ям. Для интерпретации полученных данных в настоящее время нами ведутся исследования с использованием методов расчетов из первых принципов структурных, упругих и электронных свойств твердых растворов InGaN .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zhang X.-C., and Auston D.H. // *J. Appl. Phys.* – 1992. – V. 71. – No. 1. – P. 326–338.
2. Porte H.P., Turchinovich D., Cooke D.G., and Jepsen P.U. // *J. Physics: Conf. Ser.* – 2009. – V. 193. – No. 1. – P. 012084-1–4.
3. Van Capel P.J.S., Turchinovich D., Porte H.P., et al. // *Phys. Rev. B.* – 2011. – V. 84. – No. 8. – P. 085317-1–8.
4. Sun G., Xu G., Ding Y.J., et al. // *IEEE J. Selected Topics in Quantum Electron.* – 2011. – V. 17. – No. 1. – P. 48–53.
5. Sun G., Chen R., Ding Y.J., et al. // *IEEE J. Selected Topics in Quantum Electron.* – 2013. – V. 19. – No. 1. – P. 8400106-1–6.
6. Nazarov M.M., Sarkisov S.Yu., Shkurinov A.P., and Tolbanov O.P. // *Appl. Phys. Lett.* – 2011. – V. 99. – No. 8. – P. 081105-1–3.
7. Dong L., Mantese J.V., Avrutin V., et al. // *J. Appl. Phys.* – 2013. – V. 114. – No. 4. – P. 043715-1–8.
8. Prudaev I.A., Ivonin I.V., and Tolbanov O.P. // *Russ. Phys. J.* – 2012. – V. 54. – No. 12. – P. 1372–1374.
9. Romanov I.S., Prudaev I.A., Marmalyuk A.A., et al. // *Russ. Phys. J.* – 2013. – V. 56. – No. 7. – P. 760–762.
10. Prudaev I.A., Romanov I.S., Kop'ev V.V., et al. // *Russ. Phys. J.* – 2013. – V. 56. – No. 7. – P. 757–759.
11. Brudnyi V.N., Kosobutsky A.V., and Kolin N.G. // *Phys. Sol. State.* – 2011. – V. 53. – No. 4. – P. 679–688.
12. Brudnyi V.N., Kosobutsky A.V., and Kolin N.G. // *Semicond.* – 2009. – V. 43. – No. 10. – P. 1271–1279.
13. Lepkowski P. and Gorczyca I. // *Phys. Rev. B.* – 2011. – V. 83. – No. 20. – P. 203201-1–4.
14. Bernardini F. and Fiorentini V. // *Phys. Rev. B.* – 2001. – V. 64. – No. 8. – P. 0852078-1–7.
15. Prodhomme P.-Y., Beya-Wakata A., and Bester G. // *Phys. Rev. B.* – 2013. – V. 88. – No. 12. – P. 121304(R)-1–4.
16. Brudnyi V.N., Kosobutsky A.V., and Sarkisov S.Y. // *Semicond.* – 2010. – V. 44. – No. 9. – P. 1158–1166.
17. Kosobutsky A.V., Sarkisov S.Yu., and Brudnyi V.N. // *J. Phys. Chem. Solids.* – 2013. – V. 74. – No. 9. – P. 1240–1248.

*Национальный исследовательский Томский государственный университет,
г. Томск, Россия

Поступила в редакцию 17.07.14.

**Кемеровский государственный университет, г. Кемерово, Россия
E-mail: sarkisov@elefot.tsu.ru

Прудаев Илья Анатольевич, к.ф.-м.н., ст. науч. сотр.;
Саркисов Сергей Юрьевич, к.ф.-м.н., науч. сотр.;
Толбанов Олег Петрович, д.ф.-м.н., зав. лабораторией;
Кособуцкий Алексей Владимирович, к.ф.-м.н., доцент.