

Полупроводниковый лазер с оптической накачкой на основе наноразмерной гетероструктуры CdS/ZnSe с разрывами зон второго типа

М.Р.Бутаев, В.И.Козловский, Я.К.Скасырский

Исследован полупроводниковый лазер с оптической накачкой на основе наноразмерной гетероструктуры CdS/ZnSe, содержащей 10 квантовых ям с разрывами зон второго типа. Структура выращена методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений на подложке GaAs. Время жизни электронно-дырочных пар при низком уровне накачки, измеренное по спаду люминесценции, оценивается в ~ 10 нс. При комнатной температуре и продольной накачке излучением импульсно-периодического N_2 -лазера достигнута пиковая мощность излучения полупроводникового лазера с микрорезонатором 7.2 Вт на длине волны 514 нм. Относительно низкий (0.35%) КПД лазера объясняется наличием усиленного спонтанного излучения, распространяющегося вдоль структуры. При поперечной накачке пиковая мощность и КПД лазера увеличиваются до 70 Вт и 3.5%.

Ключевые слова: ГФЭМОС, полупроводниковый лазер, CdS/ZnSe-гетероструктура, квантовые ямы, оптическая накачка.

1. Введение

Развитие полупроводниковых дисковых лазеров (ПДЛ), или поверхностно-излучающих полупроводниковых лазеров с внешним вертикальным резонатором, в частности с оптической накачкой, связано со способностью генерирования излучения высокой мощности при высоком качестве пучка с дифракционной расходимостью в широком спектральном диапазоне [1–4]. Несмотря на то что в настоящее время в ПДЛ используются в основном структуры на основе соединений A_3B_5 , излучающие в ближнем ИК диапазоне, возможность использования различных нелинейных эффектов внутри резонатора этих лазеров позволяет освоить УФ [5, 6], видимый [3, 4], средний ИК [7], а также терагерцевый диапазоны спектра [8].

Целью авторов настоящей работы является создание ПДЛ с оптической накачкой на основе гетероструктур из соединений A_2B_6 , излучающего на основной частоте в сине-зеленом диапазоне спектра (480–560 нм). В этом случае переход в наиболее востребованный для ряда применений средний УФ диапазон спектра (240–280 нм) можно осуществить относительно простым внутрирезонаторным удвоением частоты. Для этого в качестве активной среды лазера необходимо использовать резонансно-периодические структуры из широкозонных соединений. Использование третьей или четвертой гармоники ПДЛ на основе структур соединений A_3B_5 существенно снижает КПД лазерной системы в целом [5, 9].

Одними из известных широкозонных соединений, соответствующих данному диапазону, являются соедине-

ния на основе ZnSe [10], которые в конце прошлого столетия рассматривались как наиболее перспективные соединения для лазерных диодов (ЛД) сине-зеленого диапазона спектра [11, 12]. Однако проблема деградации ЛД на основе соединений A_2B_6 до сих пор не решена. Кроме факторов деградации, присущих инжекционным лазерам, в которых необходимо создавать p–n-переход и надежные контакты, называют также недостаточную прочность химических связей атомов металла второй группы с селеном и внутренние упругие напряжения в квантовых ямах (КЯ) [10, 13, 14]. В деградации лазеров с оптической накачкой лишь последние факторы могут играть существенную роль.

Альтернативой структурам на основе соединений A_2B_6 для сине-зеленой области спектра являются структуры InGaN/GaN. В настоящее время коммерчески доступны ЛД для синего диапазона с мощностью в несколько ватт. Однако для создания ПДЛ необходимо либо наличие в структуре встроенного брэгговского зеркала, либо умение отделять ростовую структуру от подложки, в качестве которой обычно используют сапфировую подложку, и переносить эту структуру на другую подложку с высокой теплопроводностью типа алмаза или карбида кремния. И то и другое в настоящее время представляет большие технологические проблемы. В отличие от структур из нитридных соединений, структуры соединений A_2B_6 могут быть легко отделены от ростовой подложки GaAs благодаря наличию селективных травителей для GaAs.

В работах [15, 16] нами была исследована возможность использования наноразмерной гетероструктуры на основе гетероперехода второго рода ZnCdS/ZnSSe в полупроводниковых лазерах, в частности в лазере с микрорезонатором и накачкой электронным пучком. Предполагалось, что эти гетероструктуры, в отличие от ранее изученных гетероструктур типа Zn(Cd)Se/Zn(Mg)SSe [10, 17], из-за наличия более прочных серных химических связей менее подвержены твердотельной диффузии при температурах эпитаксиального роста и интенсивном возбуждении. При определенном составе КЯ и барьеров,

М.Р.Бутаев, В.И.Козловский. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; e-mail: vikoz@sci.lebedev.ru
Я.К.Скасырский. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53

$Zn_{0.4}Cd_{0.6}S/ZnS_{0.06}Se_{0.94}$, все слои данной гетероструктуры могут быть практически полностью согласованными по параметрам кристаллической решетки с подложкой GaAs, что существенно понижает внутренние напряжения. Исследования показали, что лазеры на основе гетероструктур $ZnCdS/ZnSSe$ успешно работают в синем спектральном диапазоне, однако их длина волны излучения ограничена сверху значением около 490 нм. Более длинноволновый зеленый диапазон может быть освоен путем уменьшения концентрации Zn в квантовой яме ZnCdS. В связи с этим в настоящее время мы исследуем гетероструктуру CdS/ZnSe как потенциально активную структуру для полупроводникового лазера зеленого диапазона.

Другим важным достоинством гетероструктуры CdS/ZnSe является незначительный скачок показателя преломлений на гетерограницах. Это позволяет существенно ослабить эффект вытеснения моды за пределы запрещенной зоны фотонного кристалла (каковым является периодическая структура) и из максимума линии усиления, и тем самым достигнуть минимального порога генерации, который можно получить при резонансно-периодическом усилении [18]. Потенциально полезным является также малое внутреннее поглощение при неоднородной накачке КЯ, что связано с особенностью зонной диаграммы данной гетероструктуры. Однако следует отметить, что данная гетероструктура относится к гетероструктурам с разрывами зон второго типа, что приводит к пространственному разделению генерируемых накачкой носителей заряда, в результате которого понижается скорость излучательной рекомбинации и может возрасти порог генерации лазера.

В настоящей работе приведены результаты исследования полупроводникового лазера на основе наноразмерной гетероструктуры CdS/ZnSe как при продольной накачке микрорезонатора, так и при поперечной накачке резонатора со сколотыми гранями излучением азотного лазера (337 нм). Представленные результаты свидетельствуют о возможности использования данной структуры в качестве активной структуры полупроводникового лазера для зеленого диапазона спектра, что является основой для дальнейших разработок ПДЛ на этой структуре.

2. Эксперимент

Наноразмерные гетероструктуры CdS/ZnSe выращивались методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений в потоке водорода при атмосферном давлении в кварцевом реакторе. Дизайн исследуемых гетероструктур схематически представлен на рис.1,а. В качестве исходных соединений для роста структур использовались диметил селенид $(CH_3)_2Se$, диметил кадмий $(CH_3)_2Cd$, диэтил сульфид $(C_2H_5)_2S$ и диэтил цинк $(C_2H_5)_2Zn$. Рост проводился на подложках GaAs, разориентированных от плоскости (001) к плоскости (111)A на 10° , температура подложки составляла $440^\circ C$. Толщины слоев контролировались в процессе роста путем измерения отражения излучения ЛД с длиной волны 650 нм, сфокусированного в пятно диаметром 2 мм на ростовой подложке. В месте контроля толщины слоев ZnSe и CdS составляли 5 и 4 нм соответственно. Толщины барьерных слоев ZnS_xSe_{1-x} между трехслойными КЯ задавались равными 86 нм, поэтому период структуры должен был составлять примерно 100 нм, что отвечало достижению резонансно-периодического усиления – соответствию пе-

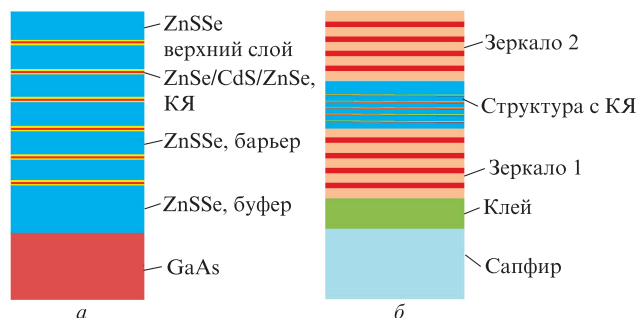


Рис.1. Схематическое изображение структуры (а) и активного элемента с микрорезонатором (б).

риода половине длины волны излучения лазера в структуре. Первый слой ZnS_xSe_{1-x} после ростовой подложки выращивался с толщиной, близкой к 193 нм, а последний – к 93 нм. Однако толщины слоев могли плавно изменяться по поверхности структуры из-за существующей в реакторе неоднородности потока водорода с исходными компонентами. Упругие напряжения, создаваемые КЯ, компенсировались повышением состава серы в барьерах до 11%. Полная толщина гетероструктуры с 10 КЯ составляла примерно 1.2 мкм. Гетероструктуры имели зеркально гладкую поверхность.

Для изготовления активного элемента лазера с микрорезонатором (рис.1,б) на структуру при ее нагреве до $200^\circ C$ наносилось первое диэлектрическое зеркало из 11 пар слоев HfO_2-SiO_2 с расчетным коэффициентом отражения $R = 99.5\%$ на длину волны $\lambda = 515$ нм. Структура приклеивалась к сапфировой подложке толщиной 5 мм со стороны этого зеркала оптическим эпоксидным клеем ЕРОТЕК-301. Затем ростовая подложка GaAs удалялась, и на свободную поверхность структуры уже без ее нагрева наносилось второе диэлектрическое зеркало из 12 пар слоев с $R = 99.5\%$ на $\lambda = 515$ нм. Толщины зеркал составляли примерно 1.7 и 1.8 мкм соответственно. Спектры пропускания зеркал, измеренные по контрольным стеклянной (зеркало 1) и сапфировой (зеркало 2) подложкам, представлены на рис.2. Минимумы отражения оказались сдвинутыми относительно заданной длины волны (515 нм). Кроме того, нагрев структуры существенно увеличивает показатель преломления HfO_2 , поэтому коэффициент пропускания в минимуме зеркала 1 оказался заметно ниже, чем у зеркала 2, хотя у последнего больше

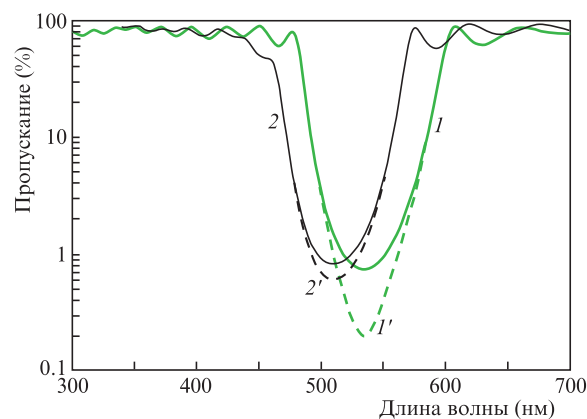


Рис.2. Спектры пропускания первого (1) и второго (2) зеркал, измеренные по контрольным сапфировой и стеклянной подложкам, и соответствующие расчетные спектры пропускания плоской волны (1' и 2'), падающей на зеркала 1 и 2 из структуры.

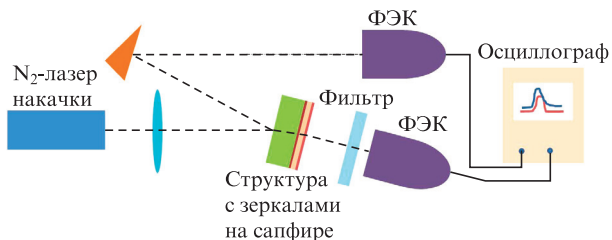


Рис.3. Оптическая схема лазера.

пар слоев. По экспериментальным кривым мы рассчитали коэффициент пропускания зеркал для плоской волны, падающей из структуры. Для длины волны 515 нм эти коэффициенты оказались примерно равными 0.6%. Пропускание зеркал на длине волны лазера накачки 337 нм было более 80%.

Следует отметить, что толщины зеркал и клеевого слоя значительно превышают толщину структуры. Это может приводить к дополнительным упругим напряжениям в структуре. В результате в структуре площадью 1–2 см² появляются редкие трещины по кристаллографическим направлениям [110] и [1-10] (см. рис. 8,а).

Структура с микрорезонатором возбуждалась продольно через сапфировую подложку излучением азотного лазера ЛГИ-21 или более мощного ЛГИ-503 ($\lambda = 337$ нм). На рис.3 представлена оптическая схема лазера и системы измерения пиковой мощности импульса накачки и импульса лазера. Чтобы раздельно снимать осциллограммы импульсов накачки и генерации, использовались два ФЭКа. Пиковая мощность накачки сначала измерялась в относительных единицах, затем полученные данные привязывались к измеренным значениям пиковой мощности накачки, прошедшей через линзу, сапфировую подложку, зеркало 1 и клеевой слой, за вычетом мощности, прошедшей через активный элемент в целом. Последнее значение не превышало 5% падающей мощности. Задержка между импульсами накачки и лазера корректировалась с учетом разных длин используемых коаксиальных кабелей и разных расстояний от ФЭКов до источника излучения. Фильтром излучения лазера служило стекло типа ТФ-5 толщиной 10 мм, полностью отсекающее излучение накачки. Спектр излучения регистрировался спектрографом МДР-4 с ПЗС-линейкой.

3. Результаты экспериментов и их обсуждение

На рис.4 представлены спектры излучения структуры М-76 с микрорезонатором и без зеркал при различных уровнях накачки.

С увеличением накачки спектр спонтанного излучения сдвигается в коротковолновую сторону, что типично для гетероструктур с разрывами зон II типа [15, 19]. Микрорезонатор фактически является фильтром для спонтанного излучения, пропуская его только в собственных модах. В связи с этим при низких уровнях накачки в спектре микрорезонатора присутствует лишь одна мода с максимумом вблизи 545 нм. По мере увеличения накачки спонтанное излучение уже может выходить через две моды вблизи 545 и 515 нм. Порог генерации достигается для моды с максимумом на 515 нм. Выше порога генерация наблюдается в узкой линии с максимумом на 514 нм и шириной на

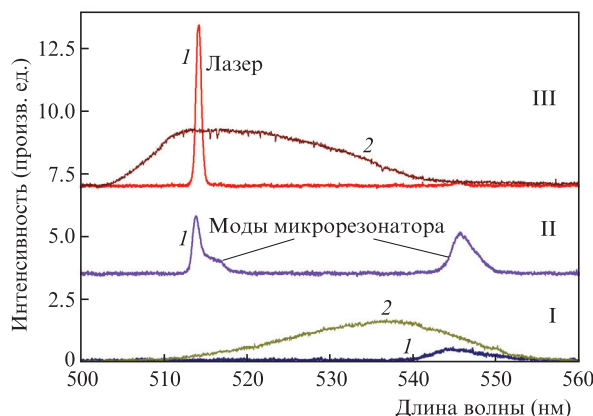


Рис.4. Спектры излучения структуры М-76 с микрорезонатором (1) и без зеркал (2) при различных уровнях накачки: допороговом уровне (I), на пороге генерации (II), за порогом генерации (III).

полувысоте менее 1 нм. При использовании других структур генерация наблюдалась на длинах волн 519 и 537 нм.

На рис.5 представлены осциллограммы импульсов накачки, лазера с микрорезонатором при пиковой интенсивности накачки $I_p \approx 1$ МВт/см² и структуры без зеркал при $I_p \approx 2$ кВт/см². Длительность импульса накачки на полувысоте была равна ~8 нс, а у лазерного импульса – приблизительно 4 нс. Максимум импульса генерации примерно соответствовал максимуму импульса накачки. Импульс спонтанного излучения был сдвинут относительно импульса накачки и имел близкий к экспоненциальному спад с характерным временем 9.5 нс.

Зависимость пиковой мощности импульса излучения лазера, выходящего из свободной поверхности микрорезонатора, от падающей мощности накачки представлена на рис.6. Диаметр области возбуждения составлял ~0.5 мм. При диаметре менее 0.5 мм и максимальной мощности накачки наблюдалась катастрофическая деградация структуры. Максимальная пиковая мощность лазера составила 3.9 Вт. При этом мощность, выходящая через сапфировую подложку, была равна 3.3 Вт. Суммарная пиковая мощность лазера составляла 7.2 Вт при пиковой мощности импульса накачки 2195 Вт. Порог генерации по аппроксимации прямой линией полученных

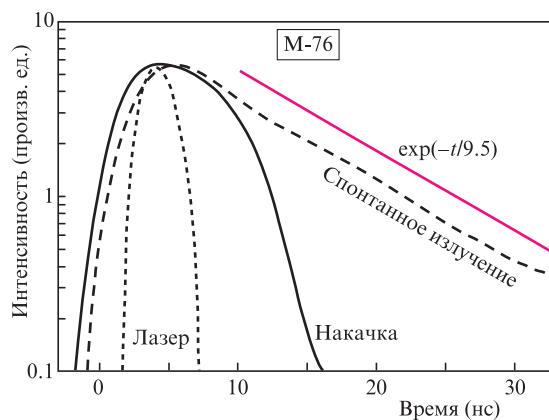


Рис.5. Осциллограммы импульсов накачки, лазера с микрорезонатором при пиковой интенсивности накачки $I_p \approx 1$ МВт/см² и структуры без зеркал при $I_p \approx 2$ кВт/см² в полулогарифмическом масштабе. Представлена также зависимость экспоненциального спада люминесценции с характерным временем 9.5 нс.

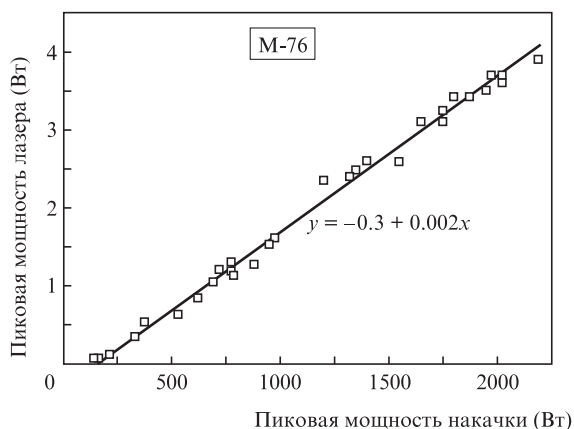


Рис.6. Зависимость пиковой мощности импульса излучения лазера от падающей пиковой мощности накачки.

данных зависимости мощности лазера от мощности накачки был равен 154 Вт. Отсюда, согласно оценке, дифференциальная эффективность преобразования мощности накачки в мощность лазера составляет 0.35%. При уменьшении пятна возбуждения до 300 мкм и меньших уровнях мощности накачки эффективность возрастает до 0.6%. Предполагается, что основной причиной довольно низкой эффективности лазера является усиленное спонтанное излучение, распространяющееся вдоль структуры.

На рис.7,*а* представлена фотография ближней зоны лазера при небольшом превышении порога генерации. Видно, что генерация возникает в отдельных точках с поперечным размером менее 10 мкм. Эти точки прост-

ранственно некогерентны между собой и соответствуют независимым лазерам. Порог генерации, отвечающий возникновению ярких точек в ближней зоне, равен ~ 100 кВт/см².

Дальняя зона излучения таких лазеров представляет собой осесимметричное распределение интенсивности с характерным угловым расхождением 10° . Фотография этого распределения, зафиксированная электронной камерой без объектива на расстоянии 10 см от структуры, представлена на рис.7,*в*. Однако, кроме лазерного излучения, наблюдается интенсивное усиленное спонтанное излучение, выходящее под большим углом к нормали микрорезонатора. Это излучение было зафиксировано на листе бумаги, расположенном на расстоянии 2 мм от поверхности микрорезонатора (рис.7,*б*). Размер центрального пятна соответствует расходимости лазерного излучения, а ореол вокруг него обусловлен спонтанным излучением. Мощность последнего сравнима с мощностью лазерного излучения.

Дополнительным свидетельством влияния усиленного спонтанного излучения на КПД лазера является повышение эффективности преобразования мощности накачки в лазерное излучение при поперечной накачке структуры. В этих экспериментах верхнее зеркало микрорезонатора стравливалось в плавиковой кислоте. В качестве резонатора использовались сколы, образующиеся при упомянутом выше растрескивании структуры. Фотография ближней зоны излучения структуры с трещинами при ее возбуждении пучком излучения накачки (пятно диаметром ~ 1.5 мм) представлена на рис.8,*а*. Видно, что из сколов в месте возбуждения выходит интенсивное излучение.

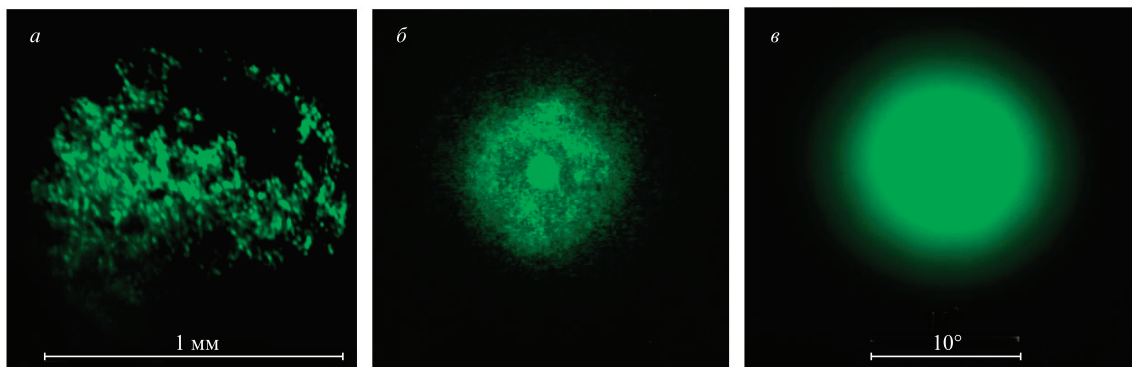


Рис.7. Фотографии ближней зоны излучения лазера (*а*), изображения излучения микрорезонатора на листе бумаги, расположенном на расстоянии 2 мм от поверхности микрорезонатора (*б*), и распределения интенсивности излучения лазера в дальней зоне (*в*).

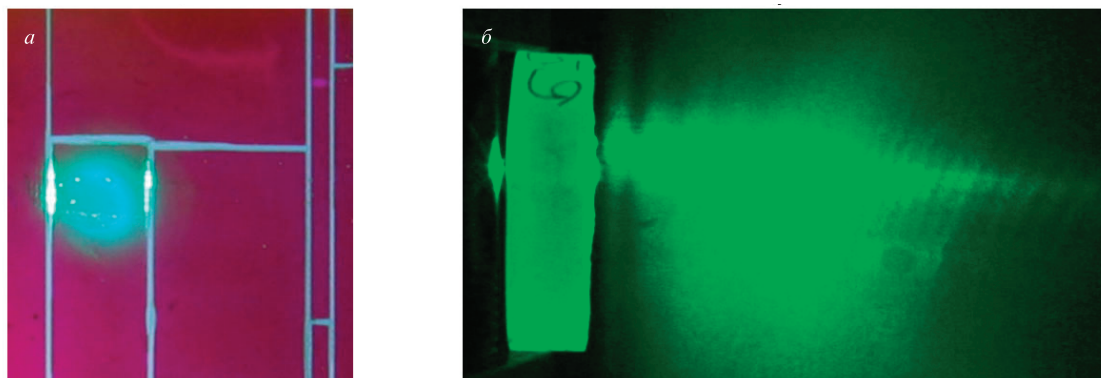


Рис.8. Фотографии ближней зоны излучения лазера с поперечной оптической накачкой (*а*) и излучающего активного элемента (структура закреплена на правой поверхности сапфирового диска) (*б*); излучение накачки падает слева через сапфир, излучение лазера с поперечной накачкой отображено на листе бумаги, расположенном за сапфировым диском параллельно нормали к диску.

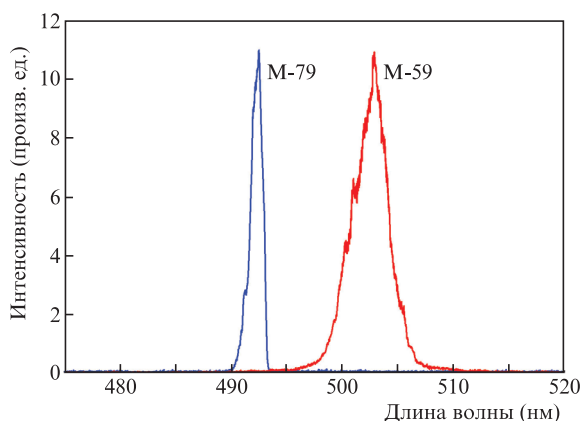


Рис.9. Спектры генерации лазера с поперечной оптической накачкой на структурах М-59 и М-79.

На рис.8,б представлена фотография излучающего активного элемента при возбуждении излучением азотного лазера. Активный элемент размещен на сапфировом диске диаметром 20 мм, поверхности которого перпендикулярны полю плоскости фотографии. Структура закреплена на поверхности диска справа, а ее накачка осуществляется слева через сапфировый диск. За ним находится лист белой бумаги, параллельный нормали к сапфировому диску. На этом листе видна направленность излучения лазера при поперечной накачке. Измеренная максимальная мощность, выходящая в одну сторону, превышала 35 Вт. Предполагая, что мощность, выходящая во вторую сторону, примерно такая же, получаем эффективность преобразования мощности накачки в мощность лазера на уровне 3.5%, что на порядок больше, чем в лазере с продольной накачкой.

На рис.9 представлены спектры генерации лазеров при поперечной оптической накачке двух различных структур.

4. Заключение

В работе впервые реализован полупроводниковый лазер на основе наноразмерной гетероструктуры CdS/ZnSe/ZnSSe с разрывами зон второго типа, излучающий в зеленой области спектра, как при продольной накачке микрорезонатора, так и при поперечной накачке излучением азотного лазера. Проведенные исследования и полученные результаты свидетельствуют о том, что, несмотря на разрывы зон второго типа, исследуемая гетероструктура перспективна для создания полупроводниковых лазеров зеленого диапазона с оптической накачкой. При продольной накачке микрорезонатора достигнута мощность свыше 7 Вт. Низкий КПД лазера (0.35%) в этой ге-

ометрии связывается с наличием паразитного усиления спонтанного излучения вдоль структуры. При поперечной накачке структуры мощность и КПД лазера увеличиваются на порядок. Дальнейшее улучшение характеристик возможно при улучшении качества гетероструктуры и оптимизации условий накачки и параметров резонатора.

Работа выполнена при поддержке Программы повышения конкурентоспособности НИЯУ МИФИ (договор № 02.а03.21.0005). Авторы благодарят П.И.Кузнецова за консультации по эпитаксиальному росту гетероструктур соединений A_2B_6 .

1. Kuznetsov M., Nakimi F., Sprague R., Mooradian A. *IEEE Photon. Techn. Lett.*, **9**, 1063 (1997).
2. Tropper A.C., Hoogland S. *Progr. Quantum Electron.*, **30**, 1 (2006).
3. Okhotnikov O.G. *Semiconductor Disk Lasers: Physics and Technology* (Weinheim: Wiley-VCH, 2010).
4. Hastie J.E., Calvez S., Dawson M.D., in *Semiconductor Lasers* (Woodhead Publ. Limited, 2013, vol. 9, p. 341).
5. Shu Qi-Ze, Caprara Andrea L., Berger Jill D., Anthon Douglas W., Jerman Hal, Spinelli Luis. *Proc. SPIE*, **7193**, 719319 (2009).
6. Rodríguez-García Julio M., Paboeuf David, Hastie Jennifer E. *Tunable. IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **23** (6), 5100608 (2017).
7. Stothard D.J.M., Hopkins J-M., Burns D., Dunn M.H. *Opt. Express*, **17** (13), 10648 (2009).
8. Scheller Maik, Yarborough Joe M., Moloney Jerome V., Fallahi Mahmoud, Koch Martin, Koch Stephan W. *Opt. Express*, **18** (26), 27112 (2010).
9. Kaneda Yushi, Wanga Tsuei-Lian, Yarborough J.M., Fallahi Mahmoud, Moloney Jerome V., Yoshimura Masashi, Morib Yusuke, Sasaki Takatomo. *Proc. SPIE*, **7193**, 719318 (2009).
10. Ivanov S.V., Sorokin S.V., Sedova I.V., in *Molecular Beam Epitaxy* (Elsevier Inc., 2018, vol. 25, p. 571).
11. Haase M.A., Qiu J., DePuydt J.M., Cheng H. *Appl. Phys. Lett.*, **59** (11), 1272 (1991).
12. Kato E., Noguchi H., Nagai M., Okuyama H., Kijima S., Ishibashi A. *Electron. Lett.*, **34** (3), 282 (1998).
13. Waag A., Litz Th., Fischer F., Lugauer H.-J., Baron T., Schüll K., Zehnder U., Gerhard T., Lunz U., Keim M., Reuscher G., Landwehr G. *J. Cryst. Growth*, **184–185**, 1 (1998).
14. Law K.-K., Baude P.F., Miller T.J., Haase M.A., Haugen G.M., Smekalin K. *Electron. Lett.*, **32** (4) 345 (1996).
15. Козловский В.И., Санников Д.А., Свиридов Д.Е. *Кр. сообщ. физ. ФИАН*, № 2, 4 (2008).
16. Butaev M.R., Kozlovsky V.I., Sannikov D.A., Skasyrsky Y.K. *J. Phys.: Conf. Ser.*, **1439**, 012017 (2020).
17. Козловский В.И., Кузнецов П.И., Свиридов Д.Е., Якушева Г.Г. *Квантовая электроника*, **42** (7), 583 (2012) [*Quantum Electron.*, **42** (7), 583 (2012)].
18. Козловский В. *Полупроводниковый лазер. Лазерные ЭЛТ, наноструктуры для видимого и УФ диапазонов*; <https://www.lap-publishing.com/catalog/details/store/gb/book/978-3-659-33286-полупроводниковый-лазер>.
19. Priller H., Schmidt M., Dremel M., Grün M., Toropov A., Ivchenko E.L., Kalt H., Klingshirn C. *Phys. Stat. Sol. (c)*, **1** (4) 747 (2004).