Динамика рекомбинации носителей в полупроводниковой лазерной структуре

© Р.И. Джиоев^{+¶}, К.В. Кавокин^{+*}, Ю.Г. Кусраев⁺, Н.К. Полетаев⁺

⁺ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,

194021 Санкт-Петербург, Россия

* Санкт-Петербургский государственный университет,

199034 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 29 апреля 2015 г. Принята к печати 6 мая 2015 г.)

Методом оптической ориентации исследована динамика рекомбинации носителей заряда в активном слое лазерной диодной структуры при комнатной температуре. Зависимость степени оптической ориентации электронных спинов от плотности накачки объясняется насыщением каналов безызлучательной рекомбинации. Определено время захвата неравновесных электронов на центры рекомбинации ($\tau_e = 5 \cdot 10^{-9}$ с). Приводится оценка температуры неравновесных электронов при нагреве излучением Не–Ne-лазера.

1. Наличие каналов безызлучательной рекомбинации в активном слое полупроводниковых инжекционных лазеров уменьшает эффективность их работы, приводит к увеличению порогового тока генерации. В ряде работ [1,2] изучалась динамика рекомбинации носителей в гетероструктурах с использованием метода спектроскопии с разрешением во времени и было показано, что время жизни неравновесных носителей с увеличением плотности накачки растет из-за насыщения центров безызлучательной рекомбинации. Несомненным преимуществом этого метода является возможность прямого измерения затухания рекомбинационного излучения во времени. Однако освещение образцов лазерными световыми импульсами пикосекундной длительности с неизбежностью ограничивает его возможности. Из-за образования насыщенных центров безызлучательной рекомбинации в момент импульсного возбуждения и постепенного высвобождения их со временем скорость затухания люминесценции будет изменяться, и поэтому связь времени жизни и концентрации носителей может быть установлена только посредством довольно сложных вычислений [3,4]. Это обстоятельство при определенной наглядности метода может привести к потере точности определения релаксационных времен. Можно также заметить, что высокие значения отношений периода импульсов к их длительности не позволяют понизить интенсивность в импульсе до уровней, которых можно достичь в стационарных условиях возбуждения.

Использование метода оптической ориентации электронных спинов [5] для измерения релаксационных времен помогает преодолеть указанные ограничения. Метод основан на сравнении времен рекомбинации и спиновой релаксации электронов с периодом прецессии их среднего спина во внешнем магнитном поле B (эффект Ханле). Эксперименты проводятся в стационарных условиях, так что измеренные времена жизни соответствуют фиксированным концентрациям носителей. В данной работе исследовалась кинетика электронов в активном слое полупроводниковой лазерной гетероструктуры. Она состояла из слоев твердого раствора $Al_xGa_{1-x}As$ с разным содержанием алюминия. При увеличении плотности возбуждения наблюдалось уменьшение степени ориентации спинов неравновесных электронов, которое является следствием увеличения времени жизни в результате выключения канала безызлучательной рекомбинации. Согласие экспериментальных данных с рассчитанными значениями, полученными из уравнений баланса, позволило определить времена захвата носителей заряда на центры.

2. В качестве образца использовалась гетероструктура на подложке из арсенида галлия. Она состояла из $n-p-p^+$ -слоев Al_xGa_{1-x}As с различным содержанием алюминия. На рис. 1 показано положение зоны проводимости (E_c) и валентной зоны (E_v) относительно уровня Ферми (E_F) в зависимости от расстояния до облучаемой поверхности, подобно диаграмме, рассмотренной в работе [6]. Слои дырочной проводимости легированы цинком с концентрацией ~ 10^{18} см⁻³.



Рис. 1. Пространственно-энергетическая диаграмма гетероструктуры. E_c — край зоны проводимости, E_v — край валентной зоны, E_F — уровень Ферми.

[¶] E-mail: dzhioev@orient.ioffe.ru

Исследовался "активный слой" твердого раствора *p*-типа проводимости с $x \approx 0.2$ и толщиной ~ 2 мкм между двумя слоями: один из них — Al_xGa_{1-x}As с x > 0.72, *n*-типа проводимости, толщиной 18 мкм, второй — *p*⁺-слой, толщиной 7.5 мкм, содержание A1 в котором менялось от x = 0.39 до 0.25. Подложка впоследствии была стравлена полностью. В результате образец представлял собой тонкую пластинку размером 3×3 мм с зеркальной поверхностью со стороны AlGaAs и увеличивающимся к границе активного слоя содержанием алюминия до x = 0.39.

Образец ориентировался нормально к падающему лучу лазера. Измерялась степень циркулярной поляризации люминесценции "активного слоя" при комнатной температуре. Фотолюминесценция (ФЛ) возбуждалась циркулярно поляризованным лучом Не-Ne-лазера (длина волны возбуждения $\lambda_{exc} = 632.8$ нм), проходящим через внешний слой полупроводникового твердого раствора р-типа проводимости. Исследуемая полоса краевой люминесценции активного слоя отделена от полосы люминесценции внешнего *p*-AlGaAs. По результатам работы [7] можно сделать заключение, что для данного образца влиянием диффузии фотовозбужденных носителей из внешнего слоя в активную область можно пренебречь. Следовательно, рекомбинацию в активном слое можно рассматривать независимо от процессов во внешних слоях. С противоположной стороны исследуемого слоя была диффузно отражающая свет травленая поверхность n-AlGaAs.

Измерительная установка была собрана на базе двухрешеточного спектрометра. Анализатором поляризации люминесценции служила сборка: фотоупругий модулятор и линейный поляризатор [8]. Принципиальная схема установки практически идентична показанной в [5] (с. 169). В канал возбуждения помещался контроллер мощности, и возбуждающий луч падал на зеркальную поверхность образца (слой p^+ -Al_xGa_{1-x}As) под малым углом к нормали (см. рис. 2 в [9]). Диаметр пятна контролировался и при разных измерениях составлял ~ (200–300) мкм.

При межзонном возбуждении краевая люминесценция представляет собой широкую (полушириной, т.е. шириной на полувысоте, ~ 50 мэВ) полосу, обусловленную в основном оптическими переходами зона-зона [10]. Степень поляризации в пределах полуширины меняется слабо. Далее приводятся результаты измерения на максимуме интенсивности (длина волны $\lambda_{reg} = 740$ нм).

Степень циркулярной поляризации ФЛ ρ уменьшается с ростом интенсивности возбуждения P и выходит почти на постоянный уровень, ~ 0, 5% (рис. 2). Зависимость степени поляризации от интенсивности возбуждения воспроизводится для всех длин волн в пределах контура ФЛ и является следствием увеличения эффективного времени жизни $\tau_{\rm eff}$ электронов в зоне проводимости. Эффективное временя жизни электронов определяется соотношением $\tau_{\rm eff}^{-1} = \tau_r^{-1} + \tau_{nr}^{-1}$, где τ_r — излучательное время жизни, τ_{nr} — безызлучательное время жизни,



Рис. 2. Экспериментально измеренные интенсивность, степень поляризации ФЛ (точки) и расчет этих величин (сплошные линии) по формулам (1)–(5) при значениях параметров $\alpha = 3.8 \cdot 10^{-9}$, $\beta = 10.5$. На вставке — ход поляризации при увеличении интенсивности возбуждения до 4.8 Вт/см².

учитывающее рекомбинацию через глубокие центры и на интерфейсах. Это обусловлено присутствием в активном слое центров безызлучательной рекомбинации. Действительно, характерной особенностью канала рекомбинации через центры является его насыщение и как следствие увеличение времени жизни неравновесных электронов [2].

3. Степень циркулярной поляризации ФЛ в полупроводнике *p*-типа проводимости при рекомбинации ориентированных по спину электронов связана с $\tau_{\rm eff}$ выражением

$$\rho = 0.25 \frac{\tau_S}{\tau_S + \tau_{\text{eff}}},\tag{1}$$

где τ_S — время спиновой релаксации электронов. Времена τ_{eff} и τ_S определяют характерное время существования спиновой ориентации электронов T_S :

$$\frac{1}{T_S} = \frac{1}{\tau_S} + \frac{1}{\tau_{\text{eff}}}.$$
(2)

При этом T_S можно определить экспериментально по ширине кривой деполяризации ФЛ в поперечном магнитном поле (рис. 4):

$$\frac{1}{T_S} = \frac{g\mu}{h} \Delta B_{1/2},\tag{3}$$

где g-g-фактор электрона в зоне проводимости, μ — магнетон Бора, h — постоянная Планка, $\Delta B_{1/2}$ — магнитное поле, при котором степень поляризации ФЛ падает в 2 раза. Значение g-фактора электронов для исследуемого слоя твердого раствора Al_{0.2}Ga_{0.8}As равно g = 0.3 [11].

Экспериментально установлено, что при интенсивностях возбуждения до $P = 1.2 \,\mathrm{Bt/cm^2}$ полуширины кривых деполяризации практически не меняются (рис. 3), т.е. время существования спиновой ориентации не зависит от интенсивности накачки. Поскольку степень



Рис. 3. Нормированные кривые Ханле для двух различных интенсивностей возбуждения: 0.5 и 1.2 Вт/см² (точки). Сплошная линия — лорентцевский контур.

поляризации люминесценции довольно мала, $\rho \sim 1\%$, выполняется соотношение $\tau_S \ll \tau_{\text{eff}}$ и, следовательно, T_S определяется в основном величиной τ_S . Соотношения (1), (2), (3) совместно с экспериментально измеренным значением степени циркулярной поляризации ρ позволяют определить время спиновой релаксации τ_S и эффективное время жизни τ_{eff} . В пределе нулевой интенсивности возбуждения эти времена стремятся к значениям $\tau_{\text{eff}} = 5 \cdot 10^{-9}$ с, $\tau_S = 2 \cdot 10^{-10}$ с.

Следует отметить, что при таком уровне накачки, когда рекомбинация через центры насыщается и значение ρ близко к 0.5%, эффективное время жизни можно считать равным излучательному: $\tau_{\rm eff} = \tau_r = 10^{-8}$ с. Тогда время безызлучательной рекомбинации в пределе нулевой интенсивности возбуждения получится $\tau_{nr} = 10^{-8}$ с.

Оценить параметры центров безызлучательной рекомбинации можно, определив зависимость степени поляризации ФЛ от интенсивности возбуждения из уравнений баланса, в которых учтена рекомбинация через центры безызлучательной рекомбинации, и сравнив ее с экспериментальной.

Эффективное время жизни электронов в зоне проводимости выражается как

$$\tau_{\rm eff} = \frac{n}{J},\tag{4}$$

где *J* — темп генерации электронов, *n* — стационарная концентрация неравновесных электронов в зоне проводимости.

Стационарная концентрация электронов в зоне проводимости определяется генерацией электронов, характеризуемой темпом генерации *J*, и процессами рекомбинации, среди которых в любом прямозонном материале присутствует излучательная рекомбинация. Однако хорошо известно, что в материале *p*-типа проводимости степень циркулярной поляризации ФЛ не зависит от интенсивности возбуждения. Количественно зависимость стационарной концентрации электронов от интенсивности возбуждения можно определить из условий баланса генерируемых светом и рекомбинирующих электронов, описываемых системой уравнений, которые учитывают излучательную рекомбинацию и рекомбинацию через центры безызлучательной рекомбинации:

$$\frac{dn}{dt} = J - \frac{n}{\tau_e} \frac{N_e}{N_{\Sigma}} - \frac{n}{\tau_r},$$

$$\frac{dN_h}{dt} = \frac{n}{\tau_e} \frac{N_e}{N_{\Sigma}} - \frac{p}{\tau_h} \frac{N_h}{N_{\Sigma}},$$

$$N_h + N_e = N_{\Sigma},$$
(5)

 N_{Σ} — концентрация центров рекомбинации, N_e — концентрация центров рекомбинации, готовых захватить электрон, N_h — концентрация центров рекомбинации, готовых захватить дырку, τ_e — время захвата электрона на центр, если все центры заняты дырками, τ_h — время захвата дырки на центр, если все центры заняты электронами, p — концентрация дырок в материале.

С учетом того что при слабых накачках в полупроводнике *p*-типа концентрация дырок практически равна концентрации легирующей примеси $N_A \sim 10^{18}$ см⁻³, решением системы уравнений (5) в стационарном случае будет выражение, отражающее зависимость концентрации электронов *n* от темпа их генерации *J*:

$$n = \frac{-(1+\beta-\gamma J\tau_r) + \sqrt{(1+\beta-\gamma J\tau_r)^2 + 4\gamma J\tau_r}}{2\gamma}, \quad (6)$$

где $\gamma = (\tau_h/\tau_e)(1/p)$ — отношение времен захвата на центр для дырки и электрона, деленное на концентрацию дырок, $\beta = \tau_r/\tau_e$ — отношение излучательного времени жизни и времени захвата электрона на центр.

Полученные из (6) значения *п* позволяют определить эффективное время жизни из (4) и степень циркулярной поляризации ФЛ из (1) в зависимости от плотности накачки. Результаты расчета приведены на рис. 1 сплошной линией. Наилучшего соответствия между экспериментальными данными и результатами расчета удается добиться при значениях параметров $\gamma = 5 \cdot 10^{-9}, \beta = 2$. Полученные значения параметров γ и β позволяют оценить времена: $\tau_e = 5 \cdot 10^{-9}$ с, $\tau_h = 25$ с. Отношение времен захвата центром электрона и дырки $\tau_h/\tau_e = p\gamma = 2.5 \cdot 10^{10}$, т.е. захват электрона на центр происходит значительно быстрее, чем захват дырки. Это свидетельствует о том, что практически во всем реализованном диапазоне изменения плотности накачки центры можно считать занятыми основными носителями, т.е. дырками.

Следует заметить, что от образца тепло специально не отводилось; следовательно, при дальнейшем увеличении интенсивности возбуждения до 5 Вт/см² происходил его нагрев, что привело к уширению кривых деполяризации и уменьшению степени ориентации электронных спинов (см. вставку на рис. 2). При этом увеличение полуширины кривых практически пропорционально относительному падению степени поляризации. Эти изменения обусловлены уменьшением времени спиновой релаксации τ_S , поскольку при полученных выше значениях $\tau_S \ll \tau_{\rm eff}$ ($\tau_{\rm eff} = 5 \cdot 10^{-9}$ с, $\tau_S = 2 \cdot 10^{-10}$ с). В соответствии с выражениями (1) и (2) полуширина кривой деполяризации и степень поляризации должны быть обратно пропорциональны времени спиновой релаксации τ_S , что и наблюдается в эксперименте.

В условиях нашего эксперимента механизм спиновой релаксации Дьяконова–Переля наиболее эффективен [12]. Время спиновой релаксации в соответствии с механизмом Дьяконова–Переля связано с температурой следующим выражением [5] (с. 75, формула (3.40)):

$$\frac{1}{\tau_S} = Q_1 \alpha^2 \, \frac{(kT)^3}{E_g \hbar^2} \, \tau_p,\tag{7}$$

где Q_1 — размерный коэффициент порядка 1, E_g — ширина запрещенной зоны материала, в нашем случае $E_g \approx 1.7$ эВ, α — параметр спин-орбитального взаимодействия электронов в зоне проводимости, $\alpha = 0.07$, τ_p — время релаксации импульса, k — постоянная Больцмана, \hbar — приведенная постоянная Планка.

Таким образом, уменьшение τ_S указывает на рост температуры образца. Определение температуры в локальной точке нагрева лазерным лучом с помощью анализа фотолюминесценции проводилось, например, в работе [13]. В нашем случае оценить степень нагрева можно, используя температурную зависимость времени релаксации импульса τ_p . Если учитывать только рассеяние на акустических фононах, то зависимость $\tau_p(T)$ представляется простым соотношением (см. [5], с. 92):

$$\tau_p = AT^{-3/2},\tag{8}$$

где А — константа, которую в нашем случае можно определить из экспериментальных данных при низком уровне возбуждения, т.е. когда температура образца не выше T = 300 К. Используя соотношения (7), получаем: $A = 1.66 \cdot 10^{-10}$. При этом время релаксации импульса при 300 К $\tau_p = 3.2 \cdot 10^{-14}$ с. Подставив полученные значения в (7) и используя измеренную при большой интенсивности накачки ($P = 4.8 \, \text{Bt/cm}^2$) величину времени спиновой релаксации ($\tau_S = 10^{-10} \,\mathrm{c}$), можно оценить температуру. Оценка показывает, что температура равна 476 К. Значение температуры, по-видимому, завышено, так как с увеличением температуры возрастает число носителей с большей энергией, эффективно рассеивающихся на оптических фононах с характерной энергией $\hbar \omega = 36.13$ мэВ. В таком случае температура не должна существенно превышать значение $T \approx 412$ K. Количественный учет влияния рассеяния носителей на оптических фононах на время импульсной релаксации представляет существенные трудности. Проведенная оценка роста температуры близка к результату расчета, выполненного в работе [14].

Аналогичные измерения при температуре жидкого азота показали, что степень ориентации электронов остается постоянной в рассмотренном диапазоне плотностей оптического возбуждения. Это свидетельствует о том, что при $T = 77 \,\mathrm{K}$ центры безызлучательной рекомбинации изначально заполнены практически полностью. Безызлучательная рекомбинация существенно повышает порог генерации полупроводникового лазера, работающего при комнатной температуре. Заметим, что полупроводниковый лазер, изготовленный из аналогичной структуры, имеющий термический контакт с массивным, охлаждаемым жидким азотом медным диском, имел пороговый ток почти на порядок ниже, чем при комнатной температуре.

Методом оптической ориентации электронных спинов исследована динамика рекомбинации в активном слое полупроводниковой лазерной структуры. Измерение поляризации краевой люминесценции в зависимости от плотности накачки проявило процесс насыщения канала безызлучательной рекомбинации. Определены времена жизни, спиновой релаксации и время захвата неравновесных электронов на центры безызлучательной рекомбинации.

Работа частично поддержана Министерством образования и науки РФ (контракт № 11.G34.31.0067 с СПбГУ и ведущим ученым А.В. Кавокиным); контракт № 14.Z50.31.0021 с ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН и ведущим ученым М. Байером).

Список литературы

- R.K. Ahrenkiel, B.M. Keyes, D.J. Dunlavy. J. Appl. Phys., 70, 225 (1991).
- [2] R.K. Ahrenkiel. Solid-State Electron., 35 (3), 239 (1992).
- [3] G.W.'t Hooft, C. van Opdorp. J. Appl. Phys., 60 (3), 1065 (1986).
- [4] D.C. Marvin, S.C. Moss, L.F. Halle. J. Appl. Phys., 72 (5), 1970 (1992).
- [5] Оптическая ориентация, под ред. Б.П. Захарчени и Ф. Майера (Л., Наука, 1989) с. 169.
- [6] H.C. Casey, jr., B.I. Miller, E. Pinkas. J. Appl. Phys., 44 (3), 1281 (1973).
- [7] Д.З. Гарбузов, И.А. Меркулов, В.А. Новиков, В.Г. Флейшер. ФТП, 10 (5), 934 (1976).
- [8] S.N. Jasperson, S.E. Schnatterly, Rev. Sci. Instrum., 40, 761 (1969).
- [9] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, V.I. Safarov. Phys. Rev. B, 15 (10), 5780 (1977).
- [10] L. Pavesi, M. Guui. J. Appl. Phys., 75 (10), 4779 (1994).
- [11] D.J. Chadi, A.H. Clark, R.D. Durnham. Phys. Rev., 13 (10), 4466 (1976).
- [12] A.H. Clark, R.D. Burnham, D.J. Chadi, R.M. White. Phys. Rev. B, 12 (12), 5758 (1975).
- [13] P.S. Dobal, H.D. Bist, S.K. Mehta, R.K. Jain. Appl. Phys. Lett., 65 (19), 7 (1994).
- [14] M. Lax. J. Appl. Phys., 48 (9), 3919 (1977).

Редактор Л.В. Шаронова

Dynamics of carrier recombination in semiconductor laser structure

R.I. Dzhioev⁺, K.V.Kavokin^{+*}, Yu.G. Kusraev⁺, N.K.Poletaev⁺

+ loffe Institute,

194021 St. Petersburg, Russia

* Saint Petersburg State University,

199034 St. Petersburg, Russia

Abstract Charge carrier recombination dynamics has been studied by the method of optical orientation at room temperature in the active layer of the laser diode structure. Dependence of electron spin orientation degree on the excitation density is explained as being due to saturation of nonradiative recombination channel. Electron capture time on recombination centers is determined to be $5 \cdot 10^{-9}$ s. The magnitude of the temperature is given for electrons heated by He–Ne laser.