

УДК 621.315

©1993

СПЕКТРАЛЬНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ЭФФЕКТА ХАНЛЕ, ОБУСЛОВЛЕННАЯ ДИФФУЗИЕЙ ОПТИЧЕСКИ ОРИЕНТИРОВАННЫХ ЭЛЕКТРОНОВ В ПОЛУПРОВОДНИКАХ *p*-ТИПА

Р.И.Джисоев, Б.П.Захарченя, Р.Р.Ичкитидзе, К.В.Кавокин, П.Е.Пак

Приведены результаты подробного теоретического и экспериментального исследования поляризации люминесценции оптически ориентированных электронов, диффундирующих в слоях прямозонного полупроводника *p*-типа (GaAs) при наличии самопоглощения. Работа включает в себя расчет степени циркулярной поляризации на различных длинах волн рекомбинационного излучения и ее зависимости от поперечного магнитного поля (эффект Ханле) для «полубесконечного» образца с учетом поверхностной рекомбинации. Приводится сравнение результатов расчета с данными эксперимента. Для тонких слоев GaAs (с толщиной порядка диффузионной длины электронов) исследована спиновая поляризация люминесценции в геометрии «на просвет» и «на отражение». Показана необходимость учета диффузии и самопоглощения при определении релаксационных времен электронов методом оптической ориентации.

1. Полоса межзонной люминесценции в прямозонных полупроводниках находится вблизи края фундаментального поглощения, т.е. в области, где коэффициент поглощения сильно зависит от длины волны света. Люминесценция, исходящая из какой-либо точки в толще кристалла, частично поглощается (самопоглощение). При облучении поверхности кристалла светом с энергией квантов $E_{h\nu} \geq E_g$ пространственное распределение фотовозбужденных носителей в основном обусловлено их диффузией в глубь образца и рекомбинацией.¹ На разных длинах волн λ регистрируется рекомбинационное излучение электронов и дырок, находящихся на расстояниях $Z \leq \alpha^{-1}(\lambda)$ (α — коэффициент поглощения от поверхности кристалла. Диффузионный уход носителей из этой области приводит к уменьшению эффективного времени жизни, что в условиях оптической ориентации [1] может быть причиной изменения степени поляризации рекомбинационного излучения и ее зависимости от магнитного поля (эффект Ханле) на участке спектра, где $\alpha^{-1} < L$ (L — диффузионная длина электронов.)

Сущность рассматриваемого явления можно проиллюстрировать следующим образом. Учтем, что вероятность $W_p(z, t)$ рекомбинации фотовозбужденного электрона в момент времени t после его рождения определяется не только временем жизни τ , но и вероятностью

¹ В исследованных нами слоях GaAs влияния переизлучения не обнаружено.

$[1/(Dt)^{1/2}] \exp(-Z^2/Dt)$ того, что за время t он продиффундировал на глубину Z (D — коэффициент диффузии). При этом W_p оказывается неэкспоненциальной функцией времени и имеет максимум при некотором t' , зависящем от Z . Таким образом, пространственное положение точки рекомбинации определяет средний интервал времени от момента возбуждения носителя до его рекомбинации в этой точке. В условиях оптической ориентации это приводит к появлению зависимости степени циркулярной поляризации рекомбинационного излучения ρ от расстояния Z . Измеряемая на эксперименте интегральная по Z величина ρ является функцией коэффициента поглощения, который в свою очередь зависит от длины волны рекомбинационного излучения λ . При этом информацию о пространственном распределении излучателей, установившемся в результате диффузии, дает функция $\rho(\lambda)$.

Для полубесконечного образца

$$\rho(\lambda) = \int_0^{\infty} \rho(Z) I(Z) e^{-\alpha(\lambda)Z} dZ \Big/ \int_0^{\infty} I(Z) e^{-\alpha(\lambda)Z} dZ, \quad (1)$$

где $I(Z)$ — полная интенсивность люминесценции, излучаемой на расстоянии Z от поверхности.

Следует отметить, что обсуждаемый в настоящей работе эффект наблюдается при рекомбинации нелокализованных носителей и должен учитываться при традиционных измерениях времен жизни и спиновой релаксации методом оптической ориентации.

2. Рассмотрим полубесконечный образец. Ограничимся случаем полупроводника p -типа, где интенсивность излучения $I(Z)$ пропорциональна концентрации фотовозбужденных электронов $n(Z)$. Поскольку в реальном эксперименте размер пятна возбуждающего света на поверхности образца много больше диффузионной длины электронов L , диффузию будем рассматривать только по оси Z , направленной вдоль нормали к поверхности.

Влиянием поперечного магнитного поля на диффузию электронов пренебрегаем, поскольку подвижность электронов μ_e в легированных p -GaAs ($p \approx 5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$) не превышает $2 \cdot 10^3 \text{ см}^2 / \text{В} \cdot \text{с}$ [2], и для величин магнитных полей, применяемых в наших экспериментах, параметр $\mu_e^2 H^2 / c^2 \ll 1$ [3].

В стационарных условиях уравнения диффузии для концентрации электронов n и плотности их спина S в магнитном поле, перпендикулярном лучу возбуждающего света, имеют вид

$$D \frac{d^2 n(Z)}{dZ^2} - \frac{n(Z)}{\tau} + \alpha J \zeta_e e^{-\alpha_0 Z} = 0,$$

$$D \frac{d^2 S(Z)}{dZ^2} - \frac{S(Z)}{T_s} - i\omega S(Z) + 0.25\alpha_0 J \zeta_e e^{-\alpha_0 Z} = 0, \quad (2)$$

где D — коэффициент диффузии электронов, τ — время жизни электронов, J — интенсивность возбуждающего света, ζ_e — квантовый выход рождения электронно-дырочных пар поглощенными фотонами (обычно $\zeta_e = 1$), α_0 — коэффициент поглощения на длине волны возбуждения,

$T_s = (\tau^{-1} + \tau_s^{-1})$, τ_s — время спиновой релаксации, $S(Z) = S_z(Z) + iS_x(Z)$, $S_z(Z)$ и $S_x(Z)$ — компоненты плотности спина, $\omega = \mu_B g H / \hbar$ — частота ларморовой прецессии, μ_B — магнетон Бора, g — g -фактор электрона в кристалле. Магнитное поле считается направленным вдоль оси y .

Граничные условия на поверхности образца и при $z \rightarrow \infty$ имеют вид

$$D \frac{dn(Z)}{dZ} \Big|_{z=0} = \eta n(0), \quad D \frac{dS(Z)}{dZ} \Big|_{z=0} = \eta S(0),$$

$$n(Z) \Big|_{z=\infty} = 0, \quad S(Z) \Big|_{z=\infty} = 0,$$

η — скорость поверхностной рекомбинации.

Подставляя решения уравнений (2) в (1), легко получить выражение для степени циркулярной поляризации люминесценции в зависимости от длины волны и магнитного поля

$$\rho(\lambda, H) = 0.25 \frac{T_s L}{\tau L_s} \frac{\operatorname{Re} \left[\left(\frac{1}{\eta L_s / D + \Omega} + \frac{1}{(\alpha + \alpha_0) L_s} \right) (\alpha L_s + \Omega)^{-1} (\alpha_0 L_s + \Omega)^{-1} \right]}{\left(\frac{1}{1 + \eta L / D} + \frac{1}{(\alpha + \alpha_0) L} \right) (1 + \alpha L)^{-1} (1 + \alpha_0 L)^{-1}}, \quad (3)$$

где $\Omega = (1 + i\omega T_s)^{1/2}$, $L_s = (D T_s)^{1/2}$, $L = (D \tau)^{1/2}$.

На длинноволновом участке спектра, где $\alpha L \gg 1$, и при малой скорости поверхностной рекомбинации ($\eta L / D \ll 1$) для фиксированной длины волны λ_L люминесценции (3) превращается в хорошо известную лоренцевскую зависимость

$$\rho(\lambda_L, H) = 0.25 \frac{T_s}{\tau} \frac{1}{1 + \omega^2 T_s^2}. \quad (4)$$

3. Образцы представляли собой используемые для производства фотокатодов «инверсные» структуры GaAs-Al_{0,6}Ga_{0,4}As-стекло [4]. Структура n -Al_{0,6}Ga_{0,4}As- p -GaAs- p -Al_{0,6}Ga_{0,4}As выращивалась на плоскости (111)A подложки из GaAs методом жидкостной эпитаксии из ограниченного объема раствора-расплава толщиной 0.5 мм в температурном интервале 850–750°С со скоростью охлаждения 0.5 град/мин. Активный слой p -GaAs толщиной 8 мкм легировался германием до уровня $3 \div 5 \cdot 10^{18}$ см⁻³. Буферный слой p -Al_{0,6}Ga_{0,4}As толщиной 1–2 мкм легировался также германием до уровня $5-8 \cdot 10^{17}$ см⁻³, покрывался слоем SiO₂ толщиной 150–200 нм. Затем данная структура сплавлялась со стеклом марки С-52 методом термокомпрессии. В дальнейшем подложка и стопорный слой n -Al_{0,6}Ga_{0,4}As удалялись химическим травлением. Обнажившаяся поверхность активного слоя, имеющая ориентацию (111)В, обрабатывалась в полирующем серноперекисном травителе.

Ниже приведены результаты измерений для образцов с толщинами активного слоя 8 и 5 мкм (толщина 5 мкм получена из исходного образца травлением).

4. Эксперименты проводились при комнатной температуре. Возбуждение осуществлялось циркулярно-поляризованным излучением криптонового лазера ($\lambda_b = 752.5$ нм), падающим нормально к поверхности

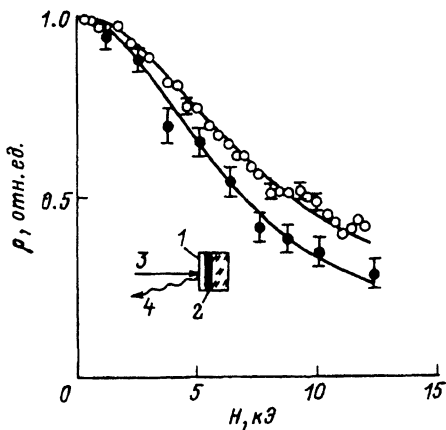


Рис. 1. Зависимости степени циркулярной поляризации люминесценции от поперечного магнитного поля $\rho(\lambda_1, H)$ (светлые точки), $\rho(\lambda_2, H)$ (темные точки) при возбуждении через свободную поверхность. $\lambda_1 = 825$, $\lambda_2 = 900$ нм. 300 К, GaAs:Ge, $d = 8$ мкм. Сплошные линии рассчитаны по (3) при параметрах: $T_s = 4.4 \cdot 10^{-11}$ с, $\eta = 7 \cdot 10^5$ см/с, $D = 70$ см²/с. На вставке: 1 — GaAs, 2 — GaAlAs, 3 — возбуждение, 4 — люминесценция.

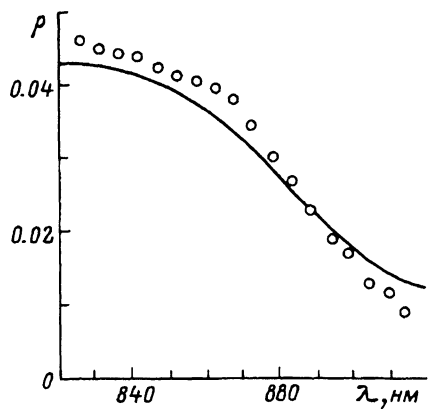


Рис. 2. Зависимость $\rho(\lambda)$ при $H = 0$ (возбуждение через свободную поверхность).

Погрешность измерений не превышает размера кружков. Сплошная линия рассчитана по (3) при параметрах: $T_s = 4.4 \cdot 10^{-11}$ с, $\eta = 7 \cdot 10^5$ см/с, $D = 70$ см²/с, $\tau = 2.3 \cdot 10^{-9}$ с.

образца. По методике, описанной в [5], была измерена степень циркулярной люминесценции в направлении вдоль возбуждающего луча (геометрия на «просвет») или под малым углом к нему (геометрия на «отражение»). Измерения проводились на разных участках полосы межзонной рекомбинации, выделяемых двухрешеточным монохроматором. Отдельно была измерена спектральная зависимость коэффициента поглощения $\alpha(\lambda)$ для активного слоя.

На рисунках приведены результаты измерений степени циркулярной поляризации $\rho(\lambda_{1,2}, H)$ и $\rho(\lambda, 0)$ при возбуждении люминесценции в слое p -GaAs толщиной $d = 8$ мкм через свободную поверхность (рис. 1, 2) и через широкозонное «окно» $\text{Al}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}$ (рис. 3, 4).

Малые значения степени циркулярной поляризации $\rho(\lambda, 0)$ в данных образцах (рис. 2, 4) показывают, что выполнено условие $T_s \ll \tau$ и, следовательно, $L_s \ll L$, так что можно полностью пренебречь влиянием второй поверхности на распределение плотности спина в образце с толщиной порядка или больше диффузионной длины электронов (для p -GaAs с уровнем легирования $3-5 \cdot 10^{18}$ см⁻³ характерны величины диффузионных длин в 4-5 мкм [6]). Необходимо, вообще говоря, учитывать влияние второй поверхности на распределение концентрации электронов. Однако расчеты показывают, что для образца с $d = 8$ мкм соответствующая поправка мала и для зависимости $\rho(\lambda, H)$ можно пользоваться простой формулой (3).

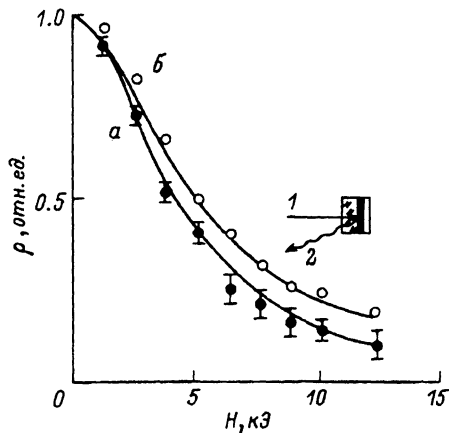


Рис. 3. Зависимости степени циркулярной поляризации люминесценции от поперечного магнитного поля $\rho(\lambda_1, H)$ (светлые точки), $\rho(\lambda_2, H)$ (темные точки) при возбуждении через гетерограницу. $\lambda_1 = 825$ нм, $\lambda_2 = 900$ нм.

300 К, GaAs:Ge, $d = 8$ мкм. Сплошные линии рассчитаны по (3) при параметрах: $T_s = 4.4 \cdot 10^{-11}$ с, $T_I = 6 \cdot 10^{-11}$ с, $\eta = 0$, $D = 70$ см²/с. На вставке: 1 — возбуждение, 2 — люминесценция.

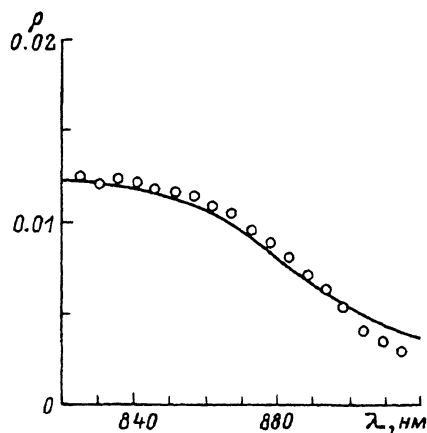


Рис. 4. Зависимость $\rho(\lambda)$ при $H = 0$ (возбуждение через гетерограницу).

300 К, GaAs:Ge, $d = 8$ мкм. Погрешность измерений не превышает размера кружков. Сплошная линия рассчитана по (3) при параметрах: $T_s = 4.4 \cdot 10^{-11}$ с, $T_I = 6 \cdot 10^{-11}$ с, $\eta = 0$, $D = 70$ см²/с, $\tau = 2.3 \cdot 10^{-8}$ с, $\tau_I = 3.6 \cdot 10^{-9}$ с.

Из экспериментальных зависимостей (рис. 1–4) можно определить параметры T_s , D , η , τ следующим образом.

1. Рассчитанные по формуле (3) кривые, совпадающие с ходом экспериментальных точек, проводить сначала для нормированных к единице значений $\rho(\lambda_2, H)$ ($\lambda_2 = 900$ нм), полученных при возбуждении слоя p -GaAs через широкозонный твердый раствор $Al_{0.6}Ga_{0.4}As$ (кривая a на рис. 3). В этом случае можно пренебрегать влиянием диффузии ($\alpha(\lambda_2)L_s \ll 1$) и скоростью поверхностной рекомбинации. Зависимость $\rho(\lambda_2, H)$ близка к лоренцевской и описывается упрощенной формулой (4). Отсюда определяется единственный подгоночный параметр T_s .

2. Значение T_s используется для подгонки по параметру D расчетной кривой к зависимости $\rho(\lambda_1, H)$ ($\lambda_1 = 825$ нм) (кривая b на рис. 3).

3. Зависимость $\rho(\lambda, 0)$ (рис. 4) при возбуждении через широкозонное окно с использованием известных параметров T_s и D дает значение τ — времени жизни в объеме кристалла.

4. Аналогичная обработка экспериментальных результатов при возбуждении образца через свободную поверхность (рис. 1,2) при известных уже параметрах T_s , D и τ однозначно дает величину скорости поверхностной рекомбинации η .

Однако наши эксперименты с возбуждением люминесценции через широкозонный твердый раствор обнаруживают изгиб краев зон и существенное увеличение времени жизни неравновесных носителей вблизи гетерограницы. Это может быть обусловлено, в частности, наличием объемного заряда или же существованием тонкого компенсированного слоя

GaAs вблизи гетерограницы. Возрастание времени жизни при этом обусловлено барьерным разделением электронов и дырок [7].

При уровнях легирования $p \sim 3-5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ наиболее вероятным механизмом спиновой релаксации электронов в широкой области температур является рассеяние на свободных дырках [1]. Пространственное разделение электронов и дырок вблизи гетерограницы может также приводить в этом случае к замедлению спиновой релаксации, что и наблюдается на опыте.

Очевидно, что приведенный выше способ обработки экспериментальных зависимостей $\rho(\lambda, H)$ здесь неправомерен, так как определенные при возбуждении люминесценции со стороны гетерограницы значения параметров T_s и τ оказываются завышенными и уже не являются характерными для объема кристалла.

Чтобы избежать неоднозначности в интерпретации экспериментальных данных, мы использовали результаты исследования пространственного распределения электронов в слое GaAs по зависимости отношения интенсивностей люминесценции в геометрии «на просвет» и «на отражение» $I_{\text{пр}}(\lambda)/I_{\text{отр}}(\lambda)$ от длины волны [8]. Этот метод также основан на эффекте самопоглощения люминесценции. При стационарном возбуждении вблизи одной из поверхностей неоднородное пространственное распределение электронов, установившееся в результате диффузии и рекомбинации, приводит к тому, что величина $I_{\text{пр}}(\lambda)/I_{\text{отр}}(\lambda)$, близкая к единице в длинноволновой области спектра, где коэффициент поглощения мал, падает по мере роста λ с уменьшением длины волны люминесценции.

Расчет и экспериментальная зависимость $I_{\text{пр}}(\lambda)/I_{\text{отр}}(\lambda)$ с описанием методики измерения приведены в [8], где исследования были выполнены для таких же образцов, что и в данной работе. Толщина области объемного заряда для уровней легирования 10^{18} см^{-3} обычно порядка 10^{-6} см , что много меньше длины диффузии электронов, и влияние объемного заряда на определяемые в [8] параметры ($L = 4 \text{ мкм}$, $\eta\tau/L = 4$) несущественно. С использованием этих значений по формуле (3) были получены сплошные линии (рис. 1,2) точки отражают экспериментальные зависимости $\rho(\lambda, H)$ при возбуждении через свободную поверхность. Подгоночными параметрами служили времена жизни электронов и их среднего спина τ и T_s в объеме кристалла. Наилучшее согласие с экспериментом достигнуто при значениях $\tau = 2.3 \cdot 10^{-9} \text{ с}$ и $T_s = 4.4 \cdot 10^{-11} \text{ с}$. Отсюда можно определить $D = L^2/\tau = 70 \text{ см}^2/\text{с}$ и $\eta = 7 \cdot 10^5 \text{ см/с}$. Небольшое расхождение экспериментальной и расчетной зависимостей $\rho(\lambda, 0)$ (рис. 2) скорее всего связано с остаточной одноосной деформацией сжатия вдоль нормали слоев [9,10].

Расчитанные по (3) с использованием определенных уже параметров зависимости для случая возбуждения через широкозонное «окно» (рис. 3,4) отличаются от измеренных, согласно которым времена τ и T_s получаются значительно длиннее объемных. Объяснение этого расхождения вполне укладывается в соображения, приведенные нами выше.

Поясним еще раз ситуацию при возбуждении носителей со стороны гетерограницы. а) Искривление краев зон вблизи гетерограницы создает барьер для электронов и тем самым повышает концентрацию их в этой области, в то время как дырки из этой области оттянуты в глубь слоя. б) Значения эффективных времен жизни электронов τ_l и их спиновой

ориентации T_I оказываются больше значений объемных времен τ и T_s .
 в) Ширина барьера порядка сотен ангстрем, что много меньше диффузионных длин I_s, L и величин $\alpha_0^{-1}, \alpha^{-1}$. Поэтому влияние интерфейса можно учесть в расчете следующим образом: множитель в формуле (3), определяющий значение степени поляризации в нулевом магнитном поле $0.25T_s/\tau$, и T_s , задающее темп магнитной деполяризации, заменяются на $0.25T_1/\tau_1$ и T_1 соответственно, а диффузионная длина электронов и их среднего спина остается неизменной, т.е. в формуле (3) множитель, ответственный за форму зависимости $\rho(\lambda, H)$, не меняется.

На рис. 3,4 расчетные кривые проведены при следующих параметрах: эффективное время жизни электронов $\tau_I = 3.6 \cdot 10^{-9}$ с, эффективное время жизни ориентированного состояния в этой же области $T_I = 6 \cdot 10^{11}$ с, $L = (D\tau)^{1/2}$, $L_s = (DT_s)^{1/2}$ ($\tau = 2.3 \cdot 10^{-9}$ с, $T_s = 4.4 \cdot 10^{-11}$ с).

При анализе пространственного распределения электронов в образце необходимо учитывать возможность их переноса путем переизлучения. Надо отметить, что оптическая ориентация позволяет выделить вклады радиационного и диффузионного механизмов в электронный транспорт. Действительно, правила отбора для излучательных переходов приводят к тому, что в акте переизлучения средний спин электрона практически полностью теряется [1]. В результате форма кривых магнитной деполяризации $\rho(H)$ не подвержена влиянию переизлучения и отражает лишь диффузионное движение электронов. В то же время переизлучение должно в полной мере сказываться на зависимостях $\rho(\lambda)$. Однако экспериментальные зависимости $\rho(\lambda)$ и $\rho(H)$ хорошо согласуются с расчетами, выполненными при одном и том же значении коэффициента диффузии $D = 70$ см²/с. Это указывает на отсутствие заметного влияния переизлучения на пространственное распределение электронов в данных образцах из-за большого вклада безызлучательной рекомбинации.

5. В заключение приведем результаты экспериментов, выполненных на аналогичной структуре с толщиной слоя $d = 5$ мкм, где были измерены зависимости $\rho(\lambda)$ при возбуждении через свободную поверхность в геометрии «на просвет» (кривая *a* на рис. 5) и «на отражение» (кривая *б*), явно демонстрирующие диффузионную природу спектральной зависимости степени поляризации люминесценции. Обе зависимости (рис. 5, светлые и темные точки) в длинноволновой области сходятся, что свидетельствует

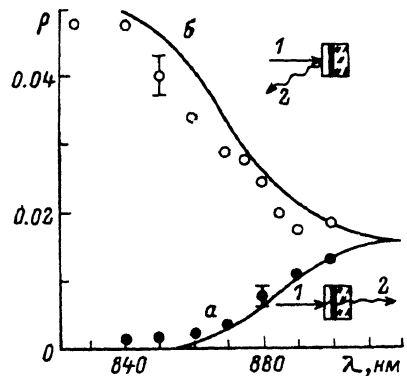


Рис. 5. Зависимость $\rho(\lambda)$ при $H = 0$ (возбуждение через свободную поверхность) в геометрии «на отражение» (светлые точки) и «на просвет» (темные точки).

300 К, GaAs:Ge, $d = 5$ мкм. Сплошные линии рассчитаны путем решения упрощенного ($H = 0$) уравнения (2) с граничными условиями на обеих поверхностях. На вставках: 1 — возбуждение, 2 — люминесценция.

ет о том, что в обоих случаях здесь регистрируется рекомбинационное излучение фотовозбужденных электронов со всего объема.

В геометрии «на просвет» в коротковолновом участке спектра наблюдается уменьшение степени поляризации люминесценции почти до нуля, так как регистрируется рекомбинационное излучение тех электронов, которые продифундировали от одной поверхности до другой и успели практически полностью потерять спиновую ориентацию. Большие значения ρ на коротковолновом участке полосы люминесценции в геометрии «на отражение» объясняются, как отмечалось выше, уменьшением эффективного времени жизни фотовозбужденных электронов за счет диффузионного оттока их от поверхности.

Из полученных результатов можно сделать вывод, что диффузия электронов является важным фактором, влияющим на поляризацию люминесценции при оптической ориентации в прямозонных полупроводниках. Пренебрежение этим фактором способно привести к ошибкам в измерениях релаксационных времен по эффекту Ханле. В то же время его последовательный учет дает возможность найти ряд дополнительных параметров, характеризующих транспорт и рекомбинацию электронов в исследуемых структурах.

Авторы признательны М.С.Бреслеру, М.Е.Левинштейну и И.А.Меркулову за полезные замечания.

Список литературы

- [1] Оптическая ориентация. Современные проблемы науки о конденсированных средах /Под ред. Б.П.Захарчени и Ф.Майера. Л.: Наука, 1989.
- [2] Walukiewicz W., Lagowski J., Jastrebski L., Gatos H.C. // J. Appl. Phys. 1979. V. 50. N 7. P. 5040–5042.
- [3] Бонч-Бруевич В.Л., Калашников С.Г. Физика полупроводников. М.: Наука, 1977.
- [4] Andre J.P., Guittard P., Hallais J., Piaget C. // J. Cryst. Growth. 1981. V. 55. N 2. P. 235–245.
- [5] Кульков В.Д., Калевич В.К. /ПТЭ. 1980. № 5. С. 196–198.
- [6] Wight D.R., Oliver P.E., Prentice T., Steward V.W. // J. Cryst. Growth. 1981. V. 55. P. 183–191.
- [7] Шейкман М.К., Шик А.Я. // ФТП. 1976. Т. 10. № 2. С. 209–232.
- [8] Джюев Р.И., Кавокин К.В. // ФТТ. 1991. Т. 33. № 10. С. 2928–2931.
- [9] Векуа В.Л., Джюев Р.И., Ивченко Е.Л., Флейшер В.Г., Захарченя Б.П. // ФТП. 1975. Т. 9. № 1. С. 169–171.
- [10] Берковиц Л.Л., Сафаров В.И., Титков А.И. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1976. Т. 40. No 11. С. 2346–2349.

Физико-технический институт
им.А.Ф.Иоффе РАН
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию
20 июля 1993 г.