

## «ОПТИЧЕСКАЯ ОТКАЧКА» СПИНОВ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА СТИМУЛИРОВАННОЙ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЕЙ

Джиоев Р. И., Кавокин К. В., Кусраев Ю. Г., Меркулов И. А.

Оптическая ориентация носителей тока в полупроводниках обычно осуществляется путем «оптической накачки» — рождением ориентированных носителей при поглощении циркулярно поляризованного (ЦП) света. Приводятся результаты экспериментов, выполненных по другой методике, когда ориентация создается в среде с инверсной населенностью уровней при рекомбинации под действием индуцированных переходов, вызванных ЦП светом. При ЦП возбуждении в режиме индуцированной люминесценции такая «оптическая откачка» способна компенсировать «оптическую накачку», так что средний спин носителей оказывается равным нулю. В проведенных экспериментах откачка спинов приводила к поляризации электронов, которая наблюдалась по поляризации люминесценции. Приводится простая теоретическая модель явления, которая удовлетворительно описывает результаты эксперимента.

При поглощении циркулярно поляризованного (ЦП) света в полупроводниках рождаются ориентированные по спину носители (оптическая накачка). В среде с инверсной населенностью уровней аналогичный эффект вызывает индуцированные оптические переходы. Стимулированное ЦП светом опустошение электронных состояний приводит к возникновению неравновесного среднего спина носителей заряда. Такое явление мы в дальнейшем будем называть «оптической откачкой».

Обычно спиновая ориентация проявляется в возникновении циркулярной поляризации спонтанной люминесценции [1]. Поляризация стимулированной люминесценции при ЦП возбуждении впервые исследована в работах [2, 3] на кристаллах РbТе. При переходе в режим лазерной генерации наблюдалось резкое возрастание степени циркулярной поляризации рекомбинационного излучения, сопровождающееся падением ориентации носителей [3]. «Откачка» спинов сильно поляризованной люминесценцией полностью компенсировала их накачку возбуждающим светом.

В настоящей работе приводятся результаты теоретического и экспериментального исследования ориентации носителей и поляризации люминесценции арсенида галлия *p*-типа в магнитном поле как при спонтанной, так и при индуцированной люминесценции. Возбуждение осуществлялось неполяризованным светом. В таких условиях поляризация носителей связана либо с релаксацией среднего спина к термодинамическому значению, либо с оптической откачкой. Последняя детектировалась непосредственно по обратному знаку циркулярной поляризации спонтанной люминесценции, спектрально отделенной от линии генерации.

*Теоретическая модель.* Рассмотрим спонтанную и индуцированную люминесценцию в кристалле *p*-GaAs, охлажденном до достаточно низкой температуры, при которой все дырки локализованы на акцепторных центрах. Будем считать, что даже в условиях стимулированной люминесценции время жизни дырок велико по сравнению с их временем спиновой релаксации. Тогда в слабом магнитном поле для распределения дырок на акцепторах по подуровням основного состояния можно воспользоваться обычной высокотемпературной формулой

$$p_m = \frac{1}{4} + \frac{4}{5} \langle F_z \rangle m, \quad \langle F \rangle = \frac{5}{4} \frac{\mu g_h \mathbf{H}}{k \Theta_h} \ll 1, \quad (1)$$

где  $m$  — проекция полного углового момента связанной дырки ( $|F| = 3/2$ ) на направление  $\mathbf{H}$ ,  $\langle F \rangle$  — среднее значение  $F$  в этом поле,  $\mu$  — магнетон Бора,  $g_h$  —  $g$ -фактор связанной дырки,  $\Theta_h$  — спиновая температура дырок.

В то же время поляризация фотовозбужденных электронов может оказаться существенно неравновесной, так как время их спиновой релаксации сравнимо с временем жизни  $\tau$ . Далее будет показано, что в режиме стимулированной люминесценции и концентрация ( $n$ ), и плотность спина ( $S = sn$ ) фотоэлектронов зависят от поляризации ( $\rho$ ) и числа фотонов ( $N$ ) люминесценции в единице объема. Будем считать, что имеется всего две распространяющиеся вдоль оси  $z$  генерационные моды, поляризованные по правому и левому кругам. Тогда сумма ( $N = N_+ + N_-$ ) и разность ( $P = N_+ - N_- = \rho N$ ) концентраций фотонов, относящихся к этим модам, связаны с  $n$  и  $S$  следующими уравнениями баланса:

$$\begin{aligned} \dot{n} &= G - wnN - ws_z P + wn \langle F_z \rangle P - \frac{n}{\tau}, \\ \dot{S} &= G s_i - wNS - \frac{1}{4} wnP e_z + \frac{2}{5} wnN \langle F_z \rangle e_z - \frac{S}{\tau} - \frac{S - s_0 n}{\tau_s} + [\Omega \times S], \\ \dot{N} &= -\frac{N}{T} + wnN + ws_z P - wnP \langle F_z \rangle + z \frac{n}{\tau}, \\ \dot{P} &= -\frac{P}{T} + wnP + ws_z N - wnN \langle F_z \rangle + z \frac{s_z}{\tau} - z \frac{n}{\tau} \langle F_z \rangle, \end{aligned} \quad (2)$$

где  $T$  — время жизни фотона люминесценции в кристалле,  $G$  — скорость генерации,  $s_i$  — средний спин рождающихся фотоэлектронов (в описанных далее экспериментах  $s_i = 0$ ),  $w$  — параметр, описывающий вероятность индуцированных оптических переходов,<sup>1</sup>  $\kappa/\tau$  — вероятность спонтанной рекомбинации с испусканием фотона в одну из генерационных мод,  $e_z$  — единичный вектор вдоль оси генерации,  $s_0$  и  $\Omega$  — термодинамически равновесное значение и частота ларморовой прецессии электронного спина в поле  $\mathbf{H}$ :

$$s_0 = -\frac{1}{4} \frac{\mu g_e \mathbf{H}}{k \Theta_e}, \quad \Omega = \frac{\mu g_e \mathbf{H}}{\hbar}, \quad (3)$$

$g_e$  —  $g$ -фактор электронов,  $\Theta_e$  — их спиновая температура.

В (1)–(3) мы воспользовались высокотемпературным приближением для  $\langle F \rangle$  и  $s_0$ , справедливым в слабом магнитном поле.<sup>2</sup> В рамках этого приближения  $|\langle F \rangle|$  и  $|s_0|$  малы по сравнению с единицей. Малым оказывается и средний спин фотоэлектронов ( $s = S/n$ ). Поэтому в (2) опущены члены  $(S \langle F \rangle) \sim \sim (\mu \mathbf{H}/k \Theta)^2$ . Заметим, что при  $\mathbf{H} = 0$  уравнения (2) совпадают с соответствующими формулами работы [3], в которых в случае GaAs следует положить  $u/w = 1/2$ .

Исследуем стационарные решения системы (2) при  $s_i = 0$ . В случае слабой накачки  $G \ll G_1 = (wT\tau)^{-1}$  эти уравнения дают обычные формулы для поляризации и концентрации электронов и фотонов:

$$n = G\tau, \quad s = s_0 \frac{\tau}{\tau + \tau_s} = s_0 \frac{T_s}{\tau_s}, \quad N = \kappa G, \quad \rho = \frac{P}{N} = \langle F_z \rangle - s_{0z}, \quad (4)$$

где  $T_s = \tau\tau_s/(\tau + \tau_s)$  — полное время жизни ориентированных носителей. Видно, что в отсутствие спиновой релаксации электронов ( $\tau_s \gg \tau$ ) их средний спин равен нулю и поляризация люминесценции определяется исключительно намагничиванием дырок.

<sup>1</sup> В уравнении (2) использованы конкретные правила отбора оптических переходов в кристаллах арсенида галлия.

<sup>2</sup> Для GaAs при  $\Theta_e \approx \Theta_h \approx 2$  К высокотемпературное приближение справедливо для  $H \lesssim 10$  кЭ, что соответствует условиям описанного далее эксперимента.

В пределе сильной накачки  $G \gg G_3 = G_1 \frac{\tau}{T_s} (1 + \Omega T_s)$  поляризация люминесценции вызывает заметную ориентацию спинов электронов. Стационарное решение (2) здесь имеет вид

$$n = (wT)^{-1}, \quad (5)$$

$$N = GT - (w\tau)^{-1}, \quad (6)$$

$$s = \langle F_z \rangle \mathbf{e}_z, \quad (7)$$

$$\rho = \frac{P}{N} = -\frac{12}{5} \langle F_z \rangle. \quad (8)$$

При этом, как и в [3], коэффициенты усиления обеих поляризованных по правому и левому кругам мод оказываются одинаковыми. Однако теперь это условие удовлетворяется для отличного от нуля значения среднего спина электронов. Отметим, что в случае арсенида галлия из правил отбора следует, что в ста-

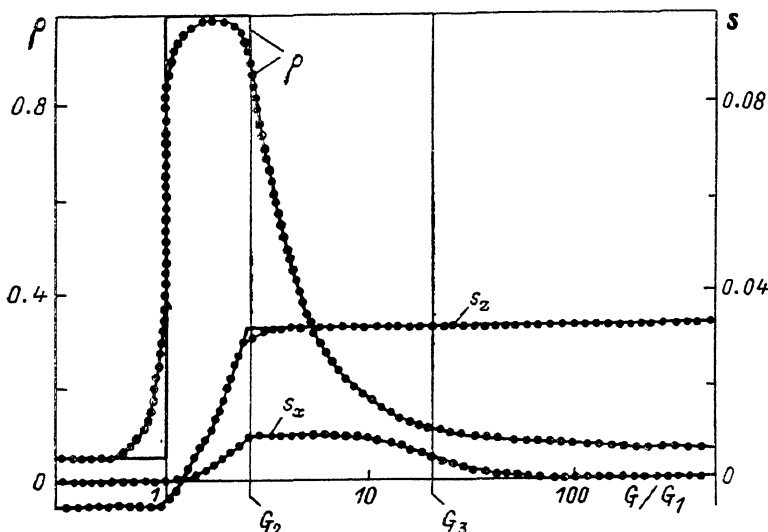


Рис. 1. Теоретические зависимости  $\rho(G)$  и  $s(G)$ , полученные аналитически (сплошные линии) и численно при  $\kappa = 10^{-3}$  (точки).

ционарном состоянии в области интенсивной генерации средний спин электронов равен спину дырок.

При произвольных значениях параметров задачи стационарные решения системы уравнений (2) в промежуточной области значений интенсивностей накачки ( $G_1 < G < G_3$ ) удается определить лишь путем численных расчетов на ЭВМ. Однако в предельном случае, когда  $\kappa \ll \langle F_z \rangle \sim s_{0z} \ll 1$ , зависимости  $n, s, N, P$  от  $G$  могут быть найдены аналитически. Оказывается, что формулы (5), (6) остаются справедливыми во всей промежуточной области, а компоненты среднего спина электронов связаны с  $P$  и  $N$  простыми соотношениями

$$s_z = \frac{wT_s(-0.25P + 0.4N \langle F_z \rangle)}{wT_s N + 1} \left[ 1 - \frac{(\Omega_y T_s)^2}{(wT_s N + 1)^2 + (\Omega T_s)^2} \right] + \frac{s_{0z} T_s}{\tau_s (wT_s N + 1)}, \quad (9)$$

$$s_x = \frac{wT_s^2 \Omega (-0.25P + 0.4N \langle F_z \rangle)}{(wT_s N + 1)^2 + (\Omega T_s)^2}, \quad s_y = \frac{T_s}{wT_s N + 1} \left( \frac{s_{0y}}{\tau_s} + \Omega_x s_x \right). \quad (10)$$

(Здесь мы для определенности считали, что магнитное поле  $\mathbf{H}$  лежит в плоскости  $yz$ ). Таким образом, для шести неизвестных мы имеем пять линейных уравнений, справедливых при любой интенсивности накачки ( $G > G_1$ ). Шестое соотношение также оказывается линейным, но существенно различно для разных значений  $G$ .

Если интенсивность накачки достаточно высока

$$G > G_2 = G_1 + \frac{4}{wT} \left| \frac{s_{0z}}{\tau_s} - \frac{\langle F_z \rangle}{T_s} \right| \left( 1 + \frac{(\Omega_y T_s)^2}{1 + (\Omega_x T_s)^2} \right), \quad (11)$$

то это соотношение дает z-проекцию спина электрона и совпадает с формулой (7). В этом случае (9) является уравнением поляризации света ( $\rho = \dot{P}/N$ ).

При  $G_1 < G < G_2$  этому решению соответствует нефизическое значение поляризации ( $\rho > 100\%$ ). Здесь реализуется другое состояние, в котором  $P = N$  ( $\rho = 100\%$ ), а (9) служит для определения  $s_z$ . Смена решения в точке  $G = G_2$  аналогична рассмотренному в [3] переходу от одного стационарного состояния к другому при увеличении поляризации рождающихся частиц. Заметим, что при малых  $\langle F \rangle$  и  $s_0$  область существования состояния с предельной поляризацией мала. Для того чтобы она вообще существовала, порог генерации должен быть достаточно резким. Этому и соответствует условие  $\kappa \ll \langle F \rangle$ , s.

На рис. 1, а приводится сопоставление полученных теоретических формул с данными численного расчета, выполненного на ЭВМ, для следующих значений параметров:  $\omega T = 3.3$ ,  $\omega \tau_s = 0.1$ ,  $\omega \tau = 1$ ,  $|\langle F \rangle| = 0.04$ . Угол между направлением генерации и  $N$  взят равным  $0.5$  рад. Видно, что в полном согласии с приближенными формулами поляризация люминесценции мала в спонтанной области ( $G < G_1$ ), резко возрастает при переходе в генерационный режим ( $G \approx G_1$ ), остается практически постоянной в области  $G_1 < G < G_2$  и медленно уменьшается до  $\approx 7\%$  при увеличении интенсивности накачки от  $G_2$  до  $G \gg G_3$ . В промежуточной области ( $G_1 < G < G_2$ ) появляется заметный неравновесный спин, направление которого, вообще говоря, не совпадает ни с направлением генерации, ни с направлением магнитного поля  $N$ . При больших энергиях накачки ( $G \gg G_3$ ) s ориентирован вдоль оси z.

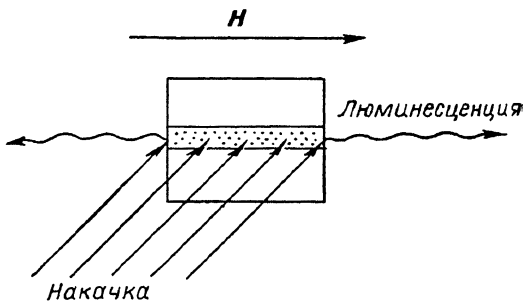


Рис. 2. Геометрия эксперимента.

Все эти качественные закономерности сохраняются и для произвольных значений параметров задачи. Однако переходы между различными режимами люминесценции для не слишком малых значений  $\kappa$  будут размытыми, а поляризация люминесценции в промежуточной области может оказаться меньше  $100\%$ .

**Эксперимент.** Исследовался эпитаксиальный слой  $p$ -GaAs с избыточной концентрацией примеси  $p = N_A - N_D = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ . Образец возбуждался импульсным лазером на парах меди ( $\lambda = 5782$  и  $5106 \text{ \AA}$ ). Частота следования импульсов составляла  $10 \text{ кГц}$ , длительность —  $20 \text{ нс}$ . Две сколотые грани (100) кристалла служили зеркалами резонатора. Длина резонатора около  $3 \text{ мм}$ . С помощью цилиндрической линзы пучок возбуждающего света фокусировался так, что фотоносители возбуждались в узкой полоске, перпендикулярной сколотым граням кристалла (рис. 2). Магнитное поле до  $3 \text{ кЭ}$  прикладывалось к образцу вдоль этой полоски, и в этом же направлении регистрировалось рекомбинационное излучение, степень циркулярной поляризации которого измерялась по методике, описанной в [4].

При умеренных плотностях накачки ( $J \leq 5 \cdot 10^4 \text{ Вт/см}^2$ ) в спектре стимулированного излучения доминирует линия, соответствующая донорно-акцепторному переходу ( $\lambda_1 = 8300 \text{ \AA}$ ). С увеличением плотности накачки разгорается вторая линия, энергетическое положение которой соответствует переходу зона—акцептор ( $\lambda_2 = 8280 \text{ \AA}$ ). При плотности возбуждения  $J \geq 5 \cdot 10^5 \text{ Вт/см}^2$  вторая линия становится преобладающей. Полуширины линий стимулированного излучения составляли величину  $\approx 2 \text{ мэВ}$ . Отметим, что магнитное поле  $\approx 3 \text{ кЭ}$  приводило к заметному росту интенсивности излучения на обоих переходах.

На рис. 3 приведены зависимости интенсивности и поляризации люминесценции от длины волны  $\lambda$  при плотности возбуждения  $J = 5 \cdot 10^4$  (а) и  $5 \cdot 10^5 \text{ Вт/см}^2$  (б). Видно, что с увеличением уровня накачки спектр поляризации заметно расширяется. Это связано с тем, что с ростом интенсивности воз-

буждения поляризация в максимуме линии излучения насыщается, в то время как поляризация на крыльях линии продолжает расти.

Кроме линий генерации  $\lambda_1=8300$  и  $\lambda_2=8280$  Å, в спектре наблюдается крайняя люминесценция  $\lambda_3=8220$  Å. С ростом интенсивности возбуждающего света эта линия сдвигается в длинноволновую сторону, что соответствует уменьше-

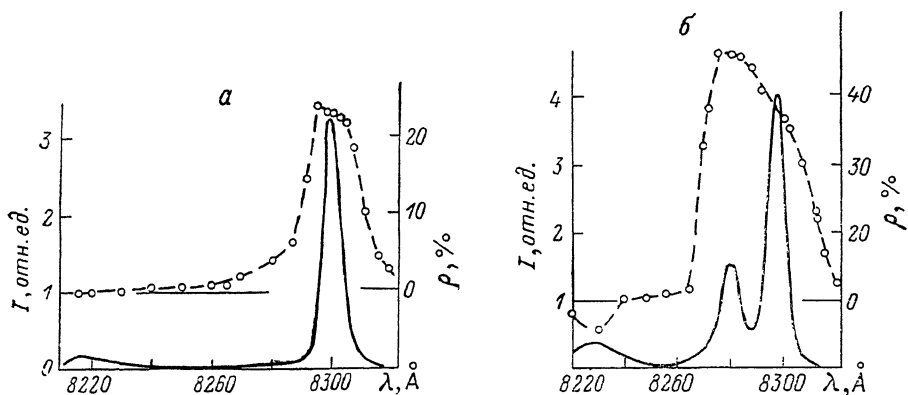


Рис. 3. Спектр интенсивности (сплошные линии) и поляризации (точки) люминесценции.  
 $J \cdot 10^{-2}$ , Вт/см<sup>2</sup>: а — 0,5, б — 5.

нию ширины запрещенной зоны при увеличении концентрации электронно-дырочной плазмы. Как можно видеть из рис. 3, при высокой мощности накачки поляризация этой линии в магнитном поле становится отрицательной (по отношению к поляризации линий  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$ ).

На рис. 4 приведены зависимости степени циркулярной поляризации линий генерации  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  от мощности накачки. Качественно эти зависимости ве-

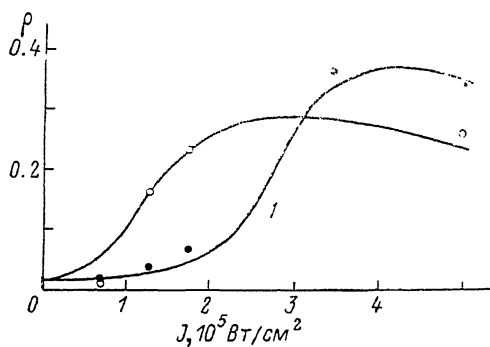


Рис. 4. Зависимость поляризации излучения от плотности возбуждения для переходов зона—акцептор (1) и донор—акцептор (2). Сплошные кривые проведены в соответствии с численным расчетом.

дут себя одинаково (наблюдаются сверхлинейный рост при малых значениях плотности накачки и насыщение при больших  $J$ ). Сплошные линии проведены в соответствии с теоретическим расчетом, выполненным при следующих значениях параметров: для  $\lambda_1$   $w\tau_s=0.065$ ,  $wT=3$ ,  $w\tau=1.5$ ,  $\alpha=0.06$ ; для  $\lambda_2$   $w\tau_s=0.065$ ,  $wT=3$ ,  $w\tau=0.5$ ,  $\alpha=0.012$ .

Обсудим полученные результаты. Предложенная простая теоретическая модель удовлетворительно описывает зависимость поляризации люминесценции от интенсивности накачки для обеих линий генерации. Как нетрудно увидеть, из нее следует и наблюдавшийся экспериментально обратный

знак поляризации межзонной люминесценции. Действительно, в области устойчивой генерации эффект оптической откачки приводит к возникновению значительного неравновесного спина электронов [см. формулу (7) и рис. 1], компенсирующего в циркулярном дихроизме усиления вклад от равновесной намагниченности локализованных на акцепторах дырок  $\langle F \rangle$ . Поляризация свободных дырок в валентной зоне определяется кинетической температурой, и их средний спин меньше  $\langle F \rangle$ . Неравновесный спин электронов при межзонном переходе оказывается нескомпенсированным, что и проявляется в обратном знаке поляризации линии люминесценции  $\lambda_3$ .<sup>3</sup>

<sup>3</sup> Отсутствие намагничивания свободных дырок непосредственно следует из измерений поляризации люминесценции при слабой интенсивности накачки, когда линии  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  еще

Следует отметить, что рассмотренная выше простейшая модель не позволяет описать распределение интенсивности между линиями люминесценции и зависимость их интенсивности от магнитного поля. Такие расчеты требуют более детальных представлений о спектре состояний, участвующих в рекомбинации электронов и дырок, механизмах установления распределения фотоносителей по этим состояниям и механизмах безызлучательной рекомбинации.

Авторы благодарны Б. П. Захарчене и В. Г. Флейшеру за полезные обсуждения, И. Я. Карлику за помощь в организации численных расчетов.

#### Л и т е р а т у р а

- [1] Optical orientation. Mod. Prob. Matt. Sci. V. 8. Amsterdam, 1984. 523 p.
- [2] Данишевский А. М. // ФТТ. 1987. Т. 29. В. 4. С. 1006—1010.
- [3] Захарченя Б. П., Бреслер М. С., Гусев О. Б., Меркулов И. А. // ДАН СССР. 1987. Т. 297. В. 3. С. 584—587.
- [4] Калевич В. К., Флейшер В. Г., Кульков В. Д. // ПТЭ. 1978. № 1. С. 188—192.

Физико-технический институт  
им. А. Ф. Иоффе АН СССР  
Ленинград

Получена 2.07.1988  
Принята к печати 2.08.1988

---

не вышли в генерационный режим. В этих условиях линия  $\lambda_3$  не поляризована и, следовательно, средний спин носителей мал. Поскольку при больших интенсивностях накачки температура свободных дырок может лишь дополнительно возрасти, их равновесная поляризация останется пренебрежимо малой.