

На правах рукописи

Алымов Георгий Вадимович

**ТЕОРИЯ ТЕРАГЕРЦОВОЙ ЛАЗЕРНОЙ  
ГЕНЕРАЦИИ В УЗКОЗОННЫХ  
ПОЛУПРОВОДНИКАХ**

Специальность 01.04.07 —  
«Физика конденсированного состояния»

Автореферат  
диссертации на соискание учёной степени  
кандидата физико-математических наук

Долгопрудный — 2020

Работа выполнена в Федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)»

Научный руководитель: кандидат физико-математических наук  
**Свинцов Дмитрий Александрович**

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова Российской академии наук

Защита состоится \_\_\_\_ . \_\_\_\_ . 2020 в \_\_\_\_ : \_\_\_\_ на заседании диссертационного совета \_\_\_\_\_ при Московском физико-техническом институте по адресу: Московская область, г. Долгопрудный, Институтский переулок, д. 9.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке МФТИ и на сайте института: <https://mipt.ru/education/post-graduate/soiskateli-fiziko-matematicheskie-nauki.php>.

Автореферат разослан « \_\_\_\_ » \_\_\_\_\_ 2020 года.

Ученый секретарь  
диссертационного совета  
\_\_\_\_\_

канд. физ.-мат. наук, доцент  
Токунов Юрий Матвеевич

## Общая характеристика работы

### Актуальность темы исследования

Терагерцовое излучение (0.1–10 ТГц), расположенное на шкале частот между радиоволнами и оптическим диапазоном, сохраняет характерную для радиоволн способность проникать во многие материалы на макроскопическую глубину, обладая при этом более высокой частотой и меньшей длиной волны, что делает его привлекательным для медицинской диагностики, систем безопасности и беспроводной связи. Кроме того, в терагерцовом диапазоне лежат многие характерные частоты в различных материалах, такие как частоты колебательных и вращательных переходов в молекулах, частоты фононов и двумерных плазмонов в твёрдых телах, обратные времена рассеяния носителей в полупроводниках и т. д., из-за чего он находит широкое применение в спектроскопии.

Однако генерация терагерцового (ТГц) излучения оказывается нетривиальной задачей, так как многие источники электромагнитного излучения либо вообще неспособны работать в ТГц диапазоне, либо сильно теряют в эффективности (так называемая «терагерцовая дыра»). Так, быстродействие радиоэлектронных приборов, таких как диоды Ганна, резонансно-туннельные диоды, IMPATT- и TUNNET-диоды, схемы на полевых, биполярных и НЕМТ-транзисторах, а также умножители частоты на диодах Шоттки, ограничено частотами 1–2 ТГц, при этом мощность генерируемого излучения выше 1 ТГц лежит в микроваттном диапазоне. Лазерные диоды на основе полупроводников  $A^{III}B^V$  работают в более коротковолновой области из-за недостаточно узкой запрещённой зоны. Существуют источники ТГц излучения с выходной мощностью в единицы мВт и более, но при этом более громоздкие по сравнению с полупроводниковыми приборами; к таким источникам относятся лампы обратной волны и другие электровакуумные приборы, терагерцовые молекулярные лазеры и схемы, использующие конверсию инфракрасного излучения в терагерцовое. Лазеры на *p*-легированном германии имеют выходную мощность до  $\sim 10$  Вт, но требуют больших электрических и магнитных полей и работают при температурах ниже 40 К.

Одними из наиболее практичных источников ТГц излучения являются квантово-каскадные лазеры (ККЛ), работающие в диапазоне 1–5 ТГц с типичной выходной мощностью в единицы мВт при 77 К. Генерация терагерцовых разностных гармоник в инфракрасных ККЛ позволила поднять рабочую тем-

пературу до комнатной при выходной мощности в десятки мкВт. К сожалению, сильное решёточное поглощение вблизи частот оптических фононов не позволяет традиционным GaAs/AlGaAs ККЛ работать в диапазоне 5–10 ТГц. Кроме того, производство ККЛ требует выращивания множества квантовых ям с высокой точностью, из-за чего один лазер стоит сотни тысяч рублей и более (на момент написания диссертации).

Более дешёвой альтернативой ККЛ могли бы стать лазерные диоды на основе материалов с запрещённой зоной в ТГц диапазоне. Однако с уменьшением ширины запрещённой зоны резко возрастает темп оже-рекомбинации, в результате чего уже для InAlSb лазеров, генерирующих на длине волны 4 мкм, рабочая температура снижается до 165 К.

Существует, однако, класс материалов, в котором можно ожидать сильного подавления оже-рекомбинации из-за того, что выполнение законов сохранения затруднено. Это так называемые дираковские материалы, в которых закон дисперсии приближённо описывается формулой  $E = \pm \sqrt{v_0^2 p^2 + E_g^2/4}$ , аналогичной закону дисперсии релятивистских электронов в вакууме. При таком законе дисперсии оже-процессы низшего порядка оказываются запрещены, так же как электрон в вакууме не может самопроизвольно породить электрон-позитронную пару, поэтому оже-рекомбинация возможна только либо за счёт отклонения реального закона дисперсии от дираковского, либо за счёт процессов с участием более трёх носителей.

Возможность использования лазерных диодов на основе дираковских материалов для генерации ТГц излучения подтверждается существованием лазеров на PbSnSe, генерирующих вплоть до 46.5 мкм (6.5 ТГц) [1]. Однако из-за технологических проблем (высокого остаточного легирования) работа этих лазеров в ТГц диапазоне требует гелиевых температур.

Известны и другие дираковские материалы, для которых уже существуют технологии изготовления высококачественных гетероструктур с низким остаточным легированием. К таким материалам относятся графен и квантовые ямы из теллурида кадмия-ртути. В этих материалах уже наблюдалось вынужденное излучение — на 5.2 ТГц при 100 К в графене с электрической накачкой [2] и на 15 ТГц при 20 К в ямах из теллурида кадмия-ртути с оптической накачкой [3], однако ТГц инжекционные лазеры на ямах из теллурида кадмия-ртути пока не были реализованы, а в графене достигнутая мощность генерации составляет всего 0.1 мкВт.

В свете вышесказанного представляется актуальным теоретическое исследование возможностей лазерных диодов на основе графена и теллурида кадмия-ртути и определение их ключевых характеристик, таких как достижимый частотный диапазон генерации, рабочая температура и пороговые токи.

### **Степень разработанности темы исследования**

Имеются теоретические исследования, демонстрирующие возможность оптического усиления на ТГц частотах в графене; в последующих работах были предложены конструкции лазерных диодов на основе графена. Также для этого материала проводились расчёты темпов излучательной рекомбинации, рекомбинации с испусканием фононов и плазмонов и оже-рекомбинации [4–6].

В работе [4] было показано, что трёхчастичная оже-рекомбинация в графене разрешена только для случая коллинеарных импульсов носителей. В дальнейшем было показано, что динамическое экранирование подавляет коллинеарные процессы, и для получения ненулевого темпа оже-рекомбинации требуется учёт межэлектронного рассеяния [5]. В отдельных работах «размытие» корневой особенности диэлектрической проницаемости для коллинеарных процессов было учтено приближённым образом [5; 6], однако единого рассмотрения оже-рекомбинации в графене с учётом всех ключевых эффектов межэлектронного взаимодействия, таких как размытие и искривление дираковского конуса, а также наличие плазмонных полюсов в экранированном кулоновском взаимодействии, до сих пор не было в литературе.

В теллуриде кадмия-ртути темп оже-рекомбинации рассчитывался для объёмного материала и сверхрешёток; в квантовых ямах расчёты проводились только в среднем ИК-диапазоне и в приближении параболических зон. Для квантовых ям дальнего ИК и ТГц диапазона рассчитывались только энергетические пороги оже-рекомбинации и темп излучательной рекомбинации. Также теоретически показана возможность ТГц генерации в квантово-каскадных лазерах и на разностных гармониках в ИК лазерных диодах на основе квантовых ям из этого материала; исследование возможности прямой ТГц генерации на межзонных переходах пока ограничивается расчётами оптической проводимости в условиях инверсии населённостей и экспериментами по получению вынужденного излучения на всё больших длинах волн при оптической накачке [3].

## Цели и задачи

Целью данной работы является теоретическое исследование возможности межзонной лазерной генерации в ТГц диапазоне в узкозонных полупроводниках на примере графена и квантовых ям из теллурида кадмия-ртути.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие задачи:

1. Разработать метод расчёта темпа оже-рекомбинации в материалах с дираковским законом дисперсии, в которых обычные трёхчастичные оже-процессы запрещены законами сохранения энергии и импульса.
2. Разработать программу для расчёта темпа безызлучательной рекомбинации в графене с учётом влияния межэлектронного взаимодействия на спектр носителей.
3. Разработать программу для расчёта темпа оже-рекомбинации и оптической проводимости в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути с учётом непараболичности зон и наличия множества подзон размерного квантования.
4. Рассчитать закон дисперсии двумерных плазмонов и границу области межзонных переходов в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути.
5. Определить пороговые концентрации носителей, при которых рекомбинация с испусканием плазмонов в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути становится разрешена законами сохранения.
6. Разработать программу для расчёта темпа рекомбинации с испусканием плазмонов в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути.
7. Рассчитать темп рекомбинации в графене, инкапсулированном в различные диэлектрики и при различных температурах.
8. Рассчитать темп рекомбинации в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути различной толщины при различных температурах.
9. Сравнить полученные результаты с известными экспериментальными данными.
10. Оценить пороговые токи, необходимые для достижения ТГц лазерной генерации в лазерных диодах на основе графена и квантовых ям из теллурида кадмия-ртути.
11. Оценить рабочие температуры и достижимый диапазон частот генерации в лазерных диодах на основе графена и квантовых ям из теллурида кадмия-ртути.

## Положения, выносимые на защиту

1. Оже-рекомбинация в материалах с дираковским законом дисперсии, номинально запрещённая законами сохранения энергии и импульса, становится возможной при учёте уширения спектра носителей из-за их рассеяния друг на друге. Расчёты, выполненные методом неравновесных функций Грина в самосогласованном  $GW$ -приближении, показывают, что время оже-рекомбинации в слабо неравновесном нелегированном графене приблизительно обратно пропорционально температуре и составляет 1–3 пс при 300 К для диэлектрических проницаемостей окружения  $\kappa = 5$ –25.
2. В узких квантовых ямах HgTe с шириной запрещённой зоны 20–40 мэВ пороговые энергии оже-рекомбинации достигают 20–30 мэВ из-за близких эффективных масс электронов и дырок и непараболичности зон. В результате времена оже-рекомбинации увеличиваются на полтора–два порядка при 77 К по сравнению с гипотетической ситуацией большой электрон-дырочной асимметрии, характерной для полупроводников  $A^{III}B^V$ , и составляют 40–140 пс. Вместе с малыми частотами оптических фононов ( $< 5$  ТГц) это создаёт благоприятные условия для межзонной лазерной генерации в диапазоне 6–10 ТГц, недоступном для существующих квантово-каскадных лазеров.
3. Рекомбинация с испусканием плазмонов в квантовых ямах HgTe имеет порог по концентрации неравновесных носителей, возникающий из-за ограничений, накладываемых законами сохранения энергии и импульса. Пороговый процесс рекомбинации для ям толщиной от 4.5 до 7.3 нм при 77 К соответствует переходу электрона из минимума зоны проводимости в побочный максимум валентной зоны с испусканием плазмона. Снижение температуры приводит к экспоненциальному уменьшению количества дырок в побочном максимуме валентной зоны и, соответственно, к подавлению плазмонной рекомбинации.

## Научная новизна

1. Впервые исследована роль многочастичных эффектов в оже-рекомбинации в рамках самосогласованного  $GW$ -приближения.
2. Впервые теоретически оценены пороговые токи терагерцовых лазерных диодов на основе графена с учётом оже-рекомбинации.

3. Впервые рассчитан темп безызлучательной рекомбинации в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути ТГц диапазона и теоретически оценены пороговые токи лазерных диодов на их основе.
4. Впервые определён относительный вклад оже-рекомбинации и рекомбинации с испусканием плазмонов в суммарный темп рекомбинации в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути.

### **Теоретическая и практическая значимость работы**

Теоретическая значимость работы состоит в том, что разработан метод расчёта темпа оже-рекомбинации в дираковских материалах, учитывающий эффекты межэлектронного взаимодействия, такие как размытие и искривление дираковского конуса, а также наличие плазменных полюсов в экранированном кулоновском взаимодействии.

Практическая значимость работы состоит в том, что исследована возможность ТГц генерации в лазерных диодах на основе графена и квантовых ям теллурида кадмия-ртути, определены их пороговые токи, рабочие температуры и достижимый диапазон частот генерации.

### **Методология и методы исследования**

Для расчёта темпа рекомбинации в графене использовался метод неравновесных функций Грина и самосогласованное  $GW$ -приближение. Вычисление соответствующих интегралов производилось с использованием быстрых преобразований Фурье и Ханкеля.

Законы дисперсии и волновые функций электронов в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути рассчитаны в четырёхзонной модели Кейна с использованием приближения огибающих функций.

Оптическая проводимость в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути рассчитывалась по формуле Кубо-Гринвуда.

Темп оже-рекомбинации в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути рассчитывался по золотому правилу Ферми с использованием усовершенствованного метода Монте-Карло для вычисления интегралов.

Темп рекомбинации с испусканием плазмонов в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути рассчитывался по формуле, выведенной методом неравновесных функций Грина с использованием диэлектрической проницаемости в приближении плазменного полюса. Численное интегрирование производилось методом Монте-Карло.



## Степень достоверности и апробация результатов

Достоверность полученных результатов обеспечивается использованием экспериментально проверенных приближений и сравнением рассчитанных времён рекомбинации и пороговых интенсивностей оптической накачки с экспериментальными данными по кинетике фотовозбуждённых носителей в графене и наблюдению вынужденного излучения в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути.

Основные результаты работы докладывались на следующих конференциях:

- XVIII Всероссийская молодежная конференция по физике полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто- и наноэлектронике, Санкт-Петербург, 2016;
- 5th Russia-Japan-USA-Europe Symposium on Fundamental & Applied Problems of Terahertz Devices & Technologies, Сендай, Япония, 2016;
- Graphene Week 2017, Афины, Греция;
- 26th International Symposium “Nanostructures: Physics and Technology”, Минск, Беларусь, 2018;
- IV International Conference on Metamaterials and Nanophotonics (METANANO 2019), Санкт-Петербург;
- XIV Российская конференция по физике полупроводников, Новосибирск, 2019;
- 59-я научная конференция МФТИ с международным участием, Долгопрудный, 2016;
- 61-я Всероссийская научная конференция МФТИ, Долгопрудный, 2018.

Диссертация состоит из трёх глав, основные результаты которых изложены в трёх статьях [A1–A3]. Все статьи опубликованы в рецензируемых международных журналах (Physical Review B, ACS Photonics, Journal of Physics: Condensed Matter), включённых в библиографические базы Scopus и Web of Science.

## Личный вклад автора

Общая постановка задачи осуществлялась научным руководителем автора Свинцовым Д. А. Коллеги автора, участвовавшие в обсуждении методов и результатов исследования, указаны в работах [A1–A3] в качестве соавторов. Все результаты, изложенные в настоящей диссертации, получены автором лично.

## Содержание работы

В диссертации рассматривается возможность использования узкозонных полупроводников для межзонной лазерной генерации в ТГц диапазоне. Особое внимание уделяется процессам оже-рекомбинации и рекомбинации с испусканием плазмонов, поскольку именно они будут являться основными механизмами рекомбинации на пороге лазерной генерации и определять пороговые токи ТГц лазерных диодов. Подавление оже-рекомбинации ожидается в материалах с дираковским законом дисперсии  $E = \pm \sqrt{v_0^2 p^2 + E_g^2/4}$ , поэтому в главах 1 и 2 рассмотрены случаи дираковского и приближённо дираковского закона дисперсии на примере графена и квантовых ям из теллурида кадмия-ртути. Глава 3 посвящена рекомбинации с испусканием плазмонов в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути.

Большая часть первой главы посвящена проблеме расчёта темпа оже-рекомбинации в материалах с дираковским законом дисперсии. В бесщелевом случае среди всех трёхчастичных оже-процессов разрешены законами сохранения энергии и импульса лишь те, в которых импульсы всех носителей сонаправлены [4], причём и эти процессы оказываются подавлены при учёте динамического экранирования кулоновского взаимодействия [5]. При наличии щели трёхчастичная оже-рекомбинация оказывается вовсе запрещена. Поэтому для корректного расчёта темпа оже-рекомбинации в дираковских материалах требуется учёт многочастичных эффектов, таких как уширение спектра носителей из-за их рассеяния друг на друге, искривление дираковского конуса под действием межэлектронного взаимодействия, а также динамическое экранирование кулоновского взаимодействия.

Для решения этой задачи нами предложено использовать метод неравновесных функций Грина, который используется для моделирования кинетики носителей с учётом многочастичных эффектов. Оказывается, что в рамках

$GW$ -приближения темп оже-рекомбинации можно записать в следующем виде:

$$\begin{aligned}
R_{\text{Auger}} = & 4 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \int_{\mathbb{R}^D} \frac{d^D \mathbf{q}}{(2\pi)^D} [n_B(\hbar\omega - \Delta\mu_{cv}) - n_B(\hbar\omega)] \\
& \times \text{Im} \Pi_{cc}^R(\mathbf{q}, \omega) \text{Im} \Pi_{vc}^R(\mathbf{q}, \omega) |W^R(\mathbf{q}, \omega)|^2 \\
& + 4 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \int_{\mathbb{R}^D} \frac{d^D \mathbf{q}}{(2\pi)^D} [n_B(\hbar\omega) - n_B(\hbar\omega + \Delta\mu_{cv})] \\
& \times \text{Im} \Pi_{cv}^R(\mathbf{q}, \omega) \text{Im} \Pi_{vv}^R(\mathbf{q}, \omega) |W^R(\mathbf{q}, \omega)|^2 \\
& + 4 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \int_{\mathbb{R}^D} \frac{d^D \mathbf{q}}{(2\pi)^D} [n_B(\hbar\omega - \Delta\mu_{cv}) - n_B(\hbar\omega + \Delta\mu_{cv})] \\
& \times \text{Im} \Pi_{cv}^R(\mathbf{q}, \omega) \text{Im} \Pi_{vc}^R(\mathbf{q}, \omega) |W^R(\mathbf{q}, \omega)|^2,
\end{aligned} \tag{1}$$

где  $\text{Im} \Pi_{cc}^R$ ,  $\text{Im} \Pi_{vv}^R$ ,  $\text{Im} \Pi_{cv}^R$ ,  $\text{Im} \Pi_{vc}^R$  — внутризонные и межзонные поляризуемости электрон-дырочной системы,  $W^R$  — динамически экранированное кулоновское взаимодействие,  $n_B$  — распределение Бозе-Эйнштейна,  $\Delta\mu_{cv}$  — разность квазиуровней Ферми в зоне проводимости и валентной зоне,  $\hbar\mathbf{q}$  и  $\hbar\omega$  — передача импульса и энергии в оже-процессе. Три вклада в темп оже-рекомбинации (1) соответствуют СНСС процессу (излишек энергии, выделяющийся при рекомбинации, передаётся второму электрону), СННН процессу (излишек энергии передаётся второй дырке) и СНСН процессу («двойная рекомбинация», два электрона рекомбинируют с двумя дырками, разрешён только при учёте уширения спектра). Также наличие динамически экранированного кулоновского взаимодействия в формуле (1) позволяет учесть оже-рекомбинацию через промежуточное плазмонное состояние, которую можно рассматривать как рекомбинацию с испусканием плазмона и последующим его внутризонным поглощением.

Формула (1) соответствует золотому правилу Ферми без обменных слагаемых, если поляризуемости вычислять для невзаимодействующих частиц. Если вычислять поляризуемости и экранированное кулоновское взаимодействие с учётом эффектов межэлектронного взаимодействия, формула (1) даст темп оже-рекомбинации с учётом многочастичных эффектов. Для расчёта поляризуемостей нами предложено использовать самосогласованное  $GW$ -приближение [7], так как оно позволяет учесть все интересующие нас многочастичные эффекты. В этом состоит отличие нашего подхода от более ранних работ [8], в которых также выводилась формула (1), но учёт межэлектронного взаимодействия не производился, либо производился в более грубом приближении [9] (пренебрежение вкладом носителей в экранирование, пренебрежение

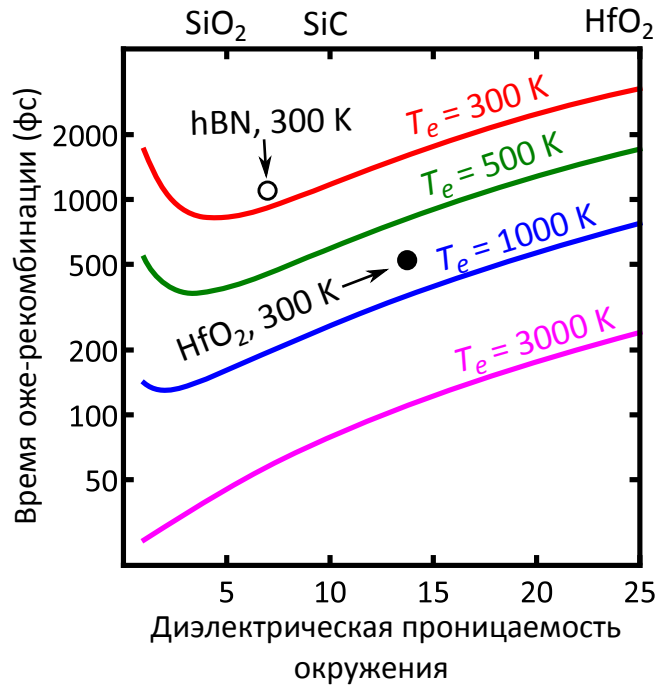


Рис. 1 — Время оже-рекомбинации в слабонеравносесном нелегированном графене. Кружки соответствуют расчётам с учётом частотной зависимости диэлектрических проницаемостей гексагонального нитрида бора и диоксида гафния, при этом учтена и рекомбинация с испусканием оптических фононов диэлектрика. Нефизичное поведение графиков в области малых диэлектрических проницаемостей связано с тем, что при сильном межэлектронном взаимодействии  $GW$ -приближение работает плохо.

рассеянием электронов, пренебрежением искривлением зон из-за межэлектронного взаимодействия).

Разработанный метод был применён для расчёта темпа оже-рекомбинации в нелегированном слабонеравносесном графене. Соответствующие времена жизни неравновесных носителей  $\tau_{\text{Auger}}$  составляют 1–3 пс при 300 К (рис. 1), а их температурная зависимость имеет приближённый вид  $\tau_{\text{Auger}} \propto T^{-1}$ , который можно получить из анализа размерностей. При температуре носителей 1000–3000 К времена рекомбинации оказываются в диапазоне десятков-сотен фемтосекунд, что согласуется с экспериментами по наблюдению кинетики носителей в фотовозбуждённом графене [10]. Такие времена оже-рекомбинации свидетельствуют о том, что она является доминирующим механизмом рекомбинации в графене в широком диапазоне параметров.

Наличие низкоэнергетических оптических фононов в high- $\kappa$  диэлектриках не позволяет использовать их для подавления рекомбинации в графене (чёрный круг на рис. 1).

Также были рассчитаны времена оже-рекомбинации в графене в более простых приближениях на основе золотого правила Ферми, использовавшихся

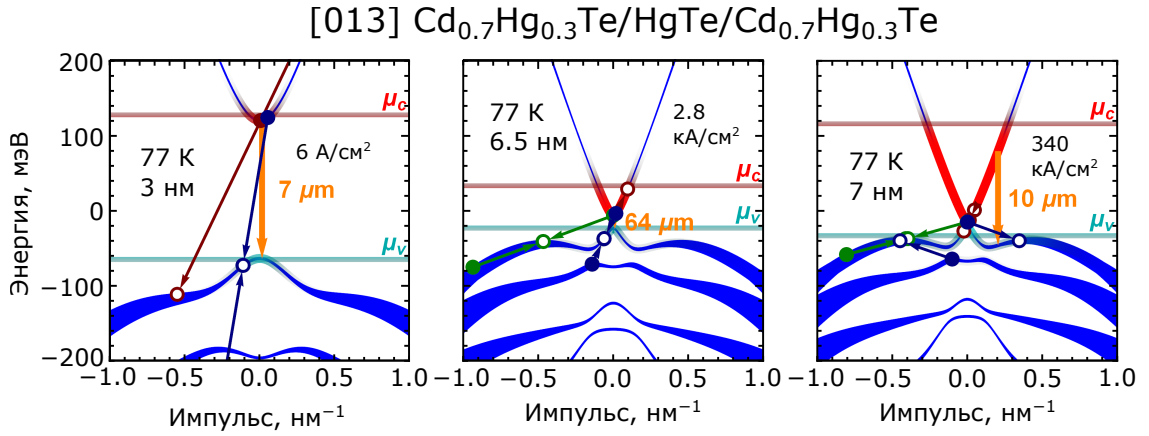


Рис. 2 — Зонная структура, заселённости электронных (красный цвет) и дырочных (голубой цвет) состояний на пороге генерации, длина волны генерации и соответствующий вертикальный переход (оранжевые стрелки), пороговые токи генерации и различные пороговые оже-процессы в квантовых ямах Cd<sub>0.7</sub>Hg<sub>0.3</sub>Te/HgTe/Cd<sub>0.7</sub>Hg<sub>0.3</sub>Te различной толщины при 77 К. Толщина синих линий показывает величину анизотропии зонной структуры. Красная и голубая полоса показывают квазиуровни Ферми для электронов и дырок, их ширина равна тепловой энергии  $kT$ .

в предыдущих работах [4–6]. Показано, что эти приближения могут давать ошибку в несколько раз из-за неточного учёта многочастичных эффектов.

В конце главы с использованием рассчитанных времён рекомбинации были оценены пороговые токи лазерных диодов на основе графена:

$$J_{\text{th}} \approx J_0 \left( \frac{T}{T_0} \right)^3, \quad (2)$$

где  $J_0 \approx 50$  кА/см<sup>2</sup> на один графеновый слой при  $T_0 = 300$  К для частот генерации  $kT < \hbar\omega < 3kT$  (для больших частот пороговые токи увеличиваются из-за необходимости обеспечить  $\Delta\mu_{cv} > \hbar\omega$ ). Это свидетельствует в пользу возможности межзонной ТГц генерации в графене при температуре жидкого азота.

Во **второй главе** рассматривается ТГц усиление и рекомбинационные процессы в квантовых ямах Cd<sub>0.7</sub>Hg<sub>0.3</sub>Te/HgTe/Cd<sub>0.7</sub>Hg<sub>0.3</sub>Te, выращенных вдоль кристаллографического направления [013]. Для таких ям имеется отлаженная технология производства, и в них уже наблюдалось вынужденное излучение на 15 ТГц [3]. Для моделирования этих ям мы использовали четырёхзонную модель Кейна и приближение огибающих функций, показавшие хорошее согласие с магнетоспектроскопическими экспериментами.

В отличие от графена, в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути область дираковского спектра ограничена десятками мэВ (рис. 2), поэтому оже-рекомбинация оказывается разрешена даже без учёта многочастичных эффек-

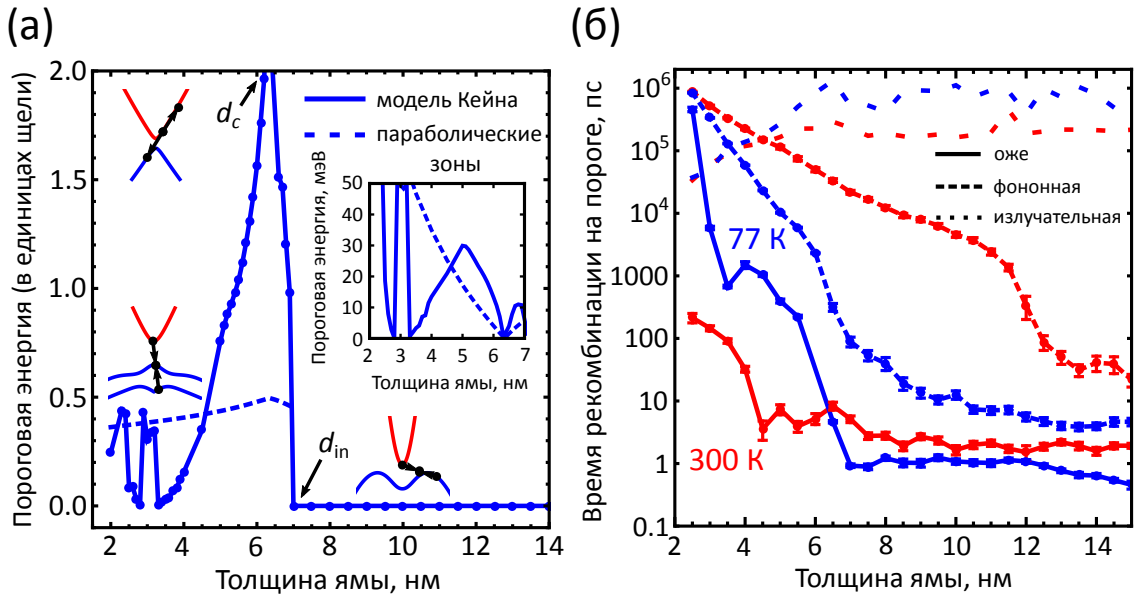


Рис. 3 — (а) — пороговые энергии оже-рекомбинации в единицах запрещённой зоны в квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  различной толщины при 4.2 К. Сплошные линии — расчёты с использованием модели Кейна и приближения огибающих функций, пунктирные линии — по формуле для параболического спектра с использованием эффективных масс в экстремумах зон. На вставках показаны пороговые оже-процессы для разных ям и пороговые энергии в абсолютных единицах. (б) — времена жизни неравновесных носителей в квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$ , связанные с различными процессами рекомбинации. На графиках также показаны стандартные отклонения результатов, полученных интегрированием методом Монте-Карло.

тов. Однако рассчитанные пороговые энергии оже-рекомбинации (минимально возможные суммарные кинетические энергии участвующих носителей) достигают половины запрещённой зоны и более для ям с запрещённой зоной в ТГц области (рис. 3а), что соответствует подавлению оже-рекомбинации на один-два порядка при 77 К по сравнению с беспороговым случаем. В материалах с параболическими зонами пороговые энергии равны  $E_g \times \min\{m_e, m_h\}/(m_e + m_h)$  и обычно гораздо меньше  $0.5E_g$  из-за наличия тяжёлых дырок с  $m_h \gg m_e$ . В рассматриваемых квантовых ямах взаимодействие краевых состояний на границах между материалом барьеров с нормальной зонной структурой и материалом ямы с инвертированной зонной структурой приводит к появлению приближённо дираковского спектра носителей, и большой электрон-дырочной асимметрии удаётся избежать.

Для определения пороговых концентраций носителей, необходимых для достижения лазерной генерации, была рассчитана оптическая проводимость рассматриваемых ям с учётом всех межзонных и межподзонных переходов, а также друдевского поглощения на свободных носителях в яме, и определены

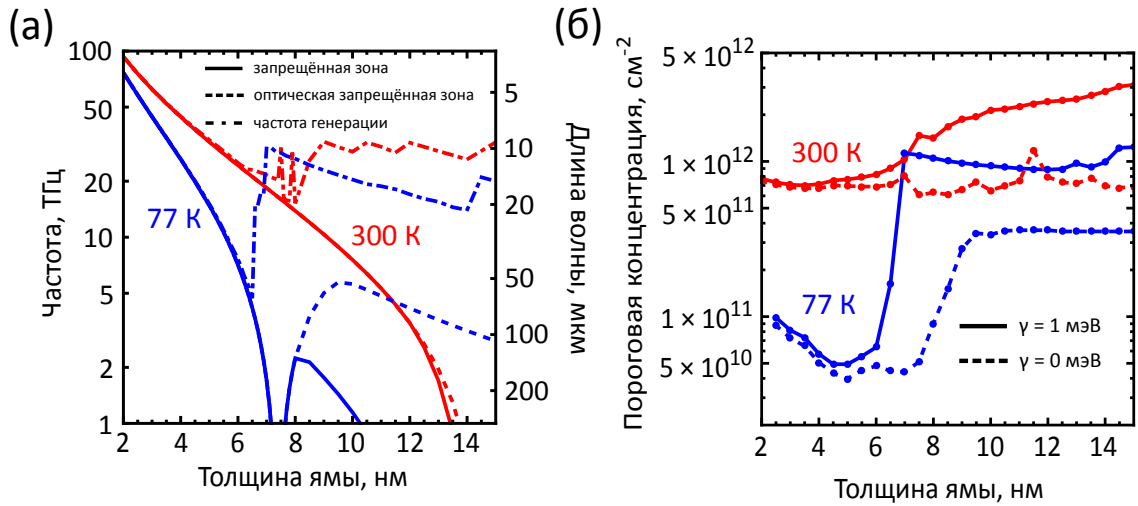


Рис. 4 — (а) — ширина запрещённой зоны, оптическая запрещённая зона (длинноволновая граница вертикальных переходов) и пороговая частота генерации для ям  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  (с учётом уширения спектра  $\gamma = 1$  мэВ). (б) — пороговые концентрации носителей для достижения оптического усиления в нелегированных ямах без учёта уширения спектра и с  $\gamma = 1$  мэВ.

концентрации электронов и дырок, при которых она становится отрицательной на некоторой частоте (рис. 4б). Затем для этих концентраций носителей были рассчитаны времена различных процессов рекомбинации: оже-рекомбинации, рекомбинации с испусканием оптических фононов (возможной в достаточно узкозонных ямах) и излучательной рекомбинации в подпороговом режиме (т. е. без учёта вынужденных переходов под действием генерируемого излучения). Учёт возможности небольшого несохранения энергии в оже-процессах из-за конечного времени жизни квазичастиц, связанного с рассеянием носителей, не приводит к существенному снижению пороговых энергий, поэтому для расчёта темпа оже-рекомбинации мы воспользовались золотым правилом Ферми.

Расчёты показали, что в ямах ТГц диапазона основным механизмом рекомбинации на пороге генерации является оже-рекомбинация (наряду с плазмонной рекомбинацией, рассмотренной в главе 3). Полученные времена рекомбинации достигают сотен пс при 77 К в ямах нормальной зонной структуры (рис. 3б), при том что в широких ямах, имеющих инвертированную зонную структуру, эти времена составляют около 1 пс, поскольку оже-рекомбинация оказывается беспороговым процессом. Это подтверждает выводы о подавлении оже-рекомбинации на один-два порядка, сделанные на основе анализа пороговых энергий.

Расчитанные частоты лазерной генерации (рис. 4а), пороговые концентрации носителей (рис. 4б) и времена рекомбинации (рис. 3б) были использованы для оценки пороговых токов электрической накачки и пороговых интенсив-

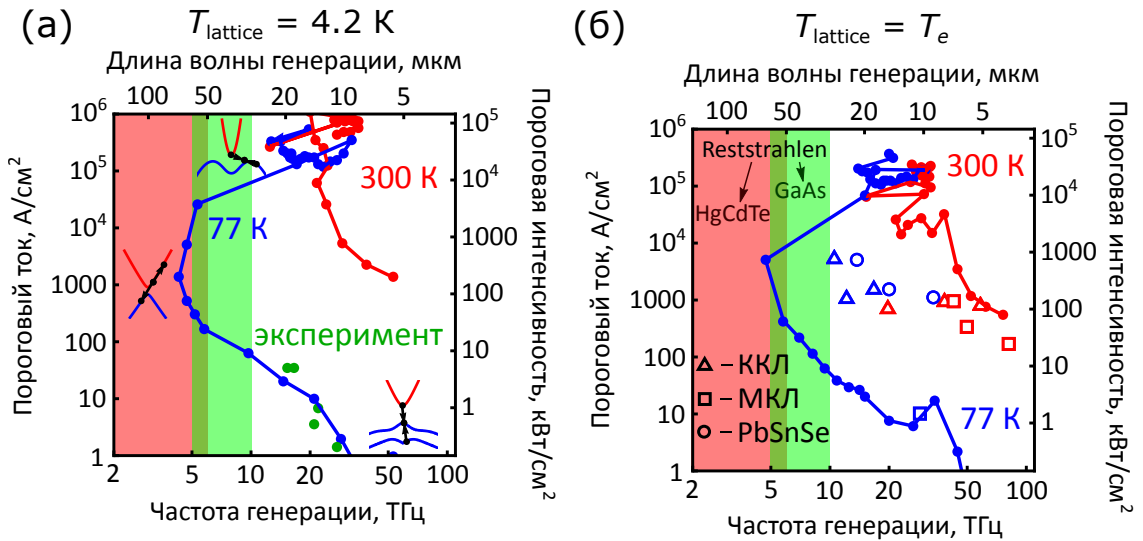


Рис. 5 — Зависимость пороговой плотности тока электрической накачки и пороговой интенсивности оптической накачки, необходимых для достижения оптического усиления в квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  различной толщины, от пороговых частот и длин волн генерации в этих ямах.

(а) — температура решётки 4.2 К. (б) — температура решётки равна температуре носителей. Зелёные точки — экспериментальные данные из работы [3]; треугольники, квадраты и окружности — экспериментальные данные по квантово-каскадным, межзонным каскадным лазерам и лазерным диодам на солях свинца. Красным и зелёным закрашены области сильного решёточного поглощения (Reststrahlen band) в  $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$  и GaAs соответственно. На вставках изображены пороговые оже-процессы в различных ямах.

ностей оптической накачки, необходимых для достижения лазерной генерации на той или иной частоте. Полученные значения пороговых токов лежат в диапазоне 50–400  $\text{A}/\text{cm}^2$  на одну яму для генерации в области 6–10 ТГц при 77 К (рис. 5б). При учёте необходимости использовать более одной ямы для преодоления оптических потерь в резонаторе пороговые токи оказываются в диапазоне единиц  $\text{kA}/\text{cm}^2$ , характерном для квантово-каскадных лазеров дальнего ИК-диапазона.

Минимальная частота генерации теоретически могла бы составить 4.7 ТГц, если рассматривать только оптические потери в самой яме, однако учёт сильного решёточного поглощения вблизи частот оптических фононов теллурида кадмия-ртути увеличивает минимальную частоту генерации примерно до 6 ТГц. Стоит отметить, что частоты 6–10 ТГц попадают в область сильного решёточного поглощения в AlGaAs и недоступны существующим квантово-каскадным лазерам.

Рассчитанные пороговые интенсивности оптической накачки находятся в качественном согласии с экспериментальными данными по получению вынуж-



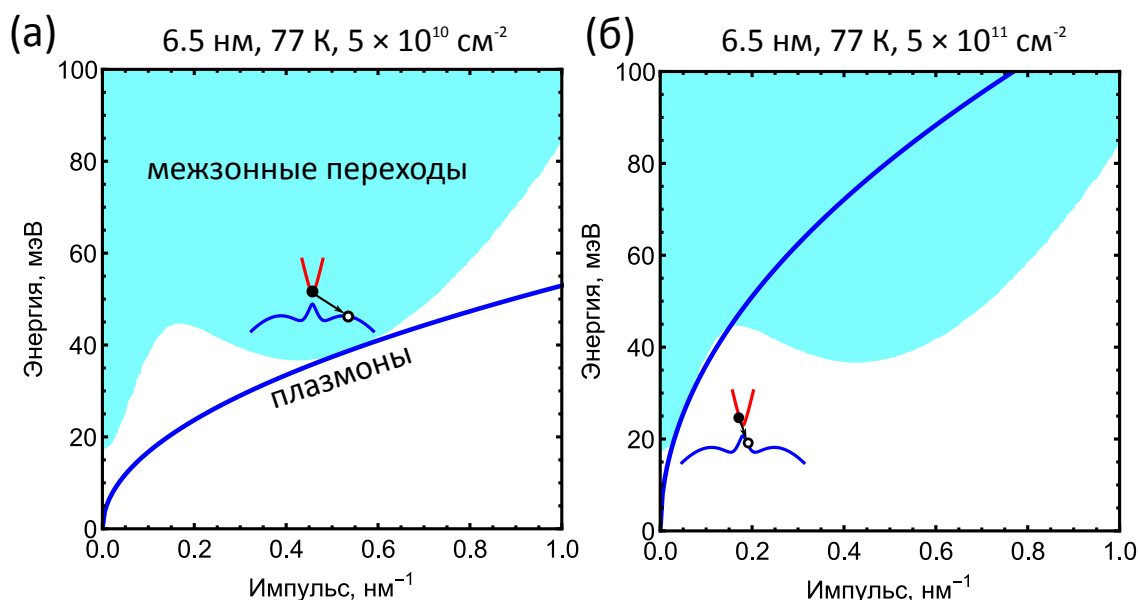


Рис. 6 — (а) — закон дисперсии плазмонов и область межзонных переходов в квантовой яме  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  толщиной 6.5 нм при 77 К и концентрации каждого типа носителей  $5 \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . На вставке изображён единственный возможный при этой концентрации процесс рекомбинации с испусканием плазмона. (б) — то же самое, но для концентрации  $5 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$ . На вставке изображён возможный процесс плазмонной рекомбинации с участием носителей из дираковской части закона дисперсии.

денного излучения в квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  [3] (зелёные точки на рис. 5а), хотя точное сравнение затрудняется тем, что температура носителей в этих экспериментах неизвестна.

Наконец, в третьей главе изучается рекомбинация с испусканием двумерных плазмонов в квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  и её влияние на пороговые токи лазерных диодов. Вначале был рассчитан закон дисперсии плазмонов и нижняя граница области межзонных переходов в этих ямах и определены концентрации носителей, при которых закон дисперсии плазмонов пересекает область межзонных переходов и рекомбинация с испусканием плазмонов становится возможной. Показано, что рекомбинационный процесс, который становится разрешён при наименьшей концентрации носителей, представляет собой переход электрона из минимума зоны проводимости в побочный локальный максимум валентной зоны с испусканием плазмона (рис. 6а). Этот процесс имеет энергетический порог, равный разности энергий между центральным и боковым максимумом валентной зоны, и может быть подавлен при достаточно низких температурах. Процессы с участием только носителей из дираковской части зонной структуры требуют на порядок больших концентраций носителей (рис. 6б), которые обычно превышают пороговые энергии, необходи-

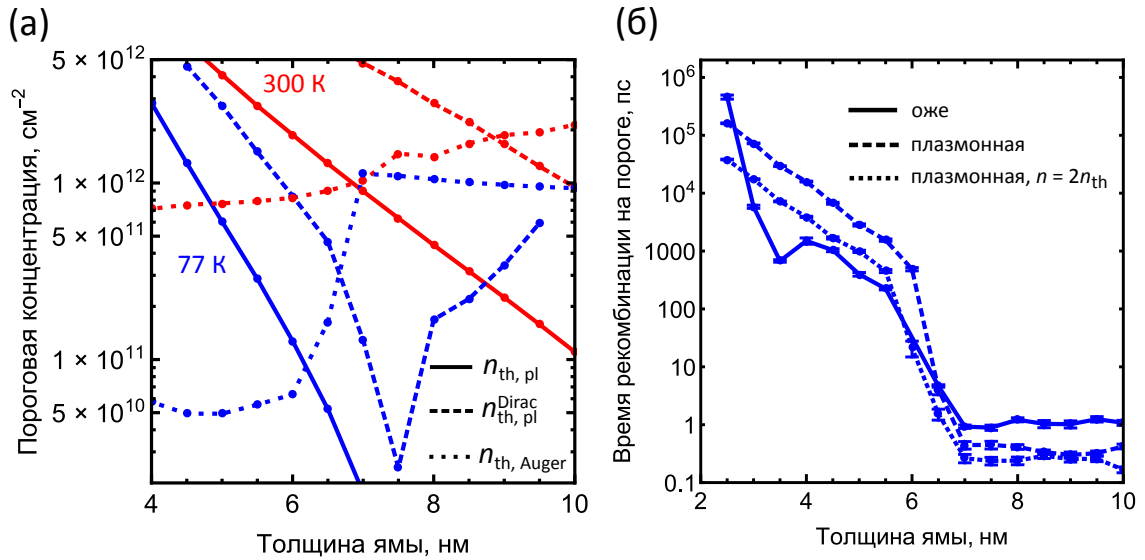


Рис. 7 — (а) — пороговые концентрации для плазмонной рекомбинации в квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  (сплошные линии), для плазмонной рекомбинации в пределах дираковской части закона дисперсии (длинный пунктир) и для достижения оптического усиления (короткий пунктир). (б) — времена жизни неравновесных носителей на пороге лазерной генерации при 77 К, связанные с плазмонной рекомбинацией (пунктирные линии) и оже-рекомбинацией (сплошная линия). Длинный пунктир — результаты для пороговых концентраций, полученных в наших расчётах, короткий пунктир — для вдвое больших концентраций носителей.

мые для лазерной генерации в ямах нормальной зонной структуры, за исключением наиболее узкозонных ям (рис. 7а).

Затем были рассчитаны времена плазмонной рекомбинации в ямах различной толщины на пороге лазерной генерации. Учитывая сильную чувствительность темпа плазмонной рекомбинации к концентрации носителей, мы также рассмотрели ситуацию, когда реальные пороговые концентрации носителей оказываются вдвое больше рассчитанных нами из-за значительных оптических потерь в резонаторе. Расчёты показали, что в широкозонных ямах, где плазмонная рекомбинация разрешена только из-за уширения спектра плазмонов, связанного с их конечным временем жизни, плазмонная рекомбинация оказывается медленнее оже-рекомбинации, а в наиболее узкозонных — быстрее, с характерными временами около 0.3 пс (рис. 7б). Частота генерации, для которой темпы плазмонной и оже-рекомбинации на пороге генерации одинаковы, лежит в ТГц области и чувствительна к оптическим потерям в резонаторе, так как они влияют на пороговую концентрацию носителей. Для пороговых концентраций, рассчитанных только с учётом потерь в самой яме, учёт плазмонной рекомбинации увеличивает пороговые токи ТГц генерации не более чем в 2 раза, а для вдвое больших концентраций — не более чем в 4 раза. Такие пороговые токи

свидетельствуют о возможности межзонной ТГц лазерной генерации в квантовых ямах из теллурида кадмия-ртути при температуре жидкого азота или более низкой.

## Заключение

В настоящей диссертации рассмотрена возможность использования узкозонных полупроводников для межзонной лазерной генерации в ТГц диапазоне. Особое внимание уделено процессам оже-рекомбинации и рекомбинации с испусканием плазмонов, поскольку именно они будут определять пороговые токи ТГц лазерных диодов. Так как подавление оже-рекомбинации ожидается в материалах с дираковским законом дисперсии  $E = \pm \sqrt{v_0^2 p^2 + E_g^2/4}$ , были рассмотрены случаи дираковского и приближённо дираковского закона дисперсии на примере графена и квантовых ям  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$ .

В случае дираковского закона дисперсии трёхчастичная оже-рекомбинация запрещена законами сохранения (кроме коллинеарных процессов в бесщелевом случае), и темп оже-рекомбинации определяется многочастичными процессами. Для учёта этих процессов нами разработан подход, основанный на методе неравновесных функций Грина и самосогласованном  $GW$ -приближении. С использованием этого подхода рассчитаны времена оже-рекомбинации в легированном графене со слабой инверсией населённостей и продемонстрировано их согласие с экспериментальными данными. Полученные времена составляют около 1–3 пс при комнатной температуре в зависимости от диэлектрической проницаемости окружающего материала. Это свидетельствует о том, что для бесщелевого дираковского спектра запрет на оже-рекомбинацию со стороны законов сохранения фактически исчезает из-за эффектов уширения спектра, связанных с рассеянием носителей друг на друге. Также мы сравнили разработанный нами метод расчёта темпа оже-рекомбинации с более простыми методами, использовавшимися в литературе, и показали, что более простые методы могут давать ошибку в несколько раз из-за неучтённых или некорректно учтённых многочастичных эффектов, таких как уширение и искривление спектра носителей, а также динамическое экранирование кулоновского взаимодействия.

Наличие запрещённой зоны в дираковском спектре приводит к подавлению оже-рекомбинации даже в случае, когда трёхчастичные оже-процессы разрешены из-за отклонений реального закона дисперсии от дираковского, как показано нами на примере квантовых ям  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$ . Рас-

считанные пороговые энергии оже-рекомбинации в ямах нормальной зонной структуры достигают половины запрещённой зоны и более, что обусловлено близкими эффективными массами электронов и дырок (в отличие от трёхмерных полупроводников  $A^{\text{III}}B^{\text{V}}$ ) и непараболичностью закона дисперсии. Для ям с шириной запрещённой зоны в диапазоне 6–10 ТГц такие пороговые энергии соответствуют подавлению оже-рекомбинации на полтора-два порядка при 77 К по сравнению со случаем большой электрон-дырочной асимметрии, реализующимся в ямах инвертированной зонной структуры. Это подтверждается рассчитанными временами оже-рекомбинации, достигающими сотен пс при 77 К в ямах ТГц диапазона с нормальной зонной структурой, при том что в ямах с инвертированной зонной структурой эти времена составляют около 1 пс.

Помимо оже-рекомбинации, также была исследована рекомбинация с испусканием двумерных плазмонов. На примере квантовых ям  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  продемонстрировано, что существует некоторая пороговая концентрация носителей, ниже которой межзонные переходы с испусканием плазмонов в первом приближении невозможны (т. е. если не учитывать неопределённость энергии плазмонов из-за конечного времени жизни). Эта пороговая концентрация определяется условием пересечения закона дисперсии плазмонов с областью межзонных переходов в пространстве  $(\mathbf{q}, \omega)$ . При концентрации носителей выше пороговой плазменная рекомбинация в квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  оказывается быстрее оже-рекомбинации и имеет характерные времена порядка сотен фемтосекунд при 77 К; при концентрациях ниже пороговой плазменная рекомбинация замедляется до 1 нс и более при 77 К и оказывается медленнее оже-рекомбинации. По нашим расчётам, при обеспечении достаточно низких оптических потерь за пределами активной среды пороговые концентрации для достижения лазерной генерации при 77 К в ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  нормальной зонной структуры оказываются ниже пороговых концентраций для плазменной рекомбинации, за исключением наиболее узкозонных ям.

Пороговая концентрация для плазменной рекомбинации сильно чувствительна к поведению зонной структуры в области больших квазиимпульсов. Так, наличие побочного локального максимума в валентной зоне квантовых ям  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  снижает пороговые концентрации для плазменной рекомбинации примерно на порядок по сравнению с дираковским законом дисперсии. Однако такая рекомбинация с участием дырок из побочного максимума валентной зоны имеет энергетический порог, равный разности энергий

между основным и побочным максимумами, поэтому плазмонная рекомбинация может быть подавлена при низких температурах даже при превышении пороговой концентрации.

Рассчитанные времена рекомбинации в графене и квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  были использованы для оценки пороговых токов ТГц лазерных диодов на основе этих материалов. Полученные значения при 77 К составляют сотни  $\text{A}/\text{cm}^2$  на одну квантовую яму и единицы  $\text{kA}/\text{cm}^2$  на один графеновый слой. Это свидетельствует в пользу достижимости межзонной ТГц генерации при азотной температуре, хотя окончательный ответ на этот вопрос требует аккуратного моделирования конкретной конструкции лазера. При 300 К достижению ТГц усиления в квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  препятствует межподзонное и друдевское поглощение, а в графене пороговые токи составляют около  $50 \text{ kA}/\text{cm}^2$  на один графеновый слой, поэтому межзонная ТГц генерация в непрерывном режиме, скорее всего, возможна лишь при криогенных температурах. Достижимые частоты генерации в квантовых ямах  $\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}/\text{HgTe}/\text{Cd}_{0.7}\text{Hg}_{0.3}\text{Te}$  ограничены снизу областью сильного решёточного поглощения и составляют около 6 ТГц. В гексагональном нитриде бора, использующемся в качестве диэлектрика в высококачественных графеновых гетероструктурах, область сильного решёточного поглощения лежит выше ТГц диапазона, поэтому для графена минимальная частота генерации будет ограничена друдевским поглощением в волноводных слоях и самом графене и может быть меньше 6 ТГц при достаточно низких температурах.

На основании полученных результатов можно сформулировать общие рекомендации по проектированию ТГц лазерных диодов. Для достижения ТГц лазерной генерации на межзонных переходах в узкозонных материалах и минимизации пороговых токов требуется обеспечить подавление основных механизмов безызлучательной рекомбинации: оже-рекомбинации и рекомбинации с испусканием плазмонов. Этому благоприятствуют следующие факторы:

- наличие ненулевой запрещённой зоны;
- дираковский закон дисперсии в как можно более широком диапазоне энергий;
- отсутствие в этом диапазоне энергий каких-либо других зон/подзон, кроме нижней подзоны зоны проводимости и верхней подзоны валентной зоны;
- низкие оптические потери в резонаторе и, соответственно, низкие пороговые концентрации носителей для достижения лазерной генерации;

- низкий уровень остаточного легирования активной среды;
- криогенные температуры.

В заключение обсудим возможности дальнейшего развития темы исследования. С теоретической точки зрения представляет интерес обобщение разработанного метода расчёта темпа оже-рекомбинации с учётом многочастичных эффектов на случай сильного межэлектронного взаимодействия. Для этого требуется использование ещё более продвинутых приближений, нежели самосогласованное *GW*-приближение, и возникает проблема сохранения разумной вычислительной сложности. Также разработанный метод можно применить для определения точной границы между режимом, когда основной вклад в темп оже-рекомбинации связан с многочастичными эффектами, и режимом, когда основной вклад в темп оже-рекомбинации определяется отклонением закона дисперсии от дираковского. Другой важной теоретической проблемой для узкозонных материалов является корректный учёт динамического экранирования в условиях сильной инверсии населённостей, при которой возможно появление незатухающих плазмонов и зануление диэлектрической проницаемости на действительных частотах.

С практической точки зрения интересно применение результатов настоящей диссертации для моделирования конкретных конструкций ТГц лазеров на основе узкозонных материалов, поиск оптимального состава активной среды, а также исследование возможности ТГц генерации на плазмонных модах в двумерных материалах.

### Список литературы

1. [Терагерцовые инжекционные лазеры на основе твердого раствора PbSnSe с длиной волны излучения до 50 мкм и их использование для магнитоспектроскопии полупроводников](#) / К. Маремьянин [и др.] // Физика и техника полупроводников. — 2018. — т. 52, № 12. — с. 1486–1490.
2. [Terahertz light-emitting graphene-channel transistor toward single-mode lasing](#) / D. Yadav [et al.] // Nanophotonics. — Berlin, Boston, 2018. — Vol. 7, no. 4. — P. 741–752.
3. [Stimulated emission from HgCdTe quantum well heterostructures at wavelengths up to 19.5  \$\mu\text{m}\$](#)  / S. V. Morozov [et al.] // Applied Physics Letters. — 2017. — Vol. 111, no. 19. — P. 192101.

4. *Rana F.* Electron-hole generation and recombination rates for Coulomb scattering in graphene // Phys. Rev. B. — 2007. — Vol. 76, no. 15. — P. 155431.
5. Nonequilibrium dynamics of photoexcited electrons in graphene: Collinear scattering, Auger processes, and the impact of screening / A. Tomadin [et al.] // Phys. Rev. B. — 2013. — Vol. 88, no. 3. — P. 035430.
6. Impact of doping on the carrier dynamics in graphene / F. Kadi [et al.] // Sci. Rep. — 2015. — Vol. 5. — P. 16841.
7. *GW* approximations and vertex corrections on the Keldysh time-loop contour: Application for model systems at equilibrium / H. Ness [et al.] // Phys. Rev. B. — 2011. — Vol. 84, no. 19. — P. 195114.
8. *Ziep O., Mocker M.* A New Approach to Auger Recombination. Application to Lead Chalcogenides // Phys. Status Solidi B. — 1980. — Vol. 98, no. 1. — P. 133–142.
9. *Polkovnikov A., Zegrya G.* Electron-electron relaxation effect on Auger recombination in direct-band semiconductors // Phys. Rev. B. — 2001. — Vol. 64, no. 7. — P. 073205.
10. Snapshots of non-equilibrium Dirac carrier distributions in graphene / I. Gierz [et al.] // Nat. Mater. — 2013. — Vol. 12, no. 12. — P. 1119–1124.

#### Публикации автора по теме диссертации

- A1. Auger recombination in Dirac materials: A tangle of many-body effects / G. Alymov, V. Vyurkov, V. Ryzhii, A. Satou, D. Svintsov // Phys. Rev. B. — 2018. — Vol. 97, no. 20. — P. 205411.
- A2. Fundamental Limits to Far-Infrared Lasing in Auger-Suppressed HgCdTe Quantum Wells / G. Alymov, V. Rumyantsev, S. Morozov, V. Gavrilenko, V. Aleshkin, D. Svintsov // ACS Photonics. — 2020. — Vol. 7, no. 1. — P. 98–104.
- A3. Feasibility of surface plasmon lasing in HgTe quantum wells with population inversion / K. Kapralov, G. Alymov, D. Svintsov, A. Dubinov // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2019. — Oct. — Vol. 32, no. 6. — P. 065301.