Одномодовые быстроперестраиваемые лазеры для диодно-лазерной спектроскопии

© А.П. Астахова[¶], Т.Н. Данилова, А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, Ю.П. Яковлев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 10 февраля 2003 г. Принята к печати 17 февраля 2003 г.)

Сообщается об исследовании физических механизмов, подавляющих неустойчивость в электроннодырочной плазме при инверсии заселенности и способствующих генерации одной лазерной линии и ее частотной перестройке при изменении питающего тока: неоднородной инжекции и пространственных колебаний лазерного потока. Приводятся результаты измерения быстродействия токовой и тепловой перестройки частоты генерации. Показано, что эффективная постоянная времени для тепловой перестройки составляет ~ 1 мкс, а для токовой меньше по крайней мере на порядок. Диапазон тепловой перестройки не превышает нескольких Å, а диапазон токовой перестройки достигает 100 Å. Сообщается о создании одномодового быстроперестраиваемого гетеролазера для диодно-лазерной спектроскопии в диапазоне 2.8-3.6 мкм, работающего при температурах 12-120 K, и сканировании таким лазером спектров поглощения газовых сред OCS, NH₃, CH₃Cl, CH₄, N₂O и H₂O.

1. Введение

Начало науке о полупроводниковых диодных лазерах было положено сотрудниками Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе Д.Н. Наследовым, А.А. Рогачевым, С.М. Рывкиным и Б.В. Царенковым, получившими усиление излучения в электронно-дырочном канале вместо обычного поглощения [1]. Это достигалось за счет более сильной заселенности нижних уровней зоны проводимости, чем верхних уровней валентной зоны, т.е. инверсией заселенности. Для получения инверсии заселенности через *p*-*n*-переход пропускались мощные импульсы прямого тока малой длительности. Американские исследователи Холл и др. путем создания оптического резонатора вокруг *p*-*n*-перехода и установления тем самым положительной обратной связи достигли вынужденной генерации излучения на длине волны наибольшего усиления [2], т.е. создали полупроводниковый диодный лазер.

В лаборатории Д.Н. Наследова синтезировались и исследовались почти все полупроводники на основе соединений А^{III}В^V. Лазеры были созданы на прямозонных полупроводниках. В отличие от непрямозонных, в них межзонные переходы электронов не сопровождаются потерей энергии на колебаниях кристаллической решетки. Большое разнообразие полупроводников А^{III}В^V, различающихся ширинами запрещенной зоны и коэффициентами преломления, позволило создавать на их основе твердые растворы и гетеропереходы, что привело к уменьшению необходимого для генерации тока в сотни раз.

Гетеропереходы стали также областью научных интересов Ж.И. Алфёрова, за достижения в которой он удостоился Нобелевской премии [3]. Многие физические явления, такие как сверхинжекция, оптическое и электронное ограничение области возбуждения и почти полное устранение безызлучательной рекомбинации, получены в гетеропереходах. Туннельно-проницаемые тонкослойные гетеропереходы и полупроводники с вкраплениями квантовых размеров другого полупроводника привели к созданию физики полупроводниковых наноструктур и сильному улучшению потребительских характеристик инжекционных лазеров. В результате появилось производство диодных лазеров для оптоэлектронных линий связи, считывания и обработки информации.

Достоинства гетеропереходного лазера в полной мере видны на двойной гетероструктуре. Внутренний слой в ней имеет меньшую ширину запрещенной зоны и больший коэффициент преломления, чем прилегающие слои. Излучение генерируется во внутреннем слое. Внешние слои удерживают электронно-дырочную плазму в нем и являются боковыми стенками оптического резонатора. Роль торцевых стенок выполняют внешние поверхности кристалла, перпендикулярные гетерограницам. Между торцевыми стенками возникают стоячие волны на резонансных частотах

$$\nu_i = \frac{ic}{2nL},\tag{1}$$

где i — целое число, c — скорость света в вакууме, L — расстояние между торцевыми стенками и n показатель преломления. На той резонансной частоте, на которой усиление в среде с инверсией компенсирует все потери излучения, связанные с поглощением, рассеянием и выходом из кристалла, возникает лазерная генерация. Сразу же после создания диодных лазеров предлагалось использовать зависимость показателя преломления от температуры [4] и гидростатического давления [5] для изменения частоты генерации. Изменение температуры лазера в процессе протекания импульсно-

[¶] E-mail: dap@iropt4.ioffe.ru

Fax: 247-00-06

го тока считалось перспективным для диодно-лазерной спектроскопии [6].

Концентрация вынужденного излучения в одной спектральной лазерной линии приводит к малой ее ширине, до единиц МГц [7,8] на полувысоте, что в 100 раз меньше ширины линий поглощения газовых молекул. Сканирование лазерной линией по линиям газовых молекул позволяет измерить форму последних с большой точностью. Это и послужило основанием для диоднолазерной спектроскопии высокого разрешения. Лазеры для этой цели должны излучать только одну спектральную линию, перестраиваемую в диапазоне не менее 10 А. Однако первые диодные лазеры, созданные в том числе и в лаборатории Д.Н. Наследова, излучали порядка 10 спектральных линий, которые почти не перестраивались по частоте, что было естественным следствием неустойчивости электронно-дырочной плазмы при инверсии заселенности и наличии оптической обратной связи. Появилась задача устранения неустойчивости электронно-дырочной плазмы.

Под руководством А.А. Рогачева, коллеги и преемника Д.Н. Наследова на посту заведующего лабораторией, наибольшее внимание было направлено на исследование лазеров для средней инфракрасной (ИК) области спектра, в которой лежат линии поглощения газовых молекул. Впервые [9] были созданы и исследованы лазеры нового типа на самосогласованных квантовых ямах, образующихся на гетерограницах II рода, когда скачки зоны проводимости и валентной зоны направлены в одну сторону. Первые работы в области лазерной спектроскопии были сделаны на этих лазерах совместно с московскими коллегами В.Г. Аветисовым, А.И. Надеждинским и А.Н. Хуснутдиновым [10]. Двойные гетероструктуры имели узкозонный слой из четверного твердого раствора GaInAsSb и ограничительные слои из AlGaAsSb. Лазеры с разным составом узкозонного слоя излучали в области длин волн $\lambda = 1.8 - 2.4$ мкм. Перестройка частоты генерации осуществлялась в процессе нагревания импульсами тока от начальной температуры ($T = 90 - 250 \,\mathrm{K}$) на ~ 2 К. Плавная одночастотная перестройка происходила на ~ 5 Å при изменении тока от $1.1I_{\rm th}$ до $1.5I_{\rm th}$ (I_{th} — пороговое значение). Ширина лазерной линии составляла 3.3-80 МГц. Были записаны обертоны линий поглощения Н₂О и СО₂.

Для записи основных линий поглощения в другом спектральном диапазоне были созданы лазеры с узкозонными слоями из InAsSb и широкозонными из InAsSbP [11], излучающие в области длин волн $\lambda = 3.0-3.6$ мкм в зависимости от состава узкозонного слоя. Диапазон перестройки нагреванием в процессе импульса тока также не превышал 5 Å. Рабочая температура составляла 80–100 К.

Недостатком тепловой перестройки является необходимость подбора такой амплитуды и длительности импульса, чтобы лазер нагревался на 1–5 К, оставаясь в одномодовом режиме. При низких температурах приходилось сильно увеличивать длительность импульса, так как падал пороговый ток. Соответственно быстродействие записи спектров поглощения газов уменьшалось. Здесь надо отметить, что лазер почти не должен нагреваться при высоком квантовом выходе излучательной рекомбинации и малых потерях излучения в объеме кристалла. Только за счет превышения разности квазиуровней Ферми для электронов и дырок над энергией фотонов, обусловленного полезными потерями излучения на выход из кристалла и составляющего величину порядка энергии тепловых колебаний kT, должна нагреваться активная область.

Поэтому стояла задача создания лазеров, работающих на безынерционных эффектах, т. е. было необходимо исключить тепловую инерционность. Квантовые явления, приводящие к самофокусировке лазерного излучения, [12] могли составить основу безынерционной перестройки. Данная работа является развитием работ по созданию перестраиваемых по частоте диодных лазеров, выполняемых в лаборатории инфракрасной оптоэлектроники Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе, и посвящена созданию и исследованию одномодового быстроперестраиваемого лазера для диодно-лазерной спектроскопии.

На возможность частотной перестройки диодных лазеров первыми обратили внимание москвичи П.Г. Елисеев и А.П. Богатов [13,14], начав учитывать зависимость показателя преломления от концентрации неравновесных носителей заряда и обнаружив зависимость концентрации от интенсивности лазерного излучения. В специальных опытах с неполосковыми лазерами на основе GaAlAs/GaAs/GaAlAs [15] обнаружилось формирование в ближней зоне пятнистой структуры, свидетельствующей о возникновении оптического волновода в плоскости *p*-*n*-перехода при превышении тока над пороговым значением на 10-30% и более. В дальней зоне ширина лазерного потока увеличивалась из-за самофокусировки лазерного излучения в середине волновода. Отсутствие лазерного излучения на периферии вызывает повышение здесь концентрации неравновесных носителей заряда и соответствующее уменьшение показателя преломления, достаточное для появления оптического ограничения. Авторы отмечают наличие пространственной самофокусировочной неустойчивости лазерного канала и генерацию лазера на многих резонансных частотах (многомодовую генерацию).

2. Самофокусировка в полосковом лазере

Для наблюдения самофокусировки излучения [16] были созданы меза-полосковые лазеры на основе двойных гетероструктур *n*-InAsSb_{0.17}P_{0.35}/*n*-InAsSb_{0.05}/ *p*-InAsSb_{0.17}P_{0.35} (рис. 1) с высокой однородностью электрических и оптических свойств и плотности накачки по площади активной области. Структуры выращены методом жидкофазной эпитаксии на подложках *n*-InAs, ориен-



Рис. 1. Структура исследуемого диодного лазера: a — расположение эпитаксиальных слоев, b — послойный профиль ширины запрещенной зоны E_g , c — схема конструкции мезаполоскового лазера.

тированных по кристаллографической плоскости (100). Активный слой не легировался и имел концентрацию электронов 10^{16} см⁻³. Ограничительный слой *п*-типа проводимости легирован Sn до концентрации электронов $2 \cdot 10^{18}$ см⁻³, а *р*-типа — Zn до концентрации дырок 10^{18} см⁻³. Толщина активной области составляла 1 мкм, толщины ограничительных слоев — 2 мкм. Ширина полоска была 10-20 мкм. Длина резонатора составляла L = 275-350 мкм. Измерения проводились при температуре 78 К.

В интервале токов $I = (1.3-4)I_{th}$ интенсивность одной преобладающей моды F_{max} (рис. 2) превышала суммарную интенсивность всех остальных мод F_i . При приблизительно двукратном превышении тока над пороговым значением наблюдалась практически одномодовая генерация. Ширина диаграммы направленности на половине высоты $\Delta\theta$ (рис. 3) сначала уменьшается с ростом тока, а после его двукратного превышения над пороговым значением непрерывно увеличивается.

Как первоначальное сужение диаграммы направленности, так и последующее расширение с ростом тока

можно объяснить воздействием генерируемого лазерного излучения на показатель преломления. Вначале с ростом тока затухают слабые поперечные моды, которые способны расширять диаграмму направленности, а при больших токах проявляется самофокусировка сильно преобладающей продольной моды. С ростом тока диэлектрическая проницаемость уменьшается вблизи боковых краев резонатора из-за увеличения здесь концентрации неравновесных носителей заряда вследствие слабости интенсивности лазерного излучения, а в середине резонатора она остается близкой к значению на пороге генерации $N_{\rm th}$. Лазерное излучение перестает проникать к боковым краям резонатора, и ширина резонатора для него как бы уменьшается, что вызывает уменьшение длины волны. Если принять для простоты, что распределение амплитуды электромагнитной волны по эффективной ширине резонатора остается близким к косинусному, то изменение длины волны ($\Delta \lambda$) с изме-



Рис. 2. Зависимость отношения интенсивности преобладающей моды к сумме интенсивностей всех мод $F_{\text{max}}/\Sigma F_i$ от тока *I*.



Рис. 3. Зависимость ширины диаграммы направленности в плоскости *p*-*n*-перехода от тока.



Рис. 4. Диаграмма направленности излучения в плоскости p-n-перехода при превышении тока над пороговым значением на 14% (1) и на 80% (2).

нением отношения тока к пороговому току (*j*) можно выразить формулой

$$\Delta \lambda \approx \frac{d\varepsilon}{dN} \frac{\lambda}{2\varepsilon} N_{\rm th}(j-1), \qquad (2)$$

где ε — диэлектрическая проницаемость, N — концентрация неравновесных носителей заряда. При $d\varepsilon/dN = 2 \cdot 10^{-18} \text{ см}^3$ [17], $\lambda = 3 \text{ мкм}$, $\varepsilon = 13$, $N_{\text{th}} = 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ получаем, согласно формуле (2), $d\Delta\lambda/dj = 115 \text{ Å}$. Реальные значения $d\Delta\lambda/dj$, конечно, должны быть меньше из-за влияния границ кристалла при малых токах и отклонения распределения амплитуды электромагнитной волны от косинусного при больших токах. Достигнуто $\Delta\lambda = 50 \text{ Å}$ при изменении тока в 2 раза [18].

Постоянная времени изменения длины волны с током должна быть равна эффективному времени жизни неравновесных носителей заряда в лазере, которое составляет $10^{-8} - 10^{-9}$ с.

Таким образом, были созданы быстродействующие перестраиваемые лазеры для диодной лазерной спектроскопии в средней инфракрасной области спектра.

Пространственные колебания лазерного потока по ширине резонатора

Исследования диаграмм направленности лазерного излучения [19] при ширине резонатора > 18 мкм (рис. 4) показали их раздвоение с углом ~ 11°, что в 2 раза меньше, чем должно быть для первой поперечной пространственной моды резонатора. Это могло получиться при наличии двух противофазных потоков излучения, разнесенных на 17 мкм. Методом конформных преобразований было вычислено распределение тока по ширине резонатора, которое показало более высокую плотность инжекции на краях резонатора, чем в середине. Результирующее повышение концентрации неравновесных носителей в направлении от середины к краям резонатора образовывало плавный оптический волновод. Генерируемый в инверсной среде лазерный поток в таком волноводе мог перемещаться от одной боковой стенки резонатора к другой и обратно, т.е. совершать пространственные колебания. Вместе с одним потоком мог существовать противофазный или синфазный поток для обеспечения наибольшего соответствия плотности потока плотности инжекции.

Исследование волнового уравнения [18,19] для лазерного потока показало отсутствие поперечных мод, что очень важно для получения одномодового режима генерации.

4. Одномодовая генерация

Было замечено, что в лазерах с малой длиной резонатора, ~ 200 мкм, возникновение одномодового режима при увеличении тока сопровождается резким увеличением интенсивности излучения [10]. В отличие от



Рис. 5. Спектры излучения слабоперестраиваемого по частоте лазера с длиной резонатора 500 мкм и пороговым током 70 мА при разных токах.

Физика и техника полупроводников, 2003, том 37, вып. 8



Рис. 6. Спектры излучения частотно-перестраиваемого лазера с длиной резонатора 230 мкм и пороговым током 90 мА при разных токах.

этого в лазерах с большой длиной резонатора (500 мкм) скачок интенсивности отсутствует и количество мод увеличивается с ростом тока (рис. 5) за счет добавления более длинноволновых мод. При этом генерируются как продольная, так и поперечные пространственные моды. В лазерах с малой длиной резонатора (~ 200 мкм) генерируется в основном одна продольная мода, длина волны излучения которой уменьшается с током (рис. 6).

Наблюдаемые закономерности были объяснены недавно следующим образом [20]. Нечетные поперечные моды имеют нулевую интенсивность в середине резонатора и максимальную вблизи его боковых краев. В результате нечетные поперечные моды мешают образованию плавного концентрационного волновода. Поэтому лазеры с большой длиной резонатора не будут перестраиваться с большой вероятностью. Близость длин волн продольной и первой поперечной мод приводит к возникновению фазовой динамической решетки коэффициента преломления, вызывающей увеличение коэффициента усиления с длинноволновой стороны от более сильной моды и уменьшение с коротковолновой стороны [21,22]. С увеличением тока возникает вынужденная генерация все более длинноволновых мод, и при этом сохраняются коротковолновые моды. В результате несколько десятков мод поддерживают друг друга.

Благоприятной для возникновения плавного концентрационного волновода является длина резонатора, при которой первые поперечные моды располагаются в спектре посередине между продольными,

$$L = \frac{2\varepsilon b^2}{n^* 3\lambda},\tag{3}$$

где *b* — ширина резонатора,

$$n^* = n \left(1 - \frac{\lambda}{n} \frac{dn}{d\lambda} \right).$$

Существует ток, при котором спектральное положение максимума усиления совпадает с положением продольной моды. Продольная мода будет уменьшать концентрацию носителей заряда в середине резонатора и не будет мешать увеличению ее вблизи боковых краев. Возникает плавный водновод, в котором происходят пространственные колебания потока излучения, полностью подавляющие поперечные моды. Упомянутая диэлектрическая решетка сглаживается в 10³ раз, так как частота пространственных колебаний (10¹² Гц) на 3 порядка больше величины, обратной эффективному времени жизни носителей заряда в лазере. В результате остается одна спектральная линия излучения, наиболее близко расположенная к максимуму спектра усиления. Направление смещения этой линии и максимума спектра усиления одно и то же. Поэтому диапазон перестройки может превышать межмодовое расстояние. Исчезновение взаимодействия мод, сопровождающегося генерацией сильно поглощающихся разностных и суммарных гармоник, приводит к упомянутому увеличению квантового выхода излучения.

Таким образом, возникновение плавного концентрационного волновода и устранение поперечных колебаний потока излучения способствуют генерации только одной спектральной линии и ее смещению с током в коротковолновую сторону. Наибольший диапазон изменения длины волны излучения достигается выбором температуры, при которой скорость сдвига максимума спектра усиления с током оказывается такой же, как для генерируемой моды резонатора.

Осуществление пространственных колебаний лазерного потока и подбор рабочей температуры позволили расширить диапазон перестройки свыше 100 Å.

5. Быстродействие частотной перестройки

Быстродействие частотной перестройки диодных лазеров изучалось при питании их импульсами тока с наклонной вершиной положительной крутизны (рис. 7). Длительность импульсов τ бралась различной от единиц до сотен мкс, а форма одинаковой. Амплитуда импульса была существенно больше, чем ее изменение. Измерения проводились при температуре лазера 78 К. Излучение пропускалось через кремниевый резонатор Фабри– Перо толщиной 1.1 см, что приводило к модуляции излучения синусоидой вследствие изменения длины волны в процессе импульса (рис. 8). Один период синусоиды соответствовал изменению длины волны на 1.5 Å.



Рис. 7. Импульсы тока с наклонной вершиной (1) и напряжения на лазере (2).



Рис. 8. Импульсы излучения, прошедшие через кремниевый резонатор Фабри–Перо. Длительность импульсов τ , мкс: 1 - 4.5, 2 - 9.



Рис. 9. Изменение длины волны излучения со временем при питании лазера импульсами длительностью $\tau = 4.5$ (1), 9 мкс (2) и составляющая этого изменения, обусловленная нагреванием (3).

Зависимость изменения длины волны от времени *t* (рис. 9) состоит из двух составляющих — линейной и насыщающейся. Форма насыщающейся составляющей не зависит от длительности импульса, поэтому можно считать, что она обусловлена нагреванием после включения импульса тока, так как изменение амплитуды импульса существенно меньше ее величины. Насыщающаяся составляющая достигает значения 63% от своей максимальной величины за 0.9 мкс. Теоретическая эффективная постоянная времени имеет такую же величину в случае выделения тепла в активной области и распространения его в кристалл и далее в держатель лазера. Формула для этой эффективной постоянной времени имеет вид

$$\tau_3^* = \frac{c_p \rho}{3\kappa} b^2 \left(\pi - \frac{4h}{D}\right)^{-2} \ln^2 \frac{4h}{b},\tag{4}$$

где $c_p = 0.018$ кал/г · К — теплоемкость, $\rho = 6$ г/см³ — плотность, $\varkappa = 1$ Вт/см · К — теплопроводность, b = 18 мкм — ширина резонатора, D = 500 мкм и h = 100 мкм — ширина и толщина кристалла соответственно. Формула получена при $2h/D \ll 1$ и $2h/b \gg 1$. Более общее выражение содержится в работе [23].

По-видимому, имеется значительная безызлучательная спонтанная рекомбинация, дающая тепловыделение в активной области. Надпороговая часть тока значительно меньше порогового значения, а диапазон перестройки длины волны в процессе импульса значительно больше, чем в начале импульса. Поэтому линейную составляющую нельзя считать тепловой, а можно считать обусловленной увеличением тока. Длина волны следует за током при всех длительностях импульса (рис. 8). Круговая частота синусоид при длительности импульса 4.5 мкс составляет $\omega_s = 10^7$ Гц. Поэтому быстродействие токовой перестройки не хуже $1/\omega_s = 10^{-7}$ с.

Таким образом, токовая перестройка имеет бо́льший диапазон в меньшем интервале токов, чем тепловая, и обладает быстродействием по крайней мере 10^{-7} с.

Ширина лазерной линии в перестраиваемых диодных лазерах

Для проведения точных спектроскопических исследований колебательно-вращательных спектров молекул газов важнейшей характеристикой используемого лазера является ширина спектральной линии его излучения. Ширина линии генерации исследовалась на перестраиваемых током лазерах на основе гетероструктур InAsSbP/InAsSb/InAsSbP [24–26]. Лазеры были запитаны постоянным током, с модуляцией пилообразным током в интервале от 1 до 5 пороговых значений и в интервале температур 12–100 К. Излучение моды направлялось в кювету с исследуемым газом или в эталонный резонатор.



Рис. 10. Осциллограммы сигнала U, пропорционального интенсивности лазерного излучения, прошедшего через кювету с газом CH₃Cl, при питании лазера пилообразным током (1) и производной от него по времени dU/dt, получаемой после RC-цепочки, (2).

Детектированный сигнал подавался как на дифференцирующий RC-фильтр, так и на один из каналов цифрового осциллографа. Постоянная времени фильтра τ_f составляла 20 мкс, что на 2 порядка больше времени установления сигнала в системе регистрации излучения. На рис. 10 представлены осциллограмма сигнала U излучения лазера, прошедшего через кювету с CH₃Cl (кривая 1), и производная по времени от этого сигнала dU/dt (кривая 2). По интервалу времени между двумя минимумами сигнала, соответствующими известным линиям поглощения CH₃Cl, определялась величина v' скорость изменения волнового числа излучения лазера v со временем. При использовании отдельных линий поглощения скорость v' определялась по собственным частотам эталонного резонатора. Во втором канале цифрового осциллографа измерялись линейно усредненная величина производной U_R и среднеквадратичное отклонение от ее среднего значения $\langle U_{\mu} \rangle$. Указанные величины измерялись в точках перегиба кривой 1, где эти величины максимальны, и усреднялись. Ширина линии на полувысоте максимума излучения лазеров определялась по формуле

$$\Delta f = 2c \tau_f \nu' \langle U_\mu \rangle / U_R. \tag{5}$$

Экспериментальные значения ширины линии излучения Δf зависят от питающего тока I (рис. 11). При некотором значении тока $I = I_{\min}$ ширина линии генерации минимальна. При токах $I < I_{\min} \Delta f$ увеличивается с током резко, а при токах $I > I_{\min} -$ плавно; $I_{\min} = (3-4)I_{\text{th}}$. В представленном лазере Δf остается в пределах 32-18 МГц. В многомодовых лазерах ширины нескольких одновременно генерируемых мод различаются не более чем на 20%. При отклонении температуры в пределах ± 10 К от оптимальной, при которой ширина диапазона перестройки максимальная,

Физика и техника полупроводников, 2003, том 37, вып. 8

ширина линии генерации при фиксированной разности $I-I_{\rm th}$ изменяется в ту же сторону, что и абсолютная температура, но слабее.

Кроме экспериментальных точек на рис. 11 приведены две теоретические кривые. Штриховая кривая построена для исследуемого лазера V-12191-3 и представляет собой по формуле, выведенной Генри [8] для ширины линии генерации полупроводниковых лазеров

$$\Delta f = R(1 + \alpha_n^2)/4\pi P, \tag{6}$$

где *R* — средняя скорость спонтанного испускания, *α_n* — отношение вариации действительной и мнимой частей коэффициента преломления, Р — количество фотонов в резонаторе. В теории Генри предполагалось, что средняя концентрация неравновесных носителей заряда N не зависит от тока после достижения порогового значения N_{th} . В этом случае R, α_n и Δf определяются изменением числа фотонов в резонаторе P и Δf обусловлена флуктуациями спонтанного испускания в моду, что соответствует основополагающей теории Шавлова-Таунса [27] и конкретной теории Ямада [28]. Уменьшение Δf с ростом $I-I_{\text{th}}$ по гиперболическому закону наблюдается экспериментально только при малых токах (рис. 11) [29]. В перестраиваемых лазерах концентрация неравновесных носителей заряда увеличивается с током. При этом ширина линии генерации определяется еще и



Рис. 11. Экспериментальные значения ширины линии генерации Δf лазера V-12191-3 при различных токах, измеренные на полосах поглощения газов CH₃Cl, OCS, (точки) и теоретические зависимости Δf от тока в предположении независимости концентрации неравновесных носителей заряда от тока (штриховая линия) и в предположении увеличения концентрации неравновесных носителей заряда с током (сплошная линия).

флуктуацией собственных частот резонатора вследствие флуктуации количества зарядов в нем и соответствующим изменением коэффициента преломления.

В отсутствие лазерного излучения вероятностная функция распределения собственных частот резонатора будет иметь ширину

$$\Delta f_0 = 2 \frac{f}{n} \left| \frac{dn}{dN} \right| \sqrt{\frac{2}{V} \left(N_{\rm th} + \delta N \right)},\tag{7}$$

где V — объем активной области, δN — превышение концентрации неравновесных носителей заряда над пороговым значением, которое мы связываем с отклонением δf частоты генерации от ее значения при пороговом токе,

$$\delta N = \frac{\delta f}{f} \frac{n}{(-dn/dN)}.$$
(8)

В присутствии лазерного излучения вероятностная функция сузится во столько раз, во сколько раз уменьшится время жизни носителей заряда (от τ_0 до τ_p). Ширина лазерной линии составит

$$\Delta f = \Delta f_0 \frac{\tau_p}{\tau_0}.\tag{9}$$

Из рассмотрения скоростного уравнения для изменения *N* при фиксированной скорости инжекции и усиления в условиях бимолекулярной рекомбинации, характерной для лазеров, получим

$$\frac{\tau_0}{\tau_p} = 1 + \frac{(I/I_{\rm th}) - (1 + \delta N/N_{\rm th})^2}{2(1 - N_0/N_{\rm th})(1 + \delta N/N_{\rm th})}, \qquad (10)$$

где N₀ — концентрация неравновесных носителей пороге инверсии заселенности для заряда на данной $N_0/N_{\rm th} = 0.75 - 0.80.$ Рассчитанная моды, по формулам (7)–(10) величина Δf при n = 3.6, $dn/dN = 0.25 \cdot 10^{-18}$ см³, $N_{\rm th} = 9.4 \cdot 10^{16}$ см⁻³ приведена на рис. 11 (сплошная кривая); она хорошо соответствует экспериментальным точкам. В том случае, когда ширина линии генерации и ее зависимость от тока обусловлены флуктуациями собственных частот резонатора, связанных с флуктуациями количества носителей в нем, ширина линии генерации обратно пропорциональна корню квадратному из объема активной области. Это позволяет уменьшить ширину линии генерации путем увеличения ширины резонатора. В лазерах с шириной резонатора 100 мкм [25] удалось уменьшить ширину линии генерации до 10 МГц. При рабочей температуре 15-20 К достигнута ширина линии генерации 7 МГц [26]. Такая ширина линии генерации в 15-50 раз меньше, чем ширина линии поглощения газа. В интерале температур 60-80 К лазер работал в одномодовом режиме, имея диапазон перестройки волнового числа 2-4 см⁻¹. Получение одномодовой генерации с узкой линией излучения в лазерах с широким резонатором показывает высокое кристаллическое совершенство эпитаксиальных слоев при выращивании их жидкофазной эпитаксией и делает такие лазеры перспективными в лазерной спектроскопии благодаря их высокой мощности и малой ширине линии излучения. С помощью наших перестраиваемых лазеров были измерены линии поглощения многих газов: N₂O [18], CH₃Cl [24,25,29,30], H₂O [29,30], OSC [25,30], NH₃ [30].

7. Спектры поглощения газов

Описанный перестраиваемый током полупроводниковый лазер был применен для исследования поглощения спектров газов CH₃Cl, N₂O, OCS, NH₃, HCl, CH₄, CO₂ и H₂O в широкой области частот (рис. 12–17). В работе ставилась цель выяснить возможности предлагаемого полупроводникового лазерного спектрометра и его пригодность для обнаружения экологически вредных газовых молекул.

Вначале был прописан спектр поглощения эталона, имеющего большое количество линий поглощения в исследуемой спектральной области. Для расшифровки спектра эталона был использован атлас [31]. С помощью эталона была откорректирована калибровка лазера. Затем в объем вводился исследуемый газ.

Спектрометр был испытан в лабораторных условиях. Для нас в первую очередь представляли интерес газы CH₃Cl, OCS и H₂O. Прежде всего была произведена



Рис. 12. Спектры пропускания газа OCS, измеренные при сканировании лазерным лучом.

калибровка монохроматора и лазера по хорошо исследованным в данной области спектра газам. Было установлено, что наиболее подходящим для калибровки спектрометра является OCS, так как именно этот газ имеет большое количество колебательных полос в области 3090-3100 см⁻¹ (рис. 12) (7О)(2С), которые могли быть использованы для идентификации измеряемых линий поглощения. Газом, на котором подтверждена корректность нашей аттрибутации линий поглощения путем использования каталога HITRAN [31], был CH₃Cl (рис. 13). Частотная калибровка спектрометра (рис. 18) была выполнена с помощью линий OCS для 6 спектральных диапазонов. Спектр для CH₃Cl, полученный с использованием калибровочных данных по OCS, был сравнен с приведенным в HITRAN. Было найдено, что экспериментально полученный частотный спектр этого газа совпадал с приведенным в каталоге с точностью до 0.003 см⁻¹. Незначительные смещения длин волн (0.01 см^{-1}) имели место только для больших токов инжекции (свыше 250 мА), где прохождение относительно большого тока через полупроводниковую структуру приводит к нагреву лазера и, как следствие, к нелинейной зависимости смещения длины волны излучения с током. Однако даже в этом случае в центре области перестройки $(3091 - 3097 \text{ см}^{-1})$ линейность смещения сохраняется. На рис. 14 показан одинаковый участок спектра, взятый из HITRAN (рис. 14, *a*) и записанный диодно-лазерным спектрометром (рис. 14, b). Видна характеристическая



Рис. 13. Спектры пропускания газа CH₃Cl, измеренные при сканировании лазерным лучом.



Рис. 14. Спектры поглощения газа CH₃Cl в области характеристической Q-ветви колебательно-вращательного спектра (3095.5–3096.5 см⁻¹). a — данные из каталога HITRAN, b — экспериментальные данные.



Рис. 15. Спектры пропускания газа H₂O, измеренные при сканировании лазерным лучом.

Q-ветвь колебательно-вращательного спектра в области 3095.5–3096.5 см⁻¹. Сравнение спектров показывает хорошее соответствие полос поглощения, полученных на нашем лазерном спектрометре и представленных в литературе.

Наличие атмосферной воды (рис. 15) (колебательные линии полосы $2\nu 2$) (14C) частично влияет на спектральный фон. Это особенно проявляется в спектре OCS, вызывая уширение линии в области 3096 см⁻¹ (рис. 12).



Рис. 16. Спектры пропускания газа NH₃, измеренные при сканировании лазерным лучом.



Рис. 17. Отдельно расположенная группа линий поглощения CH₄, записанная с помощью цифрового осциллографа за время 10 мс.



Рис. 18. Зависимость волнового числа излучения лазера V-12191-3 от величины питающего тока при температурах 62 и 78 К.

С помощью того же лазера был подробно записан спектр поглощения NH_3 в диапазоне 100 Å (рис. 14) и отдельно расположенная группа линий поглощения CH_4 (рис. 17).

8. Заключение

Идеи создания лазерного монохроматора появились еще до получения стимулированного излучения в *p*-*n*-переходе Д.Н. Наследовым, А.А. Рогачевым, С.М. Рывкиным и Б.В. Царенковым. Однако первые диодные лазеры, созданные в том числе и в лаборатории Д.Н. Наследова, излучали порядка 10 спектральных линий, которые почти не перестраивались по частоте, что было естественным следствием неустойчивости электронно-дырочной плазмы при инверсии заселенности. Сглаживание пространственных периодических неоднородностей концентрации плазмы, несомненно, является одним из путей генерации одной лазерной линии, так как она может оставаться наиболее усиливаемой в широком интервале изменения питающего тока. Пространственная ширина лазерного потока уменьшается с ростом тока, так как уменьшается его проникновение к боковым стенкам резонатора из-за уменьшения показателя преломления около них при росте концентрации неравновесных носителей заряда. Сужение потока вызывает увеличение скорости его распространения, т.е. сдвиг лазерной линии в коротковолновую сторону. Максимум спектра усиления при этом сдвигается в ту же сторону. Скорость его сдвига можно сделать такой же, как и сдвига линии, выбором конструктивных параметров лазера и рабочей температуры, т.е. получить достаточно широкий диапазон изменения длины волны излучения.

Увеличенная плотность инжекции около боковых стенок резонатора по сравнению с серединой облегчает сжатие потока при малых токах. Сжатый поток получает возможность перемещаться от одной стенки резонатора к другой и обратно и сглаживать периодические неоднородности в пространственном распределении электронно-дырочной плазмы. В результате усиление оказывается достаточным для генерации только одной моды резонатора, а для генерации других линий недостаточным.

Были созданы лазерные диоды на основе двойных гетероструктур InAsSbP/InAsSb/InAsSbP с длиной волны излучения 2.8-3.6 мкм и рабочей температурой 12-120 К, в которых используются изложенные идеи. Эти лазеры генерируют одну спектральную линию излучения шириной от 30 до 7 МГц, перестраивающуюся в диапазоне до 100 Å при изменении тока приблизительно от 30 до 300 мА в среднем. Быстродействие перестройки не хуже 10^{-7} с.

Созданные лазеры позволили сканировать линии поглощения ряда вредных промышленных газов (OCS, NH₃, CH₃Cl, CH₄, N₂O и H₂O) и записывать до 20 линий. Такое большое количество линий существенно облегчает их идентификацию с имеющимися в каталогах. Лазеры могут работать как в среде нейтральных газов, так и в вакууме, что позволяет использовать их на Земле и в космосе.

Список литературы

- Д.Н. Наследов, А.А. Рогачев, С.М. Рывкин, Б.В. Царенков. ФТТ, 4, 1062 (1962).
- [2] R.N. Hall, G.E. Fenner, J.D. Kingsley, T.J. Soltus, R.O. Carlson. Phys. Rev. Lett., 9, 366 (1962).
- [3] Ж.И. Алфёров. Физика сегодня и завтра, под ред. В.М. Тучкевича (Л., Наука, 1973).
- [4] W.E. Engler, M. Garfinkel. J. Appl. Phys., 34, 2746 (1963).
- [5] J. Feinleib, S. Grows, W. Paul, R. Zallen. Phys. Rev., 131, 2070 (1963).
- [6] S. Siahatav, V.E. Hochuli. IEEE J. Quant. Electron., QE-5, 295 (1969).
- [7] D. Wolford, A. Mooradian. Appl. Phys. Lett., 40, 865 (1982).
- [8] C.N. Henry. IEEE J. Quant. Electron, QE-18, 259 (1982).
- [9] А.Н. Баранов, Б.Е. Джуртанов, А.Н. Именков, А.А. Рогачев, Ю.Н. Шерняков, Ю.П. Яковлев. ФТП, 20 (12), 2217 (1986).
- [10] В.Г. Аветисов, А.Н. Баранов, А.Н. Именков, А.И. Надеждинский, А.Н. Хуснутдинов, Ю.П. Яковлев. Письма ЖТФ, 16 (14), 66 (1990).
- [11] А.Н. Баранов, Т.Н. Данилова, О.Г. Ершов, А.Н. Именков, В.В. Шерстнев, Ю.П. Яковлев. Письма ЖТФ, 18 (22), 6 (1992).
- [12] W.W. Anderson. IEEE J. Quant. Electron., 1 (6), 165 (1965).
- [13] П.Г. Елисеев. Препринт ФИАН, № 33 (М., 1970).
- [14] П.Г. Елисеев, А.П. Богатов, В.В. Мамутин. Квант. электрон., 3 (7), 1609 (1976).
- [15] Х.Ю. Бахерт, П.Г. Елисеев, А.П. Богатов. Квант. электрон., 5 (3), 603 (1978).
- [16] А.Н. Баранов, Т.Н. Данилова, О.Г. Ершов, А.Н. Именков, В.В. Шерстнев, Ю.П. Яковлев. Письма ЖТФ, 19 (17), 30 (1993).

- [17] Т.Н. Данилова, О.И. Евсееко, А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, М.В. Степанов, В.В. Шерстнев, Ю.П. Яковлев. ФТП, **31** (6), 662 (1997).
- [18] А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, П. Кубат, С. Цивиш, Ю.П. Яковлев. ФТП, 36 (5), 622 (2002).
- [19] А.П. Данилова, Т.Н. Данилова, А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, М.В. Степанов, В.В. Шерстнев, Ю.П. Яковлев. ФТП, 33 (9), 1088 (1999).
- [20] А.П. Астахова, Т.Н. Данилова, А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, Ю.П. Яковлев. ФТП, 36 (11), 1388 (2002).
- [21] П.Г. Елисеев, А.П. Богатов. Тр. ФИАН, вып. 166, 15 (1986).
- [22] А.П. Богатов, П.Г. Елисеев, Б.Н. Свердлов. Квант. электрон., 1 (10), 2286 (1974).
- [23] А.П. Астахова, А.Н. Баранов, А. Висе, А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, Н.Д. Стоянов, А. Черняев, Д.А. Яреха, Ю.П. Яковлев. ФТП, 37, 502 (2003).
- [24] А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, П. Кубат, С. Цивиш, Ю.П. Яковлев. ФТП, 34 (12), 1468 (2000).
- [25] А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, П. Кубат, К.Д. Моисеев, С. Цивиш, Ю.П. Яковлев. ФТП, 35 (3), 375 (2001).
- [26] А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, П. Кубат, С. Цивиш, Ю.П. Яковлев. ФТП, 36, 110 (2002).
- [27] A.L. Shawlow, C.H. Townes. Phys. Rev., 112, 1940 (1958).
- [28] M. Yamada. IEEE J. Quant. Electron., 30, 1511 (1994).
- [29] S. Civis, A.N. Imenkov, A.P. Danilova, N.M. Kolchanova, M.V. Stepanov, Yu.P. Yakovlev, A.D. Walters. Spectrochem. Acta, Pt A, 56, 2125 (2000).
- [30] А.П. Данилова, Т.Н. Данилова, А.Н. Именков, Н.М. Колчанова, С. Цивиш, В.В. Шерстнев, Ю.П. Яковлев. ФТП, 34 (2), 243 (2000).
- [31] G. Gualachvili, K. Nazahary RaO. Handbook of infrared standarts II with spectral coveradge of 1.4-4 μm and 6.2-7.7 μm (N.Y., Academic Press, 1993).

Редактор Л.В. Шаронова

Single-mode fast tunable lasers for diode laser spectroscopy

A.P. Astakhova, T.N. Danilova, A.N. Imenkov, N.M. Kolchanova, Yu.P. Yakovlev

loffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences, 194021 St. Petersburg, Russia

Abstract Physical mechanisms of electron-hole plasma instability suppressing at occupation inversion and of a single mode laser generation and its frequency tuning by drive current, such as nonuniform injection and lasing spatial oscillations, have been investigated. The measurement results of current and thermal frequency tuning speed are reported. The effective time constant of thermal tuning is demonstrated to measure about $1\,\mu$ s, that of current one being at least an order of magnitude less. The thermal tuning range is within some Å, that of the current one amounting to 100 Å. Reported is also the creation of a single mode fast tunable heterolaser for diode laser spectroscopy in the range of $2.8-3.6\,\mu$ m, operating at 12-120 K, whereby the absorption spectra of OCS, NH₃, CH₃Cl, CH₄, N₂O and H₂O was scanned.