

## 07 Экситонное поглощение полупроводниковых кристаллов GaAs при оптической накачке в зону проводимости

© С.А. Ваганов, Д.А. Зайцев, Р.П. Сейсян

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
194021 Санкт-Петербург, Россия  
e-mail: sv.exciton@mail.ioffe.ru

(Поступило в Редакцию 31 октября 2012 г.)

Экспериментально исследованы при  $T = 1.7$  К изменения в экситонной структуре края фундаментального поглощения кристаллов GaAs при оптической накачке лазером с энергией излучения, немного превышающей ширину запрещенной зоны. Наблюдалось увеличение амплитуды пика основного состояния экситона при сохранении энергии максимума. Зависимость интегрального поглощения от интенсивности накачки интерпретирована в рамках представлений об экситонном поляритоне — как следствие диссипативного рассеяния экситона на генерируемых накачкой свободных электронах. Решение обратной задачи для начальных уровней накачки позволяет оценить константу электрон-экситонного взаимодействия. Интегральное поглощение основного экситонного состояния при гелиевых температурах может рассматриваться как мера чистоты эпитаксиального слоя, а причины пониженного уровня насыщения интегрального поглощения, которое заметно ниже расчетного значения, определяемого силой осциллятора экситона, требуют дальнейшего изучения.

Экспериментально изучались низкотемпературные  $T = 1.7$  К спектры поглощения дискретных экситонных состояний GaAs при дополнительной подсветке поверхности образца непрерывным полупроводниковым GaAlAs-лазером с длиной волны 808 nm (на 15.9 meV выше  $E_g = 1.5191$  eV). Образующиеся при этом неравновесные электронно-дырочные пары являются источниками свободных электронов и дырок, которые после энергетической релаксации связываются в экситоны, а затем и в экситон-примесные комплексы. Таким образом, в образце одновременно существуют и взаимодействуют свободные экситоны, свободные носители заряда, примесные центры и комплексы. Кроме того, для тонких образцов существенно наличие двух близко расположенных поверхностей с концентрацией поверхностных состояний  $N_{SS}^{1,2}$ . Данная ситуация неоднократно оказывалась предметом пристального экспериментального исследования [1–3], является важной для понимания результатов вторичного высвечивания и обладает спецификой для трех возможных режимов — высокой уровня лазерной накачки, когда возникает конденсация электрон-дырочных капель, или образование металлической жидкости, средних уровней, характерных для фотолюминесценции, а также экситонных поляритонов при низких уровнях накачки. В [3] она исследовалась с применением импульсных перестраиваемых лазеров, в [4] была использована методика вырожденного четырехволнового смешивания. В работах [5,6] основное внимание было уделено процессам диффузии рождающихся экситонов в приложенном электрическом поле, в [7–9] процессы рассеяния экситонов на электронах и экситонов на экситонах исследовались теоретически.

Исходные образцы<sup>1</sup> полупроводникового кристалла GaAs высокого кристаллофизического совершен-

ства [10] изготовлялись методом газовой эпитаксии и предположительно имели весьма низкую концентрацию мелких примесей на уровне  $n = 10^{12}$  cm<sup>-3</sup>. После отравливания подложки образцы химически утонялись<sup>2</sup> до толщин порядка одного микрона. Изготовленные таким образом образцы упаковывались свободно в бокс из покровного стекла [11]. Для измерения оптических параметров образцы помещались в стеклянный криостат с жидким гелием с откачкой паров или в жидкий азот. Экспериментальная установка и методика измерений описана в [12]. Лазерное излучение заводилось на образец под углом около 30°. Контроль мощности лазера подсветки осуществлялся фотоприемником при помощи светоделительной пластины. Лазер подсветки<sup>3</sup> монтировался на медном радиаторе с воздушным охлаждением и использовался при комнатной температуре. Вклад основного экситонного состояния GaAs выделялся из суммарного спектра края фундаментального поглощения согласно методике [13].

Новым, заслуживающим тщательного исследования наблюдением является тот факт, что оптическая плотность  $ad$  в максимуме поглощения основного экситонного состояния исследуемых образцов GaAs (рис. 1), как и ширина линии, увеличиваются с ростом плотности мощности излучения лазерной подсветки фактически без изменения спектрального положения линии. Такое поведение естественно интерпретировать в рамках представлений об экситонном поляритоне, когда регистрируемый коэффициент поглощения оказывается функцией параметра диссипативного затухания [14,15]. В качестве фактора, изменяющего затухание, могут выступить

<sup>2</sup> Прецизионное химическое травление образцов выполнено Н.Д. Ильинской.

<sup>3</sup> Полупроводниковый лазер AlGaAs был любезно предоставлен Н.А. Пихтиным.

<sup>1</sup> Исходные образцы были любезно предоставлены Н.К. Полетаевым.

Таблица 1. Характеристики экспериментально исследованных образцов GaAs

№	Толщина*, $\mu\text{km}$	Тип концентрации	Обработка
1	2.8–3.2	<i>n</i> -тип, $\sim 8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$	Травление, отжиг в водороде 550°C
2	2–2.3	<i>n</i> -тип, $10^{15}–10^{16} \text{ cm}^{-3}$	Нанесение контактов в вакууме, травление, отжиг в водороде 550°C
3	0.9–1.2	Полуизолятор, $\sim 10^{12} \text{ cm}^{-3}$	Травление
4	1.5–1.8	<i>n</i> -тип, $\sim 8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$	Нанесение контактов в вакууме, травление, отжиг в водороде 550°C
5	3.8–4.2	Полуизолятор, $10^{12}–10^{13} \text{ cm}^{-3}$	Травление, отжиг в водороде 550°C

\* Оценка по оптической плотности в области экситонного континуума.

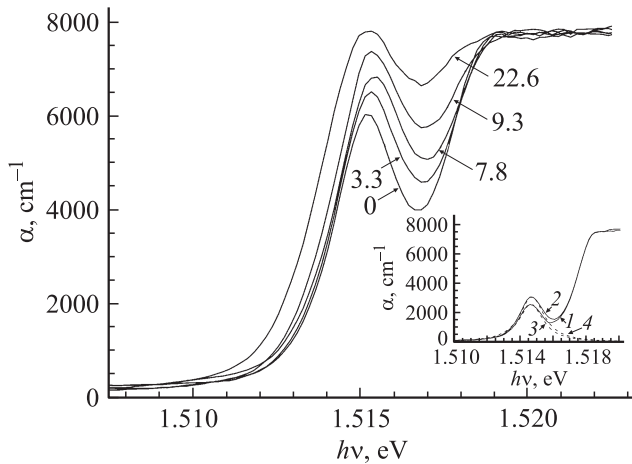


Рис. 1. Спектральные зависимости коэффициента поглощения образца № 1 при различных уровнях плотности мощности лазерной подсветки, указанных в  $\text{W}/\text{cm}^2$ . На вставке: спектральные зависимости коэффициента поглощения образца № 5 с лазерной подсветкой (2) и без нее (1). Штриховые линии 3, 4 — аппроксимация поглощения основного экситонного состояния лоренцианом.

температура [15–22], толщина тонкого образца (через электрическое поле поверхностных состояний [23,24]), магнитное поле [25] (через магнитное вымораживание ионизированных примесей) и т.п. В нашем случае основным фактором, изменяющим диссипативное рассеяние, по-видимому, выступает рассеяние экситона на генерируемых лазерной подсветкой свободных электронах. Вклад рассеяния на свободных дырках и свободных экситонах также пропорционален интенсивности лазерной подсветки, но он существенно слабее рассеяния на свободных электронах [4,5]. Для анализа полученных экспериментальных результатов использовался хорошо себя зарекомендовавший в [13,18,20,21] метод интегрального поглощения.

Параметры экспериментально исследованных образцов GaAs сведены в табл. 1. На рис. 2 приведен спектр экситонной серии края фундаментального поглощения образца № 3, зарегистрированный при низких значениях плотности потока мощности лазерной подсветки  $P = 0–11 \text{ W}/\text{cm}^2$ . Без лазерной подсветки амплитуда основного экситонного состояния в исследуемых образцах, как правило, существенно ниже уровня экситонного континуума. С ростом интенсивности подсветки амплитуда пика растет. Зависимость интегрального

поглощения  $K(P)$  основного экситонного состояния от интенсивности подсветки для исследованных образцов (рис. 3) имеет три характерных участка. Первый —

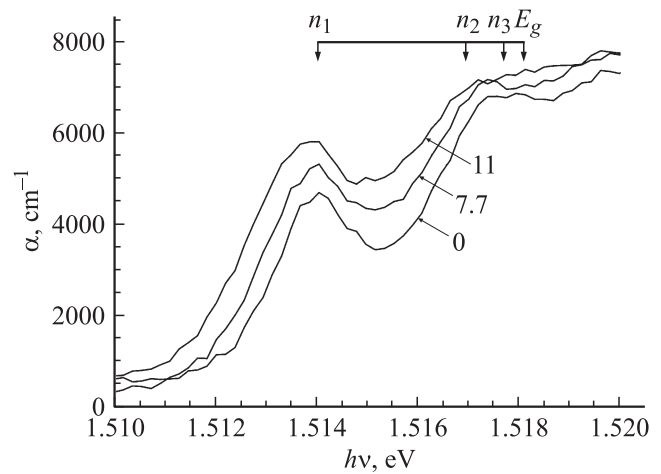


Рис. 2. Спектральные зависимости коэффициента поглощения образца № 3 при различных уровнях плотности мощности лазерной подсветки, указанных в  $\text{W}/\text{cm}^2$ . В верхней части рисунка показаны расчетные положения запрещенной зоны  $E_g$  основного и возбужденных состояний экситона  $n_0 = 1, 2, 3$ .

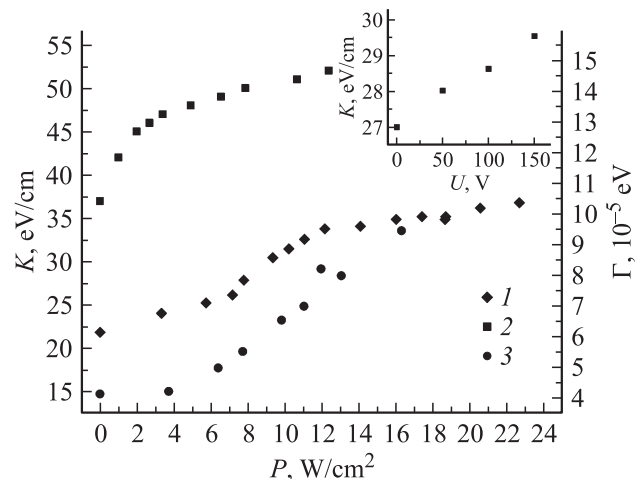


Рис. 3. Зависимости интегрального поглощения  $K$  основного экситонного состояния и однородного уширения  $\Gamma$  от плотности мощности лазерной подсветки, 1 — образец № 1, 2 — образец № 2, 3 — образец № 3. На вставке: изменение  $K$  в зависимости от напряжения, приложенного к омическим контактам образца № 4.

**Таблица 2.** Максимальные значения интегрального экситонного поглощения в GaAs для основного и возбужденных состояний

$n_0 = 1$	$K_{\max,1} = 73 \text{ eV/cm}$	$\Gamma_{c,1} = 0.22 \text{ meV}$
$n_0 = 2$	$K_{\max,2} = 9.125 \text{ eV/cm}$	$\Gamma_{c,2} = 0.014 \text{ meV}$
$n_0 = 3$	$K_{\max,3} = 2.704 \text{ eV/cm}$	$\Gamma_{c,3} = 0.0039 \text{ meV}$

почти не зависящий от подсветки (слабый рост), второй — относительно быстрый линейный рост и третий — насыщение, или слабый рост. При этом значение интегрального поглощения в области насыщения  $K_{\text{sat}}$  заметно уступает предельному значению интегрального поглощения для GaAs  $K_{\max} = 69\text{--}73 \text{ eV/cm}$ , определенное ранее [18,26] и согласующегося с литературными данными силой осциллятора и продольно-поперечным расщеплением основного состояния экситона. Повысить интегральное поглощение увеличением плотности мощности лазерной подсветки не удастся.

Помимо основного экситонного состояния  $n_0 = 1$  регистрируется первое возбужденное  $n_0 = 2$ , а в отдельных случаях при  $P = 4\text{--}7 \text{ W/cm}^2$  также и второе возбужденное состояние  $n_0 = 3$ . При достижении значений  $P > 10 \text{ W/cm}^2$  возбужденные состояния перестают отчетливо регистрироваться. С увеличением интенсивности подсветки положения линий возбужденных состояний смещаются в длинноволновую сторону. Сила осциллятора возбужденных состояний уменьшается как  $n_0^{-3}$  [11], а критическое затухание  $\Gamma_c$  соответственно изменяется как  $\Gamma_c = 2\sqrt{p\beta} \propto n^{-5/2}$  ( $p$  — сила осциллятора,  $\beta = \frac{\hbar\omega_{0,n}}{m_p c^2} \propto n^{-2}$ ). Максимальные значения интегрального экситонного поглощения в GaAs для основного и возбужденных состояний приведены в табл. 2.

Совместное рассмотрение теоретической зависимости интегрального поглощения  $K(\Gamma)$  от параметра затухания  $\Gamma$  и экспериментальной зависимости интегрального поглощения  $K(P)$  от плотности мощности лазерной подсветки  $P$  позволяет выделить (по методике [27]) зависимость истинного диссипативного затухания (однородного уширения)  $\Gamma(P)$  (рис. 3) от плотности мощности подсветки, а также зависимость от концентрации носителей  $\Gamma(n)$ . Концентрация  $n$  считалась для времени жизни свободных электронов на дне зоны проводимости  $\tau = 10^{-9} \text{ s}$  — в соответствии с  $n(P) = \alpha\tau P/\hbar\omega_L$ , при этом коэффициент поглощения излучения лазерной подсветки приравнялся к поглощению в континууме  $\alpha = 8 \cdot 10^3 \text{ sm}^{-1}$ ,  $\hbar\omega_L$  — энергия оптической накачки.

Анализ полученных результатов в рамках представлений об экситонном поляритоне позволяет сделать следующие выводы. Высокое кристаллофизическое совершенство исследованных образцов кристаллов GaAs, выращенных методом газовой фазной эпитаксии, подтверждается наблюдением в спектрах края поглощения линий высоковозбужденных состояний экситона  $n_0 = 2$ ,  $n_0 = 3$ . При этом наблюдаемая ширина линий оказывается существенно больше гомогенной ширины линии, что,

по-видимому, определяется неомогенным уширением, связанным с неоднородной деформацией, возможно, возникшей при утонении образца, а также с уширением неоднородным электрическим полем поверхностных состояний. Остаточную деформацию не удастся полностью снять термообработкой в атмосфере водорода, как описано в [11]. Относительная остаточная деформация образцов № 3, оцениваемая по наблюдаемому спектральному смещению основного экситонного состояния около  $1 \text{ meV}$ , может составить величину порядка  $10^{-4}$ .

Следует обратить внимание на особенность края поглощения образца № 5 (см. вставку к рис. 1), где экситонный максимум  $n_0 = 1$  в несколько раз ниже континуума. Соответствующее значение интегрального поглощения без подсветки  $K_{\max} = 6.8 \text{ eV/cm}$  на порядок меньше значения насыщения для GaAs [18,26]. При этом определенная по выделенной зависимости однородного уширения концентрация ионизированных примесей  $N_{D^+} = 4 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$  оказывается чрезвычайно низкой. При гелиевой температуре вклад акустических и оптических фононов несуществен, значение интегрального поглощения определяется как  $K = \xi N_{D^+}$ , причем интегральное сечение взаимодействия „экситон–ионизированная примесь“  $\sigma$  уже учитывается экспериментально определенным для ионизированных примесей в GaAs [25] коэффициентом  $\xi = 1.7 \cdot 10^{-9} \text{ eV} \cdot \text{cm}^2$ . Таким образом, метод интегрального поглощения позволяет судить об истинной чистоте образцов, которая для образца № 5 может рассматриваться как технологическое достижение.

Наблюдаемое насыщение зависимости  $K(P)$  (рис. 3), по-видимому, не является истинным насыщением интегрального поглощения, характеризующим силу осциллятора экситона в GaAs, а определяется, скорее, „пленением“ уровня Ферми при выходе на один из максимумов в спектре поверхностных состояний. Несколько увеличить предельное  $K_{\text{sat}}$  удастся, пропуская через образец электрический ток (см. вставку к рис. 3). Прямая пропорциональность  $K$  проходящему через образец току (или же приложенному напряжению) подтверждает связь интегрального поглощения с электрон-экситонным рассеянием.

Константу электрон-экситонного взаимодействия  $\xi$  можно тем не менее определить по зависимости  $K(P)$ , дающей величину полного однородного затухания  $\Gamma(P)$ . Для нашего случая ее можно записать как

$$\Gamma = \Gamma_0 + \xi n_e.$$

Здесь  $\Gamma_0$  — фоновое затухание, связанное с фононами и ионизированными примесями и дефектами, но не с носителями заряда, вводимыми оптической накачкой;  $n_e$  — концентрация электронов, инжектированных в результате оптической накачки. Из рис. 3 имеем для образца № 3  $\Gamma_0 = 0.1 \text{ meV}$  и  $\Gamma = 0.148 \text{ meV}$  при  $n_e = 5.5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ , что соответствует  $\xi = 8.7 \cdot 10^{-16} \text{ meV/cm}^3$ . Полученное значение константы электрон-экситонного взаимодействия входит в диапазон измерений и оценок, выполненных в [5,6], но при этом демонстрирует результат

расчета с использованием теории [14], опирающейся на прямое измерение интегрального поглощения.

Авторы выражают благодарность Н.С. Аверкиеву и Г.М. Савченко за плодотворные обсуждения материалов работы, а также Г.М. Шучалину за помощь в численных расчетах и в подготовке рисунков.

## Список литературы

- [1] Аавиксоо Я.Ю., Рейманд И.Я., Россин В.В., Травников В.В. // ФТТ. 1991. Т. 31. Вып. 8. С. 2408–2412; Аавиксоо Я.Ю., Рейманд И.Я., Россин В.В., Травников В.В. // ФТТ. 1994. Т. 36. Вып. 5. С. 1470–1479.
- [2] Жилев Ю.В., Маркарян Г.Р., Россин В.В., Россина Т.В., Травников В.В. // ФТТ. 1986. Т. 28. Вып. 9. С. 2688.
- [3] Aaviksoo J., Reimand I., Rossin V.V., Travnikov V.V. // Phys. Rev. B. 1992. Вып. 45. N 3. P. 1473–1476; Когновицкий С.О., Травников В.В., Аавиксоо Я.Ю., Рейманд И.Я. // ФТТ. 1997. Т. 39. Вып. 6. С. 1011–1016.
- [4] Schultthies L., Kuhl J., Honold A., Tu C.W. // Phys. Rev. Lett. 1986. Vol. 57. N 13. P. 1635–1638.
- [5] Schaefer A.C., Steel D.G. // Phys. Rev. Lett. 1997. Vol. 79. N 24. P. 4870–4873.
- [6] Aoki K., Okuyama Y., Kobayashi T., Yamamoto K. // J. Phys. C: Solid State Phys. 1979. Vol. 12. N 4. P. 647–654.
- [7] Aoki K., Kinugasa T., Yamamoto K. // Phys. Lett. A. 1979. Vol. 72. N 1. P. 63–66.
- [8] Elcomoss S.G., Munschy G. // J. Phys. Chem. Sol. 1979. Vol. 40. P. 431.
- [9] Elcomoss S.G., Munschy G. // J. Phys. Chem. Sol. 1981. Vol. 42. P. 1–6.
- [10] Полетаев Н.К. // Автореф. канд. дис. СПб.: Физ.-техн. ин-т им. А.Ф. Иоффе, 1999. 16 с.
- [11] Сейсян Р.П. Спектроскопия диамагнитных экситонов. М.: Наука, 1984. 163 с.
- [12] Марков С.А., Сейсян Р.П., Кособукин В.А. // ФТП. 2004. Т. 38. Вып. 2. С. 230.
- [13] Ваганов С.А., Сейсян Р.П. // Письма в ЖТФ. 2012. Т. 38. Вып. 3. С. 39–45.
- [14] Ахмедиев Н.Н. // ЖЭТФ. 1980. Т. 79. Вып. 4 (10). С. 1534–1543.
- [15] Kosobukin V.A., Seisyan R.P., Vaganov S.A. // Semicond. Sci. Techn. 1993. Vol. 8 (7). P. 1235–1238.
- [16] Алиев Г.Н., Коцуг О.С., Сейсян Р.П. // ФТТ. 1994. Т. 36. Вып. 2. С. 373–378.
- [17] Datsiev R.M., Kosobukin V.A., Lukyanova N.V., Seisyan R.P., Vladimirova M.R. // Electrochemical Society Proceedings. / Ed. by Williams R.T., Yen W.M. Boston, Massachusetts, 1998. Vol. 98–25. P. 228–233.
- [18] Ваганов С.А., Сейсян Р.П. // Письма в ЖТФ. 2012. Т. 39. Вып. 19. С. 9–13.
- [19] Горбань И.С., Крохмаль А.П., Янчук З.З. // ФТТ. 2000. Т. 42. Вып. 9. С. 1582–1589.
- [20] Ваганов С.А., Сейсян Р.П. // ФТП. 2011. Т. 45. Вып. 1. С. 104–110.
- [21] Сейсян Р.П., Кособукин В.А., Маркосов М.С. // ФТП. 2006. Т. 40. Вып. 11. С. 1321–1330.
- [22] Rudin S., Reinecke T.L., Segall B. // Phys. Rev. B. 1990. Vol. 42. N 17. P. 11218–11231.
- [23] Алиев Г.Н., Лукьянова Н.В., Сейсян Р.П. // ФТТ. 1998. Т. 40. Вып. 5. С. 869–871.
- [24] Aliev G.N., Lukyanova N.V., Seisyan R.P., Vladimirova M.R., Hibbs H., Hitrova G. // Phys. Stat. Sol. A. 1997. Vol. 164. P. 93.
- [25] Сейсян Р.П., Савченко Г.М., Аверкиев Н.С. // ФТП. 2012. Т. 46. В. 7. С. 896–900.
- [26] Sonderegger S. // 2003, Magister thesis, EPFL-Ioffe Inst., Lausanne-SPb, supervisor R. Seisyan.
- [27] Маркосов М.С., Сейсян Р.П. // ФТП. 2009. Т. 43. Вып. 5. С. 656–661.