

НАСЫЩЕНИЕ ЭКСИТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ В МНОГОСЛОЙНЫХ КВАНТОВЫХ ЯМАХ GaAs/AlGaAs ПРИ ФЕМТОСЕКУНДНОМ ЛАЗЕРНОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

© В.Н.Григорьев, В.И.Гринев, В.Л.Литвиненко,
 В.Г.Лысенко, Н.И.Першикова, И.М.Хвам*

Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов
 Российской академии наук,
 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

* Центр микроэлектроники, Датский технический университет, Лингби,
 Д-2800, Дания
 (Поступила в Редакцию 7 июня 1995 г.)

В однолучевом эксперименте исследована трансформация экситонного резонанса в спектрах поглощения многослойных квантовых ям GaAs/AlGaAs при увеличении уровня фемтосекундного лазерного возбуждения. В интервале плотностей электронно-дырочных пар ($1.6 \cdot 10^9 - 2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) обнаружено сильное просветление линий поглощения состояний экситонов с тяжелой (ННХ) и легкой (ЛНХ) дыркой при незначительном уширении. Наблюдаемые закономерности связываются с уменьшением эффективной силы осциллятора экситонного перехода вследствие заполнения фазового пространства одночастичных состояний. Получена оценка величины параметра насыщения силы осциллятора $N_s = 1.9 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

Повышенный интерес к исследованиям механизмов межчастичных взаимодействий, приводящих к большим величинам оптических нелинейностей в квантово-размерных структурах, связан, в частности, с возможностями использования последних в переключающих, логических и нелинейных элементах систем обработки информации [1]. Одной из фундаментальных нелинейностей является насыщение экситонного поглощения, выражающееся в уменьшении величины коэффициента оптического поглощения α в максимуме линии при увеличении плотности электронно-дырочных ($e - h$) пар [2]. Вклад нижайшего 1s-экситонного состояния в диэлектрическую проницаемость квантовой ямы (КЯ) $\delta\epsilon_{\text{ex}}(\hbar\omega)$ можно представить в виде

$$\delta\epsilon_{\text{ex}}(\hbar\omega) = \frac{F_{\text{ex}} \sum (1 - f_e - f_h) \hbar\omega_{\text{ex}}}{SL_z [(\hbar\omega_{\text{ex}})^2 - (\hbar\omega)^2 - i\gamma_{\text{ex}} \hbar\omega]}, \quad (1)$$

где $\hbar\omega_{\text{ex}}$ — энергия экситонного состояния, γ_{ex} — параметр его затухания, f_e и f_h — числа заполнения одночастичных электронных и

дырочных состояний, \sum обозначает суммирование по всем значениям квазиимпульса, S — площадь КЯ, L_z — ее толщина, F_{ex} — сила осциллятора экситонного перехода в расчете на одну ячейку [3].

$$F_{ex} = \Omega |\Phi(0)|^2 f_0 / L_z. \quad (2)$$

Здесь $\Phi(r_e - r_h)$ — волновая функция, описывающая относительное движение электронов и дырок в плоскости ямы, $|\Phi(0)|^2$ — вероятность обнаружить электрон и дырку в одной ячейке, f_0 — квадрат матричного элемента дипольного перехода между блоховскими состояниями в подзонах, Ω — объем элементарной ячейки.

При увеличении плотности $(e-h)$ -пар экситонные оптические переходы могут обнаруживать сдвиг частоты ω_{ex} , увеличение параметра экситонного затухания γ_{ex} или уменьшение эффективной силы осциллятора $F^{ef} = (F_{ex}/SL_z) \sum (1 - f_e - f_h)$. Как видно из (1), все три названных эффекта вносят вклад в изменения величины $\alpha(\hbar\omega) \sim \omega \text{Im} \delta\varepsilon_{ex}(\hbar\omega)$ и в принципе могут привести к просветлению экситонного резонанса.

Так, к увеличению параметра экситонного затухания γ_{ex} и уширению линии поглощения при уменьшении ее величины в максимуме и неизменности интегрального поглощения могут привести усиление межэкситонного рассеяния при увеличении плотности экситонов [4] или экранирование кулоновского взаимодействия в системе носителей высокой плотности [5]. С другой стороны, из-за перекрытия волновых функций возможны расщепление и сдвиг энергии экситонных состояний $\hbar\omega_{ex}$, так что экситонный уровень трансформируется в неоднородно уширенную полосу (например, Гауссов контур) с полушириной Γ . В этом случае форма линии будет описываться сложным Лорентц-Гауссовым контуром [6].

При увеличении плотности экситонов уменьшение эффективной силы осциллятора может быть, в частности, связано с уменьшением «площади когерентности» экситона $A_c \sim 1/\gamma_{ex}$, т.е. той части пространства, где волновая функция экситона сохраняет фазу [3]. В этом случае оно сопровождается уменьшением времени фазовой релаксации T_2 и соответствующим увеличением параметра экситонного затухания γ_{ex} . Как следует из (1), прямой вклад в уменьшение F^{ef} может внести заполнение фазового пространства (ЗФП) одночастичных состояний, при этом для части экситонных состояний переход становится запрещенным. Еще одной возможной причиной уменьшения F^{ef} , как видно из соотношения (2), являются ренормализация экситонной орбитальной волновой функции и соответствующее уменьшение вероятности $|\Phi(0)|^2$ в присутствии других $(e-h)$ -пар. Наибольший вклад в последний эффект вносит, по-видимому, обменное взаимодействие [7,8].

Относительный вклад различных механизмов изменений параметров экситонного резонанса в наблюдаемые трансформации линии поглощения может зависеть от соотношения длительности импульсов фотовозбуждения, характерных времен соответствующих механизмов и величины задержки относительно момента возбуждения. Так, уширение вследствие межэкситонного рассеяния происходит за времена $10^{-11} - 10^{-13}$ s в зависимости от плотности экситонов, экранирование кулоновского взаимодействия происходит за времена $10^{-11} - 10^{-13}$ s,

определяемые плазменной частотой. Поэтому в экспериментах с импульсами нано- и пикосекундной длительности выделить вклады этих механизмов достаточно сложно. Так, в работах по трансформации экситонных линий поглощения в CdS [9] и GaAs [10] полученные результаты рассматриваются с точки зрения экранирования кулоновского взаимодействия в системе носителей высокой плотности. Очевидно, однако, что за наносекундные времена [9] или при временной задержке 8 ps [10] успевает произойти не только фазовая релаксация, сопровождающаяся уширением γ_{ex} и соответствующим уменьшением эффективной силы осциллятора, но и увеличение неоднородного уширения экситонного уровня Γ , приводящее к несимметричной полосе с полушириной около 10 meV.

В работах [11,12] по трансформации линий экситонного поглощения в КЯ, выполненных с использованием импульсов пикосекундной длительности, просветление резонансов связывается с уширением линии вследствие межчастичных столкновений и экранирования кулоновского взаимодействия соответственно. В то же время данные работы [13], использующей импульсы субпикосекундной длительности, интерпретировались с точки зрения уменьшения силы осциллятора вследствие заполнения состояний. Недавно в [5] сделан вывод о том, что уширение линии вследствие экранирования кулоновского взаимодействия является доминирующим механизмом просветления в области относительно низких плотностей ($e - h$)-пар (до 10^{10} cm^{-2} в расчете на каждую из КЯ), в то время как в области более высоких плотностей уменьшение интегрального поглощения связано с уменьшением силы осциллятора при заполнении фазового пространства. С нашей точки зрения, эксперименты с использованием двухлучевой методики, когда возбуждающие фотоны имеют волновой вектор \mathbf{K}_1 , а зондирующие \mathbf{K}_2 [5,11,12], в силу чисто методической ограниченности могут дать информацию преимущественно об уширительных механизмах просветления. Влияние ЗФП должно наиболее сильно проявляться в условиях однолучевого эксперимента, когда возбуждающие и зондирующие фотоны имеют одинаковые энергии, волновые векторы и поляризации. В связи с вышесказанным целью настоящей работы являлось исследование в однолучевом эксперименте особенностей трансформации экситонной линии поглощения в многослойных КЯ (МКЯ) GaAs/AlGaAs при увеличении уровня фемтосекундного лазерного возбуждения в области относительно низких плотностей создаваемых электронно-дырочных пар.

Исследования проводились на структурах с двадцатью КЯ GaAs/AlGaAs толщиной 100 Å, разделенных барьерами толщиной 150 Å, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Для исследований спектров пропускания подложка в окне ($1 \times 1 \text{ mm}^2$) удалялась селективным травлением. Для исследований трансформации спектров пропускания использовалось излучение перестраиваемого титан-сапфирового лазера с длительностью импульса около 150 fs и полушириной спектра излучения около 30 meV. Исследования проводились в оптическом криостате при температуре паров гелия 5 К. В качестве фотоприемника служила линейка фотодиодов оптического многоканального анализатора. Излучение лазера фокусировалось на поверхности структуры в пятно диаметром 30 μm . Мощность возбуждающего излучения изменялась с помощью нейтральных светофиль-

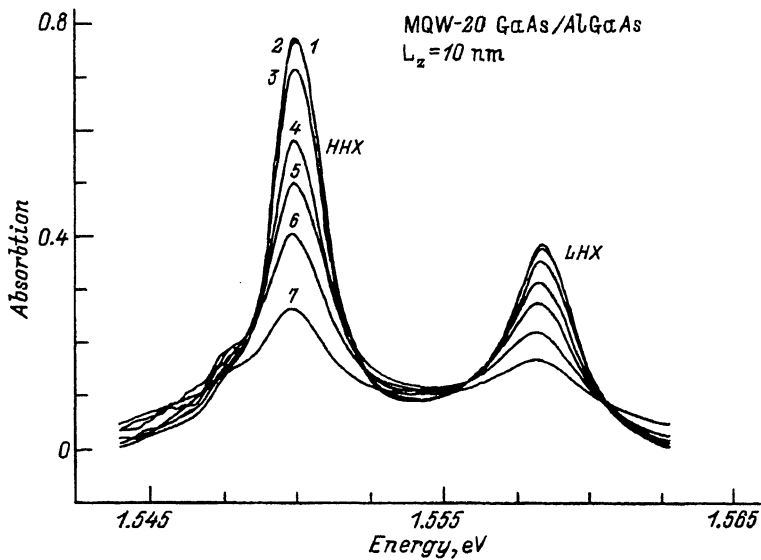


Рис. 1. Спектры поглощения МКЯ при различных плотностях электронно-дырочных пар.

N (10^{10} cm^{-2}): 1 — 0.035, 2 — 0.16, 3 — 0.27, 4 — 0.75, 5 — 1.3, 6 — 2, 7 — 2.9.

тров в интервале $10^{-5} - 10^{-1} \text{ W}$, чему при частоте следования лазерных импульсов 70 MHz отвечала плотность энергии от 10^{-9} до 10^{-5} J/cm^2 в одном импульсе в расчете на каждую из КЯ структуры. Фактическая задержка между возбуждающими и зондирующими фотонами не превышала ширины лазерного импульса 250 fs . Плотность N создаваемых в структуре $(e-h)$ -пар вычислялась из поглощаемой в ней энергии, которая определялась из измеренных спектров падающей и прошедшей мощностей посредством соответствующего вычитания и интегрирования по спектру. Часть поглощаемой в структуре энергии не превышала 16% при совпадении положений максимумов спектра лазерного излучения и линии поглощения экситонов в тяжелой дыркой. Величина случайной погрешности в определении плотности $(e-h)$ -пар возрастает с увеличением плотности из-за ошибок в вычитании спектров, а также вследствие нестабильности лазера, и при плотностях $(e-h)$ -пар более $3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ достигает 50%. Однако, как будет видно далее, наиболее существенные результаты получены в области более низких плотностей.

В спектрах линейного поглощения исследуемых структур, полученных с помощью галогенной лампы, наблюдаются резкие линии поглощения 1.550 и 1.558 eV с полушириной 1.5 meV , отвечающие экситонам первых электронной и дырочной подзон размерного квантования с тяжелой (линия ННХ) и легкой (линия ЛНХ) дырками соответственно. Трансформация экситонного резонанса в спектрах поглощения исследовалась при различных положениях максимума спектра лазерного излучения относительно линий ННХ и ЛНХ, что позволяло продвинуться в область низких плотностей $(e-h)$ -пар до 10^8 cm^{-2} . Как видно из рис. 1, при плотностях N вплоть до $1.6 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ энергия экситонного состояния, полуширина линии поглощения и ее величина в максимуме не претерпевают заметных изменений. Начиная с плотностей

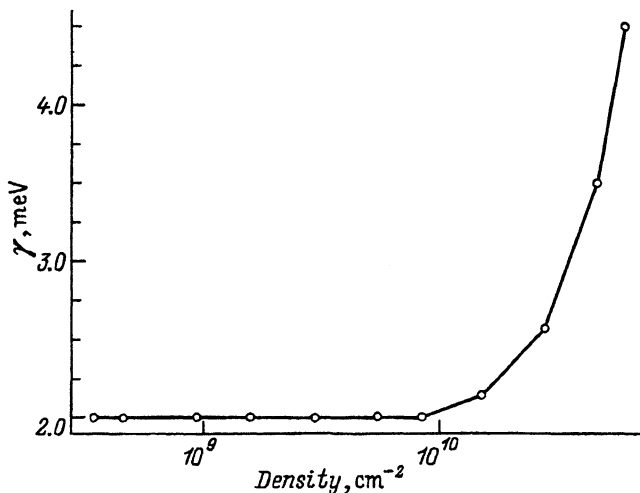


Рис. 2. Зависимость полуширины γ линии поглощения ННХ от плотности электронно-дырочных пар.

около $2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$, с ростом плотности пар наблюдается возрастающее просветление линий ННХ и ЛНХ при неизменной энергии экситонного состояния $\hbar\omega_{ex}$ и незначительным уширением линий γ вплоть до плотностей $(e-h)$ -пар $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ (спектры 3-6). При плотностях пар выше $3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ уменьшение величины α в максимуме линии и интегрального поглощения (спектр 7) сопровождается увеличением полуширины линии γ (рис. 2).

Наблюдаемые нами в однолучевом эксперименте особенности трансформации экситонного состояния при увеличении уровня фемтосекундного лазерного возбуждения, представленные на рис. 1, 2, качественно отличаются от наблюдавшихся ранее в объемных полупроводниках и КЯ в двухлучевых экспериментах с импульсами наносекундной [9], пикосекундной [10-12] и фемтосекундной длительностей в соответствующей области плотностей $(e-h)$ -пар [5]. Сильное просветление резонанса при пренебрежимо малом изменении полуширины линии γ в интервале плотностей пар $1.6 \cdot 10^9 - 2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ свидетельствует от уменьшении эффективной силы осциллятора экситонного перехода, которое нельзя отнести за счет увеличения параметра экситонного затухания γ_{ex} или неоднородного уширения экситонного уровня Г. Как отмечалось выше, в условиях однолучевого эксперимента наиболее вероятной причиной уменьшения величины силы осциллятора с ростом уровня возбуждения нам представляются заполнение фазового пространства одночастичных состояний и соответствующая ренормализация экситонной орбитальной волновой функции вследствие обменного взаимодействия. Вклад кулоновского экранирования в уменьшение силы осциллятора пренебрежимо мал по сравнению с ЗФП и обменом [7]. Уширение линии при уменьшении интегрального поглощения в области плотностей $(e-h)$ -пар выше $3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ свидетельствует, по-видимому, о включении механизма фазовой релаксации, связанного с межэкситонным рассеянием, что одновременно должно приводить и к уменьшению силы осциллятора.

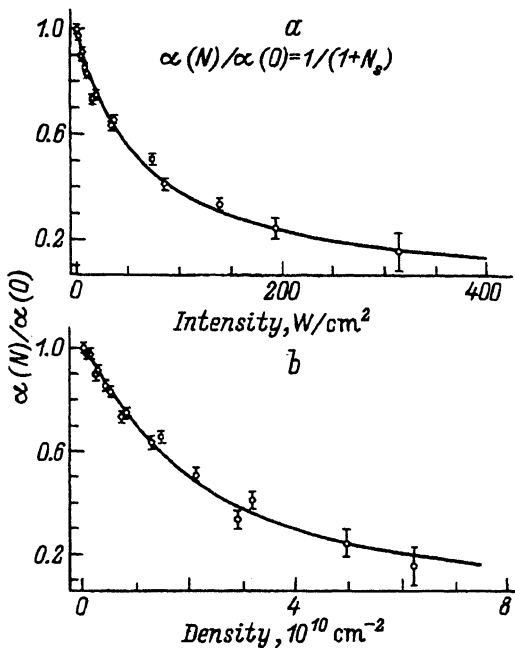


Рис. 3. Зависимости относительного просветления в максимуме линии ННХ от плотности падающей на структуру мощности (а) и плотности электронно-дырочных пар (b).

Из представленной на рис. 3, а зависимости относительного изменения величины коэффициента поглощения α в максимуме линии ННХ от плотности падающей на структуру мощности, которая имеет вид, типичный для насыщения поглощения, мы определили величину параметра интенсивности насыщения $I_s = 66 \text{ W/cm}^2$ и оценили величину коэффициента нелинейного поглощения структуры $\alpha_2 \cong 315 \text{ cm/W}$. Величина нелинейности существенно превосходит наблюдавшуюся ранее, например, в [11] в условиях двухлучевого эксперимента, что свидетельствует, по-видимому, о включении более эффективного, чем уширение линии, механизма насыщения.

В пренебрежении несущественным эффектом уширения величина относительного изменения величины силы осциллятора экситонного перехода $F^{ef}(N)/F^{ef}(0)$ равна величине относительного изменения коэффициента поглощения α в максимуме линии $\alpha(N)/\alpha(0)$. Соответствующая зависимость, представленная на рис. 3, b, наилучшим образом описывается эмпирическим соотношением $\alpha(N)/\alpha(0) = 1/1 + (N/N_s)^{1.3}$ с параметром половинного насыщения силы осциллятора $N_s = 1.9 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Согласно развитой в [7] теории для двумерного экситонного газа, половинное насыщение силы осциллятора должно иметь место при достижении плотности пар $1/16\pi a_0$, что соответствует среднему межчастичному расстоянию $\sim 7a_0$, где a_0 — боровский радиус экситона. Найденному нами значению величины параметра насыщения соответствует среднее межчастичное расстояние 725 \AA . Последнее находится в соответствии с данными работ по характеристике качества интерфейса в МКЯ методом фотолюминесценции [14].

Таким образом, проведенное нами по однолучевой методике исследование трансформации экситонного состояния в спектрах поглощения МКЯ при увеличении уровня фемтосекундного лазерного возбуждения позволило уже в области относительно низких плотностей электронно-дырочных пар зарегистрировать качественно новые особенности трансформации линии поглощения, однозначно свидетельствующие об уменьшении эффективной силы осциллятора экситонного перехода. Последнее, по-видимому, связано с ЗФП одночастичных состояний. Полученные результаты позволяют по-новому взглянуть на результаты ряда ранее опубликованных работ по трансформации экситонных резонансов с ростом уровня возбуждения в объемных полупроводниках и КЯ.

Работа выполнена в рамках программ «Физика твердотельных наноструктур» и «Перспективные технологии и устройства микро- и нанoeлектроники» при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 95-02-05046).

Список литературы

- [1] Smith P.J. *Bell Syst. Techn. J.* **61**, 8, 1975 (1982).
- [2] Henneberger F. *Phys. Stat. Sol. (b)* **137**, 2, 371 (1986).
- [3] Feldman J., Peter G., Gobel E.O., Dawson P., Moore K., Foxon C., Elliot R.J. *Phys. Rev. Lett.* **16**, 20, 2337 (1987).
- [4] Schultheis L., Kuhl J., Honold A., Tu C.W. *Phys. Rev. Lett.* **57**, 14, 1635 (1986).
- [5] Hunsche S., Leo K., Kurz H., Kohler K. *Phys. Rev.* **B 49**, 23, 16565 (1994).
- [6] Humlíček J., Schmidt E., Bocanek L., Svehla R., Ploog K. *Phys. Rev.* **B 48**, 8, 5241 (1993).
- [7] Schmitt-Rink S., Chemla D.S., Miller D.A.B. *Phys. Rev.* **B 32**, 10, 6601 (1985).
- [8] Zimmermann R. *Phys. Stat. Sol. (b)* **146**, 1, 371 (1988).
- [9] Lysenko V.G., Revenko V.I. *Sov. Phys. Sol. St.* **20**, 7, 1238 (1978).
- [10] Fehrenbach G.W., Schafter W., Treusch J., Ulbrich R.G. *Phys. Rev. Lett.* **49**, 17, 1281 (1982).
- [11] Chemla D.S., Miller D.A.B., Smith P.W., Gossard A.C., Wiegmann W. *IEEE J. Quant. El.* **QE-20**, 3, 265 (1984).
- [12] Wake D.R., Yoon H.W., Wolf J.P., Markoc H. *Phys. Rev.* **B 46**, 20, 13452 (1992).
- [13] Knox W.H., Fork R.L., Downer M.C., Miller D.A.B., Chemla D.S., Shank C.V., Gossard A.C., Wiegmann W. *Phys. Rev. Lett.* **54**, 12, 1306 (1987).
- [14] Reynolds D.C., Bajaj K.K., Litton C.W., Yu P.W., Singh J., Masselink W.T., Fischer R., Markoc H. *Appl. Phys. Lett.* **46**, 1, 51 (1985).