

УДК 621.375.592

© 1990

## СПЕКТРОСКОПИЯ НЕЛИНЕЙНОГО ОТКЛИКА GaAs, ИНДУЦИРОВАННОГО ГЕНЕРАЦИЕЙ СВОБОДНЫХ НОСИТЕЛЕЙ

А. А. Бугаев

Методами пикосекундной интерферометрии и зондирования широкополосным пикосекундным континуумом выполнена спектроскопия нелинейного отклика GaAs, обусловленного генерацией свободных носителей при двухфотонном поглощении. В диапазоне ниже края поглощения установлена линейная связь индуцированного показателя преломления и концентрация носителей, близкая соотношению Друде. Вблизи края поглощения зарегистрирована значительная зависимость индуцированного коэффициента поглощения от динамики энергетической релаксации электрон-фононной системы GaAs. Показано, что время быстрого процесса релаксации индуцированного поглощения примерно соответствует времени ангармонического распада LO-фононов.

Оптическая нелинейность GaAs, связанная с фотовозбуждением электронно-дырочной плазмы свободных носителей, рассматривается как один из перспективных механизмов при создании оптических элементов компьютерной логики [1] и систем сверхбыстрой обработки оптического сигнала [2, 3]. Это стимулировало широкий круг исследований указанного механизма, спектральная зависимость которого изучалась в основном в диапазоне выше края поглощения [4-8]. Для случая термического равновесия возбужденных носителей и решетки полученные результаты нашли хорошее соответствие теоретической модели [9], учитывающей эффекты заполнения зоны и плазменного экранирования кулоновского взаимодействия.

Вместе с тем разнообразие вариантов практического применения нелинейного отклика GaAs предполагает его исследование в более широких диапазонах как спектра, так и уровня концентраций носителей. С этой целью мы определили динамику спектра светоиндуцированного поглощения GaAs в области 1.35—1.42 эВ при значении концентрации носителей  $8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ , которое измерялось с помощью интерферометрии.

Исследования нелинейного отклика GaAs при двухфотонном возбуждении были выполнены с помощью лазерной системы, содержащей генератор сталкивающихся импульсов ( $\text{YAlO}_3 : \text{Nd}$ ) и усилитель, которая обеспечивала одиночный импульс длительностью 27 пс с энергией 5 мДж на длине волны 1079.6 нм. Использовались два экспериментальных метода. Во-первых, методом пикосекундной диагностики широкополосным континуумом, который создавался при фокусировке пикосекундного импульса в кювете с тяжелой водой  $\text{D}_2\text{O}$ , измерялась динамика спектра светоиндуцированного пропускания пластины GaAs, отвечающая определенному уровню двухфотонного возбуждения полупроводника. Во-вторых, методом пикосекундной голографической интерферометрии [10] измерялось пространственное распределение индуцированного показателя преломления для  $\hbar\omega = 1.15 \text{ эВ}$  в объеме GaAs при том же уровне возбуждения. Благодаря независимым измерениям, эксперимент позволяет определить вид функциональной зависимости между индуцированным показателем преломления и концентрацией свободных носителей вдали от края поглощения; определить концентрацию фотовозбужденных носителей в исследуе-

мом объеме GaAs для заданного уровня возбуждения; идентифицировать величину концентрации возбужденных носителей, которая вызывает регистрируемое изменение спектра пропускания полупроводника.

На первом этапе мы регистрировали интерферограмму пространственного распределения индуцированного показателя преломления GaAs, которая возникает в результате двухфотонного поглощения импульса основной частоты при задержке между возбуждающим и регистрирующим импульсами, равной 40 пс. Схема пикосекундной голографической интерферометрии описана нами в [10]. Согласно этой схеме, интерферограмма дает распределение фазового набега  $\Delta\varphi(z, x)$ , которое соответствует затуханию в объеме полупроводника (ось  $z$ ) первоначального распределения интенсивности возбуждающего импульса  $I(x)$  на поверхности этого полупроводника (ось  $x$ ). Денситограмма интерференционной картины полученная для образца GaAs ( $n$ -тип, концентрация примесей  $8 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ) тол-

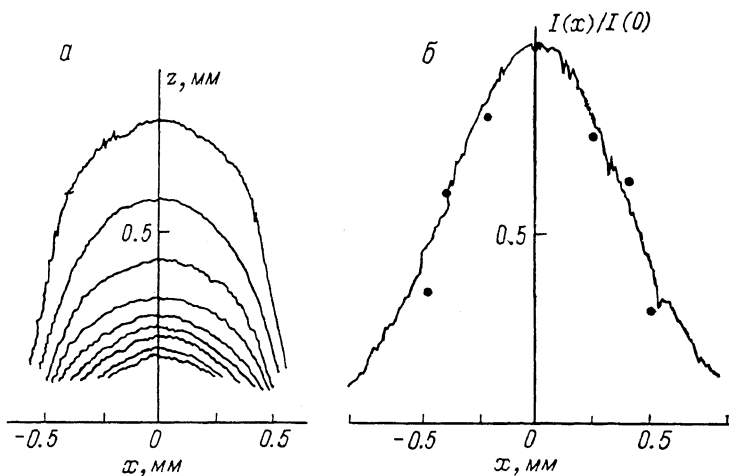


Рис. 1. Микроденситограмма интерференционной картины электронно-дырочной плазмы при задержке 40 пс (а) и распределение интенсивности возбуждающего импульса на поверхности GaAs (б) для интерферограммы а.

Линии микроденситограммы проведены через центр интерференционных полос с разностью хода  $\pi$ . Точки на кривой б получены из интерферограммы а и соответствуют зависимости  $I_0(x)/I_0(0)$ .

щиной  $d=0.5$  мм, приведена на рис. 1, а. Одновременно с записью интерферограммы с помощью линейки фотодиодов регистрировался профиль интенсивности  $I(x)$  возбуждающего импульса на поверхности GaAs (рис. 1, б, сплошная линия).

Поскольку минимальный размер возбуждаемой области и временная задержка составляют 0.5 мм и 40 пс соответственно, то мы вправе пренебречь процессами радиальной диффузии и рекомбинации носителей. Следовательно, распределение фазового набега  $\Delta\varphi(z, x)$  (рис. 1, а) должно подчиняться решению известной системы дифференциальных уравнений [11], которое имеет вид

$$\Delta N(z, x) = \frac{(1-R)\exp(-az)}{2\beta\hbar\omega} \int_{-\infty}^{\infty} \left[ \frac{\exp(at)^2}{\beta I_0(x)} + \frac{1-R}{a} (1 - \exp(az)) \right]^{-2} dt, \quad (1)$$

где  $\Delta N(z, x)$  — распределение концентрации фотовозбужденных носителей в объеме полупроводника;  $\alpha_1=4 \text{ см}^{-1}$  и  $\beta=22 \cdot 10^{-9} \text{ см}^2/\text{Вт}$  [11, 12] — коэффициенты линейного и двухфотонного поглощения;  $a=2\sqrt{\ln 2}/\tau_p$ ;  $\tau_p$  — длительность возбуждающего импульса, временная форма которого предполагается гауссовой;  $R$  — коэффициент отражения возбуждаемой поверхности;  $I_0(x)$  — пиковое (во времени) распределение интенсивности возбуждающего импульса на поверхности полупроводника.

! Путем численной подгонки (1) к распределению индуцированного показателя преломления  $\Delta n(z, x) = \Delta \varphi(z, x) \lambda / \pi d$  интерференционной картины (рис. 1, а) было найдено, что наилучшее совпадение достигается при использовании линейной зависимости  $\Delta N = K \Delta n$ , где  $K = 6 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ . Отметим, что полученная величина  $K$  весьма близка коэффициенту пропорциональности, входящему в соотношение Друде [6].

Дополнительным аргументом линейной связи между  $\Delta N$  и  $\Delta n$  служат результаты расчета пространственного распределения пиковой интенсивности  $I_0(x)$  возбуждающего импульса (рис. 1, а, б). Как видно, сопоставление экспериментальной  $I(x)/I(0)$  и расчетной  $I_0(x)/I_0(0)$  зависимостей демонстрирует их хорошее соответствие.

Таким образом, вдали от края поглощения GaAs ( $\hbar\omega_{\text{exc}} = 1.15 \text{ эВ}$ ) реальная часть нелинейного отклика, связанная с генерацией свободных носителей, может быть представлена простейшим соотношением Друде вплоть до уровня концентраций  $8 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$ .

Вторая часть наших экспериментов включала пикосекундную диагностику индуцированного спектра пропускания GaAs вблизи края поглощения с использованием спектральной компоненты широкополосного континуума в качестве зондирующего импульса переменной частоты. В эксперименте использовался образец GaAs с указанными выше параметрами,

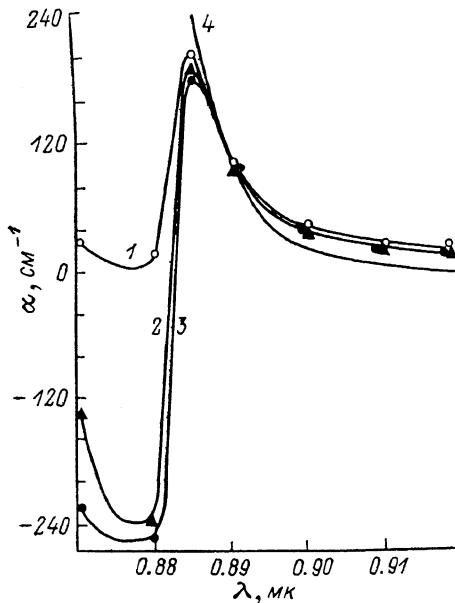


Рис. 2. Динамика спектральной зависимости коэффициента поглощения GaAs. 1 — задержка 0, 2 — 40, 3 — 150 пс. Кривая 3 на участке 0.89—0.92 мкм совпадает с кривой 2. Кривая 4 соответствует поглощению GaAs в отсутствие возбуждения.

однако имеющий толщину 80 мкм. Измерения спектра пропускания GaAs было выполнено при трех значениях задержки между возбуждающим и зондирующим импульсами, равных 0, 40 и 150 пс. Интенсивность возбуждающего импульса контролировалась так, что она соответствовала интерферограмме распределения концентрации возбужденных носителей (рис. 1, а). Таким образом, динамика спектра пропускания GaAs изучалась при концентрации свободных носителей  $8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ .

Результаты эксперимента в виде спектральной зависимости рассчитанного коэффициента поглощения приведены на рис. 2. Как видно, изменения индуцированного поглощения за период времени 0—150 пс происходят во всем наблюдаемом диапазоне спектра, включая длину волны 1.08 мкм (см. выше). Однако при энергии  $\hbar\omega \leq 1.39 \text{ эВ}$  регистрируются скачкообразный рост и слабая релаксация поглощения, в то время как при  $\hbar\omega \geq 1.4 \text{ эВ}$  коэффициент поглощения падает и для  $1.4 \hbar \leq \omega \leq 1.42 \text{ эВ}$  становится отрицательным, приводя к оптическому усилению.

Совершенно понятно, что рост поглощения для  $\hbar\omega \leq 1.39 \text{ эВ}$  связан с генерацией электронно-дырочных пар, концентрацию которых можно приблизительно оценить по соотношению  $\alpha = \alpha_1 + \sigma_{eh} N$ , где  $\sigma_{eh} = 6 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$  [13] (здесь поглощение легких дырок не принято во внимание, поскольку их плотность состояний мала). Отсюда  $N \sim 5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ , что примерно соответствует значению  $N$ , определенному выше путем интерференционных измерений.

При энергиях  $\hbar\omega \geq E_g$  нелинейный отклик GaAs преимущественно определяется заполнением зоны и плазменным экранированием куло-

нового взаимодействия. Хорошо известно [4, 9], что ренормализация зоны сопровождается появлением оптического усиления в диапазоне спектра  $E'_g < \hbar\omega < \mu$  ( $E'_g$  — приведенная ширина запрещенной зоны;  $\mu = E'_g + F_n + F_p$  — химический потенциал;  $F_n, F_p$  — квазиуровни Ферми электронов и дырок), который в нашем случае определен значениями 1.4 и 1.42 эВ. Наряду с этим видно, что поглощение продолжает резко падать и достигает минимального значения после окончания процесса возбуждения при задержке 40 пс. Дальнейшее увеличение задержки вплоть до 150 пс не приводит к существенному изменению спектра поглощения. В целом наблюдается качественное совпадение кинетики спектра плазменно-индуцированного изменения края поглощения GaAs при концентрации носителей  $8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$  с результатами экспериментов [4, 6, 7]. Однако количественное сравнение данных рис. 2 с расчетами наиболее разработанной теории [9] показывает их значительное отличие. Во-первых, рассчитанный коэффициент усиления превышает величину, полученную в эксперименте ( $\alpha_{\text{рас}} = 2 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ ). Во-вторых, рассчитанная область спектра отрицательного поглощения шире, чем приведено на рис. 2 ( $\Delta E_{\text{рас}} = 200 \text{ мэВ}$ ).

На наш взгляд, основной причиной несоответствия расчетов экспериментальным данным является приближение равенства температур возбужденных носителей и решетки GaAs, которое использовано в [9]. Понятно, что это приближение не выполняется в условиях нашего эксперимента, где носители находятся в равновесии между собой, но не с решеткой, т. е. функция распределения носителей характеризуется некоторой избыточной температурой, обусловленной двухфотонным механизмом генерации. Следовательно, результаты рис. 2 показывают особенности спектра нелинейного отклика GaAs, которые обусловлены динамикой охлаждения горячих носителей. Как видно, темп охлаждения носителей является переменным во времени и содержит быструю (в интервале  $0-40 \text{ пс}$ ) и медленную (слабое уменьшение поглощения при  $40 < \tau \leq 150 \text{ пс}$ ) стадии. Наличие этих двух интервалов можно качественно объяснить с привлечением результатов теоретического анализа [14] процесса энергетической релаксации электрон-фононной системы полупроводника. Согласно [14], время релаксации  $\tau_0$  энергии плазмы  $kT_c$  и фононов  $\hbar\omega_0$  после окончания накачки определяется соотношением величин  $kT_c$  и  $\hbar\omega_0$  (здесь  $\omega_0$  — частота LO-фонона,  $T_c$  — температура плазмы). Если температура плазмы высока ( $kT_c > \hbar\omega_0$ ), то время релаксации  $\tau_0$  незначительно превосходит время ангармонического распада LO-фонона  $\tau_a$ , которое для GaAs равно  $\tau_a = 7 \text{ пс}$ . При низких температурах ( $kT_c < \hbar\omega_0$ ) время релаксации  $\tau_0$  возрастает и на порядок превышает  $\tau_a$ .

Несмотря на то что по мере охлаждения электрон-фононной системы (увеличение задержки  $\tau$ ) спектр индуцированного поглощения рис. 2 в большей степени отвечает результатам расчета [9], трудно ожидать их количественного совпадения. Дело в том, что в области больших задержек динамика спектра нелинейного отклика будет зависеть также и от процесса рекомбинации носителей.

Автор признателен Б. П. Захарчене за плодотворные обсуждения и поддержку работы.

#### Список литературы

- [1] Gibbs H. M., Peyghambarian N. // Optical a. Hybrid Computing. Soc. Photo-Opt. Instrum. Eng. 1986. V. 634. N 1. P. 142—150.
- [2] Jain R. K., Klein M. B. // Optical Phase Conjugation / Ed. R. A. Fisher. N. Y.: Academic, 1983. P. 307—415.
- [3] Kaschke M., Wilhelm B. // Appl. Phys. 1988. V. B45. N 3. P. 555—560.
- [4] Hildebrand O., Faltermeier B. O., Pilkuhn M. H. // Sol. St. Comm. 1976. V. 19. N 9. P. 841—844.
- [5] Auston D. H., McAfee S., Shank C. V., Ippen E. P., Teschke O. // Sol. St. Electron. 1978. V. 21. N 1. P. 147—156.

- [6] Von der Linde D., Lambrich R. // Phys. Rev. Lett. 1979. V. 42. N 16. P. 1090—1093.
- [7] Lee Y. H., Chavez-Pirson A., Rhee B. K., Gibbs H. M., Gossard A. C., Wiegmann W. // Appl. Phys. Lett. 1986. V. 49. N 20. P. 1505—1507.
- [8] Schäfer W. // Festkörperprobleme. 1988. V. 28. N 1. P. 63—85.
- [9] Banyai L., Koch S. W. // Z. Phys. B. 1986. V. 63. N 2. P. 283—292.
- [10] Bugayev A. A. // Laser Optics of Condensed Matter / Ed. J. L. Birman, M. Z. Cummins, A. A. Kaplyanski. N. Y. and London Plenum Press. 1988. P. 443—446.
- [11] Bechtel J. L., Smith W. L. // Phys. Rev. 1976. V. B13. N 6. P. 3515—3527.
- [12] Van Stryland E., Vanherzeele M., Woodall M., Soilean M. J., Smirl A., Guha S., Boggess T. // Optical Engineering. 1985. V. 24. N 4. P. 613—623.
- [13] Blakemore J. S. // J. Appl. Phys. 1982. V. 53. N 10. P. R123—R128.
- [14] Кумеков С. Е., Перель В. И. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 1. С. 346—356.

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

Поступило в Редакцию  
23 ноября 1989 г.