

Влияние свободных электрон-дырочных пар на насыщение экситонного поглощения в GaAs / AlGaAs-квантовых ямах

© К.Л. Литвиненко, Й.М. Хвам*, В.Г. Лысенко

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

*Mikroelektronik Centret, DTU, DK-2800 Lyngby, Denmark

(Поступила в Редакцию 11 июля 1997 г.)

В окончательной редакции 10 ноября 1997 г.)

При помощи экспериментальной методики накачки и зондирования исследовано влияние фотовозбужденных носителей на динамику спектров экситонного поглощения GaAs/Al_xGa_{1-x}As-многослойных квантовых ям. Применение метода анализа моментов для обработки результатов позволило выделить одновременный вклад изменения силы осциллятора и уширения экситонных линий в насыщение экситонного поглощения. Оказалось, что сила осциллятора восстанавливает свое первоначальное значение в течение первых 100–130 ps, тогда как уширение и энергетический сдвиг экситонных линий наблюдаются в течение 700–800 ps. Впервые экспериментально измерена плотность насыщения силы осциллятора в случае влияния на экситонное состояние только свободных электрон-дырочных пар и в случае влияния только других экситонов.

Насыщение экситонного поглощения в многослойных квантовых ямах (МКЯ) определяется как изменением силы осциллятора f экситонного перехода, так и уширением экситонных линий [1]. Вопрос о том, какие частицы более эффективно влияют на уменьшение f (свободные электрон-дырочные пары или же экситоны), долгое время оставался открытым. В первых экспериментальных работах [2,3], в которых совершенно не учитывалось влияние уширения экситонных линий, авторы пришли к заключению, что при комнатной температуре экситоны сильнее влияют на изменение f , чем свободные носители. К противоположному выводу в своем теоретическом исследовании пришли авторы [4]. Они показали, что свободные электрон-дырочные пары, как минимум, в 2 раза эффективнее уменьшают силу осциллятора, чем экситоны. В другом теоретическом исследовании [5] было установлено, что при низких температурах экситоны должны сильнее влиять на f , чем свободные носители, в то время как для температур, больших 25 К, эффективности их влияния становятся практически одинаковыми [5]. Несмотря на то что при низкой температуре свободные электрон-дырочные пары действительно сильнее насыщают экситонное поглощение, чем экситоны [6], их влияние на f достаточно сложно выделить из-за одновременного уширения экситонных линий, которое также приводит к уменьшению экситонного поглощения. И если вспомнить, что свободные электрон-дырочные пары в несколько раз сильнее уширяют линии экситонного поглощения, чем экситонный газ, что было однозначно продемонстрировано в эксперименте четырехволнового смешивания [7], то становится совершенно не ясно, влияние каких частиц доминирует в изменении f . Решению этого вопроса и посвящена данная работа.

Мы исследовали нелинейные оптические свойства МКЯ, которая была выращена при помощи метода молекулярно-лучевой эпитаксии и состояла из 20 перио-

дов слоев GaAs шириной 80 Å и слоев AlGaAs шириной 100 Å. Для этого использовался метод накачки и зондирования [1]. В качестве источника лазерного излучения использовался титан-сапфировый перестраиваемый лазер, длительность импульсов которого составляла 120 fs, а частота повторений была равна 76 МГц. Для изучения влияния электрон-дырочной плазмы использовалось резонансное и нерезонансное экситонное возбуждение. В течение всех экспериментов образец был помещен в оптический гелиевый криостат и его температура поддерживалась равной 5 К.

На рис. 1 показаны линейный спектр экситонного поглощения и спектры использованного в нелинейном эксперименте лазерного излучения. Для обработки спектров поглощения использовался метод анализа моментов [8], суть которого заключается в интегральном определении всех экситонных параметров. Применение этого метода не требует знания точной формы спектра поглощения и позволяет рассматривать последний как произвольное статистическое распределение (более подробно об этом методе анализа спектров поглощения см. в [1]). На рис. 2 изображен результат применения этого метода к спектрам поглощения, полученным при нерезонансном возбуждении исследуемого образца. Начальная плотность фотовозбужденных частиц при этом составляла примерно $9 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Из рис. 2 видно, что изменение f , уширения и как следствие максимума экситонного поглощения происходит одновременно с приходом накачивающего импульса ($\tau = 0$), в то время как голубой сдвиг экситонной линии достигает своего максимального значения лишь спустя $\sim 110\text{--}130 \text{ ps}$. Такое поведение резонансного положения экситонной линии легко объясняется тем, что, как было показано нами в [1], свободные электрон-дырочные пары, наличие которых приводит к дополнительному красному сдвигу экситонных линий [9], исчезают из системы в течение этого времени, формируя

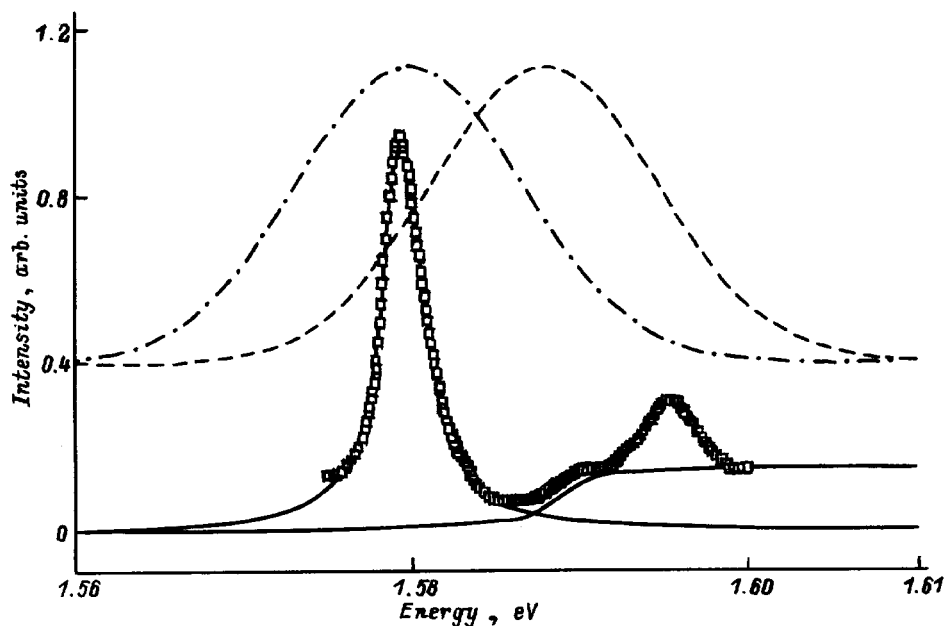


Рис. 1. Экспериментальный (квадраты) и теоретические (сплошные линии) спектры поглощения основного состояния тяжелого экситона и электрон-дырочной плазмы. Штриховой и штрихпунктирной линиями показаны спектры возбуждающего лазерного излучения.

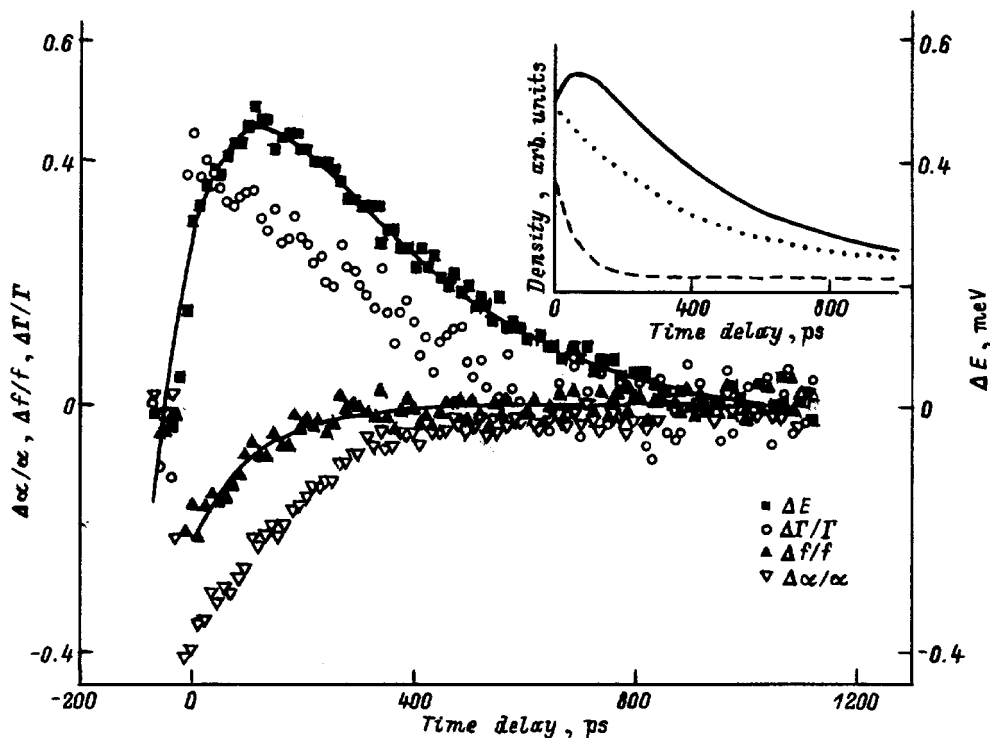


Рис. 2. Зависимость относительного изменения силы осциллятора ($\Delta f/f$), максимума коэффициента поглощения ($\Delta\alpha/\alpha$), уширения ($\Delta\Gamma/\Gamma$) и энергетического сдвига (ΔE) линии экситонного поглощения от времени задержки в случае нерезонансного возбуждения. На вставке показано изменение плотности экситонных состояний (сплошная линия) и свободных электрон-дырочных пар (штриховая линия) в зависимости от времени задержки. Для сравнения показано поведение плотности экситонных состояний в отсутствие свободных носителей (пунктирная линия).

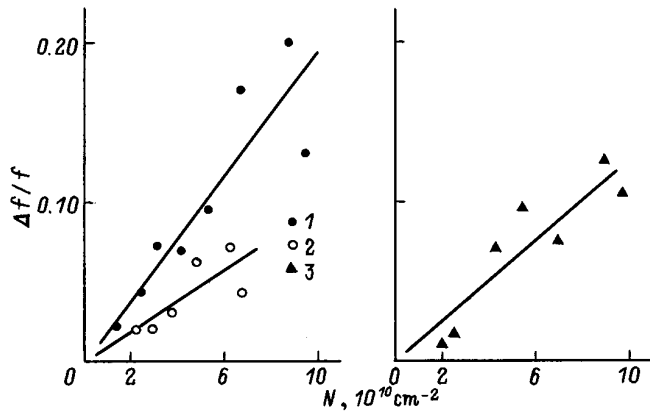


Рис. 3. Зависимость относительного изменения силы осциллятора экситонного перехода от плотности частиц в случае нерезонансного (1, 2) и резонансного (3) возбуждения.

экситоны. Для задержек, больших чем 130 ps, энергетический сдвиг и уширение экситонных линий уменьшаются по экспоненте с одинаковым характерным временем, которое в пределах погрешности совпадает с временем жизни свободных экситонов $T_1^{\text{exc}} = 410$ ps, полученным для случая резонансного возбуждения [1]. Это также подтверждает предположение о том, что свободные частицы больше не влияют на динамику экситонных состояний. При резонансном возбуждении качественно наблюдается такое же поведение экситонных параметров, как и изображенное на рис. 2, с тем лишь отличием, что энергетический сдвиг достигает своего максимального значения в начальный момент ($\tau = 0$) и что начальная величина изменения уширения и f уменьшается почти в 2 раза по сравнению с нерезонансным возбуждением при той же плотности фотовозбужденных носителей.

Для того чтобы определить парциальный вклад свободных электрон-дырочных пар и экситонов в изменение f , мы исследовали зависимость относительного изменения этой величины ($\Delta f/f$) от плотности фотовозбужденных частиц в момент времени $\tau \approx 20$ ps. Случаи резонансного и нерезонансного возбуждения представлены на рис. 3. В обоих случаях для аппроксимации экспериментальных результатов мы воспользовались линейной зависимостью, которая может быть выражена следующими формулами:

$$\frac{\Delta f^{(\text{res})}}{f} = C^{(\text{res})} N^{(\text{res})} = \frac{N_{\text{exc}}^{(\text{res})}}{N_{s,\text{exc}}} + \frac{N_{\text{pl}}^{(\text{res})}}{N_{s,\text{pl}}},$$

$$\frac{\Delta f^{(\text{non})}}{f} = C^{(\text{non})} N^{(\text{non})} = \frac{N_{\text{exc}}^{(\text{non})}}{N_{s,\text{exc}}} + \frac{N_{\text{pl}}^{(\text{non})}}{N_{s,\text{pl}}},$$

$$N^{(i)} = N_{\text{exc}}^{(i)} + N_{\text{pl}}^{(i)}, \quad i = \text{res, non}, \quad (1)$$

где $N_{\text{exc}}^{(i)}$, $N_{\text{pl}}^{(i)}$ и $N^{(i)}$ — плотность экситонов, плотность электрон-дырочной плазмы и суммарная плотность для резонансного ($i = \text{res}$) и нерезонансного ($i = \text{non}$) условий возбуждения соответственно, $N_{s,\text{exc}}$ и $N_{s,\text{pl}}$ —

плотность насыщения в случаях, когда только экситоны или только свободные носители влияют на f , $C^{(i)}$ ($i = \text{res, non}$) — коэффициенты пропорциональности, измеряемые экспериментально. Из рис. 3 мы получили $C^{(\text{res})} = 1.2 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2$ и $C^{(\text{non})} = 2 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2$.

Для того чтобы определить $N_{s,\text{exc}}$ и $N_{s,\text{pl}}$, необходимо знать, какую часть общей плотности составляют свободные носители, а какую — экситоны при обоих условиях возбуждения. Плотность фотовозбужденных частиц пропорциональна интегралу от произведения коэффициента поглощения этих частиц на интенсивность возбуждающего лазерного излучения. Спектры лазерного излучения, а также теоретические спектры поглощения основного состояния тяжелого экситона и свободных электрон-дырочных пар изображены на рис. 1. Для получения последних нами была использована обобщенная формула Элиота [10]. Таким образом получаем $N_{\text{exc}}^{(\text{res})}/N_{\text{pl}}^{(\text{res})} \approx 10.5$ и $N_{\text{exc}}^{(\text{non})}/N_{\text{pl}}^{(\text{non})} \approx 1.7$. Зная соотношения плотностей, а также величины $C^{(\text{res})}$ и $C^{(\text{non})}$, из (1) получаем $N_{s,\text{exc}} = 1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ и $N_{s,\text{pl}} = 2.5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Значения плотностей насыщения оказались почти на один порядок больше величин, предсказанных в работах [4,5], однако их отношение хорошо согласуется с выводами работы [4].

Через 130 ps после прохождения накачивающего импульса плотность свободных электрон-дырочных пар становится пренебрежимо малой, и изменение f определяется влиянием только экситонов. Определим $N_{s,\text{exc}}$ из зависимости $\Delta f/f$ от плотности для $\tau = 135$ ps. Плотность экситонов для этого времени задержки определим из следующих соотношений

$$\begin{cases} \frac{dN_{\text{exc}}}{dt} = -\frac{N_{\text{exc}}}{T_{l,\text{exc}}} + \frac{N_{\text{pl}}}{T_{l,\text{pl}}}, \\ \frac{dN_{\text{pl}}}{dt} = -\frac{N_{\text{pl}}}{T_{\text{pl}}}, \end{cases} \quad (2)$$

где $T_{l,\text{exc}}$ и $T_{l,\text{pl}}$ — времена жизни экситонов и свободных электрон-дырочных пар соответственно ($T_{l,\text{pl}} \approx 65$ ps [1]). В начальный момент времени плотности экситонов и электрон-дырочных пар равны $N_{\text{pl}}^{(0)}$ и $N_{\text{exc}}^{(0)}$. Эти величины легко получить, зная их отношение (см. выше) и их суммарную величину. Для больших τ плотности обоих видов квазичастиц стремятся к нулю. Решение системы уравнений (2) представлено на вставке к рис. 2 сплошной линией. Для сравнения на этой же вставке показано изменение плотности свободных электрон-дырочных пар (штриховая линия) и плотности экситонов в отсутствие свободных носителей (пунктирная линия).

На рис. 3 показана зависимость относительного изменения f от плотности экситонов для $\tau = 135$ ps. Наилучшее линейное приближение достигается для этой зависимости при значении коэффициента пропорциональности $C = 9.6 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2$ и изображено на рис. 3 сплошной линией. Зная C , из (1) получаем $N_{s,\text{exc}} = 1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Несмотря на то что точность в определении $N_{s,\text{exc}}$ составляет примерно 10%, полученные нами значения $N_{s,\text{exc}}$ для $\tau \approx 20$ и ≈ 135 ps отлично согласуются друг с другом.

Итак, в данной работе мы впервые измерили плотность насыщения силы осциллятора экситонного перехода в случае влияния свободных электрон-дырочных пар ($N_{s,exc} = 1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) и экситонов ($N_{s,pl} = 2.5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$) и таким образом показали, что в используемой нами МКЯ в пределе низких и средних плотностей фотовозбужденных носителей холодная электрон-дырочная плазма эффективнее влияет на силу осциллятора, чем экситонный газ.

Работа выполнена при поддержке фондов: РФФИ 95-02-05046 и 97-02-16833, INTAS-94-0324 и INTAS-RFBR-95-0576.

Список литературы

- [1] К. Литвиненко, А. Горшунов, Й.М. Хвам, В.Г. Лысенко. Письма в ЖЭТФ, в печати.
- [2] N. Peyghambarian, H.M. Gibbs. Phys. Rev. Lett. **53**, 25, 2433 (1984).
- [3] W.H. Koch, R.L. Fork, M.C. Downer et al. Phys. Rev. Lett. **54**, 1306 (1985).
- [4] S. Schmitt-Rink, D.S. Chemla, D.A.B. Miller. Phys. Rev. **B32**, 6601 (1985).
- [5] R. Zimmermann. Phys. Stat. Sol. (b) **146**, 371 (1988).
- [6] P.C. Becker, D. Lee, A.M. Johnson et al. Phys. Rev. Lett. **68**, 1876 (1992).
- [7] L. Schultheis, J. Kuhl, A. Honold et al. Phys. Rev. Lett. **57**, 1635 (1986).
- [8] Г. Корн, Т. Корн. Справочник по математике. Наука, М. (1970).
- [9] D.R. Wake, H.W. Yoon, J.P. Wolfe et al. Phys. Rev. **B46**, 20, 13452 (1992).
- [10] P. Lefebvre, P. Cristol, M. Mathieu. Phys. Rev. **B48**, 17308 (1993).