

Толщинная зависимость экситонного поглощения в чистых кристаллах GaAs "доквантового" предела

© Г.Н. Алиев*, Н.В. Лукьянова, Р.П. Сейсян

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

*Институт физики им. Х.И. Амирханова Российской академии наук, 367000 Махачкала, Россия

При температуре 1.7 К исследовано оптическое поглощение кристаллов GaAs с толщинами $d = 0.4-4.4 \mu\text{m}$ в области экситон-поляритонного резонанса. При уменьшении толщины наблюдается не только уширение экситонной линии, но и рост поглощения при незначительном штарковском сдвиге. Зависимость характера спектров поглощения от толщины кристалла рассматривается в рамках представления о конкуренции двух областей свето-экситонного взаимодействия в кристалле: находящейся в поле поверхностных зарядов и свободной от электрического поля.

В области толщин $a_x \leq d \leq l^*$, где a_x — боровский радиус экситона, а l^* — длина свободного пробега поляритона, тонкие пленки полупроводниковых кристаллов могут обладать при энергиях $h\nu \leq E_g$ оптическими свойствами, сильно отличающимися от свойств более толстых "объемных" кристаллов. Оптические явления здесь существенно отличаются и от процессов в полупроводниковых гетероструктурах со слоями "квантовой" толщины. В этой связи представляет интерес отдельно исследовать поглощение света в этом диапазоне малых толщин, непосредственно примыкающем к квантоворазмерным 2D-структурам. Впредь мы будем называть этот диапазон "доквантовым". Целью настоящей работы является изучение особенностей экситонного оптического поглощения полупроводниковых кристаллов арсенида галлия в "доквантовой" области толщин.

1. Образцы и техника эксперимента

Нами исследовались образцы высококачественного чистого GaAs ($n < 5 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-3}$, $\mu_{77} = (1-1.5) \cdot 10^5 \text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$) "доквантовой" толщины ($0.4-4.4 \mu\text{m}$), вырезанные из более толстого эпитаксиального слоя. Для измерения спектров пропускания подложка стравливалась химически, а толщина эпитаксиальных слоев уменьшалась от $10 \mu\text{m}$ до нужного размера. При этом с помощью диафрагмирования выделялись для измерения относительно однородные участки. Техника упаковки и экспериментирования с образцами в свободном виде безо всякого закрепления и наклейки описана в [1,2]. Проблемой при обработке полученных таким образом спектров было определение толщины образца. Ранее мы использовали для этой цели наблюдение торца образца в электронный микроскоп. Но в данном случае затруднительно было сопоставить участки образца, в которых велись измерения, с теми, где была определена толщина. Поэтому мы воспользовались известной величиной коэффициента поглощения α для GaAs в начале континуума. Тогда толщину кристалла d в исследуемом участке можно оценить как $d = D/\alpha^*$, где D — оптическая плотность при $E = 1.525 \text{eV}$,

а $\alpha^* = 8 \cdot 10^3 \text{cm}^{-1}$ [3]. Оптические измерения проводились при погружении в среду жидкого гелия, который откачивался до температуры 1.7 К.

2. Экспериментальные результаты

Нами были получены спектры поглощения света серии образцов GaAs с толщинами от 0.4 до $4.4 \mu\text{m}$. При уменьшении толщины в диапазоне $4.4-2.0 \mu\text{m}$ спектры поглощения практически не изменялись и соответствовали наблюдавшимся ранее (полуширина линии $H \approx 0.3-0.5 \text{meV}$, отчетливо выраженная экситонная серия $n_0 = 1, 2, (3)$, квазиконтинуум, континуум и экситон-примесный комплекс [4,5]). При дальнейшем уменьшении толщины вплоть до $1 \mu\text{m}$ одновременно наблюда-

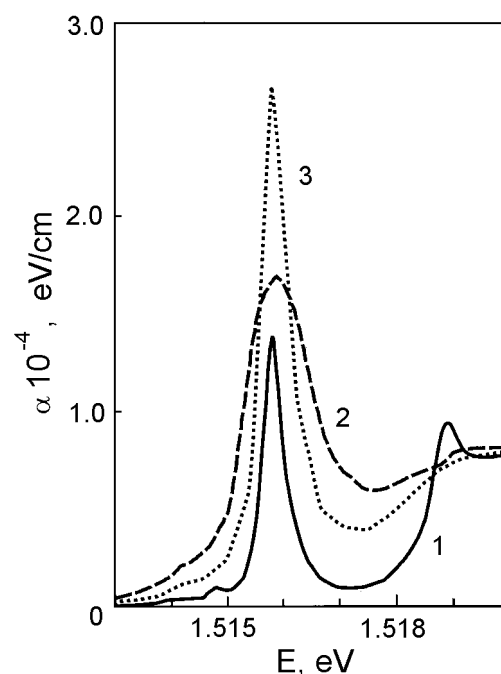


Рис. 1. Спектр поглощения образцов GaAs различной толщины в области экситонного резонанса, $T = 1.7 \text{K}$, толщина $d, \mu\text{m}$: 1 — 3.2, 2 — 0.4, 3 — 1.

лись увеличение полуширины линии и ее амплитуды, которые затем сменялись падением амплитуды на фоне продолжающегося роста полуширины (рис. 1). При этом линии возбужденных состояний и экситон-примесного комплекса становились неразличимыми.

В некоторых "доквантовых" образцах меньшей толщины можно было наблюдать эффекты интерференции поляритонных волн, а также квантование экситона как целого. Такие особенности наиболее ярко проявлялись на образцах с квантовыми ямами (In, Ga)As/GaAs с уширенным GaAs-барьером [6]. При исследовании спектра поглощения света в барьерах GaAs с $L_b = 82.2$ и 75.8 nm, наряду с серией узких линий в области дискретного экситонного спектра GaAs, наблюдалось до десятка слабых максимумов в области континуума. В [6] был проведен теоретический расчет методом матриц переноса спектра для таких образцов с учетом поляритонной интерференции и экситонного квантования, который показал хорошее соответствие со спектром, полученным в эксперименте — при определенном выборе трансляционных масс, "экситонной" толщины кристалла и "мертвых" слоев.

3. Обсуждение результатов

В ходе проведения эксперимента мы получили странный на первый взгляд результат: коэффициент поглощения света, который обычно является константой материала, оказался зависящим от толщины в области дискретного экситонного спектра. Этот факт можно попытаться объяснить, принимая во внимание наличие неоднородного электрического поля F вблизи поверхностей образца (вставка на рис. 2), которое порождается поверхностным зарядом Q_s . Коэффициент поглощения оказывается неоднородным по сечению образца, а та характеристика, которую мы получаем — это эффективное значение $\bar{\alpha}$.

При уменьшении толщины образца, если считать условия на границах неизменяемыми, уменьшается величина средней области, где экситон не подвергается влиянию электрического поля. Изменения в экситонном спектре таких образцов могут быть связаны с изменением доли кристалла, находящейся в поле поверхностного заряда. В поверхностных областях с $F(x) > F_l$, где $F_l = R/ea_x$ (e — заряд электрона, R — энергия связи экситона) происходит ионизация экситона; в области, где поле не достигает величины F_l , оно вызывает неоднородный штарковский сдвиг линии и ее уширение. Зависимость коэффициента поглощения от толщины в таком случае имеет вид [1]: $\bar{\alpha}(\omega) = \alpha(\omega)(1 - 2\delta\alpha_1(\omega)d_s/\alpha(\omega)d)$; где $\delta\alpha_1$ — приповерхностный коэффициент поглощения, усредненный по слою d_s , в котором экситон находится под воздействием электрического поля. Она носит гиперболический характер, и выбором частоты можно получить как растущий, так и падающий результат. Однако на частоте экситонного резонанса в результате эффектов электрического поля возможно только падение амплитуды поглощения с уширением, соответствующим

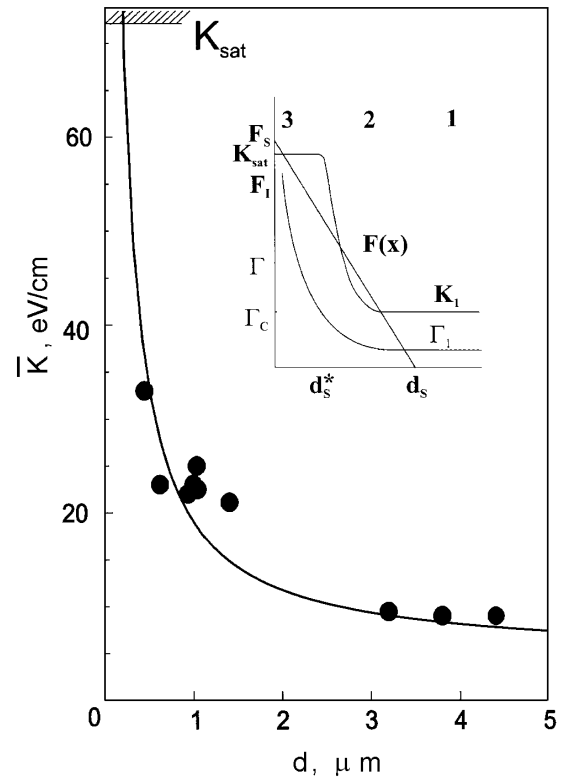


Рис. 2. Зависимость интегрального поглощения \bar{K} основного экситонного состояния GaAs от толщины кристалла d . Сплошная линия — результат подгонки согласно формуле (1), $K_1 = 5$ eV/cm, $K_s = 74$ eV/cm, $d_s^* = 0.11$ μm ; точками обозначены экспериментальные данные. На вставке — распределение электрического поля, диссипативное затухание и интегральное поглощение по формуле (2) в зависимости от координаты по толщине образца (модель).

постоянству силы осциллятора, что явно противоречит экспериментально наблюдаемому росту поглощения при уменьшении толщины до $d \sim 1$ μm .

Для дальнейшей обработки экспериментальных данных мы исследовали в качестве функции отклика интегральное поглощение $K = \hbar \int \alpha d\omega$. В общем случае оно пропорционально силе осциллятора и не чувствительно не только к сдвигу линии по частоте, но и к ее неоднородному уширению. Обнаружилось, что площадь под контуром основного состояния экситона $n_0 = 1$ непрерывно росла во всем диапазоне уменьшения толщины от 4.4 до 0.4 μm . Зависимость $K(d)$ изображена на рис. 2. Видно, что при толщинах $d > 2$ μm интегральный коэффициент поглощения стремится к постоянному значению $\sim 5-8$ eV/cm и растет до 33 eV/cm при уменьшении толщины от 2 до 0.4 μm .

Такое поведение интегрального поглощения может свидетельствовать об экситон-поляритонных процессах. Так как экситонный поляритон с пространственной дисперсией "поглощает" свет только в меру реального диссипативного затухания, можно думать, что в средней области образца "доквантовой" толщины диссипативные процессы при 1.7 K почти отсутствуют. Подобный эф-

фekt наблюдался на аналогичных образцах GaAs при исследовании температурных характеристик интегрального коэффициента поглощения [7,8]. Вплоть до критической температуры, соответствующей критическому затуханию Γ_c , наблюдался рост K , сменяющийся насыщением при $T > T_c$. Величина интегрального поглощения в области насыщения, K_{sat} , определяется силой осциллятора состояния и пропорциональна энергии продольно-поперечного расщепления Δ_{LT} : $K_{\text{sat}} = \frac{\pi}{c} \omega_0 \Delta_{\text{LT}} \sqrt{\epsilon_b}$, где ϵ_b — фоновая диэлектрическая проницаемость, тогда как до насыщения она определяется действующим диссипативным затуханием. Для GaAs расчетное значение $K_{\text{sat}} = 70$ eV/cm. Исходя из предыдущих рассуждений, интегральный коэффициент поглощения тонкого образца, регистрируемый в области экситонного резонанса, можно определить следующим образом:

$$\bar{K}(d) = K_1 + 2 \frac{d_s^*}{d} K_s \left(1 - \frac{K_1}{K_s} \right), \quad (1)$$

где K_s — усредненный интегральный коэффициент поглощения приповерхностных областей, K_1 — интегральное поглощение внутренней области образца. Кривая, построенная по формуле (1), приведена на рис. 2, где значения подгоночных параметров были подобраны следующими: $K_1 \approx 5$ eV/cm, $K_s \approx 74$ eV/cm, $d_s^* \approx 0.11$ μm . Видно, что экспериментальные точки хорошо ложатся на кривую. Примечательно, что мы получили значение K_s , почти совпадающее с расчетным значением K_{sat} , а соотношение $K_s/\bar{K} \approx 7$ для образцов с $d \geq 2$ μm , согласуется с результатами [7], где рассматривалось температурное уширение экситонной линии.

Таким образом, можно считать, что во внутренней области, где экситон не подвергается влиянию электрического поля, величина параметра затухания поляритона Γ меньше критической относительно потери пространственной дисперсии $\Gamma_c = 2\hbar\omega_0 \sqrt{\frac{2\epsilon_b \Delta_{\text{LT}}}{Mc^2}}$ (M — трансляционная масса экситона). В приповерхностных областях параметр затухания быстро увеличивается с ростом поля от внутренней границы области объемного заряда до поверхности по закону $\Gamma \approx \Gamma_1 + \frac{AR}{f} \exp\left(-\frac{4}{3f}\right)$, где $f = F/F_1$, Γ_1 — параметр затухания в отсутствие поля, A — численный множитель. Понятно, что из-за наличия неоднородного уширения линии и в связи с неправильностью вычисления коэффициента поглощения как параметра в законе Бугера в области экситон-поляритонного резонанса, величина наблюдаемой ширины линии количественно не равна Γ_1 . Ее можно вычислить, воспользовавшись результатом работы [9], где анализируется интегральное поглощение, вычисляемое как обратный логарифм пропускания при корректном решении теоретической задачи об оптическом пропускании однородной плоскопараллельной пластинки в области экситон-поляритонного резонанса:

$$K = \frac{2}{\pi} \left(\arctg \left(\frac{d}{\sqrt{1-g^2}} \right) + g \sqrt{1-g^2} \right) K_{\text{sat}}, \quad (2)$$

где $g = (\Gamma/\Gamma_1) \leq 1$. Интегральное поглощение K согласно (2) меняется с увеличением диссипативного

затухания Γ в области $\Gamma < \Gamma_c$ почти линейно, насыщаясь при $\Gamma \geq \Gamma_c$ (вставка на рис. 2). Из (2) следует также, что при $g \ll 1$ величина диссипативного затухания определяется как $\Gamma = (\pi K/4K_{\text{sat}})\Gamma_c$. Подставляя сюда наши данные и оцененное K_1 , получим $\Gamma_1 \approx 0.02$ meV, в то время как $\Gamma_c \approx 0.24$ meV. Вставка на рис. 2 демонстрирует изменение Γ и K по сечению образца. Так как переход от Γ_1 к Γ_c и, соответственно, от K_1 и K_{sat} происходит в относительно узкой области кристалла, разбиение образца на три слоя и применение к нашему резко неоднородному случаю формул [9], полученных для однородного образца, можно считать оправданным.

Таким образом, выполненное экспериментальное исследование демонстрирует существенный вклад экситон-поляритонных процессов в перенос света через тонкую пластинку высокосовременного полупроводникового кристалла "доквантовой" толщины $a_x \leq d \leq l^*$. Из выполненного нами анализа следует, что в наших относительно "чистых" кристаллах GaAs при низких температурах истинное диссипативное затухание составляет $\Gamma = 0.02$ meV при измеряемой ширине линии в 0.3–0.5 meV. Поляритонные процессы проявляют себя существенным (во много раз) увеличением прозрачности образца в области экситон-поляритонных резонансов по сравнению с экситонным поглощением в отсутствие пространственной дисперсии. Это происходит вплоть до достижения $\Gamma \geq \Gamma_c$, где Γ — действительное диссипативное затухание. Во всем этом диапазоне прозрачность "доквантового" образца больше, чем в области насыщения, характеризующей потерей пространственной дисперсии. Условие $\Gamma \geq \Gamma_c$ достигается в наших экспериментах из-за действия электрического поля при уменьшении толщины образца до $d \leq 2d_s^*$, где d_s^* — соответствующая часть слоя пространственного заряда. В экспериментах [7,8] оно же достигается за счет температуры.

Работа поддержана грантами ГНТП 1-020/2 и 1-080/4.

Список литературы

- [1] Р.П. Сейсян. Спектроскопия диамагнитных экситонов. Наука, М. (1984). 282 с.
- [2] Г.Н. Алиев, Н.В. Лукьянова, Р.П. Сейсян. ФТТ **38**, 4, 1067 (1996).
- [3] M.D. Sturge. In: Excitons / Ed. E.I. Rashba, M.D. Sturge. North-Holland, Amsterdam (1982). P. 9.
- [4] D.D. Sell. Phys. Rev. **86**, 3750 (1972).
- [5] C. Weisbuch. In: Semiconductors and semimetals / Ed. B. Dingle. Academic Press (1987). V. 24. P. 1.
- [6] G.N. Aliev, N.V. Luk'yanova, R.P. Seisyan, R. Vladimirova, H. Gibbs, C. Khitrova. Phys. Stat. Sol. (a), **164**, 193 (1997).
- [7] V.A. Kosobukin, R.P. Seisyan, S.A. Vaganov. Semicond. Sci. Techn. **8**, 1235 (1993).
- [8] G.N. Aliev, O.S. Coschug-Toates, V.A. Kosobukin, R.P. Seisyan, S.A. Vaganov. Proc. SPIE / Ed. J. Singh (1995). V. 2362. P. 561.
- [9] Н.Н. Ахмедиев. ЖЭТФ, **4**, 1534 (1980).