

УДК 621.315.592

Генерация когерентного терагерцового излучения поляризованными электронно-дырочными парами в квантовых ямах GaAs/AlGaAs

© А.В. Андрианов[¶], П.С. Алексеев, Г.В. Климко, С.В. Иванов, В.Л. Щеглов, М.А. Седова, А.О. Захарьин

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

(Получена 22 апреля 2013 г. Принята к печати 30 апреля 2013 г.)

Сообщается о результатах исследования генерации когерентного терагерцового излучения при комнатной температуре в условиях межзонного фемтосекундного лазерного фотовозбуждения структур с многочисленными квантовыми ямами GaAs/AlGaAs в поперечном электрическом поле. Свойства наблюдаемого терагерцового излучения позволяют связать его с возбуждением переменного во времени дипольного момента, вызванного поляризацией электрическим полем неравновесных электронно-дырочных пар в квантовых ямах. Построена теоретическая модель, учитывающая эффект динамического экранирования электрического поля в квантовой яме неравновесными носителями, которая позволяет описать свойства наблюдаемого терагерцового сигнала.

1. Введение

Терагерцовая (ТГц) область спектра электромагнитных волн с частотами от 0.1 до 10 ТГц представляет особый интерес в связи с перспективами применения ТГц технологий в самых различных областях, включая безопасность, экологический мониторинг окружающей среды, астрономию, медицину и биологию, а также физику конденсированного состояния [1,2]. В последние годы значительное развитие получили методы генерации и детектирования когерентного ТГц излучения с использованием техники ультракоротких импульсов лазеров ближнего ИК и видимого диапазонов, составляющей основу бурно развивающейся когерентной ТГц спектроскопии [3–5]. Когерентные методы имеют большое преимущество по сравнению с другими методами генерации и детектирования ТГц излучения, состоящее в том, что источник и приемник когерентного ТГц излучения работают при комнатной температуре. При этом в когерентной ТГц измерительной системе достигается высокое соотношение сигнал/шум (как правило, не менее 10^3 – 10^4 по амплитуде электрического поля ТГц излучения). Быстропротекающие оптические и фотоэлектрические явления в полупроводниках используются как для генерации, так и для детектирования когерентного ТГц излучения. К настоящему времени сформировалось целое направление ТГц исследований и приборных применений — ТГц оптоэлектроника [6]. Существует несколько способов генерации когерентного ТГц излучения при фемтосекундном лазерном возбуждении полупроводников. ТГц генерация достигается за счет возбуждения быстрых фототоков в ключах на основе материалов с малым временем жизни, а также за счет возбуждения поверхности различных полупроводников (InAs, GaAs, InP и др.) (используется эффект приповерхностного поля либо эффект Дембера) [6]. Когерентное ТГц излучение наблюдается также при межзонном

фемтосекундном возбуждении квантовых ям (КЯ), помещенных в электрическое поле [7–9]. При этом генерируются импульсы электромагнитного излучения, содержащие несколько циклов электромагнитных колебаний, за счет быстрой поляризации электронно-дырочных пар в квантовой яме. Исследование процесса когерентной ТГц генерации в КЯ с внешним смещением позволяет также изучать динамику электронно-дырочных пар в таких системах на фемтосекундных временах. Система КЯ во внешнем поле интересна с точки зрения возможностей инженерии зонной структуры для управления параметрами генерируемого ТГц излучения, и в то же время она не достаточно изучена. В настоящей работе исследована генерация когерентного ТГц излучения при комнатной температуре в структурах с многочисленными GaAs/AlGaAs-квантовыми ямами.

2. Детали эксперимента

Исследовались структуры, содержащие 45 периодов нелегированных квантовых ям GaAs шириной 290 Å, разделенных $\text{Al}_{0.37}\text{Ga}_{0.83}\text{As}$ -барьерами шириной 290 Å. Структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии (использовалась установка STE3526, Semiteq) на n^+ -GaAs-подложках ($n \approx 10^{18} \text{ см}^{-3}$). Ростовая структура закачивалась нелегированным прикрывающим слоем GaAs толщиной 100 Å. Контакт к n^+ -GaAs-подложке создавался последовательным нанесением слоев сплавов золото-германий, золото-никель и слоя золота с последующим быстрым прогревом при 360°C в течение 30 с в атмосфере водорода. Второй, верхний контакт к структуре создавался нанесением слоя Cr толщиной 100 Å на нелегированный прикрывающий слой GaAs. Верхний контактный слой Cr выполнял роль полупрозрачного контакта Шоттки. Электрическое поле, перпендикулярное плоскости КЯ, создавалось за счет подачи напряжения смещения на верхний контактный слой. Квантовые ямы возбуждались

[¶] E-mail: alex.andrianov@mail.ioffe.ru

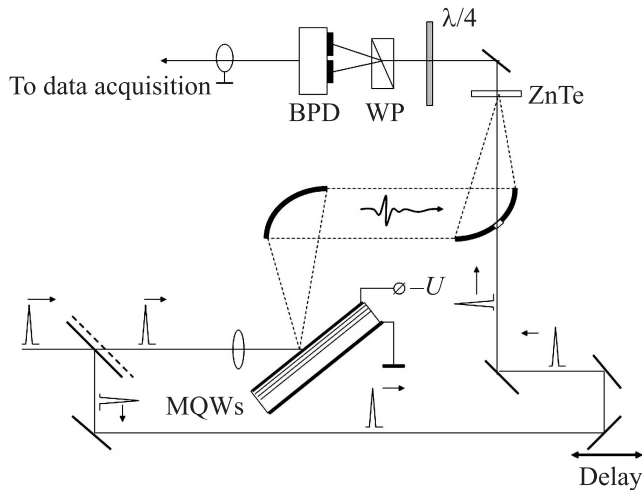


Рис. 1. Упрощенная схема эксперимента. Пучок излучения фемтосекундного лазера делится на две части, одна из которых используется для возбуждения структуры с GaAs КЯ, а другая после прохождения оптической задержки используется для зондирования ТГц волновой формы с использованием электрооптического эффекта в кристалле ZnTe.

при наклонном 45° падении излучения фемтосекундного Ti/сапфирового лазера, генерирующего импульсы длительностью 12 фс с центральной длиной волны 792 нм и следующие с частотой повторения 80 МГц. Максимальная плотность фотовозбуждения в импульсе (J_{ex}) составляла 23 мкДж/см². ТГц излучение, генерируемое структурой, собиралось в направлении отраженного лазерного луча и доставлялось к детектору при помощи всеосевых 90-градусных параболических зеркал (рис. 1). Детектирование ТГц излучения осуществлялось когерентным образом — путем электрооптического стробирования ТГц волновой формы в кристалле ZnTe [10]. Основные измерения проводились при обратном смещении барьера Шоттки (соответствует отрицательному потенциалу на верхнем контакте).

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

При фокусировке излучения накачки на поверхность структуры через полупрозрачный контакт наблюдается ТГц излучение. На рис. 2 показаны характерные волновые формы ТГц сигнала. Как видно, амплитуда электрического поля ТГц электромагнитной волны значительно возрастает при подаче смещения на структуру. При напряжении обратного смещения 10 В, соответствующем среднему постоянному полю в области квантовых ям $F_0 \approx (U + \phi_b)/W$ порядка $4.2 \cdot 10^4$ В/см, амплитуда наблюдаемого ТГц сигнала в 4 раза превосходит ТГц сигнал, генерируемый в тестовом образце „материнской“ n^+ -GaAs-подложки (здесь U — напряжение смещения, ϕ_b — высота барьера Шоттки при нулевом смещении, W — полная толщина слоя с GaAs-квантовыми ямами

и AlGaAs-барьерами. Мы пренебрегаем проникновением поля в n^+ -GaAs-подложку, принимая во внимание то, что длина экранирования поля в материале при концентрации электронов 10^{18} см⁻³ составляет всего несколько нанометров). В случае подложки n^+ -GaAs ТГц излучение может генерироваться за счет возникновения быстрого фототока в приповерхностном слое полупроводника, содержащего приповерхностное электрическое поле [11]. Однако в условиях нашего эксперимента излучение накачки практически полностью поглощается в слое с квантовыми ямами (оценки показывают, что доля интенсивности излучения накачки, проникающей в подложку, не превышает 7–8%). При напряжении обратного смещения выше 2 В амплитуда поля ТГц излучения, генерируемого в структурах с квантовыми ямами, растет по закону, близкому к линейному, с ростом напряжения смещения (рис. 3). Наблюдаются обращение в нуль ТГц сигнала в ситуации спрямления барьера Шоттки (при напряжении порядка +1.4 В) и инверсия его знака (рис. 2 и 3) при дальнейшем росте прямого смещения. При этом волновые формы ТГц излучения не испытывают заметных изменений и сохраняют все свои основные особенности. Форма спектра детектируемого ТГц излучения, занимающего область от 0.05 до 3.0 ТГц, также практически не меняется при изменении напряжения смещения на структуре (см. вставку к рис. 3).

Установленные закономерности свидетельствуют о том, что наблюдаемое ТГц излучение обусловлено присутствием электрического поля в области структуры, содержащей квантовые ямы GaAs/AlGaAs, а вклады, не связанные с этим полем, малы. В присутствии сильного поперечного электрического поля в квантовой яме

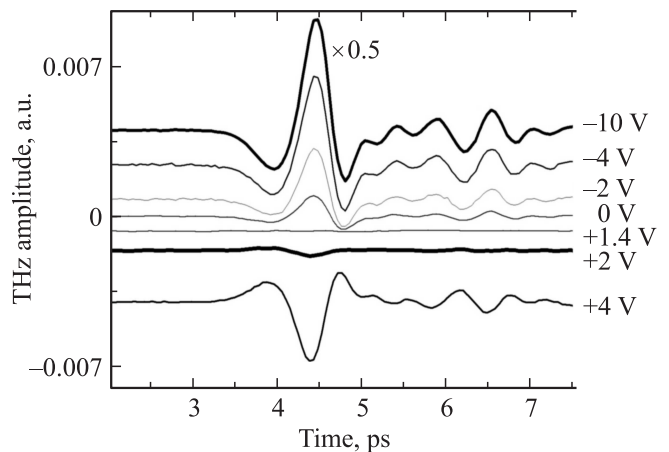


Рис. 2. Характерные волновые формы ТГц излучения, генерируемого при межзонном фемтосекундном лазерном фотовозбуждении структур с GaAs-квантовыми ямами при разных напряжениях смещения. $J_{ex} \approx 20$ мкДж/см², $T = 300$ К. Волновые формы сдвинуты по вертикали для ясности. Отрицательное напряжение соответствует обратному смещению барьера Шоттки, сформированному за счет нанесения на поверхность ростовой структуры с GaAs/Al_{0,37}Ga_{0,83}As квантовыми ямами слоя хрома.

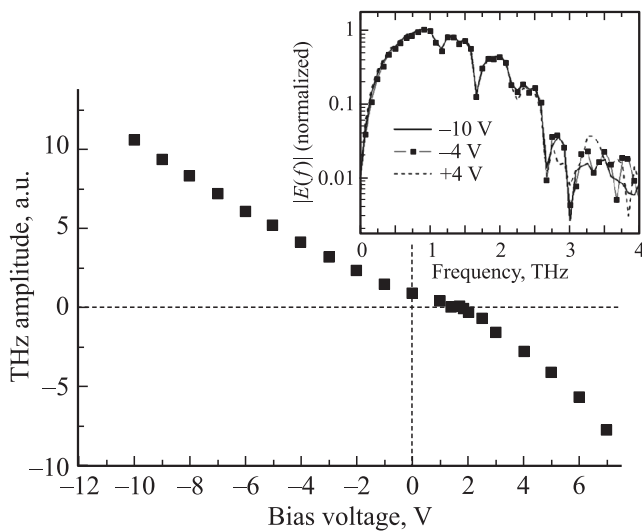


Рис. 3. Зависимость амплитуды ТГц поля от напряжения смещения на структуре. $J_{ex} \approx 20 \text{ мкДж/см}^2$. На вставке показан ряд амплитудных спектров ТГц излучения при различных напряжениях смещения. Спектры получены путем фурье-преобразования соответствующих волновых форм. Спектры нормированы на максимум. Провалы в спектрах излучения при 1.17, 1.66, 2.26 и 2.66 ТГц связаны с поглощением излучения на парах воды в измерительной системе.

электроны и дырки, генерируемые ультракоротким импульсом межзонной накачкой, рождаются в разных пространственных точках, т.е. электронно-дырочная пара оказывается поляризованной [12]. Это ведет к генерации переменного во времени дипольного момента $P(t)$ в системе, который в свою очередь приводит к излучению ТГц электромагнитных волн в соответствии с известным соотношением (см., например, [6]):

$$E_{\text{THz}}(t) \propto \frac{\partial^2 P(t)}{\partial t^2}, \quad (1)$$

где $E_{\text{THz}}(t)$ — поле электромагнитной волны во временном представлении. С ростом напряженности поперечного электрического поля в квантовых ямах должно возрасти пространственное разделение электронов и дырок, генерируемых накачкой (должен расти эффективный дипольный момент в системе), и соответственно должна возрасти амплитуда поля ТГц волны. Это объясняет близкое к линейному возрастание амплитуды ТГц сигнала с ростом напряжения обратного смещения на структуре (рис. 3). Отсутствие тенденции к насыщению в зависимости ТГц сигнала от напряжения смещения на рис. 3 говорит о том, что индуцированное электрическим полем пространственное разделение электронов и дырок значительно меньше предельного, равного ширине квантовой ямы L_z .

На рис. 4 показаны характерные зависимости амплитуды ТГц сигнала, генерируемого в исследуемых квантовых ямах, от интенсивности фотовозбуждения при нескольких значениях напряжения обратного смещения. При плотности фотовозбуждения в импульсе

$J_{ex} > 2 \text{ мкДж/см}^2$ видна заметная сублинейность в зависимости ТГц амплитуды от интенсивности накачки. Наблюдаемую сублинейность мы связываем с проявлением эффекта экранирования электрического поля в квантовых ямах — с частичной компенсацией внешнего поля в КЯ полем поляризованных электронов и дырок.

Теоретическое рассмотрение динамического экранирования электрического поля в квантовой яме GaAs/AlGaAs неравновесными электронно-дырочными парами, созданными фемтосекундным лазерным импульсом, и влияние этого эффекта на процесс генерации когерентного ТГц излучения проводилось нами с использованием подхода [13,14], примененного ранее для деформированных квантовых ям InGaN/GaN с сильным встроенным пьезоэлектрическим полем.

В модели [14] предполагалось, что генерация ТГц излучения возникает при заселении основных электронного и дырочного уровней квантовой ямы фемтосекундным импульсом света. Считалось, что в квантовой яме есть некоторый начальный дипольный момент, вызванный встроенной деформацией в структуре. Временная эволюция плотности дипольного момента $p(t)$ в квантовых ямах, вызванная появлением электронов и дырок при межзонном поглощении света, была представлена как

$$p(t) = p_0 - eL_z D(t) \int_{-\infty}^t \Phi(t') \alpha(t') dt', \quad (2)$$

где e — элементарный заряд; $\Phi(t)$ — интенсивность излучения накачки, имеющая форму гауссового импульса

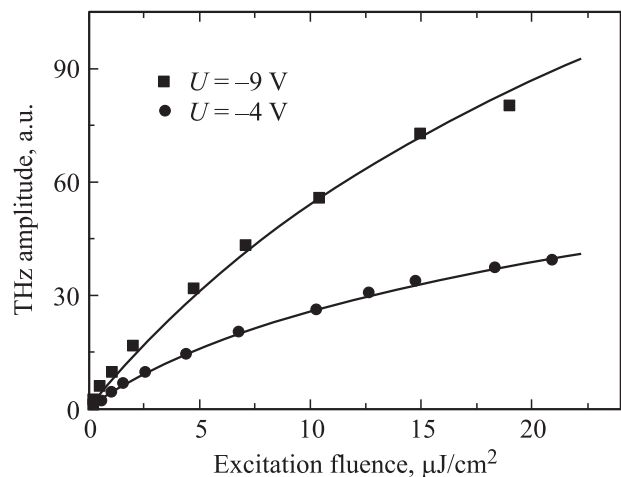


Рис. 4. Характерные зависимости амплитуды ТГц сигнала от интенсивности фотовозбуждения при разных значениях напряжения смещения. Здесь точки — данные эксперимента, кривые — результаты расчетов в рамках описанной в тексте модели со следующими параметрами: $m_e = 0.065m_0$, $m_h = 0.5m_0$, $\epsilon = 13$, $\alpha_0 = 1.8 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$ (массы электронов и дырок, статическая диэлектрическая проницаемость и объемный коэффициент поглощения света соответственно). Начальное электрическое поле в квантовых ямах предполагалось равным среднему полю F_0 (см. текст).

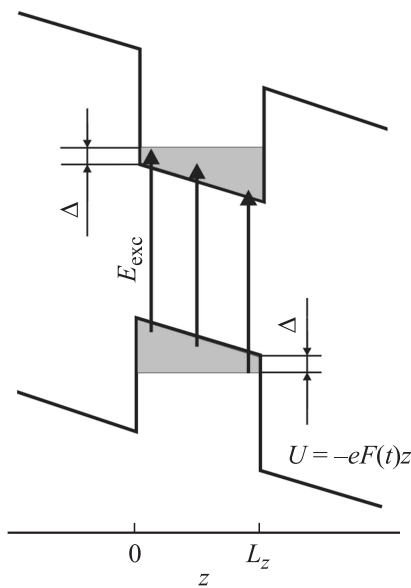


Рис. 5. Схема, иллюстрирующая теоретическую модель генерации терагерцового излучения при фемтосекундном лазерном возбуждении широких КЯ GaAs во внешнем поле. Серым цветом показаны электронные и дырочные состояния, участвующие в оптических переходах. Δ — превышение энергии кванта импульса возбуждения над шириной запрещенной зоны ямы. Стрелки показывают возможные переходы (считается, что заштрихованные серые области участвуют в переходах как единый трехмерный образец).

с длительностью, много меньшей времени жизни неравновесных электронов и дырок; $\alpha(t)$ — коэффициент оптического поглощения квантовой ямы; $D(t)$ — эффективное расстояние между центрами волновых функций электронов и дырок в квантовой яме (разность между средними значениями z -координат электрона и дырки на их уровнях размерного квантования); p_0 — начальная или „темновая“ плотность дипольного момента, обусловленная присутствием электрического поля в КЯ без подсветки. Коэффициент $\alpha(t)$ считался равным $\alpha_0 M(t)^2$, где α_0 — коэффициент поглощения объемного материала, $M(t)$ — зависящий от времени интеграл перекрытия между электронной и дырочной волновыми функциями размерного квантования. Уравнение (2) связывает макроскопическую поляризацию системы, когерентно генерируемую потоком фотонов $\Phi(t)$ с микроскопическими характеристиками КЯ: $\alpha(t)$ и $D(t)$, зависящими от эффективного электрического поля $F(t)$ в КЯ. Скорость изменения электрического поля в яме в свою очередь может быть выражена через скорость изменения дипольного момента: $dF/dt = 4\pi(dp/dt)/\epsilon L_z$, что замыкает уравнения, описывающие динамику системы.

В данной работе используется модифицированная форма модели [14]. Во-первых, в начальный момент времени дипольный момент в квантовых ямах исследованных структур пренебрежимо мал, но зато имеется ненулевое электрическое поле за счет приложенного к структуре внешнего напряжения. Во-вторых, в условиях

нашего эксперимента при поступлении фемтосекундного импульса накачки заселенными оказываются несколько нижних электронных и дырочных подзон. Центральная энергия кванта возбуждения равна $E_{exc} = 1.56$ эВ (длина волны 792 нм), что превосходит ширину запрещенной зоны ямы на величину порядка $\Delta = 130$ мэВ. При этом для квантовой ямы GaAs/Al_{0.37}Ga_{0.65}As шириной $L_z = 29$ нм, глубина которой составляет 290 мэВ для электронов и порядка 170 мэВ для дырок, даже при нулевом поле окажутся заселенными как минимум 4 уровня размерного квантования как электронов, так и дырок. Приложение напряжения смещения только увеличивает число заселенных электронных и дырочных уровней. В сильном поле можно считать, что заселяются все электронные и дырочные уровни, которые попадают в диапазон энергий Δ от верхнего края „дна“ треугольной ямы (рис. 5). В такой модели заселяемые состояния электронов и дырок в квантовой яме можно приближенно рассматривать как состояния объемного полупроводника при наличии внешнего электрического поля. При этом волновые функции электронов и дырок локализованы в направлении оси z во всей яме, и поэтому можно считать разрешенными переходы между состояниями, обозначенными на рис. 5 серым цветом и находящимися по энергии на расстоянии E_{exc} друг от друга. Такое приближение означает, что $\alpha(t) \approx \alpha_0$, а $D(t)$ может быть выражено через средние значения координат электрона и дырки для слоя трехмерных электронов толщиной L_z во внешнем электрическом поле $F(t)$ (рис. 5):

$$D(t) = \frac{\int_0^{L_z} \int_0^{\Delta+eFz} z \rho_{3D,e}(E) dE dz}{\int_0^{L_z} \int_0^{\Delta+eFz} \rho_{3D,e}(E) dE dz} - \frac{\int_0^{L_z} \int_0^{\Delta+eF(L_z-z)} z \rho_{3D,h}(E) dE dz}{\int_0^{L_z} \int_0^{\Delta+eF(L_z-z)} \rho_{3D,h}(E) dE dz}, \quad (3)$$

где $\rho_{3D,e/h}(E)$ — объемная плотность состояний электронов и дырок. В рамках такой модели нами был проведен численный расчет зависимостей $p(t)$, $F(t)$ и ТГц амплитуды для различных значений напряжения смещения и интенсивности излучения накачки.

Как видно, экспериментальные данные (рис. 4) вполне удовлетворительно описываются построенной теоретической моделью динамического экранирования поля в GaAs/AlGaAs КЯ с учетом реальных условий эксперимента. Заметим, что в теории отсутствуют подгоночные параметры. При сопоставлении с экспериментом использовался только один параметр — масштабный коэффициент, общий для обеих кривых на рис. 4 (введение масштабного коэффициента требуется, например, для связи амплитуд ТГц поля в дальней и ближней зонах). Необходимо добавить, что построенная модель показы-

вает принципиальную возможность расширения диапазона линейности ТГц эмиттера на GaAs КЯ, а значит, и повышения эффективности ТГц генерации (повышение мощности излучения до 4 раз) в исследуемой системе за счет обеспечения преимущественной накачки носителей на нижний уровень размерного квантования, что можно обеспечить, например, методами зонной инженерии.

Таким образом, в работе проведены исследования генерации когерентного ТГц излучения при фемтосекундном межзонном лазерном фотовозбуждении квантовых ям GaAs/AlGaAs в поперечном электрическом поле. Показано, что ТГц излучение обусловлено генерацией переменного во времени дипольного момента, вызванного поляризацией электрическим полем неравновесных электронно-дырочных пар в квантовых ямах. Экспериментальные данные вполне удовлетворительно описываются построенной моделью генерации ТГц излучения в квантовых ямах, учитывающей динамическое экранирование поля в КЯ неравновесными электронно-дырочными парами. Созданная модель показывает принципиальную возможность повышения эффективности ТГц генерации в исследуемой системе за счет обеспечения преимущественной накачки носителей на первый уровень размерного квантования.

Работа выполнена при поддержке Программы фундаментальных исследований президиума РАН № 24, а также при частичной поддержке РФФИ, фонда „Династия“ и гранта президента РФ НШ-5442.2013.2.

Список литературы

- [1] P.H. Siegel. IEEE Trans. Microwave Theory Tech., **50**, 910 (2002).
- [2] B. Ferguson, X.-C. Zhang. Nature Materials, **1**, 26 (2002).
- [3] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. van Exter, Ch. Fattinger. J. Opt. Soc. Am. B, **7**, 2009 (1990).
- [4] C.A. Schmuttenmaer. Chem. Rev., **104**, 1759 (2004).
- [5] W.L. Chan, J. Deibel, D.M. Mittleman. Rep. Progr. Phys., **70**, 1325 (2007).
- [6] *Terahertz Optoelectronics*, ed. by K. Sakai (Springer Verlag, Berlin, 2005).
- [7] P.C.M. Planken, M.C. Nuss, W.H. Knox, D.A.B. Miller, K.W. Goossen. Appl. Phys. Lett., **61**, 2009 (1992).
- [8] H.G. Roskos, M.C. Nuss, J. Shah, K. Leo, D.A.B. Miller, A.M. Fox, S. Schmitt-Rink, K. Köhler. Phys. Rev. Lett., **68**, 2216 (1992).
- [9] P.C.M. Planken, I. Brener, M.C. Nuss, M.S.C. Luo, S.L. Chuang, L.N. Pfeiffer. Phys. Rev. B, **49**, 4468 (1994).
- [10] Q. Wu, X.-C. Zhang. Appl. Phys. Lett., **70**, 1784 (1997).
- [11] X.-C. Zhang, B.B. Hu, J.T. Darrow, D.H. Auston. Appl. Phys. Lett., **56**, 1011 (1990).
- [12] S.L. Chuang, S. Schmitt-Rink, B.I. Greene, P.N. Saeta, A.F.J. Levi. Phys. Rev. Lett., **68**, 102 (1992).
- [13] D. Turchinovich, P. Uhd Jepsen, B.S. Monozon, M. Koch, S. Lahmann, U. Rossow, A. Hangleiter. Phys. Rev. B, **68**, 241 307(R) (2003).
- [14] D. Turchinovich, B.S. Monozon, P. Uhd Jepsen. J. Appl. Phys., **99**, 013 510 (2006).

Редактор Т.А. Полянская