

Влияние уровня возбуждения на оптические свойства микродиска GaAs—AlGaO с активной областью на основе квантовых точек InAs

© А.М. Надточий[¶], С.А. Блохин[†], А.В. Сахаров, М.М. Кулагина, Ю.М. Задиранов, Н.Ю. Гордеев, М.В. Максимов, В.М. Устинов[†], Н.Н. Леденцов*, Е. Шток*, Т. Варминг*, Д. Бимберг*

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

[†] Санкт-Петербургский физико-технический научно-образовательный центр Российской академии наук,
195220 Санкт-Петербург, Россия

* Берлинский технический университет,
D-10623 Берлин, Германия

(Получена 21 декабря 2007 г. Принята к печати 29 декабря 2007 г.)

Методом спектроскопии микрофотолюминесценции исследовано влияние уровня оптического возбуждения на интенсивность и ширину линий мод шепчущей галереи в микродисках с асимметричным волноводом воздух/GaAs/AlGaO и активной областью на основе квантовых точек InAs. При высоких уровнях накачки обнаружены перегрев активной области, приводящий к длинноволновому сдвигу спектра усиления, а также изменение формы спектра за счет насыщения основного и возбужденных состояний и влияния многочастичного взаимодействия. Вследствие данных эффектов спектральное положение мод шепчущей галереи относительно максимумов спектра усиления определяет характер зависимости их интенсивности и ширины линии от плотности мощности оптической накачки, который может сильно различаться для разных мод. Длинноволновый сдвиг линий мод шепчущей галереи, вызванный перегревом активной области, частично компенсируется коротковолновым сдвигом, обусловленным влиянием концентрации свободных носителей на эффективный коэффициент преломления волновода.

PACS: 42.60.Da, 78.40.Fy, 78.67.Hc, 85.35.Be

1. Введение

Интерес к исследованию оптических микродисковых резонаторов (микродисков, МД) обусловлен возможностью создания на их основе маломощных и высокоскоростных оптоэлектронных устройств. В МД благодаря эффекту полного внутреннего отражения возникают моды „шепчущей галереи“ (whispering gallery mode, WGM, WG-моды), распространяющиеся вдоль периферии диска [1]. Высокая добротность и малый эффективный объем моды шепчущей галереи позволяют получать малые пороговые токи лазерной генерации, что особенно актуально для интегральной электроники [2].

В качестве активной области МД наиболее перспективно использовать квантовые точки (КТ), формируемые методом самоорганизации в процессе эпитаксиального роста [3]. Латеральный транспорт носителей в структурах с КТ подавлен даже при комнатной температуре вследствие трехмерной пространственной локализации носителей в квантовых точках. Соответственно безызлучательная рекомбинация на боковых поверхностях МД мала, что позволяет изготавливать МД в системах материалов с большим коэффициентом поверхностной рекомбинации. Также следует отметить, что использование массива КТ, обладающего широким спектром энергетических состояний, обусловленным распределением точек по размерам, чрезвычайно удобно для исследования модовой структуры МД в широком спектральном диапазоне.

Несмотря на значительный прогресс в области получения и исследования оптических свойств МД, многие физические процессы в них остаются малоизученными. Например, температура внутренней области прибора оказывает непосредственное влияние на длину волны излучения, ширину линии, мощность и порог лазерной генерации. В частности, высокое тепловое сопротивление МД с симметричным волноводом и малое материальное усиление КТ в значительной степени ограничивают получение непрерывной генерации при комнатной температуре. Кроме того, на оптические свойства МД могут оказывать значительное влияние такие эффекты, как поглощение на свободных носителях, а также зависимость зонной структуры от их концентрации (многочастичные эффекты) и пр.

В данной работе мы исследуем оптические характеристики МД с асимметричным волноводом воздух/GaAs/AlGaO с активной областью, содержащей один слой КТ InAs, в широком диапазоне температур и интенсивностей фотовозбуждения. Анализируется влияние перегрева активной области, многочастичных эффектов и поглощения на свободных носителях на интенсивность и ширину мод МД.

2. Эксперимент

Структуры были выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на установке Riber 32 с твердотельным источником As на полупроводящих подложках GaAs (100). После осаждения буферного слоя GaAs

[¶] E-mail: al.nadtochy@mail.ioffe.ru

выращивался слой $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ толщиной 500 нм для формирования основания МД. Активная область помещалась в волновод GaAs толщиной 190 нм и представляла собой один слой самоорганизующихся квантовых точек $\text{InAs}/\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$, излучающих на длине волны 1.3 мкм при комнатной температуре. Для предотвращения утечки неравновесных носителей волновод ограничивался с обеих сторон барьерами $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$, толщины которых составили 20 нм.

Меза-структуры диаметром 5 мкм с глубиной травления ~ 0.7 мкм были изготовлены с помощью фотолитографии и метода сухого травления в пучке ионов Ar^+ . Сильное оптическое ограничение вдоль направления роста достигалось путем селективного окисления слоя $\text{Al}_{0.97}\text{Ga}_{0.03}\text{As}$ с получением диэлектрика AlGaO . Отметим, что данный тип конструкции МД с асимметричным волноводом воздух/GaAs/AlGaO обеспечивает лучшую теплопроводность, низкие оптические потери и повышенную механическую прочность по сравнению с традиционным МД с симметричным волноводом [4].

Оптическая накачка осуществлялась с помощью YAG:Nd-лазера, работающего на второй гармонике в непрерывном режиме (длина волны излучения $\lambda = 532$ нм, мощность $P = 5$ мВт). Фотолюминесценция (ФЛ) собиралась с помощью длиннофокусного объектива с численной апертурой 0.8, после чего происходило разложение сигнала в спектр с помощью тройного монохроматора с разрешением 0.03 нм. Сигнал детектировался с помощью охлаждаемого мультисканального InGaAs-приемника. Для исследований в температурном диапазоне $T = 10\text{--}300$ К образцы помещались в гелиевый криостат проточного типа.

3. Результаты и обсуждение

Для анализа плотности состояний и поведения усиления КТ при оптической накачке было проведено исследование меза-структуры диаметром 5 мкм, аналогичной микродиску за исключением того, то она не подвергалась селективному окислению (в дальнейшем — реперная структура). В такой структуре оптическое ограничение в направлении роста слоев было слабым и спектр излучения не был модифицирован наличием мод шепчущей галереи. В спектре ФЛ неокисленной реперной мезы (рис. 1) присутствуют основное состояние (GS), а также первое (FES) и второе (SES) возбужденные состояния. Энергетический зазор между основным и первым возбужденным состояниями КТ составляет 70 мэВ. Также можно отметить, что по мере роста плотности мощности возбуждающего излучения происходит последовательное насыщение основного и первого возбужденного состояний, сопровождающееся увеличением интенсивности более высоких возбужденных состояний. Кроме того, при высоких уровнях возбуждения наблюдается длинноволновое смещение ФЛ. Подобное явление может быть связано как с разо-

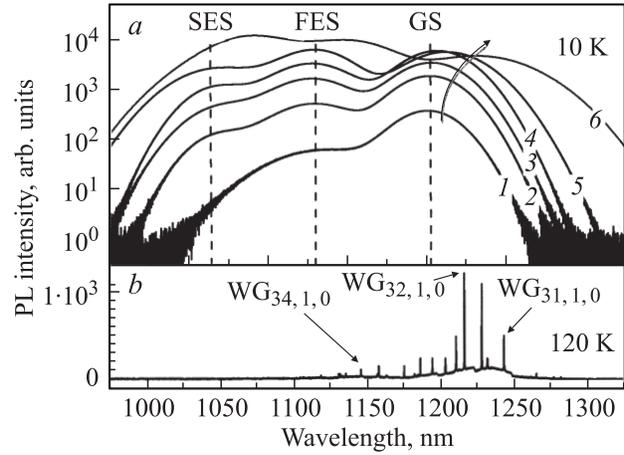


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции (PL) реперной меза-структуры (a) и микродиска (b). a — температура $T = 10$ К, плотность оптического возбуждения, Вт/см²: 1 — 500, 2 — $1.25 \cdot 10^3$, 3 — $5 \cdot 10^3$, 4 — $1.25 \cdot 10^4$, 5 — $2.5 \cdot 10^4$, 6 — $5 \cdot 10^4$; GS — основное, FES — первое возбужденное, SES — второе возбужденное состояния КТ. b — температура $T = 120$ К; указаны исследуемые моды шепчущей галереи.

гревом структуры при высоких уровнях возбуждения, так и с многочастичными эффектами при больших концентрациях свободных носителей [5,6]. Однако в работе [6] длинноволновый сдвиг наблюдался только для основного состояния КТ, в то время как возбужденные состояния сдвигались в коротковолновую сторону, а положение пика смачивающего слоя практически не менялось. В нашем же случае видно, что все состояния КТ смещаются в длинноволновую сторону. Кроме того, следует отметить, что при импульсном режиме накачки при той же плотности мощности излучения в импульсе, но на несколько порядков меньше средней мощности, длинноволновое смещение было значительно слабее. Таким образом, можно предположить, что основным механизмом, ответственным за длинноволновый сдвиг пиков ФЛ (а следовательно, и спектра усиления), является разогрев структуры при оптической накачке, в то время как многочастичные эффекты вносят вклад в спектральное уширение состояний КТ.

Для подтверждения данного вывода, а также для оценки перегрева при максимальной накачке было рассчитано распределение температуры для МД и неокисленной реперной структуры (рис. 2). Расчет проводился методом конечных элементов для стационарного случая при максимальной плотности возбуждения. Исходя из температурного распределения можно оценить средний перегрев активной области МД по сравнению с температурой подложки (температурная шкала на рис. 2 показывает перегрев по отношению к поверхности подложки). Для реперной структуры (рис. 2, a) расчетный перегрев составляет ~ 30 К, что достаточно хорошо согласуется с величиной перегрева, оцененной исходя из длинноволнового сдвига спектра ФЛ (40 К). В то же

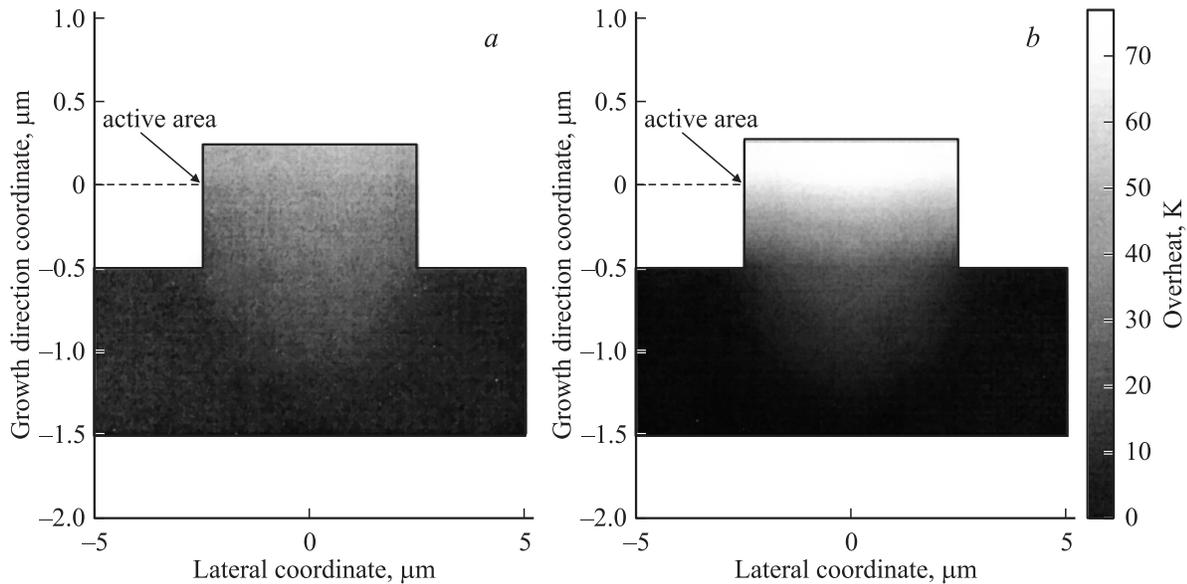


Рис. 2. Распределение температуры при максимальной плотности мощности накачки в исследуемых структурах: *a* — неокисленная реперная меза-структура; *b* — микродиск на оксидном основании. Температурная шкала показывает перегрев относительно температуры подложки. Обозначено положение активной области.

время перегрев для структуры с AlGaO-слоем (рис. 2, *b*) составляет ~ 80 К. Такая разница объясняется малой теплопроводностью AlGaO-слоя по сравнению с твердым раствором $\text{Al}_{0.97}\text{Ga}_{0.03}\text{As}$ [7]. Таким образом, можно сделать вывод, что при рассмотрении свойств исследуемых структур в зависимости от плотности возбуждения следует учитывать разогрев структуры.

Спектр ФЛ МД (рис. 1, *b*) представляет собой набор узких пиков на фоне слабой ФЛ КТ. Наличие узких пиков указывает на существование высокооборотных мод шепчущей галереи. На основе модели тонкого диэлектрического диска [8] методом эффективного коэффициента преломления [9] был определен модовый состав для 5-микронного МД с асимметричным волноводом. Каждая мода шепчущей галереи ($\text{WG}_{m,n,p}$) характеризуется тремя модовыми числами: азимутальным (m), радиальным (n) и планарным (p). Дальнейшие исследования были сфокусированы на WG-модах с радиальным индексом $n = 1$, так как они обладают наименьшими внутренними потерями и максимальной чувствительностью к поверхностным неровностям и искажениям [10,11].

Для анализа было выбрано три моды в области оптических переходов КТ: $\text{WG}_{34,1,0}$, $\text{WG}_{32,1,0}$, $\text{WG}_{31,1,0}$ (далее WG_{34} , WG_{32} , WG_{31}). На рис. 3 приведены температурные зависимости длин волн указанных мод, а также максимумов пиков ФЛ КТ. Изменение длин волн WG-мод с температурой было рассчитано исходя из температурной зависимости эффективного показателя преломления МД. Из рисунка видно, что изменение температуры приводит к изменению относительного спектрального положения WG-мод и максимумов пиков ФЛ основного (GS) и возбужденных (E_1 , E_2) состояний КТ.

Например, если при температуре 120 К положение моды WG_{32} соответствует максимуму основного состояния КТ, то при увеличении температуры происходит их спектральное рассогласование (detuning).

На рис. 4 приведены зависимости интенсивности пиков указанных мод от плотности оптического возбуждения.

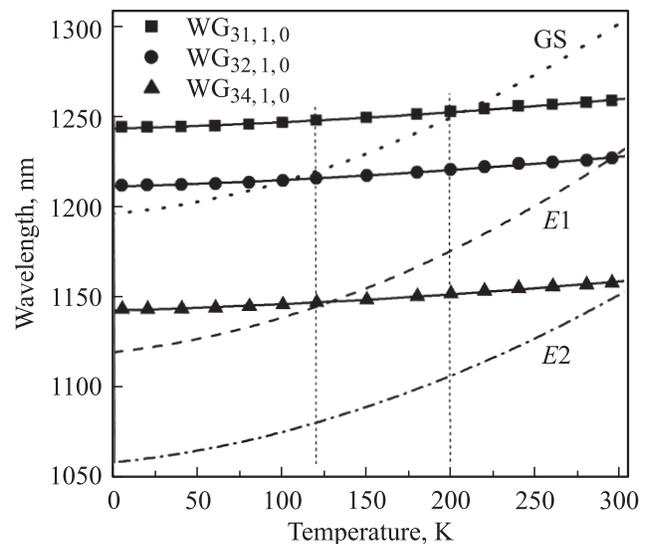


Рис. 3. Зависимости длин волн исследуемых мод $\text{WG}_{31,1,0}$, $\text{WG}_{32,1,0}$, $\text{WG}_{34,1,0}$ (точки) и пиков фотолуминесценции КТ (пунктирная, штриховая и штрихпунктирные кривые) от температуры. GS — основное состояние КТ; E_1 , E_2 — первое и второе возбужденные состояния КТ соответственно. Вертикальными линиями показаны температура, при которой проводятся исследования оптических свойств МД (120 К), и температура перегрева МД при максимальной плотности мощности возбуждающего излучения (200 К).

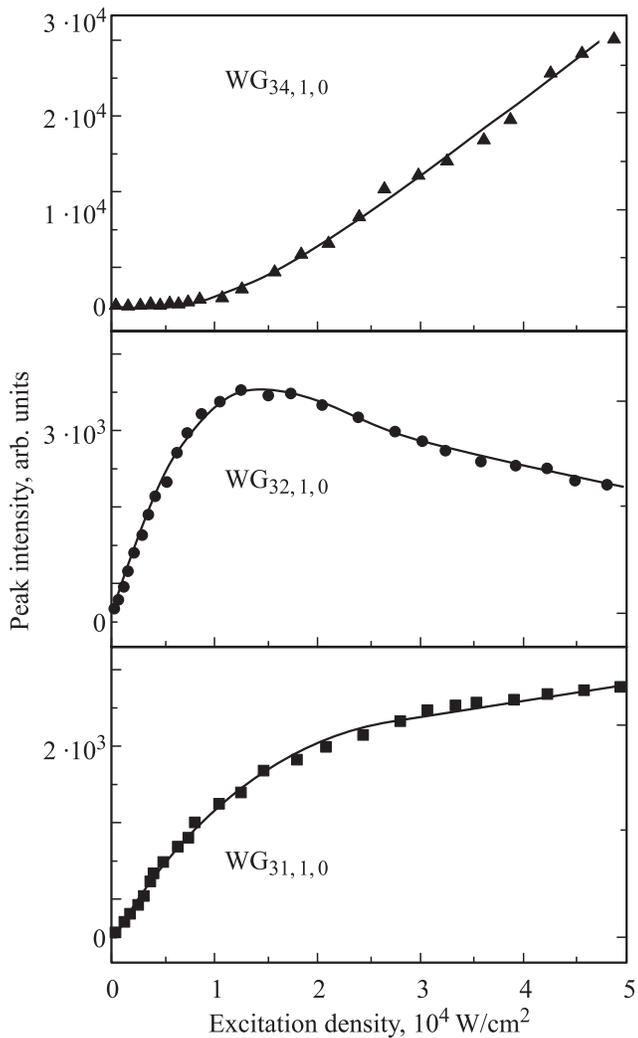


Рис. 4. Зависимости пиковой интенсивности исследуемых мод от плотности мощности возбуждающего излучения при температуре 120 К.

ния при температуре 120 К. Быстрый рост интенсивности с увеличением плотности мощности накачки наблюдался только для моды WG_{34} , в то время как WG_{31} насыщается с ростом возбуждения, а WG_{32} вообще имеет немонотонную зависимость. Подобное поведение можно объяснить на основании двух факторов: спектрального рассогласования и сложного поведения формы (положения) пиков спектра усиления неоднородно уширенных состояний КТ с ростом уровня возбуждения [12].

Известно, что максимальное усиление для возбужденных состояний КТ выше, чем для основного состояния [13]. В то же время энергия WG -моды замкнута в объеме МД. Это приводит к тому, что квазиуровни Ферми продолжают смещаться (раздвигаться) при увеличении плотности мощности накачки даже после порога генерации. Это обуславливает насыщение основного состояния КТ и увеличение заселенности возбужденных состояний. Другими словами, усиление для возбужденных состояний КТ растет, а для основного состояния

насыщается с ростом плотности мощности накачки. В результате резкий рост интенсивности ФЛ наблюдается для WG -мод вблизи длин волн возбужденных состояний КТ. Более того, как было показано выше, с увеличением плотности мощности возбуждающего излучения происходят нагрев активной области и изменение спектрального положения WG -мод относительно состояний КТ (рис. 3). Как результат, происходит падение эффективности ФЛ для мод, спектральное положение которых при малых накачках находилось вблизи основного состояния КТ, и насыщение для WG -мод, положение которых соответствовало длинноволновому плечу.

На рис. 5 представлены зависимости длин волн WG -мод от интенсивности оптической накачки при фиксированной температуре 120 К (точки 1), а также от температуры в диапазоне 120–200 К при малой фиксированной интенсивности возбуждения (точки 2). Как было показано ранее, плотность мощности накачки $5 \cdot 10^4$ Вт/см² соответствует перегреву активной области на 80 К. Таким образом, можно было бы ожидать, что сдвиг длины волны WG -моды с ростом плотности мощности накачки будет соответствовать ее температурной зависимости в диапазоне от 120 до 200 К. Однако, как видно из рис. 5, длины волн WG -мод зависят от уровня возбуждения значительно слабее. Разница длин волн между фактическим положением WG -мод и ожидаемым с учетом одного лишь перегрева составляет 4.5–4.7 нм. Данный феномен может быть связан с поглощением на свободных носителях. Как известно, увеличение их концентрации приводит к уменьшению коэффициента преломления [14]. Простая оценка концентрации носи-

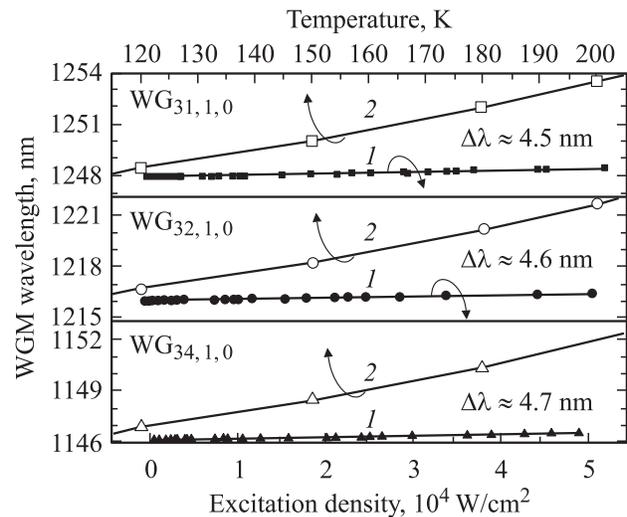


Рис. 5. Зависимости длины волны исследуемых мод от плотности мощности накачки при температуре 120 К (1) и от температуры при малой плотности мощности (2). Температура на верхней оси соответствует перегреву активной области при плотности мощности возбуждающего излучения, отложенному на нижней оси. Для каждой WG -моды указана разница между длиной волны при 200 К и экспериментально измеренным положением WG -моды при максимальной накачке.

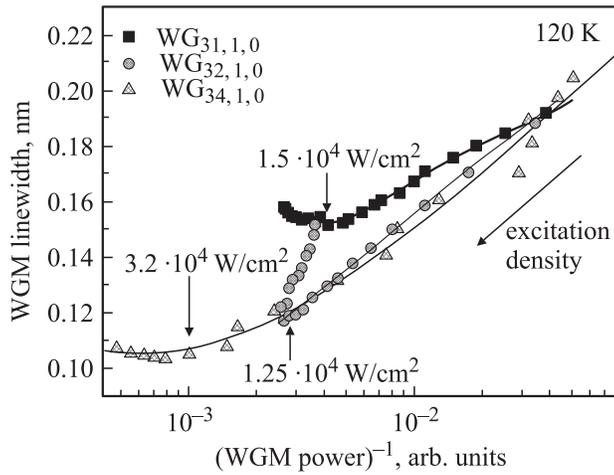


Рис. 6. Зависимости ширины линий от обратной интегральной интенсивности (выходной мощности) исследуемых мод. Для каждой моды обозначен уровень возбуждения, соответствующий изменению характера зависимости. Показано направление увеличения интенсивности возбуждения.

телей при максимальной плотности возбуждения дает величину $\sim 1.5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, что соответствует изменению показателя преломления $\Delta n \approx 0.02$ [15]. Таким образом, обнаруженное несоответствие говорит о том, что с увеличением уровня возбуждения проявляются два конкурирующих эффекта: увеличение длины волны WG-моды из-за разогрева активной области и уменьшение длины волны из-за влияния концентрации свободных носителей. Также необходимо отметить, что сдвиг длины волны для всех исследуемых мод одинаков, откуда следует, что изменение концентрации свободных носителей одинаковым образом сказывается на эффективном показателе преломления МД в широком спектральном диапазоне (1050–1250 нм). Следовательно, можно проводить сравнительный анализ этих мод, не учитывая зависимость коэффициента преломления от интенсивности возбуждения.

На рис. 6 представлена диаграмма, показывающая зависимость полной ширины линии на уровне половины максимума (FWHM), а также обратной интегральной интенсивности (обратной выходной мощности) рассматриваемых WG-мод от плотности мощности оптической накачки. При малых плотностях мощности с ростом накачки (направление роста показано стрелкой) наблюдаются уменьшение обратной выходной мощности, $(\text{WGM power})^{-1}$, и монотонный экспоненциальный спад ширины для всех WG-мод. При этом надо отметить схожесть поведения на этом участке WG_{32} и WG_{34} , обусловленную тем, что положения обеих мод при температуре 120 К и малых уровнях возбуждения соответствуют максимумам в спектре усиления (основного состояния для WG_{32} и возбужденного для WG_{34} , рис. 3). С дальнейшим увеличением мощности возбуждения в указанных зависимостях проявляются

значительные различия. Так, ширина линии моды WG_{32} начинает расти, а выходная мощность моды падать при превышении интенсивностью возбуждающего излучения значения 1.25 Вт/см^2 , что соответствует зависимости на рис. 4. Линия WG_{34} продолжает сужаться вплоть до плотности мощности накачки $\sim 3 \text{ Вт/см}^2$, после чего ее ширина остается практически постоянной. Разница в поведении ширин данных линий обусловлена тем, что пик основного состояния КТ, которому соответствует WG_{32} , насыщается при плотностях мощности накачки $1\text{--}2 \text{ Вт/см}^2$, в то время как интенсивность первого возбужденного состояния КТ продолжает расти вплоть до плотностей мощности $\sim (3\text{--}4) \text{ Вт/см}^2$. Кроме того, на поведении линий сказывается изменение их положения относительно максимумов спектра усиления (спектральное рассогласование) с ростом плотности возбуждения (рис. 3). При увеличении накачки мода WG_{32} оказывается на коротковолновом склоне линии основного состояния, что и объясняет уменьшение ее выходной мощности. Прекращение сужения линии WG_{34} также можно связать как со спектральным рассогласованием, так и с постепенным насыщением первого возбужденного состояния при плотностях накачки $4\text{--}5 \text{ Вт/см}^2$.

Отдельно следует рассмотреть поведение ширины линии WG_{31} . Изначально данная мода рассогласована с основным состоянием КТ, но по мере роста плотности возбуждения и соответственно нагрева структуры рассогласование уменьшается (рис. 3). Это обстоятельство, по всей вероятности, и обуславливает иное поведение WG_{31} по сравнению с WG_{32} и WG_{34} . Ширина моды также экспоненциально спадает при малых мощностях, но с другим наклоном. При плотностях мощности накачки, соответствующих насыщению основного состояния КТ (1.5 Вт/см^2), линия перестает сужаться, и далее ширина линии практически не меняется. Однако уширения линии и спада выходной мощности (как в случае WG_{32}) не наблюдается, что подтверждает предположение о том, что появление этих эффектов связано со спектральным рассогласованием. Таким образом, спектральное рассогласование является эффективным инструментом влияния на поведение и характеристики линий WG-мод, что может быть использовано при проектировании приборов на основе МД.

4. Заключение

В широких диапазонах температур (10–300 К) и интенсивностей оптического возбуждения ($5 \cdot 10^2\text{--}5 \cdot 10^4 \text{ Вт/см}^2$) исследованы спектры микрофотолюминесценции микродиска с асимметричным волноводом воздух/GaAs/AlGaO и одним слоем КТ в качестве активной области. Численное моделирование, подтвержденное экспериментами на контрольной меза-структуре, показало, что при максимальной интенсивности возбуждения перегрев активной области МД составляет 80 К. Характер зависимости интенсивности

и ширины линии мод шепчущей галереи от плотности оптического возбуждения определяется их положением относительно максимумов спектра усиления, его длинноволновым сдвигом, вызванным перегревом активной области, а также изменением формы спектра усиления за счет насыщения основного и возбужденных состояний и многочастичных эффектов. На зависимость длины волны исследованных WG-мод от уровня возбуждения оказывают влияние два противоположных эффекта: длинноволновый сдвиг вследствие перегрева активной области и коротковолновый сдвиг, предположительно связанный с изменением показателя преломления GaAs, обусловленным поглощением на свободных носителях.

Работа выполнена при поддержке проекта SANDiE NMP4-CT-2004-500101, Программы фундаментальных исследований президиума РАН „Квантовые наноструктуры“, гранта РФФИ № 05-02-16922-а, проекта „NATO Science for Peace“ SfP.982735, гранта Санкт-Петербургского научного центра РАН, проекта DFG № SFB296.

Список литературы

- [1] S.L. McCall, A.F. Levi, R.E. Slusher, S.J. Pearton, R.A. Logan. *Appl. Phys. Lett.*, **60**, 289 (1992).
- [2] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W.V. Schoenfeld, P.M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, A. Imamoglu. *Science*, **290**, 2282 (2000).
- [3] D. Bimberg, M. Crundmann, N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (Wiley, London, 1999).
- [4] S.M.K. Thiyagarajan, D.A. Cohen, A.F.J. Levi, S. Ryu, R. Li, P.D. Dapkus. *Electron. Lett.*, **35**, 1252 (1999).
- [5] S.V. Nair, Y. Masumoto. *Phys. Status Solidi A*, **178**, 303 (2000).
- [6] R. Heitz, F. Guffarth, I. Mukhametzhanov, M. Grundmann, A. Madhukar, D. Bimberg. *Phys. Rev. B*, **62**, 16 881 (2000).
- [7] M. Afromovitz. *J. Appl. Phys.*, **44** (3), 1292 (1973).
- [8] R.E. Slusher, A.F.J. Levi, U. Mohideen, S.L. McCall, S.J. Pearton, R.A. Logan. *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 1310 (1993).
- [9] J. Buus. *IEEE J. Quant. Electron.*, **20**, 1106 (1984).
- [10] A.I. Rahachou, I.V. Zozoulenko. *J. Appl. Phys.*, **94**, 7929 (2003).
- [11] B. Gayral, J.M. Garard, A. Lemaitre, C. Dupuis, L. Manin, J.L. Pelouard. *Appl. Phys. Lett.*, **75**, 1908 (1999).
- [12] V.M. Ustinov, A.E. Zhukov, A.Y. Egorov, N.A. Maleev. *Quantum dot lasers* (Oxford University Press, 2003).
- [13] Л.В. Асрян, П.П. Сурис. *ФТП*, **38** (1), 3 (2004).
- [14] B.R. Bennett, R.A. Soref, J.A. Del Alamo. *IEEE J. Quant. Electron.*, **26** (1), 113 (1990).
- [15] C.H. Henry, R.A. Logan, K.A. Bertness. *J. Appl. Phys.*, **52** (7), 4457 (1981).

Редактор Л.В. Шаронова

Impact of excitation level on optical properties of GaAs-AlGaO microdisk with active region based on InAs quantum dots

A.M. Nadtochy, S.A. Blokhin[†], A.V. Sakharov, M.M. Kulagina, Yu.M. Zadiranov, N.Yu. Gordeev, M.V. Maximov*, V.M. Ustinov[†], N.N. Ledentsov*, E. Stock*, T. Warming*, D. Bimberg*

loffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

[†] Saint-Petersburg Physicotechnical Center
for Research and Education,

Russian Academy of Sciences,
195220 St. Petersburg, Russia

* Institute for Solid State Physics,
Technical University of Berlin,
D-16023 Berlin, Germany

Abstract The impact of photexcitation level on linewidth and intensity of whispering gallery modes (WGM) in an asymmetric air/GaAs/AlGaO waveguide microdisk with an active area based on InAs quantum dots (QDs) was investigated by using microphotoluminescence spectroscopy. Strong active area overheating resulting in red shift of QD gain spectrum as well as variation of its shape due to ground and excited states saturation and many-particle interaction were observed under high excitation density. Due to these effects spectral alignment between QD gain spectrum maxima and WGM position determined the behavior of WGM linewidth and intensity with excitation, which might quite differ for different modes. The red shift of WGM due to excitation density induced overheating of active area was partly compensated by their blue shift caused by impact of free carrier concentration on waveguide refractive index.