ДИНАМИКА НЕЛИНЕЙНОЙ РЕФРАКЦИИ В СТРУКТУРАХ С КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ $PbTe/Pb_{1-x}Sn_xTe$

Гуменюк-Сычевская Ж. В., Сизов Ф. Ф.

Проведен анализ динамики нелинейной рефракции $n(t)=f(I)$ под действием импульсного излучения CO_2-лазера в структурах с квантовыми ямами на основе соединений $PbTe/Pb_{1-x}Sn_xTe$ ($x=0.2$) на подложках (111) BaF_2. Показано, что изменения dn/dI происходят гораздо быстрее, чем в монокристаллических слоях $Pb_{1-x}Sn_xTe$, что обусловлено наличием ступенчатой функции плотности состояний в структурах с квантовыми ямами. Такие структуры могут быть использованы в качестве эффективных ИК оптических переключателей и бистабильных элементов.

Полупроводниковые квантово-размерные структуры и прежде всего сверхрешетки (СР) и структуры с многократными квантовыми ямами (МКЯ) перспективны для целей оптоэлектроники как эффективные излучатели и фотоприемники. В то же время они могут быть использованы и в качестве управляющих элементов (модуляторов, дефлекторов и др.) потоков излучения, обусловленных изменениями оптических характеристик под действием внешних полей. Большие изменения коэффициента поглощения и показателя преломления в СР и МКЯ в области экситонного поглощения в видимой и ближней ИК области спектра установлены в полупроводниках группы $A^{III}B^{V}$ (см., например, [1]). Такие изменения оптических характеристик в МКЯ и СР могут быть достигнуты при меньших плотностях мощности оптического возбуждения или при более высоких температурах по сравнению с объемными полупроводниками. В ИК диапазоне длин волн $\lambda \approx 10$ мкм нелинейные оптические элементы могут быть использованы в качестве оптических переключателей, бистабильных устройств и т. п., для чего можно использовать МКЯ на основе узкозонных полупроводников $A^{IV}B^{VI}$. В этих полупроводниках можно ожидать проявления больших оптических нелинейностей, связанных с динамическим эффектом Бурштейна—Мосса вследствие малых значений эффективных масс носителей и относительно больших времен рекомбинации фотовозбужденных электронов.

Рассмотрим нелинейную рефракцию, связанную с динамическим эффектом Бурштейна—Мосса в МКЯ типа $PbTe/Pb_{1-x}Sn_xTe$ ($x=0.2$), выращенных в плоскости (111) на подложках BaF_2, с учетом реальной зонной структуры этих систем. В указанных соединениях экстремумы c- и v-зон расположены в точке L зоны Бриллюэна. Поэтому необходимо учитывать вклады в коэффициент поглощения света от электронных переходов из состояний в каждой из четырех долин, которые в СР и МКЯ становятся неэквивалентными и размерное квантование в них существенно разное (см., например, [2]) вследствие значительной анизотропии эффективных масс электронов и дырок. Предполагается, что накачка осуществляется второй гармоникой CO_2-лазера ($\hbar\omega_2 \cong 0.236$ эВ), которую можно получить, используя слоистые кристаллы GaSe [3]. Эта энергия меньше ширины запрещенной зоны PbTe при $T=150$ K ($E_g=0.245$ эВ), но попадает в область межзонного поглощения слоев $Pb_{1-x}Sn_xTe$ ($x=0.2$) ($E_g=0.139$ эВ). Зондирующий импульс CO_2-лазера ($\hbar\omega_1 \cong 0.118$ эВ) имеет частоту меньше ширины запрещенной зоны $Pb_{1-x}Sn_xTe$. Импульс накачки и зондирующий импульс имеют одинаковую треугольную форму и длительность

$\tau_i \simeq 100$ нс. Каждый фотон накачки при межзонном поглощении в МКЯ рождает одну электронно-дырочную пару. Коэффициент поглощения имеет вид

$$\alpha(\hbar\omega, z, t) = \alpha_0(\hbar\omega)(1 - f_e(z, t) - f_h(z, t)), \tag{1}$$

где $f_{e,h}$ — функции распределения электронов и дырок. Для МКЯ типа I (экстремумы зоны проводимости и валентной зоны $Pb_{1-x}Sn_xTe$ попадают в запрещенную зону PbTe) правило отбора для переходов между мини-зонами валентной зоны и зоны проводимости: $n_c - n_v = 0$; а коэффициент линейного поглощения излучения $\alpha_0(\hbar\omega)$ имеет вид ступенчатой функции [2]

$$\alpha_0(\hbar\omega) = \frac{\pi^2 e^2 \hbar}{4 m_0^2 \varepsilon_\infty^{1/2} a} \left[\frac{(\mathbf{eP}_{cv}^{1})^2}{P_\perp^2} \sum_n \Theta(\omega - \omega_n)(1 - \Delta_n) + \right.$$

$$\left. + \sum_{q=2}^{4} \frac{(\mathbf{eP}_{cv}^{q})^2}{\widetilde{P}_x \widetilde{P}_y} \sum_{n'} \Theta(\omega - \omega_{n'}) [1 - \Delta_{n'} + 0(\Delta_{n'}^{3/2})] \right].$$

Здесь P_{cv}^q — оптический матричный элемент для q-й долины, $P_\perp$, $\widetilde{P}_x$ и $\widetilde{P}_y$ — дипольные матричные элементы, перпендикулярные оси структуры для [111] и $\langle 1\bar{1}1\rangle$ долин соответственно, $\Theta(\omega - \omega_n)$ — ступенчатая функция, a — ширина ямы. В этом выражении $\Delta_n = (E_{cn}^2 - E_{vn}^2)^2/\hbar^4\omega^4 \ll 1$, так как для ям PbSnTe $m_e \approx m_h$ и разрывы обеих зон на гетеропереходе сравнимы по величине.

Предполагается, что передняя грань образца освещается равномерно, а диффузия вдоль оси системы z (ось [111], вдоль нее же распространяется свет) отсутствует из-за наличия барьеров PbTe.

Здесь мы пренебрегаем перенормировкой ширины запрещенной зоны, поскольку при концентрациях свободных носителей, генерируемых импульсами накачки (N_e, $N_h < \approx 5 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$), она несущественна. Так же игнорируются процессы нагрева структуры. При мощностях $I \approx 5 \cdot 10^4$ Вт/см^2 и длительностях импульса накачки $\tau_i \approx 100$ нс для реальных параметров слоев PbSnTe при $T = 150$ K ($\chi = K/\rho C_p \cong 0.3$ см^2/с — коэффициент температуропроводности, K — коэффициент теплопроводности, C_p — теплоемкость, ρ — плотность) можно оценить повышение температуры на глубине z в образце под действием лазерного импульса при условии сильного поглощения до момента просветления. Оценки изменения температуры структур не превышают 1.5—2.0 K и выполнены с использованием выражения [4]

$$T = T_0 + \frac{2I(1-R)}{\pi^{1/2} K} (\chi\tau_i) \operatorname{erfc}\left(\frac{z}{2(\chi\tau_i)^{1/2}}\right), \tag{2}$$

справедливого при вышеуказанных предположениях. Здесь R — коэффициент отражения ($R \cong 0.5$).

На основании экспериментальных данных [5, 6] полагается, что преобладающим механизмом рекомбинации в СР и СКЯ PbTe/PbSnTe является излучательная рекомбинация. В соответствии со статистикой Русбрека—Шокли время жизни для излучательной рекомбинации зависит от концентрации неравновесных носителей Δ [7]:

$$\tau = \tau_0 \frac{N_{h0} + N_{e0}}{N_{h0} + N_{e0} + \Delta}, \quad \tau_0 \sim \frac{1}{N_{e0} E_g^2}. \tag{3}$$

Здесь N_{h0} и N_{e0} — равновесные концентрации носителей. При больших уровнях накачки $\tau \approx \Delta^{-1}$.

Поскольку время релаксации по импульсу ($\tau \approx 10^{-12}$ с) много меньше времени межзонной рекомбинации в слоях $Pb_{1-x}Sn_xTe$ ($x \leqslant 0.2$, $\tau \geqslant 10^{-9}$ с), неравновесные носители успевают термализоваться и для них можно говорить о квазиуровне Ферми.

Уравнение баланса для концентрации неравновесных носителей Δ в этом случае будет иметь вид

$$\frac{d\Delta(z,\ t)}{dt}=\frac{\alpha_0(\hbar\omega_2)\,(1-f_e(z,\ t)-f_h(z,\ t))\,I(z,\ t)}{\hbar\omega_2}-\frac{\Delta(z,\ t)}{\tau(\Delta(z,\ t))}+\frac{\alpha(\hbar\omega_1)\,I_{\mathrm{probe}}}{\hbar\omega_2}, \tag{4}$$

а уравнение для распределения интенсивности света вдоль оси распространения имеет вид

$$\frac{dI(z,\ t)}{dz}=-\alpha(\hbar\omega,\ z,\ t)\,I(z,\ t), \tag{5}$$

где $I(z=0,\ t)=(1-R)I_{\max}i(t)$. В последнем выражении $i(t)$ — форма импульса. В (4) последним слагаемым можно пренебречь, поскольку $\alpha(\hbar\omega_1)\ll\alpha(\hbar\omega_2)$ и $I_{\mathrm{probe}}\ll I$.

В твердых растворах халькогенидов свинца эффективные массы электронов и дырок приблизительно равны друг другу, поэтому изменения функций распределения носителей обоих типов также равны: $\delta f_e\cong\delta f_h$, и в (4) ни одной из этих функций пренебречь нельзя в отличие от полупроводников $\mathrm{A^{III}B^{V}}$.

В уравнении (4) $\Delta=\Delta N_e+\Delta N_h$, где каждое из слагаемых определяется выражением

$$\Delta N_{e,h}(z,\ t)=\int g_{e,\ h}(E)\,\{f_{e,h}(E^*_{F e,h}(z,\ t))-f_{e,h}(E_F)\}\,dE, \tag{6}$$

где $g(E)$ — плотность состояний в МКЯ, вычисленная в рамках двузонной модели:

$$g(E)=\frac{(E+E_g/2)}{\pi a}\left(\frac{1}{P_\perp^2}\sum_n\Theta(E-E_n)+\frac{3}{\tilde{P}_x\tilde{P}_y}\sum_{n'}\Theta(E-E_{n'})\right). \tag{7}$$

Для значений квазиуровня Ферми $|E_F^*|>|\varkappa_{n,\ n'}|+kT$ использовалась статистика Ферми—Дирака, и концентрация дырок в n-й мини-зоне валентной зоны для долины [111] равна

$$N_{hn}=\frac{1}{2\pi aP_\perp^2}f_h(E_F^*-\varkappa_n)\,(E_F^{*2}-\varkappa_n^2),$$

где

$$\varkappa_n=-\sqrt{E_g^2/4+E_n^2}, \tag{8}$$

E_n — положение мини-зоны при $k_\perp=0$, отсчитанное от края зоны, E_F^* отсчитывается от середины запрещенной зоны. Для n'-й мини-зоны в трех наклонных $\langle\bar{1}11\rangle$ долинах

$$N_{hn'}=\frac{1}{2\pi a\tilde{P}_x\tilde{P}_y}f_h(E_F^*-\tilde{\varkappa}_{n'})\,(E_F^{*2}-\tilde{\varkappa}_{n'}^2),\ \tilde{\varkappa}_{n'}=-\sqrt{E_g^2/4+E_{n'}^2\,(1-\tilde{P}_{zy}^4/(\tilde{P}_z^2\tilde{P}_y^2))}\,. \tag{9}$$

Если $|\varkappa_{n,\ n'}|+kT>|E_F^*|$, то использовалась статистика Больцмана, и для долины [111]

$$N_{n'}=\frac{1}{\pi aP_\perp^2}f_h(E_F^*-\tilde{\varkappa}_{n'})\,(kT\tilde{\varkappa}_{n'}+(kT)^2), \tag{10}$$

а для трех $\langle\bar{1}11\rangle$ долин

$$N_{hn'}=\frac{3}{\pi a\tilde{P}_x\tilde{P}_y}f_h(E_F^*-\tilde{\varkappa}_{n'})\,(kT\tilde{\varkappa}_{n'}+(kT)^2). \tag{11}$$

Общая концентрация дырок

$$N_h=\sum_n N_{hn}+\sum_{n'}N_{hn'}.$$

Используя все эти выражения, уравнение (4) можно численно решить относительно квазиуровня Ферми и из (6) вычислить $N_{e,\ h}(t)$.

Динамика изменения показателя преломления определяется стандартным выражением, определяющим вклад свободных носителей в показатель преломления:

$$n^2(\omega_1) = \varepsilon_\infty [1 - (\hbar\omega_p(t)/\hbar\omega_1)^2], \tag{12}$$

где плазменная частота $\omega_p(t) = \left(\frac{4\pi e^2 N_h(t)}{\varepsilon_\infty m^*}\right)^{1/2}$, а $m^* = m_t \frac{3K}{2K+1}(1 + 2E_F^*/E_g)$ — эффективная масса плотности состояний на квазиуровне Ферми и $K = m_l/m_t \approx \approx 10$ (m_l, m_t — продольная и поперечная массы).

Изменения показателя преломления могут быть вычислены по формулам Крамерса—Кронига, но такие расчеты приводят к неправдоподобно большим значениям нелинейной рефракции. Возможной причиной этого является то, что при интегрировании учитывалась лишь реальная зонная структура вблизи экстремумов $L_6^\pm$ в PbSnTe.

Расчеты $n(I)$ были выполнены для различных длительностей импульса и различных интенсивностей импульса накачки для структуры из 100 квантовых ям толщиной a=300 Å.

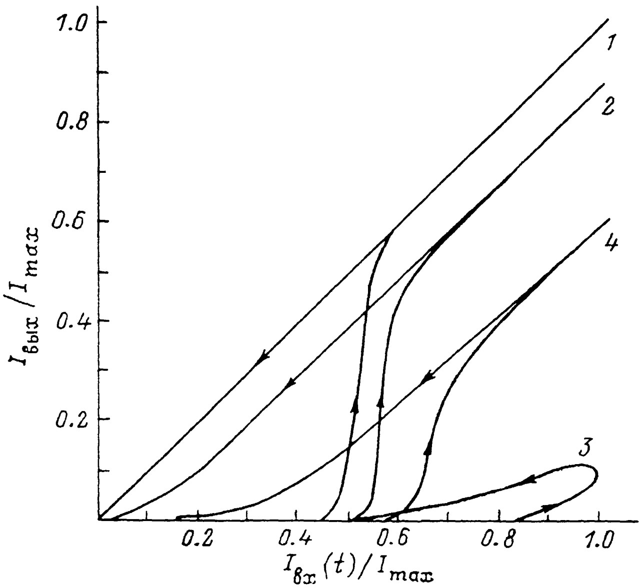

Рис. 1. Зависимость выходной интенсивности от входной для МКЯ p-типа, N_{h0}=3.5·10^{17} см$^{-3}$ при T=150 К, τ_i=50 нс, I_{max}=5·10^4 Вт/см^2.

1 — $\tau_0=\infty$, 2 — τ_0=20 нс, τ=const, 3 — τ_0=20 нс, $\tau=f(\Delta)$, 4 — τ_0=50 нс, $\tau=f(\Delta)$.

На рис. 1 представлена динамика просветления образца для различных времен жизни неравновесных носителей. По осям отложены $I_{вх}(t)/I_{max}$ и $I_{вых}(t)/I_{max}$ импульса накачки в относительных единицах (I_{max}=5·10^4 Вт/см^2). Расчет выполнен для типичных МКЯ, в которых слои PbSnTe имеют дырочную проводимость N_{h0}=3.5·10^{17} см$^{-3}$ при T=150 К [8]. Кривая *1*, рассчитанная без учета рекомбинации ($\tau_0=\infty$), аналогична кривым, полученным в том же приближении в рамках феноменологической модели [9]. Момент просветления структуры совпадает с моментом достижения фронтом прозрачности задней грани структуры. Структура остается полностью прозрачной и после окончания импульса. Кривая *2* рассчитана в предположении постоянства времени жизни (τ_0=20 нс). Просветление наступает позже, чем для случая *1*, и заканчивается до окончания импульса. При расчете кривых *3*, *4* предполагалось, что время жизни зависит от концентрации неравновесных носителей согласно (3). При росте концентрации носителей на порядок время жизни падает на порядок, что сильно меняет условия просветления. Так, для кривой *3* (τ_0=20 нс) фронт прозрачности достигает задней грани образца уже на спаде импульса, и за время импульса образец не успевает полностью просветлиться. При τ_0=50 нс (кривая *4*) фронт прозрачности достигает задней грани на переднем фронте импульса, однако из-за быстрой рекомбинации носителей образец просветляется слабее, чем в случаях *1*, *2*. Аналогичная ситуация наблюдается при

$\tau_0 \gg \tau_i$ (как для собственного полупроводника), поэтому рекомбинацию необходимо учитывать и в этом случае.

На рис. 2 представлена динамика изменения показателя преломления в МКЯ при тех же τ_i, N_{h0} и I_{max}, что и на рис. 1 для различных начальных времен жизни носителей. Из сравнения $n(I)$ и положения квазиуровня Ферми видно, что резкий скачок n происходит в момент пересечения E_F^* квантового уровня в КЯ (эти моменты показаны стрелками). Особенно эти скачки видны для долин $\langle\bar{1}11\rangle$, в которых плотность состояний на уровне значительно больше, чем в долине [111]. Скачки n для некоторых уровней неразличимы между собой, потому что при большой скорости нарастания фронта импульса накачки E_F^* пересекает некоторые уровни за промежутки времени $\ll \tau_i$. Чем больше τ_0, тем степень просветления структуры выше. Сечение рефракции в этом случае

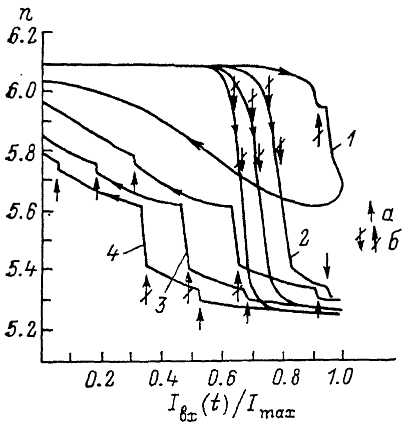

Рис. 2. Динамика изменения показателя преломления для разных τ_0 для МКЯ p-типа, $N_{h0}=3.5 \cdot 10^{17}$ см$^{-3}$ при $T=150$ К, $\tau_i=50$ нс, $I_{max}=5 \cdot 10^4$ Вт/см^2.

τ_0, нс: *1* — 20, *2* — 30, *3* — 40, *4* — 50. Долины: *а* — [111], *б* — $\langle\bar{1}11\rangle$.

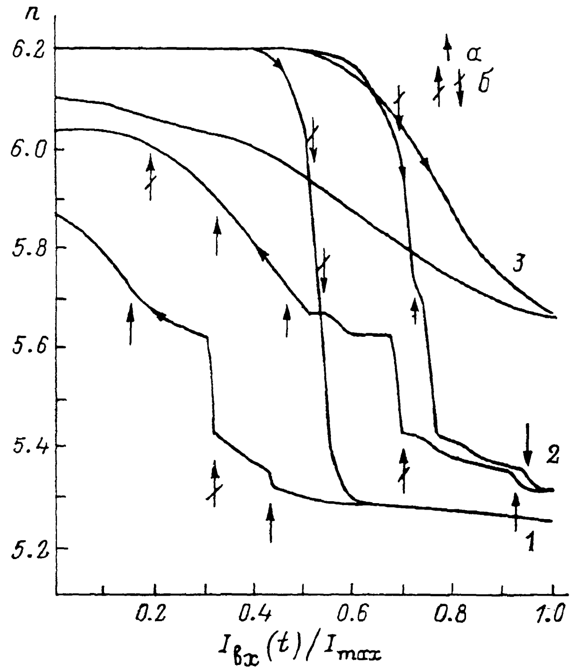

Рис. 3. Динамика изменения показателя преломления в зависимости от τ_i и I_{max} при постоянной энергии в импульсе для случая собственной проводимости.

$T=150$ К, $\tau_0=2000$ нс, $\tau=f(\Delta)$. τ_i, нс: *1* — 50, *2* — 100, *3* — 50 (пленка $Pb_{1-x}Sn_xTe$). I_{max}, Вт/см^2: *1*, *3* — 10^5, *2* — $5 \cdot 10^4$. Долины: *а* — [111], *б* — $\langle\bar{1}11\rangle$.

$\sigma \cong 3 \cdot 10^{-19}$ см^3, что хорошо согласуется с расчетными данными [10] в монокристаллических слоях $Pb_{1-x}Sn_xTe$.

На рис. 3 сравниваются зависимости $n(I)$ для МКЯ $PbTe/Pb_{1-x}Sn_xTe$ ($x=0.2$) (кривые *1*, *2*) и пленки (с параболическим законом дисперсии) (*3*) $Pb_{1-x}Sn_xTe$. Видно, что при одинаковых условиях изменения $n(I)$ для МКЯ происходят гораздо быстрее, чем в пленке, что обусловлено ступенчатым изменением плотности состояний в МКЯ и, как следствие, —ступенчатым изменением коэффициента поглощения в процессе просветления. Кривые *1* и *2* рассчитаны для одинаковых энергий в импульсе, но разных τ_i. Видно, что площадь петли тем больше, чем короче импульс, так как процессы релаксации системы в этом случае сказываются слабее.

Таким образом, МКЯ могут быть использованы в качестве эффективных ИК оптических переключателей и бистабильных элементов, поскольку ожидаемые изменения dn/dI в них гораздо выше, чем в объемных образцах, что связано с наличием ступенчатой функции плотности состояний в МКЯ. Эффективность переключения в таких структурах можно регулировать изменением плотности мощности и длительности импульса накачки.

Список литературы

[1] Chemla D. S., Miller D. A., Smith P. W. // Semicond. and Semimet. / Ed. by R. Dingle. 1987. V. 27. P. 279.
[2] Гуменюк-Сычевская Ж. В., Сизов Ф. Ф. // УФЖ. 1989. Т. 34. В. 12. С. 1811—1816.
[3] Погосян Д. Н. // Квант. электрон. 1977. Т. 4. В. 1. С. 5—13.
[4] Von Allmen M. Laser Beam Interactions with Materials. 1987, Berlin.
[5] Heyen T. T., Hagerott M., Nurmikko A. V., Partin D. L. // Appl. Phys. Lett. 1989. V. 54. N 7. P. 653—655.
[6] Валейко М. В., Засавицкий И. И., Матвеенко А. В., Мацонашвили Б. Н., Саксеев Д. А. // ФТП. 1987. Т. 21. В. 1. С. 34—38.
[7] Блейкмор Дж. Статистика электронов в полупроводниках. М., 1964. 320 с.
[8] Sizov F., Apatskaya M., Gumenjuk-Sichevskaya J., Teterkin V., Troyan Y. // Semicond. Sci. Techn. 1990. V. 5. N 9.
[9] Кочелап В. П., Кулиш Н. Р., Лисица М. П., Малыш Н. И., Соколов В. Н. // ФТП. 1988. Т. 22. В. 5. С. 868—874.
[10] Paskov P. P., Pavlov L. I., Atanasov P. A. // Phys. St. Sol. (b). 1988. V. 149. N 2. P. 739—746.

Институт полупроводников АН УССР
Киев

Получена 9.10.1990
Принята к печати 28.01.1991