

Сверхизлучение в квантовых гетероструктурах

© А.И. Климовская[¶], Ю.А. Дрига, Е.Г. Гуле, О.А. Пикарук

Институт физики полупроводников Национальной академии наук Украины,
03028 Киев, Украина

(Получена 25 марта 2002 г. Принята к печати 28 октября 2002 г.)

В квантовых гетероструктурах GaAs/In_xGa_{1-x}As/GaAs исследованы изменение формы спектра и зависимости интенсивности и времени релаксации сверхизлучения от плотности мощности возбуждения в диапазоне $1 \cdot 10^{-3} - 9 \cdot 10^6$ Вт/см². Впервые показано влияние заполнения квантовой ямы на все параметры спектра сверхизлучения.

1. Введение

Механизм сверхизлучения был предложен в 1954 году Дике [1] и детально исследован теоретически и экспериментально для газовых сред и объема твердых тел [2,3]. Суть явления состоит в том, что в среде с высокой плотностью возбужденных атомов — диполей возможна их взаимная фазировка электромагнитным полем собственного излучения. Условия, необходимые для фазировки, — это малые расстояния (l) между излучающими диполями по сравнению с длиной волны излучения (λ), но достаточно большие, чтобы диполь-дипольное взаимодействие было пренебрежительно малым. Кроме того, время фазировки должно быть значительно меньше спонтанной релаксации инверсного состояния и времени деполяризации в результате рассеяния. При выполнении этих условий в возбужденной среде формируется макродиполь, а интенсивность излучения лавинообразно нарастает. При этом характерное время сверхизлучения (τ_N) обратно пропорционально числу диполей (N) в макродиполе ($\tau_N \propto 1/N$), а интенсивность излучения (I) пропорциональна квадрату числа сфазированных диполей ($I \propto N/\tau_N \propto N^2$).

В последние годы резко возрос интерес к исследованию сверхизлучения в квантовых гетероструктурах [4–10]. Это обусловлено тем, что в гетероструктурах легче, чем в газах и объеме твердых тел, обеспечить необходимую плотность возбужденных состояний и снизить вклад процессов рассеяния. Эти исследования показали, что существует реальная возможность создания импульсных источников электромагнитного излучения предельно малой длительности. Длительность импульса может быть меньше периода электромагнитных колебаний излучения, для оптического диапазона — порядка единиц фемтосекунд.

Однако при интерпретации результатов исследования сверхизлучения в квантовых гетероструктурах возник ряд проблем, которые не решались в рамках обычных представлений [1]. Одной из таких проблем явилась невозможность объяснения независимости [6] или даже нарастания [8] времени сверхизлучения с увеличением мощности накачки, поскольку τ_N , согласно [1], обратно пропорционально N . Необъяснимой оказалась так-

же неизменность формы спектра сверхизлучения при изменении мощности накачки на 3 порядка, а оценки числа диполей N по разным данным эксперимента не согласовывались друг с другом.

Цель настоящей работы — выяснить природу необычного проявления сверхизлучения в квантовых гетероструктурах и причины описанных выше противоречий.

В качестве объекта исследований были выбраны гетероструктуры с одиночной упруго-напряженной квантовой ямой. Это позволяло рассчитать энергетическую структуру ямы с хорошей точностью и снизить темп рассеяния, ограничивающий интенсивность сверхлюминесценции.

Для обеспечения широкого диапазона изменения плотности возбуждающей мощности применялась оптическая накачка. В зависимости от мощности возбуждения были исследованы основные параметры сверхизлучения: форма спектра, интенсивность и время сверхизлучения.

В работе показано, что форма спектра, интенсивность и время релаксации изменяются в соответствии с теорией Дике при изменении плотности мощности накачки до значений, соответствующих полному заполнению квантовой ямы возбужденными электронно-дырочными парами. Дальнейший рост мощности приводит к „стабилизации“ формы спектра, значительному уменьшению темпа роста интенсивности излучения и к постоянному времени релаксации τ_N . Таким образом, особенности проявления сверхизлучения в квантовых гетероструктурах, на которые обратили внимание авторы работ [6,8], связаны с квазидискретностью энергетического спектра и конечностью числа состояний квантовых объектов.

2. Методика эксперимента

Исследования проводились на квантовых слоях In_xGa_{1-x}As, встроенных в матрицу GaAs. Структуры были выращены по технологии МОС-гидридной эпитаксии (газофазной эпитаксии из металл-органических соединений) при атмосферном давлении. Толщина квантового слоя и содержание In выбирались такими, чтобы квантовый слой был упруго напряжен и в нем не возникали дислокации несоответствия, связанные с различием постоянных решетки квантового слоя и матрицы.

[¶] E-mail: allaK@isp.kiev.ua

В качестве источников возбуждения использовались гелий-неоновый лазер непрерывного действия ЛГИ-201 с длиной волны генерации 632.8 нм, мощностью излучения ~ 1.7 мВт и импульсный азотный лазер ЛГИ-21 с длиной волны генерации 337.1 нм, мощностью излучения в импульсе ~ 1.5 кВт. Изменение интенсивности возбуждения осуществлялось применением градуированных нейтральных фильтров и фокусировкой лазерного луча.

Измерения спектральных зависимостей излучения проводились на модифицированном оптическом спектрометре КСВУ-23. Во избежание искажений формы спектра, возникающих, например, при волноводном распространении света, исследовалось излучение с поверхности образца. Температура исследований была $T \approx 100$ К.

3. Экспериментальные результаты

Мощность оптической накачки (P_{exc}) изменялась в пределах от $\sim 1 \cdot 10^{-3}$ до $9 \cdot 10^6$ Вт/см². Это позволило выявить основные особенности проявления сверхизлучения в квантовых гетероструктурах. Исследовались в зависимости от уровня накачки: 1) видоизменение формы спектра излучения $I_{\text{PL}}(E)$, 2) изменение интегральной интенсивности излучения J_{PL} и 3) изменение времени релаксации сверхизлучения τ_N .

3.1. Форма спектров

На рис. 1 в полулогарифмическом масштабе показаны экспериментальные спектры люминесценции из квантовой ямы для низкого и высокого уровней возбуждения. На том же рисунке сплошными кривыми даны расчетные спектры излучения из квантовой ямы, характерные для сверхлюминесценции Дике [6]:

$$I_{\text{QW}} \propto \text{sech} \{2\pi^2 \tau_N (E - E_{\text{max}})/h\}, \quad (1)$$

где E_{max} — энергия максимума. Из рисунка видно, что спектры несимметричны, при этом низкоэнергетическое

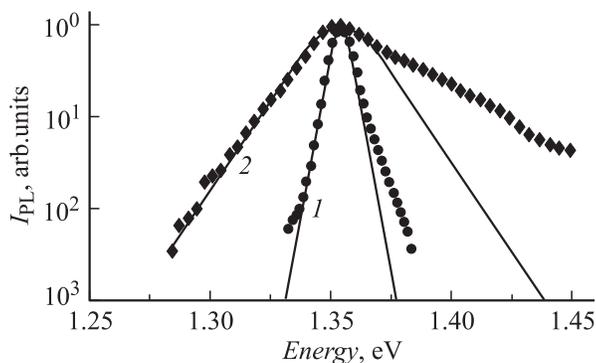


Рис. 1. Спектры фотолюминесценции квантовой гетероструктуры GaAs/In_{0.16}Ga_{0.84}As/GaAs для низкой и высокой плотности мощности накачки P_{exc} , Вт/см²: 1 — 0.1, 2 — $9 \cdot 10^6$. Сплошные линии — расчет согласно (1).

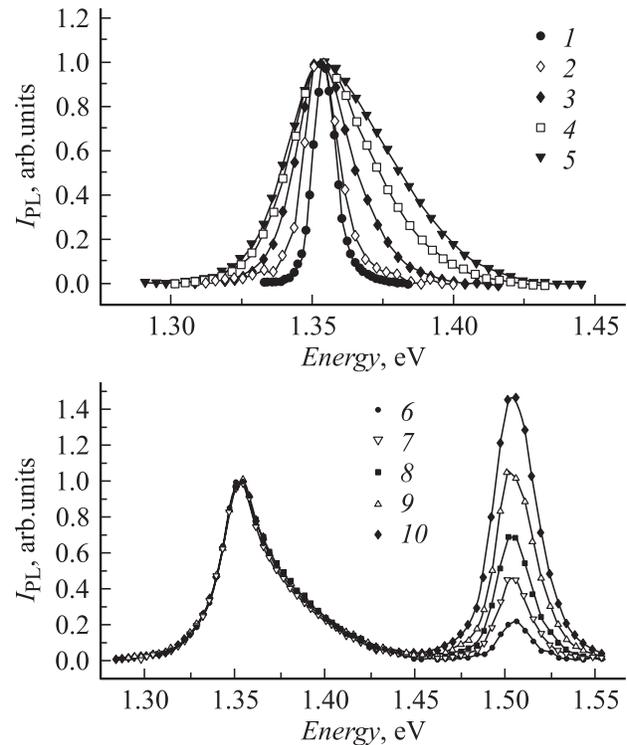


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции гетероструктуры GaAs/In_{0.16}Ga_{0.84}As/GaAs для разных плотностей мощности накачки P_{exc} , нормированных на максимальную мощность $P_{\text{exc}}^{\text{max}} = 9 \cdot 10^6$ Вт/см². $P_{\text{exc}}/P_{\text{exc}}^{\text{max}}$: 1 — $3.3 \cdot 10^{-6}$, 2 — $3.5 \cdot 10^{-4}$, 3 — $2.8 \cdot 10^{-3}$, 4 — $5.7 \cdot 10^{-3}$, 5 — $8 \cdot 10^{-3}$, 6 — $1.8 \cdot 10^{-1}$, 7 — $3.5 \cdot 10^{-1}$, 8 — $2.5 \cdot 10^{-1}$, 9 — $7.1 \cdot 10^{-1}$, 10 — 1.

крыло полосы хорошо описывается законом, характерным для сверхлюминесценции, для интенсивностей, изменяющихся в пределах 3 порядков. В то же время, чем больше уровень возбуждения, тем сильнее отклонения от этой закономерности на высокоэнергетическом крыле спектра, хотя по-прежнему сверхизлучение преобладает.

На рис. 2 показаны спектры фотолюминесценции $I_{\text{PL}}(E)$, приведенные к интенсивности в максимуме, для различных уровней возбуждения. Из приведенных данных видно, что по мере увеличения мощности накачки P_{exc} вначале происходит уширение полосы люминесценции с максимумом при ~ 1.35 эВ, затем при $P_{\text{exc}} \geq 10^6$ Вт/см² спектральная форма этой полосы принимает окончательный вид и не зависит от интенсивности накачки. С этого момента появляется добавочная полоса с энергией максимума 1.504 эВ, свидетельствующая о том, что квантовая яма практически заполнена и избыточные электронно-дырочные пары релаксируют в матрице.

Таким образом, из приведенных данных видно, что при всех уровнях накачки в спектре фотолюминесценции преобладает сверхизлучение Дике и стабилизация формы спектра связана с заполнением квантовой ямы.

3.2. Интенсивность излучения

На рис. 3 представлены зависимости от плотности мощности накачки интегральных интенсивностей люминесценции гетероструктуры, включая интенсивность люминесценции из GaAs-матрицы, J_{PL} (кривая 1) и люминесценции из квантовой ямы J_{QW} (кривая 2). В области изменения P_{exc} до значений $\sim 10^6$ Вт/см² (на рисунке показано стрелкой) обе зависимости совпадают. При очень низких уровнях накачки (рис. 3, *b*) наблюдается зависимость вида $J_{QW} \propto P_{exc}^2$. В области больших уровней возбуждения наблюдается сублинейная зависимость $J_{QW} \propto P_{exc}^{0.5}$. Переход к сублинейной зависимости сопровождается замедлением темпа изменений формы спектра, что свидетельствует о корреляции этого перехода с заполнением квантовой подзоны. Поскольку основная часть излучения из квантовой ямы при всех уровнях накачки — это сверхизлучение Дике, то по виду экспериментальной зависимости $J_{QW}(P_{exc})$ можно сделать вывод, что связь между интенсивностью излучения Дике и мощностью накачки нелинейная. Кроме того, по зависимости интенсивности полной фотолюминесценции гетероструктуры от плотности мощности возбуждения видно, что доля безызлучательной рекомбинации в квантовой яме значительно меньше, чем в матрице.

3.3. Время релаксации

Время сверхизлучения определялось по наклону низкоэнергетической части спектра. На рис. 4 показана зависимость τ_N от мощности возбуждения. При изменении мощности накачки в пределах $P_{exc} = 1 \cdot 10^{-3} - 9 \cdot 10^6$ Вт/см² время изменяется от 70 до 20 фс. Наибольшие изменения наблюдаются до мощ-

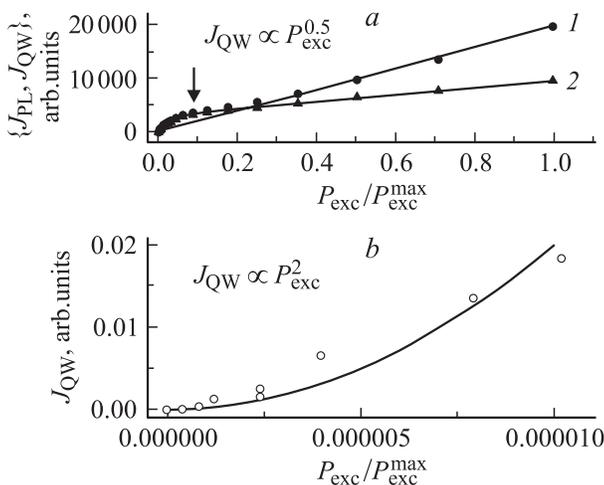


Рис. 3. Зависимости от плотности мощности возбуждения P_{exc} , нормированной на максимальную мощность $P_{exc}^{max} = 9 \cdot 10^6$ Вт/см²: *a* — полная интегральная интенсивность излучения гетероструктуры J_{PL} (1) и интегральная интенсивность излучения квантовой ямы J_{QW} (2), прямая линия — зависимость, характерная для нормальной спонтанной релаксации; *b* — J_{QW} при малых P_{exc} .

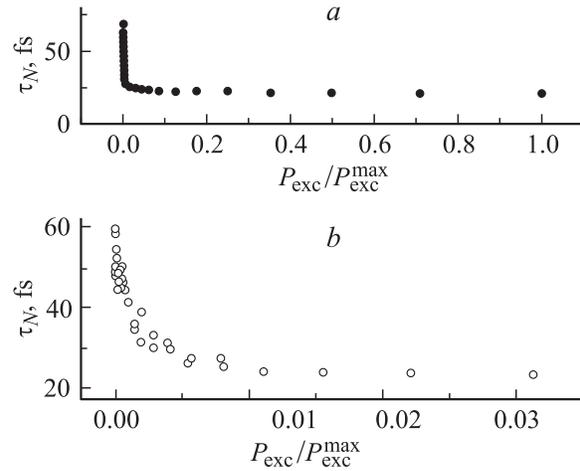


Рис. 4. Зависимость времени сверхизлучения τ_N от плотности мощности накачки P_{exc} , нормированной на максимальную мощность $P_{exc}^{max} = 9 \cdot 10^6$ Вт/см² (*a*) и τ_N при малых P_{exc} (*b*).

ностей $\sim 10^6$ Вт/см². Дальнейшее увеличение мощности время релаксации τ_N практически не изменяет. Сопоставление этой зависимости с зависимостями интенсивности излучения и формы спектра от уровня возбуждения показывает, что выход τ_N на насыщение также связан с заполнением квантовой ямы.

4. Обсуждение результатов

Расчеты энергетической структуры квантовой ямы с учетом деформационных эффектов и зависимости эффективной массы от энергии в четырехзонной модели, выполненные нами ранее [11], а также расчеты энергии связи экситона, проведенные в работе [12], позволяют идентифицировать наблюдаемую люминесценцию из квантовой ямы как экситонную, связанную с первой электронной подзоной и первой подзоной тяжелых дырок. Экситонный характер излучения подтверждается также тем, что при низких уровнях накачки полуширина полосы люминесценции меньше kT , т.е. меньше характерной для идеальных двумерных квантовых ям.

Форма экситонного спектра существенно зависит от того, являются ли экситоны независимыми излучателями, или они включаются в процессы формирования макродиполя, т.е. фазируются полем излучения. Ранее нами было показано [10], что при малых уровнях возбуждения форма спектров фотолюминесценции в этих гетероструктурах наилучшим образом описывается зависимостью, характерной для сверхизлучения Дике. Из результатов, приведенных на рис. 1, видно, что при больших уровнях возбуждения доля сверхизлучения в спектрах фотолюминесценции по-прежнему существенно преобладает.

Энергия связи экситона в исследуемых нами структурах, оцененная по результатам расчета [12], при $T = 100$ К составляет ~ 6 мэВ, т.е. несколько ниже kT .

Это означает, что в квантовой яме одновременно присутствуют как экситоны, так и свободные электроны и дырки. Поскольку времена теплового рассеяния свободных носителей в яме не меньше 10^{-12} с, т.е. значительно больше времени сверхизлучения τ_N , вполне вероятно, что носители, заполняющие квантовые подзоны, тоже вовлекаются в процесс сверхизлучения. В результате при больших накачках наряду с экситонным наблюдается сверхизлучение, связанное с переходами между квантовыми подзонами.

Нелинейный характер зависимости интенсивности люминесценции из квантовой ямы от мощности накачки легко объясняется при малых уровнях возбуждения стационарностью процесса, при котором темп генерации возбужденных состояний (G) равен темпу их релаксации (R), $G = R$, а при больших уровнях возбуждения — конечностью числа состояний в квантовой яме.

В исследуемых гетероструктурах имеются несколько каналов релаксации: безызлучательный, излучательный для невзаимодействующих (несфазированных) диполей и излучательный по механизму Дике. Каждый из них можно описать характеристическим временем — τ_n , τ_i и τ_N соответственно. Тогда

$$R = N_0 \left(\frac{1}{\tau_n} + \frac{1}{\tau_i} + \frac{1}{\tau_N} \right),$$

где N_0 — полное число генерируемых в квантовой яме пар. Если уровень накачки настолько мал, что условие $l \ll \lambda$, необходимое для появления сверхизлучения, не выполняется, устанавливается некоторое равновесное число диполей, независимо спонтанно излучающих свет. При этом, если соотношение между темпами безызлучательной и излучательной релаксации не меняется, т.е. τ_n и τ_i не зависят от уровня возбуждения, то интенсивность излучения линейно зависит от мощности накачки. В нашем эксперименте такие условия выполняются для излучения из матрицы, что хорошо видно по зависимости полной интенсивности люминесценции из гетероструктуры (кривая 1 на рис. 3), когда яма полностью заполнена и существенным становится излучение из матрицы.

Ситуация изменяется, когда появляется дополнительный канал релаксации по механизму Дике. Его принципиальное отличие состоит в том, что время Дике τ_N зависит от уровня возбуждения. В этом случае при изменении мощности накачки происходит перераспределение интенсивности релаксации по разным каналам. Поскольку τ_N уменьшается с увеличением мощности возбуждения, а τ_n и τ_i остаются постоянными или изменяются, но слабее, чем τ_N , то подпитка канала релаксации по Дике будет осуществляться за счет как излучательной, так и безызлучательной релаксации. Это означает, что интегральная интенсивность излучения при одном и том же уровне возбуждения (т.е. при одинаковом темпе генерации) для среды с независимыми излучателями будет меньше, чем для среды, в которой излучатели образуют макродиполь.

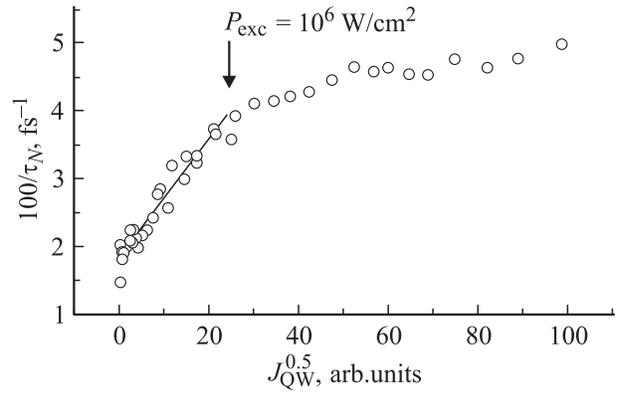


Рис. 5. Зависимость обратного времени релаксации Дике τ_N^{-1} от корня квадратного из интегральной интенсивности люминесценции квантовой ямы $J_{QW}^{0.5}$.

Если сопоставить характер изменения формы спектра (рис. 2), интенсивности излучения (рис. 3) и времени релаксации сверхизлучения (рис. 4) с изменением мощности возбуждения, то видно, что на всех зависимостях существенные изменения наступают при значении плотности мощности накачки $P_{exc} \approx 10^6$ Вт/см 2 . При такой плотности квантовая яма практически заполнена, и дальнейшее увеличение плотности мощности не должно приводить к значительному росту числа электронно-дырочных пар в яме. Таким образом, существующая нелинейная связь между числом диполей в яме и мощностью накачки приводит к кажущемуся противоречию результатов исследования сверхизлучения в квантовых структурах с теорией и экспериментом в газах и объеме твердых тел. Установить эту связь непросто. Однако можно утверждать, что поскольку для сверхизлучения должны выполняться соотношения $\tau_N \propto 1/N$ и $J_{PL} \propto N^2$, то связь между $1/\tau_N$ и $J_{PL}^{0.5}$, рассчитанная по экспериментальным данным, должна быть линейной. На рис. 5 показана эта зависимость, построенная по результатам наших исследований. Видно, что зависимость действительно имеет линейный участок в области изменения уровней накачки на 9 порядков вплоть до плотностей мощности 10^6 Вт/см 2 , т.е. до заполнения квантовой ямы. Дальнейшее слабое уменьшение времени релаксации с ростом интенсивности излучения, по-видимому, связано со слабым заполнением второй квантовой подзоны, которая находится на расстоянии $\sim kT$ от потолка квантовой ямы и легко обменивается электронами с зоной проводимости матрицы гетероструктуры.

5. Заключение

В работе впервые показана роль заполнения квантовой ямы в особенностях проявления сверхизлучения в квантовых структурах. Получены зависимости времени сверхизлучения от плотности мощности накачки в диапазоне изменения плотностей мощности на 10 порядков.

Показано, что при практически полном заполнении квантовой ямы возбужденными электронно-дырочными парами форма спектра излучения перестает зависеть от мощности накачки, а время релаксации сверхизлучения выходит на насыщение. Показано, что в квантовых ямах выполняется характерная для сверхизлучения взаимосвязь между временем релаксации и интенсивностью излучения $1/\tau_N \propto \sqrt{J_{QW}}$.

Список литературы

- [1] R.H. Dicke. Phys. Rev., **93**, 99 (1954).
- [2] А.В. Андреев, В.И. Емельянов, Ю.А. Ильинский. УФН, **131**, 653 (1980).
- [3] В.В. Железников, В.В. Кочаровский, Вл.В. Кочаровский. УФН, **159**, 193 (1989).
- [4] С.В. Зайцев, А.М. Георгиевский. ФТП, **32**, 366 (1998).
- [5] А.А. Belyanin, V.V. Kocharovsky, V.I. Kocharovsky. Quant. Semiclass. Opt., **10**, L13 (1998).
- [6] С.В. Зайцев, Н.Ю. Гордеев, L.A. Graham, В.И. Копчатов, Л.Я. Карачинский, И.И. Новиков, D.L. Huffaker, П.С. Копьев. ФТП, **33**, 1456 (1999).
- [7] А.А. Белянин, В.В. Кочаровский, Вл.В. Кочаровский. Изв. РАН, **62**, 372 (1998).
- [8] А.М. Георгиевский, С.В. Зайцев, Н.Ю. Гордеев, В.И. Копчатов, Л.Я. Карачинский, И.И. Новиков, П.С. Копьев. ФТП, **33**, 847 (1999).
- [9] А.А. Белянин, В.В. Кочаровский, Вл.В. Кочаровский, Д.С. Пестов. Изв. вузов. Радиофизика, № 2 (2001).
- [10] А.И. Климовская, Е.Г. Гуле, Ю.А. Дрига. ФТП, **36** (2), 232 (2002).
- [11] Н.Н. Григорьев, Е.Г. Гуле, А.И. Климовская, Ю.А. Корус-Дрига, В.Г. Литовченко. УФЖ, **45**, 853 (2000).
- [12] И.А. Авруцкий, В.А. Сычугов, Б.А. Усиевич. ФТП, **25**, 1787 (1991).

Редактор Л.В. Шаронова

Superradiance in quantum heterostructures

A.I. Klimovskaya, Yu.A. Driga, E.G. Gule, O.A. Pikaruk

Institute of Semiconductor Physics,
National Academy of Sciences of Ukraine,
03028 Kiev, Ukraine

Abstract Changes in the shape of spectra as well as those in dependencies of the intensity and the relaxation time of superradiance on the excitation power density ranging between 10^{-3} and $9 \cdot 10^6$ W/cm² have been studied in quantum GaAs/In_xGa_{1-x}As/GaAs heterostructures. It is shown for the first time that there is the effect of quantum subbands population on all the parameters of the superradiance spectra.