

Поглощение в лазерных структурах со связанными и несвязанными квантовыми точками в электрическом поле при комнатной температуре

© М.М. Соболев[¶], И.М. Гаджиев, И.О. Бакшаев, В.С. Михрин, В.Н. Неведомский, М.С. Буяло, Ю.М. Задиранов, Е.Л. Портной

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

(Получена 27 мая 2008 г. Принята к печати 16 июня 2008 г.)

Представлены результаты экспериментального сравнения поглощения несвязанных и туннельно-связанных вертикально-коррелированных квантовых точек, измеренного при комнатной температуре. Выявлено, что в лазерных структурах с туннельно-связанными квантовыми точками при настройке длины волны излучения лазера и смещения Штарка происходит резонансное поглощение с образованием связанных и антисвязанных состояний экситонов в молекулах квантовых точек с энергией расщепления между ними ~ 62 мэВ. Для этих состояний наблюдалось сильное линейное смещение Штарка под действием внешнего поля, достигающее 68 мэВ. Для несвязанных квантовых точек наблюдался один пик резонансного поглощения с образованием экситона, для которого величина смещения Штарка не превышала 13 мэВ.

PACS: 42.55.Px, 71.35.Cc, 73.20.Mf, 78.67.Hc

1. Введение

В связи с развитием технологии получения гетероструктур с квантовыми точками (КТ) [1] и активными исследованиями их свойств и характеристик [2,3] возникает сильное желание создать на их основе, помимо лазеров [1], электрооптический модулятор поглощения [4]. Для создания модуляторов на эффекте Штарка, лазеров с синхронизацией мод и модуляцией необходимо провести детальные исследования по влиянию электрического поля на поглощение света при его волноводном распространении [5]. В настоящее время известно, что ширина спектра поглощения света одиночной КТ при низких температурах (единицы кельвинов) определяется однородным уширением, вызванным конечным временем жизни носителей около нескольких наносекунд [6], и составляет несколько мэВ [7] в соответствии с соотношением неопределенностей. В случае массива КТ основным фактором, определяющим неоднородное уширение спектра поглощения, является дисперсия размеров КТ, обусловленная случайным характером образования КТ. При комнатных температурах становится возможным тепловой выброс носителей заряда из КТ, что дополнительно увеличивает ширину линии поглощения вследствие перераспределения носителей по ансамблю КТ. В практических приложениях используются структуры с несколькими слоями массивов КТ, спектры излучения и поглощения которых радикально отличаются от аналогичных спектров одиночной КТ при температуре жидкого гелия, приводимых в работах по исследованию фотолуминесценции (ФЛ) в структурах со спиновой релаксацией [7]. Для получения многослойных структур с КТ используется метод самоорганизации КТ, при котором происходит складирование одной точки выше

другой в процессе эпитаксиального роста; образовавшаяся при этом структура будет состоять из вертикально-коррелированных КТ (ВККТ) [1]. В зависимости от толщины прослойки между рядами КТ (d) структура может находиться в одном из трех состояний: несвязанные КТ, промежуточный вариант и сильно связанные КТ [8]. В последних двух случаях помимо кулоновского взаимодействия между КТ может происходить туннелирование электронов и дырок из одной КТ в другую. В работе [9] была развита простая модель для экситонных состояний в молекулах КТ, которые образуются из основных экситонных состояний в изолированных КТ посредством туннельного связывания. Первые два состояния, согласно этой модели, соответствуют электрону и дырке в точке 0 или 1 и могут рождаться оптически. Вторая пара соответствует непрямой электронно-дырочной паре, т.е. электрон в точке 0, дырка в точке 1, и может возбуждаться оптически, только когда имеется перекрытие состояний этих двух точек. Дальнейшее развитие этой модели было приведено в работе [10]. Были рассчитаны орбитальные энергии и волновые функции четырех нижних s -состояний экситонов пары электрон-дырка, и было получено, что два оптически активных состояния остаются связанными через туннельный матричный элемент, нормируемый через кулоновские матричные элементы. Прямая рекомбинация электронов и дырок в той же самой точке характеризуется слабым сдвигом Штарка. В противоположность с этим непрямая рекомбинация электронов и дырок, локализованных в различных КТ, характеризуется сильным сдвигом Штарка. Когда энергии прямых и не прямых переходов в асимметричных связанных КТ становятся почти равными, две точки будут резонансными, волновые функции делокализуются в пределах обеих точек и переходы показывают антипересечение (anticrossing). Расщепление

[¶] E-mail: m.sobolev@mail.ioffe.ru

в окрестности антипересечения зависит от темпа туннелирования, который в свою очередь зависит от толщины барьера и массы носителя. Подобного рода когерентность отчетливо наблюдается в двумерных графиках спектра ФЛ в зависимости от величины электрического поля [7–10]. Такой двумерный график ясно показывает тонкую структуру фотолюминесцентного перехода, обусловленную различными состояниями экситона. При антипересечении орбитали волновых функций экситонов приобретают связанный и антисвязанный характер. Чем больше разница между орбиталями волновых функций, тем лучше должны быть различимы максимумы в спектрах поглощения, соответствующие этим состояниям. При толщине барьера $\sim (2.5\text{--}3.5)$ нм величина расщепления орбиталей волновых функций достигает 40–60 мэВ, и становится возможным наблюдение связанных и антисвязанных состояний в спектрах поглощения при комнатной температуре. Поскольку, как было сказано выше, в структурах со связанными КТ эффект Штарка имеет более сильную зависимость от поля [2,3], то и модуляторы оптического излучения, изготовленные из таких структур, должны обладать большей глубиной модуляции на единицу приложенного напряжения, чем в структурах с несвязанными КТ.

В настоящей работе приведены результаты исследования спектров резонансного поглощения света состояниями экситонов в структурах InAsGa/GaAs с вертикально-коррелированными системами связанных и несвязанных КТ в зависимости от приложенного к структуре электрического поля. При этом использовалась возможность управления смещением Штарка уровней энергии электронов и дырок ВККТ с помощью приложенного модулированного электрического поля для подстройки уровней энергии экситона ВККТ в резонанс с энергией кванта света лазера, облучающего модулятор с непрерывной интенсивностью.

2. Экспериментальные образцы

Для сравнения и исследования поглощения света массивами несвязанных и туннельно-связанных КТ были выращены лазерные структуры, в которых расстояние между КТ было 30 и 3 нм соответственно. Размер квантовых точек и расстояние между ними дополнительно контролировались методом просвечивающей электронной микроскопии. Необходимость использования именно лазерных структур обусловлена тем, что: 1) наличие лазерной генерации свидетельствует о достаточно высоком качестве структуры, 2) упрощается схема экспериментальной установки и, как следствие, повышается точность получаемых данных, 3) увеличивается практическая ценность результатов, так как в настоящее время лазеры с КТ имеют наибольший коммерческий потенциал.

Структура с 10 слоями несвязанных КТ InAs/InGaAs является фактически стандартной и описана во многих

работах [5,11]. Относительно большое количество слоев (10) было выбрано для увеличения эффекта зависимости поглощения от поля.

Структура с туннельно-связанными КТ InAs/GaAs имела 3 слоя КТ, что, с одной стороны, уже достаточно для достижения необходимого для лазерной генерации усиления, а с другой — еще не приводит к возникновению сверхрешетки из КТ, в которой нужно рассматривать не дискретные уровни энергии, а подзоны уровней. Из обеих структур были изготовлены полосковые одномодовые двухсекционные лазеры, которые припаивались к теплоотводу и накачивались постоянным током при комнатной температуре. Пороговая плотность тока для структур с несвязанными КТ составила 90 A/cm^2 , а для лазеров с туннельно-связанными КТ — 950 A/cm^2 при длине резонатора 3 мм, ширине мелкой мезы 7 мкм и коэффициенте отражения зеркал 0.3. Большая пороговая плотность тока для структур с туннельно-связанными КТ обусловлена генерацией через возбужденное состояние, поскольку при данной длине резонатора не хватает усиления на основном состоянии для достижения порога при 3 слоях КТ.

3. Эксперимент и обсуждение результатов

Измерения поглощения при волноводном распространении света, т. е. в плоскости, перпендикулярной направлению роста, проводились в двухсекционных лазерах (см. вставку на рис. 1) с одинаковой длиной секций. Такая конструкция позволяет получить абсолютное значение коэффициента поглощения направляемой волноводом лазерной моды [11]. Секции электрически изолированы разрывом в контакте, но излучение из одной секции проникает в другую практически без потерь по волноводу лазера. На одну секцию подается прямое смещение

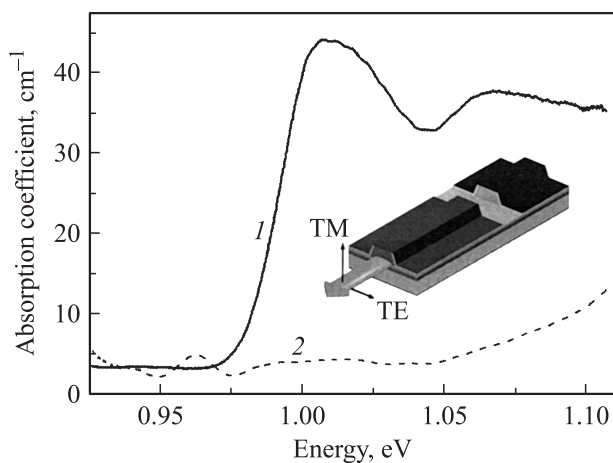


Рис. 1. Волноводное поглощение в структуре с 10 слоями несвязанных КТ для TE- (1) и TM-поляризации (2) при нулевом напряжении на поглощающей секции. На вставке — схематическое изображение двухсекционного лазера.

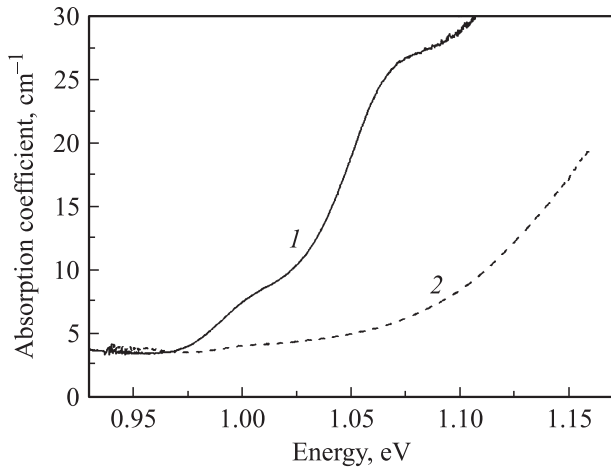


Рис. 2. Волноводное поглощение в структуре с 3 слоями туннельно-связанных КТ для ТЕ- (1) и ТМ-поляризации (2) при нулевом напряжении на поглощающей секции.

ниже порогового, при этом она является источником излучения в диапазоне 1100–1330 нм, на вторую подается обратное напряжение от 0 до 9 В, и таким образом изучается зависимость поглощения от внешнего электрического поля. Излучение пропускать через поляризатор, попадало на щель монохроматора и регистрировалось охлаждаемым фотодиодом. Оптическая юстировка проводилась в лазерном режиме, когда на обе секции подавалось прямое смещение выше порога и высокая мощность позволяла корректировать оптическую схему на основе визуальных данных. Все измерения проводились при токе, составлявшем 10% от порогового, для исключения влияния отражения от зеркал и при температуре теплоотвода 25°C. Для измерения абсолютной величины поглощения необходимо знать оптическую мощность, поступающую на обратно смещенную секцию. Измерить величину этой мощности невозможно прямыми методами, поскольку излучение находится внутри резонатора лазера. Однако ее значение можно получить, если поменять контакты секций местами. Тогда секция поглотителя станет излучающей, а излучающая станет поглощающей секцией. Излучение в этом случае выходит через торец лазера и его мощность можно измерить. Из-за того что обе секции одинаковой длины, мощность этого излучения будет равна оптической мощности, поступающей в обратно смещенную секцию. При этом оптически эксперимент не меняется, что обеспечивает точность и повторяемость экспериментальных данных.

Излучение лазеров пропускать через поляризатор, поскольку поглощение для ТЕ- и ТМ-различно. Это связано с тем, что материал КТ имеет постоянную решетки, большую чем материал матрицы, в которой она находится, и испытывает сжатие; поэтому подзоны тяжелых и легких дырок расщепляются. Поскольку процесс рекомбинации электрона с тяжелой дыркой, дающий основной вклад в ТЕ-моду, имеет меньшую

энергию, чем в случае рекомбинации с легкой дыркой, то поглощение для ТМ-моды при меньших энергиях фотона меньше, чем для ТЕ-моды (рис. 1 и 2). Измерения спектра поглощения, проведенные при комнатной температуре с помощью двух конструкций лазера, позволили установить, что край поглощения излучения лазера имеет резонансные пики, которые смещаются с увеличением величины напряжения обратного смещения в длинноволновую область спектра [11]. При этом для структуры с 10 слоями самоорганизующихся КТ InGaAs, разделенных прослойкой GaAs толщиной 30.0 нм, характерно наличие одного ярко выраженного резонансного пика (рис. 1), а для структуры с 3 слоями КТ InGaAs с прослойкой GaAs толщиной 3.0 нм — двух пиков. Появление этих пиков связано с совпадением длины волны излучения лазера с длиной волны поглощения, при которой происходит возбуждение экситонов в КТ, и заселением электронами и дырками состояний КТ.

Для исследования поведения поглощения под действием внешнего электрического поля использовался метод дифференциальной спектроскопии, который позволяет измерять производную коэффициента поглощения от приложенного напряжения и обладает высокой чувствительностью к изменению поглощения. В этом случае подстройка уровней энергий экситонов ВККТ в резонанс с энергией кванта света лазера, облучающего модулятор с непрерывной интенсивностью, осуществлялась управлением смещением Штарка уровней энергии электронов и дырок ВККТ с помощью приложенного модулированного электрического поля и длиной волны излучения лазера.

Из представленных на рис. 3 и 4 данных по дифференциальному поглощению отчетливо видна разница в количестве уровней, участвующих в поглощении, и скорости изменения их положения под влиянием внешнего поля. При соответствующей настройке длины волны излучения лазера и смещения Штарка происходило резонансное поглощение с образованием экситона. Максимум этого поглощения соответствовал нулевому значению дифференциального сигнала при его изменении от положительного к отрицательному значению.

Для структуры с толщиной прослойки $d = 30$ нм наблюдается только одна такая точка нулевого дифференциального сигнала, обозначенная A_1 , положение которой изменяется от величины приложенного напряжения смещения (рис. 3). Этот результат свидетельствует о том, что для структуры с толщиной прослойки $d = 30$ нм мы наблюдаем только один экситон основного состояния, и это ожидаемо для структуры с толстой прослойкой GaAs. Кроме того, подтверждается, что для этой структуры ВККТ не происходит связывания КТ. Однако для этой структуры ВККТ наблюдается значительное, до 13 мэВ, параболическое смещение Штарка (рис. 5), которое существенно превышает аналогичные значения для одиночных КТ.

Для структуры с толщиной прослойки $d = 3.0$ нм точек нулевого дифференциального поглощения, как

показывают наши исследования, оказывается три: А, В и С (рис. 4). Это вполне ожидаемый для структур с такой прослойкой результат. Столь малая толщина должна способствовать формированию туннельного связывания КТ. Неожиданным уже является сам факт наблюдения трех пиков поглощения, а не двух, которые соотносятся с состояниями экситонов связанных и антисвязанных орбиталей, возникающих при гибридизации электронных компонент волновых функций экситонов близко расположенных КТ, в то время как дырки остаются несвязанными из-за много большей эффективной массы. Эти противоречия могут быть разрешены, если вспомнить, что число связанных рядов КТ в наших структурах три, а не два. Следовательно, число возможных оптических

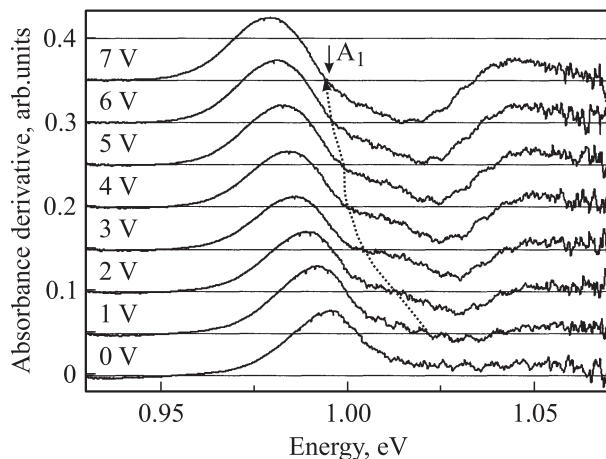


Рис. 3. Дифференциальное поглощение в структуре с 10 слоями несвязанных КТ при различных напряжениях обратного смещения. Пунктиром со стрелкой показано направление движения нулевого дифференциального сигнала при его изменении от положительного к отрицательному значению.

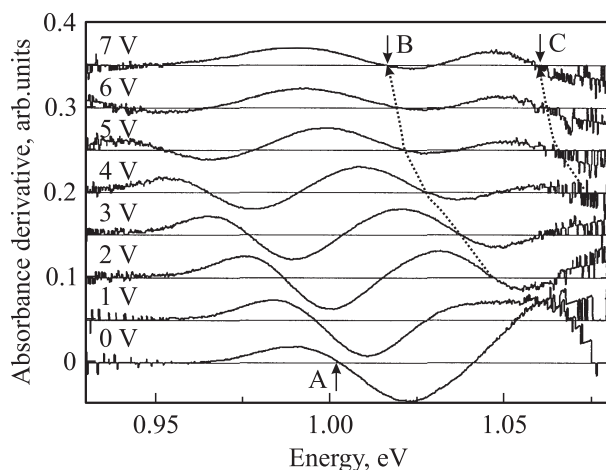


Рис. 4. Дифференциальное поглощение в структуре с 3 слоями туннельно-связанных КТ при различных напряжениях обратного смещения. Пунктиром со стрелкой показано направление движения нулевого дифференциального сигнала при его изменении от положительного к отрицательному значению.

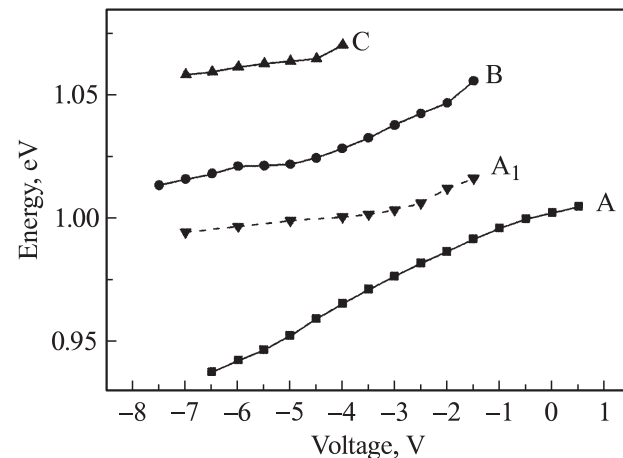


Рис. 5. Скорость движения нулевого дифференциального сигнала поглощения с ростом поля для структур с 10 слоями несвязанных КТ (A_1) и 3 слоями туннельно-связанных КТ (А, В и С).

переходов между КТ, приводящих к рождению экситонов при поглощении излучения лазера, также должно увеличиться. Эти переходы, а также возможные зависимости Штарка для так называемых ярких экситонов приведены в теоретической работе [8]. Другим заслуживающим внимания фактом является то, что спектры поглощения, отображающие факт генерации экситонов, наблюдаются отчетливо при комнатной температуре. Для этой структуры были также построены зависимости энергии в точках максимумов резонансного поглощения от величины приложенного напряжения (рис. 5), которые отражают влияние эффекта Штарка на исследуемые оптические переходы. Различия в характере зависимостей энергий экситонов от величины напряжения смещения определяются различным вкладом в формирование волновых функций экситонов внутриточечных и межточечных компонент и изменением влияния этих компонент с ростом величины электрического поля [8–10]. Для экситона А наблюдается сильное линейное смещение Штарка, которое достигало ~ 68 мэВ (рис. 5), в то время как для экситона В смещение Штарка было скорее параболическим и достигало ~ 42 мэВ. Авторы работы [12] для объяснения полученных результатов по смещению Штарка, используя простую модель диполя, пришли к заключению, что сильное линейное смещение Штарка возможно для непрямого экситона, в котором электроны и дырки расположены в разных квантовых точках, а параболическое характерно для прямого экситона, в котором электроны и дырки расположены в одной квантовой точке. При определенных значениях электрического поля не прямые и прямые экситоны настраиваются в резонанс и волновая функция электронов становится делокализованной, формируя связанные и антисвязанные состояния молекулы КТ с определенной энергией расщепления. В наших исследованиях мы наблюдаем аналогичные зависимости, которые дают

основание определить экситон А в области антипересечения как образованный связанными состояниями, а экситон В — образованный несвязанными состояниями с величиной расщепления между ионами ~ 62 мэВ.

4. Заключение

В ходе экспериментального сравнения спектров поглощения несвязанных и туннельно-связанных ВККТ, измеренных при комнатной температуре, выявлено, что связывание КТ приводит к формированию экситонов связанных и антисвязанных состояний в молекулах КТ с расщеплением между ними ~ 62 мэВ. Для этих состояний экситонов наблюдается сильное смещение Штарка под действием внешнего поля, достигающее 68 мэВ. Для несвязанных КТ эта величина не превышала 13 мэВ. Исследования проводились на лазерных структурах, что позволяет использовать полученные данные для создания интегральной конструкции, сочетающей лазер и модулятор на эффекте Штарка. При этом модулятор на основе структур с вертикально туннельно-связанными КТ будет обладать большей эффективностью, так как энергетический спектр изменяется сильнее под действием внешнего поля, чем в случае структур с массивом одиночных КТ. Для уменьшения порогового тока лазеров и уменьшения длины модулятора при сохранении величины поглощения предлагается использовать большее число слоев вертикально туннельно-связанных КТ, что планируется реализовать в будущих исследованиях.

Работа выполнена в рамках проектов РФФИ № 06-02-08088-офи и 08-02-01317-а.

Список литературы

- [1] N.N. Ledentsov, V.A. Shchukin, M. Grundmann, N. Kirstaedter, J. Böhrer, O. Schmidt, D. Bimberg, V.M. Ustinov, A.Yu. Egorov, A.E. Zhukov, P.S. Kop'ev, S.V. Zaitsev, N.Yu. Gordeev, Zh.I. Alferov, A.I. Borovkov, A.O. Kosogov, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Gösele, J. Heydenrech. *Phys. Rev. B*, **54**, 8743 (1996).
- [2] М.М. Соболев, Г.Э. Цырлин, Ю.Б. Самсоненко, Н.К. Поляков, А.А. Тонких, Ю.Г. Мусихин. *ФТП*, **39**, 131 (2005).
- [3] М.М. Соболев, А.Е. Жуков, А.П. Васильев, Е.С. Семенова, В.С. Михрин, Г.Э. Цырлин, Ю.Г. Мусихин. *ФТП*, **40** (3), 84 (2006).
- [4] V. Aimez, J. Beauvais, J. Beerens, S.L. Ng, B.S. Ooi. *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 3582 (2001).
- [5] A. Gubenko, D. Livshits, I. Krestnikov, S. Mikhrin, A. Kozhukhov, A. Kovsh, N. Ledentsov, A. Zhukov, E. Portnoi. *Electron. Lett.*, **41**, 1124 (2005).
- [6] В.Г. Талалаев, Б.В. Новиков, А.С. Соколов, И.В. Штром, J.W. Tomm, Н.Д. Захаров, P. Werner, Г.Э. Цырлин, А.А. Тонких. *ФТП*, **41**, 204 (2007).
- [7] B. Gerardot, D. Brunner, P. Dalgarno, P. Ohberg, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, N. Stoltz, P. Petroff, R. Warburton. *Nature*, **451**, 441 (2008).

- [8] B. Szafran, E. Barczyk, F.M. Peeters, S. Bednarek. *Phys. Rev. B*, **77**, 115441 (2008).
- [9] M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z.R. Wasilewski, O. Stern, A. Forchel. *Science*, **291**, 451 (2001).
- [10] G. Ortner, I. Yugova, G. Baldassarri Höger von Högersthal, A. Larionov, H. Kurtze, D.R. Yakovlev, M. Bayer, S. Fafard, Z. Wasilewski, P. Hawrylak, Y.B. Lyanda-Geller, T.L. Reinecke, A. Babinski, M. Potemski, V.B. Timofeev, A. Forchel. *Phys. Rev. B*, **71**, 125335 (2005).
- [11] Е.Л. Портной, И.М. Гаджиев, А.Е. Губенко, М.М. Соболев, А.Р. Ковш, И.О. Бакшаев. *Письма ЖТФ*, **33** (16), 28 (2007).
- [12] H.J. Krenner, M. Sabathil, E.C. Clark, A. Kress, D. Schuh, M. Bichler, G. Abstreiter, J.J. Finley. *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 057402 (2005).

Редактор Л.В. Шаронова

Absorption in coupled and uncoupled quantum dot laser structures in electric field at room temperature

M.M. Sobolev, I.M. Gadzhiyev, I.O. Bakshaev, V.S. Mikhrin, V.N. Nevedomskiy, M.S. Buyalo, Yu.M. Zadiranov, E.L. Portnoi

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

Abstract In this work, results of experimental comparison between absorption of coupled and uncoupled vertical correlated quantum dots, measured at room temperature, are presented. It has been shown, that in the structure with coupled quantum dots there was resonance absorption when laser wavelength and Stark shift were matched. At such condition the formation of bound and antibound molecular state exitons took place, with energy splitting of ~ 62 meV between them. For these states under external electric field action strong linear Stark shift, 68 meV, was observed. For uncoupled quantum dots, one resonant absorption peak with exciton formation was observed, for which the Stark shift did not exceed 13 meV.