

Влияние фемтосекундных импульсов сверхизлучения на спектры спонтанного излучения в гетероструктурах GaAs/AlGaAs

П.П.Васильев, Х.Кан, Т.Хирума

Проведено экспериментальное исследование спектров спонтанного излучения, сопровождающего генерацию фемтосекундных импульсов сверхизлучения в гетероструктурах GaAs/AlGaAs. Продемонстрировано в явном виде, что спектры спонтанного излучения электронно-дырочных пар, оставшихся в полупроводнике после формирования когерентного коллективного электронно-дырочного состояния, соответствуют сильному перегреву носителей заряда. Наблюдаемое явление может быть объяснено в рамках обнаруженного ранее эффекта динамического охлаждения и неравновесной конденсации коллективно спаренных носителей на дно зон в процессе сверхизлучения.

Ключевые слова: фемтосекундные импульсы, сверхизлучение, перегрев носителей, конденсация.

1. Введение

Различные процессы внутризонной динамики электронов и дырок в полупроводниковых структурах в значительной степени определяют предельные свойства сверхбыстродействующих полупроводниковых лазеров и оптических усилителей [1]. В течение многих лет исследованию этих процессов было посвящено множество экспериментальных и теоретических работ [2–5]. В настоящее время общепризнано, что динамическое спектральное выгорание и внутризонный перегрев носителей оказывают определяющее влияние на нелинейное усиление, энергию насыщения, максимальную частоту модуляции и другие важные характеристики полупроводниковых лазеров и усилителей различных диапазонов длин волн.

Перегрев электронов и дырок обусловлен главным образом процессом стимулированного излучения, при котором из системы уходят в среднем более холодные носители. Энергетическое положение таких носителей соответствует области, находящейся ближе ко дну зон, чем среднее местоположение остальных электронов и дырок. В этом процессе удаление более холодных носителей приводит к эффективному разогреву оставшихся электронов и дырок. Перегрев последних при лазерной генерации или усилении импульсов отчетливо наблюдался в экспериментах типа «pump-probe» с ультракороткими импульсами [2, 5] или при измерении спектральной динамики усиленного спонтанного излучения [6]. При этом было обнаружено, что описываемые процессы имеют ультракороткую длительность, и термализация перегретых носителей происходит на временах порядка 1 пс.

Кроме того, известны многочисленные эксперименты по генерации фемтосекундных импульсов в полупровод-

никовых структурах в режиме сверхизлучения [7–11]. В них был изучен режим кооперативной рекомбинации в сильнонеравновесной системе электронов и дырок высокой плотности в объемных p–i–n-GaAs/AlGaAs-структурах при комнатной температуре. Было показано, что все свойства кооперативного излучения могут быть адекватно объяснены в рамках коллективного спаривания электронов и дырок, их конденсации на дно зон и образования неравновесного когерентного БКШ-подобного состояния. Время жизни этого состояния в среднем составляет 200–400 фс. В явном виде было экспериментально продемонстрировано, как на начальном этапе развития импульса сверхизлучения электроны и дырки переходят с уровней из глубины зон на самое дно, т. е. на уровни энергии вблизи запрещенной зоны [11].

Существование низкоэнергетического уровня энергии вблизи запрещенной зоны для связанного коллективного электронно-дырочного состояния было доказано в [12]. Было также обнаружено, что в сильно вырожденной системе критическая температура конденсации определяется энергией Ферми, а не параметром порядка. При этом она может превышать 300 К при плотностях электронов и дырок в GaAs около $6 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Излучательная рекомбинация коллективного состояния сконденсированных электронно-дырочных пар происходит в виде мощного фемтосекундного импульса излучения с минимально возможной энергией фотона.

В этом случае представляется очевидным, что если быстро убрать из системы большое число самых холодных электронов и дырок, то оставшиеся носители останутся перегретыми в течение некоторого времени. Такой динамический перегрев электронов и дырок может быть обнаружен при анализе их спонтанной рекомбинации. Действительно, ферми-распределение электронов и дырок зависит от температуры, причем оно становится более широким с ростом температуры. Это уширение приводит к уширению линии спонтанного излучения при повышении температуры. В то же время максимум линии спонтанного усиления должен сдвигаться в длинноволновую сторону из-за зависимости ширины запрещенной зоны от температуры.

П.П.Васильев. Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: peter@lebedev.ru

Х.Кан, Т.Хирума. Central Research Laboratory, Hamamatsu Photonics K. K., 5000 Hirakuchi, Hamamatsu City, 434-8601 Japan

Данная работа посвящена исследованию спектров спонтанного излучения, сопровождающего фемтосекундные импульсы сверхизлучения. Изучены как усредненные во времени оптические спектры, так и спектры с разрешением по времени при использовании электронно-оптической камеры с линейной разверткой. Мы продемонстрируем, что динамический перегрев в системе электронов и дырок действительно имеет место.

2. Эксперимент

Использовались объемные гетероструктуры $p-i-n$ -GaAs/AlGaAs, очень похожие на описанные ранее [7–11]. Гетероструктуры были выращены методом МОС-гидридной эпитаксии на подложках n -GaAs. Активный слой состоял из чистого GaAs толщиной 0.1–0.2 мкм. Меза-структура шириной 5–6 мкм вытравливалась в верхнем сильнолегированном контактном слое p -GaAs. Некоторые структуры имели оптический волновод в виде раструба с шириной, увеличивавшейся вдоль оси структуры от 5 до 20–40 мкм. Это было сделано с целью увеличения интенсивности усиленного спонтанного излучения с торца структуры.

Полупроводниковые структуры с помощью фотолитографии разделялись на три части вдоль оси резонатора. Две из них, служившие оптическими усилителями и имевшие единый электрический контакт, были расположены на концах резонатора. Они накачивались импульсами тока с амплитудой, которая изменялась в диапазоне 500–800 мА. Частота следования импульсов тока менялась от 10 Гц до 40 МГц в зависимости от методики измерений. Центральная часть лазерной структуры подключалась к источнику постоянного напряжения. Запирающее напряжение до -10 В подавалось на эту секцию устройства.

В экспериментах измерялись как обычные (усредненные по времени), так и разрешенные по времени оптические спектры усиленного спонтанного и кооперативного излучения, испускаемого с торца структуры. Усредненные оптические спектры измерялись с помощью оптического спектроанализатора ANDO AQ6315A с разрешением 0.05 нм.

Разрешенные по времени спектры изучались следующим образом. Излучение лазерной структуры коллимировалось объективом на дифракционную решетку (600 лин./мм). Излучение, дифрагировавшее в 3-й порядок, фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 18 см на входную щель электронно-оптической камеры с линейной разверткой (стрик-камеры). Максимальное временное разрешение камеры в режиме кадровой развертки составляло около 1.5 пс. Излучение, развернутое по времени и по длине волны, можно было наблюдать на экране стрик-камеры. Изображение с экрана считывалось CCD-видеокамерой и обрабатывалось с помощью персонального компьютера. Линейность развертки по интенсивности и динамический диапазон проверялись специальными оптическими фильтрами. Скорость развертки камеры калибровалась по времени задержки фемтосекундных импульсов в кварцевой пластине известной толщины. Эта методика широко используется в течение многих лет для исследования спектральной динамики сверхбыстродействующих полупроводниковых лазеров [1].

Изменяя условия накачки в исследовавшихся лазер-

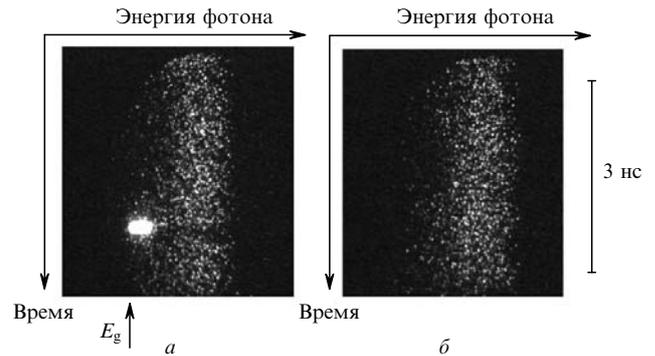


Рис.1. Типичные спектры с разрешением по времени импульсов кооперативного + спонтанного (*a*) и усиленного спонтанного излучения (*b*); E_g – энергия фотона, соответствующая запрещенной зоне. На рис.1,*a* отчетливо виден провал в спектре спонтанного излучения во время формирования импульса сверхизлучения.

ных структурах, можно было получать различные режимы генерации, в том числе импульсную лазерную генерацию, усиленное спонтанное излучение и импульсы сверхизлучения. На рис.1 показаны спектрохронограммы (спектры с разрешением по времени) импульсов кооперативного и усиленного спонтанного излучения одной из структур. Амплитуда импульсов тока накачки и запирающее напряжение в обоих случаях одинаковы, но длительность электрического импульса накачки примерно на 0.1 нс меньше для случая на рис.1,*b*. На обеих фототрафиях видно, что излучение начинается со спонтанного излучения с широким спектром. На рис.1,*a* примерно через 2 нс от начала возникает мощный импульс сверхизлучения, наблюдаемый на экране в виде яркого пятна. Его особенностями являются фемтосекундная длительность и минимальная энергия кванта [7–10]. Видимая длительность импульса на снимке значительно превышает истинную из-за выбранной интенсивности изображения и плохого временного разрешения при медленной (наносекундной) скорости развертки камеры. Отчетливо виден провал в спонтанном излучении во время генерации импульса сверхизлучения (подробнее см. [11]). При небольшом изменении длительности импульса накачки импульс сверхизлучения не формируется, и на выходе из структуры наблюдается длинный (наносекундный) импульс усиленного спонтанного излучения (рис.1,*b*).

В противоположность предыдущим нашим работам, когда исследовались характеристики собственно импульсов сверхизлучения, в настоящей работе сделан акцент на исследование спонтанного излучения вокруг импульсов сверхизлучения. Вследствие технических ограничений было невозможно измерять ширину оптического спектра с большой точностью (менее 1 нм) в процессе регистрации спектрохронограмм с помощью стрик-камеры. Точные спектральные измерения проводились с помощью оптического спектроанализатора.

На рис.2 показаны спектры спонтанного излучения до и после генерации импульса сверхизлучения, полученные с помощью стрик-камеры. Хорошо видно, что спектр спонтанного излучения после импульса сверхизлучения шире, чем спектр до этого импульса. Это говорит о том, что электроны и дырки, оставшиеся после рекомбинации коллективного состояния, находятся при более высокой температуре, чем они были в начале импульса накачки (см. разд.3). Тот же эффект наблюдался и в усредненных оптических спектрах спонтанного излучения.

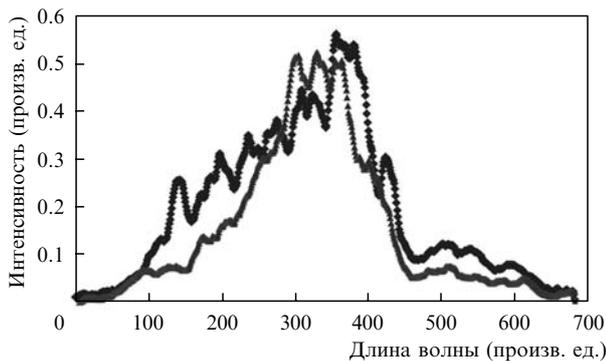


Рис.2. Спектры усиленного спонтанного излучения непосредственно до (▲) и сразу после (◆) генерации импульса сверхизлучения.

На рис.3 показаны типичные усредненные спектры спонтанного излучения при наличии импульса сверхизлучения и без него, которые соответствуют двум случаям, показанным на рис.1. Поскольку мощность и спектральная энергия импульсов кооперативного излучения гораздо больше, чем спонтанного излучения, их спектр насыщается на данной вертикальной шкале прибора.

Стоит обратить внимание на одну важную деталь. Оба спектра на рис.3 сняты при одинаковых амплитудах тока накачки и запирающем напряжении на поглотителе структуры. Единственное отличие состоит в том, что в случае генерации импульса сверхизлучения импульс тока накачки был немного длиннее. При этом длительности импульса тока и, следовательно, плотности инжектированных электронно-дырочных пар было достаточно для формирования когерентного коллективного состояния [13, 14]. При немного меньшей длительности импульса тока плотность носителей не достигала необходимой величины, и импульс сверхизлучения не формировался.

На рис.3 отчетливо видно, что спектр спонтанного излучения при генерации импульса сверхизлучения немного шире спектра в отсутствие этого импульса и слегка сдвинут в длинноволновую область. Эффект невелик по сравнению с разностью мгновенных спектров (как на рис.2), однако он регулярно наблюдался на многих лазерных структурах при различных уровнях накачки.

На рис.4 показана ширина спектра спонтанного излучения в обоих случаях для ряда экспериментов. В режиме генерации импульса сверхизлучения спектры спонтанного излучения всегда шире. Разность ширин спектров $\Delta\lambda$ показана на рис.5. Ее среднее значение составляет 0.52

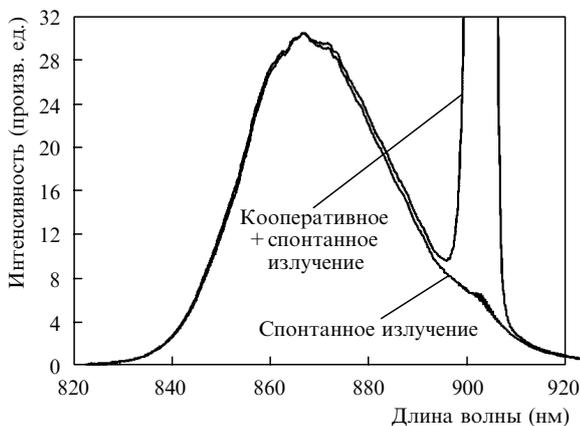


Рис.3. Усредненные по времени спектры, соответствующие импульсам на рис.1. Масштаб выбран таким образом, чтобы максимальные значения интенсивности спонтанного излучения совпадали.

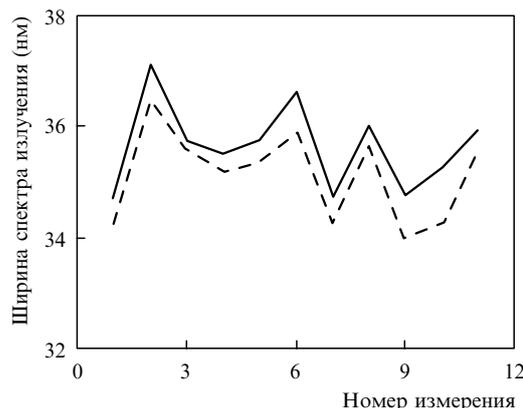


Рис.4. Ширина на половине амплитуды усредненных спектров усиленного спонтанного излучения непосредственно до (штриховая линия) и сразу после (сплошная линия) генерации импульса сверхизлучения.

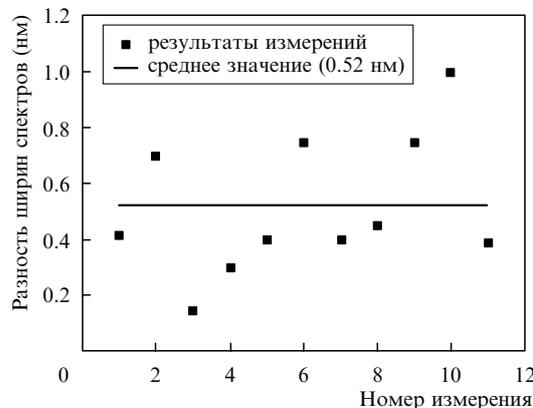


Рис.5. Разность ширин спектров, представленных на рис.4.

нм, причем максимальное измеренное значение доходит до 1 нм.

В заключение отметим, что экспериментально установлен факт уширения как усредненного, так и мгновенного спектра спонтанного излучения при генерации импульсов сверхизлучения. Покажем теперь, что этот эффект связан с перегревом электронов и дырок внутри зон.

3. Обсуждение

Как уже было отмечено, обе кривые на рис.3 получены при фактически одинаковых токах накачки и запирающем напряжении. Поэтому изменение ширины спектра спонтанного излучения не может быть обусловлено различиями в условиях накачки, а может быть вызвано только наличием фемтосекундного импульса сверхизлучения. Поскольку импульс сверхизлучения образуется в результате рекомбинации коллективного состояния спаренных электронно-дырочных пар с минимальной энергией, то в течение 200–400 фс огромное число самых холодных носителей покидает ансамбль. Это означает, что оставшиеся электроны и дырки будут иметь дополнительную энергию по сравнению с обычным состоянием до излучения импульса или со случаем, когда импульс сверхизлучения не формируется.

Исследуемая ситуация весьма похожа на перегрев носителей при лазерной генерации или усилении импульсов в полупроводниковых усилителях, описанный во Введении. Существенное различие состоит в том, что макси-

мум коэффициента оптического усиления в этих режимах сдвинут ото дна в глубину зон приблизительно на kT . Следовательно, в стимулированных переходах принимают участие электроны и дырки, находящиеся на энергетических уровнях в глубине зон. В нашем же случае сверхизлучения из системы уходят еще более холодные электронно-дырочные пары, находящиеся у самого дна запрещенной зоны. Поэтому перегрев носителей должен проявляться сильнее.

Теперь покажем, что изменение температуры носителей может быть обнаружено по изменению спектра усиленного спонтанного излучения, наблюдаемого с торца полупроводниковой структуры. Строго говоря, спектр этого излучения не является спектром истинного спонтанного излучения из-за спектральных искажений при усилении в оптически толстом слое полупроводника. Однако, как было показано ранее [15], спектральная зависимость интенсивности усиленного спонтанного излучения $I(\omega)$, выходящего с торца структуры длиной L и возникающего из равномерно распределенного по длине образца спонтанного излучения $I_{sp}(\omega)$, может быть представлена в виде

$$I(\omega) = \frac{I_{sp}(\omega) \{ \exp[(G(\omega) - \alpha_i)L] - 1 \}}{G(\omega) - \alpha_i}, \quad (1)$$

где $G(\omega)$ – коэффициент оптического усиления для моды, а α_i – коэффициент внутренних нерезонансных потерь. Модовый коэффициент усиления есть просто произведение материального коэффициента оптического усиления на коэффициент оптического ограничения. Интенсивность спонтанного излучения среди прочего зависит от разделения квазиуровней Ферми ΔE_F электронов и дырок при инжекции тока через структуру [16]:

$$I_{sp}(\omega, \Delta E_F) = \frac{n^2 (\hbar\omega)^2}{\pi^2 \hbar^3 c^2} \alpha(\omega) \exp\left(\frac{\Delta E_F - \hbar\omega}{kT}\right), \quad (2)$$

где n – показатель преломления; c – скорость света; $\alpha(\omega)$ – резонансное поглощение. Материальный коэффициент оптического усиления дается выражением [16]

$$g(\omega, \Delta E_F) = \frac{\pi^2 \hbar^3 c^2}{n^2} \frac{1}{(\hbar\omega)^2} \times \left\{ 1 - \exp\left(\frac{\Delta E_F - \hbar\omega}{kT}\right) \right\} I_{sp}(\omega, \Delta E_F). \quad (3)$$

Резонансное поглощение $\alpha(\omega)$ в (2) для чистого GaAs может быть выражено аналитической формулой, состоящей из суммы двух величин, представляющих переходы в непрерывной и экситонной частях спектра [17]. Вторая величина пренебрежимо мала в объемном GaAs при комнатной температуре. Вклад от межзонных переходов вблизи запрещенной зоны с энергией фотона E_g [17]

$$\alpha(E') = \frac{A \exp[r(E')]}{1 + \exp(-E'/E_{s1})} \quad (4)$$

при $r(E') = r_1 E' + r_2 E'^2 + r_3 E'^3$ и $E' = \hbar\omega - E_g$. Соответствующие параметры аппроксимации (r_1 , r_2 , r_3 и E_{s1}) могут быть найдены в [17]. Вычисляя коэффициенты поглощения, усиления и интенсивность истинного спонтанного излучения I_{sp} по формулам (2)–(4), можно оценить значе-

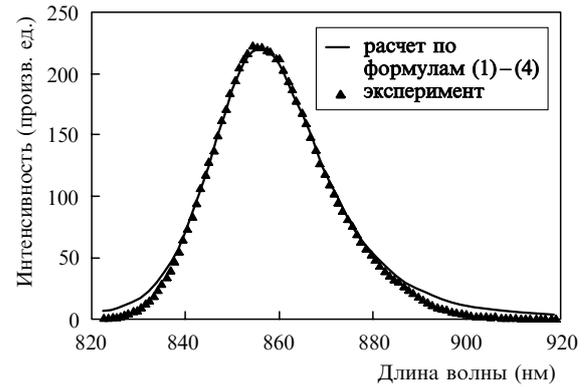


Рис.6. Аппроксимация спектра усиленного спонтанного излучения.

ние усиленного спонтанного излучения с торца структуры $I(\omega)$ и сравнить его с экспериментальными данными.

Данная процедура хорошо известна и многократно использовалась ранее (см., напр., [15, 16] и ссылки в них). С целью ее проверки для наших структур мы построили графики зависимости интенсивности усиленного спонтанного излучения от длины волны (рис.6). Видно, что экспериментальная кривая хорошо аппроксимируется расчетной во всем диапазоне за исключением крыльев кривой. Это может быть обусловлено следующим обстоятельством. Матричный дипольный момент межзонного перехода при вычислениях по формулам (1)–(4) считался постоянным. Однако, строго говоря, он зависит от энергии перехода, что должно учитываться при более точных вычислениях, но это выходит за рамки данной статьи.

Рис.7 иллюстрирует, как спектр усиленного спонтанного излучения с торца структуры зависит от температуры образца. Была рассчитана функция $I(\lambda)$ для двух значений температуры ($T = 297$ и 305 К). Можно сделать вывод, что небольшое изменение температуры приводит к уширению спектральной кривой и ее сдвигу в длинноволновую сторону. Это как раз и наблюдалось в наших экспериментах.

Приведенные численные расчеты спектрального уширения могут быть использованы для качественной оценки роста температуры при динамическом перегреве носителей. Строго говоря, измеренное значение спектрального уширения $\Delta\lambda$, показанное на рис.5, напрямую зависит от отношения интенсивностей спонтанного излучения до и после импульса сверхизлучения (см. рис.1,а). В экспериментах было получено, что при разных режимах накачки это отношение находится в промежутке от 3 : 1

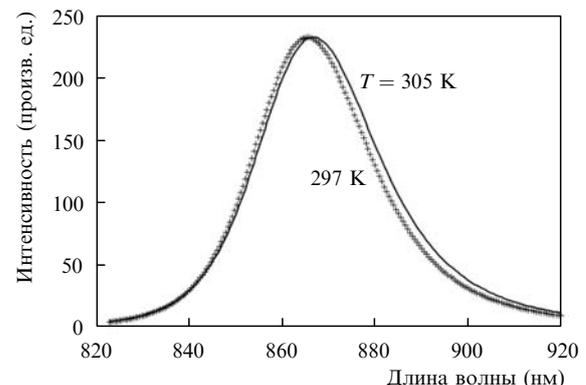


Рис.7. Рассчитанные спектры усиленного спонтанного излучения для двух значений температуры решетки.

до 4:1. Исходя из этого и пользуясь данными рис.5, можно заключить, что температура электронов и дырок после излучения кооперативного импульса на $5-10^{\circ}\text{C}$ выше, чем была до его излучения. Это значение температуры носителей, усредненное примерно за 1 нс. Тот факт, что изменение температуры можно было легко зарегистрировать в течение такого длительного промежутка времени, говорит о том, что перегрев носителей очень велик. Действительно, как хорошо известно [1–6], внутрizonная термализация носителей происходит в течение ультракороткого времени, его типичное значение составляет около 1 пс. Поэтому уже через 10–20 пс температура электронов и дырок должна сравняться с температурой решетки. Спонтанное излучение, детектируемое после термализации носителей, будет сильно уменьшать перегрев, который измеряется на длительных (наносекундных) временах. Среднее повышение температуры на $5-10^{\circ}\text{C}$, регистрируемое в течение 1 нс, указывает на то, что мгновенный перегрев носителей сразу после генерации импульса сверхизлучения может превышать несколько сотен градусов.

Итак, мы убеждены, что наблюдаемое повышение температуры является исключительно результатом генерации мощного ультракороткого кооперативного импульса. Как нам представляется [7–14], этот импульс генерируется за счет излучательной рекомбинации когерентного ансамбля коллективно спаренных электронно-дырочных пар, сконденсированных на дно зон. Эти пары находятся в основном состоянии и имеют минимально возможную энергию. Распад когерентного ансамбля в течение сотен фемтосекунд приводит к быстрому исчезновению огромного числа самых холодных носителей. В результате оставшиеся неспаренные электроны и дырки оказываются сильно перегретыми.

4. Заключение

В данной работе представлено экспериментальное исследование спектров усиленного спонтанного излучения, сопровождающего фемтосекундные импульсы сверхизлучения в гетероструктурах GaAs/AlGaAs. Мы экспери-

ментально продемонстрировали, что спектры спонтанного излучения после кооперативного импульса на 0.5–1 нм шире, чем спектры излучения до него. Этот факт соответствует нагреву оставшихся электронно-дырочных пар из-за ухода более холодных носителей [7–14].

С помощью теоретической аппроксимации наблюдаемых спектров было оценено среднее увеличение температуры. Оказалось, что средний перегрев носителей в течение примерно 1 нс после излучения импульса сверхизлучения составляет $5-10^{\circ}\text{C}$. Это значение соответствует динамическому увеличению температуры электронов в первые мгновения после излучения кооперативного импульса на более чем несколько сотен градусов.

Авторы благодарят И.В.Сметанина за полезные обсуждения. Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант № 06-02-16173а) и «Ведущие научные школы» (грант НШ-6055.2006.2).

1. Vasil'ev P. *Ultrafast Diode Lasers: Fundamentals and Applications* (Norwood: Artech House, 1995).
2. Kesler M.P., Ippen E.P. *Appl. Phys. Lett.*, **51**, 1765 (1987).
3. Gomatam B.N., DeFonzo A.P. *IEEE J. Quantum Electron.*, **26**, 1689 (1990).
4. Uskov A., Mork J., Mark J. *IEEE Photon. Tech. Lett.*, **4**, 443 (1992).
5. Kaiser J., Fischer I., Elsasser W., Gehrig E., Hess O. *IEEE J. Quantum Electron.*, **42**, 363 (2006).
6. Nido M., Suzuki A. *Appl. Phys. Lett.*, **64**, 681 (1994).
7. Васильев П.П., Кан Х., Ота Х., Хирума Т. *ЖЭТФ*, **120**, 1486 (2001).
8. Vasil'ev P.P., Kan H., Ohta H., Hiruma T. *Phys. Rev. B*, **64**, 195209 (2001).
9. Vasil'ev P.P., Kan H., Ohta H., Hiruma T. *ЖЭТФ*, **123**, 310 (2003).
10. Vasil'ev P.P. *Phys. Stat. Sol. B*, **241**, 1251 (2004).
11. Васильев П.П. *Письма в ЖЭТФ*, **82**, 129 (2005).
12. Vasil'ev P.P., Smetanin I.V. *Phys. Rev. B*, **74**, 125206 (2006).
13. Васильев П.П., Кан Х., Ота Х., Хирума Т. *Квантовая электроника*, **31**, 870 (2001).
14. Васильев П.П., Кан Х., Ота Х., Хирума Т. *Квантовая электроника*, **32**, 1105 (2002).
15. Lewis G.M., Smowton P.M., Thomson J.D., et al. *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 1 (2002).
16. Blood P., Kucharska A.I., Jacobs J.P., et al. *J. Appl. Phys.*, **70**, 1144 (1991).
17. Reinhart F.K. *J. Appl. Phys.*, **97**, 123534 (2005).