

PACS numbers: 73.20.Dx, 73.90.+f, 78.66.Fd

Нелинейные оптические свойства полупроводниковых квантовых проводов и точек

В.С. Днепровский

1. Введение

В последние годы внимание исследователей привлекают необычные свойства полупроводниковых наноструктур, в которых движение носителей ограничено в двух или трех направлениях (квазиодномерных — квантовых проводов и квазиультимерных — квантовых точек). Эффекты размерного квантования энергии в этих наноструктурах становятся более существенными, чем в квазидвумерных. Увеличиваются энергетические зазоры между электронными состояниями, и плотность состояний вместо ступенчатой для двумерной наноструктуры становится дискретной (отдельные пики) для идеальной квазиодномерной и нуль-мерной структуры. Квантовые ограничения в двух или трех направлениях должны приводить к более узкому спектру оптического усиления и к большим значениям дифференциального усиления [1], к увеличению энергии связи экситонов и лазерной генерации на них [2], к увеличению оптических нелинейностей [3]. Квазиультимерные и одномерные структуры перспективны для использования в качестве активной среды лазеров, имеющих низкий порог генерации и работающих при высоких температурах; для эффективного оптического переключения (быстрого и с малой энергией, затрачиваемой на переключение). Квазиодномерные структуры с высокой подвижностью носителей в квантовых проводах могут быть использованы при создании нового поколения транзисторов.

В настоящей работе приводятся результаты исследования нелинейных оптических свойств¹ полупроводниковых квантовых проводов и точек методами лазерной спектроскопии насыщения с пикосекундным временным разрешением. Для образцов, содержащих квантовые точки CdSe [6], квантовые провода GaAs [7], CdSe, CdS, и в пористом кремнии [8] зарегистрированы полосы просветления в спектрах нелинейного пропускания, полученных в различные моменты времени после возбуждения структур ультракоротким импульсом лазера. Определен физический процесс, приводящий к возникновению сильных оптических нелинейностей в полупроводниковых квантовых проводах и точках, — насыщение оптических переходов между уровнями размерного квантования при возбуждении неравновесных носителей большой плотности. Показано, что даже в случае, когда

¹ Здесь рассматриваются так называемые сильные (резонансные) динамические нелинейности, т.е. нелинейное изменение оптических свойств наноструктур при поглощении (!) излучения лазера [4]. В отличие от безынерционных "классических" нелинейностей в прозрачных средах, вызванных нелинейной поляризуемостью электронов в сильном световом поле, время релаксации сильной динамической нелинейности связано с рекомбинацией неравновесных электронов или других квазичастиц. Впервые сильная оптическая нелинейность, связанная с насыщением оптического перехода, была обнаружена С.И. Вавиловым в 1926 г. в эксперименте по измерению нелинейного поглощения уранового стекла при его резонансном возбуждении [5].

линейные спектры поглощения образцов, содержащих полупроводниковые наноструктуры с большой дисперсией размеров и разной формы, не имеют особенностей, указывающих на дискретный характер оптических переходов, нелинейные спектры поглощения дискретны. Последнее обстоятельство, по-видимому, связано с возможностью частичного подавления неоднородного уширения линий оптических переходов при резонансном возбуждении лазером ансамбля наноструктур определенного размера (с одинаковым спектром оптических переходов).

Зарегистрированы усиление и лазерная генерация на переходе между нижними уровнями размерного квантования в полупроводниковых квантовых точках (нанокристаллы CdSe в стеклянной матрице) [9]. Измерены величины и времена релаксации нелинейных восприимчивостей образцов, содержащих полупроводниковые квантовые провода и точки.

2. Нелинейное поглощение квантовых проводов GaAs и CdSe

Существует несколько способов получения полупроводниковых квантовых проводов с использованием методов молекулярно-лучевой и жидкостной эпитаксии в совокупности с травлением, предварительным скалыванием подложки под определенным углом и т.д. [10]. Однако эти методы не позволяют получить образцы с размерами, необходимыми для измерения спектров линейного и нелинейного поглощения. Недавно осуществлен новый метод получения полупроводниковых квантовых проводов в прозрачной диэлектрической матрице [11] — расплавленный полупроводниковый материал (GaAs, CdSe и др.) был инжектирован в полые цилиндрические каналы диаметром около 6 нм хризотил-асбеста. Образцы представляют собой регулярную плотно упакованную структуру из параллельных нанотрубок хризотил-асбеста диаметром 30 нм, заполненных сверхтонкими кристаллическими проводами GaAs, CdSe. Размеры образцов и концентрация наноструктур позволяют измерить спектры линейного и нелинейного поглощения. При измерении спектров нелинейного поглощения использовался метод зондирования [6]: образец возбуждался ультракоротким импульсом лазера и зондировался ультракоротким импульсом с широким спектром (импульсом "белого" света). Использование оптической линии задержки позволило зарегистрировать спектры пропускания образцов наноструктур в различные моменты времени после возбуждения.

На рис. 1 представлены спектры линейного поглощения и дифференциального пропускания $DT(\lambda)$ ($DT(\lambda) = [T(\lambda) - T_0(\lambda)]/T_0(\lambda)$, где $T(\lambda)$, $T_0(\lambda)$ — спектры пропускания возбужденного и невозбужденного образца). В спектре дифференциального пропускания отчетливо видны две полосы просветления с максимумами 1,8 и 2,2 эВ, совпадающие с полосами линейного поглощения. Индуцированное просветление исчезает через 50 пс.

В объемных полупроводниках различные нелинейные процессы сосуществуют и конкурируют друг с другом при различных условиях: динамический эффект насыщения Бурштейна–Мосса, перенормировка (сужение) ширины запрещенной зоны при большой концентрации неравновесных носителей, просветление и уширение

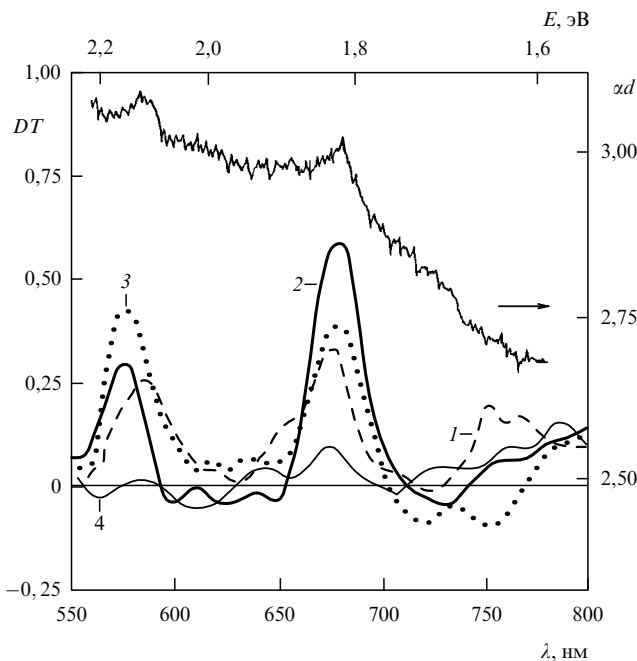


Рис. 1. Спектры линейного поглощения и дифференциального пропускания, полученные при разных задержках между возбуждающим и зондирующим импульсами, квантовых проводов GaAs в хризотил-асбестовых нанотрубках: 1 — (–15) пс (зондирующий импульс опережает импульс накачки); 2 — 0 пс; 3 — 20 пс; 4 — 50 пс.

линии экситонного поглощения при коллективном взаимодействии экситонов или при их экранировании свободными носителями и т.д. [13]. В полупроводниковых квантовых точках и проводах, по-видимому, проявляется единственный нелинейный процесс поглощения в спектральной области низшего квантового перехода — насыщение оптического перехода неравновесными носителями [3].

Появление полос просветления (см. рис. 1) можно объяснить насыщением дискретных оптических переходов, возникающих при размерном квантовании в квантовых проводах. В приближении эффективной массы, бесконечно глубокой цилиндрической потенциальной ямы и в отсутствие кулоновского взаимодействия между носителями энергии переходов между уровнями размерного квантования электронов зоны проводимости и дырок соответствующих валентных зон записываются в виде [13]:

$$E_i = E_g^i + \frac{X_{01}^2 \hbar^2}{2\mu_i \rho^2},$$

где E_g^i — ширина запрещенной зоны (индекс i определяет соответствующую валентную зону), $X_{01} \approx 2,4$, μ — приведенная эффективная масса, ρ — радиус квантового провода. Используя это выражение, можно показать, что для квантовых проводов диаметром 6 нм полоса 1,8 эВ соответствует переходу между первым уровнем размерного квантования для тяжелых дырок и нижним уровнем размерного квантования электронов, а полоса 2,2 эВ — переходу между уровнем размерного квантования дырок спин-орбитально отщепленной валентной зоны и нижним уровнем размерного квантования электронов. Величина зарегистрированного просветления и время

его релаксации позволили оценить значение нелинейной восприимчивости третьего порядка образца: $\text{Im} \chi^{(3)} = -4 \times 10^{-8}$ СГС. В образцах хризотил-асбеста, содержащих CdSe, обнаружена полоса просветления, соответствующая низшему переходу, определяемому размерным квантованием в квантовых проводах диаметром 6 нм.

3. Сильные оптические нелинейности в пористом кремнии

Пористый кремний привлекает особое внимание возможностью его применения в оптоэлектронике — он эффективно люминесцирует в видимом диапазоне спектра [14]. Один из предложенных механизмов эффективной люминесценции связан с перестройкой энергетического спектра пористого кремния за счет размерного квантования в образующихся квантовых проводах и точках. Однако зарегистрировать дискретный спектр оптических переходов в пористом кремнии не удалось, по-видимому, из-за большой дисперсии размеров и разной формы образующихся наноструктур. Метод нелинейной лазерной спектроскопии насыщения позволил измерить нелинейное поглощение в слоях пористого кремния, отщепленных от кремниевой подложки, зарегистрировать дискретные полосы просветления, связанные с насыщением оптических переходов между уровнями размерного квантования в квантовых проводах и точках, и определить его энергетический спектр [8].

На рис. 2 приведен спектр линейного поглощения и дифференциального пропускания одного из образцов пористого кремния. В то время как линейный спектр поглощения не содержит особенностей (он гладкий), в спектре дифференциального пропускания отчетливо видны дискретные полосы просветления. Их энергетическое положение позволило предположить [8], что образец содержит два типа наноструктур (квантовые провода и квантовые точки) и оценить их средние размеры: диаметр проводов около 3 нм и квантовых точек около 4 нм. Результаты независимых измерений с помощью электронного и сканирующего туннельного микроскопов подтвердили существование в образцах пористого кремния квантовых проводов и точек соответствующих размеров. Измеренное значение нелинейной восприимчивости $\text{Im} \chi^{(3)} \approx -0,2 \times 10^{-8}$ СГС.

4. Усиление и лазерная генерация в образцах, содержащих квантовые точки CdSe

При измерении спектров дифференциального пропускания нанокристаллов (квантовых точек) CdSe в стеклянной матрице удалось зарегистрировать усиление (коэффициент поглощения $\alpha < 0$) на частотах низших оптических переходов [9]. Для получения лазерной генерации был изготовлен Фабри–Перо-резонатор длиной около 1 мм с диэлектрическими зеркалами, прозрачными на длине волны накачки (532 нм), и с коэффициентами отражения 100 % и 95 % на длине волны 650 нм, соответствующей низшему оптическому переходу в квантовых точках CdSe со средним радиусом 5–6 нм. При увеличении энергии накачки (возбуждение осуществлялось ультракоротким импульсом второй гармоники Nd:YAG-лазера, работающего в режиме синхронизации мод) зарегистрирован переход от спонтанного к стимулированному излучению [9].

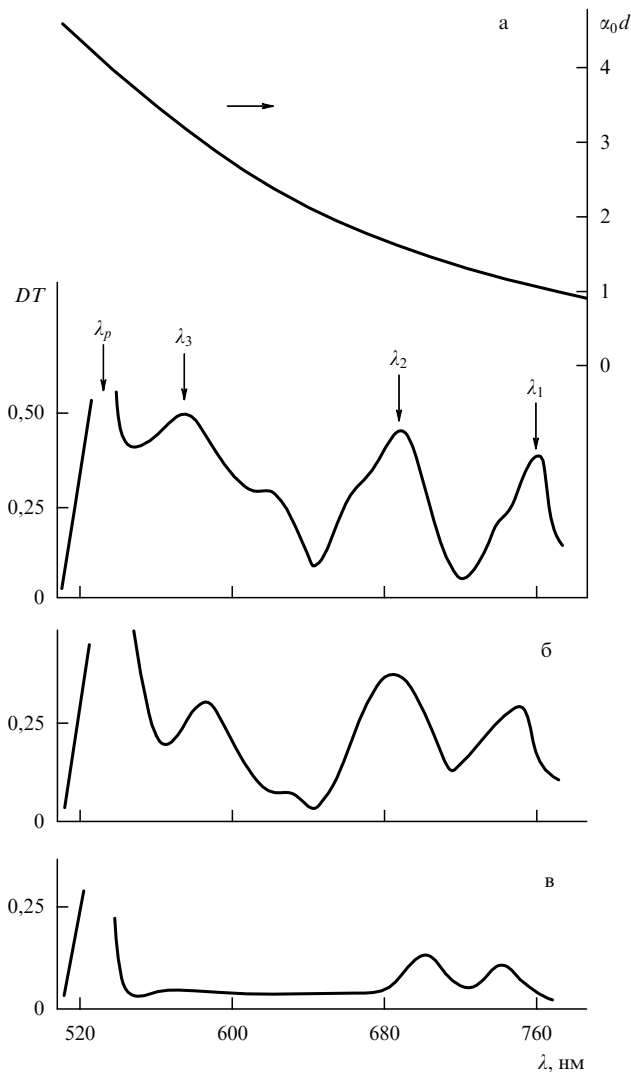


Рис. 2. Спектры линейного поглощения и дифференциального пропускания пористого кремния (300 К). Спектры дифференциального пропускания получены в момент возбуждения (а), через 20 пс после возбуждения (б) и через 27 пс (в).

5. Оптические и нелинейно-оптические свойства наноструктур CdS

Новый метод, предложенный В.А. Караванским, позволяет создавать полупроводниковые наноструктуры разного (!) размера при кристаллизации полупроводника методом послойной хемосорбции в полых каналах молекулярных фильтров (слюде, подвергнутой бомбардировке ионами на ускорителе). Диаметр канала молекулярного фильтра и, следовательно, размер наноструктуры можно изменять, варьируя тип и энергию иона. В приготовленных таким образом образцах, содержащих квантовые провода со средним диаметром около 7 нм, зарегистрированы особенности ("холмы") в спектрах линейного поглощения и полосы просветления в дифференциальных спектрах пропускания, соответствующие оптическим переходам между уровнями размерного квантования дырок А и С валентных зон и низшим уровнем размерного квантования электронов зоны проводимости. Время релаксации наведенного просветления около 100 пс.

6. Заключение

Сильная и быстрая оптическая нелинейность зарегистрирована в образцах, содержащих квантовые провода GaAs, CdSe, CdS, квантовые точки CdSe, и в пористом кремнии. Насыщение оптических переходов между уровнями размерного квантования квантовых проводов и точек — основной физический процесс, ответственный за ее возникновение.

Работа выполнена при поддержке Международного научного фонда (гранты M5D000, M5D300) и программы "Физика твердотельных наноструктур" (проект 1-034).

Список литературы

1. Arakawa Y, Yariv A *IEEE J. Quantum Electron.* **22** 1887 (1986)
2. Weigscheider W et al. *Phys. Rev. Lett.* **71** 4071 (1993)
3. Schmitt-Rink S, Miller D A B, Chemla D S *Phys. Rev. B* **35** 8113 (1987)
4. Butcher P N, Cotter D *The Elements of Nonlinear Optics* (Cambridge: University Press, 1990)
5. Вавилов С И *Микроструктура света* (М.: Изд-во АН СССР, 1950)
6. Вандышев Ю В, Днепровский В С, Климов В И *ЖЭТФ* **101** 270 (1992); *Письма в ЖЭТФ* **53** 301 (1991)
7. Гущина Н В и др. *Письма в ЖЭТФ* **61** 491 (1995); Dneprovskii V et al. *Phys. Lett. A* **204** 59 (1995)
8. Днепровский В С и др. *Письма в ЖЭТФ* **57** 394 (1993); Dneprovskii V et al. *Superlattices and Microstr.* **17** 41 (1995); Dneprovskii V et al. *Phys. Stat. Sol. (b)* **188** 297 (1995)
9. Dneprovskii V S et al. *Solid State Commun.* **81** 227 (1992); Вандышев Ю В и др. *Письма в ЖЭТФ* **54** 441 (1991)
10. Sundaram M S et al. *Science* **254** 1326 (1991)
11. Poborchii V V, Ivanova M S, Salamatina I A *Superlattices and Microstr.* **16** (1994) 133, (1994)
12. *Nonlinear Photonics* (Eds H M Gibbs, G Khitrova, N Peyghambarian) (Berlin: Springer-Verlag, 1990)
13. Zarem H, Vahala K, Yariv A *IEEE J. Quantum Electron.* **25** 705 (1989)
14. Canham L T *Appl. Phys. Lett.* **57** 1046 (1990)

PACS numbers: 73.20.Dx, 73.25.+i, 75.30.-m

Квазиодномерные проводники с волной зарядовой плотности

С.Н. Артеменко, А.Ф. Волков,
С.В. Зайцев-Зотов

1. Введение

При понижении температуры в квазиодномерных проводниках происходит пайерлсовский переход, в результате чего возникает сверхрешетка — волна зарядовой плотности (ВЗП) или волна спиновой плотности (ВСП) с периодом, равным половине фермиевской длины волны электронов исходного металла. Свойства материалов с ВЗП и ВСП очень похожи, их обзор можно найти в [1]. Ниже мы ограничимся рассмотрением свойств проводников с ВЗП и начнем с краткого изложения их основных особенностей.

Типичное значение температуры пайерлсовского перехода $T_p \approx 100-200$ К. Например, в TaS_3 она составляет 220 К, в голубой бронзе $K_{0,3}MoO_3$ — 180 К, а в $(NbSe_4)_{10/3}I$ — 280 К. Фактически ВЗП является электронным кристаллом — аналогом вигнеровского кристалла. При образовании ВЗП на поверхности Ферми образуется энергетическая щель 2Δ , в результате чего