

ЛАЗЕРНАЯ ГЕНЕРАЦИЯ В ПОЛУПРОВОДНИКОВОЙ КВАЗИНУЛЬМЕРНОЙ СТРУКТУРЕ НА ПЕРЕХОДЕ МЕЖДУ УРОВНЯМИ РАЗМЕРНОГО КВАНТОВАНИЯ

Ю.В.Вандышев, В.С.Днепровский, В.И.Климов, Д.К.Окороков

*Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова
119899, Москва*

Поступила в редакцию 23 июля 1991 г.

Обнаружена лазерная генерация на переходах между уровнями размерного квантования в квазинульмерной структуре (полупроводниковые микрокристаллы в стеклянной матрице).

Энергетический спектр квазинульмерной структуры (квантовой точки) определяется ее характерным размером. Получение лазерной генерации на переходах между уровнями размерного квантования квантовой точки представляет несомненный интерес, так как, меняя размер структуры, можно перестраивать длину волны лазера. В ¹ при возбуждении полупроводниковых микрокристаллов мощными ультракороткими импульсами (УКИ) света зарегистрирован эффект уменьшения поглощения на частотах, соответствующих переходам между уровнями размерного квантования квантовых точек. Величина эффекта свидетельствовала о возможности достижения режима усиления.

В настоящей работе изучена динамика изменения спектров поглощения и усиления (!) в микрокристаллах CdSe (80 К) различного радиуса (3-10 нм), возбужденных УКИ света. Образцы, в которых обнаружено усиление, использованы для получения лазерной генерации.

Для исследования изменения спектров поглощения (усиления) во времени использовалась стандартная двухимпульсная методика "возбуждение-зондирование". Накачка образцов осуществлялась УКИ второй гармоники YAG:Nd-лазера (длительность около 20 пс, энергия W до 0,5 мДж), зондирование - УКИ "белого" света, полученными при облучении кюветы с тяжелой водой частью основного излучения лазера. Спектры зондирующего излучения (до и после образца) регистрировались с помощью многоканального анализатора OVA-284.

На рис.1 приведены спектры поглощения $\alpha(\lambda)$ при различной задержке Δt между возбуждающим и зондирующим импульсами для образцов со средним радиусом микрокристаллов $\bar{R} = 3,5$ нм (образец N 1) и 6 нм (N 2) (размер микрокристаллов определялся по положению пиков просветления в дифференциальных спектрах пропускания ¹).

Действие УКИ накачки приводило к просветлению в области края поглощения образцов с максимумами на частотах, соответствующих разрешенным переходам между уровнями размерного квантования в валентной зоне и зоне проводимости ¹. Для образца N 1 максимальные значения $|\Delta\alpha|/\alpha_0$ (α_0 - коэффициент поглощения невозбужденного образца, $\Delta\alpha = \alpha - \alpha_0$) достигали 0,7 (при $\Delta t = 0$), однако режима усиления ($\alpha < 0$) не было даже при максимальных накачках. Времена релаксации наведенного изменения коэффициента поглощения не превышали 100 пс.

В образце N 2 действие УКИ накачки приводило не просто к просветлению, но и к появлению довольно широкой спектральной области, в которой

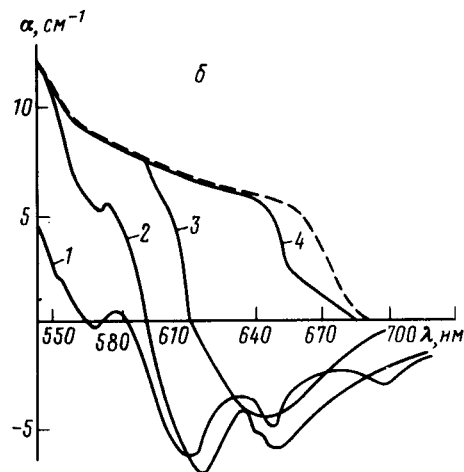
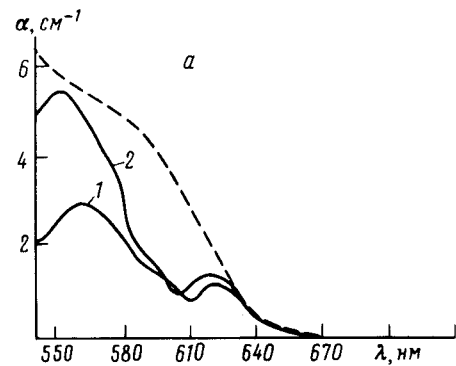


Рис. 1. Спектры поглощения (усиления) невозбужденных (штриховая линия) и возбужденных (сплошная линия) микрокристаллов CdSe (80 К) для различных задержек Δt между возбуждающим и зондирующим импульсами: *a* - образец N 1, $W = 0,25$ мДж, $\Delta t = 0$ (1), 33 пс (2); *b* - образец N 2, $W = 0,12$ мДж, $\Delta t = 0$ (1), 66 пс (2), 133 пс (3), 2,85 нс (4)

возникало усиление ($\alpha < 0$). Максимумы усиления соответствовали энергии переходов $1s-1s$ ($\lambda_1 = 649$ нм) и $1p-1p$ ($\lambda_2 = 616$ нм). Максимальные значения усиления (около $5 \div 7$ см^{-1}) были сравнимы с коэффициентом поглощения невозбужденного образца, что соответствовало достижению полной инверсии населенности на рассматриваемых уровнях. На длине волны λ_2 усиление релаксировало за время около 100 пс, в то время как отрицательные значения α в области λ_1 сохранялись относительно долго (не менее 1 нс).

Для получения лазерной генерации был изготовлен резонатор из образца N 2 толщиной около 1 мм (коэффициенты отражения зеркал на длине волны 650 нм - 100 и 95%). Продольная накачка производилась несфокусированным пучком второй гармоники через одно из зеркал (пропускание зеркала на длине волны накачки - 30%). При малых уровнях накачки в спектрах люминесценции видна широкая полоса с максимумом вблизи 682 нм (спектр 1 на рис.2), совпадающая по форме и положению с линией излучения образца N 2 без отражающих покрытий¹. С увеличением энергии УКИ накачки в направлении, перпендикулярном зеркалам резонатора, появлялось стимулированное излучение, спектр которого (спектр 2 на рис.2) смещен в коротковолновую сторону относительно максимума спонтанной полосы. При уровнях возбуждения около 4 мкДж зарегистрировано появляющееся скачком (см. вставку к рис.2) интенсивное направленное излучение генерации с длиной волны $\lambda_g = 644$ нм (ширина линии $\Delta\lambda = 7$ нм), соответствующей переходу между нижними уровнями размерного квантования. С ростом уровня возбуждения линия генерации уширялась и смещалась в длинноволновую сторону ($\lambda_g = 650$ нм, $\Delta\lambda = 14$ нм при $W = 0,1$ мДж).

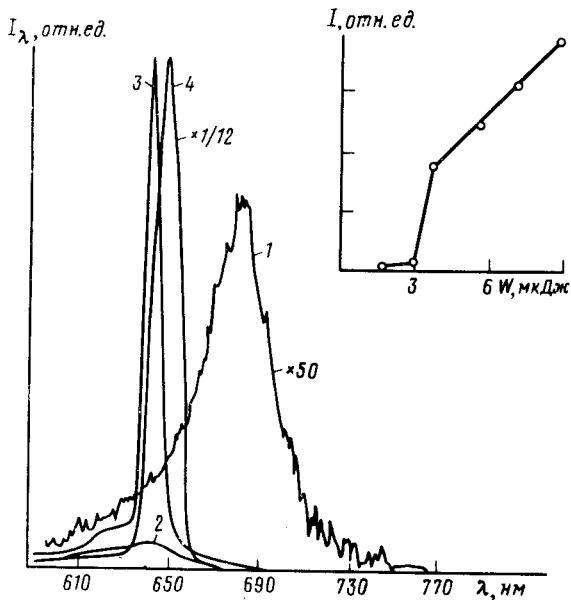


Рис. 2. Спектр спонтанной люминесценции микрокристаллов CdSe (образец N 2) при $W = 0,5$ мкДж (1) и спектры излучения, направленного перпендикулярно зеркалам резонатора при $W = 3$ мкДж (2), 5 мкДж (3), 100 мкДж (4). Вставка - зависимость интенсивности излучения в направлении перпендикулярно зеркалам резонатора от энергии УКИ накачки

В случае микрокристаллов малого радиуса, когда экситонные корреляции пренебрежимо малы и спектр состояний определяется независимым квантованием энергии электрона и дырки, матричный элемент дипольного момента разрешенного перехода для любой пары уровней валентной зоны и зоны проводимости не зависит от размеров микрокристалла и совпадает с дипольным моментом объемного полупроводника d_{cv}^2 . Диэлектрическая восприимчивость возбужденного образца с концентрацией микрокристаллов N_m ($N_m = \frac{\xi}{V_m}$, ξ - объемная концентрация полупроводника в образце, V_m - объем отдельного микрокристалла) в пренебрежении эффектами неоднородного уширения может быть определена суммированием вкладов от всех уровней размерного квантования и трех валентных подзон ($i = A, B, C$):

$$\chi(\hbar\omega) = N_m \sum_{i,l,n} |d_{cv}^i|^2 \frac{2(2l+1)(n_{i,n}^e + n_{i,l,n}^h - 1)}{(\hbar\omega - E_{i,l,n}) + i\hbar\Gamma_{i,l,n}}, \quad (1)$$

где $E_{i,l,n}$ - энергия перехода между уровнями с квантовыми числами l и n для i -ой валентной подзоны, $\Gamma_{i,l,n}$ - однородная ширина перехода, $n_{i,n}^e$ и $n_{i,l,n}^h$ - числа заполнения электронного и дырочного уровней, соответственно. Скобка $(n_{i,n}^e + n_{i,l,n}^h - 1)$ в (1) введена для учета эффекта заполнения состояний, вызванного действием возбуждающего излучения. Коэффициент поглощения (усиления) определяется мнимой частью восприимчивости: $\alpha(\hbar\omega) = \frac{4\pi\omega \text{Im}\chi(\hbar\omega)}{cn_0}$ (n_0 - показатель преломления). Усиление на частоте ω , соответствующей энергии первого перехода ($\hbar\omega = E_{A,0,1}$) достигает максимального значения при $n_{0,1}^e = n_{A,0,1}^h = 1$ и определяется соотношением:

$$g_{max} = \frac{16\pi^2 N_m |d_{cv}^A|^2}{\lambda n_0 (\hbar\Gamma_0)}, \quad (2)$$

где $\Gamma_0 = \Gamma_{A,0,1}$. Для параметров образца N 2 ($\xi = 0,1\%$, $\bar{R} = 6$ нм, $\hbar\Gamma_0 = 44$ мэВ - определено по ширине пика в дифференциальных спектрах пропускания ¹⁾ и $d_{cv}^A = 2,4 \cdot 10^{-17}$ СГС (по данным работы ⁴⁾ $g_{max} = 8$ см⁻¹, что близко к

экспериментально измеренной величине (рис.1б). Из (2) видно, что усиление g_{max} растет с увеличением концентрации микрокристаллов и, следовательно, с уменьшением их радиуса при постоянной объемной концентрации полупроводника ξ . Однако, измерения показывают, что достигнуть режима усиления в образцах с микрокристаллами меньшего радиуса сложнее из-за более высокого порога перехода к режиму усиления (пороговая энергия пропорциональна концентрации микрокристаллов) и доминирующей роли процессов безызлучательной рекомбинации в микрокристаллах малого радиуса. Указанное выше время релаксации (100 пс) для микрокристаллов с $R = 3,5$ нм много короче времени излучательной рекомбинации ⁵.

Отметим, что можно повысить эффективность генерации и получить лазерную генерацию при комнатной температуре увеличивая концентрацию микрокристаллов.

Авторы благодарны А.И.Екимову за предоставленные образцы микрокристаллов CdSe в стеклянной матрице.

-
1. Вандышев Ю.В., Днепровский В.С., Климов В.И. Письма в ЖЭТФ, 1991, 53, 301.
 2. Hanamura E. Phys. Rev. B, 1988, 37, 1273.
 3. Эфрос Ал.Л., Эфрос А.Л. ФТП, 1982, 16, 1209.
 4. Voight J., Spiegelberg F., Senoner M. Phys. St. Sol. (b), 1979, 91, 189.
 5. Dneprovskii V.S., Efros Al.L., Ekimov A.I. et al. Sol. St. Comm., 1990, 74, 555.