

Сверхбыстрая автомодуляция спектра поглощения света, возникающая при сверхкоротких оптической накачке и суперлюминесценции в GaAs

© Н.Н. Агеева, И.Л. Бронева[†], А.Н. Кривонос, С.В. Стеганцов

Институт радиотехники и электроники Российской академии наук,
125009 Москва, Россия

(Получена 5 декабря 2005 г. Принята к печати 19 декабря 2005 г.)

Во время пикосекундной фотогенерации носителей и интенсивной суперлюминесценции в GaAs обнаружена автомодуляция спектра поглощения света. При изменении пикосекундной задержки зондирующего импульса τ относительно импульса накачки в области $\tau < 0$ локальные усиления поглощения (выступы) перемещались по спектру (модуляция напоминала бегущую волну). При изменении τ вблизи нуля выступы на спектре возникали и исчезали приблизительно при фиксированных энергиях фотонов (модуляция сходна со стоячей волной). При некоторых энергиях фотона зависимость скорости изменения коэффициента поглощения $da/d\tau$ от τ оказалась модулированной пульсациями, сходно с ранее выявленной модуляцией пикосекундного стимулированного излучения из GaAs. Предположительно, автомодуляция спектра отображает (тем самым обнаруживает) модуляцию распределения электронов в зоне проводимости. Эта модуляция вызвана тем, что эволюция обеднения заселенности электронов на дне зоны проводимости во время суперлюминесценции отображается (благодаря электрон-фононному взаимодействию) на заселенности вышележащих энергетических уровней зоны.

PACS: 71.35Ee, 78.30.Fs, 78.47.+p, 78.55.Gr

1. Введение

В данной работе представлены результаты исследования изменений в спектрах поглощения света в GaAs, появляющихся во время сверхкороткой фотогенерации плотной горячей электронно-дырочной плазмы (ЭДП). Приставка „сверх-“ в этой работе означает — не медленнее, чем в пикосекундном диапазоне времен. Поглощение исследовалось в спектральной области выше края фундаментального поглощения. В прямозонном полупроводнике изменение поглощения в этой спектральной области преимущественно отображает изменение заселенности энергетических уровней неравновесными носителями заряда [1]. Экспериментально наблюдавшиеся нами спектры не объяснялись в предположении, что они отображают межзонное поглощение зондирующего света в GaAs с фермиевским распределением ЭДП. И это при том, что длительности импульсов накачки и зондирования были ~ 10 пс, т.е. наши измерения проводились в пикосекундном диапазоне времен, а оценочное время залечивания отклонений от фермиевского распределения носителей $\tau_F \approx 10^{-13}$ с [2].

Среди оптических исследований, в которых обнаруживалось нефермиевское распределение неравновесных носителей заряда в полупроводниках, можно назвать изучение ЛО фоннных осцилляций в распределении горячих электронов во время релаксации последних [3]. Осцилляции появляются в процессе излучения горячими электронами продольных оптических (ЛО) фононов. То, что эти осцилляции исчезают при увеличении концентрации электронов до $\sim 10^{17}$ см⁻³, объясняли

как тем, что частота электрон-электронных столкновений становилась больше частоты электрон-фононных столкновений, так и тем, что экранировалось электрон-фононное взаимодействие. Изучалось также образование локальной особенности энергетического распределения ЭДП в области тех энергетических уровней, на которые носители накачивались интенсивным фемтосекундным импульсом света (см., например, [4]). В этом случае темп накачки (генерации) носителей, по-видимому, превышал частоту внутризонного ухода носителей с этих уровней.

Нам известно только небольшое число оптических исследований, где, как и в настоящей работе, невозможность интерпретировать энергетическое распределение ЭДП как распределение Ферми-Дирака обнаруживались в следующих условиях:

- 1) в диапазоне времен, не менее чем на порядок превышавших τ_F ;
- 2) в области энергетических уровней, достаточно отдаленной от уровней, на которые накачивались носители;
- 3) при плотности фотогенерированной ЭДП $n = p > 10^{18}$ см⁻³.

Так, в опытах [5] после накачки GaAs мощным субпикосекундным импульсом, генерировавшим ЭДП с плотностью $\sim 10^{18}$ см⁻³, спектр просветления (увеличения прозрачности) не мог быть объяснен в предположении, что распределение ЭДП фермиевское. Исследование комбинационного рассеяния света в GaAs [6], где использовались синхронные возбуждающий и пробный световые импульсы длительностью 20 пс, показало, что распределение фотогенерированной ЭДП плотностью от 10^{18} до 10^{19} см⁻³ было нефермиевским. В работе [7]

[†] E-mail: bil@mail.cplire.ru
Fax: (495) 203 84 14

комбинационное рассеяние света с участием продольных оптических фононов наблюдалось только в первые несколько пикосекунд генерации горячей плотной ЭДП. В качестве возможного объяснения этого предполагалось, что в этом интервале времени еще не успевало установиться фермиевское распределение ЭДП, из-за чего не экранировалось электрон-ЛО-фононное взаимодействие.

В наших опытах [8,9] в интервале энергии фотонов $E_g < \hbar\omega < \hbar\omega_{ex}$ были обнаружены ЛО-фононные осцилляции в спектре обратимого пикосекундного просветления GaAs, возникавшие при плотности фотогенерированной ЭДП $n = p > 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Здесь E_g — ширина запрещенной зоны, $\hbar\omega_{ex}$ — энергия фотона пикосекундного импульса накачки. Для объяснения этих осцилляций был предложен новый физический механизм образования отклонений от фермиевского распределения электронов в зоне проводимости [8]. Этот механизм, согласующийся с последующими экспериментами [10,11] и расчетами [12] и использованный для интерпретации экспериментальных результатов данной работы, состоял в следующем.

При межзонном поглощении пикосекундного импульса света в GaAs генерировалась ЭДП. Плотность ЭДП была настолько большой, что создавалась инверсия заселенностей носителей, и во время импульса возникла интенсивная суперлюминесценция [13–15]. Под суперлюминесценцией подразумевается стимулированное (усиленное спонтанное) излучение в активной среде без резонатора. Внутризонное поглощение возбуждающего света и суперлюминесцентного излучения и то, что носители рождались на уровнях с энергией, большей, чем энергии тех уровней, с которых они рекомбинировали, приводило к разогреву ЭДП [16–19]. Последний сопровождался разогревом ЛО-фононов [12], чему должен содействовать эффект узкого фононного горла [20,21]. Опыты [8–11] привели к предположению, что интенсивность суперлюминесценции и разогрев ЛО-фононов оказывались достаточными, чтобы устанавливалось соотношение времен:

$$\tau_F \sim \tau_{e-LO} \sim \nu^{-1}. \quad (1)$$

Соотношение $\tau_F \sim \tau_{e-LO}$ следовало также и из расчетов [12]. Здесь τ_{e-LO} — время энергетической релаксации электронов только за счет электрон-ЛО-фононных столкновений, ν — частота стимулированных межзонных рекомбинационных переходов электронов. Соотношение (1) делало возможным следующее.

Мощная суперлюминесценция создавала первое обеднение заселенностей носителей в зоне проводимости — обеднение на энергетических уровнях, с которых электроны вынужденно рекомбинируют. При образовании этого обеднения частота прихода электронов, путем эмиссии ЛО-фононов, на уровни с обедненной заселенностью начинала превышать частоту ухода с этих уровней электронов из-за поглощения ЛО-фононов, т.е. переставал выполняться принцип детального равновесия. Это приводило к появлению в зоне проводимости второй области обеднения, расположенной выше первой на

энергию ЛО-фонона $\hbar\omega_{LO}$. Аналогично возникала выше в зоне третья область обеднения и т.д. [8]. Распределение носителей становилось нефермиевским.

Учитываемое в дальнейшем влияние описанного механизма обеднения на поглощение света состояло в следующем. Каждое обеднение заселенностей приводило к локальному отклонению реально измеряемого спектра $\alpha_{\text{expt}}(\hbar\omega)$ от спектра $\alpha_F(\hbar\omega)$, рассчитанного для фермиевского распределения ЭДП, где α — коэффициент поглощения. Локальные отклонения располагались в спектре поглощения (как и в спектре просветления) с периодом

$$\Delta = \hbar\omega_{LO} \left(1 + \frac{m_e}{m_h} \right).$$

Здесь m_e и m_h — массы соответственно электрона и тяжелой дырки. Отклонение в спектральной области усиления света, вызванное первым обеднением заселенностей, было названо „дырой“ (реальное усиление меньше расчетного). Отклонение в области поглощения света, вызванное вторым обеднением, названо „выступом“

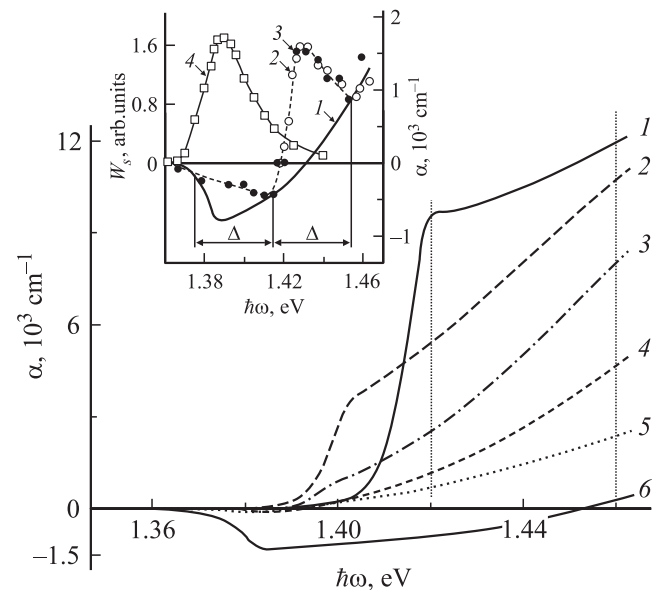


Рис. 1. Экспериментальный спектр поглощения света в невозбужденном GaAs α_{expt} (кривая 1). Расчетные (фермиевские) спектры поглощения света в GaAs α_F при различных концентрациях n и температурах T ЭДП: 2 — $n = 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $T = 25 \text{ мэВ}$; 3 — $n = 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $T = 25 \text{ мэВ}$; 4 — $n = 2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $T = 35 \text{ мэВ}$; 5 — $n = 4.7 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $T = 63 \text{ мэВ}$; 6 — $n = 4.7 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $T = 47 \text{ мэВ}$. На вставке (взято из работы [11]): 1 — расчетный спектр поглощения света при фермиевском распределении ЭДП в GaAs: $n = 4.7 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $T = 52 \text{ мэВ}$; 2, 3 — экспериментальные спектры поглощения света в фотовозбужденном GaAs при длительности возбуждающего и зондирующего импульсов $t_p = 14 \text{ пс}$, времени задержки зондирующего импульса относительно возбуждающего $\tau = -3 \text{ пс}$, энергии фотона возбуждающего импульса $\hbar\omega_{ex} = 1.558 \text{ эВ}$; 4 — спектр интегральной по времени энергии W_s пикосекундной суперлюминесценции, измеренный с „широким“ шагом (превышавшим квазипериод модуляции спектра излучения, обнаруженный в [23]).

(реальное поглощение больше расчетного). Спектральные формы дыры и выступа, определяемые разностью $\alpha_{\text{expt}}(\hbar\omega) - \alpha_F(\hbar\omega)$, оказались подобны между собой [11]. Это подобие дало метод исследования эволюции дыры в спектре по наблюдению эволюции выступа. Метод потенциально обладает высоким временным разрешением, поскольку инерционность отображения первого обеднения во втором обеднении $\sim 10^{-13}$ с [12].

В данной работе обнаружилась сверхбыстрая автомодуляция спектра поглощения внутри спектрального интервала шириной Δ , происходящая во время пикосекундного возбуждающего импульса (накачки). Заметим, что в принятой в спектральном анализе классификации исследовавшийся спектр относился к мгновенным спектрам [22]. Под модуляцией спектра подразумевалось возникновение на нем локальных особенностей. Это можно характеризовать как умножение „гладкого“ (без локальных особенностей) спектра на множитель $1 + f(\omega, \tau)$, где $f(\omega, \tau)$ — модулирующая функция [22]. По виду обнаруженной автомодуляции спектра поглощения можно полагать, что модулирующая функция была сходна на разных этапах накачки с бегущей и со стоячей волнами. Именно это подразумевается далее, когда для краткости говорится, что автомодуляция сходна со стоячей или бегущей волной. Был обнаружен еще и признак согласования автомодуляции спектра поглощения с обнаруженной в [23] модуляцией генерируемого в GaAs пикосекундного стимулированного излучения.

Предположительно, автомодуляция спектра поглощения отображала модуляцию распределения электронов в зоне проводимости. А модуляция распределения в свою очередь отображала (с помощью вышеописанного механизма) сверхбыструю спектрально-временную эволюцию обеднения (модуляцию) инверсной заселенности носителей на дне зоны проводимости во время суперлюминесценции. В этом контексте термин „спектрально-“ относится к энергетическому спектру электронов. Предположение о сверхбыстрой модуляции инверсной заселенности согласовывалось и с предположением, экспериментально обоснованным в работе [23], о пульсационном характере генерации интенсивного стимулированного излучения в GaAs. Если эту первоначальную интерпретацию не изменят будущие исследования, то изучение обнаруженной автомодуляции может представлять интерес для кинетики нефермиевской электронно-дырочной плазмы в полупроводнике и кинетики сверхбыстрого взаимодействия полупроводника с собственным интенсивным стимулированным излучением.

2. Эксперимент

Спектры поглощения исследовались по методике „excite-probe“, широко используемой в оптической спектроскопии сверхбыстрых процессов. Опыты проводились при комнатной температуре на двух образцах. Образец 1 представлял собой гетероструктуру $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}$ –

GaAs – $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$, а образец 2 — $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ – GaAs – $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$. Толщины эпитаксиальных слоев каждой гетероструктуры составляют 1.2–1.6–1.2 мкм соответственно. Гетероструктуры были выращены молекулярно-лучевой эпитаксией на подложке GaAs (100). После эпитаксии предназначавшаяся для исследований область гетероструктуры освобождалась от подложки с помощью химико-динамического травления. Концентрации донорных и акцепторных примесей в гетероструктуре не превышали 10^{15} см⁻³. Слои $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ предназначены для стабилизации поверхностной рекомбинации и механической прочности и прозрачны для света, используемого в эксперименте. На поверхности образцов, параллельных эпитаксиальным слоям, было нанесено двухслойное антиотражающее покрытие из SiO_2 и Si_3N_4 , благодаря чему отражение света, направленного по нормали к поверхности образца, не превышало 2% в реальных условиях наших экспериментов.

При межзонном поглощении мощного возбуждающего (ex) импульса света с энергией фотона $\hbar\omega_{\text{ex}} = 1.558$ эВ, падавшего на образец под углом 10° относительно нормали к его поверхности, в слое GaAs происходило (согласно нашим ранее выполненным работам) следующее. Генерировалась горячая ЭДП, плотность которой ($n = p > 10^{18}$ см⁻³) была достаточной для сверхбыстрого возникновения в GaAs суперлюминесценции [13–15,24]. Интенсивность суперлюминесценции, по оценкам, была более 10^{18} Вт/см². При совместном действии накачки и суперлюминесцентной рекомбинации плотность ЭДП и соответственно прозрачность образца обратимо изменялись в пикосекундном диапазоне времен. Их изменение происходило приблизительно синхронно с обратимым изменением разогрева ЭДП (природа разогрева пояснялась в разд. 1) [14,16–20,25].

Экспериментально исследовались спектры поглощения зондирующего (pr) импульса. Зондирующий луч проходил через центр фотовозбужденной области слоя GaAs перпендикулярно плоскости слоя. Длительность t_p возбуждающего и зондирующего импульсов, определявшаяся по их кросс-корреляционной зависимости [1], принимала в эксперименте два значения $t_p = 9.6$ и 11.4 пс. Интегральная энергия возбуждающего импульса была одинаковой при обоих значениях t_p и на 4 порядка больше интегральной энергии зондирующего импульса. Изменение интенсивности света по сечению возбуждающего луча (то же и для зондирующего) было приблизительно гауссовым. Отчасти поэтому неоднородное распределение в пространстве могли иметь концентрация и температура ЭДП, а также суперлюминесцентное излучение [26–28]. Диаметр возбуждающего луча (на полуширине распределения интенсивности света) составлял 0.6 мм, зондирующего — 0.3 мм. Спектры измерялись:

а) при различных фиксированных значениях времени задержки τ зондирующего импульса относительно возбуждающего импульса, преимущественно в области $\tau < |t_p|$;

б) в диапазоне энергий фотона 1.42–1.46 эВ, ширина которого равнялась Δ .

Ограничение ширины исследуемого спектрального диапазона отчасти связано с большой трудоемкостью и длительностью измерений спектра. Например, для изменения длины волны зондирующего импульса требовалась перестройка параметрического генератора света, генерировавшего импульс [29]. Перестройка осуществлялась при строгом дополнительном контроле за сохранением фиксированного значения τ и т.д.

Спектры поглощения света определялись так же, как и в экспериментах [9,11]. Измеряли спектр оптической плотности невозбужденного образца

$$\alpha_0 D = \ln \left[\frac{T^0(\hbar\omega_{pr}^*)}{T^0(\hbar\omega_{pr})} \right],$$

где α_0 — коэффициент поглощения света невозбужденного образца; D — толщина слоя GaAs; T — прозрачность образца; $\hbar\omega_{pr}$ — энергия фотона зондирующего импульса; $\hbar\omega_{pr}^*$ — энергия фотона, при которой еще не возникает межзонного поглощения света. Верхний индекс 0 означает (здесь и далее) отсутствие возбуждения (накачки).

Затем измеряли спектральную зависимость просветления $\ln(T^1/T^0) = f(\hbar\omega_{pr})$, представлявшую уменьшение оптической плотности GaAs при его накачке. Верхний индекс 1 означает наличие возбуждения. Для этого проводились измерения интегральной энергии прошедшего через образец зондирующего импульса, поочередно при возбуждающем импульсе и без него. Учитывались только те измерения, для которых интегральные энергии опорных импульсов в каналах зондирования и возбуждения отклонялись от заданных значений не более чем на $\pm 5\%$. Здесь опорные импульсы — это фиксированные части возбуждающего и зондирующего импульсов, отщепляемые от последних до их падения на образец. По результатам ~ 40 измерений рассчитывалось просветление

$$\ln \left(\frac{T^1}{T^0} \right) = \ln \left(\frac{E_{pr}^1/E_r^1}{E_{pr}^0/E_r^0} \right),$$

где E_{pr} — средняя энергия зондирующего импульса, E_r — средняя энергия опорного импульса в канале зондирования. Коэффициент поглощения света α в фотовозбужденном слое GaAs определяли, пользуясь выражением

$$\alpha = \alpha_0 - \frac{\ln(T^1/T^0)}{D}.$$

При каждом фиксированном наборе параметров возбуждения и зондирования подобные измерения $\ln(T^1/T^0)$ и α повторялись ~ 5 раз. Разброс получаемых значений α и $\ln(T^1/T^0)$ представлен на рисунках (следующих далее) вертикальными отрезками, ограниченными с обоих концов, а среднее значение α и $\ln(T^1/T^0)$ — символами (кружками и др.). Там, где разброс измеренных значений не показан, его величина на графике была не больше используемого символа. Измерения производились преимущественно на образце 1, и только графики на рис. 6 (но не на вставке к этому рисунку) получены при измерениях на образце 2.

На рис. 1 представлены измеренный спектр поглощения невозбужденного образца и расчетные (фермиевские) спектры, которые должны были бы отображать только межзонное поглощение света в GaAs с фермиевским распределением ЭДП. Спектры рассчитаны для избранных значений плотности и температуры ЭДП при учете перенормировки ширины запрещенной зоны E_g из-за кулоновского взаимодействия носителей. Расчет аналогичен описанному в [11], где легкие дырки не учитывались. Для той области значений коэффициента поглощения α и того диапазона энергий фотонов $\hbar\omega$ (ограниченного на рис. 1 вертикальными пунктирными линиями), к которым относились измерения в данной

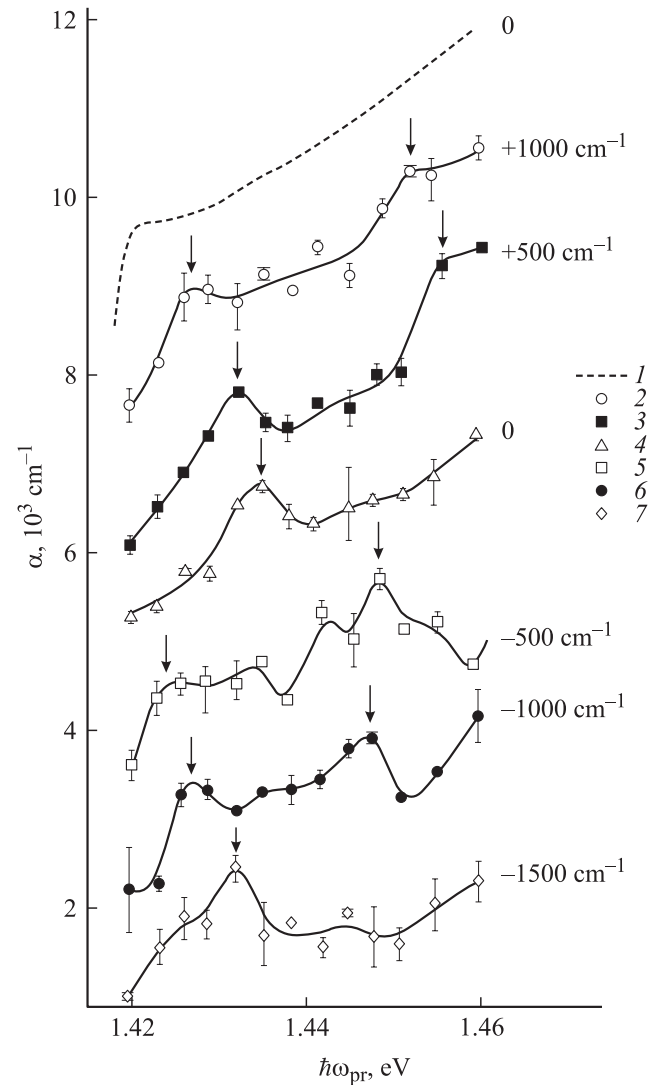


Рис. 2. Спектр поглощения света в невозбужденном GaAs (кривая 1). Спектры поглощения света в фотовозбужденном GaAs, измеренные при длительности импульса $t_p = 9.6$ пс и времени задержки: 2 — $\tau = -7$ пс, 3 — $\tau = -6$ пс, 4 — $\tau = -5$ пс, 5 — $\tau = -4$ пс, 6 — $\tau = -3$ пс, 7 — $\tau = -2$ пс. Спектры сдвинуты по оси ординат относительно своего истинного положения на величину, указанную справа от спектров. Стрелки поясняются в тексте. Сплошные линии проведены для наглядности.

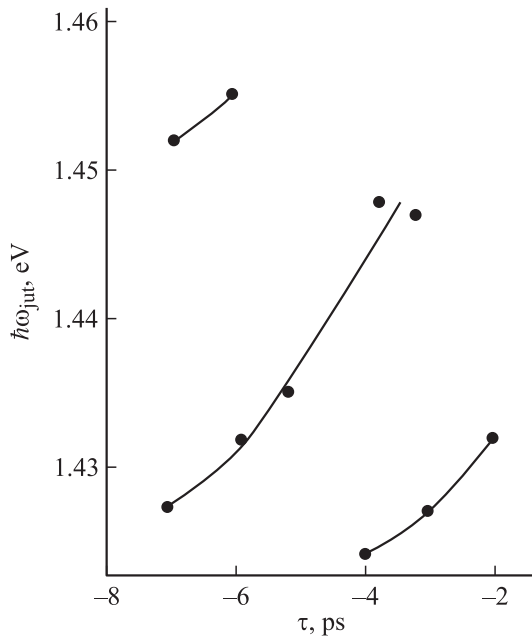


Рис. 3. Зависимости энергии фотона $\hbar\omega_{\text{jut}}$, при которой в спектре поглощения располагается вершина выступа, от времени задержки τ . $t_p = 9.6$ пс.

работе, на фермиевских спектрах видно гладкое монотонное возрастание α при увеличении $\hbar\omega$. Так что, локальных особенностей, обнаруженных в нижеописываемых опытах, на фермиевских спектрах поглощения быть, по-видимому, не должно.

На рис. 2 представлены спектры поглощения, измеренные при длительности импульсов $t_p = 9.6$ пс и при различных отрицательных значениях τ . Задержка τ , фиксированная для каждого спектра, менялась с шагом 1 пс. Стрелки указывают на явно выраженные существенные локальные увеличения поглощения, обнаруживаемые в спектрах либо в виде локального максимума, либо излома. Ступенеобразный излом на спектре возникал, когда локальное увеличение поглощения было, видимо, не настолько сильным, чтобы на фоне „гладкого“ возрастания α с ростом $\hbar\omega$ образовывать локальный максимум. В оптической спектроскопии образующую подобным образом особенность называют обычно плечом. Такому истолкованию изломов соответствовало то, что при увеличении τ изломы исчезали, и на том участке спектра, где они располагались, наблюдалось уже относительно гладкое возрастание α при увеличении $\hbar\omega$. Через некоторый интервал τ новый излом появлялся на спектре, а затем снова исчезал. Существенное локальное увеличение поглощения, которое проявлялось на исследуемом спектре в виде локального максимума или излома, далее для краткости называется „выступом“.

Обнаруживается, что при изменении τ положение выступов на спектре изменяется (см. рис. 2). Будем характеризовать положение выступа на спектре энергией фотона $\hbar\omega_{\text{jut}}$, при которой располагается вершина выступа, т.е. точка, в которой локальное увеличение

поглощения достигает максимума. Это либо вершина локального максимума на спектре, либо та точка излома на спектре, где находится максимум отрицательной кривизны (определяемый по экстремуму второй производной $d^2\alpha/d(\hbar\omega)^2$). Перемещение вершин выступов по спектрам представлено графиками $\hbar\omega_{\text{jut}} = f(\tau)$ на рис. 3. Оно сходно с перемещением максимумов бегущей волны. Средняя скорость перемещения выступов по спектру $v \approx 6$ мэВ/пс, а спектральный интервал между двумя выступами $\Omega \approx 20-25$ мэВ при фиксированном τ . Таким образом, в области $\tau < 0$, когда вершина зондирующего импульса „сдвигалась“ вдоль фронта импульса накачки, обнаружилась сверхбыстрая автотомодуляция спектра поглощения света выступами, напоминающая бегущую волну.

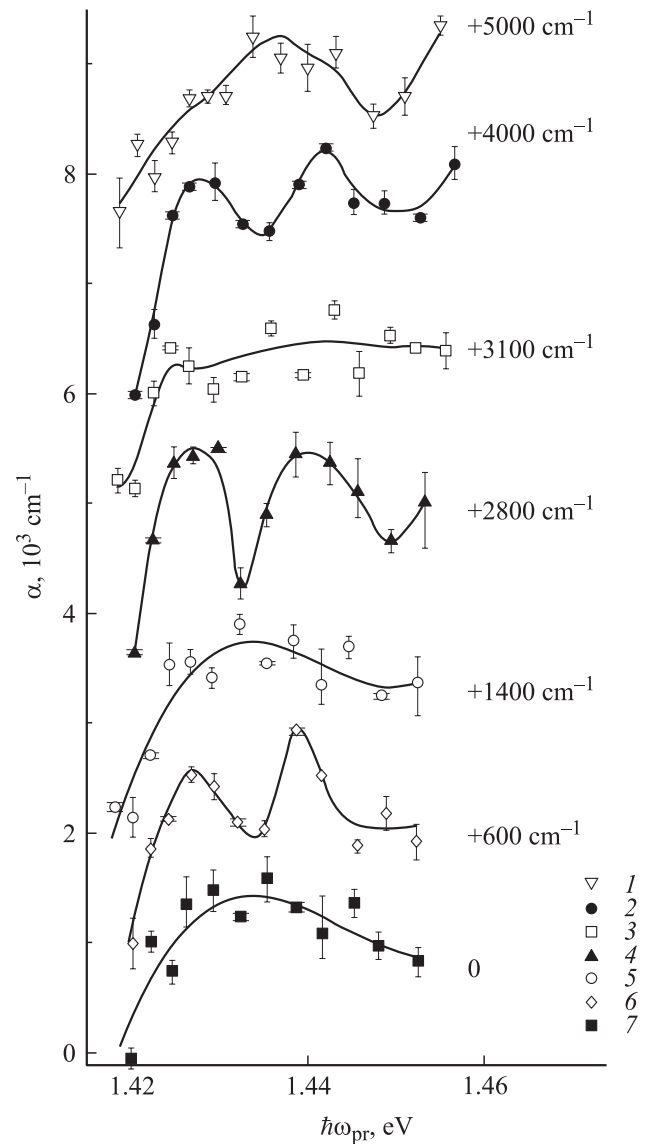


Рис. 4. Спектры поглощения света, измеренные при $t_p = 11.4$ пс и времени задержки: 1 — $\tau = -3$ пс, 2 — $\tau = -2$ пс, 3 — $\tau = -1$ пс, 4 — $\tau = 0$ пс, 5 — $\tau = 1$ пс, 6 — $\tau = 2$ пс, 7 — $\tau = 4$ пс. Спектры сдвинуты по оси ординат на величину, указанную справа от спектров.

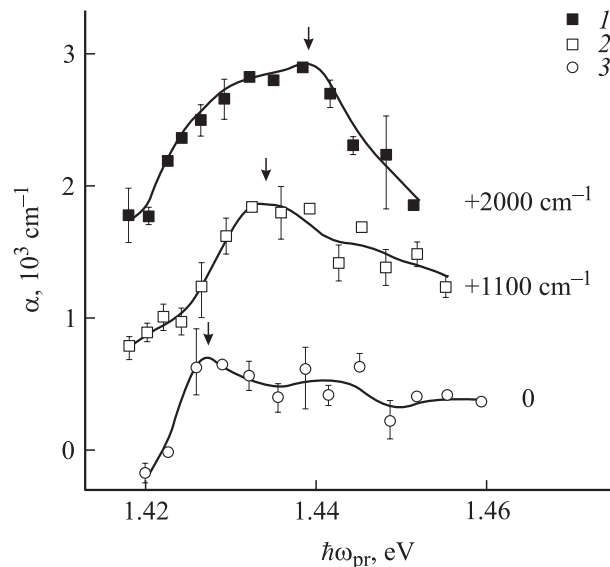


Рис. 5. Спектры поглощения света, измеренные при $t_p = 11.4$ пс и времени задержки: 1 — $\tau = 6$ пс, 2 — $\tau = 10$ пс, 3 — $\tau = 12$ пс. Спектры сдвинуты по оси ординат на величину, указанную справа от спектров.

Нижеописываемые измерения выполнялись при длительности импульсов $t_p = 11.4$ пс. Спектры, измеренные при изменении времени задержки в интервале $-3 \text{ пс} \leq \tau \leq 4 \text{ пс}$, — когда вершина зондирующего импульса „сдвигалась“ вдоль вершины импульса накачки, — представлены на рис. 4. При $\tau = -2; 0; 2$ пс на спектре, приблизительно при фиксированных энергиях фотонов, возникали два существенных выступа. Провал между этими выступами достигал наибольшей глубины при энергии фотона $\hbar\omega_{\text{пр}} \approx 1.432$ эВ. Спектральный интервал между вершинами двух выступов составлял $\Omega \approx 12\text{--}14$ мЭВ. При $\tau = -3; -1; 1; 4$ пс на спектрах наблюдался только один выступ. При этом при $\tau = -3; 1; 4$ пс вершина выступа располагалась приблизительно при энергии фотона $\hbar\omega_{\text{пр}} \approx 1.432$ эВ, при которой при $\tau = -2; 0; 2$ пс наблюдался вышеописанный провал. Почему при $\tau = -1$ пс вершина выступа наблюдалась при меньшей энергии фотона $\hbar\omega_{\text{пр}} \approx 1.424$ эВ не выяснялось, но это могло быть вызвано, в частности, небольшой неточностью в установлении задержки τ . Таким образом, при изменении τ в рассмотренной области значений вблизи нуля выступы на спектре возникали и исчезали приблизительно при фиксированных энергиях фотонов (за исключением спектра при $\tau = -1$ пс). Такая автомодуляция спектра несколько сходна со стоячей волной.

Заметим, что выступ, измеренный в работе [11] при $\tau = -3$ пс и $t_p = 14$ пс (вставка на рис. 1), совпадает по форме с выступом, измеренным в данной работе при $t_p = 11.4$ пс и $\tau = 1$ пс, а по форме и по значениям α с выступом при $\tau = 4$ пс (рис. 4). Комментировать это наблюдение до проведения подробного исследования зависимости измеряемой модуляции спектров от параметров накачки и зондирования преждевременно, хотя

можно предположить влияние отличия в длительности импульсов t_p .

В области положительных задержек $4 \leq \tau \leq 12$ пс, когда вершина зондирующего импульса „сдвигалась“ вдоль спада импульса накачки, исследование спектров проводилось при изменении τ с шагом 2 пс. На рис. 5 показано обнаруженное изменение формы спектра со временем τ . Модуляцию спектра можно характеризовать как образование одного „широкого“ выступа, своим основанием заполнявшего почти весь исследуемый спектральный диапазон. При изменении τ вершина выступа, отмеченная стрелкой, перемещалась по спектру и соответственно изменялась форма выступа.

Обнаруженная сверхбыстрая автомодуляция спектра приводила к тому, что для отдельных энергий фотона зависимость коэффициента поглощения α от времени τ становилась „ломаной“, а в некоторых интервалах τ и немонотонной. Например, наглядно связанной с модуляцией спектра (с возникновением и исчезновением провала на спектре, рис. 4) является зависимость $\alpha = f(\tau)$ при энергии фотона $\hbar\omega_{\text{пр}} \approx 1.432$ эВ, вставка на рис. 6. Точки для графика этой зависимости были взяты из спектров, представленных на рис. 4, 5. При ее дифференцировании обнаруживается, что зависимость скорости изменения поглощения $d\alpha/d\tau$ от времени задержки, т. е. функция $d\alpha/d\tau = f(\tau)$, модулирована пульсациями (вставка на рис. 6, кривая 4).

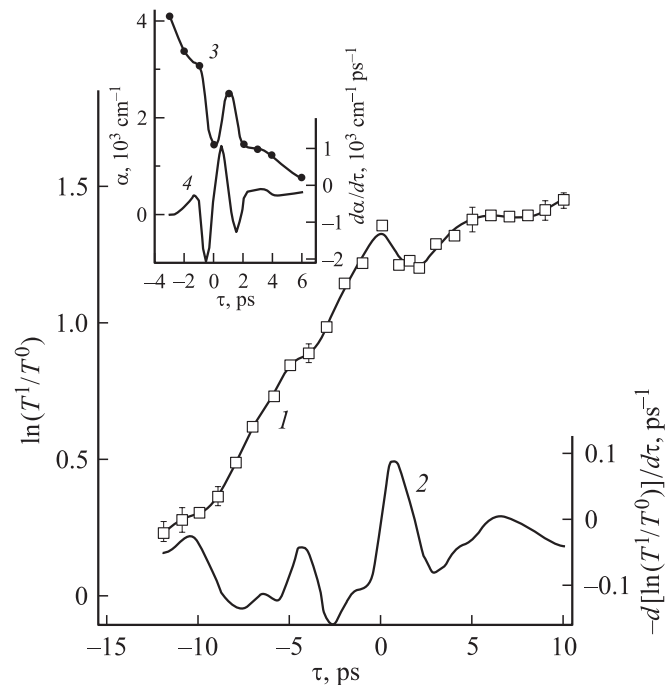


Рис. 6. Кривая 1 — зависимость просветления $\ln(T^1/T^0)$ от времени задержки τ при $\hbar\omega_{\text{пр}} = 1.432$ эВ и $t_p = 11.4$ пс. Кривая 2 — зависимость скорости изменения просветления от τ . Образец 2. На вставке: 3 — зависимость коэффициента поглощения α от времени задержки τ при $\hbar\omega_{\text{пр}} = 1.432$ эВ и $t_p = 11.4$ пс, 4 — зависимость скорости изменения поглощения от τ . Образец 1.

Подобные пульсации обнаружались и при анализе зависимости просветления от времени задержки $\ln(T^1/T^0) = f(\tau)$, измеренной на образце 2 при фиксированной энергии фотона $\hbar\omega_{\text{пр}} = 1.432$ эВ и $t_p = 11.4$ пс (рис. 6, кривая 1). Эта зависимость одновременно отображает изменение оптической плотности образца

$$(\alpha_0 - \alpha)D = \ln\left(\frac{T^1}{T^0}\right).$$

На рис. 6 видно, что зависимость скорости изменения просветления (значит, и скорости изменения α) от времени задержки

$$\frac{-d[\ln(T^1/T^0)]}{d\tau} = f(\tau)$$

модулирована пульсациями (кривая 2).

3. Обсуждение результатов

При анализе экспериментальных результатов следует учитывать следующее. Для зондирования использовался импульс, длительность которого превышала интервал τ , на котором происходило заметное изменение модуляции спектра поглощения, и интервал между пульсациями скорости изменения просветления (и поглощения). К тому же распределение интенсивности зондирующего и возбуждающего света в пространстве было приблизительно гауссовым и, значит, неоднородным. Это могло приводить, в частности, к „сглаженности“ экспериментально обнаруживаемых изменений спектров поглощения со временем τ по сравнению с истинным изменением поглощения в реальном времени. Однако и при нынешнем разрешении удалось обнаружить сверхбыструю автомодуляцию спектра поглощения, ее спектральный и временной масштабы, и следующий ее характер.

В области $\tau < 0$, когда вершина зондирующего импульса „сдвигалась“ вдоль фронта импульса накачки, локальные усиления поглощения (выступы) перемещались по спектру. Это напоминало модуляцию спектра бегущей волной. В области значений τ вблизи нуля, когда вершина зондирующего импульса „сдвигалась“ вдоль вершины импульса накачки, выступы на спектре возникали и исчезали приблизительно при фиксированных энергиях фотонов. Это несколько сходно с модуляцией спектра стоячей волной. В области $\tau > 0$, когда вершина зондирующего импульса „сдвигалась“ вдоль спада импульса накачки, вершина единственного выступа перемещалась по спектру, но существенно „медленнее“, чем при $\tau < 0$. Спектральная ширина выступа (по основанию) была больше, чем у выступов при $\tau < 0$. Возможно, в будущем целесообразно провести более детальные измерения изменения спектров в области $\tau > 0$, изменяя τ с меньшим шагом.

При автомодуляции спектра поглощения зависимости скорости изменения просветления и поглощения от времени задержки τ становились модулированными

пульсациями (см. рис. 6). Это наблюдалось пока при некоторых избранных $\hbar\omega_{\text{пр}}$. Примечательно, что интервалы между этими пульсациями оказываются близкими по величине с интервалами между теми пикосекундными пульсациями, которыми, согласно [23], может быть автомодулировано суперлюминесцентное излучение. Это совпадение могло быть признаком согласования модуляции излучения и модуляции спектра поглощения. Относительно излучения уточним, что в работе [23] была обнаружена модуляция характеристик пикосекундного стимулированного излучения из торца образца, подобного образцу 2 и оптически накачиваемого так же, как в данной работе. На основании этого в [23] было сделано предположение, что генерация такого излучения имеет пульсационный характер, и излучение автомодулируется пикосекундными пульсациями.

Физический процесс образования обнаруженной сверхбыстрой автомодуляции спектра поглощения, как и механизм предположительно (т.е. косвенными методами) обнаруженной в [23] автомодуляции излучения, пока окончательно не установлен. Но предварительно можно предположить следующее.

Изменение спектра поглощения во время сверхкороткой оптической накачки GaAs может быть обусловлено изменением заселенности энергетических уровней носителями заряда. В этом случае наблюдавшаяся модуляция спектра поглощения отображает и соответственно обнаруживает сверхбыстро меняющуюся модуляцию энергетического распределения неравновесных носителей. При этом в зоне проводимости GaAs, внутри неоднородно фотонакачиваемой области слоя, возникает бегущая или стоячая волна модуляции заселенности носителей (волна отклонения заселенности от распределения Ферми–Дирака).

Интенсивность импульса накачки в описанных опытах является достаточной (согласно нашим предыдущим работам), чтобы во время накачки возникало стимулированное излучение (суперлюминесценция) и устанавливалось соотношение времен (1). Если в каком-то узком интервале частот излучение, усиливаясь в пространстве активной области GaAs, достигает достаточно высокой интенсивности, то произойдет обеднение инверсной заселенности носителей в соответствующем энергетическом интервале на дне зоны проводимости. Уточним, — инверсной по отношению к заселенности тех уровней валентной зоны, с которыми уровни зоны проводимости связаны прямыми оптическими переходами. После создания обеднения заселенности интенсивность излучения, очевидно, падает. Тогда обеднение сверхбыстро „залечивается“ благодаря продолжающейся накачке GaAs и энергетической релаксации носителей. Интенсивность излучения опять возрастает, и это вновь приводит к созданию обеднения и т.д. В разных интервалах частот излучения и соответствующих им энергетических интервалах инверсной заселенности такой процесс мог бы происходить не одновременно, а со сдвигом во времени. Это приводило бы к волнообразной модуляции обеднения заселенностей на дне зоны проводимости, вызывающей (через механизм отображения обеднения [8,12],

см. разд. 1) модуляцию заселенностей вышележащих энергетических уровней. Последняя приводит, как предполагалось выше, к модуляции спектров поглощения. Описанному процессу, очевидно, соответствует и отмеченный выше, касающийся пульсаций, признак согласования модуляции излучения и модуляции скорости изменения просветления (и коэффициента поглощения α). Здесь надо учитывать, что скорость изменения заселенности (следовательно, и скорость изменения α) зависит, в частности, от темпа стимулированной излучательной рекомбинации и, значит, от интенсивности излучения.

Все же авторы не стремятся настаивать именно на вышеизложенной интерпретации. Эту интерпретацию не удастся прямо проверить с помощью известных нам теорий автомодуляции излучения, например, [30,31]. Она является очень упрощенной и не учитывает, что в автомодуляции заселенности и излучения некоторую роль могут иметь взаимосвязанные пространственные неоднородности интенсивности излучения [26,27] и обеднения заселенности, отрицательная обратная связь между интенсивностью излучения и разогревом ЭДП [19,25,32] и др. Но это дополнительно стимулирует продолжение исследований обнаруженной сверхбыстрой автомодуляции спектра поглощения и, предположительно взаимосвязанной с ней, автомодуляции сверхкороткого стимулированного излучения, обнаруженной в работе [23].

4. Заключение

Таким образом, мы обнаружили автомодуляцию спектров поглощения света в GaAs во время пикосекундной фотогенерации носителей и интенсивной суперлюминесценции. Предположительно, автомодуляция спектра отображает и тем самым обнаруживает модуляцию распределения сгенерированных электронов в зоне проводимости. Модуляция распределения электронов связана с тем, что эволюция обеднения заселенности электронов на дне зоны проводимости во время суперлюминесценции отображается, благодаря взаимодействию электронов с продольными оптическими фонами, на заселенности вышележащих энергетических уровней зоны.

Авторы глубоко признательны Л.В. Лёвкину и Э.А. Манькину за подробное обсуждение результатов работы и полезные советы.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 04-02-17146).

Список литературы

- [1] *Сверхкороткие световые импульсы*, под ред. С. Шапиро (М., Мир, 1981).
- [2] В.Ф. Гантмахер, И.Б. Левинсон. *Рассеяние носителей тока в металлах и полупроводниках* (М., Наука, 1984).

- [3] D.N. Mirlin, V.I. Perel. In: *Spectroscopy of Nonequilibrium Electrons and Photons*, ed. by C.V. Shank, B.P. Zakharchenya (Elsevier Science Publishers B. V., 1992) p. 269.
- [4] J.L. Oudar, D. Hulin, A. Migus, A. Antonetti, F. Alexandre. *Phys. Review Lett.*, **55**, 2074 (1985).
- [5] R.F. Leheny, J. Shah, R.L. Fork, C.V. Shank, A. Migus. *Sol. St. Commun.*, **31**, 809 (1979).
- [6] C.L. Collins, P.Y. Yu. *Sol. St. Commun.*, **51**, 123 (1984).
- [7] J.A. Kash, J.C. Tsang, J.M. Hvam. *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 2151 (1985).
- [8] I.L. Bronevoi, A.N. Krivonosov, V.I. Perel. *Sol. St. Commun.*, **94**, 805 (1995).
- [9] I.L. Bronevoi, A.N. Krivonosov, T.A. Nalet. *Sol. St. Commun.*, **98**, 903 (1996).
- [10] И.Л. Броневои, А.Н. Кривоносов. *ФТП*, **33**, 13 (1999).
- [11] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, А.Н. Кривоносов, С.Е. Кумекков, С.В. Стеганцов. *ФТП*, **36**, 144 (2002).
- [12] Г.С. Алтыбаев, И.Л. Броневои, С.Е. Кумекков. *ФТП*, **38**, 674 (2004).
- [13] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, Е.Г. Дядюшкин, Б.С. Явич. *Письма ЖЭТФ*, **48**, 252 (1988).
- [14] N.N. Ageeva, I.L. Bronevoi, E.G. Dyadyushkin, V.A. Mironov, S.E. Kumeckov, V.I. Perel. *Sol. St. Commun.*, **72**, 625 (1989).
- [15] И.Л. Броневои, А.Н. Кривоносов. *ФТП*, **32**, 537 (1998).
- [16] И.Л. Броневои, С.Е. Кумекков, В.И. Перель. *Письма ЖЭТФ*, **43**, 368 (1986).
- [17] N.N. Ageeva, V.B. Borisov, I.L. Bronevoi, V.A. Mironov, S.E. Kumeckov, V.I. Perel, B.S. Yavich. *Sol. St. Commun.*, **75**, 167 (1990).
- [18] N.N. Ageeva, I.L. Bronevoi, V.A. Mironov, S.E. Kumeckov, V.I. Perel. *Sol. St. Commun.*, **81**, 969 (1992).
- [19] Ю.Д. Калафати, В.А. Кокин. *ЖЭТФ*, **99**, 1793 (1991).
- [20] С.Е. Кумекков, В.И. Перель. *ЖЭТФ*, **94**, 346 (1988).
- [21] P. Kocsevar. *Physica*, **134B**, 155 (1985).
- [22] А.А. Харкевич. *Спектры и анализ* (М., Гос. изд-во техн. теор. лит-ры, 1957).
- [23] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, А.Н. Кривоносов, С.Е. Кумекков, Т.А. Налет, С.В. Стеганцов. *ФТП*, **39**, 681 (2005).
- [24] D. Hulin, M. Joffre, A. Migus, J.L. Oudar, J. Dubard, F. Alexandre. *J. de Phys.*, **48**, 267 (1987).
- [25] И.Л. Броневои, А.Н. Кривоносов. *ФТП*, **32**, 542 (1998).
- [26] E.O. Goebel, O. Hildebrand, K. Lohnert. *IEEE J. Quant. Electron.*, **QE-13**, 848 (1977).
- [27] L.W. Casperson. *J. Appl. Phys.*, **48**, 256 (1977).
- [28] Yu.D. Kalafati, V.A. Kokin, H.M. Van Driel, G.R. Allan. In: *Hot Carriers in Semiconductors*, ed. by Karl Hess et al. (Plenum Press, N.Y., 1996); Yu.D. Kalafati, V.A. Kokin. *Abstracts 25th Conf. on Physics of Semiconductors* (2000) pt I, p. 53.
- [29] Р. Данелюс, А. Пискарскас, В. Сируткайтис, А. Стабинис, Я. Ясевичюте. *Параметрические генераторы света и пикосекундная спектроскопия* (Вильнюс, Мокслас, 1983).
- [30] П.Г. Елисеев. *Введение в физику инжекционных лазеров* (М., Наука, 1983).
- [31] К. Лау, А. Ярив. В сб.: *Полупроводниковые инжекционные лазеры*. под ред. У. Тсанга (М., Радио и связь, 1990) с. 73.
- [32] Ю.Д. Калафати, В.А. Кокин. *Письма ЖЭТФ*, **50**, 462 (1989).

Редактор Т.А. Полянская

Ultrafast automodulation of light absorption spectrum, arising by both ultrashort optical pumping and superluminescence in GaAs

N.N. Ageeva, I.L. Bronevoi, A.N. Krivonosov, S.V. Stegantsov

Institute of Radioengineering and Electronics,
Russian Academy of Sciences,
125009 Moscow, Russia

Abstract Automodulation of light absorption spectrum is found that occurs during picosecond photogeneration of carriers and intense superluminescence in GaAs. With variation of picosecond delay τ of probing pulse (whose absorption is measured) relative to exciting pulse in the range $\tau < 0$, local intensifications of absorption (juts) move along the spectrum (modulation resembles traveling wave). When varying τ nearby zero, the juts on the spectrum appear and vanish at approximately fixed photon energy values (modulation resembles stationary wave). For some values of photon energy the dependence of rate of absorption factor variation $d\alpha/d\tau$ on τ turns out to be modulated by ripple similar to earlier revealed modulation of picosecond stimulated emission from GaAs. Presumably, the automodulation of spectrum maps (and thus displays) modulation of electron distribution in the conduction band. This modulation is caused by the fact that evolution of electron population depletion on the conduction band bottom during superluminescence is mapped (due to electron-LO-phonon interaction) onto the population of higher energy levels in the band.