

**ПИКОСЕКУНДНОЕ РАЗРЕШЕННОЕ ВО ВРЕМЕНИ ФОТОННОЕ ЭХО
В СИСТЕМЕ СОБСТВЕННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ СРЕДЫ
(СМЕШАННЫЕ КРИСТАЛЛЫ $CdSe_xS_{1-x}$)**

Г.Нолль¹⁾, У.Зигнер¹⁾, С.Г.Шевель, Э.Гёбель¹⁾

Впервые однозначно – с разрешением во времени – продемонстрировано пикосекундное фотонное эхо, обусловленное собственными возбуждениями среды (экситоны, локализованные на флуктуациях потенциала в смешанных кристаллах $CdSe_xS_{1-x}$).

Исследование фотонного эха (ФЭ) – мощное средство изучения фазовой релаксации оптических возбуждений¹. Рассматриваются и возможности использования ФЭ для оптической обработки информации². Генерация эхо-импульса – результат восстановления макроскопической когерентной нелинейной поляризации в системе двухуровневых поглотителей с неоднородным уширением, подвергшейся воздействию разнесенных во времени возбуждающих импульсов длительностью $\Delta t < T_2$, где T_2 – время поперечной релаксации, характеризующее необратимую дефазировку отдельного поглотителя (подробнее см., например, ^{1, 3-5}). На вставке рис. 1 приведена схема измерений стимулированного ФЭ. На образец попадают когерентные возбуждающие импульсы № 1 в момент $t = 0$ и № 2 с задержкой t_{21} , а также пробный импульс № 3 при $t = T$. Эхо-импульс генерируется в момент $t = T + t_{21}$ в направлении синхронизма для волновых векторов $\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$. Двухлучковая схема спонтанного ФЭ соответствует вырожденному случаю: $\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_2$, $T = t_{21}$. Пиковая интенсивность $I_3 \sim \exp(-4t_{21}/T_2)$, т. е. по измеренной при вариации задержки t_{21} зависимости $I_3(t_{21})$ можно определить T_2 .

Впервые ФЭ было экспериментально продемонстрировано для системы примесных центров в рубине путем прямого осциллографирования⁶. Позже таким методом изучались и другие несобственные возбуждения в различных матрицах с временами T_2 в нано- и пикосекундном диапазоне (см. ссылки в ^{1, 5, 7}). Фазовая релаксация собственных электронных возбуждений в кристаллических полупроводниках происходит быстрее. В случае объемных кристаллов GaAs⁸, CdSe⁹, структур GaAs/GaAlAs с квантовыми ямами^{10, 11}, для свободных экситонов получены значения T_2 порядка единиц пикосекунд при околотеминовых температурах, а для свободных носителей в объемном GaAs при 300 К⁷ – единиц фемтосекунд. Измерения проводились непрямым методом: в схеме спонтанного ФЭ регистрировался проинтегрированный во времени сигнал, отселектированный по углу. Такой подход менее надежен, в частности, он не позволяет провести четкое различие со случаем однородного уширения, когда сигнал макроскопического когерентного отклика генерируется в направлении синхронизма сразу же после импульса № 2 и затухает по закону $\exp(-2t_{21}/T_2)$ ⁴.

В настоящей статье сообщается о первом однозначном – с разрешением во времени в пикосекундном диапазоне – наблюдении фотонного эха в системе собственных возбуждений среды. Изучались смешанные полупроводниковые кристаллы $CdSe_xS_{1-x}$, оптические свойства которых при околотеминовых температурах определяют экситоны, локализованные на флуктуациях кристаллического потенциала¹². Образцы представляли собой выращенные из газовой фазы высококачественные лепестки толщиной не более 50 мкм. Эксперименты проводились при ≈ 10 К в геометрии как спонтанного, так и стимулированного ФЭ. Источником возбуждения был перестраиваемый лазер на роданине 6Ж, синхронно накачиваемый

¹⁾ Марбургский университет, ФРГ.

второй гармоникой задающего лазера на ИАГ : Nd^{3+} и генерировавший импульсы длительностью 7 пс при частоте повторений 500 кГц. Для регистрации применялась скоростная электронно-оптическая камера (ЭОК) в режиме синхронного сканирования с ПЗС -мишенью, усилителем изображения и системой считывания в ЭВМ (динамический диапазон $\approx 10^3 : 1$, временное разрешение 20 пс).

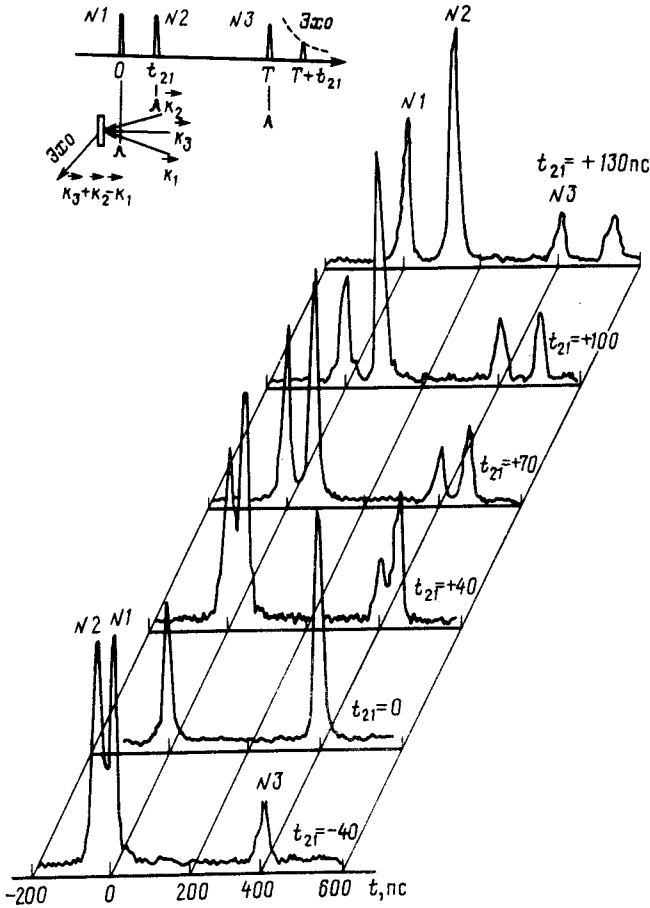


Рис. 1. Разрешенное во времени фотонное эхо (четвертый импульс в последовательности, см. вставку) при различных задержках t_{21} между возбуждающими импульсами №1 и №2. Образец $\text{CdSe}_{0,6}\text{S}_{0,4}$, температура 10 К, фиксированная задержка пробного пучка №3 $T = 400$ пс, энергия кванта возбуждения $h\nu_B = 2,0505$ эВ, интенсивность $I_B = 0,05$ мВт. Каждый график нормализован по отношению к импульсу с максимальной амплитудой

На рис. 1 приведены треки ЭОК, записанные в конфигурации стимулированного ФЭ при энергии кванта возбуждения $h\nu_B = 2,0505$ эВ, соответствующей резонансному возбуждению локализованных экситонов в образце $\text{CdSe}_{0,6}\text{S}_{0,4}$. Графики при различных задержках t_{21} полностью соответствуют ожидаемой (см. вставку) картине. Примечательно, что при $t_{21} < 0$ эхо-сигнал в направлении $k_3 + k_2 - k_1$ отсутствует. Треки импульсов №1, №2 и №3 – результат рассеяния соответствующих пучков в данном направлении, т. к. номинально они были заблокированы после выходного окна криостата. Рассеяние может влиять на результаты измерений ФЭ непрямым методом, тогда как в нашем случае разрешение во времени позволило выделить "чистые" сигналы и обнаружить насыщение интенсивности эхо-импульса при уровнях возбуждения I_B , превышающих некоторый критический $I_{кр}$ (рис. 2). Од-

новременно для пучка №2 наблюдалось просветление. Меньшим энергиям кванта $h\nu_B$ соответствовали более низкие уровни $I_{кр}$.

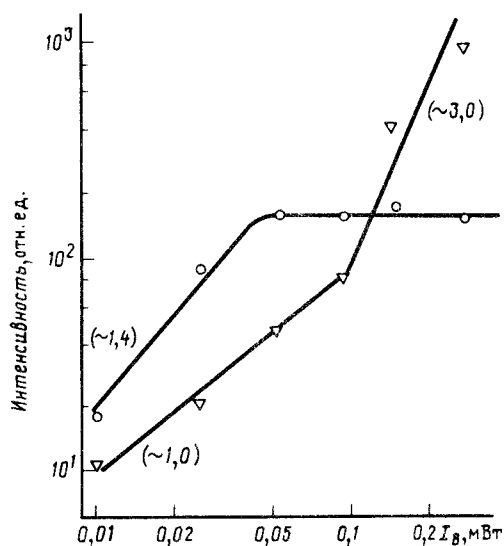


Рис. 2. Зависимости интенсивностей эхо-импульса (кружки) и прошедшего через образец импульса №2 (треугольники) от уровня возбуждения в конфигурации спонтанного ФЭ. Образец $CdSe_{0,6}S_{0,4}$, температура 10К, энергия $h\nu_B = 2,0526$ эВ, $t_{21} = 100$ пс. В скобках – приближение значения наклона

Оцененные из эксперимента значения T_2 составили сотни пикосекунд (400 пс в условиях рис. 1), что значительно больше приводившихся значений для бинарных полупроводниковых кристаллов. Наблюдается плавный рост T_2 при уменьшении $h\nu_B$.

Данные эксперимента находят качественное объяснение в модели локализации экситонов. Так, замедление дефазировки по сравнению с GaAs, CdSe, очевидно, связано с тем, что для локализованных экситонов, в отличие от свободных, неактуальны дефазирющие межчастичные столкновения. Они не обнаруживаются и в спектрах люминесценции и оптического усиления сильно возбужденных кристаллов $CdSe_xS_{1-x}$ ¹³. Далее, насыщение сигнала ФЭ и просветление пучка №2 объясняются как результат насыщения резонансных состояний локализованных экситонов. Их плотность плавно уменьшается по мере уменьшения $h\nu$, т. е. должна снижаться и уровень $I_{кр}$, что и наблюдается в эксперименте.

Возможные дефазирющие процессы для локализованных экситонов – излучательная¹²,¹³ рекомбинация и перескоки (с испусканием фононов) в состоянии с большей глубиной локализации. Эти же процессы определяют кинетику люминесценции $CdSe_xS_{1-x}$ при гелиевых температурах, характерные времена для которой¹⁴ – того же порядка, что и найденные значения T_2 . Уменьшение вероятности перескоков для более глубоких локализованных состояний¹² объясняет наблюдавшийся рост T_2 с понижением $h\nu_B$.

Полученные результаты не противоречат предсказаниям теории¹⁵ о влиянии беспорядка и андерсоновской локализации на фазовую релаксацию в полупроводниках. Более детальный анализ выходит за рамки краткого сообщения и будет предметом последующих публикаций.

Литература

1. Манькин Э.А., Самарцев В.В. Оптическая эхо-спектроскопия, М.: Наука, 1984.
2. Kim M., Kochru R. Appl. POpt., 1989, 28, 2186.
3. Weiner A. et al. J. Opt. Soc. Am. B, 1985, 2, 654.
4. Yajima T., Taira Y. J. Phys. Soc. J., 1979, 47, 1620.
5. Brewer G.R. Phys. Today, 1977, 30, 50.
6. Kurnit M. et al. Phys. Rev. Lett., 1964, 13, 567.
7. Becker P.C. et al. Phys. Rev. Lett., 1988, 61, 1647.
8. Schultheis L. et al. Phys. Rev. Lett., 1986, 57, 1635, 1797.

9. *Dörnfeld C., Hvam J.* IEEE J. Quant. El., 1989, **25**, 904.
10. *Schultheis L. et al.* Appl. Phys. Lett., 1985, **47**, 995.
11. *Honold A. et al.* Appl. Phys. Lett., 1988, **52**, 2105.
12. *Permogorov S. et al.* Phys. Stat. Sol. (b), 1982, **113**, 589.
13. *Majumder F. et al.* Z. Phys. B, 1987, **66**, 409.
14. *Shevel S. et al.* J. Lumin., 1987, **37**, 45.
15. *Lonsky C. et al.* Phys. Rev. Lett., 1989, **63**, 652.

Институт физики
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
21 февраля 1990 г.
