

ВЛИЯНИЕ КОГЕРЕНТНОСТИ СВОБОДНЫХ ЭЛЕКТРОН-ДЫРОЧНЫХ ПАР НА ЭКСИТОННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ В GaAs/AlGaAs СВЕРХРЕШЕТКАХ

К.Л.Литвиненко¹⁾, Й.М.Хвам^{*2)}, В.Г.Лысенко

Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

*Mikroelektronik Centrel. DTU.
DK-2800 Lyngby, Denmark

Поступила в редакцию 4 декабря 1997 г.

Экспериментально при помощи метода накачки и зондирования исследовано влияние фотовозбужденных свободных носителей на динамику спектров поглощения GaAs/Al_xGa_{1-x}As сверхрешетки. Зарегистрировано резкое изменение смещения энергетического положения экситонного резонанса из низкоэнергетической в высокоэнергетическую сторону в момент перекрытия электромагнитного излучения накачивающего и зондирующего лучей в случае зон-зонного возбуждения. Данное явление объяснено при помощи модели рассеяния высокоэнергетических электрон-дырочных пар. Экспериментально оцененное время расфазировки свободных высокоэнергетических частиц составило несколько десятков фемтосекунд.

PACS: 42.50.Md

Одним из явлений, возникающих при взаимодействии когерентной поляризации с возбуждающим лазерным излучением, является оптический штарк-эффект. Для исследования оптического Штарк-эффекта в полупроводниках используется методика накачки и зондирования с лазерными импульсами субпикосекундной длительности. До сих пор экспериментально и теоретически хорошо изучена ситуация, когда спектральное положение накачивающего луча находится значительно ниже [1,2] или выше [3] экситонного резонанса.

Изучение взаимодействия возбужденных состояний с когерентным лазерным излучением в случае резонансного возбуждения сейчас только начинается. Решить полное полупроводниковое уравнение Блоха [4-6] для этого случая пока не представляется возможным. В теоретических работах [1,7] было показано, что при полном отсутствии свободных электрон-дырочных пар в случае резонансного возбуждения должны наблюдаться раби-осцилляции плотности экситонных состояний. Для экспериментального изучения этого явления длительность лазерных импульсов должна быть значительно короче времени фазовой релаксации возбужденных состояний. А достаточно короткие лазерные импульсы обладают значительной спектральной шириной, что делает невозможным селективное возбуждение только экситонных состояний, без возбуждения электрон-дырочной плазмы. В данном исследовании, несмотря на отсутствие соответствующих теоретических моделей, мы поставили перед собой задачу экспериментально изучить влияние свободных электрон-дырочных пар на когерентное взаимодействие резонансного лазерного излучения с экситонными состояниями.

¹⁾ e-mail: kostja@ipmt-hpm.ac.ru

²⁾ J.M.Hvam

В экспериментальной части работы мы использовали многослойную 20-периодную квантовую яму (МКЯ) с шириной слоев GaAs – 80Å и шириной слоев AlGaAs–20Å. Фотовозбуждение осуществлялось лазерными импульсами длительностью 120 фс, спектральное положение которых находилось на $1 \div 2$ мэВ ниже (возбуждение, осуществляемое такими импульсами, в дальнейшем мы будем называть резонансным возбуждением) и на 10 мэВ выше положения экситонного резонанса (нерезонансным возбуждением).

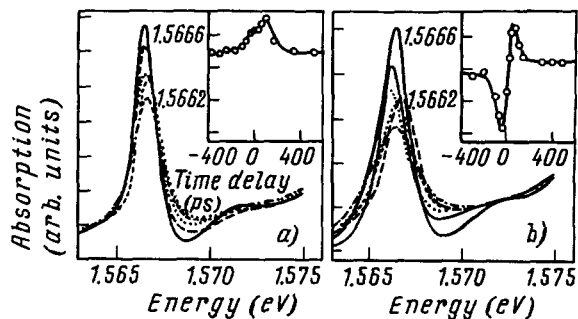


Рис.1. Изменение формы спектра поглощения тяжелого экситона для двух условий возбуждения и различных времен задержек τ . Случай резонансного возбуждения представлен на рис.а: $\tau = -1$ пс (—), -300 фс (....), 0 (---), 100 фс (.....) и 1 пс (---). Случай нерезонансного возбуждения представлен на рис.б: $\tau = -425$ фс (—), -85 фс (---), -50 фс (....), 0 (---), 70 фс, ($---$) и 475 фс(.....)ю На вставках изображено изменение энергетического положения максимума линии поглощения тяжелого экситона для двух условий возбуждения

Изменения формы спектров поглощения тяжелого экситона для разных задержек между накачивающим и зондирующим лучами и для двух условий возбуждения представлены на рис.1. В случае резонансного возбуждения смещение энергетического положения и уменьшение максимума поглощения в несколько раз меньше, чем в случае нерезонансного возбуждения. Поэтому для того, чтобы иметь дело с величинами одного порядка, мы для последнего условия возбуждения выбрали меньшую интенсивность накачивающего лазерного луча. Таким образом, спектры, изображенные на рис.1а, получены для плотности фотовозбужденных квазичастиц $1.4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, а на рис.1б – $4.4 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$, что соответствует площади накачивающего импульса примерно 1π и 0.6π , соответственно. На вставках на рис.1а и б изображено изменение энергетического положения максимума экситонного поглощения. В случае резонансного возбуждения наблюдается голубой сдвиг экситонной линии. В случае нерезонансного возбуждения максимум экситонного поглощения вначале сдвигается в красную сторону, затем резко смещается в голубую сторону.

Ярко выраженное поглощение, определяемое непрерывными состояниями тяжелого экситона, позволило нам разделить влияние изменения ширины запрещенной зоны и энергии связи на энергетическое положение основного состояния тяжелого экситона. Для этого мы использовали обобщенную формулу Элиотта [8]. Результаты обработки экспериментальных спектров поглощения представлены на рис.2 и 3. Оказалось, что для наших экспериментальных условий изменение силы осциллятора практически не наблюдается и что уменьшение поглощения вызвано, главным образом, уширением экситонного резонанса. Как было показано в работе [9], уширение

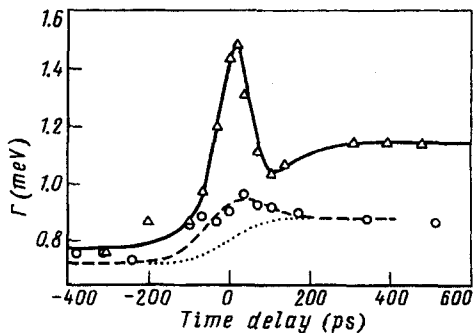


Рис.2. Зависимость уширения экситонной линии поглощения Γ от времени задержки для двух условий возбуждения. Случай резонансного возбуждения – кружки. Случай нерезонансного возбуждения – треугольники. Пояснения смотри в тексте

прямо пропорционально плотности квазичастиц, и поэтому по его изменению можно однозначно определить изменение плотности фотовозбужденных состояний. На рис.2 изображено поведение уширения экситонных линий для двух условий возбуждения.

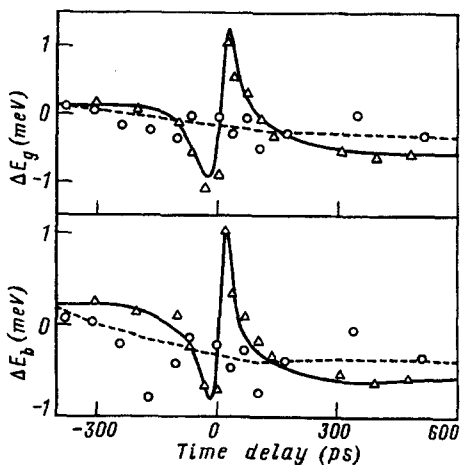


Рис.3. Зависимость изменения ширины запрещенной зоны E_g и энергии связи тяжелого экситона E_b от времени задержки для двух условий возбуждения. Случай резонансного возбуждения – кружки. Случай нерезонансного возбуждения – треугольники. Линии помогают проследить изменения изображенных параметров

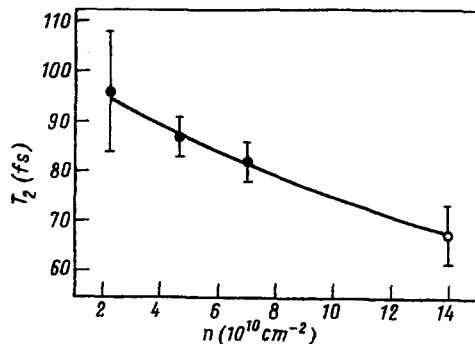


Рис.4. Зависимость временного расстояния между максимальным уменьшением и увеличением энергии связи экситонного состояния в случае нерезонансного возбуждения от плотности электрон-дырочных пар

В случае резонансного возбуждения лазерными импульсами площадью 1π должна наблюдаться одна раби-осцилляция плотности экситонных состояний [7]. Для резонансного возбуждения мы действительно зарегистрировали увеличение уширения, а значит, и плотности взаимодействующих частиц в момент перекрытия накачивающего и зондирующего лучей (см. рис.2). После прохождения накачивающего лазерного импульса в образце остается ненулевая плотность возбужденных состояний. Это свидетельствует о наличии процессов рассеяния [1], которые приводят к тому, что плотность фотовозбужденных квазичастиц начинает представлять собой

суперпозицию виртуальных и реальных возбужденных состояний, причем вклад реальных частиц монотонно увеличивается и пропорционален интегралу по времени от интенсивности прошедшего через образец лазерного излучения. На рис.2 такое монотонное увеличение изображено точечной линией. Штриховая линия на том же рисунке учитывает влияние обеих разновидностей частиц на ширину экситонной линии поглощения и достаточно хорошо описывает экспериментальные результаты.

В случае нерезонансного возбуждения характер поведения уширения остался таким же. Это говорит о том, что плотность частиц, участвующих во взаимодействии, также представляет собой суперпозицию виртуальных и реальных состояний, значительную часть которых составляют теперь свободные электрон-дырочные пары. Наличие в системе свободных возбужденных состояний объясняет такое сравнительно большое отличие амплитуды изменения уширения линии экситонного поглощения от случая резонансного возбуждения, так как эффективность воздействия свободных электрон-дырочных пар на ширину экситонной линии по крайней мере на один порядок величины выше, чем в случае экситон-экситонного взаимодействия [9]. В случае резонансного возбуждения из-за достаточно большой спектральной ширины возбуждающего лазерного излучения в образце, тем не менее, рождаются свободные электрон-дырочные пары и, таким образом, нельзя однозначно определить, чем вызвано увеличение уширения экситонной линии в этом случае: раби-осцилляциями экситонной плотности или влиянием свободных носителей. Дальнейшее увеличение плотности возбуждающего лазерного излучения, которое должно было бы привести к увеличению количества раби-осцилляций [7], приводит к значительному увеличению насыщения экситонного поглощения и может разрушить образец. Таким образом, нам не удалось однозначно зарегистрировать раби-осцилляции при помощи метода накачки и зондирования в исследуемой сверхрешетке.

Однако нам удалось зарегистрировать уникальное поведение резонансного положения линии экситонного поглощения в случае нерезонансного возбуждения. В случае резонансного возбуждения наблюдается привычный голубой сдвиг (см. вставку на рис.1а), появление которого связано с двумя хорошо известными эффектами: ренормализацией ширины запрещенной зоны [10] и изменением энергии связи [11]. Оба эти эффекта представлены на рис.3. В случае нерезонансного возбуждения для отрицательных времен задержек τ наблюдается красный сдвиг экситонной линии, который резко уменьшается при приближении τ к нулю и меняет знак при переходе к положительным τ . Это изменение происходит в течение временного перекрытия накачивающего и зондирующего лазерных лучей. На первый взгляд может показаться, что осцилляции энергетического положения экситонной линии могут быть вызваны непосредственным влиянием раби-осцилляций плотности возбужденных состояний. Однако, как следует из работы [7], накачивающий импульс с площадью 0.6π не вызывает осцилляций плотности и поэтому данное явление должно иметь другую причину.

Рассмотрим вначале поведение энергии связи основного экситонного состояния (см. рис.3). При уменьшении модуля отрицательного времени задержки между накачивающим и зондирующим лучами, то есть при увеличении влияния плотности фотовозбужденных частиц, энергия связи резко уменьшается. Это уменьшение вызвано влиянием эффекта заполнения фазового пространства (ЗФП), как это было предсказано в теоретической работе [11]. Так как плотность частиц не изменяется

скачкообразно при резком изменении знака смещения положения экситонной линии (см. рис.2), то скачок величины энергии связи может быть связан с рассеянием участвующих во взаимодействии частиц. Действительно, после рассеяния свободные электроны и дырки будут занимать другие положения в пространстве волновых векторов и перестанут участвовать в эффекте ЗФП, что, в конечном счете, благодаря корреляционному и обменному взаимодействиям, может привести к увеличению энергии связи. Время между максимальными смещениями энергетического положения линии экситонного поглощения в красную и голубую стороны изменяется от нескольких десятков до сотни фемтосекунд и зависит от плотности возбуждающего излучения.

При аппроксимации формы спектра экситонного поглощения при помощи обобщенной формулы Элиотта [8] уширение непрерывных состояний изменялось в пределах от 2.1 до 3.5 мэВ. Это соответствует изменению времени фазовой релаксации от 600 до 350 фс. Эти значения очень хорошо согласуются с результатами, полученными нами: в однолучевом эксперименте (готовится к печати) и в эксперименте четырехволнового смешивания [12] (смотри также [13]), однако значительно превосходят время между максимальными смещениями линии экситонного резонанса в красную и голубую стороны. Действительно, время расфазировки свободных возбужденных состояний значительно укорачивается при увеличении их энергии [12]. Это изменение настолько существенно, что эффекте деструктивной интерференции [12] принимают участие свободные частицы только из узкой области (шириной порядка 2 мэВ) вблизи края запрещенной зоны. Выше лежащие состояния теряют свою когерентность намного раньше. Таким образом, в исследуемом случае решающее влияние на поведение экситонного резонанса оказывает потеря высокоэнергетическими электрон-дырочными парами когерентности с возбуждающим лазерным излучением. На рис.4 изображена зависимость от плотности частиц времени T_2 , необходимого для резкого изменения энергии связи. Это время прямо пропорционально времени фазовой релаксации. Простейшей моделью, описывающей эту зависимость, является кинетическая модель электронного газа Друде, в которой не учитывается влияние кулоновского взаимодействия. Согласно этой модели, время расфазировки обратно пропорционально плотности взаимодействующих частиц и может быть представлено в следующем виде:

$$2\hbar/T_2(n) = 2\hbar/T_2(0) + \gamma^{eff} E_B^{eff} (a_B^{eff})^2 n_x, \quad (1)$$

где \hbar – постоянная Планка, E_B^{eff} – эффективная энергия связи ($E_B^{eff} = 5.6$ мэВ), a_B^{eff} – эффективный боровский радиус ($a_B^{eff} = 100\text{\AA}$ [14], n_x – плотность возбужденных состояний. Теоретическая зависимость, представленная на рис.4 сплошной линией, получена для следующего значения параметров: $T_2(0) = 102$ фс и $\gamma_{eh}^{eff} = 8.2$. Полученное нами значение T_2 по порядку величины совпадает со временем фазовой релаксации свободных электрон-дырочных пар, которое изменяется от 30 до 160 фс и зависит от параметров конкретной квантовой ямы [15].

Вернемся теперь к изменению ширины запрещенной зоны E_g (см. рис.3). С увеличением перекрытия между накачивающим и зондирующим лучами большее влияние на поведение E_g начинают оказывать рожденные квазичастицы. Уменьшение ширины запрещенной зоны как в квазидвумерной, так и в трехмерной среде, при увеличении плотности возбужденных состояний является хорошо известным фак-

тором, подтвержденным экспериментально [16–18] и теоретически [19,20]. Однако ответ на вопрос: почему в случае нерезонансного возбуждения ширина запрещенной зоны увеличивается при потере высокоэнергетическими свободными носителями когерентности, остается открытым. Чтобы на него ответить, нужно решить полное полупроводниковое уравнение Блоха [4–6]. Мы можем лишь сказать, что зарегистрированное нами уникальное поведение ширины запрещенной зоны является результатом взаимодействия: когерентных экситонов, когерентных и некогерентных свободных электрон-дырочных пар, а также лазерного излучения накачивающего и зондирующего лучей.

Таким образом, нами экспериментально получено, что в случае нерезонансного возбуждения энергетическое положение экситонной линии для отрицательных τ сдвигается в красную сторону, а для положительных τ – в голубую. Такое поведение линии экситонного поглощения объясняется расфазировкой рожденных свободных электрон-дырочных пар. Из расстояния между максимальными смещениями энергетического положения экситонного резонанса оценено время расфазировки высокоэнергетических свободных носителей, которое по порядку величины составило несколько десятков фемтосекунд.

Работа выполнена при поддержке фондов: Российского фонда фундаментальных исследований 97-02-16833; INTAS-94-0324 и INTAS-RFBR-95-0576.

-
1. R.Binder, S.W.Koch, M.Lindberg et al., Phys. Rev. Lett. **65**, 899 (1990).
 2. R.Binder, S.W.Koch, M.Lindberg et al., Phys. Rev. **B43**, 6520 (1991).
 3. S.W.Koch, N.Peyghambarian, and M.Lindberg, J. Phys. C: Solid State Phys. **21**, 5229 (1988).
 4. W.Schafer, K.H.Schuldt, and R.Binder, Phys. Stat. Sol. **B150**, 407 (1988).
 5. I.Baslev, R.Zimmermann, and A.Stahl, Phys. Rev. **B40**, 4095 (1989).
 6. M.Lindberg and S.W.Koch, Phys. Rev. **B38**, 3342 (1988).
 7. S.W.Koch, A.Knorr, R.Binder, and M.Lindberg, Phys. Stat. Sol. (b) **173**, 177 (1992).
 8. P.Lefebvre, P.Christol, and H.Mathieu, Phys. Rev. **B48**, 17308 (1993).
 9. A.Honold, L.Schultheis, J.Kuhl, and C.W.Tu, Phys. Rev. **B40**, 6442 (1989).
 10. P.Vashishta and R.K.Kalia, Phys. Rev. **B25**, 6492 (1982); M.J.Godfrey, and V.Kubrak, Phys. Rev. **B52**, 17293 (1995).
 11. G.Dresselhaus, Phys. Chem. Solids **1**, 14 (1956).
 12. А.Г.Горшунов, В.И.Гринеv, К.Л.Литвиненко и др., готовится к печати.
 13. А.Г.Горшунов, К.Л.Литвиненко, В.Г.Лысенко и др., ЖЭТФ **110**, 1464 (1996).
 14. J.Feldmann, T.Meier, G.von Plessen et al., Phys. Rev. Lett., **70**, 3027 (1993).
 15. К.Л.Литвиненко, В.Г.Лысенко и др., Письма в ЖЭТФ **66**, 139 (1997).
 16. B.K.Ridley, Rep on Progress in Physics **54**, 169 (1991).
 17. V.G.Lyssenko and V.I.Revenko, Sov. Phys. Solid State **20**, 1238 (1978).
 18. G.Trankle, H.Leier, F.Forchel et al., Phys. Rev. Lett. **58**, 419 (1987).
 19. S.Das Sarma, R.Jalabert, and S.-R.Eric Yang, Phys. Rev. **B39**, 5516 (1989).
 20. S.T.Cundiff, A.Knorr, J.Feldmann et al., Semiconductor Optics, Berlin-Heidelberg: Springer-Verlag 1995; Phys. Rev. Lett. **73**, 1178 (1994).
 21. S.Nojima, Phys. Rev. **B51**, 11124 (1995).