

Экспериментальное наблюдение неравновесной конденсации электронно-дырочных пар в GaAs при комнатной температуре

П. П. Васильев¹⁾

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 апреля 2005 г.

После переработки 6 июня 2005 г.

В явном виде продемонстрирован эффект нестационарной конденсации электронно-дырочных пар в GaAs/AlGaAs $p-i-n$ -гетероструктурах при комнатной температуре в режиме генерации импульсов сверхизлучения. Обнаружено, что на самых ранних стадиях развития импульса сверхизлучения происходит резкое уменьшение интенсивности спонтанного излучения из всей зоны проводимости и быстрый переход электронов на самое дно зоны. Конденсация электронов на дне зоны приводит к формированию неравновесного когерентного кооперативного состояния, распад которого наблюдался ранее в виде мощных фемтосекундных импульсов сверхизлучения.

PACS: 42.50.Fx, 71.35.Lk

Бозе-конденсация экситонов в полупроводниках является одной из наиболее интересных областей исследований современной физики конденсированного состояния. Как хорошо известно [1,2], электроны и дырки в полупроводниках, будучи фермионами, могут образовывать связанные состояния, которым присущи свойства статистики Бозе. Бозе-конденсация экситонов наблюдалась при низких температурах (< 10 К) в некоторых полупроводниках, например, в Cu_2O и GaAs/AlGaAs квантово-размерных структурах [3–5]. В режимах высокой плотности ансамбль коллективно спаренных электронов и дырок (композитных бозонов) имеет сходство с системой куперовских пар в сверхпроводнике, и его часто называют электронно-дырочным БКШ-подобным состоянием [2].

Как было отмечено ранее [6], параметр порядка экситонного конденсата совпадает с его оптической поляризацией и, следовательно, может быть оценен в процессе сравнительно простых оптических измерений. Кроме того, как было теоретически показано, кинетика дефазировки и потери когерентности конденсата зависит от его плотности и существенно отличается от дефазировки электронно-дырочных пар, не связанных друг с другом. В частности, время фазовой релаксации конденсата увеличивается пропорционально квадрату его плотности [6]. Это означает, что, несмотря на увеличение числа соударений с увеличением плотности, разрушение когерентности при столкновениях не происходит.

В наших экспериментах [7–10] был исследован режим кооперативной рекомбинации в сильно неравновесной системе электронов и дырок высокой плотности ($> 3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$) в объемных GaAs/AlGaAs $p-i-n$ -гетероструктурах при комнатной температуре. Было показано, что все свойства излучения в виде мощных фемтосекундных оптических импульсов могут быть объяснены коллективным спариванием электронов и дырок, их конденсацией и образованием короткоживущего когерентного электронно-дырочного БКШ-подобного состояния. Среднее время жизни такого БКШ-подобного состояния оказалось равным около 300 фс.

Косвенными доказательствами возможной конденсации является следующее. Во-первых, рекордно высокая мощность излучения, исходящая из узкого спектрального диапазона при ультракороткой длительности, не может быть объяснена стандартным фермиевским распределением электронов и дырок в зонах при корневой зависимости плотности состояний [10]. Во-вторых, аппроксимация формы спектральной линии генерации позволила установить энергетическое распределение частиц, находящихся в когерентном кооперативном состоянии, и оценить параметр Δ (около 2 мэВ) и энергию Ферми [7]. Значения последней (5–7 мэВ) оказались более чем на порядок меньше энергии Ферми электронов в GaAs при данных плотностях. В-третьих, когерентность взаимодействия оптического поля с полупроводниковой средой [11] указывает на наличие макроскопически большого числа распределенных в пространстве электронно-дырочных пар, находящихся в связанном состоянии с общей фазой. И, наконец, ано-

¹⁾e-mail: peter@mail1.lebedev.ru

мально большие флуктуации как амплитудные, так и временные, также косвенно свидетельствуют об установлении упорядоченного состояния в системе электронно-дырочных пар [12].

Самыми непонятными и необъяснимыми оказались факты конденсации при комнатной температуре, устойчивости конденсата и наличие когерентности в $e-h$ -ансамбле на временах, более чем на порядок превосходящих время внутризонной фазовой релаксации. В работе [10] было предложено возможное объяснение этих фактов. Как было показано, двумя главными условиями получения $e-h$ -конденсации при комнатной температуре являются: 1) присутствие резонансного оптического поля с энергией кванта, соответствующей межзонному переходу с самого дна зон, и 2) большая концентрация $e-h$ -пар, приводящая из-за принципа Паули к занятости практически всех энергетических уровней в широкой полосе выше дна одной из зон (например, зоны проводимости). Парадокс заключается в том, что для устойчивости конденсата и подавления сверхбыстрой релаксации необходима очень большая плотность $e-h$ -пар.

В данной работе в явном виде подтверждается факт нестационарной конденсации электронов на дно зоны проводимости. Все измерения проводились при комнатной температуре. Использовались те же самые полупроводниковые трехсекционные $p-i-n$ -гетероструктуры на основе объемного GaAs, что и ранее [7–10]. Особенностью этих структур является наличие усиливающей и поглощающей свет областей и низкодобротного резонатора, образованного гранями кристалла. В усиливающую часть гетероструктуры подавались наносекундные импульсы тока с амплитудой 500–800 мА.

На рис.1 показан типичный импульс тока накачки. К поглощающей секции прикладывалось запирающее напряжение постоянной амплитуды. Изменяя накачку в усилителе и обратное смещение на поглотителе, можно было легко получать либо суммарное усиление, либо поглощение в структуре. Например, в отсутствие запирающего напряжения в структурах легко возбуждалась лазерная генерация при амплитудах тока накачки около 100 мА. В то же время, за счет эффекта Франца–Келдыша можно было сильно сместить край поглощения $p-i-n$ -структуры в длинноволновую часть спектра, прикладывая большое запирающее напряжение, и сильно уменьшить суммарное оптическое усиление во всем диапазоне частот. В этом случае лазерная генерация подавлялась и наблюдался режим усиленного спонтанного излучения. При этом выходное излучение имело вид наносекунд-

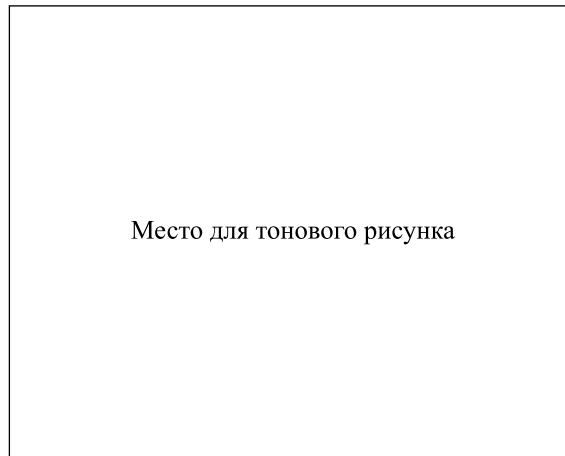


Рис.1. Осциллограммы импульсов тока (верхняя линия) и кооперативного излучения. Горизонтальная шкала – 1 нс/дел., вертикальная – 150 мА/дел (только для импульса тока)

ных импульсов с пиковой мощностью в сотни микроватт.

Однако если при том же запирающем напряжении сильно увеличить инжекцию носителей в усилителе, то за счет заполнения зон носителями и соответствующего сокращения ширины запрещенной зоны усиление на самом краю спектра с длинноволновой стороны превысит поглощение. В результате фотоны с энергией кванта, соответствующей межзонному переходу с самого дна зон, могут свободно распространяться по структуре, способствуя установлению когерентности в ансамбле электронно-дырочных пар. В этом случае, как отмечалось ранее [7,8], возможна генерация импульсов кооперативного излучения. На рис.1 показано временное положение импульса кооперативного излучения. Излучение зарегистрировано с помощью $p-i-n$ -фотодиода с разрешением около 400 пс и стробоскопического осциллографа С7-13 с полосой пропускания 18 ГГц. Типичная пиковая мощность импульсов кооперативного излучения на 4–5 порядков превосходит мощность спонтанного излучения и лазерной генерации.

На рис.2 представлена схема эксперимента. Излучение полупроводниковой структуры коллимировалось микрообъективом и направлялось на дифракционную решетку с числом штрихов 600 на 1 мм. Дифрагировавшее излучение фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 18 см на входную щель электронно-оптической камеры с временной разверткой. Максимальное временное разрешение камеры составляло около 1.5 пс. В результате на экране камеры можно было наблюдать развертку излучения

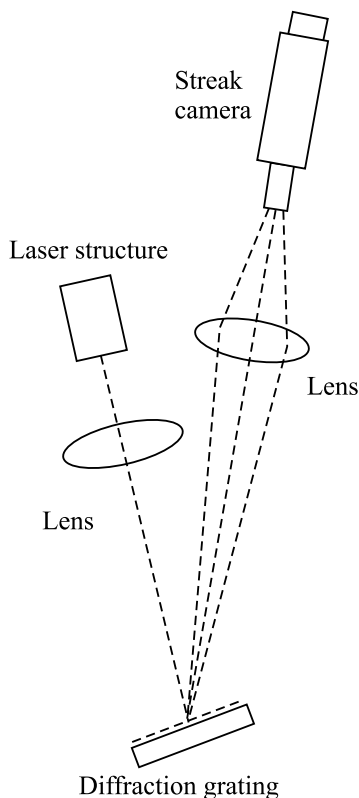


Рис.2. Схема эксперимента

одновременно по времени и частоте (длине волны). Эта методика широко применяется для исследований спектральной динамики полупроводниковых лазеров, генерирующих ультракороткие импульсы [13]. Изображение, получаемое на экране камеры, считывалось ССD-камерой, видеосигнал которой подавался на специальную видеокарту персонального компьютера, а затем преобразовывался в цифровое двумерное изображение, соответствующее спектрохронограмме исходного оптического сигнала. Линейность камеры по интенсивности проверялась по специальным светофильтрам. Временная развертка калибровалась по задержке фемтосекундного импульса в кварцевой пластинке известной толщины. Масштаб развертки по другой координате (по длине волны) определялся с помощью монохроматора МДР-23 с разрешением не хуже 0.1 нм.

В экспериментах был изучен весь спектр динамических режимов полупроводниковых структур. В отличие от предыдущих работ [7–11], целью было исследование поведения спонтанного излучения, по времени и частоте находящегося вблизи импульсов сверхизлучения. Очевидно, что интенсивность спонтанного излучения в данный момент времени и на данной длине волны пропорциональна числу электро-

нов, занимающих в этот момент времени соответствующий энергетический уровень в зоне. Поэтому, исследуя распределение интенсивности спонтанного излучения по времени и длине волны, можно сделать вывод о внутризонном распределении электронов и его изменении во времени. Ввиду огромного различия пиковых мощностей и временных параметров спонтанного и кооперативного излучений, а также из-за ограниченного динамического диапазона стрик-камеры, приходилось использовать разные временные развертки и ослабляющие фильтры в разных режимах. Поэтому невозможно было получить правильную форму и длительность импульсов сверхизлучения и спонтанного излучения на одном и том же кадре.

На рис.3 показаны развертки оптического спектра по времени в лазерном режиме (а) и режиме сверхиз-

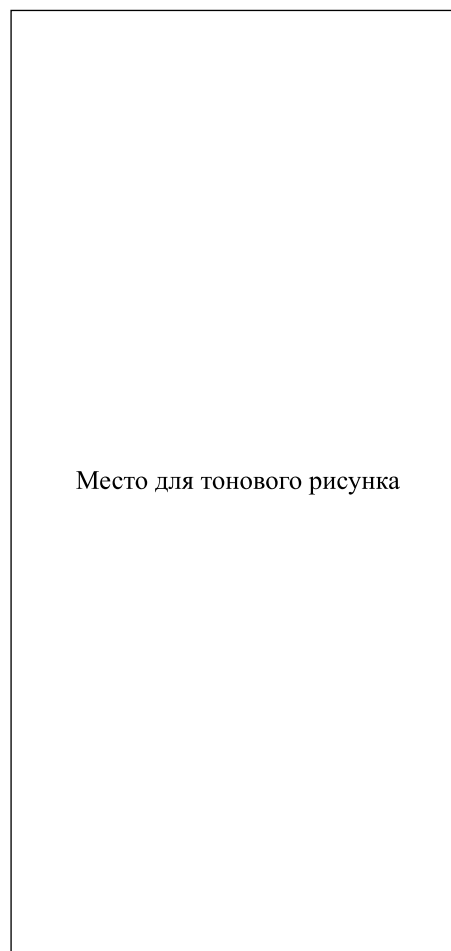


Рис.3. Развертка по времени оптического спектра импульсов лазерного (а) и кооперативного (б) излучений

лучения (б). Длительность всей развертки по времени составляет чуть более 2 нс (см. ниже). На обоих

кадрах интенсивность входящего излучения выбиралась таким образом, чтобы правильно зарегистрировать спонтанное излучение, которое гораздо слабее и лазерного, и кооперативного излучения. Поэтому последние сняты с большой переэкспозицией, и их спектральная ширина и длительность сильно деформированы.

Лазерная генерация начинается вблизи энергии кванта 1.430 эВ (рис.3а). Очень важно, что отчетливо видно спонтанное излучение до и, самое главное, в момент начала лазерной генерации и после него. Интенсивность спонтанного излучения с обеих сторон от линии лазерной генерации остается практически постоянной. После окончания импульса тока накачки лазерная генерация прекращается, и остаточные электронно-дырочные пары аннигилируют спонтанным образом с характерным временем межзонной рекомбинации 1–2 нс.

Совершенно другая картина наблюдается в режиме сверхизлучения (рис.3б). Импульс излучения начинается с обычного спонтанного излучения с очень широким спектром с центром около энергии кванта 1.458 эВ. Затем в конце импульса тока накачки интенсивность спонтанного излучения на всех частотах начинает резко падать. В то же время начинается развитие импульса кооперативного излучения. Весь спектр кооперативного излучения находится в диапазоне, соответствующем самому краю перенормированной запрещенной зоны [7], и расположен при значении энергии около 1.405 эВ. Причины сильного сдвига спектра в длинноволновую область были детально обсуждены в работах [7, 10]. Здесь отметим только, что как в лазерном режиме, так и в режиме сверхизлучения из-за большой концентрации носителей происходит сужение запрещенной зоны вследствие корреляционных эффектов в плотной $e-h$ -плазме. Существенная разница заключается в том, что линия лазерной генерации смещена на величину порядка kT от края внутрь зоны в коротковолновую часть. В противоположность этому, как было сказано, весь спектр кооперативного излучения находится у самого дна перенормированной зоны.

На рис.4 показана зависимость от времени интегральной интенсивности спонтанного излучения электронов со всех уровней энергии внутри зоны проводимости. Хорошо видно, как в диапазоне времени около 2 нс интенсивность спонтанного излучения резко падает. Длительность этого этапа составляет около 100 пс. Время внутризонной термализации не превосходит 1 пс и не разрешается нашей камерой.

Одновременно с этим интенсивность кооперативного излучения начинает резко увеличиваться. Та-

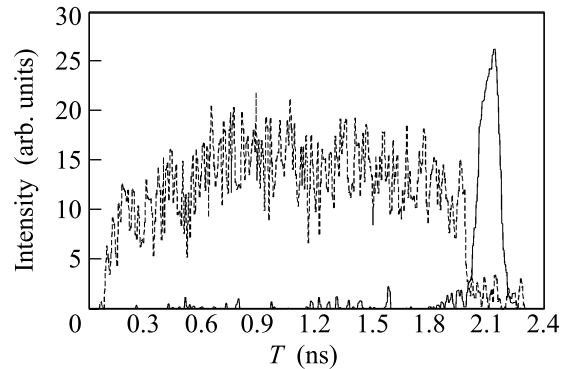


Рис.4. Зависимость интенсивности спонтанного излучения (пунктирная линия) и кооперативного излучения (сплошная линия) от времени

кое уменьшение интенсивности спонтанного излучения можно объяснить переходом электронов из глубины зоны проводимости, коллективным спариванием с дырками, и их скоплением в экситонной части спектра у дна зоны. Механизм устойчивости когерентного кооперативного состояния при комнатной температуре и условия его образования подробно описаны в [10].

Этот эффект регулярно наблюдался в разных диапазонах тока накачки и запирающего напряжения на поглотителе полупроводниковой структуры, а также в разных полупроводниковых структурах. Отметим, что для отчетливого наблюдения “временной щели” в излучении, как на рис.3 и 4, необходимо, чтобы импульс сверхизлучения находился как можно ближе к концу импульса тока. При этом спад импульса тока должен быть резким, то есть его длительность должна быть меньше времени межзонной рекомбинации ($< 2 - 3$ нс). В этом случае импульс тока не накачивает дополнительные электроны в зону проводимости. В случае невыполнения этих условий “временная щель” также наблюдается, но ее начало слегка замывается спонтанным излучением избыточных электронов. Укажем еще раз, что плотность инжектированных электронов уменьшается в обычном режиме со временем спонтанной межзонной рекомбинации, на порядок превосходящим длительность “временной щели”. То есть падение интенсивности спонтанного излучения из зоны не может быть обусловлено обычным спонтанным распадом.

Обсудим теперь возможные причины наблюдаемого резкого уменьшения интенсивности спонтанного излучения. Отметим сразу, что этот эффект не наблюдается ни при обычной люминисценции (спонтанное излучение), ни в лазерном режиме. Как хорошо известно [14], скорость спонтанного излучения пря-

мо пропорциональна произведению вероятности межзонного перехода, плотности состояний в валентной зоне и зоне проводимости, и вероятности заполнения электронами и дырками соответствующих энергетических уровней в зонах. Вероятность межзонного перехода определяется параметрами данного материала, такими как матричный элемент перехода, масса электрона, энергией спин-орбитального расщепления и т.п. Представляется невероятным, что как эти величины, так и плотности состояний в зонах вдруг начали бы уменьшаться в конце импульса накачки. Поэтому, коль скоро факт резкого уменьшения скорости спонтанного излучения обнаружен, это означает, что вероятность заполнения уровней в зонах (третий сомножитель) начинает резко падать. Это, в свою очередь, подразумевает, что электроны уходят из зоны. Одновременное быстрое увеличение интенсивности излучения со дна зоны, на наш взгляд, означает переход электронов из глубины зоны на уровни на самом дне, то есть их конденсацию в фазовом пространстве.

Таким образом, в данной работе продемонстрировано в явном виде, как на самом начальном этапе развития импульса сверхизлучения происходит резкое падение интенсивности спонтанного излучения из всей зоны проводимости. Такое падение спонтанного излучения может быть объяснено резким уменьшением числа электронов внутри зоны, их спариванием и конденсацией в экситонной области спектра у дна зоны. В то же время, конденсация электронно-дырочных пар, образование когерентного БКШ-подобного состояния и его излучательная рекомбинация могут объяснить все спектральные, динамические и мощностные характеристики кооперативного излучения, описанные в наших предыдущих работах [7–11]. Хотя механизм конденсации и формирования БКШ-подобного состояния был продемонстрирован на примере трехсекционной (усили-

тель/поглотитель/усилитель) GaAs/AlGaAs гетероструктуры, он, по-видимому, имеет общий характер, и может быть использован для получения конденсированного $e-h$ -состояния и в других полупроводниковых структурах.

В заключение автор выражает благодарность Х. Кан, Х. Ота и Т. Хирума (Hamamatsu Photonics) за поддержку работы и предоставление образцов полупроводниковых структур, а также И. В. Сметанину, В. С. Зуеву и Ю. М. Попову за многочисленные обсуждения.

1. Л. В. Келдыш, Ю. В. Копаев, ФТТ **6**, 2791 (1964).
2. *Bose-Einstein Condensation*, Eds. A. Griffin, D. W. Snoke, and S. Stringari, Cambridge University Press, Cambridge, 1995.
3. D. Snoke, J. P. Wolfe, and A. Mysyrowicz, Phys. Rev. Lett. **64**, 2643 (1990).
4. L. V. Butov, A. L. Ivanov, A. Imamoglu et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 5608 (2001).
5. А. В. Ларионов, В. Б. Тимофеев, Письма в ЖЭТФ **73**, 342 (2001).
6. O. M. Schmitt, D. B. Tran Thoai, P. Gartner et al., Eur. Phys. J. B **16**, 217 (2000).
7. П. П. Васильев, Х. Кан, Х. Ота и др., ЖЭТФ **120**, 1486 (2001).
8. P. P. Vasil'ev, H. Kan, H. Ohta et al., Phys. Rev. B **64**, 195209 (2001).
9. P. P. Vasil'ev, H. Kan, H. Ohta et al., JETP **96**, 310 (2003).
10. P. P. Vasil'ev, Phys. Stat. Sol. (b) **241**, 1251 (2004).
11. П. П. Васильев, УФН **171**, 679 (2001).
12. L. V. Butov, A. Zrenner, G. Abstreiter et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 304 (1994).
13. P. Vasil'ev, *Ultrafast Diode Lasers: Fundamentals and Applications*, Artech House, Norwood, 1995.
14. П. Г. Елисеев, *Введение в физику инжекционных лазеров*, М.: Наука, 1983.