

Автосинхронизация модуляции заселенности энергетических уровней электронами, создаваемой пикосекундными импульсами зондирующего и собственного стимулированного излучений в GaAs

© Н.Н. Агеева, И.Л. Броневова, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов

Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова Российской академии наук,
125009 Москва, Россия

E-mail: bil@cplire.ru

(Получена 24 марта 2016 г. Принята к печати 25 марта 2016 г.)

Пикосекундная оптическая накачка приводила к разгоранию собственного пикосекундного стимулированного излучения в GaAs. Как установлено ранее, из-за взаимодействия импульсов зондирующего и собственного излучений зависимость поглощения в GaAs зондирующего импульса α от его задержки относительно накачки τ модулировалась осцилляциями. Обнаружено, что осциллирующие зависимости $\alpha(\tau)$ имеют схожую форму только при определенных сочетаниях энергий взаимодействующих импульсов. Отсюда предполагается, что взаимодействие — это синхронизация создаваемых импульсами модуляций заселенностей носителей заряда, происходящая в направлении восстановления детального равновесия. Впервые измерена в реальном времени пикосекундная автомодуляция поглощения α . Ее характеристики и характеристики автомодуляции поглощения α и собственного излучения, ранее измеренные корреляционными методами, объясняются на основе представления о синхронизации.

1. Введение

В наших предшествующих работах (см. обзор [1] и [2,3]) были обнаружены следующие явления, имеющие отношение к предмету исследований в настоящей работе. Во время мощной пикосекундной оптической накачки тонкого слоя GaAs в нем создается инверсия заселенностей электронов и разгорается собственное интенсивное пикосекундное стимулированное излучение. Разнообразные характеристики энергий спектральных компонент излучения оказались согласованно автомодулированными. Затем была обнаружена автомодуляция фундаментального поглощения зондирующего пикосекундного импульса света в слое фотовозбужденного GaAs. Обозначим коэффициент этого поглощения α . Были исследованы характеристики модуляции как спектра этого поглощения, так и поглощения избранных спектральных компонент зондирующего импульса. Установлено, что формы автомодуляции спектра поглощения зондирующего импульса и автомодуляции спектра обеднения заселенностей, „выжигаемого“ излучением, подобны. Подобие устанавливается для восстановления детального равновесия при электрон-ЛО-фононном взаимодействии. Пикосекундные осцилляции обеднения заселенностей возникают под воздействием поля излучения, и их частота количественно не противоречит теории возмущений, изложенной в [4]. Похоже, что по аналогичной причине возникала автомодуляция пикосекундного импульса излучения полупроводникового лазера в [5]. Для корректности отметим, что осцилляции спектра поглощения, подобные исследованным нами в [6], просматривались в работе [7], но на них там не сосредоточивалось внимание.

В работе [8] было установлено, что осцилляции, модулирующие зависимость α от задержки τ зондирующего импульса (p -импульса) относительно накачки, вызваны взаимодействием между p -импульсом и спектральной компонентой собственного излучения GaAs (далее поясняемой и называемой s -импульсом). На основании сходства между осцилляциями поглощения и обнаруженной в [9] автомодуляцией характеристик собственного излучения было выдвинуто предположение, что в их основе лежит один и тот же тип неизвестного взаимодействия световых импульсов в активной среде. Это взаимодействие, как выяснено в настоящей работе, представляет собой процесс синхронизации автоколебаний отклонений заселенностей энергетических уровней. Имеются в виду отклонения от квазиравновесного распределения электронов, созданные импульсами. При этом синхронизация — это способ поддержания детального равновесия в фотовозбужденном GaAs.

В настоящей работе также впервые измерена в реальном времени пикосекундная автомодуляция поглощения α . Ее характеристики качественно согласуются с представлением о синхронизации. До этого автомодуляция была обнаружена и изучалась корреляционными методами, и те результаты тоже удовлетворительно объясняются синхронизацией.

2. Эксперимент

Поглощение p -импульса в слое GaAs исследовалось по методике накачка-зондирование (excite-probe), широко используемой в оптической спектроскопии сверхбыстрых процессов [10]. Опыты проводились при комнатной температуре на пикосекундном лазерном спек-

трофотохронометрическом комплексе. Краткое представление комплекса дано в [2]. Образец представлял собой гетероструктуру $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}-\text{GaAs}-\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ с толщинами эпитаксиальных слоев 1.2–1.6–1.2 мкм соответственно. Предназначавшаяся для исследований область гетероструктуры была освобождена от подложки. Слои $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ были прозрачны для света, используемого в эксперименте. На поверхности образцов, параллельные эпитаксиальным слоям, было нанесено антиотражающее покрытие.

При межзонном поглощении мощного возбуждающего импульса (накачки) с энергией фотона $\hbar\omega_{\text{ex}} = 1.558$ эВ, падавшего на образец под углом 10° относительно нормали к его поверхности, в слое GaAs генерировалась горячая электронно-дырочная плазма (ЭДП). Ее плотность (плотность электронов и дырок $n = p > 10^{18} \text{ см}^{-3}$) была достаточной для сверхбыстрого возникновения в GaAs стимулированного (s) излучения длительностью ~ 10 пс [2]. Интенсивность излучения, усилившегося преимущественно при его распространении вдоль слоя GaAs, по оценкам [11] могла достигать $> 10^8 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$.

Зондирующий луч проходил через фотовозбужденную область слоя GaAs перпендикулярно плоскости слоя. Лучи, возбуждающий и зондирующий, были параллельно линейно поляризованы. Длительность возбуждающего и зондирующего импульсов на полувысоте (FWHM) составляла ~ 10 пс. Диаметр возбуждающего луча (FWHM) составлял 0.5 мм.

3. Измерение автомодуляции поглощения зондирующего импульса в слое GaAs корреляционным методом

Диаметр зондирующего луча (FWHM) составлял 0.3 мм. Интегральная энергия возбуждающего импульса (накачки) W_{ex} была больше на 2–3 порядка интегральной энергии зондирующего импульса W_{p1} . На образце расстояние θ между центрами фокусных пятен возбуждающего и зондирующего лучей составляло 123 мкм, как и в [8]. Выбор $\theta > 0$ вызван тем, что интенсивность s -излучения I_s неоднородна в пространстве [12] и при указанном θ оптимальна для наших опытов, как подробнее объясняется в [8]. Мы исследовали изменение коэффициента поглощения α в зависимости от задержки τ зондирующего импульса относительно накачки. Поглощение α определялось так же, как и в работе [8]. Зависимость $\alpha(\tau)$ определялась для двух соседних участков спектра зондирующего импульса, расположенных вблизи его вершины. Обозначим их как компонента 1 и компонента 2. Середина компоненты 1 совпадала с максимумом спектра зондирующего импульса, прошедшего через образец в отсутствие накачки. Середина компоненты 2 была сдвинута по спектру от середины компоненты 1 в коротковолновую сторону

на 0.5 мЭВ. Ширина каждой компоненты $\delta\hbar\omega_p = 0.4$ мЭВ. Частота следования импульсов в комплексе составляла 1.5 Гц. Это в сочетании с другими требованиями к постановке эксперимента существенно его замедляло, что вынуждало ограничивать диапазоны варьирования параметров измерений.

На рис. 1 кривая 5 представляет собой пример измеренной модулированной зависимости $\alpha(\tau)$ для компоненты 1. Как обычно, подобные зависимости $\alpha(\tau)$ могут быть разделены на две составляющие: гладко спадающую, подобную показанной штриховой линией на рисунке, и осциллирующую $\delta\alpha(\tau)$. Последняя представляет собой разность между экспериментальной зависимостью $\alpha(\tau)$ и ее гладкой составляющей. При постепенном изменении энергий W_{ex} и W_{p1} было обнаружено, что схожую форму зависимость $\delta\alpha(\tau)$ приобретает только при определенных сочетаниях энергий W_{ex} и W_{p1} . Иллюстрация этого на примере компоненты 1 приведена на рис. 1. При $W_{\text{ex}} = 2.5$ отн. ед. и $W_{p1} = 12$ отн. ед. зависимость $\delta\alpha(\tau)$ стала представлять собой непрерывную череду близких по амплитуде, узких по оси τ осцилляций, между которыми размещалась одна существенно более широкая осцилляция (рис. 1, кривая 1). Назовем такую форму зависимости $\delta\alpha(\tau)$ s -формой. После увеличения W_{p1} до 16.7 отн. ед. зависимость $\delta\alpha(\tau)$ стала походить на биения. При $W_{\text{ex}} = 3.5$ отн. ед. и $W_{p1} = 22$ отн. ед. на зависимости $\delta\alpha(\tau)$ образовалась широкая область τ , где осцилляции отсутствовали (рис. 1, кривая 3). Однако когда, сохраняя $W_{\text{ex}} = 3.5$ отн. ед., увеличили W_{p1} до 27 отн. ед., зависимость $\delta\alpha(\tau)$ стала опять схожей с s -формой (рис. 1, кривая 4). При одном и том же сочетании W_{ex} , W_{p1} форма зависимостей $\delta\alpha(\tau)$ для компонент 1 и 2 различалась, как видно из сравнения кривой 1 на рис. 1 с кривой 2, измеренной для компоненты 2. В согласии с этим для спектральной компоненты 2 зависимость $\delta\alpha(\tau)$ становилась близкой к s -форме или на ней возникала область без осцилляций уже при иных сочетаниях энергий W_{ex} и W_{p1} , чем для компоненты 1. Это различие нельзя объяснить только тем, что компоненты 1 и 2 спектра облучают образец в разное время вследствие чирпа p -импульса [13]. Относительно наблюдавшегося тушения осцилляций в некоторой области τ отметим, что прерывание осцилляций модуляций спектра поглощения при изменении τ наблюдалось в работе [14], как показывает сравнение приведенных в ней рис. 4 и 5.

4. Измерение автомодуляции поглощения α в реальном времени

В описываемом эксперименте измерялась огибающая зондирующего импульса $I_p(t)$, точнее, его спектральной компоненты шириной $\delta\hbar\omega = 0.5$ мЭВ. Измерения $I_p(t)$ выполнялись в принципе так же, как измерения огибающей компонент собственного излучения в [3]. Регистрация изменения со временем t интенсивности I_p

p-импульса, пропущенного спектрографом, производилась пикосекундной электронно-оптической камерой (ЭОК) и CCD-камерой (CCD — charge-coupled device). Двойной спектрограф использовался в режиме вычи-

тания дисперсии в качестве полосового фильтра длин волн, не искажающего длительность пропускаемого излучения. Диаметр зондирующего луча (FWHM) составлял 0.2 мм. Для возможности измерений с ЭОК энергия зондирующего импульса W_{p2} более чем на порядок превышала энергию W_{p1} в предыдущих экспериментах, в которых использовался корреляционный метод. На образце центры возбуждающего и зондирующего лучей совпадали.

Коэффициент поглощения α определяли, пользуясь тем же выражением, что и в предыдущих работах,

$$\alpha = \alpha_0 - \ln(T^1/T^0)/D, \quad (1)$$

где α_0 — коэффициент поглощения света невозбужденного образца, D — толщина слоя GaAs, T — прозрачность образца, индексы 1 и 0 здесь и далее означают наличие и отсутствие возбуждения (накачки) соответственно. Просветление $\ln(T^1/T^0)$, представлявшее собой уменьшение оптической плотности GaAs при его накачке, рассчитывалось по формуле

$$\ln(T^1/T^0) = \ln[(I_p^1/I_p^0)] = f(t), \quad (2)$$

где I_p — интенсивность зондирующего импульса в момент времени t .

Мы исследовали изменение поглощения α в зависимости от времени t при различных временах задержки τ . При этом анализу подвергалась зависимость $\alpha(t)$, измеренная центральной частью зондирующего импульса, для которой исправление отклонений, связанных с аппаратной функцией ЭОК, было просто и надежно.

Измерения проводились: а) со спектральными компонентами 1 при двух энергиях $W_{p2} = 0.27$ и 1 отн. ед., обозначим их соответственно компонента 1а и компонента 1б; б) с компонентой 2 при энергии $W_{p2} = 1$ отн. ед., обозначаемой компонента 2с (здесь отн. ед. иные, чем определявшие W_{p1}). Измерения для компонент 1б и 2с проводились в более узком диапазоне τ , чем для компоненты 1а из-за большой трудоемкости и длительности измерений. На рис. 2 кривой 1 представлена как пример полученная зависимость поглощения $\alpha_{\Sigma}(\tau)$ для компоненты 1а, где

$$\alpha_{\Sigma} = \alpha_0 - \ln(S^1/S^0)/D, \quad S = \int_{-8 \text{ ps}}^{+8 \text{ ps}} I_p(t) dt. \quad (3)$$

Зависимости $\alpha_{\Sigma}(\tau)$ осциллировали при изменении τ аналогично зависимостям, полученным в предыдущих работах. Для компонент 1а, 1б, 2с зависимости $\alpha_{\Sigma}(\tau)$ различались (проиллюстрировать это не позволяет лимитированный объем статьи). Это различие согласуется со сделанным выше выводом, что автотомодуляция зависимости $\alpha(\tau)$ меняется с W_p и энергией фотона спектральной компоненты *p*-импульса.

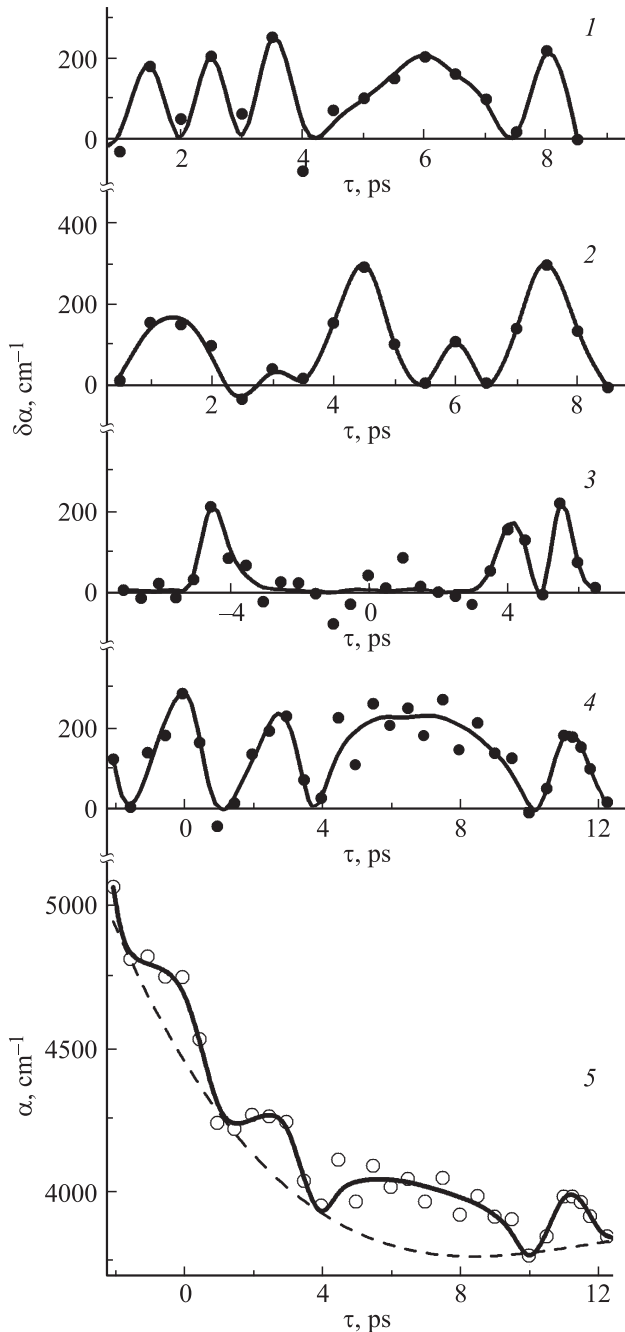


Рис. 1. Зависимость $\delta\alpha(\tau)$ — осциллирующая составляющая зависимости $\alpha(\tau)$: (1, 3, 4) — $\hbar\omega_p = 1.440$ эВ (спектральная компонента 1), $W_{ex} = 2.5$ отн. ед. и $W_{p1} = 12$ отн. ед. (1), $W_{ex} = 3.5$ отн. ед. и $W_{p1} = 22$ отн. ед. (3), $W_{ex} = 3.5$ отн. ед. и $W_{p1} = 27$ отн. ед. (4); 2 — $\hbar\omega_p = 1.4405$ эВ (спектральная компонента 2), $W_{ex} = 2.5$ отн. ед. и $W_{p1} = 12$ отн. ед.. 5 — зависимость коэффициента поглощения α от задержки τ для компоненты 1 при $W_{ex} = 3.5$ отн. ед., $W_{p1} = 27$ отн. ед., штриховая линия — гладко спадающая компонента зависимости $\alpha(\tau)$. Сплошные линии проведены для наглядности.

Зависимости $\alpha(t)$, полученные из хронограмм $I_p(t)$, измеренных при разных τ , были откорректированы с учетом аппаратной функции ЭОК. Время t отсчитывалось от вершины p -импульса. Обнаружилось, что зависимости $\alpha(t)$ модулированы. Последнее и предполагалось в наших предыдущих работах. Модуляция зависимости $\alpha(t)$, как и максимальное поглощение α при фиксированной величине τ , изменялись при изменении τ и различались для разных компонент. Наблюдавшиеся изменения представлены и обсуждаются в следующем разделе.

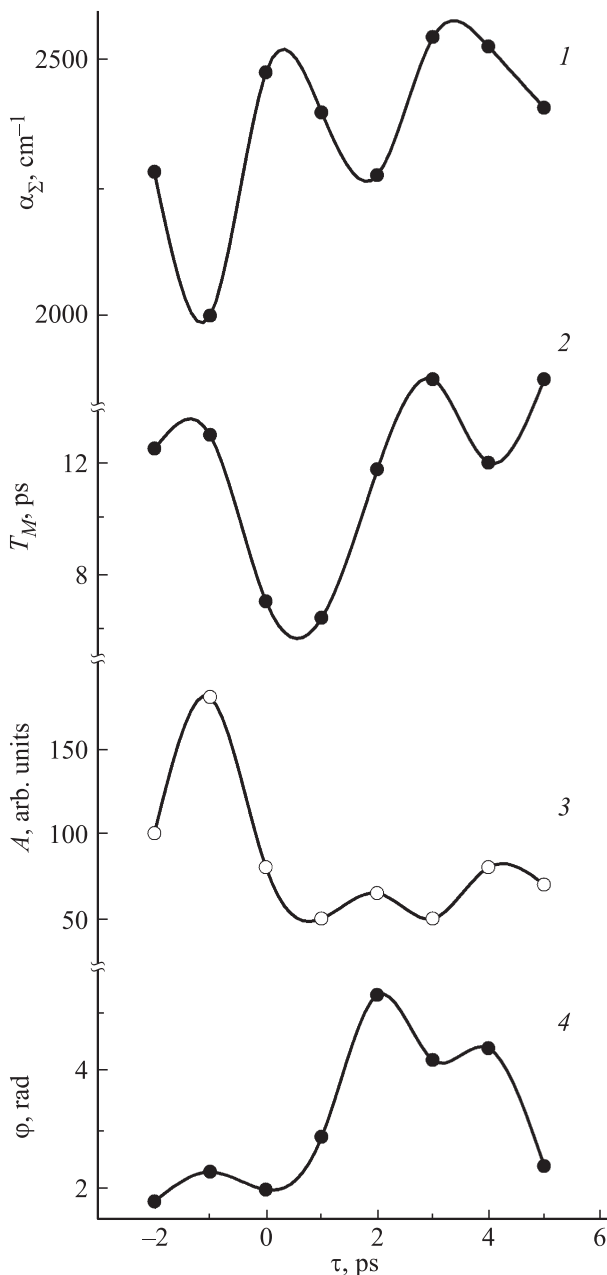


Рис. 2. Зависимости коэффициента поглощения α_S (1), периода модуляции T_M (2), амплитуды A (3) и фазовой постоянной φ (4) от времени задержки τ , измеренные при энергии фотона $\hbar\omega_p = 1.44$ эВ и энергии $W_{p2} = 0.27$ отн. ед.

5. Обсуждение результатов

5.1. Осцилляции энергии пикосекундных световых импульсов как проявление синхронизации создаваемой импульсами модуляции заселенности энергетических уровней электронами

Из измерений корреляционным методом следует, что форма осцилляционной зависимости $\delta\alpha(\tau)$ меняется, вплоть до исчезновения осцилляций на некотором интервале τ , при изменении W_{ex} , W_{p1} и спектральной компоненты p -импульса. Зависимость $\delta\alpha(\tau)$ становится подобной s -форме при избранных сочетаниях этих трех параметров. Этот новый для автомодуляции поглощения результат позволил предположить важное дополнение к интерпретации осцилляций s -излучения и поглощения p -импульса, формировавшейся в предшествующих работах. Таким дополнением является процесс синхронизации связанных осцилляторов, сформированных p - и s -импульсами вместе с созданными ими отклонениями заселенности носителями энергетических уровней зоны проводимости от квазиравновесного распределения (кратко — с модуляцией заселенности).

Выделим для дальнейшего тот резонансный (s) уровень зоны проводимости, энергия которого меньше на $\hbar\omega_{LO}$ энергии (p) уровня, на который генерируются электроны при поглощении p -импульса (здесь $\hbar\omega_{LO}$ -энергия продольного оптического (LO) фонона). При рекомбинации электронов с s -уровня излучаются фотоны с энергией

$$\hbar\omega_{sr} = \hbar\omega_p - \Delta_{LO}, \quad (4)$$

где $\Delta_{LO} = \hbar\omega_{LO}(1 + m_e/m_h)$, m_e и m_h — массы электрона и тяжелой дырки соответственно, $\hbar\omega_p$ — энергия фотона компоненты (1 или 2) зондирующего импульса. Именно компоненту s -излучения, имеющую энергию фотона $\hbar\omega_{sr}$, далее будем называть s -импульсом. Далее уже совокупности уровней, удовлетворяющих соотношению (4), мы будем обобщенно называть соответственно p -уровень и s -уровень.

Обеднения заселенностей в зоне проводимости, созданные s -излучением, должны осциллировать в поле s -излучения с периодом ~ 1 пс. Это показывают сделанные в соответствии с теорией возмущений оценки, согласующиеся с экспериментально полученной зависимостью частоты автоколебаний поглощения p -импульса от W_{ex} [11,15]. Оценки делались для экспериментов, проводившихся в условиях, схожих с настоящими. Осцилляции обеднения заселенности s -уровня должны приводить к модуляции s -импульса. Этому соответствуют экспериментальные результаты работы [5]. В ней с помощью интерферометрического автокорреляционного метода была обнаружена автомодуляция огибающей светового импульса длительностью > 10 пс, генерированного полупроводниковым лазером. Частота модуляции была 1 ТГц при интенсивности излучения лазера $\sim 10^9$ Вт/см²,

что удовлетворительно согласуется с зависимостями экспериментальной частоты автоколебаний поглощения света и расчетной частоты автоколебаний обеднения заселенностей от интенсивности стимулированного излучения, как иллюстрирует рис. 4 в [16]. Назовем осцилляции обеднения s -уровня вкупе со связанной с ними модуляцией s -импульса осциллятором O_s .

При межзонном поглощении p -импульса создается превышение над квазиравновесной заселенностью p -уровня, т.е. заселенностью при квазиравновесном распределении носителей. Этот излишек заселенности представляет собой как минимум одну осцилляцию заселенности p -уровня. Допустимо предположение (опять в соответствии с теорией возмущений), что отклонение от равновесной заселенности p -уровня может неоднократно осциллировать в течение p -импульса под влиянием его электромагнитного поля¹ или еще и поля s -излучения. На последнее для указанной в (4) разности частот $\omega_p - \omega_{sr}$ теория возмущений ответа еще не дает. Одна ли, или несколько осцилляций заселенностей p -уровня происходят — это вызовет соответствующую модуляцию p -импульса из-за модуляции его поглощения. Модуляцию заселенности p -уровня вкупе со связанной с ней модуляцией p -импульса назовем осциллятором O_p .

При создании p -импульсом избытка заселенности p -уровня и s -импульсом обеднения заселенности s -уровня нарушается детальное равновесие переходов электронов между p - и s -уровнями, происходящих путем излучения или поглощения ЛО-фононов. Стремясь его восстановить, электроны путем излучения ЛО-фононов совершают переходы с p -уровня на s -уровень [1]. Поскольку заселенности p - и s -уровней изначально модулируются по-разному, эти переходы, в согласии с нижеследующим, стремятся синхронизовать осцилляторы O_p и O_s .

Параметры осцилляторов — это период или частота осцилляций, их фазовая постоянная и амплитуда. Согласно [17], взаимодействие между осцилляторами селективно по отношению к этим параметрам. Если исходные различие параметров не выходит за определенные пределы (иначе — зоны захвата), то осцилляторы, взаимодействуя, синхронизируются. Синхронизация включает в себя установление определенной разности фазовых постоянных осцилляторов, которая может быть и не нулевой; установление одинаковой или кратной частоты осцилляторов; энергообмен между осцилляторами. Взаимодействие осцилляторов происходит через среду, в которой они находятся. В нашем случае такой средой является фотовозбужденный GaAs. Пусть осцилляторы O_p и O_s взаимодействуют, синхронизуясь. При этом интегральная энергия δE , отдаваемая одним осциллятором другому, должна, по-видимому, осциллировать в зависимости от начальной разности их фаз. Последнюю в нашем случае задает τ . Таким образом, зависимость $\delta E(\tau)$

¹ Оценить частоту модуляции заселенности в поле p -импульса тем же косвенным методом, как аналогичную частоту в поле s -излучения в [11], невозможно. В то же время средствами для приобретения измерителя энергии одиночных пикосекундных импульсов, знание которой необходимо для оценки, авторы не располагают.

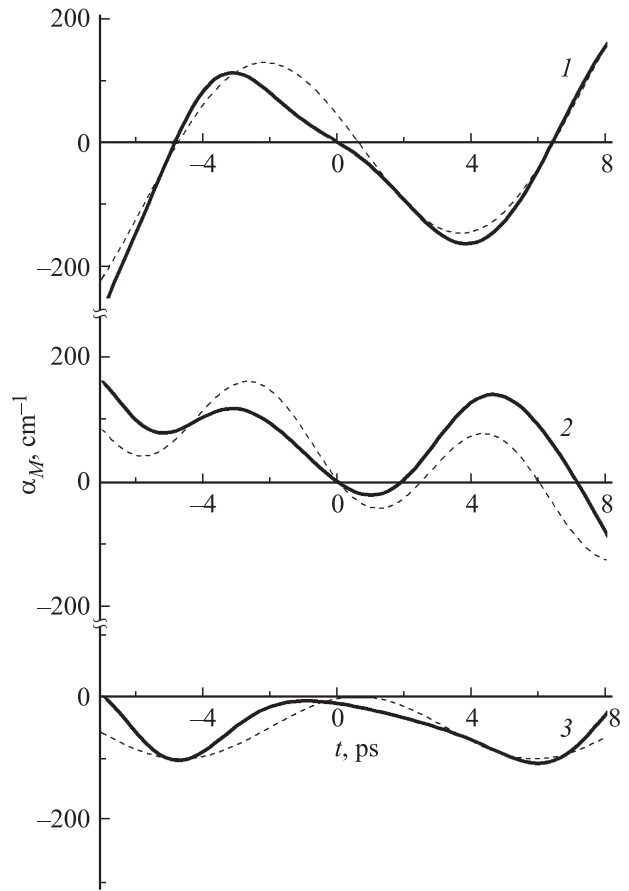


Рис. 3. Разность $\alpha_M = \alpha(t) - \alpha(t = 0)$ (сплошные линии) и ее синусоидальная аппроксимация (пунктир) для τ , пс: 1 — (-1), 2 — 0, 3 — 2.

должна быть промодулирована осцилляциями. Этому и соответствует осцилляционная зависимость $\delta\alpha(\tau)$, имеющая s -форму и отображающая осцилляции энергии p -импульса. Если различие параметров осцилляторов оказывается вне области захвата, то возникают биения или еще более сильные искажения формы осцилляций, вплоть до их гашения [17]. Таким случаям соответствуют наблюдавшиеся зависимости $\delta\alpha(\tau)$, сильно искаженные по сравнению с s -формой.

Таким образом, имеющие s -форму осцилляции $\delta\alpha(\tau)$, наблюдавшиеся только при избранных сочетаниях W_{p1} , W_{ex} и спектральной компоненты p -импульса, позволяют считать, что они отображают синхронизацию осцилляторов O_p и O_s . Изменение энергий W_{p1} и W_{ex} при фиксированной длительности накачки и p -импульса должно было приводить к изменению параметров модуляций, создаваемых соответственно s -излучением и p -импульсом. С этим согласуется изменение амплитудно-фазо-частотных характеристик спектра поглощения α при изменении W_{ex} в [18]. Естественно предположить: для того чтобы параметры осцилляторов оставались в зонах захвата и синхронизация осуществлялась, в эксперименте и приходилось при увеличении W_{p1} увеличивать W_{ex} .

5.2. Субтерагерцовая автомодуляция поглощения α в реальном времени и признаки ее синхронизации

Чтобы рассмотреть модуляцию поглощения компонент 1а, 1б, 2с при фиксированной величине τ , удобнее выделить разность $\alpha_M = \alpha(t) - \alpha(t = 0)$. Обнаружилось, что все зависимости $\alpha_M(t)$, полученные из эксперимента, можно аппроксимировать как участок синусоидальной зависимости, представляемой выражением

$$\alpha_M = A \sin\{(2\pi/T_M)[t + (\tau_0 - \tau)] + \varphi\} + kt + b, \quad (5)$$

где τ_0 — начальная задержка τ в каждой серии измерений для фиксированной компоненты. Примеры экспериментальной зависимости $\alpha_M = f(t)$ (сплошные линии) и ее синусоидальной аппроксимации (пунктир) представлены на рис. 3. Разделим зависимость $\alpha_M(t)$, как это обычно делается при рассмотрении модуляции, на осциллирующую (первое слагаемое в (5)) и гладкую (второе и третье слагаемые) составляющие. Далее в этой работе мы будем рассматривать только осциллирующую составляющую. Ее параметрами являются период T_M , амплитуда A , фазовая постоянная φ . В функции от времени задержки τ они и α_Σ для компоненты 1а приведены на рис. 2.

В качестве пока предварительной характеристики модуляции на рис. 4 (кривые 1–3) представлена в функции от интенсивности света I_c ширина диапазона изменения каждого из этих параметров ($\Delta\varphi$, ΔA , ΔT_M), т.е. разность максимального (max) и минимального (min) значений параметра в области $2 \leq \tau \leq 5$ пс, общей для всех измерений. Здесь $I_c = 0.27, 1, 0.76$ отн. ед. — интенсивность, соответственно, компонент 1а, 1б и 2с, нормированная на интенсивность компоненты 1б. Средние для диапазонов значения параметров, т.е. $(\max + \min)/2$ — $\langle T_M \rangle$, $\langle A \rangle$, $\langle \varphi \rangle$, — представлены на том же рисунке кривыми 4–6.

Как иллюстрирует рис. 2, при изменении τ менялись все три параметра модуляции T_M , A , φ . При изменении I_c менялись как ширина диапазона изменения, так и среднее значение параметра (рис. 4). Это подобно проявлениям синхронизации, но мы не можем сравнить эти изменения с теорией за неимением на сегодня теории синхронизации заселенностей носителей в фото-возбужденном полупроводнике. По той же причине мы в основном воздержимся от обсуждения некоторых, и так заметных читателю, корреляций между зависимостями $\alpha_\Sigma(\tau)$, $T_M(\tau)$, $A(\tau)$, $\varphi(\tau)$ при фиксированной W_{p2} на рис. 2, а также между зависимостями, представленными на рис. 4. Отметим лишь следующие свойства вышеприведенных характеристик.

Изменение τ приводит к изменению периода T_M . Границы изменения T_M не должны выходить за значения периодов не синхронизованных p -модуляции T_p и s -модуляции T_s . Значения периода осцилляций обеднения заселенностей, получавшиеся ранее из автомодуляции поглощения в функции от τ , были ≤ 5 пс. Поэтому можно предполагать, что нижний предел изменения T_M определяется периодом осцилляций заселенностей s -уровня T_s . В этом случае верхний предел

изменения T_M определяется периодом модуляции заселенностей p -уровня T_p . T_s и T_p — это значения периодов, которые были бы в отсутствие синхронизации. Тогда изменение периода осцилляций p -уровня происходит в пределах $T_s < T_M < T_p$.

Предположим такой случай. При максимально достигнутой степени синхронизации при какой-то задержке τ электроны интенсивно переходят с p - на s -уровень, излучая ЛО-фононы. Из-за этого поглощение p -импульса дополнительно возрастает, и T_M приближается к T_s . При минимальной степени синхронизации (или ее отсутствии) при другой величине τ поток электронов с p - на s -уровень слабее, добавка к поглощению меньше и T_M ближе к T_p . В этом случае зависимости $\alpha_\Sigma(\tau)$ и $T_M(\tau)$ должны быть в противофазе. Приближающееся к этому соотношению зависимости $\alpha_\Sigma(\tau)$ и $T_M(\tau)$ наблюдалось для компоненты 1а (см. рис. 2) и для компоненты 2с.

Предположим второй случай. При синхронизации, тоже „подтягивающей“ T_M к T_s , электроны преимущественно переходят уже с s - на p -уровень, поглощая ЛО-фононы. Это означало бы, что, когда уменьшается T_M , то уменьшается и поглощение p -импульса. Зависимости $\alpha_\Sigma(\tau)$ и $T_M(\tau)$ тогда должны приближаться к синфазности, к которой и приближались зависимости $\alpha_\Sigma(\tau)$ и $T_M(\tau)$ для компоненты 1б.

Измерения с компонентами 1б и 2с выполнялись в разных экспериментах для компонент приблизительно одного импульса. Отношение интенсивностей компонент 1б и 2с равнялось 1.3. Соответственно можно допустить, что при синхронизации компоненты меньшей интенсивности p -импульса ЛО-фононы генерируются, а при синхронизации компоненты большей интенсивности того же импульса они поглощаются. Это не противоречит наблюдавшемуся и прежде различию автомодуляции зависимости $\alpha(\tau)$ для разных спектральных компонент зондирующего импульса.

Для последующих исследований можно выдвинуть предположение, что процесс синхронизации — это процесс вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) p - и s -импульсов, происходящий с участием электрон-ЛО-фононного взаимодействия, тем более что об активности собственного стимулированного излучения по отношению к ВКР свидетельствует обнаруженное ранее ВКР с участием плазмонов [19]. Кроме того, возникновение комбинационных переходов типа трехволнового смешения уже приходилось предположить для объяснения как автомодуляции спектра собственного излучения в [3], так и автомодуляции спектра поглощения зондирующего импульса в [18], причем по крайней мере в первом случае с течением времени направление перехода должно меняться на противоположное.

Заметим, что обнаруженные при зондировании автомодуляция и проявления синхронизации свидетельствуют о том, что подобное же должно происходить с заселенностями энергетических уровней на дне зоны проводимости, т.е. их автомодуляция и синхронизация (последняя, по-видимому, путем комбинационного рассеяния). Мы подразумеваем заселенности уровней, с

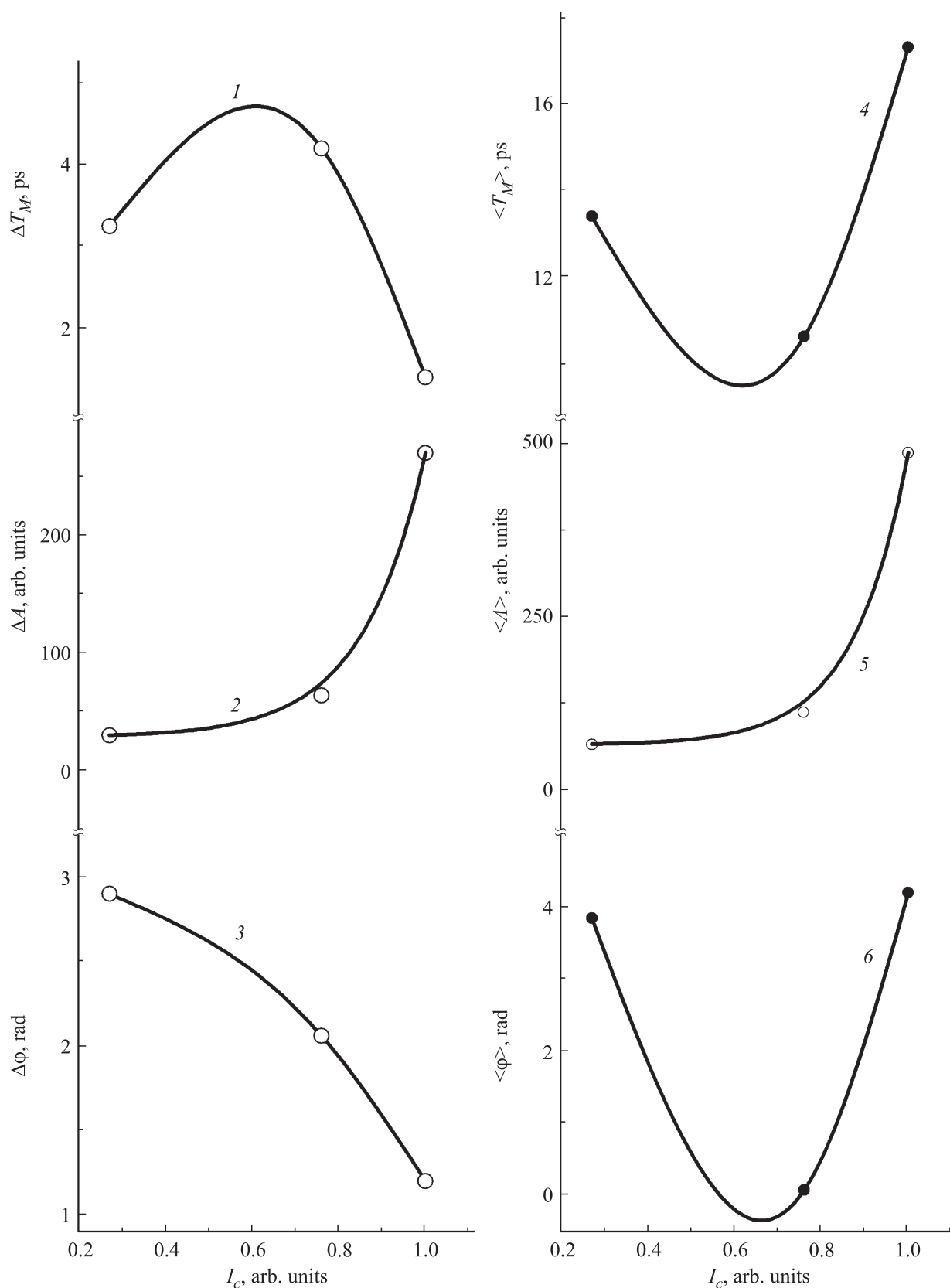


Рис. 4. Зависимости от интенсивности I_c диапазонов ΔT_M (1), ΔA (2), $\Delta \varphi$ (3), средних значений $\langle T_M \rangle$ (4), $\langle A \rangle$ (5), $\langle \varphi \rangle$ (6) для области $2 \leq \tau \leq 5$ пс (см. пояснения в тексте).

которых вынужденно рекомбинируют электроны, генерируя интенсивное стимулированное излучение GaAs.

Далее представление о синхронизации используется для объяснения результатов предыдущих работ.

5.3. Осцилляции поглощения α при изменении W_{ex}

В [8] наблюдались осцилляции поглощения при изменении W_{ex} и фиксированных W_p , τ . Увеличение W_{ex} приводит к возрастанию энергии излучения W_s [1] и, вероятнее всего, интенсивности s -импульса, а значит, и частоты осциллятора O_s . По мере увеличения этой частоты она то попадает в область захвата, то покидает таковую. В зависимости от этого синхронизация осцилляторов O_s и O_p с соответствующим их энергообменом по мере изменения W_{ex} то устанавливается, то не возникает.

5.4. Бистабильная автомодуляция спектра собственного излучения — разновидность эффекта конкуренции и переключения спектральных мод

В [3] наблюдалось изменение со временем t модуляции спектра s -излучения еще до достижения им торцов образца. Для этого измерялось излучение, вытекавшее из активной области вследствие несовершенства волноводных свойств гетероструктуры. Требуемая точность измерений не позволяла измерять s -импульсы спектральной шириной $\delta\hbar\omega_s < 7.5$ мэВ. Представление о модуляции спектра дает кривая 1 на рис. 5. Модуляцию можно представить как автоколебания интенсивности собственных мод активного резонатора (каковым является слой GaAs) относительно усредненного гладкого спектра интенсивности излучения, показанного штриховой линией на рис. 5. К возникновению таких автоколебаний приводит нарушение детального равновесия из-за того, что время начала разгорания мод осциллирует в зависимости от их энергии фотона. Синхронизация трех соседних мод состояла в том, что две крайние (i) моды колебались в фазе, тогда как относительно них средняя (h) мода колебалась в противофазе (i - и h -моды относятся к двум разным наборам эквидистантных мод в [3]). Это иллюстрируют кривые 2 и 3 на рис. 5, причем, поскольку колебания двух крайних мод почти одинаковы, приведены колебания одной из них (см. кривую 2). Комбинационный переход, с помощью которого могла осуществляться такая форма синхронизации, предположен как разновидность ВКР в [3]. Примечательно, что осцилляции не прекращаются после того, как при $t \approx 18$ пс они проходят через нуль (кривые 2, 3 на рис. 5), а продолжают. Это, во-первых, вновь подтверждает, что спектральные компоненты s -излучения вместе с созданными ими обеднениями заселенностей ведут себя как связанные осцилляторы. Во-вторых, это соответствует поддержанию детального равновесия в форме синхронизации осцилляторов.

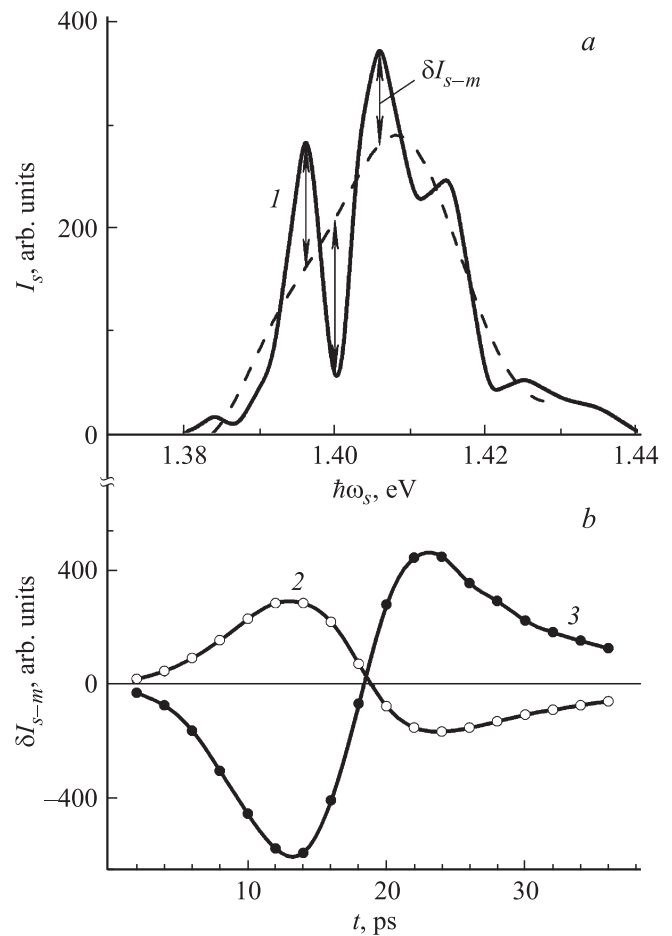


Рис. 5. *a* — мгновенный (при $t = 6$ пс) спектр s -излучения (I , сплошная кривая) [3] и усредненный гладкий спектр s -излучения (штриховая), I_s — интенсивность s -излучения; стрелки иллюстрируют отклонение интенсивности собственных мод слоя GaAs от гладкого спектра — ΔI_{s-m} . *b* — зависимость $\Delta I_{s-m}(t)$ при энергии фотона $\hbar\omega_s$, эВ: 2 — 1.395, 3 — 1.400.

Несмотря на модуляцию мгновенных спектров излучения, зависимость интегральной по спектру интенсивности излучения от времени $I_{\Sigma}(t)$ и интегральный по времени спектр s -излучения $W_s(\hbar\omega_s)$ оказались гладкими. Это подтверждает, что синхронизация осцилляторов происходит для восстановления детального равновесия. Заметим, что доказательства поддержания детального равновесия были получены и при анализе автомодуляции спектров поглощения в [11].

Описанным образом можно попытаться объяснить конкуренцию и переключение спектральных мод в лазере.

5.5. Возможность образования доменной структуры

Отдельно отметим зависимость фазовой постоянной ϕ осцилляций $\delta\alpha(\tau)$ от $\hbar\omega_p$, представленную в [18] кривой 1 на рис. 6, *a*. Она была получена пока при из-

бранных параметрах эксперимента. Зависимость $\varphi(\hbar\omega_p)$ имела форму, близкую к меандру. Разность между φ верхних и φ нижних горизонтальных участков меандра была равна π . Это может соответствовать тому, что в спектре осцилляторов, сформированных спектральными модами s -излучения вместе с созданными ими отклонениями заселенности, осцилляторы группируются в домены, в каждом домене осцилляторы синфазны, а в каждых двух соседних доменах осцилляторы колеблются в противофазе. Тогда это еще одно подтверждение синхронизации осцилляторов. Напомним, синхронизация вообще наступает, когда разность фазовых постоянных связанных осцилляторов равна 0 или π (и энергообмен между ними отсутствует). Деление на домены может происходить для поддержания детального равновесия. Представлению о доменах соответствуют и осциллирующие зависимости амплитуды A_1 и параметра A_0 автоколебаний поглощения от $\hbar\omega_p$, представленные в [18] на рис. 5, а (совместно упомянутые зависимости $\varphi(\hbar\omega_p)$, $A_1(\hbar\omega_p)$ и $A_0(\hbar\omega_p)$ показаны в [1,16]). С обсуждаемой фазовой характеристикой $\varphi(\hbar\omega_p)$ согласуются и комбинационные переходы носителей заряда, подобные схематически представленным на рис. 7 в [3]. Возможно, вышеуказанная причина образования доменов и привела к тому, что в эксперименте форма осцилляционной зависимости $\delta\alpha(\tau)$ менялась в зависимости от спектральной компоненты p -импульса.

5.6. Соотношение между параметрами автомодуляции характеристик s -излучения

В [9] было экспериментально получено соотношение между параметрами автомодуляции характеристик s -излучения, выходящего из торца слоя GaAs:

$$2\pi/\Delta\omega_s \approx \Delta\tau \approx 4\Delta Y/c_g \approx T_s \quad (6)$$

(обозначения поясняются далее). Образец и накачка в [9] были приблизительно такими же, как в настоящей работе. Теперь это соотношение можно интерпретировать следующим образом. В поле s -излучения возникают колебания обеднений заселенностей энергетических уровней зоны проводимости [11]. В соотношении (6) период этих колебаний $T_s \approx 4$ пс [9]. Колебания заселенностей приводят к автомодуляции с периодом T_s s -излучения. Модуляция s -излучения должна сопровождаться автомодуляцией с периодом $\Delta\omega_s \approx 2\pi/T_s$ спектра s -импульса [20]. Такая автомодуляция спектра наблюдалась в [9].

Член $\Delta\tau$ — это период осцилляций $\delta E(\tau)$ в [9], где δE — энергия осциллирующей с τ компоненты s -импульса. В [9] осцилляции $\delta E(\tau)$ наблюдались, когда помимо накачки образец облучался еще мощным p -импульсом. Мы использовали обозначение δE , поскольку, как и выше, оно определяет энергию, которой обмениваются p -импульс с s -импульсом. Природа осцилляций $\delta E(\tau)$ уже объяснялась выше, когда они проявлялись в $\delta\alpha(\tau)$ как осцилляции энергии p -импульса.

В [9] осцилляции $\delta E(\tau)$ проявились уже как осцилляции энергии s -импульса. Это подтверждается равенством $\Delta\tau \approx T_s$ в (6).

Заметим, что в [9] осцилляции $\delta E(\tau)$ наблюдались на значительном интервале τ при некоторой энергии фотона s -излучения $\hbar\omega_s$. Одновременно при большей на 1 мэВ $\hbar\omega_s$ осцилляция уже не было. Это схоже с той ситуацией в настоящей работе, когда при одних и тех же W_{ex} , W_{p1} для компоненты 2 наблюдались осцилляции $\delta\alpha(\tau)$, а для компоненты 1 они отсутствовали на значительном интервале τ .

Объяснить член с ΔY в (6) можно следующим образом. Как и выше, будем называть осциллятором O_s осцилляции обеднения s -уровня вместе со связанной с ними модуляцией s -импульса. Однако только на данном этапе будем относить это определение к s -импульсу, движущемуся из активной области к торцу. Осцилляции обеднения s_r -уровня вместе со связанной с ними модуляцией s_r -импульса, возвращающегося в активную область после отражения от торца, назовем осциллятором O_r . Совокупности уровней под обобщающими названиями s -уровень и s_r -уровень находятся в одной и той же области энергий, но различаются волновыми векторами. Для восстановления детального равновесия между заселенностями s - и s_r -уровней осцилляторы O_s и O_r взаимодействуют, стремясь синхронизоваться. Изменение расстояния Y между центром активной области и торцом гетероструктуры приводит к изменению фазы φ_r осциллятора O_r . По мере изменения φ_r (через уменьшение Y) синхронизация модуляций обеднений s - и s_r -уровней то устанавливалась, и тогда наблюдалась рассмотренная выше модуляция спектра излучения из торца, то разрушалась, и тогда наблюдались немодулированные, гладкие спектры. В эксперименте модуляция спектра пропадала и вновь возникала с периодом $\Delta Y = T_s c_g / 4$, где c_g — групповая скорость света. Как уже говорилось выше, синхронизация двух связанных осцилляторов наступает, когда разность их фаз равна 0 или кратна π . В согласии с этим изменение φ_r на π и происходит при изменении Y на ΔY , потому что сдвиг на ΔY уменьшает путь излучения от активной области до торца и обратно на половину длины волны модуляции $\lambda_m/2 = c_g T_s / 2 = 2\Delta Y$. Таким образом, наблюдавшиеся в [9] осцилляции энергии s -импульса в функции Y можно объяснить тем, что при изменении Y синхронизация осцилляторов O_s и O_r образуется и исчезает с периодом ΔY , а при наличии синхронизации и в ее отсутствие энергия s -импульса разная.

Интересно заметить, что описанные условия установления синхронизации путем изменения Y имели бы сходство с настройкой резонатора лазера, если бы активная область могла выполнять функцию второго зеркала для автомодуляции с длиной волны λ_m (первым „зеркалом“ является торец образца).

6. Заключение

Новые экспериментальные результаты позволили предложить следующее представление (частично коли-

чественное, частично качественное), из которого выводятся известные нам проявления автомодуляции пикосекундных импульсов зондирующего и собственного стимулированного излучений, экспериментально обнаруженные в GaAs. В нижней части зоны проводимости (Γ_6 -долины) интенсивно возбужденного тонкого слоя GaAs распределение электронов является не фермиевским, а осциллирующим. Осциллируют обеднения инверсных заселенностей энергетических уровней, „выжигаемые“ спектральными модами мощного собственного стимулированного излучения GaAs. Частоту осцилляций определяет, в соответствии с теорией возмущений, интенсивность излучения. Осцилляции синхронизируются так, чтобы их амплитудно-фазо-частотная характеристика „обеспечивала“ детальное равновесие переходов электронов между их состояниями. Эти переходы являются составной частью вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) спектральных мод излучения. Поскольку процессы ВКР должны быть коррелированными для упоминавшегося детального равновесия, то вместе их можно отнести к категории мультиволнового смещения в нелинейной оптике [21]. Вышеуказанные осцилляции заселенностей транслируются вверх по зоне проводимости для детального равновесия при электрон-ЛО-фононном взаимодействии, приводя к автомодуляции фундаментального поглощения света в GaAs. То, насколько высоко распространяется трансляция, зависит от степени экранирования электрон-ЛО-фононного взаимодействия носителями заряда, т.е. от плотности последних. Благодаря подобной трансляции зондирование внешним световым импульсом является эффективным способом исследования нелинейной динамики заселенностей на дне зоны проводимости GaAs, генерирующего излучение. Такая интерпретация дает поле деятельности по ее дальнейшей проверке, уточнению и приложениям.

Настоящая работа, как и ранее [2,3], была выполнена в значительной степени благодаря превосходной пикосекундной электронно-оптической камере, созданной в отделе фотоэлектроники ИОФ им. А.М. Прохорова РАН. Авторы также глубоко признательны Э.А. Манькину за внимательное прочтение и скрупулезное обсуждение рукописи статьи.

Список литературы

- [1] N.N. Ageeva, I.L. Bronevoi, D.N. Zabegaev, A.N. Krivonosov. *Physica Status Solidi C*, **8** (4), 1211 (2011).
- [2] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. *ЖЭТФ*, **143**, 634 (2013).
- [3] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. *ЖЭТФ*, **144**, 227 (2013).
- [4] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Квантовая механика* (М., Физматлит, 2001) т. 3, с. 185, задача 1.
- [5] П.П. Васильев. *Квант. электрон.*, **21**, 585 (1994).
- [6] I.L. Bronevoi, A.N. Krivonosov, V.I. Perel'. *Sol. St. Commun.*, **94**, 805 (1995).
- [7] D. Hulin, M. Joffre, A. Migus, J.L. Oudar, J. Dubard, F. Alexandre. *J. de Phys.*, **48**, 267 (1987).
- [8] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. *ЖЭТФ*, **147**, 765 (2015).
- [9] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, А.Н. Кривоносов, С.Е. Кумков, Т.А. Налет, С.В. Стеганцов. *ФТП*, **39**, 681 (2005).
- [10] *Сверхкороткие световые импульсы*, под ред. С. Шапиро (М., Мир, 1981).
- [11] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. *ФТП*, **44**, 1157 (2010).
- [12] L.W. Casperson. *J. Appl. Phys.*, **48**, 256 (1977).
- [13] А. Пискарскас, А. Стабинис, А. Умбрасас, А. Янкаускас. *Квант. электрон.*, **12**, 2335 (1985).
- [14] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, А.Н. Кривоносов, С.В. Стеганцов. *ФТП*, **40**, 806 (2006).
- [15] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. *ФТП*, **44**, 1328 (2010).
- [16] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. *Журн. радиоэлектрон.*, **10**, 1 (2012). <http://jre.cplire.ru/jre/oct12/3/text.html>
- [17] А. Пиковский, М. Розенблюм, Ю. Куртс. *Синхронизация. Фундаментальное нелинейное явление* (М., Техносфера, 2003).
- [18] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневои, А.Н. Кривоносов. *ФТП*, **42**, 1426 (2008).
- [19] I.L. Bronevoi, A.N. Krivonosov, V.I. Perel'. *Sol. St. Commun.*, **94**, 363 (1995).
- [20] Ф. Крауфорд. *Волны* (М., Наука, 1974).
- [21] И.Р. Шен. *Принципы нелинейной оптики* (М., Наука, 1989).

Редактор Л.В. Шаронова

Self-synchronization of electron energy levels population modulation created by probing and intrinsic stimulated emission picosecond pulses in GaAs

N.N. Ageeva, I.L. Bronevoi, D.N. Zabegaev, A.N. Krivonosov

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

Abstract Picosecond optical pumping led to intrinsic picosecond stimulated emission rise in GaAs. As was established earlier interaction between probing pulse and intrinsic emission pulse in GaAs led to dependence of absorption of a probing pulse α from its delay in regard to pumping τ . This dependence was modulated by oscillations. It was found that oscillated dependences $\alpha(\tau)$ have similar shape only under certain combinations of interaction pulses energies. This assumes that interaction is a synchronization of charge carriers population modulations created by pulses. This synchronization occurs for detailed balance reconstruction. For the first time picosecond absorption self-modulation α is measured in real-time. Its characteristics as well as absorption self-modulation α and intrinsic emission characteristics, measured by correlation methods earlier, is explained on the assumption of synchronization concept.