

Многофункциональная установка для измерения резонансных оптических откликов полупроводниковых структур в видимом и ближнем ИК-диапазонах с субпикосекундным временным разрешением

© Д.И. Курицын,^{1,2} С.М. Сергеев,¹ Л.В. Гавриленко,^{1,2} Д.М. Гапонова,^{1,2} З.Ф. Красильник^{1,2}

¹ Институт физики микроструктур РАН,
603950 Нижний Новгород, Россия

² Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
603950 Нижний Новгород, Россия
email: dk@ipmras.ru

(Поступило в Редакцию 30 мая 2014 г.)

Представлена многофункциональная установка для когерентной оптической спектроскопии с возбуждением полупроводниковых структур в диапазоне длин волн 750–1800 nm и временным разрешением от ~ 100 fs. При минимальной перестройке установка позволяет проводить измерения кинетики фотолюминесценции, фотонного эха, четырехволнового смешивания при возбуждении образца времякоррелированной последовательностью фемтосекундных лазерных импульсов. Приведены результаты выполненных на установке отдельных оптических экспериментов.

Введение

Современное развитие лазерной техники, позволяющее формировать последовательность сверхкоротких (~ 100 fs) фазово-коррелированных импульсов, сделало доступными исследования индуцированной когерентной поляризации в полупроводниковых гетероструктурах, определение времен фазовой релаксации, времен релаксации по энергии и импульсу. Сложение на нелинейном кристалле сигналов возбуждающего излучения и полезного сигнала позволяет использовать для измерений сверхбыстрой динамики электронов инерционные детекторы, в частности, чувствительные фотоэлектронные умножители. В настоящей работе используется два таких метода: ап-конверсия (up-conversion) [1–3] и возбуждение–зондирование (pump-probe).

Метод up-conversion основан на взаимодействии в нелинейном оптическом элементе оптического отклика образца с лазерным импульсом, например сигнала фотолюминесценции (ФЛ), и собственно лазерного импульса (возбуждающего излучения). Излучение с суммарной частотой возникает при совпадении во времени сигналов фотолюминесценции и возбуждающего излучения на нелинейном кристалле. Использование линии задержки для возбуждающего излучения, падающего на нелинейный кристалл, позволяет изучать зависимость сигнала фотолюминесценции от времени.

Техника pump-probe предполагает возбуждение образца возбуждающим импульсом (импульсами) и регистрацию его оптического отклика на пробный импульс. В зависимости от энергии падающих фотонов, взаимной поляризации пучков, их количества, направления волновых векторов, разности фаз между ними возможны измерения некогерентных (времяразрешенное поглоще-

ние, отражение, депопуляция, диффузия носителей), и когерентных (четырёхволновое смешивание, фотонное эхо, релаксация спина) процессов. Пространственное и временное разделение лазерных импульсов в спектроскопии фотонного эха позволяет выявить в сложной динамической и спектральной картине время депопуляции (релаксации населенности, или T_1), а так же дефазировки (T_2), определяемое однородным уширением [1,2].

В настоящей работе представлена многофункциональная экспериментальная установка, созданная на базе системы FOG-100 и дополненная оптическими системами формирования серии фазово-коррелированных фемто- и пикосекундных импульсов и частотного преобразования импульсов гейта. Модернизированная оптическая схема позволяет при минимальной перестройке проведение разноплановых экспериментов по измерению временных характеристик ФЛ, фазового контроля, 4-волнового смешивания, двух- и трехимпульсного фотонного эха.

Описание установки

Многофункциональная установка создана на базе системы up-conversion FOG-100 (изготовитель — CDP Corp., Россия). Входящие в ее состав электронный блок счета фотонов, линия задержки (DL4), двойной монохроматор вместе с программным обеспечением были дополнены компьютеризированными линиями задержки (DL1–DL3) и возможностью работы программы регистрации данных с синхронным усилителем. Общая схема установки показана на рис.1.

В качестве источника возбуждающего излучения использовался титан-сапфировый лазер Tsunami (Spectra-Physics), перестраиваемый в диапазоне 720–950 nm, со средней мощностью излучения 2.4 W, длительностью

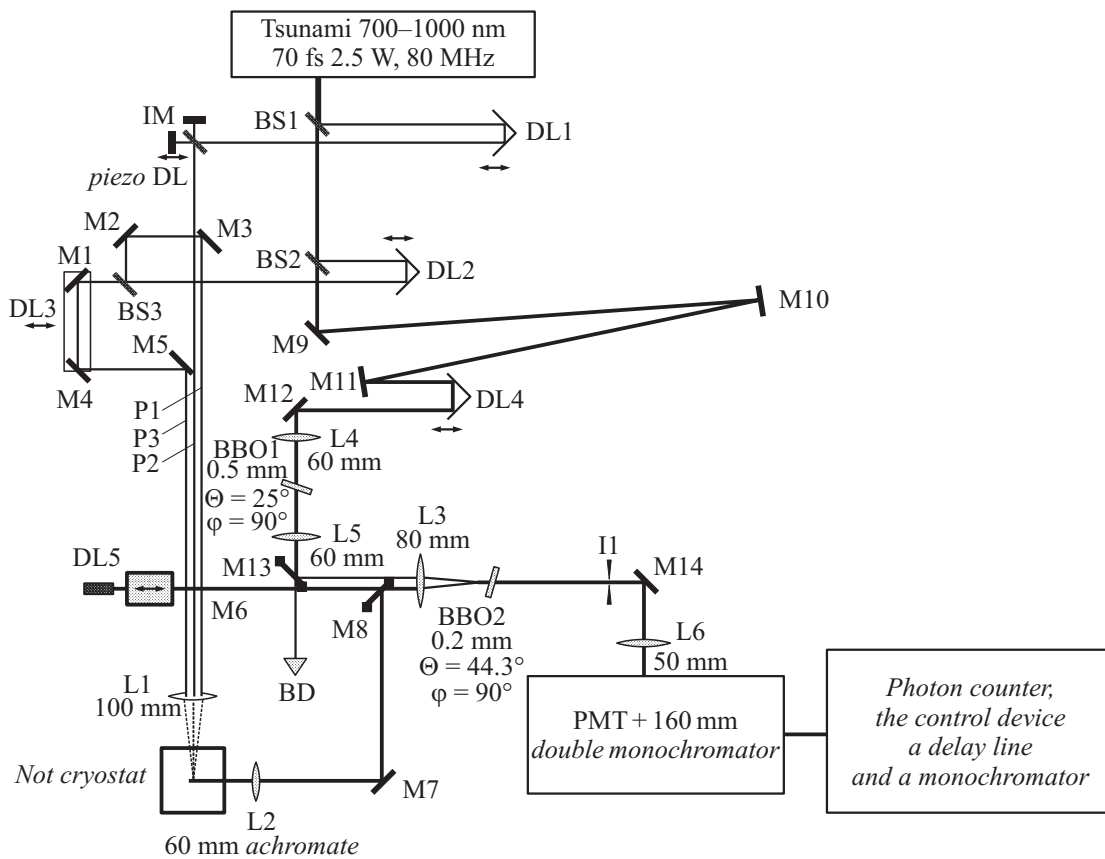


Рис. 1. Оптическая схема установки когерентного контроля. M1–M5, M9–M14 — поворотные диэлектрические зеркала, M6–M8 — металлические зеркала (M6, M8 — удаляемые), BS1–BS3 — делители пучка, DL1–DL4 — линии задержки (DL2–DL4) — моторизованные, IM — интерферометр Майкельсона с пьезоподвижкой, L1–L6 — линзы, BBO 1,2 — нелинейные кристаллы, BD — ловушка для пучка, I1 — диафрагма, PMT — фотоумножитель. Моторизованная линия задержки DL4, двойной монохроматор, фотоумножитель с блоком счета фотонов взяты от системы FOG-100.

импульса ~ 80 fs и частотой следования 80 MHz. В зависимости от используемых делителей пучка BS1–BS3 средняя мощность в каналах P1–P3 может варьировать от 20 до 150 mW.

Стандартная схема up-conversion предполагает использование одного и того же импульса лазера как для возбуждения образца, так и для накачки нелинейного кристалла (гейта). Данный подход использовался авторами, например, в [4–6]. Использование в обеих целях сигнала на одной и той же частоте допустимо, например, при исследовании временной динамики ФЛ, когда детектируемый сигнал отличен по частоте от лазерного излучения. При исследовании когерентных процессов часто возникает необходимость измерять сигнал, близкий по частоте к возбуждающему излучению, что приводит к очень мощному неустраняемому фону рассеянного света на удвоенной частоте лазерного импульса (гейта), совпадающего с длиной волны суммарного сигнала (исследуемого сигнала и гейта), что делает невозможным регистрацию резонансных откликов от структуры. Одно из решений данной проблемы состоит в изменении частоты гейта с помощью оптического параметрического усилителя [1]. В настоящей работе

предлагается использовать в качестве сигнала гейта импульс возбуждающего лазера, удвоенный по частоте.

Формирование импульса гейта для BBO2 (Type I, $\varphi = 44.3^\circ$ $\theta = 90^\circ$) происходит на кристалле BBO1 (Type II, $\varphi = 25^\circ$ $\theta = 90^\circ$) с эффективностью ~ 0.15 , что соответствует ~ 150 mW средней мощности в окрестности 400 nm. При смешивании отраженного от структуры лазерного импульса (780 nm, 150 nW) с импульсом гейта (390 nm, 150 mW) на кристалле BBO2 количество зарегистрированных на длине волны 260 nm отсчетов достигает $2 \cdot 10^6$ s⁻¹, что соответствует эффективности счета излученных образцом фотонов $2 \cdot 10^{-6}$ s⁻¹.

Сигнал оптического отклика образца (фотолюминесценции или когерентного оптического отклика) в данной установке может направляться двумя путями: L2-M7-M8-L3, либо L1-M6-L3. Первый путь удобен для регистрации сигнала, сильно отличающегося по частоте от возбуждающего, как это имеет место при наблюдении ФЛ; второй путь используется для случая совпадения длин волн возбуждения и регистрации, при этом наличие второго нелинейного кристалла BBO2 позволяет полностью исключить влияние рассеянного света (как комнатного фона, так и второй гармоники гейта) на систему

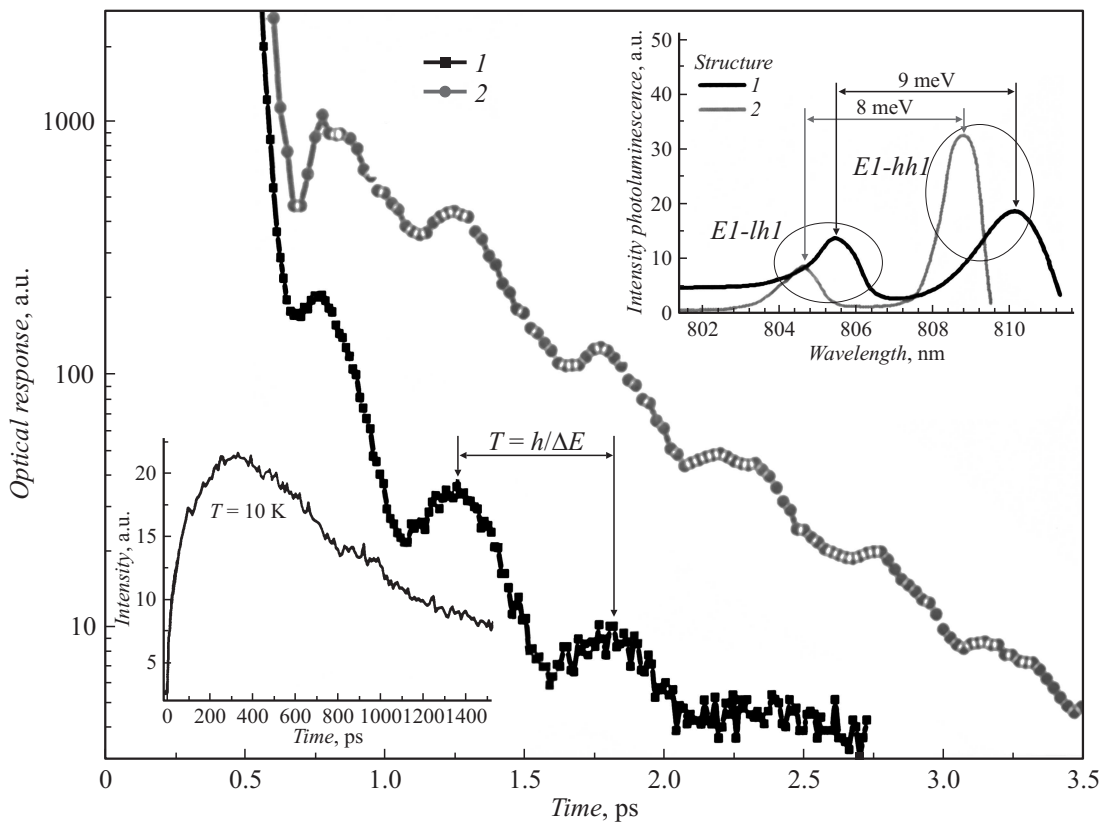


Рис. 2. Резонансный оптический отклик гетероструктур AlGaAs/GaAs. Длина волны возбуждения и регистрации 808 nm. Время накопления 500 nm (усреднение по 3–8 кривым). $T = 10$ K. На вставке сверху показаны спектры возбуждения исследуемых структур при низких температурах, на вставке внизу слева показана кинетика ФЛ-структуры на длине волны 806 nm при нерезонансном возбуждении (760 nm), измеренная по стандартной методике up-conversion.

регистрации. Один набор оптики — соответствующий нелинейный кристалл и диэлектрические зеркала — позволяет исследовать оптические отклики структур (совпадающие по длине волны с возбуждением) в диапазоне 760–880 nm. При этом регистрация суммарной гармоники производится на длинах волн 250–290 nm, что исключает фоновую засветку и система регистрации на ФЭУ может работать с количеством отсчетов до 10^6 s^{-1} при темновых порядках $\sim 5 \text{ s}^{-1}$.

Оптические измерения полупроводниковых гетероструктур

1. Резонансный отклик AlGaAs/GaAs при отражении лазерного импульса

В условиях резонансного возбуждения исследовались гетероструктуры с квантовыми ямами (КЯ) $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}/\text{GaAs}$ ($x = 0.3, 0.45$), содержащие по 3 КЯ GaAs шириной 10, 15 (16) и 28 nm. Структуры возбуждались лазерным импульсом (~ 80 fs) с энергией 1.547 eV (801 nm), что соответствовало энергии основного экситонного перехода в средней (второй) по толщине КЯ. Спектральная ширина линии возбуждения (~ 24 meV)

позволяла когерентно возбуждать в КЯ экситоны как с тяжелой, так и с легкой дыркой. Резонансный когерентный отклик образца собирался в выбранном телесном угле и фокусировался на нелинейный кристалл ВВО, где смешивался с импульсом гейта. Результирующий суммарный сигнал регистрировался с помощью двойного монохроматора и ФЭУ в режиме счета фотонов. На вставке рис. 2 приведены фрагменты спектров ФЛ данных гетероструктур. Пики в спектрах ФЛ отвечают излучательной рекомбинации тяжелых ($E1-hh1$) и легких ($E1-lh1$) экситонов. Расстояния между пиками составляет 8 и 9 meV соответственно. Как показано на рис. 2, величина регистрируемого сигнала осциллирует во времени с периодом $T = h/(E_{lh} - E_{hh})$, где h — постоянная Планка, E_{lh} и E_{hh} — энергии оптических переходов для экситона с легкой и тяжелой дырками соответственно [7]. Осцилляции связаны с интерференцией близких по частоте когерентных сигналов ФЛ экситонов с легкими и тяжелыми дырками. Время затухания оптического сигнала, собранного в направлении отраженного от образца лазерного луча, характеризует время дефазировки экситонов с легкой и тяжелой дыркой. Время затухания осцилляций при регистрации сигнала вне направления отраженного луча характеризует время рассеяния

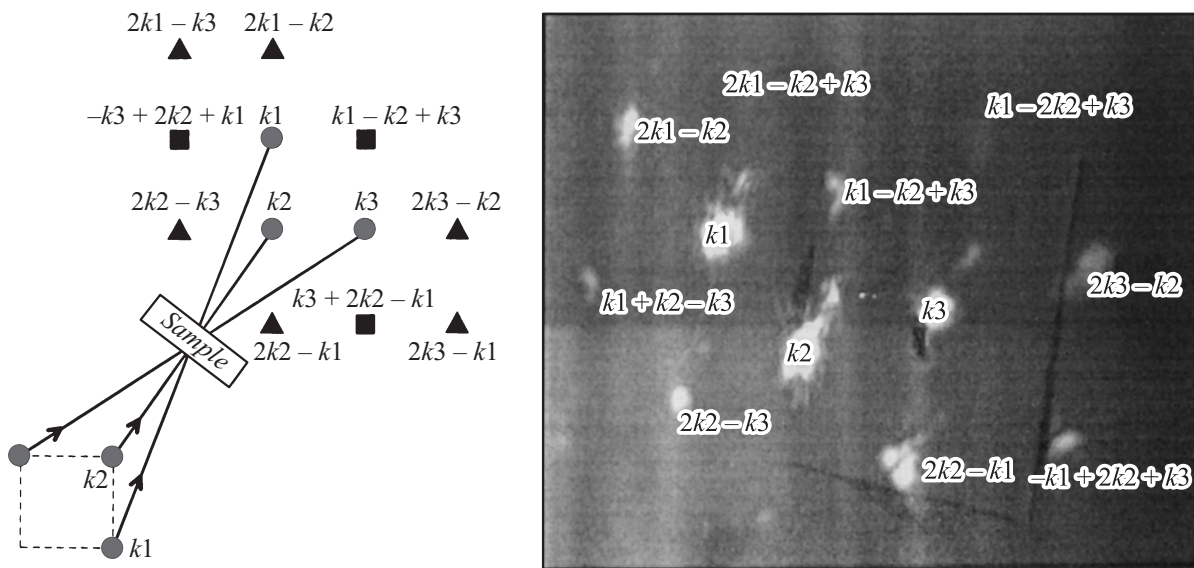


Рис. 3. Оптическая схема эксперимента КАРС и фотография результирующей дифракционной картины при взаимодействии трех неколлинеарных лазерных импульсов при резонансном возбуждении экситонов в КЯ в момент времени $T_1 = T_2 = T_3 = 0$. Буквами k_1-k_3 обозначены соответствующие импульсам P1–P3 волновые векторы.

первоначального импульса экситонных ансамблей [8,9]. Период осцилляций T составил 0.52 ps для разницы в энергиях легкого и тяжелого экситонов 8 meV (гетероструктура 1) и 0.46 ps для 9 meV (гетероструктура 2). Видно, что это время для исследуемых гетероструктур различно, но в обоих случаях не превышает 2 ps.

Возбуждение экситонных ансамблей с тяжелыми и легкими дырками последовательностью сфазированных лазерных импульсов позволяет в зависимости от времени задержки между импульсами и их относительной фазы непосредственное измерение времени потери когерентности для каждого ансамбля индивидуально [10]. Изменение времени (фазы) прихода второго импульса относительно первого с точностью до полупериода колебаний экситона, например, с тяжелой дыркой (~ 2.7 fs), вызывает усиление или гашение его когерентного отклика вследствие позитивной или деструктивной интерференции электромагнитного поля лазерного импульса с наведенной первым лазерным импульсом поляризацией (ансамбля экситонов). В установке возможность проведения подобных экспериментов обеспечивается компьютерно управляемым нанотрансдюсером в одном из плеч интерферометра Майкельсона (ИМ на рис. 1), с помощью которого можно изменять разность фаз между импульсами с шагом 0.04 fs. Данный метод (когерентного контроля) [7,11,12] может быть расширен при помощи добавления возможности регистрации времяинтегрированных спектров, как, например, в [13].

2. Фотонное эхо

Измерение фотонного эха выполняется методом pump-probe [14–18]. На рис. 3 изображена так называемая схема folded-box КАРС-эксперимента (когерентное

антистоксово рамановское рассеяние), которая позволяет регистрацию широкого круга нелинейных сигналов. В реальном эксперименте пучки P1–P3 параллельны до фокусирующей их на образец линзы (см. L1 на рис. 1), но P2 поднят относительно P1 и P3 на 5–20 nm. Пучки, отмеченные квадратами, образованы в результате дифракции третьего пучка на решетке, образованной парой других пучков (4-х волновое смешивание). Пучки, отмеченные треугольниками, возникают в результате самодифракции соответствующей пары пучков (3-х волновое смешивание). При возбуждении неоднородно уширенной системы дифракция пучка P1 на решетке, сформированной пучками P1 и P2, может рассматриваться как сигнал фотонного эха (или 4-х волнового смешивания). В случае использования трех импульсов P3 дифрагирует на голограмме, образованной пучками P1 и P2. В зависимости от взаимной поляризации пучков может быть получена информация о спиновой релаксации носителей заряда, времени дефазировки, либо о скорости диффузии носителей. Возможна регистрация оптического отклика образца в конфигурациях как на просвет, так и на отражение. При совпадении во времени всех трех импульсов получающаяся картина может выглядеть следующим образом, как это представлено на рис. 3.

Заключение

В настоящей работе представлена многофункциональная установка для исследования сверхбыстрых процессов в твердых телах, позволяющая регистрацию сигнала на частоте, совпадающей с частотой возбуждения. Доступен целый ряд экспериментальных методик: ста-

ционарная ФЛ, времяразрешенная ФЛ (апконверсия), вторичная эмиссия (при резонансном оптическом возбуждении), четырехволновое смешивание на просвет и отражение, двух- и трехимпульсное фотонное эхо, когерентный контроль. Проведены эксперименты по регистрации оптического отклика из полупроводниковой гетероструктуры при резонансном возбуждении квантовых ям с соотношением сигнал/шум 10^6 .

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 14-02-00635 и гранта Президента РФ для государственной поддержки ведущих научных школ НШ.1214.2014.2.

Список литературы

- [1] Козлов С.А., Самарцев В.В. Основы фемтосекундной оптики. М.: Физматлит, 2009. 292 с.
- [2] Евсеев И.В., Рубцова Н.Н., Самарцев В.В. Когерентные переходные процессы в оптике. М.: Физматлит, 2009. 536 с.
- [3] Eickemeyer F., Reimann K., Woerner M., Elsaesser T., Barbieri S., Sirtori C., Strasser G., Muller T., Bratschi R., Unterrainer K. // *Phys. Rev. Lett.* Vol. 89. 2002. P. 047402.
- [4] Крыжков Д.И., Морозов С.В., Гапонова Д.М., Сергеев С.М., Курицын Д.И., Маремьянин К.В., Гавриленко В.И., Садофьев Ю.Г. // *ФТП*, 2012. Т. 46. Вып. 11. С. 1440.
- [5] Алешкин В.Я., Дубинов А.А., Гавриленко Л.В., Красильник З.Ф., Курицын Д.И., Крыжков Д.И., Морозов С.В. // *ФТП*. Т. 46. Вып. 7. С. 940.
- [6] Алешкин В.Я., Востоков Н.В., Гапонова Д.М., Данильцев В.М., Дубинов А.А., Красильник З.Ф., Корытин А.И., Курицын Д.И., Пряхин Д.А., Шапкин В.И. // *ФТП*. Т. 41. Вып. 8. С. 929–933.
- [7] Planken P.C., Brener I., Nuss M.C., Luo M.S.C., Chuang S.L. // *Phys. Rev. B.* 1993. Vol. 48. P. 4903-6.
- [8] Wang Hailin, Shah Jagdeep, Damen T.C., Pfeiffer L.N. // *Phys. Rev. Lett.* 1995. Vol. 74. P. 3065.
- [9] Haacke S., Taylor R.A., Zimmermann R., Bar-Joseph I., Deveaud B. // *Phys. Rev. Lett.* 1997. Vol. 78. P. 2228.
- [10] Garro N., Snelling M.J., Kennedy S.P., Phillips R.T., Ploog K.H. // *Phys. Rev. B.* 1999. Vol. 60. P. 4497.
- [11] Luo M.S., Chuang S.L., Planken P.C.M., Brener I., Nuss M.C. // *Phys. Rev. B.* 1993. Vol. 48. P. 11043–50.
- [12] Marie X., Le Jeune P., Amand T., Brousseau M., Barrau J., Paillard M., Planel R. // *Phys. Rev. Lett.* 1997. Vol. 79. P. 3222–5.
- [13] Erland J., Lyssenko V.G., Hvam J.M. // *Phys. Rev. B.* 2001. Vol. 63. P. 155317.
- [14] Becker P.C., Fragnito H.L., Bigot J.Y., Cruz C.H.B., Fork R.L., Shank C.V. // *Phys. Rev. Lett.* 1997. Vol. 63. P. 505–507.
- [15] Nibbering E.T.J., Wiersma D.A., Duppen K. // *Phys. Rev. Lett.* 1991. Vol. 66. P. 2464–2467.
- [16] Beddard G.S., McFadyen G.G., Reid G.D., Thorne J.R.G. // *Chem. Phys.* 1993. Vol. 172. P. 363–375.
- [17] Voehringer P., Arnett D.C., Westervelt R.A., Feldstein M.J., Scherer N.F. // *J. Chem. Phys.* 1995. Vol. 102. P. 4027–4036.
- [18] Fleming G.R., Joo T., Cho M. // *Adv. Chem. Phys.* 1997. Vol. 100. P. 141–183.