Пикосекундная релаксация перенормировки запрещенной зоны GaAs, вызванной кулоновским взаимодействием носителей заряда

© Н.Н. Агеева, И.Л. Броневой, 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 28 сентября 2016 г. Принята к печати 7 ноября 2016 г.)

Экспериментально исследовалась динамика длинноволнового края спектра собственного стимулированного пикосекундного излучения, возникающего во время пикосекундной накачки GaAs. Обнаружен дефицит перенормировки запрещенной зоны, вызванной кулоновским взаимодействием носителей заряда, по сравнению с перенормировкой в квазистационарном состоянии. Предполагается, что дефицит обусловлен тем, что в условиях настоящего эксперимента время релаксации перенормировки относится к пикосекундному диапазону.

DOI: 10.21883/FTP.2017.05.44412.8353

1. Введение

В настоящей работе начато экспериментальное исследование в реальном времени, с разрешением $\sim 1\,\mathrm{nc},$ динамики длинноволнового края спектра собственного стимулированного пикосекундного излучения GaAs. Обратимое пикосекундное смещение этого края спектра в длинноволновую сторону интерпретировалось как следствие перенормировки запрещенной зоны. Наиболее вероятным представлялось, что перенормировка вызвана кулоновским взаимодействием носителей заряда. При этом обнаружилось, что динамическая перенормировка, т.е. происходящая во время пикосекундных накачки и стимулированного излучения, отличается от перенормировки в квазистационарном состоянии. Предполагается, что это отличие обусловлено тем, что время релаксации перенормировки относится к пикосекундному диапазону.

Ранее изменение ширины запрещенной зоны Е_g в GaAs исследовалось в значительном числе работ, например [1-3]. Исследование изменения Eg при варьировании параметров пикосекундной оптической накачки было выполнено в работе [4]. Изменение E_g определялось по смещению длинноволнового края интегрального по времени спектра стимулированного пикосекундного излучения GaAs. В работе [5] исследовались время-разрешенные спектры фотолюминесценции фотовозбужденных гетероструктур широкозонных II-VI полупроводников (разрешение 1.5 нс). При этом наблюдалась перенормировка запрещенной зоны и ее изменение при увеличении плотности оптической накачки. Постановка вышеперечисленных экспериментов отличалась от условий экспериментов в настоящей работе. В силу чего изучавшаяся в них перенормировка скорее относилась к перенормировке в квазистационарном состоянии. В фемтосекундном диапазоне времен сужение запрещенной зоны наблюдалось в работах [6,7].

2. Эксперимент

Опыты проводились при комнатной температуре на пикосекундном лазерном спектрофотохронометрическом комплексе. Краткое представление комплекса дано в [8]. Образец представлял собой гетероструктуру $Al_{0.22}Ga_{0.78}As-GaAs-Al_{0.4}Ga_{0.6}As$ с толщиной эпитаксиальных слоев 1.2-1.6-1.2 мкм соответственно. Предназначавшаяся для исследований область гетероструктуры была освобождена от подложки. Слои $Al_xGa_{1-x}As$ 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 $\hbar\omega_{\rm ex} = 1.558$ эВ, падавшего на образец под углом 10° относительно нормали к его поверхности, в слое GaAs генерировалась электронно-дырочная плазма. Ее плотность ($n = p > 10^{18}$ см⁻³) была достаточной для сверх-быстрого возникновения в GaAs стимулированного излучения длительностью ~ 10 пс [8]. Интенсивность излучения, усиливавшегося преимущественно при его распространении вдоль слоя GaAs, по оценкам [9] могла достигать > 10⁸ Вт · см⁻². Длительность возбуждающего импульса на полувысоте (FWHM) составляла около 10 пс. Диаметр возбуждающего луча (FWHM) составляла 0.5 мм.

В описываемом эксперименте измерялись в реальном времени огибающие возбуждающих импульсов, спектральных компонент собственного излучения и опорных импульсов. Ширина каждой спектральной компоненты излучения составляла $\delta\hbar\omega = 5$ мэВ. Энергия фотона в середине интервала $\delta\hbar\omega$ далее обозначена $\hbar\omega_{\delta}$. Измерения огибающей спектральной компоненты излучения выполнялись в принципе так же, как в [8,10]. Регистрация изменения со временем *t* интенсивности I_s компоненты излучения, пропущенной спектрографом, как



Рис. 1. 1 — спектр излучения, интегральный по времени, измеренный при $W_{\text{ex}} = 5$ отн. ед., 2 — спектр поглощения света в невозбужденном GaAs.

и интенсивности упомянутых импульсов, производилась пикосекундной электронно-оптической камерой (ЭОК) и ССD-камерой (ССD — charge-coupled device). Двойной спектрограф использовался в режиме вычитания дисперсии в качестве полосового фильтра длин волн, не искажающего длительность пропускаемого излучения. Результаты такого измерения огибающих далее называются хронограммами.

Взаимное распределение во времени вышеуказанных импульсов и компонент излучения устанавливалось иначе, чем в [8,10], благодаря следующему. Импульсы накачки и опорные генерировались двумя параметрическими генераторами света (ПГС), одновременно накачиваемыми двумя частями одного и того же светового импульса. Задержки между импульсами накачки и опорными импульсами с разной длиной волны света были измерены (прокалиброваны). Вместе с измеряемой спектральной компонентой собственного излучения в спектрограф поступал и измерялся опорный импульс той же длины волны, огибающая которого также присутствовала на хронограмме. В итоге это позволяло установить взаимное распределение во времени компонент излучения друг относительно друга и относительно импульса накачки.

На рис. 1 показан спектр излучения, интегральный по времени, измеренный при $W_{ex} = 5$ отн. ед. При его сопоставлении со спектром поглощения света в GaAs, измеренным в отсутствие накачки, видно следующее. Длинноволновый склон спектра излучения располагается в той спектральной области, которая относится к запрещенной зоне невозбужденного GaAs, т.е. эта часть излучения генерируется при межзонных переходах электронов между состояниями, возникающими при перенормировке запрещенной зоны. Последняя происходит вследствие накачки носителей заряда.

На рис. 2 представлены хронограммы накачки $I_{ex}(t)$ (кривая I) и вызываемого ею излучения $I_{\Sigma}(t)$ (кри-

2* Физика и техника полупроводников, 2017, том 51, вып. 5

вая 2), интегрального по спектру, при энергии импульса накачки $W_{\rm ex} = 6.8$ отн. ед. Излучение разгорается с пикосекундной задержкой относительно возбуждающего импульса (накачки), но релаксирует медленнее. На рис. 2 также представлены хронограммы излучения $I_{\Sigma}(t)$ при $W_{\rm ex} = 3.3, 5, 6.8$ отн. ед. (кривые 3-5 соответственно). Вертикальные пунктирные линии, относящиеся к одному и тому же значению времени, условно разделяют хронограммы на две части. Левая часть представлена в линейном масштабе, а правая — в полулогарифмическом. Это сделано для удобства последующего обсуждения. В нем учитывается различная крутизна фронтов излучения и, естественно, накачки при использованных энергиях $W_{\rm ex}$, а также то (см. рис. 2), что релаксация излучения происходит экспоненциально, в согласии с [8], приблизительно с одним и тем же характерным временем $\tau_r \approx 10$ пс. Для наглядности, чтобы вершины графика для фиксированной Wex в линейном и полулогарифмическом масштабах совпадали, был использован поправочный коэффициент k. В эксперименте диапазон изменения W_{ex} ограничивался снизу чувствительностью измерительной аппаратуры, а сверху опасностью наведения радиационных дефектов в GaAs.



Рис. 2. *1* — хронограмма накачки $I_{ex}(t)$ и 2 — хронограмма интегрального по спектру излучения $I_{\Sigma}(t)$ при энергии импульса накачки $W_{ex} = 6.8$ отн. ед. Хронограммы излучения $I_{\Sigma}(t)$ при W_{ex} , отн. ед.: 3 — 3.3, 4 — 5, 5 — 6.8. Коэффициент k поясняется в тексте. 6 — касательная к спаду хронограммы 5, соответствующая релаксации с характерным временем 9.5 пс.



Рис. 3. Края длинноволновых склонов спектров излучения при $W_{\text{ex}} = 5$ отн. ед. в моменты времени t, пс: 1 - 8, 2 - 16, 3 - 24.



Рис. 4. Зависимость энергии фотона $\hbar \omega_e$ от времени для I_s , отн. ед.: I - 80, 2 - 150, 3 - 250. 4 -хронограмма излучения $I_{\Sigma}(t)$, измеренная при $W_{\text{ex}} = 5$ отн. ед. На вставке к рисунку представлена задержка Δt в функции от W_{ex} (незакрашенный квадрат представляет значение Δt , полученное из данных работы [10]).

Из хронограмм спектральных компонент излучения $I_s(t)$ восстанавливались длинноволновые склоны мгновенных спектров излучения. Края склона для трех моментов времени при $W_{\rm ex} = 5$ отн. ед. демонстрирует рис. 3. "Непрерывное" перемещение края спектра во времени иллюстрируют зависимости энергий фотона $\hbar\omega_e(t)$ для тех точек склона, где интенсивность компоненты излучения равнялась $I_s = 80$, 150, 250 отн. ед. (см. рис. 4, кривые 1-3 соответственно).

На рис. 4 приведен также график $I_{\Sigma}(t)$ (кривая 4). При сопоставлении зависимостей $\hbar \omega_e(t)$ и $I_{\Sigma}(t)$ видно, что для первых минимальная $\hbar \omega_e$ достигается позднее того момента времени, на который приходится максимум I_{Σ} . Соответствующая задержка Δt представлена в функции от $W_{\rm ex}$ на вставке к рис. 4. Там же приведена задержка для данных работы [10], проанализированных вышеизложенным образом.

3. Обсуждение результатов

Небольшое отличие наклона крутых участков графиков $I_s(\hbar\omega_\delta)$ на рис. З является, видимо, результатом охлаждения электронно-дырочной плазмы (ЭДП) со временем. По той же причине предположительно возникает незначительная непараллельность графиков $\hbar \omega_e(t)$ на рис. 4. При этом можно предполагать, что перемещение края спектра со временем отображает, по крайней мере в первом приближении, сужение запрещенной зоны. Это сужение вызвано перенормировкой запрещенной зоны вследствие кулоновского взаимодействия носителей заряда. Такое предположение на данном этапе исследований представляется наиболее вероятной интерпретацией полученных экспериментальных результатов. Оно также согласуется с тем, что, во-первых, длинноволновый склон спектра излучения генерируется при межзонных переходах электронов между состояниями, возникающими при перенормировке запрещенной зоны вследствие накачки носителей заряда (рис. 1). Во-вторых, с наблюдением перенормировки запрещенной зоны по длинноволновому краю спектров излучения в [4,5].

В исследованном временном интервале сопоставим положение края спектра с интенсивностью излучения в один и тот же момент времени t. Графики, иллюстрирующие такую зависимость $\hbar \omega_e(I_{\Sigma})$ для $I_s = 80$ отн. ед. и $W_{\rm ex} = 3.3, 5, 6.8$ отн. ед., представлены кривыми 1, 3, 4на рис. 5. На том же рисунке представлен аналогичный график (кривая 2) по данным работы [10]. Сразу можно заключить, что альтернативное объяснение сужения запрещенной зоны разогревом решетки маловероятно в связи со следующим. При увеличении энергии импульса накачки разогрев решетки, вызванный теплопередачей от ЭДП, должен возрастать. Тогда при увеличении температуры решетки ширина запрещенной зоны должна уменьшаться [11]. Но из рис. 5 видно, что минимальная энергия $\hbar \omega_e$ приблизительно одинакова при всех энергиях импульса накачки.

Прежде чем перейти к обсуждению графиков рис. 5, отметим следующее. В рассматриваемом случае при релаксации излучения его интенсивность пропорциональна плотности ЭДП:

$$I_{\Sigma} \sim n/\tau_r, \qquad (1)$$

как подтверждалось в [8,9]. Предположим, что соотношение (1) приблизительно справедливо и для фронта излучения. Заметим, что с последним согласуется, во-первых,



Рис. 5. Энергия фотона длинноволнового края спектра $\hbar\omega_e$, при которой $I_s = 80$ отн.ед., в зависимости от I_{Σ} при W_{ex} , отн.ед.: I = 3.3, 2 = 4 (по данным работы [10]), 3 = 5, 4 = 6.8.

почти синхронное (с пикосекундной задержкой) возрастание интенсивности излучения I_{Σ} и интенсивности света накачки I_{ex} (см. рис. 2). Во-вторых, сочетание экспериментально наблюдавшихся ранее соотношений $W_s \sim W_{ex}$ [12] и $W_{ex} \sim n$ [13], где W_s — энергия излучения. При этом пропорциональность $n \sim W_{ex}$ была представлена в [13] для n во время на 5 пс позднее максимума возбуждающего импульса, т.е. когда в тех условиях приблизительно должен был, согласно [8], достигаться максимум излучения. При вышеназванном предположении можно считать, что зависимости $\hbar \omega_e(I_{\Sigma})$ и $\hbar \omega_e(n)$ взаимосвязаны и формы их графиков подобны. Это допускает нижеследующее объяснение обнаруженной петлеобразной формы графиков $\hbar \omega_e(I_{\Sigma})$ (рис. 5).

На рис. 5 значения $\hbar \omega_e$ при одинаковых I_{Σ} (значит, при одинаковых n) на фронте и на спаде излучения (изменения плотности ЭДП) отличаются для накачки с фиксированной Wex. При этом видно, что это отличие уменьшается при уменьшении Wex. Напомним, что неоднозначная зависимость величин наблюдается в любых процессах, так как для изменения состояния тела всегда требуется определенное время (время релаксации), и реакция тела отстает от вызывающих ее причин. Такое отставание тем меньше, чем медленнее изменяются внешние условия [14]. Последнее наблюдалось в нашем случае, учитывая, что при уменьшении W_{ex} уменьшалась крутизна фронта излучения и изменения n. Тогда можно интерпретировать неоднозначность $\hbar \omega_e(I_{\Sigma})$ как следствие того, что время релаксации перенормировки ширины запрещенной зоны θ относится к пикосекундному диапазону. С этим согласуется и время задержки 11.5–16 пс, представленное графиком $\Delta t(W_{ex})$ на вставке рис. 4. Отметим, что обсуждаемая неоднозначность, по-видимому, не гистерезис, поскольку при гистерезисе

отставание при замедлении изменения внешних условий не уменьшается.

Время θ по сути является временем установления скоррелированного распределения взаимодействующих носителей, или временем "залечивания" отклонений от этого распределения. То, что $\theta \sim \Delta t$, согласуется с тем, что "не залечивается" пикосекундная автомодуляция заселенностей носителей, образующаяся под влиянием излучения [15].

Перенормировку запрещенной зоны из-за кулоновского взаимодействия носителей условно разделим на динамическую и квазистационарную в зависимости от того, существенно или нет время ее релаксации. К квазистационарной перенормировке относится, в частности, сужение запрещенной зоны ΔE_{g-st} , наблюдавшееся в работе [4]. Оценки, приведенные в работе [4], показали, что в условиях этих экспериментов вклад корреляционной энергии мал. С учетом только обменной энергии

$$\Delta E_{g-st} = 4/3 \left(E_{\text{ex}}^e + E_{\text{ex}}^h \right), \tag{2}$$

где E_{ex}^{e} и E_{ex}^{h} — обменная энергия соответственно электрона (e) и дырки (h):

$$E_{\rm ex}^e = -3e^2 (3\pi^2 n_{\Gamma})^{1/3} / 4\pi\varepsilon,$$

$$E_{\rm ex}^h = -3e^2 \eta (3\pi^2 p)^{1/3} / 4\pi\varepsilon.$$
(3)

Здесь е — заряд электрона, n_{Γ} — концентрации электронов в долине Γ_6 , р — суммарная концентрация тяжелых и легких дырок, $\varepsilon = 12.85$ — статическая диэлектрическая проницаемость, $\eta = 0.73$ — коэффициент, учитывающий "зацепление" легких и тяжелых дырок [16]. Зависимость, рассчитанная по формулам (2), (3), с учетом незначительного вклада корреляционной энергии, распределения электронов между Γ_6 - и L_6 -долинами:

$$E_g = E_g^0 + \Delta E_{g-st}(n), \tag{4}$$

удовлетворительно согласовалась с экспериментальными результатами, как подтверждает рис. 2 в [4]. Здесь E_g^0 — ширина запрещенной зоны невозбужденного образца, $n = p = n_{\Gamma} + n_L$ — полная концентрация фотогенерированных пар электронов и дырок, n_L — концентрация электронов в долине L_6 . При этом согласие расчета с экспериментом было достигнуто без учета изменения обменной энергии с температурой. Зависимость (4) иллюстрирует монотонно убывающая кривая *1* на рис. 6. В отличие от нее при динамической перенормировке график сужения запрещенной зоны характеризуется наличием "релаксационной петли", подобной представленным на рис. 5.

На графике 1 рис. 6 минимальная за импульс излучения энергия $\hbar \omega_s^e$ уменьшается при увеличении *n*. В настоящей работе минимальное значение энергии фотона $\hbar \omega_e$ для фиксированной $W_{\rm ex}$ менялось незначительно при изменении $W_{\rm ex}$, что видно из рис. 5. Это различие объясняется следующим. Влияние релаксации перенормировки — это нелинейный эффект по отношению к



Рис. 6. 1 — расчетная зависимость ширины запрещенной зоны E_g от полной концентрации пар электронов и дырок *n*. Зависимость $\hbar \omega_s^e$ от плотности энергии излучения D_s при F = 0.7 мм, $\hbar \omega_{ex} = 1.485$ зВ из [4] — 2, $\hbar \omega_{ex} = 1.54$ зВ, F = 0.65 мм — 3. Схематические графики дефицита перенормировки $\delta E_g(n)$ при W_{ex} , отн. ед.: 4 - 3.3, 5 - 5, 6 - 6.8.

интенсивности излучения и накачки. В [4] интенсивности были в основном существенно меньше, чем в настоящей работе, поскольку были меньше: (а) диаметры луча накачки F, от которых зависит длина усиления излучения; (б) энергии $\hbar \omega_{\rm ex}$, а значит, и коэффициент поглощения света накачки. Влияние релаксации, если оно и возникало где-то в [4], было существенно слабее, чем теперь, и перенормировка удовлетворительно согласовывалась с зависимостью (4). При увеличении интенсивности накачки и излучения становится существенным влияние релаксации перенормировки, которая должна тогда отклоняться от зависимости (4). Последнее подтверждается следующим образом. В работе [4] было обнаружено, что при обоснованном там соотношении между плотностью энергии излучения D_s и n зависимость $\hbar \omega_e(D_s)$ совпадала с расчетной зависимостью (4), см. рис. 2 в указанной работе. Но на рис. 6 экспериментальные точки ложатся выше графика 1, все более отклоняясь от него при увеличении D_s : (a) при F = 0.7 мм и $\hbar \omega_{
m ex} = 1.485$ эВ из [4], кривая 2 (это единственный случай, когда в [4] диаметр F был больше, чем в настоящей работе); (б) при увеличении $\hbar \omega_{ex}$ до 1.54 эВ и *F* = 0.65 мм, кривая *3*.

На настоящем первом этапе исследований мы можем только схематично представить, какой дефицит перенормировки

$$\delta E_g = \hbar \omega_e - E_{g-st} \tag{5}$$

мог возникать к моменту достижения интенсивности I_{Σ} и соответствующей ей плотности *n*. Для этого мы допускаем, что излучение разгорается порогово при $n = 1.3 \cdot 10^{18} \,\mathrm{cm}^{-3}$ (это типично), и что $I_{\Sigma} = 2290$ отн. ед. при $n = 1.15 \cdot 10^{19} \,\mathrm{cm}^{-3}$. Схематические графики $\delta E_g(n)$ при разных $W_{\rm ex}$ представлены на рис. 6. Максимальное отклонение величины δE_g , определенной в соответствии с (5), от графика не превышало 1.5%. Графики $\delta E_g(n)$ имеют форму, близкую к острому углу со сглаженной вершиной. Верхний луч угла соответствует фронту изменения плотности *n* и излучения, а нижний — их спаду. На спаде излучения I_{Σ} и плотности n зависимость $\delta E_g(n)$ оказалась линейной и единой для использовавшихся Wex. Последнее естественно, поскольку независимо от Wex релаксация излучения (рис. 2), а значит, и плотности *n* происходит экспоненциально с единым характерным временем т_r. Для вышеуказанного фронта зависимость $\delta E_g(n)$ оказалась близкой к слабо спадающей линейной или даже к константе. При этом дефицит перенормировки δE_g при фиксированной n (или I_{Σ}) оказывался тем меньше, чем меньше Wex, а значит, чем больше было время, за которое достигалась эта n (или I_{Σ} , рис. 2). Это согласуется с предложенной в работе интерпретацией, основанной на влиянии на перенормировку времени ее релаксации. Можно надеяться, что вышеизложенные результаты будут стимулировать дальнейшее экспериментальное исследование обнаруженной динамической перенормировки и создание ее теории. При этом следует учитывать, что важным обстоятельством того, что динамическая перенормировка оказывается меньше статической, возможно, является наличие мощного собственного стимулированного пикосекундного излучения. При наличии излучения установление коррелированного распределения носителей может тормозиться из-за: а) энергетического потока электронов ко дну зоны проводимости и аналогичного потока дырок в валентной зоне; б) вынужденной рекомбинации носителей заряда; в) осцилляций (Раби) носителей между зонами валентной и проводимости.

Авторы глубоко признательны Э.А. Маныкину за прочтение и обсуждение рукописи статьи.

Список литературы

- J. Shah, R.F. Leheny, C. Lin. Sol. St. Commun., 18, 1035 (1976).
- [2] H.C. Casey, F. Stern. J. Appl. Phys., 47, 631 (1976).
- [3] S. Tarucha, H. Kobayashi, Y. Horikoshi, H. Okamoto. Jpn. J. Appl. Phys., 23, 874 (1984).
- [4] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневой, А.Н. Кривоносов. ФТП, 35 (1), 65 (2001).
- [5] С.В. Зайцев, Д.Р. Яковлев, Ф. Вааг. ФТП, **43** (2), 224 (2009).
- [6] F.X. Camescasse, A. Alexandrou, D. Hulin, L. Banyai, D.B. Tran Thoai, H. Haug. Phys. Rev. Lett., 77 (27), 5429 (1996).
- [7] T. Apostolova, A.A. Ionin, S.I. Kudryashov, L.V. Seleznev, D.V. Sinitsyn. Opt. Engin., 51 (12), 121808-1 (2012).

- [8] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневой, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. ЖЭТФ, 143, 634 (2013).
- [9] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневой, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. ФТП, 44, 1157 (2010).
- [10] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневой, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. ЖЭТФ, 144, 227 (2013).
- [11] J.S. Blakemore. J. Appl. Phys., 53, R123 (1982).
- [12] И.Л. Броневой, А.Н. Кривоносов. ФТП, **32** (5), 537 (1998).
- [13] И.Л. Броневой, С.Е. Кумеков, В.И. Перель. Письма ЖЭТФ,
 43, 368 (1986).
- [14] Физический энциклопедический словарь (М., Сов. энцикл., 1983).
- [15] Н.Н. Агеева, И.Л. Броневой, Д.Н. Забегаев, А.Н. Кривоносов. ФТП, **50** (10), 1333 (2016).
- [16] M. Combescot, P. Noziers. J. Phys. C, 5, 2369 (1972).

Редактор Г.А. Оганесян

Picosecond relaxation of the GaAs band gap renormalization caused by charge carriers Coulomb interaction

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

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

Abstract Dynamic of spectrum long-wavelength edge of intrinsic stimulated picosecond emission which arises during picosecond pumping of GaAs was experimentally studied. Lack of band gap renormalization caused by Coulomb interaction of charge carriers, compared to renormalization in quasi-stationary state, was revealed. It is assumed that the lack is caused by the fact that renormalization relaxation time in the experimental conditions is related to picosecond range.